



Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο  
Σχολή Χημικών Μηχανικών  
Τομέας II – Ανάλυσης, Σχεδιασμού και Ανάπτυξης Διεργασιών και  
Συστημάτων

Διπλωματική Εργασία  
ΤΟΥ  
Σκουτέρη Αλκιβιάδη

**Αποδοτική μείωση τάξης 3-D μοντέλου  
Χημικής Απόθεσης από Ατμό με τη  
Μέθοδο Κυρίων Συνιστωσών και Τεχνητά  
Νευρωνικά Δίκτυα**

Επιβλέπων Καθηγητής  
**Ανδρέας Μπουντουβής**

Αθήνα  
Φεβρουάριος 2018



## Ευχαριστίες

Ολοκληρώνοντας την εργασία αυτή και κατά συνέπεια τις σπουδές μου, οφείλω να ευχαριστήσω κάποια πρόσωπα που με τον ένα ή με τον άλλο τρόπο με βοήθησαν όλα αυτά τα χρόνια και συνεισέφεραν στην πραγματοποίηση των στόχων μου.

Αρχικά, θα ήθελα να ευχαριστήσω τον επιβλέποντα καθηγητή αυτής της εργασίας, κ. Ανδρέα Μπουντουβή, τόσο για την ευκαιρία μου που προσέφερε να εκπονήσω τη διπλωματική μου εργασία υπό την επίβλεψη του ίδιου και της ερευνητικής του ομάδας, όσο και για τις πολύτιμες κατευθυντήριες συμβουλές, οδηγίες και υποδείξεις που μου προσέφερε τον τελευταίο χρόνο σχετικά με τη μετέπειτα ακαδημαϊκή μου πορεία. Η εμπιστοσύνη που μου έδειξε όλο αυτό τον καιρό έπαιξε καθοριστικό ρόλο στην επίτευξη των στόχων μου σε ακαδημαϊκό επίπεδο αλλά και στην εσωτερική μου αναζήτηση σχετικά με την πορεία μου και το ερευνητικό πεδίο που με ενδιαφέρει και θα ήθελα να ακολουθήσω.

Στη συνέχεια, θα ήθελα να ευχαριστήσω τον υποψήφιο διδάκτορα Παύλο Γκίνη για τη συνεχή και αδιάκοπη καθοδήγηση που μου παρείχε από την πρώτη έως και την τελευταία μέρα. Η άψογη συνεργασία μας συνεισέφερε κατά μεγάλο ποσοστό στην επιτυχή ολοκλήρωση της εργασίας. Οι συζητήσεις που είχαμε σε όλους τους σχετικούς με την εργασία τομείς με οδήγησαν στην διεύρυνση των γνώσεων μου, ενώ χωρίς τις εκτεταμένες γνώσεις προγραμματισμού που κατέχει ίσως να μην ήταν εφικτή η πραγματοποίηση της εργασίας.

Επιπλέον, ευχαριστώ και τη δρα. Ελένη Κορωνάκη για τη βοήθεια που μου προσέφερε με τις πολύτιμες γνώσεις της σε θέματα υπολογιστικής ρευστοδυναμικής και μείωσης τάξης μοντέλων, καθώς και για την καθοδήγηση και τις συμβουλές που μου παρείχε κατά τη διάρκεια της εκπόνησης αυτής της εργασίας. Η γνώμη της πάνω στα αποτελέσματα της εργασίας ήταν επίσης ιδιαίτερα σημαντική.

Επίσης, ευχαριστώ και το δρα. Ιωάννη Αβιζιώτη για τις γνώσεις που μου παρείχε σχετικά με το μελετώμενο σύστημα αλλά και όλο το υλικό που μου διέθεσε απλόχερα, το οποίο περιλαμβάνει το λεπτομερές μοντέλο και τα πειραματικά αποτελέσματα του αντιδραστήρα. Η εργασία αυτή βασίστηκε στα παραπάνω.

Τέλος, ένα τεράστιο ευχαριστώ οφείλω στην οικογένεια μου και στους φίλους μου, εντός και εκτός σχολής. Μπορεί να μην έπαιξαν άμεσο ρόλο στην εκπόνηση αυτής της εργασίας, αλλά στέκονται συνεχώς στο πλευρό μου στηρίζοντας με και κάνοντας τη πορεία πιο ευχάριστη και ενδιαφέρουσα. Από αυτούς θα ήθελα να ξεχωρίσω τη μητέρα μου Μαρία που συνεχώς με βοηθάει και στηρίζει οποιαδήποτε επιλογή και αν κάνω, καθώς και τη φίλη μου Ελισάβετ που πάντα πιστεύει στις δυνατότητες μου, ακόμα και σε περιόδους που δεν πίστευα ούτε εγώ ο ίδιος.



## Περίληψη

Στη παρούσα εργασία αναπτύχθηκε ένα υπολογιστικό πλαίσιο αποδοτικής και αποτελεσματικής αντιμετώπισης τρι-διάστατων (3-D) CFD μοντέλων μεγάλης κλίμακας που περιγράφουν, στη συγκεκριμένη εφαρμογή αλλά όχι αποκλειστικά, Χημική Απόθεση από Ατμό (ΧΑΑ). Οι μη γραμμικές εξισώσεις που εκφράζουν τα φαινόμενα μεταφοράς και τις κινητικές των αντιδράσεων που λαμβάνουν χώρα στον αντιδραστήρα, διακριτοποιούνται με τη Μέθοδο Πεπερασμένων Όγκων και επιλύονται από τον κώδικα υπολογιστικής ρευστοδυναμικής ANSYS/Fluent 17. Το μέγεθος του μοντέλου που προκύπτει καθιστά την υπολογιστική του μελέτη χρονοβόρα. Επιπλέον, η ανάγκη εισαγωγής στρατηγικών ρύθμισης και βελτιστοποίησης σε πραγματικό χρόνο συνεισφέρουν στην ιδέα ανάπτυξης ενός αλγορίθμου «παρακάμψης».

Κύρια ιδέα της εργασίας αποτελεί η ανάπτυξη μοντέλου μειωμένης τάξης (ROM) από τα αποτελέσματα προσομοιώσεων του λεπτομερούς μοντέλου, στόχος που πραγματοποιείται με τη συνδυασμένη χρήση της Μεθόδου των Στιγμιοτύπων -η οποία αποτελεί παραλλαγή της γενικότερης Ανάλυσης Κυρίων Συνιστωσών (PCA)- και Τεχνητών Νευρωνικών Δικτύων (ANN), δηλαδή υπολογιστικών αλγορίθμων μηχανικής μάθησης. Από την πρώτη προσδιορίζεται η ορθοκανονική βάση που περιέχει τη χωρική εξάρτηση της λύσης, ενώ από τα ANN υπολογίζονται οι συντελεστές της βάσης, οι οποίοι περιέχουν τη δυναμική του συστήματος. Το ROM αυτό είναι ικανό να προβλέψει τη δυναμική απόκριση του συστήματος με πολύ μικρό σφάλμα και σε πολύ μικρό χρόνο.

Τα αναγκαία αποτελέσματα που προαναφέρθηκαν λαμβάνονται από την παράλληλη επίλυση του λεπτομερούς μοντέλου σε μεταβατική κατάσταση, οπότε απαιτείται η ανάπτυξη παράλληλου κώδικα για την διαχείριση αυτών των δεδομένων μεγάλης κλίμακας. Επιπλέον, επιστρατεύεται και η τεχνική της παρεμβολής με σκοπό την εμφύτευση λύσεων αραιού πλέγματος σε πυκνό πλέγμα ως αρχική εκτίμηση, κάτι που μειώνει κατά πολύ τον απαιτούμενο χρόνο, τόσο για τη δημιουργία του ROM, όσο και για τη μετέπειτα προσομοίωση του.

Ο προσδιορισμός του ελάχιστου απαραίτητου πλήθους στιγμιοτύπων από τα οποία δημιουργείται η βάση αλλά και ο αναγκαίος ελάχιστος αριθμός ιδιοδιανυσμάτων που αυτή περιέχει πραγματοποιήθηκε μέσω διερεύνησης. Η επιλογή των βέλτιστων αυτών παραμέτρων πραγματοποιήθηκε με γνώμονα το σφάλμα της προσέγγισης σε συνδυασμό με τον «όγκο» της απαιτούμενης πληροφορίας. Έτσι, προέκυψε ότι μια βάση που αποτελείται από 2 διανύσματα και έχει δημιουργηθεί από τα στιγμιότυπα της απόκρισης του λεπτομερούς μοντέλου σε 4 βηματικές επιβολές είναι ικανή να προβλέψει λύσεις με πολύ μικρό σφάλμα ( $6.24 \cdot 10^{-3}$  % μέσο σφάλμα). Οι σχεδιαστικές παράμετροι των ANN προσδιορίστηκαν επίσης με αντίστοιχη διερεύνηση, από την οποία προέκυψε ότι ένα NARX\* δίκτυο ενός κρυφού επιπέδου, το οποίο περιέχει 5 νευρώνες, είναι ικανό να προβλέψει λύσεις με πολύ μικρό σφάλμα ( $1.87 \cdot 10^{-2}$  %

μέσο σφάλμα). Άλλοι σχεδιαστικοί παράμετροι του δικτύου είναι ο αριθμός των καθυστερήσεων εισόδου και εξόδου, όπου και για τις δύο επιλέχθηκε μία καθυστέρηση, ο αλγόριθμος εκπαίδευσης (Μπεϋζιανή Κανονικοποίηση) και το πλήθος των επιβολών εκπαίδευσης, όπου χρησιμοποιήθηκαν 7 επιβολές.

Τα υπολογιστικά οφέλη που συνοδεύουν τη χρήση αυτού του πλαισίου είναι πολύ σημαντικά, καθώς προκύπτει 96% μείωση στον CPU χρόνο για τη λήψη λύσης από το ROM και παρεμβολή της στο πυκνό πλέγμα με σκοπό την αριστοποίηση της, συγκριτικά με την απευθείας παράλληλη επίλυση του λεπτομερούς μοντέλου χωρίς αντιδράσεις. Επιπλέον, προκύπτει 60% μείωση στον CPU χρόνο για τη λήψη λύσης από το ROM και χρήση της ως αρχική εκτίμηση στο πλήρες λεπτομερές μοντέλο (συμπεριλαμβάνονται οι αντιδράσεις) μέσω παρεμβολής, με σκοπό τον υπολογισμό του ρυθμού απόθεσης. Η σύγκριση γίνεται με την απευθείας παράλληλη επίλυση του πλήρους λεπτομερούς μοντέλου. Τέλος, αναφέρεται ότι η τεχνική της παρεμβολής συνεισέφερε σημαντικά και στη μείωση του υπολογιστικού κόστους δημιουργίας του ROM, αφού μείωσε τον απαραίτητο CPU χρόνο κατά 88% και την απαραίτητη μνήμη RAM κατά 70%.

Σε δεύτερη φάση, το προαναφερθέν πλαίσιο εφαρμόζεται για την αξιολόγηση ενός πολύπλοκου κινητικού μοντέλου της διεργασίας απόθεσης αλουμινίου από DMEAA. Το μοντέλο αυτό βασίστηκε σε προηγούμενη εργασία, όπου οι κινητικές του σταθερές προσδιορίστηκαν με προσαρμογή του μοντέλο δι-διάστατου πλέγματος σε πειραματικές μετρήσεις, με τα αποτελέσματα να είναι πολύ ικανοποιητικά. Στην παρούσα εργασία επιχειρείται η επαλήθευση των παραπάνω ευρημάτων και σε τρι-διάστατο πλέγμα και εξετάζεται εάν είναι αναγκαία η επαναπροσαρμογή των κινητικών παραμέτρων του μοντέλου με βάση το 3-D μοντέλο, το οποίο θεωρείται σε γενικές γραμμές πιο αξιόπιστο από το αντίστοιχο 2-D. Τα αποτελέσματα έδειξαν ότι το κινητικό μοντέλο εμφανίζει μεγάλη ακρίβεια και στην περίπτωση τρι-διάστατου πλέγματος, αν και όπως είναι φυσικό απαιτείται μια μικρή αναπροσαρμογή των κινητικών του σταθερών με βάση το 3-D πλέγμα. Επιπλέον, μελετήθηκε η κατανομή του ρυθμού απόθεσης κατά μήκος του υποστρώματος για διάφορες θερμοκρασίες, όπου διαπιστώθηκε ότι στους 245 °C η ανομοιομορφία πάχους των παραγόμενων υμενίων είναι πολύ μεγάλη ενώ επίσης ο ρυθμός απόθεσης πολύ χαμηλός, οπότε η θερμοκρασία αυτή πρέπει να αποφεύγεται. Όσον αφορά τους 151 °C και τους 185 °C, η επιλογή ανάμεσα τους καθορίζεται από τη σχετική προτεραιότητα, στην εκάστοτε εφαρμογή, μεταξύ ταχύτητας απόθεσης και ανομοιομορφίας πάχους παραγόμενου υμενίου.

# **Effective order reduction of a 3-D chemical vapor deposition model by using principal components analysis and artificial neural networks**

**Diploma Thesis**  
**by**  
**Alkiviadis Skouteris**

## **Abstract**

In this thesis, a computational framework is developed for dealing efficiently and effectively with three-dimensional (3-D) CFD large-scale models that describe, in this application but not exclusively, Chemical Vapor Deposition. The nonlinear equations that express the transport phenomena and the kinetics of the chemical reactions that take place in the reactor, are discretized, in this thesis with the Finite Volume Method and solved by the CFD code ANSYS/Fluent 17. The size of the resulting model is such that renders the computational investigation time-consuming. Moreover, the need to introduce some type of model predictive control and optimization strategies, contributes to the idea to develop an algorithmic “shortcut”.

The main idea here is the development of a Reduced Order Model (ROM) from the simulation results of the detailed model, which is achieved by the combined use of the Snapshots Method –a variation of the more general Principal Component Analysis (PCA)– and Artificial Neural Networks (ANN), which are machine learning computational algorithms. The first one is used in order to determine an orthonormal basis that contains the spatial dependence of the solution, while the ANN computes the coefficients of the basis, which contain the system dynamics. This ROM is capable of predicting the dynamic response of the system with a very small error and in a very small amount of time.

The snapshots necessary for the development of the ROM are derived from a parallel implementation of the transient CFD model, which required particular code development for the manipulation of this large-scale data. To take things a step further, the snapshots are

delivered by a coarse mesh and are then fed to a finer mesh model, where they are being used as an initial estimation. This greatly reduces the required time for both the creation of the ROM, as well as its following simulation.

The minimum required number of snapshots from which the basis is created, as well as the minimum needed number of eigenvectors that it contains, are being determined through an investigation. The selection of the best values for these parameters was conducted by considering both the error of the approximation and the “volume” of the required information. Thus, it was concluded that a basis that consists of 2 vectors, created by the snapshots of the detailed model response in 4 step inputs is capable of predicting solutions with a very small error ( $6.24 \cdot 10^{-3}$  % average error). The design parameters of the ANN were also determined through a similar investigation, from which it was concluded that a NARX\* network of one hidden layer that contains 5 neurons is capable of predicting solutions with a very small error ( $1.87 \cdot 10^{-2}$  % average error). Other design parameters for the network include the number of input and output delays, both of which are selected to be equal to 1, the training algorithm (Bayesian Regularization) and the number of training input sets, which in this case are 7.

The computational benefits that come with using this framework are substantial, since a 96% drop in CPU time has been observed, if obtaining a solution from the ROM and interpolating to the fine mesh in order to optimize it, is compared to the direct parallel solution of the detailed model with no reactions enabled. Moreover, the CPU time needed to obtain a solution from the ROM and use it as an initial estimation for the complete detailed model (reactions included) through interpolation, is reduced by 60% compared to the direct parallel solution of the complete detailed model. In this way, the computation of the deposition rate is achieved. Finally, it is reported that the technique of interpolation also contributes to the reduction of the computational cost of creating the ROM by a great extent, as it reduced the required CPU time by 88% and the required RAM memory by 70%.

In the second part of this thesis, the aforementioned framework is applied in order to evaluate a complex kinetic model of the aluminum deposition by DMEAA process. This model was developed in a previous diploma thesis, where the kinetic constants were computed by fitting the 2-D mesh model on experimental measurements, with the results being very satisfying. In this thesis, the verification of the above findings is attempted in a 3-D mesh, which is generally considered as more reliable compared to the 2-D. Additionally, the need to readjust the kinetic parameters based on the three-dimensional model is investigated. The results indicated that the kinetic model is very accurate in the 3-D mesh, as well, even though a minor readjustment of the kinetic constants based on the 3-D mesh is required, which was of course expected. Additionally, the distribution of the deposition rate across the substrate was studied for different temperatures, which showed that at 245 °C the thickness uniformity of the

produced films is considerably low, while also the deposition rate is very small, so this temperature should be avoided. As far as the temperatures 151 °C and 185 °C are concerned, the selection between them should be made based on the relative weight that is given in production speed and uniformity for each application.

\* Nonlinear Autoregressive model process with eXogenous input

## **Λέξεις-Κλειδιά / Key-words**

Χημική απόθεση από ατμό / Chemical vapor deposition (CVD), Υπολογιστική ρευστοδυναμική / Computational Fluid Dynamics (CFD), Μείωση τάξης μοντέλου / Model Order Reduction (ROM), Ανάλυση Κυρίων Συνιστωσών / Principal Component Analysis (PCA) – Proper Orthogonal Decomposition (POD), Τεχνητά Νευρωνικά Δίκτυα / Artificial Neural Networks (ANN), Παράλληλος Προγραμματισμός / Parallel Programming, Παρεμβολή / Interpolation

## Περιεχόμενα

Ευχαριστίες.....	2
Περίληψη.....	4
Abstract .....	6
Λέξεις-Κλειδιά / Key-words.....	8
1. Χημική απόθεση από ατμό .....	13
1.1. Εισαγωγή – Εφαρμογές.....	13
1.2. Αρχή λειτουργίας - Στάδια .....	14
1.3. Κινητική ΧΑΑ – Εξάρτηση από θερμοκρασία .....	17
1.4. Χημικές Αντιδράσεις – Πρόδρομη ένωση .....	20
1.5. Είδη διεργασιών ΧΑΑ – Τύποι αντιδραστήρων.....	22
1.6. Πλεονεκτήματα και περιορισμοί της ΧΑΑ.....	24
2. Υπολογιστική μελέτη ΧΑΑ:Μαθηματική μοντελοποίηση και προσομοίωση της διεργασίας 28	
2.1. Εισαγωγή – Σκοπός/οφέλη υπολογιστικής μελέτης .....	28
2.2. Μακροσκοπικό μαθηματικό μοντέλο .....	31
2.2.1. Εξισώσεις φαινομένων μεταφοράς .....	32
2.2.2. Κινητικές εξισώσεις χημικών αντιδράσεων .....	36
2.3. Διακριτοποίηση υπολογιστικού χωρίου – Μέθοδος επίλυσης .....	38
2.3.1. Διακριτοποίηση χώρου αντιδραστήρα .....	38
2.3.2. Επίλυση διακριτοποιημένου μοντέλου – Μέθοδος πεπερασμένων όγκων.....	40
2.3.3. Διακριτοποίηση στο χρόνο και επίλυση σε μεταβατική κατάσταση .....	44
3. Μελετώμενη διεργασία – Σκοπός παρούσας εργασίας .....	47
3.1. Χημική απόθεση από ατμό υμενίων αλουμινίου (Al).....	47
3.1.1. Γενικά περί διεργασίας .....	47
3.1.2. Πρόδρομες ενώσεις - DMEAA .....	48
3.1.3. Χημικό μοντέλο διεργασίας .....	50
3.2. Πειραματική διάταξη: Αντιδραστήρας διεργασίας.....	56
3.3. Υπολογιστική προσομοίωση διεργασίας .....	59
3.3.1. Υπολογιστικό χωρίο.....	59
3.3.2. Διακριτοποίηση υπολογιστικού χωρίου .....	61
3.3.3. Συνθήκες λειτουργίας διεργασίας → συνοριακές συνθήκες μοντέλου .....	62

3.4.	Σκοπός παρούσας εργασίας.....	63
4.	Δευτερεύουσες τεχνικές: Α) Παράλληλη επεξεργασία και προγραμματισμός, Β) Παρεμβολή πλέγμα-σε-πλέγμα .....	67
4.1.	Παράλληλη επεξεργασία και προγραμματισμός.....	67
4.1.1.	Εισαγωγή.....	67
4.1.2.	Συστοιχίες υπολογιστών και άλλες βασικές έννοιες παράλληλης επεξεργασίας ....	68
4.1.3.	Ο παράλληλος επιλύτης του Fluent .....	69
4.1.4.	Παράλληλος προγραμματισμός: Παραλληλοποίηση σεριακού κώδικα και χρήση του ως UDF στον Fluent .....	72
4.2.	Παρεμβολή λύσης από-πλέγμα-σε-πλέγμα.....	74
5.	Μείωση τάξης δυναμικών μοντέλων: Ανάλυση Κυρίων Συνιστωσών μέσω της Μεθόδου των Στιγμιότυπων.....	76
5.1.	Εισαγωγή.....	76
5.2.	Βασική αρχή μείωσης τάξης δυναμικών μοντέλων .....	77
5.3.	Ανάλυση Κυρίων Συνιστωσών.....	78
5.3.1.	Κατασκευή POD βάσης.....	80
5.3.2.	Μέθοδος στιγμιότυπων .....	82
5.3.3.	Επιλογή διάστασης βάσης.....	84
5.3.4.	Κανονικοποίηση δεδομένων.....	85
5.3.5.	Σφάλματα μεθόδου.....	86
6.	Υπολογισμός συντελεστών μείωσης τάξης μέσω Τεχνητών Νευρωνικών Δικτύων .....	89
6.1.	Εισαγωγή.....	89
6.2.	Βιολογικά νευρωνικά δίκτυα .....	90
6.3.	Τεχνητός νευρώνας.....	93
6.3.1.	Αρχή λειτουργίας - μαθηματική μοντελοποίηση.....	93
6.3.2.	Συνάρτηση Ενεργοποίησης .....	95
6.4.	Αρχιτεκτονική Τεχνητών Νευρωνικών Δικτύων.....	97
6.4.1.	Βασική δομή.....	97
6.4.2.	Κύριες αρχιτεκτονικές .....	99
6.4.3.	Δίκτυο πρόσθιας τροφοδότησης τριών επιπέδων.....	100
6.5.	Εκπαίδευση Τεχνητών Νευρωνικών Δικτύων .....	102
6.5.1.	Γενικά στοιχεία.....	102

6.5.2.	Αλγόριθμοι εκπαίδευσης: Οπισθοδιάδοση .....	104
6.6.	Δυναμικά Τεχνητά Νευρωνικά Δίκτυα: Δίκτυο NARX.....	107
7.	Υπολογιστική διαδικασία και αποτελέσματα .....	112
7.1.	Υπολογιστική διαδικασία .....	112
7.2.	Συλλογή δεδομένων – Επίλυση λεπτομερούς υδροδυναμικού μοντέλου .....	113
7.3.	Παράλληλη επεξεργασία και προγραμματισμός.....	114
7.3.1.	Παράλληλη επεξεργασία.....	114
7.3.2.	Παράλληλος προγραμματισμός .....	115
7.4.	Σχεδιασμός POD βάσης.....	116
7.4.1.	Σενάριο 1: 4 Επιβολές.....	116
7.4.2.	Σενάριο 2: 2 Επιβολές.....	121
7.4.3.	Συμπέρασμα διερεύνησης .....	123
7.5.	Υπολογισμός συντελεστών: Ολοκληρωμένο ROM .....	124
7.6.	Παρεμβολή λύσης ROM στο πυκνό πλέγμα με πλήρες μοντέλο.....	129
7.7.	Υπολογιστικό κέρδος εφαρμογής πλαισίου .....	130
7.8.	Εφαρμογή πλαισίου: Αξιολόγηση πολύπλοκου κινητικού μοντέλου .....	132
7.8.1.	Επίδραση θερμοκρασίας.....	133
7.8.2.	Κατανομές ρυθμού απόθεσης - Ανομοιομορφίες .....	134
8.	Συμπεράσματα .....	138
9.	Προτάσεις για το μέλλον.....	140
	Βιβλιογραφία .....	142



# 1. Χημική απόθεση από ατμό

## 1.1. Εισαγωγή – Εφαρμογές

Η Χημική Απόθεση από Ατμό (ΧΑΑ) είναι μια από τις πιο δημοφιλείς διεργασίες σύνθεσης λεπτών υμενίων και επιστρώσεων με τεράστιο εύρος εφαρμογών, κυρίως στο πεδίο της μικροηλεκτρονικής. Ανάλογα με το χημικό στοιχείο το οποίο αποτίθεται στην εκάστοτε διεργασία, μπορούν να προκύψουν υμένια αγωγών, ημιαγωγών ή μονωτών, ενώ εκτός από επιφανειακά στερεά υλικά, όπως υμένια και επιστρώσεις, η ΧΑΑ χρησιμοποιείται και με σκοπό την παραγωγή στερεών υλικών όγκου, όπως κονιορτοποιημένα μέταλλα υψηλής καθαρότητας και σύνθετα υλικά μέσω της τεχνικής της διείδυσης [1], [2], [3].

Επίσης, έχει αναπτυχθεί και ένα πλήθος τεχνικών ΧΑΑ που επιτρέπει τη σύνθεση υμενίων που αποτελούνται από περισσότερα του ενός χημικά στοιχεία, ενώ σε άλλες περιπτώσεις ακόμη και ολόκληρων χημικών ενώσεων. Παρά το γεγονός ότι η ΧΑΑ χαρακτηρίζεται ως μια πολύπλοκη διεργασία, λόγω της εκτεταμένης μελέτης και ανάλυσης της διεργασίας έχει επιτευχθεί η απόθεση της πλειονότητας των μέχρι σήμερα γνωστών χημικών στοιχείων. Ευρύτερη εφαρμογή συναντούν τα μέταλλα, ενώ παραγόμενα υλικά αποτελούνται συχνά και από άνθρακα (σε πολυμορφική μορφή γραφίτη αλλά και διαμαντιού), πυρίτιο, καρβίδια, νιτρίδια και οξειδία. Στο Σχήμα 1.1 παρατίθεται ο περιοδικός πίνακας, με σκιασμένα τα χημικά στοιχεία που έχουν αποτεθεί μέσω ΧΑΑ. Μερικά τυπικά παραδείγματα προϊόντων που παράγονται μέσω της διεργασίας της ΧΑΑ είναι τα εξής [3], [4]:

- Στρώματα επικάλυψης για προηγμένα ολοκληρωμένα κυκλώματα ημιαγωγών νιτρίδιου-τιτανίου που αποτίθενται μέσω οργανομεταλλικής ΧΑΑ.
- Αδαμαντοειδή επιστρώματα άνθρακα (DLC) τα οποία παράγονται από ΧΑΑ σε περιβάλλον πλάσματος και παρουσιάζουν βελτιωμένη αντοχή ενάντια στη φθορά.
- Υμένια καρβιδίου-τιτανίου και νιτρίδιου-τιτανίου για εργαλεία καρβιδίου που υπερτερούν των χωρίς επίστρωση εργαλείων και καταλαμβάνουν ένα μεγάλο μερίδιο της αγοράς.
- Ιρίδιο που αποτίθεται μέσω της οργανομεταλλικής ΧΑΑ και το οποίο έχει παρουσιάσει εξαιρετική αντίσταση στη διάβρωση μικρών ακροφυσίων των πυραύλων σε θερμοκρασίες μέχρι 2000 °C.
- Επιμετάλλωση ημιαγωγών με χαλκό ο οποίος αποτίθεται μέσω της οργανομεταλλικής ΧΑΑ. Η μέθοδος ΧΑΑ είναι η σημαντικότερη διαδικασία για την παραγωγή συγκεκριμένων τμημάτων των ημιαγωγών.
- Οπτικά επιστρώματα εξοικονόμησης ενέργειας τα οποία παράγονται μέσω ΧΑΑ σε ατμοσφαιρική πίεση, κατά τη διάρκεια της επεξεργασίας επιπλέοντων γυαλιών.

- Πυρολυτικές χοάνες βορίου-νιτριδίου που παράγονται από ΧΑΑ, οι οποίες χρησιμοποιούνται εκτενώς στην ηλεκτρονική βιομηχανία.
- Ίνες βορίου-νιτριδίου οι οποίες είναι εξαιρετικά δύσκαμπτες και ισχυρές και χρησιμοποιούνται ως ενίσχυση στα δομικά συστατικά των αεροδιαστημικών λεωφορείων.

IA	IIA	IIIA	IVA	VA	VIA	VIIA	VIII						IB	IIB	IIIB	IV	VA	VIB	VIIA	O
1 H 1.008																				2 He 4.003
3 Li 6.941	4 Be 9.012														5 B 10.81	6 C 12.01	7 N 14.01	8 O 16.00	9 F 19.00	10 Ne 20.179
11 Na 22.990	12 Mg 24.305														13 Al 26.98	14 Si 28.09	15 P 30.97	16 S 32.07	17 Cl 35.45	18 Ar 39.948
19 K 39.098	20 Ca 40.08	21 Sc 44.956	22 Ti 47.90	23 V 50.942	24 Cr 51.996	25 Mn 54.938	26 Fe 55.847	27 Co 58.933	28 Ni 58.70	29 Cu 63.546	30 Zn 65.39	31 Ga 69.72	32 Ge 72.61	33 As 74.92	34 Se 78.96	35 Br 79.90	36 Kr 83.80			
37 Rb 85.468	38 Sr 87.62	39 Y 88.906	40 Zr 91.22	41 Nb 92.906	42 Mo 95.94	43 Tc (99)	44 Ru 101.07	45 Rh 102.905	46 Pd 106.4	47 Ag 107.868	48 Cd 112.4	49 In 114.8	50 Sn 118.7	51 Sb 121.8	52 Te 127.6	53 I 126.9	54 Xe 131.30			
55 Cs 132.905	56 Ba 137.33	57 La 138.9	72 Hf 178.49	73 Ta 180.948	74 W 183.85	75 Re 186.2	76 Os 190.2	77 Ir 192.22	78 Pt 195.09	79 Au 196.966	80 Hg 200.59	81 Tl 204.37	82 Pb 207.2	83 Bi 209.0	84 Po (210)	85 At (210)	86 Rn (222)			
87 Fr (223)	88 Ra (226)	89 Ac 227.0																		

LANTHANIDES	57 La 138.9	58 Ce 140.115	59 Pr 140.1	60 Nd 144.2	61 Pm (145)	62 Sm 150.4	63 Eu 152.0	64 Gd 157.2	65 Tb 158.9	66 Dy 162.5	67 Ho 164.9	68 Er 167.3	69 Tm 168.9	70 Yb 173.0	71 Lu 174.96
ACTINIDES	89 Ac 227.0	90 Th 232.0	91 Pa 231.0	92 U 238.0	93 Np 237.0	94 Pu (244)	95 Am (243)	96 Cm (247)	97 Bk (247)	98 Cf (251)	99 Es (252)	100 Fm (257)	101 Md (256)	102 No (259)	103 Lr (257)

Σχήμα 1.1: Ο περιοδικός πίνακας με σκιασμένα τα στοιχεία που έχουν αποθεθεί μέσω ΧΑΑ

## 1.2. Αρχή λειτουργίας - Στάδια

Η διεργασία της ΧΑΑ διεξάγεται σε ειδικά διαμορφωμένους αντιδραστήρες, ενώ η απόθεση αυτή καθ' αυτή πραγματοποιείται πάνω σε μια ειδική επιφάνεια, η οποία βρίσκεται εντός του αντιδραστήρα και ονομάζεται *υπόστρωμα*. Οι αντιδραστήρες αυτοί αποτελούνται από τέσσερα κύρια μέρη [1]:

- τον κεντρικό αντιδραστήρα,
- το σύστημα εισόδου των αντιδρώντων στον αντιδραστήρα
- την πηγή θέρμανσης
- το σύστημα εξαγωγής αερίων.

Οι συνθήκες λειτουργίας της διεργασίας ελέγχονται αυστηρά, με πρωτεύοντα ρόλο να παίζουν η μαζική ροή εισόδου, η σύσταση εισόδου, η πίεση και η θερμοκρασία. Η τελευταία ρυθμίζεται τόσο στην επιφάνεια του υποστρώματος, όσο και σε αυτή των τοιχωμάτων. Αν και όσον αφορά τα τοιχώματα υπάρχει μεγαλύτερη ευελιξία στη θερμοκρασία τους, οδηγώντας σε

διάφορες εκδοχές της ΧΑΑ, το αντίθετο ισχύει για το υπόστρωμα, όπου η θέρμανση του είναι αναγκαία για την επιτυχή πραγματοποίηση της διεργασίας και την αποτελεσματική παραγωγή υμενίων [5], [6].

Τα υμένια που παράγονται κάτω από συγκεκριμένες συνθήκες πρέπει να μπορούν να αναπαραχθούν και να έχουν ελεγχόμενες ιδιότητες. Οι κρίσιμότερες ιδιότητες που καθορίζουν την ποιότητα ενός υμενίου είναι το πάχος, η ομοιομορφία, η μορφολογία της επιφάνειας, η σύσταση και η καθαρότητα. Το εύρος των αποδεκτών ορίων των παραπάνω προδιαγραφών ποικίλει ανάλογα με το είδος της διεργασίας και το υλικό, καθώς και από τη λειτουργία που πρόκειται να εκτελέσει το υπό κατασκευή υμένιο [1].

Ο λόγος που απαιτείται συνεχής θέρμανση του υποστρώματος χωρίς περιθώρια παραλλαγής της διεργασίας στο συγκεκριμένο τομέα έχει να κάνει με την ίδια την αρχή λειτουργίας της ΧΑΑ. Η όλη διεργασία βασίζεται στην είσοδο μιας *πρόδρομης ένωσης*, η οποία αποτελεί το αντιδρών της διεργασίας και περιέχει το υπό απόθεση στοιχείο στο μόριο της, στον αντιδραστήρα. Στη συνέχεια, μετά από μια σειρά πολύπλοκων χημικών και φυσικών φαινομένων, τα μόρια της πρόδρομης ένωσης διασπώνται με αποτέλεσμα την «συλλογή» των ατόμων του ζητούμενου στοιχείου στο υπόστρωμα, όπου αυτά «συσσωματώνονται» στρώμα-ανά-στρώμα, καταλήγοντας στη δημιουργία ενός ενιαίου υμενίου/επικάλυψης.

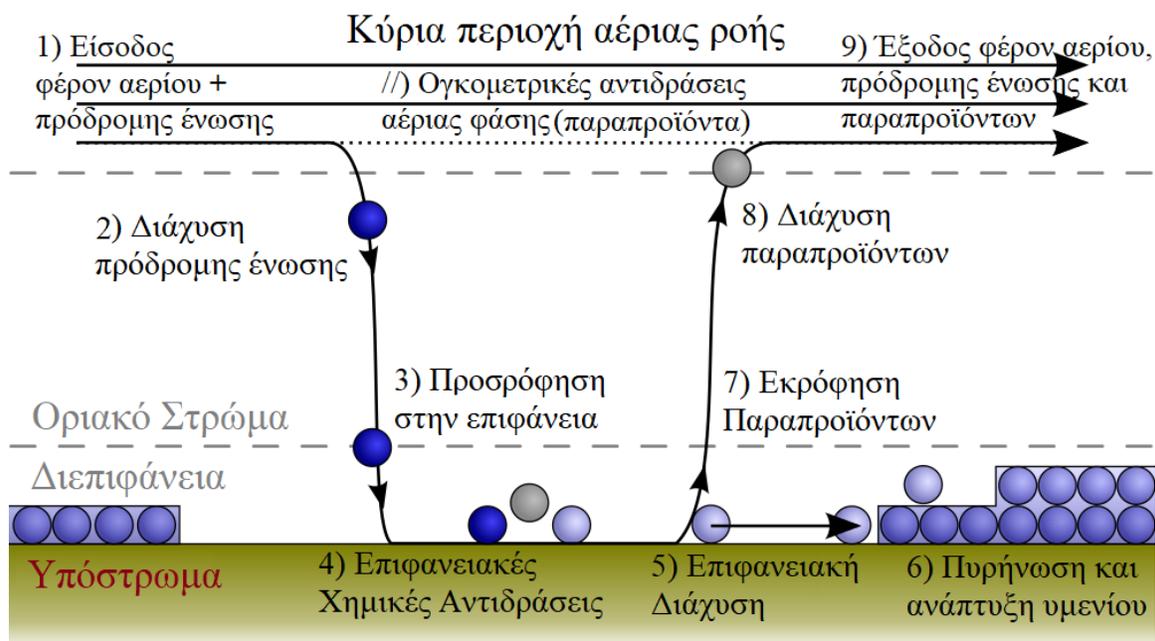
Πιο αναλυτικά, τα στάδια-φαινόμενα που λαμβάνουν χώρα κατά τη διάρκεια της ΧΑΑ παρουσιάζονται περιγραμματακά στο Σχήμα 1.2 και είναι τα εξής [3], [4], [5]:

1. Είσοδος του *φέροντος αερίου* και της πρόδρομης ένωσης στον αντιδραστήρα. Το φέρον αέριο είναι αδρανής ουσία, η ύπαρξη της οποίας εξυπηρετεί την αποδοτική μεταφορά της πρόδρομης ένωσης εντός, διά μέσου και εκτός του αντιδραστήρα, μέσω συναγωγής. Αποτελεί το κατά πολύ μεγαλύτερο ποσοστό της ροής εισόδου.
2. Διάχυση της πρόδρομης ένωσης διά μέσου του οριακού στρώματος από την κύρια περιοχή ροής προς την επιφάνεια του υποστρώματος. Το δυναμικό που προκαλεί τη συγκεκριμένη μεταφορά μάζας είναι η διαφορά συγκέντρωσης μεταξύ των δύο άκρων του οριακού στρώματος.
3. Ακολουθεί η προσρόφηση των μορίων της πρόδρομης ένωσης στην επιφάνεια του υποστρώματος. Η συγκεκριμένη ρόφηση είναι κυρίως χημική, αλλά και εν μέρει φυσική.
4. Στην επιφάνεια του υποστρώματος πραγματοποιείται μια σειρά ετερογενών αντιδράσεων, οι οποίες οδηγούν στη διάσπαση των μορίων της πρόδρομης ένωσης και στην απελευθέρωση των ατόμων του υπό απόθεση στοιχείου. Οι συγκεκριμένες αντιδράσεις ενεργοποιούνται από τη θέρμανση του υποστρώματος, όπου η θερμότητα αυτή προσλαμβάνεται από τα μόρια που λαμβάνουν μέρος στις αντιδράσεις και τη

- χρησιμοποιούν ως ενέργεια ενεργοποίησης. Αυτός είναι και ο κύριος λόγος που η θέρμανση του υποστρώματος αποτελεί αναπόσπαστο κομμάτι της ΧΑΑ.
5. Πριν, κατά τη διάρκεια αλλά και μετά το πέρας των αντιδράσεων, τα προσροφημένα στο υπόστρωμα μόρια έχουν τη δυνατότητα να διαχέονται επιφανειακά κατά το μήκος του υποστρώματος. Αυτό όχι μόνο βοηθά τα αντιδρώντα να έρθουν σε επαφή, βελτιώνοντας την απόδοση των επιφανειακών αντιδράσεων, αλλά και ακόμη πιο σημαντικά καθιστά δυνατή την «συσσωμάτωση» των ατόμων του υπό απόθεση στοιχείου και την επακόλουθη δημιουργία του υμενίου.
  6. Σε αυτό το σημείο, ενεργοποιείται η πυρήνωση των ατόμων του προς απόθεση στοιχείου, την οποία ακολουθεί η ανάπτυξη των πυρήνων αυτών με αποτέλεσμα τη σταδιακή δημιουργία του υμενίου. Η συγκεκριμένη διαδικασία πραγματοποιείται στρώμα-ανά-στρώμα, οδηγώντας σε σχετικά ομοιόμορφα προϊόντα.
  7. Ταυτόχρονα με τα στάδια 6 και 7 πραγματοποιείται και η εκρόφιση των παραπροϊόντων που παράχθηκαν κατά τη διάρκεια των αντιδράσεων του σταδίου 5 αλλά και των πολύ πτητικών ενδιάμεσων, τα λιγότερο πτητικά εκ των οποίων μπορούν να επαναρροφηθούν στην επιφάνεια του υποστρώματος και να συνεχίσουν να αντιδρούν.
  8. Στη συνέχεια, τα παραπροϊόντα και ενδιάμεσα που δεν επαναρροφήθηκαν διαχέονται δια μέσου του οριακού στρώματος προς την κύρια περιοχή ροής.
  9. Τέλος, το φέρον αέριο, η εναπομένουσα πρόδρομη ένωση και τα παραπροϊόντα όλων των αντιδράσεων εξέρχονται από τον αντιδραστήρα.

Ταυτόχρονα με όλα τα παραπάνω στάδια-φαινόμενα λαμβάνει χώρα και ένα παράλληλο στάδιο όπου ογκομετρικές αντιδράσεις συμβαίνουν στην αέρια φάση εντός του αντιδραστήρα. Οι αντιδράσεις αυτές ενεργοποιούνται επίσης λόγω της θέρμανσης του υποστρώματος, οπότε συμβαίνουν κυρίως σε κοντινή απόσταση από αυτό. Ωστόσο, σε ορισμένα είδη της ΧΑΑ ή σε συγκεκριμένους τύπους αντιδραστήρα η ενεργοποίηση τους μπορεί να συμβεί και από θέρμανση των τοιχωμάτων του αντιδραστήρα ή και από εντελώς διαφορετικές από τη θερμότητα μορφές ενέργειας, όπως υπεριώδη ακτινοβολία, ενεργά ηλεκτρόνια σε πλάσμα ή φωτόνια μέσω laser.

Από τη θεώρηση των παραπάνω φαινομένων που συμμετέχουν στη ΧΑΑ, γίνεται σαφές ότι πρόκειται για μια ετερογενή χημική διεργασία, η οποία είναι επίσης μη γραμμική, όπως θα εξηγηθεί στο Κεφ. 2. Συνεπώς, η θεωρητική και υπολογιστική μελέτη της είναι δύσκολη, κάτι που θα διαπιστωθεί στη συνέχεια.

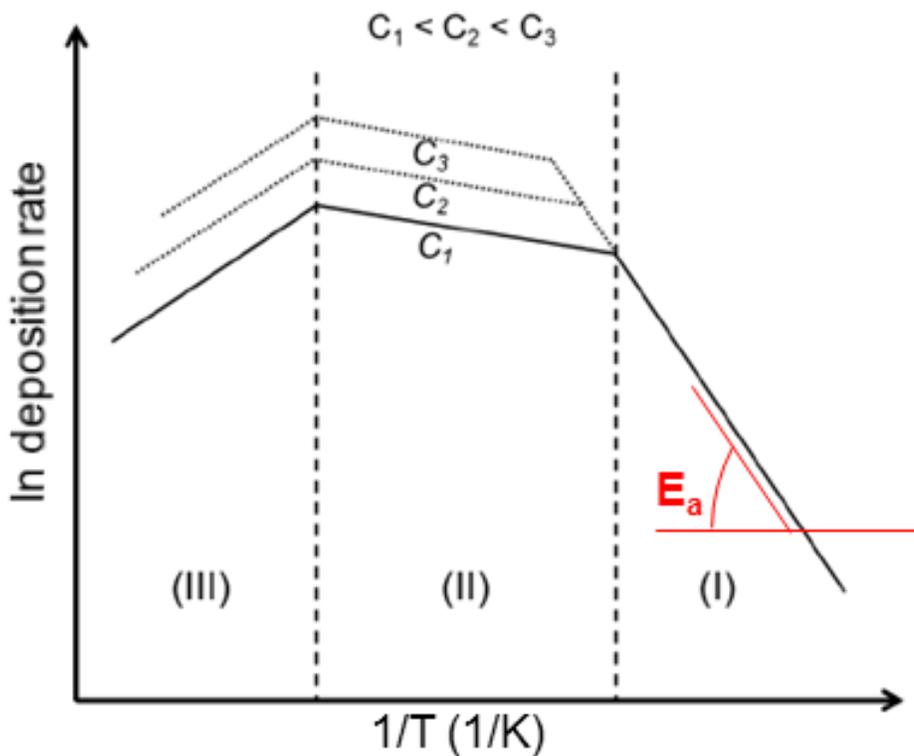


Σχήμα 1.2: Στάδια-φαινόμενα μιας τυπικής διεργασίας ΧΑΑ

### 1.3. Κινητική ΧΑΑ – Εξάρτηση από θερμοκρασία

Η μελέτη της κινητικής της διεργασίας και της επίδρασης των συνθηκών λειτουργίας αποτελεί ένα πολύτιμο εργαλείο όχι μόνο για τη θεωρητική κατανόηση της ΧΑΑ, αλλά και για την πρακτική πρόβλεψη και έλεγχο των ιδιοτήτων των παραγόμενων υμενίων, καθώς επίσης και για τον αποτελεσματικό σχεδιασμό και την αποδοτική λειτουργία της διεργασίας. Μία από τις κρίσιμότερες παραμέτρους που επηρεάζουν την κινητική της ΧΑΑ είναι η θερμοκρασία, οπότε πολλές αναλύσεις αφορούν την εξάρτηση του ρυθμού απόθεσης και της ομοιομορφίας των υμενίων από τη θερμοκρασία του υποστρώματος. Οι αναλύσεις αυτές αποτυπώνονται στο διάγραμμα Arrhenius, στο οποίο σχεδιάζεται η εξάρτηση του λογαρίθμου του ρυθμού απόθεσης από το αντίστροφο της θερμοκρασίας [5].

Η κινητική μελέτη της ΧΑΑ συνήθως πραγματοποιείται με βάση τη θεωρία του βραδύτερου σταδίου, σύμφωνα με την οποία ο ρυθμός μιας πολύπλοκης αντίδρασης καθορίζεται από το πιο βραδύ στάδιο της, το οποίο για αυτό το λόγο ονομάζεται *ελέγχον στάδιο*. Από τα στάδια της ΧΑΑ που αναλύθηκαν στην προηγούμενη ενότητα, αυτά που ελέγχουν συνήθως τη συνολική διεργασία είναι είτε οι χημικές αντιδράσεις (Στ. 4 + παράλληλο Στ.), είτε τα φαινόμενα μεταφοράς μάζας (Στ. 2+8). Σε ένα διάγραμμα Arrhenius διακρίνονται τρεις περιοχές, σε αντιστοιχία με τους ελέγχοντες μηχανισμούς στο εκάστοτε θερμοκρασιακό εύρος. Στο Σχήμα 1.3 απεικονίζεται ένα τυπικό διάγραμμα Arrhenius της ΧΑΑ, χωρισμένο ποιοτικά στις τρεις προαναφερθείσες περιοχές, οι οποίες αναλύονται παρακάτω [5], [7].



Σχήμα 1.3: Τυπικό διάγραμμα Arrhenius της ΧΑΑ, χωρισμένο στις τρεις τυπικές θερμοκρασιακές περιοχές

Σε χαμηλές θερμοκρασίες (**περιοχή I**) ο ρυθμός απόθεσης ελέγχεται από την κινητική των επιφανειακών αντιδράσεων. Λόγω της χαμηλής θερμοκρασίας υποστρώματος, οι αντιδράσεις αυτές συμβαίνουν με πολύ αργό ρυθμό, με αποτέλεσμα την περίσσεια ποσότητας πρόδρομης ουσίας στην επιφάνεια, καθώς αυτή καταφθάνει δια μέσου του οριακού στρώματος (με διάχυση) πιο γρήγορα από ότι μπορεί να καταναλωθεί. *Συνεπώς, αύξηση της ροής εισόδου της πρόδρομης ένωσης ΔΕΝ επηρεάζει το συνολικό ρυθμό απόθεσης.* Από την άλλη, ο ρυθμός απόθεσης παρουσιάζει πολύ μεγάλη ευαισθησία σε μεταβολές της θερμοκρασίας, αφού η σχέση που συνδέει τη γνωστή κινητική **σταθερά k** (σταθερά/συντελεστής ρυθμού αντίδρασης) ακολουθεί την εξίσωση του Arrhenius,

$$k = k_{ref} e^{\frac{E_a}{RT}} \quad (1.1)$$

δηλαδή είναι εκθετική, κάτι που γίνεται εμφανές και Σχήμα 1.3, όπου ο λογάριθμος του ρυθμού απόθεσης εξαρτάται γραμμικά από το αντίστροφο της θερμοκρασίας. Η κλίση της συγκεκριμένης ευθείας αντιστοιχεί στη συνολική ενέργεια ενεργοποίησης των επιφανειακών αντιδράσεων. *Συνεπώς, αύξηση της θερμοκρασίας εντός της περιοχής I επιφέρει σημαντική αύξηση και του ρυθμού απόθεσης.* Η περιοχή αυτή χαρακτηρίζεται από αρκετά χαμηλούς ρυθμούς απόθεσης αλλά πολύ υψηλή ομοιομορφία στο πάχος των υμενίων [5].

Περαιτέρω αύξηση της θερμοκρασίας οδηγεί στην **περιοχή II**, όπου ο ρυθμός απόθεσης ελέγχεται από τα φαινόμενα μεταφοράς μάζας και πιο συγκεκριμένα από το ρυθμό διάχυσης της πρόδρομης ένωσης από την κύρια μάζα της αέριας ροής προς την επιφάνεια του υποστρώματος αλλά και από το ρυθμό διάχυσης των παραπροϊόντων των επιφανειακών αντιδράσεων κατά την αντίθετη κατεύθυνση. Και οι δύο αυτές διαχύσεις συμβαίνουν κατά μήκος του οριακού στρώματος. Οι δύο αυτοί ρυθμοί διάχυσης καθορίζονται κατά ένα μεγάλο ποσοστό από τους αντίστοιχους συντελεστές διάχυσης. Αν και ο **συντελεστής διάχυσης D** είναι γενικά ένα μέγεθος που αυξάνεται με αύξηση της θερμοκρασίας δεν παρουσιάζει την ίδια ευαισθησία με την κινητική σταθερά  $k$ , οπότε μια δεδομένη αύξηση της θερμοκρασίας επιφέρει πολύ μεγαλύτερη αύξηση στους ρυθμούς των επιφανειακών αντιδράσεων συγκριτικά με την αντίστοιχη αύξηση στους ρυθμούς διάχυσης. Έτσι, όταν βρισκόμαστε στην περιοχή II, υπάρχει μια συνεχής ανάγκη για πρόδρομη ένωση στην επιφάνεια του υποστρώματος, την οποία η διάχυση δυσκολεύεται να καλύψει λόγω της υψηλής ταχύτητας κατανάλωσης της. *Συνεπώς, αύξηση της ροής εισόδου της πρόδρομης ένωσης επιφέρει αισθητή αύξηση στο συνολικό ρυθμό απόθεσης*, καθώς αυξάνει τη βαθμίδα συγκεντρώσεων μεταξύ κύριας ροής και επιφάνειας, δηλαδή το δυναμικό της διάχυσης. Το συμπέρασμα αυτό παρουσιάζεται και στο Σχήμα 1.3 υπό τη μορφή διαφορετικών καμπυλών που κάθε μία αντιστοιχεί σε διαφορετική συγκέντρωση πρόδρομης ένωσης (θεωρώντας σταθερή συνολική μαζική ροή). Από την άλλη, όπως είναι επίσης εμφανές από το Σχήμα 1.3, *αύξηση της θερμοκρασίας εντός της περιοχής αυτής επιφέρει σχετικά μικρή αύξηση του συνολικού ρυθμού απόθεσης*, αφού, όπως προαναφέρθηκε, η ευαισθησία του συντελεστή D σε μεταβολές της θερμοκρασίας είναι σχετικά περιορισμένη. Αντίθετα με την περιοχή I, η περιοχή αυτή χαρακτηρίζεται από υψηλούς ρυθμούς απόθεσης αλλά όχι τόσο ομοιομορφία στο πάχος των υμενίων [5].

Αν η θερμοκρασία αυξηθεί ακόμα περισσότερο, πραγματοποιείται μετάβαση στην **περιοχή III**, όπου παρατηρείται μια «απρόσμενη» μείωση του συνολικού ρυθμού απόθεσης. Η μείωση αυτή οφείλεται στην εμφάνιση φαινομένων που δρουν ανταγωνιστικά με τις επιφανειακές αντιδράσεις μειώνοντας το ρυθμό τους. Τα φαινόμενα αυτά οφείλονται, ως επί το πλείστον, στην ενεργοποίηση των ογκομετρικών αντιδράσεων στην αέρια φάση, λόγω της υψηλής θέρμανσης που λαμβάνει χώρα εντός του αντιδραστήρα. Συνεπώς, θεωρείται ότι σε αυτή την περιοχή ελέγχουν στάδιο αποτελούν οι ογκομετρικές αντιδράσεις, αν και η επίδραση τους στο ρυθμό απόθεσης είναι αντίθετη σε σχέση με τα δύο άλλα φαινόμενα (αύξηση του ρυθμού προκαλεί μείωση στο συνολικό ρυθμό απόθεσης). Σημαντική συνέπεια της ενεργοποίησης των ογκομετρικών αντιδράσεων, η οποία προκαλεί αυτή τη μείωση του ρυθμού απόθεσης είναι η μείωση της διαθεσιμότητας πρόδρομης ένωσης για τις επιφανειακές αντιδράσεις, αφού μεγάλο της μέρος καταναλώνεται πριν προλάβει να φτάσει στην επιφάνεια του υποστρώματος. Επιπλέον, υπάρχει πιθανότητα μερικά από τα παραπροϊόντα που παράγονται από τις αντιδράσεις αυτές να καθιζάνουν πάνω στο παραγόμενο υμένιο,

μολύνοντας το και παρεμποδίζοντας την ανάπτυξη του, μειώνοντας με αυτόν τον τρόπο το ρυθμό απόθεσης. Τέλος, η τόσο υψηλή θερμοκρασία μπορεί να ενισχύσει την εκρόφιση χρήσιμων ενδιάμεσων (αλλά και αντιδρώντων) των επιφανειακών αντιδράσεων που είναι προσροφημένα στο υπόστρωμα, καθυστερώντας τη συνολική αντίδραση, οπότε και παρατηρείται μείωση του συνολικού ρυθμού απόθεσης. *Συνεπώς, αύξηση της θερμοκρασίας προκαλεί σημαντική μείωση του ρυθμού απόθεσης, ενώ αύξηση της ροής εισόδου της πρόδρομης ένωσης επιδρά όπως και στην περιοχή II [5].*

Τέλος, επισημαίνονται τα ακόλουθα. Πρώτον, τις περισσότερες φορές σε μια διεργασία ΧΑΑ τα όρια κάθε περιοχής όχι μόνο δεν είναι τόσο σαφή όσο παρουσιάζονται στο Σχήμα 1.3, αλλά μάλιστα υπάρχουν και ενδιάμεσες περιοχές, οι οποίες πολλές φορές μπορούν να σχεδιαστούν διακριτά. Στις περιοχές αυτές, η διεργασία συνελέγχεται από περισσότερα του ενός φαινόμενα (π.χ. ενδιάμεση της I-II, όπου ελέγχουν ταυτόχρονα και η διάχυση και οι επιφανειακές αντιδράσεις). Δεύτερον, η μορφή των διαγραμμάτων Arrhenius δεν είναι πάντα αυτή του Σχήμα 1.3, αλλά εξαρτάται σημαντικά και από άλλες λειτουργικές παραμέτρους, όπως η πίεση. Τρίτον, με βάση την παραπάνω ανάλυση προκύπτει το συμπέρασμα ότι στις διεργασίες ΧΑΑ, η ταχύτητα και η ομοιομορφία είναι «αντίρροπες». Συνεπώς, η ρύθμιση της διεργασίας σε δεδομένες συνθήκες θα πρέπει να γίνεται (και) με το γνώμονα του ποιο από τα δύο είναι πιο σημαντικό για το εκάστοτε προϊόν. Τέλος, σημειώνεται ότι σε ορισμένες περιπτώσεις όπου η συγκέντρωση της πρόδρομης ένωσης είναι αρκετά χαμηλή, τότε ελέγχον στάδιο είναι η τροφοδοσία της (Στ. 1). Σε αυτές τις περιπτώσεις, αύξηση της ροής εισόδου της πρόδρομης ένωσης, είτε με αύξηση της συγκέντρωσης, είτε με αύξηση της συνολικής ροής (ή και τα δύο μαζί), επιφέρει αύξηση στο συνολικό ρυθμό της απόθεσης [5], [7].

#### 1.4. Χημικές Αντιδράσεις – Πρόδρομη ένωση

Ως πρόδρομη μπορεί να επιλεγθεί οποιοδήποτε ένωση περιέχει στο μόριο της άτομα του ενδιαφερόμενου στοιχείου. Αν και σπανίως χρησιμοποιούνται και καθαρά άτομα του στοιχείου αυτού, συνήθως ως πιο απλές περιπτώσεις πρόδρομης ένωσης θεωρούνται αυτές που το υπό απόθεση στοιχείο είναι συνδεδεμένο με μικρές οργανικές ή ανόργανες δραστικές αλυσίδες με απλούς δεσμούς, σχηματίζοντας απλά και μικρά μόρια. Φυσικά, πολλές φορές χρησιμοποιούνται πολύ πιο πολύπλοκες από τις παραπάνω πρόδρομες ενώσεις, με σκοπό την αξιοποίηση των ιδιοτήτων τους που τις κάνουν να υπερτερούν έναντι των πιο απλών ομόλογων τους [3], [6].

Η επιλογή της πρόδρομης ένωσης είναι συνήθως από τα πρωταρχικά ερωτήματα που πρέπει να απαντηθούν κατά το σχεδιασμό μιας διεργασίας ΧΑΑ. Οι κυριότεροι παράγοντες που λαμβάνονται υπόψη είναι οι εξής [3], [5], [6]:

- ✓ **Θερμοκρασία διάσπασης:** Πολύ σημαντικός παράγοντας που καθορίζει τη θερμοκρασία υποστρώματος αλλά και γενικότερα την ενεργειακή στρατηγική της διεργασίας. Επιζητείται να μην είναι πολύ υψηλή, κάτι που συνδέεται με πολύ υψηλές ενεργειακές απαιτήσεις (με όλα τα αρνητικά που αυτό συνεπάγεται), αλλά ούτε και πολύ χαμηλή, έτσι ώστε να αποφεύγεται η πρόωρη διάσπαση στην αέρια φάση.
- ✓ **Πτητικότητα:** Εκφράζεται μέσω της τάσης ατμών και επηρεάζει την ατμοποίηση και την επακόλουθη μεταφορά της πρόδρομης ένωσης εντός, διά μέσου και εκτός του αντιδραστήρα. Προτιμούνται υψηλές τιμές ακόμα και σε χαμηλές θερμοκρασίες.
- ✓ **Υψηλή καθαρότητα:** Όσο πιο υψηλή η καθαρότητα της πρόδρομης ένωσης, τόσο πιο υψηλή και η καθαρότητα του τελικού υμενίου.
- ✓ **Καθαρή αποσύνθεση:** Τα παραπροϊόντα που παράγονται κατά τη διάσπαση της (είτε στην αέρια, είτε στη στερεά φάση) πρέπει να είναι αρκετά πτητικά, ώστε να απομακρύνονται εύκολα από τον αντιδραστήρα και όχι να καθιζάνουν με αποτέλεσμα την επιμόλυνση του υμενίου ή/και του αντιδραστήρα.
- ✓ **Ασφάλεια:** Αποφυγή (όσο το δυνατόν περισσότερο) παραγόντων κινδύνου, όπως τοξικότητα, εκρηκτικότητα ή διαβρωτικότητα.
- ✓ **Κόστος:** Χαμηλό κόστος αγοράς, συντήρησης και καθαρισμού

Όσον αφορά τις χημικές αντιδράσεις που συμμετέχουν στις διεργασίες ΧΑΑ, έχει παρατηρηθεί ένα τεράστιο και ποικίλο πλήθος αντιδράσεων, που διαφέρουν ανάλογα την πρόδρομη ένωση της εκάστοτε εφαρμογής. Ωστόσο, η πλειονότητα των αντιδράσεων αυτών ανήκει σε μια από τις τρεις εξής κλάσεις [3], [6]:

- **Αντιδράσεις πυρόλυσης:** Από τις πιο απλές αντιδράσεις που παρατηρούνται στη ΧΑΑ, χαρακτηρίζονται από το γεγονός ότι συμβαίνουν κυρίως επιφανειακά και όχι ογκομετρικά, οπότε αποφεύγεται η αποσύνθεση της πρόδρομης ουσίας στην αέρια φάση. Βέβαια, η συνθήκες λειτουργίας αλλά και το φέρον αέριο παίζουν σημαντικό ρόλο στο παραπάνω. Όσον αφορά το πρώτο, ρόλο-κλειδί παίζει η πίεση, όπου προτιμούνται χαμηλές πιέσεις, ενώ για φέρον αέριο καλή επιλογή είναι το υδρογόνο.
- **Αντιδράσεις αναγωγής:** Παρατηρούνται συχνά σε πρόδρομες ενώσεις που περιέχουν αλογόνα στα μόρια τους. Το αναγωγικό μέσο μπορεί να είναι α) το ίδιο το φέρον αέριο (π.χ. υδρογόνο), β) Ξεχωριστά προστιθέμενη ουσία (π.χ. σιλάνιο), γ) μέρος της ίδιας της πρόδρομης ένωσης (π.χ.  $\text{CH}_3\text{SiCl}_3$ ), δ) μεταλλικοί ατμοί (π.χ. Mg), ε) το ίδιο το υπόστρωμα (π.χ. υπόστρωμα πυριτίου).
- **Αντιδράσεις οξειδωσης/υδρόλυσης:** Εμφανίζονται σε περιπτώσεις όπου αποτίθενται ολόκληρα οξείδια παρά μεμονωμένα στοιχεία. Ενεργοποιούνται με προσθήκη οξυγόνου ή νερού, αντίστοιχα, τα οποία απομακρύνουν υδρογόνα ή αλογόνα από τα μόρια της πρόδρομης ένωσης. Επιπλέον, μερικές φορές προστίθεται και όζον ( $\text{O}_3$ ) με

σκοπό την επιτάχυνση της αντίδρασης, ενώ ενίοτε επιχειρείται και η απευθείας οξείδωση του υποστρώματος αντί για την απόθεση οξειδίων πάνω σε αυτό, στρατηγική που όμως δεν συνηθίζεται καθώς είναι πολύ χρονοβόρα.

### 1.5. Είδη διεργασιών ΧΑΑ – Τύποι αντιδραστήρων

Η κατηγοριοποίηση των διαφόρων παραλλαγών της ΧΑΑ μπορεί να γίνει με βάση πολλά διαφορετικά κριτήρια. Συνεπώς, υιοθετώντας την προσέγγιση αυτή, ακολουθεί μια συνοπτική ταξινόμηση διαφόρων ειδών ΧΑΑ και τύπων αντιδραστήρων με βάση μόνο ένα από τα κριτήρια αυτά κάθε φορά.

#### Με βάση τη φυσική κατάσταση της πρόδρομης ουσίας

**Υποβοηθούμενη από αερόλυμα ΧΑΑ (ΥΑ-ΧΑΑ):** Η πρόδρομη ένωση και το φέρον αέριο εισέρχονται ξεχωριστά σε έναν θάλαμο νεφελοποίησης, όπου με χρήση υπερήχων δημιουργούνται αερολύματα των δύο ουσιών, τα οποία στη συνέχεια εισέρχονται στον αντιδραστήρα. Η αποτελεσματικότητα της συγκεκριμένης τεχνικής είναι ανεξάρτητη της πτητικότητας της πρόδρομης ένωσης, οπότε συνιστάται σε περιπτώσεις όπου χρησιμοποιείται πρόδρομη ουσία χαμηλής πτητικότητας [8].

**ΧΑΑ Άμεσης έγχυσης υγρού (ΑΕΥ-ΧΑΑ):** Σε περίπτωση που η πρόδρομη ουσία βρίσκεται σε υγρή μορφή (ή σε στερεά διαλυμένη σε υγρό διαλύτη), τότε μπορεί να γίνει άμεση έγχυση της σε θάλαμο ατμοποίησης με σκοπό την εξάτμιση της αλλά και την επαφή και επακόλουθη ανάμειξη της με το φέρον αέριο. Στη συνέχεια ακολουθείται η τυπική διαδικασία εισόδου της ροής στον αντιδραστήρα [9].

#### Με βάση την πίεση λειτουργίας του αντιδραστήρα

**ΧΑΑ Ατμοσφαιρικής πίεσης (ΑΠ-ΧΑΑ):** Αποτελεί την πιο τυπική και απλή περίπτωση διεργασίας ΧΑΑ όσον αφορά την παράμετρο της πίεσεως, χωρίς αισθητά μειονεκτήματα αλλά ούτε και πλεονεκτήματα.

**ΧΑΑ Χαμηλής πίεσης (ΧΠ-ΧΑΑ):** Μειώνοντας την πίεση κατά δύο με τέσσερις τάξεις μεγέθους από την ατμοσφαιρική επιτυγχάνεται η δημιουργία ενός απλού πεδίου ροής στον αντιδραστήρα με σχετικά ελεγχόμενα φαινόμενα μεταφοράς και περιορισμό της εμφάνισης τυρβών. Τα παραπάνω έχουν ως συνέπεια τη δημιουργία υμενίων που χαρακτηρίζονται από εξαιρετική ομοιομορφία πάχους, ομοιογένεια και καθαρότητα ενώ επίσης εμφανίζουν υψηλή αναπαραγωγιμότητα. Ωστόσο, η συγκεκριμένη διεργασία περιορίζεται από σχετικά αργό ρυθμό απόσβεσης και υψηλές θερμοκρασιακές απαιτήσεις στο υπόστρωμα. Επιπλέον, λόγω

της δημιουργία της υποπίεσης αλλά και της αυξημένης θερμοκρασίας προστίθεται επιπλέον κόστος στη διεργασία [1], [4], [10].

### **Με βάση τον μηχανισμό πρόσδοσης ενέργειας**

**ΧΑΑ με άμεση θέρμανση υποστρώματος (ΧΑΑ):** Η πιο συνηθισμένη διεργασία ΧΑΑ, συνήθως προτιμάται λόγω της απλότητας της και της έλλειψης ανάγκης για επιπλέον εξοπλισμό, κάτι που είναι απαραίτητο στις υπόλοιπες παραλλαγές που αξιοποιούν άλλο σύστημα ενεργοποίησης των αντιδράσεων [3].

**Ενισχυμένη από πλάσμα ΧΑΑ (ΠΕ-ΧΑΑ):** Στα συστήματα αυτά εισάγεται πλάσμα στον αντιδραστήρα, το οποίο προσδίδει ενέργεια στα μόρια της πρόδρομης ένωσης, προκαλώντας τη διάσπαση τους σε μικρότερα και πιο δραστικά μόρια. Αυτό έχει σαν αποτέλεσμα την αύξηση του ρυθμού απόθεσης και τη μείωση της απαιτούμενης θερμοκρασίας υποστρώματος. Φυσικά, η μέθοδος έχει και τα μειονεκτήματά της, με σημαντικότερο να είναι η μειωμένη ποιότητα των παραγόμενων υμενίων, η οποία οφείλεται τόσο στη χειρότερη μορφολογία τους, όσο και στο προσυζητημένο ποσοστό σε περιεχόμενες ακαθαρσίες [3], [4], [10].

**Φωτονικά (laser) υποβοηθούμενη ΧΑΑ (ΦΥ-ΧΑΑ ή Λ-ΧΑΑ):** Πρόκειται για μια αρκετά εξειδικευμένη παραλλαγή της ΧΑΑ, όπου μέσω laser (ή και άλλων υψηλής έντασης λαμπών) το αντιδρών σύστημα βομβαρδίζεται με φωτόνια, είτε στην αέρια φάση, είτε κατευθείαν στην επιφάνεια του υποστρώματος, προσδίδοντας επιπλέον ενέργεια στα μόρια της πρόδρομης ένωσης. Η διεργασία αυτή επιτρέπει απόθεση με υψηλή χωρική διακριτική ικανότητα, αλλά λόγω του μεγάλου κόστους που τη συνοδεύει προτιμάται μόνο σε περιπτώσεις προϊόντων πολύ υψηλής αξίας, όπου απαιτούνται λεπτομερείς επιδιορθώσεις [3].

### **Τύπο αντιδραστήρων με βάση τη θερμοκρασία των τοιχωμάτων τους**

Οι αντιδραστήρες ΧΑΑ ταξινομούνται σε δύο κύριες κατηγορίες ανάλογα τη θερμοκρασία των τοιχωμάτων τους, τους **αντιδραστήρες ψυχρών τοιχωμάτων (ΑΨΤ)** και τους **αντιδραστήρες θερμών τοιχωμάτων (ΑΘΤ)**. Οι πρώτοι είτε αφήνονται σε θερμοκρασία περιβάλλοντος, είτε ψύχονται, ενώ οι τελευταίοι θερμαίνονται συνήθως με το ίδιο σύστημα θέρμανσης του υποστρώματος. Κάθε τύπος αντιδραστήρα προσφέρει διαφορετικά πλεονεκτήματα στη διεργασία, ενώ αντίστοιχα περιλαμβάνει και τους δικούς του περιορισμούς [3], [4], [5], [6].

Οι ΑΨΤ αποτρέπουν την ενεργοποίηση των ογκομετρικών αντιδράσεων αέριας φάσης, με συνέπεια την αποφυγή παραγωγής πούδρας και ανεπιθύμητων παραπροϊόντων, φαινόμενα που παρατηρούνται συχνά στους ΑΘΤ. Επιπλέον, στους ΑΨΤ δεν εμφανίζεται απόθεση στα ίδια τα τοιχώματα αλλά περιορίζεται μόνο στο υπόστρωμα, το οποίο είναι και επιθυμητό στη ΧΑΑ. Επακόλουθες αρνητικές συνέπειες των παραπάνω που συναντώνται στα θερμά τοιχώματα και

αποφεύγονται με χρήση της τεχνικής ψυχρών τοιχωμάτων είναι η σπατάλη πρόδρομης ουσίας λόγω κατανάλωσης της στις αντιδράσεις αέριας φάσης και στις επιφανειακές αντιδράσεις απόθεσης στα τοιχώματα αντί του υποστρώματος, καθώς επίσης και η ανάγκη τακτικού καθαρισμού του αντιδραστήρα λόγω των προϊόντων απόθεσης στα τοιχώματα αλλά και της πούδρας. Επίσης, υπάρχει σημαντική πιθανότητα όλα αυτά να επιμολύνουν τα παραγόμενα υμένια [3], [4], [6].

Οι ΑΘΤ αποτρέπουν τη δημιουργία έντονων θερμοκρασιακών βαθμίδων, οι οποίες είναι ικανές να προκαλέσουν δευτερεύουσες ροές λόγω άνωσης εντός του αντιδραστήρα που με τη σειρά τους επηρεάζουν αρνητικά από το πεδίο ροής έως και τις ίδιες τις ιδιότητες των υμενίων. Επιπρόσθετα, σε ορισμένες περιπτώσεις είναι επιθυμητή η ενεργοποίηση των ογκομετρικών αντιδράσεων αέριας φάσης, καθώς από αυτές μπορεί να προκύψουν ενδιάμεσες ουσίες οι οποίες είναι πιο δραστικές από την πρόδρομη ένωση πάνω στην επιφάνεια του υποστρώματος, με αποτέλεσμα την αύξηση της ταχύτητας αλλά και της απόδοσης της απόθεσης [3], [4], [6].

Σε γενικές γραμμές, οι ΑΨΤ προτιμούνται έναντι αυτών με θερμά τοιχώματα, τόσο σε εργαστηριακή, όσο και σε βιομηχανική κλίμακα, καθώς όπως αναλύθηκε και παραπάνω, στην πλειονότητα των περιπτώσεων υπερτερούν. Το συμπέρασμα αυτό ενισχύεται αν σκεφτεί κανείς και το μεγαλύτερο κόστος που συνεπάγεται η θέρμανση των τοιχωμάτων. Βέβαια, επειδή οι ΑΘΤ παρέχουν τη δυνατότητα ταυτόχρονης απόθεσης σε πάνω από ένα υποστρώματα εντός του ίδιου αντιδραστήρα, σε ορισμένες περιπτώσεις βιομηχανικής κλίμακας όπου υπάρχει η απαίτηση υψηλής μαζικής παραγωγής υμενίων, εφαρμόζεται η χρήση της στρατηγικής των θερμαινόμενων τοιχωμάτων θυσιάζοντας την απόδοση της διεργασίας, καθώς και όλα τα υπόλοιπα πλεονεκτήματα των ΑΨΤ [6].

### **Με βάση τη χημική φύση της πρόδρομης ουσίας**

Η χημική φύση της πρόδρομης ένωσης μπορεί επίσης να χρησιμοποιηθεί ως κριτήριο ταξινόμησης. Μια σημαντική κατηγορία ΧΑΑ που προκύπτει με βάση αυτό το κριτήριο είναι η **οργανομεταλλική ΧΑΑ (ΟΜ-ΧΑΑ)**, στην οποία χρησιμοποιείται ως πρόδρομη ουσία μια οργανική ένωση που περιέχει άτομο/-α κάποιου μεταλλικού στοιχείου. Το πλεονέκτημα αυτής της διεργασίας είναι οι χαμηλές θερμοκρασιακές απαιτήσεις, καθώς οι δεσμοί μεταξύ των οργανικών αλυσίδων του πρόδρομου μορίου και των μεταλλικών ατόμων (συνήθως αυτά που αποτίθενται) είναι ασθενής, οπότε χρειάζεται λιγότερη ενέργεια για τη διάσπαση τους.

### **1.6. Πλεονεκτήματα και περιορισμοί της ΧΑΑ**

Οι λόγοι που καθιστούν τη ΧΑΑ δημοφιλή διεργασία για την παραγωγή λεπτών υμενίων, ενώ έχει αναπτυχθεί μια πληθώρα άλλων διεργασιών ικανών να συνθέσουν τέτοιου

είδους προϊόντων, είναι πολλοί. Τα πιο σημαντικά πλεονεκτήματα της ΧΑΑ συνοψίζονται στα εξής [3], [4], [6]:

- Δεν περιορίζεται στη λεγόμενη «απόθεση οπτικής επαφής», φαινόμενο που παρατηρείται σε τεχνικές φυσικής απόθεσης από ατμό (ΦΑΑ), διεργασία ανταγωνιστική ως προς τη ΧΑΑ. Κατά συνέπεια, η ΧΑΑ είναι κατά πολύ ικανότερη από άλλες διεργασίες να επικαλύψει βαθιές κοιλότητες, οπές, εσοχές και γενικότερα πολύπλοκες επιφανειακές διαμορφώσεις.
- Εμφανίζει ομοιόμορφη επικάλυψη, δηλαδή είναι ικανή να καλύψει πολύπλοκες επιφάνειες διατηρώντας το ίδιο πάχος επικάλυψης καθ' όλη την έκταση της επιφάνειας αυτής.
- Παρουσιάζει εκλεκτικότητα ως προς την υπό-επικάλυψη επιφάνεια. Συνεπώς, κατά τη ΧΑΑ η απόθεση λαμβάνει χώρα κυρίως πάνω στο υπόστρωμα, δηλαδή την καθορισμένη επιφάνεια εντός του αντιδραστήρα, ενώ είναι περιορισμένη σε άλλες επιφάνειες, όπως για παράδειγμα τα τοιχώματα του αντιδραστήρα.
- Χαρακτηρίζεται από σχετικά υψηλό ρυθμό απόθεσης με αποτέλεσμα την παραγωγή υμενίων μεγάλου πάχους με εξαιρετικές ιδιότητες σε μικρά χρονικά διαστήματα. Αυτό καθιστά τη διεργασία ανταγωνιστική από οικονομική πλευρά με άλλες τεχνικές.
- Ο απαραίτητος εξοπλισμός μπορεί να προσαρμοστεί σε διαφορετικές συνθήκες λειτουργίες αρκετά εύκολα. Αυτή η ευελιξία επεκτείνεται ακόμα και σε διαφορετικές πρόδρομες ενώσεις, καθώς υπάρχει διαθέσιμο ένα τεράστιο φάσμα ενώσεων που μπορούν να χρησιμοποιηθούν ως πρόδρομες σε μια διεργασία ΧΑΑ.
- Τα υμένια που παράγονται χαρακτηρίζονται από υψηλή καθαρότητα, λόγω της ευκολίας καθαρισμού των πρόδρομων ενώσεων με απομάκρυνση ακαθαρσιών μέσω απλής απόσταξης.

Παρόλα αυτά, η ΧΑΑ ενίοτε παραβλέπεται και χρησιμοποιούνται άλλες μέθοδοι παραγωγής αντίστοιχων προϊόντων, με τη συχνότερη να είναι η ΦΑΑ. Τα κυριότερα μειονεκτήματα που περιορίζουν την αξιοποίηση των προτερημάτων της ΧΑΑ είναι τα εξής [3], [4], [6]:

- Οι ιδιότητες των παραγόμενων υμενίων πολλές φορές υστερούν συγκριτικά με τις προδιαγραφές για απαιτητικές εφαρμογές.
- Για να αξιοποιηθεί το πλεονέκτημα του υψηλού ρυθμού απόθεσης, συνήθως απαιτείται υψηλή θερμοκρασία λειτουργίας. Ωστόσο, αυτό όχι μόνο οδηγεί σε αύξηση του λειτουργικού κόστους, αλλά και σε προβλήματα ζωτικής σημασίας σε περιπτώσεις όπου το υπόστρωμα είναι θερμοευαίσθητο. Επιπλέον, υπάρχει περίπτωση τα παραγόμενα υμένια να υποβληθούν σε θερμικά σοκ, ενώ σε περιπτώσεις όπου το υμένιο αλληλεπιδρά με υλικά διαφορετικών συντελεστών θερμικής διαστολής κατά τη

σύνθεση του, του ασκείται έντονη πίεση με αποτέλεσμα τη δημιουργία μηχανικών ασταθειών.

- Οι πρόδρομες ενώσεις πρέπει να χαρακτηρίζονται από υψηλή πτητικότητα, έτσι ώστε να είναι εφικτή αλλά και αποτελεσματική η μεταφορά και η είσοδο τους στον αντιδραστήρα. Η ιδιότητα αυτή αν και δυσεύρετη, εμφανίζεται συχνά στις οργανομεταλλικές ενώσεις με συνέπεια την αξιοποίηση τους και την εξέλιξη της αντίστοιχης τεχνικής.
- Αν και όπως τονίστηκε προηγουμένως το φάσμα πρόδρομων ενώσεων είναι ευρύ, ένα μεγάλο ποσοστό αυτών είναι επικίνδυνες, καθώς παρουσιάζουν υψηλή τοξικότητα, εκρηκτικότητα ή διαβρωτικότητα. Επιπλέον, το κόστος ορισμένων πιο «εύχρηστων» πρόδρομων είναι αρκετά υψηλό.
- Εκτός από τις πρόδρομες ενώσεις, αρκετά επικίνδυνα είναι και τα παραπροϊόντα της διεργασίας, με αποτέλεσμα τη δημιουργία της κοστοβόρας ανάγκης διαχείρισής τους.
- Λόγω του μεγάλου πλήθους διαφορετικών φαινομένων που λαμβάνουν χώρα στη διεργασία, της πολυπλοκότητας τους αλλά και των πολύπλοκων σχέσεων που τα συνδέουν, η μαθηματική μελέτη της καθίσταται αρκετά απαιτητική. Αν και μετά από εκτενή και διαχρονική μελέτη της διεργασίας, έχουν διαλευκανθεί τα περισσότερα «μυστικά» της, ένα σημαντικό πρόβλημα που παίζει πολλές φορές περιοριστικό ρόλο στην αποτελεσματική και αποδοτική πρόβλεψη των ιδιοτήτων του προϊόντος αλλά και στην αυτόματη ρύθμιση της διεργασίας είναι οι μεγάλες απαιτήσεις σε υπολογιστικό χρόνο και μνήμη για την προσομοίωση τρισδιάστατων ρεαλιστικών μαθηματικών μοντέλων της διεργασίας.



## 2. Υπολογιστική μελέτη ΧΑΑ: Μαθηματική μοντελοποίηση και προσομοίωση της διεργασίας

### 2.1. Εισαγωγή – Σκοπός/οφέλη υπολογιστικής μελέτης

Μια ολοκληρωμένη, αναλυτική και επιτυχημένη μελέτη μιας διεργασίας ΧΑΑ απαιτεί πειραματική και θεωρητική/υπολογιστική ανάλυση. Οι δύο αυτές πτυχές της συνολικής μελέτης, αν και εκ πρώτης όψεως ίσως δείχνουν ανεξάρτητες, στην πραγματικότητα είναι στενά συνδεδεμένες μεταξύ τους. Μάλιστα, η σχέση που τις συνδέει είναι αμφίδρομη, αφού αφενός ένα οποιοδήποτε μαθηματικό μοντέλο και να αναπτυχθεί μέσω υπολογιστικών προσομοιώσεων της διεργασίας απαιτεί την επαλήθευση της ακρίβειας του από πληθώρα πειραματικών αποτελεσμάτων, και αφετέρου η υπολογιστική μελέτη πολλές φορές καθοδηγεί την πειραματική, υπαγορεύοντας το είδος των πειραμάτων αλλά και τις συνθήκες όπου αυτά θα διεξαχθούν.

Πιο συγκεκριμένα, η υπολογιστική μελέτη της ΧΑΑ μπορεί να προσφέρει σημαντικά οφέλη, τόσο σε εργαστηριακό, όσο και σε βιομηχανικό επίπεδο. Σχετικά με νέες, υπό-ανάπτυξη διεργασίες, όπου πραγματοποιείται μια προκαταρκτική μελέτη με διερευνητικό χαρακτήρα, η υπολογιστική μελέτη είναι αναγκαία για την αποκάλυψη των κυρίαρχων μηχανισμών που επικρατούν εντός του αντιδραστήρα, φαινόμενα αρκετά πολύπλοκα, όπως εξηγήθηκε και στο προηγούμενο κεφάλαιο. Ιδιαίτερα σημαντική είναι η διαλεύκανση των χημικών αντιδράσεων που λαμβάνουν χώρα είτε στην αέρια φάση, είτε στην επιφάνεια του υποστρώματος, ενώ άλλες ερευνητικές εφαρμογές περιλαμβάνουν τον καθορισμό του θερμοκρασιακού εύρους κάθε περιοχής λειτουργίας του αντιδραστήρα, μέσω του σχεδιασμού ενός διαγράμματος Arrhenius της διεργασίας, σύμφωνα με όσα αναφέρθηκαν στην ενότητα 1.3. Επίσης, συχνά πραγματοποιείται εμπλουτισμός ήδη υπαρχόντων κινητικών μοντέλων, είτε μέσω της απλής βελτιστοποίησης των κινητικών σταθερών των αντιδράσεων τους, είτε μέσω της προσθήκης/αφαίρεσης αντιδράσεων από το υπάρχον μοντέλο. Χωρίς τη μαθηματική μοντελοποίηση των διεργασιών και την επακόλουθη υπολογιστική προσομοίωση τους, είναι πρακτικά αδύνατο να διερευνηθούν οι μηχανισμοί αυτοί. Φυσικά, τονίζεται για άλλη μια φορά ότι όποιο μοντέλο και να αναπτυχθεί, χωρίς την πειραματική επαλήθευση του είναι αμφιβόλου αξιοπιστίας [5], [7].

Όσον αφορά διεργασίες ΧΑΑ σε βιομηχανικό επίπεδο, η υπολογιστική μελέτη μπορεί και πάλι να προσφέρει κρίσιμα οφέλη που αλλιώς θα ήταν αδύνατο να αξιοποιηθούν. Για παράδειγμα, έχοντας αναπτύξει ένα ήδη επαληθευμένο και αξιόπιστο μοντέλο της διεργασίας με αξιόπιστη ακρίβεια μπορεί να γίνει εκ των προτέρων καθορισμός των «λειτουργικών παραθύρων», όπου λειτουργία εντός των ορίων τους θα οδηγήσει στην παραγωγή υμενίων με

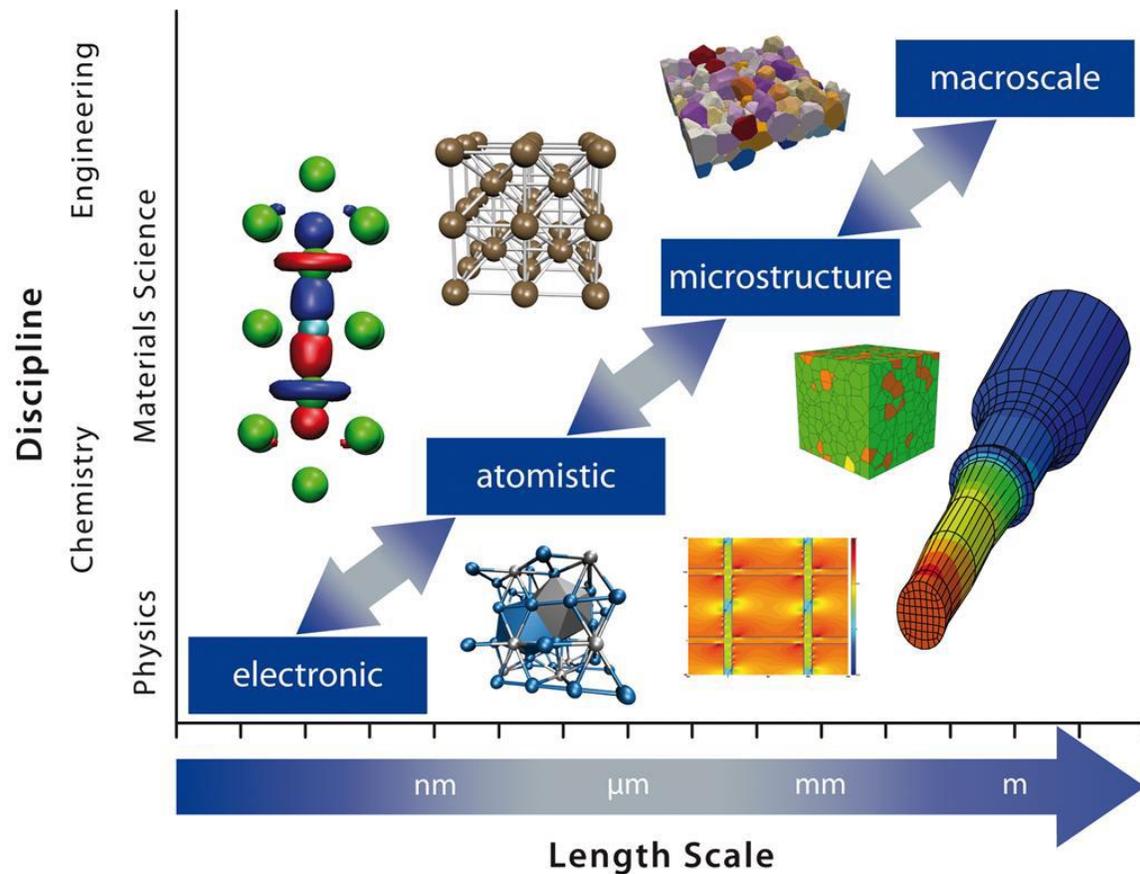
τις επιθυμητές ιδιότητες, λαμβάνοντας έτσι προϊόντα υψηλής ποιότητας ως προς την προοριζόμενη εφαρμογή τους. Επιπλέον, η υπολογιστική μελέτη καθιστά δυνατή και την αριστοποίηση της διεργασίας εντός των παραθύρων αυτών, με αποτέλεσμα την ελαχιστοποίηση κόστους και χρόνου λόγω αύξησης του ρυθμού απόθεσης, μείωση της απαιτούμενης ποσότητας πρώτων υλών και ενέργειας, κ.α. Οι λειτουργικές παράμετροι που καθορίζονται από τέτοιου είδους διαδικασίες περιλαμβάνουν την παροχή και σύσταση εισόδου, τις θερμοκρασίες υποστρώματος και τοιχωμάτων, την πίεση λειτουργίας κ.τ.λ. Όπως εύκολα μπορεί να φανταστεί κανείς, μια επιτυχημένη τέτοια μελέτη μπορεί να σώσει τεράστια ποσά χρόνου αλλά και αναλωσίμων/ενέργειας, τα οποία θα καταναλώνονταν σε διερευνητικά πειράματα με σκοπό την ανακάλυψη των παραπάνω. Τέλος, η υπολογιστική μελέτη μέσω αξιόπιστων μαθηματικών μοντέλων καθιστά εφικτή και την αυτόματη ρύθμιση των διεργασιών, εφαρμογή πολύ σημαντική για την αποδοτική, αποτελεσματική και κυρίως αδιάκοπη λειτουργία μιας διεργασίας. Η αυτόματη ρύθμιση όχι μόνο επιτρέπει την εξάλειψη εξωτερικών διαταραχών σε αμελητέους χρόνους συγκριτικά με τη χειροκίνητη ρύθμιση, αλλά επίσης καθιστά πιο εύκολη και άμεση τη μεταβολή από ένα σημείο λειτουργίας σε ένα άλλο [5], [7].

Ένα ιδανικό μοντέλο ΧΑΑ πρέπει να απαρτίζεται από ένα σύνολο μαθηματικών εξισώσεων που περιγράφει όλα τα σχετικά μακροσκοπικά και μικροσκοπικά φυσικοχημικά φαινόμενα που εξελίσσονται στον αντιδραστήρα και να τα συνδέει με τις αντίστοιχες ιδιότητες του αποτιθέμενου υμενίου. Επιπρόσθετα, το μοντέλο θα πρέπει να είναι εφαρμόσιμο για διαφορετικού τύπου διεργασίες και αντιδραστήρες ΧΑΑ. Επομένως, πρέπει να βασίζεται σε θεμελιώδεις αρχές και φυσικοχημικούς νόμους και όχι σε εμπειρικές σταθερές και συσχετίσεις. Παρόλη την πρόοδο που έχει συντελεστεί προς αυτήν την κατεύθυνση, μέχρι σήμερα δεν έχει παραχθεί κάποιο μοντέλο που να ενσωματώνει με 100% επιτυχία όλα τα παραπάνω χαρακτηριστικά. Ωστόσο, αντιμετωπίζοντας το πρόβλημα της μοντελοποίησης της διεργασίας ΧΑΑ από διαφορετικές οπτικές γωνίες, τα υπάρχοντα μοντέλα ΧΑΑ έχουν οδηγήσει σε μια αξιοσημείωτη βελτίωση της κατανόησης των μηχανισμών της ΧΑΑ, στην ανάδειξη των κυρίαρχων παραγόντων που επιδρούν στη διεργασία ΧΑΑ και τέλος στο σχεδιασμό καταλληλότερων διαμορφώσεων και γεωμετριών του αντιδραστήρα χημικής απόθεσης [7].

Παρατηρώντας τα τυπικά στάδια-φαινόμενα της ΧΑΑ (εν. 1.2 – Σχήμα 1.2), διαπιστώνεται ότι πρόκειται για μια διεργασία που εξελίσσεται σε περισσότερες από μία κλίμακες. Συνεπώς, η υπολογιστική/θεωρητική μελέτη αναπτύσσεται επίσης σε διάφορες κλίμακες, ανάλογα με τα φαινόμενα της διεργασίας, τις ιδιότητες των υμενίων και γενικότερα τις πληροφορίες που επιθυμεί ο ερευνητής να μελετήσει. Τυπικές κλίμακες που απασχολούν τους ερευνητές και μοντελοποιούνται συχνά είναι η μακρο-κλίμακα, η μικρο-κλίμακα και η νανο-κλίμακα, όπου η πρώτη περιλαμβάνει τα φαινόμενα που συμβαίνουν στον κύριο όγκο του αντιδραστήρα και στις επιφάνειες υποστρώματος και υμενίου (m έως cm), η δεύτερη

ασχολείται με τη δομή της τοπογραφίας των σχηματιζόμενων υμενίων ( $\mu\text{m}$ ), ενώ τέλος η τρίτη περιγράφει τη νανο-μορφολογία των υμενίων ( $\text{nm}$ ) (Σχήμα 2.1) [5], [7].

Με βάση τα παραπάνω γίνεται εμφανές ότι για την πλήρη μελέτη και εις βάθος κατανόηση μιας διεργασίας ΧΑΑ απαιτείται όχι μόνο η ανάπτυξη μοντέλων για κάθε κλίμακα, αλλά και η σύζευξη των διαφορετικών μοντέλων μεταξύ τους, έτσι ώστε να καταστεί εφικτή η ανταλλαγή πληροφοριών από το ένα στο άλλο. Ωστόσο, συχνά αυτό δεν παρατηρείται στην πράξη, καθώς ανάλογα με τα πλαίσια που τίθενται στην εκάστοτε έρευνα απαιτούνται και διαφορετικές πληροφορίες για την επιτυχημένη πραγματοποίηση της μελέτης και την εξαγωγή χρήσιμων συμπερασμάτων. Έτσι, δεν υπάρχει λόγος για «ανούσια» αύξηση υπολογιστικού (αλλά και ερευνητικού) κόστους και χρόνου, οπότε η ανάλυση περιορίζεται μόνο σε μία από τις προαναφερθείσες κλίμακες, η οποία συνήθως είναι η μακρο-κλίμακα. Στην τελευταία περίπτωση ανήκει και η παρούσα διπλωματική εργασία [5], [7].



Σχήμα 2.1: Μοντελοποίηση πολλαπλών χωρικών κλιμάκων. Από τη μακρο-κλίμακα της τάξης των  $\text{m}$  στην ηλεκτρονική κλίμακα της τάξης των  $\text{nm}$

## 2.2. Μακροσκοπικό μαθηματικό μοντέλο

Ένα τυπικό μακροσκοπικό μοντέλο διεργασίας ΧΑΑ αποτελείται από τις μερικές διαφορικές εξισώσεις (ΜΔΕ) των φαινομένων μεταφοράς συμπεριλαμβανομένων χημικών αντιδράσεων. Είναι οι εξισώσεις διατήρησης της μάζας, ορμής, ενέργειας και χημικών συστατικών καθώς επίσης και οι κινητικές των χημικών αντιδράσεων. Η προσεγγιστική επίλυση των εξισώσεων αυτών πραγματοποιείται αριθμητικά με χρήση εμπορικών (και μη) λογισμικών, τα οποία έχουν ενσωματωμένους κώδικες Υπολογιστικής Ρευστοδυναμικής (CFD) και αξιοποιούν μεθόδους διακριτοποίησης των ΜΔΕ στο χώρο, αλλά και στο χρόνο (σε περίπτωση υπολογισμών σε μεταβατική κατάσταση), μετατρέποντας έτσι το σύστημα των ΜΔΕ σε σύστημα αλγεβρικών εξισώσεων, το οποίο λύνεται αριθμητικά μέσω επαναληπτικών μεθόδων. Τέλος, για την επίλυση των ΜΔΕ είναι απαραίτητη η «τροφοδοσία» του μοντέλου με τη γεωμετρία του αντιδραστήρα, καθώς επίσης και με τις συνοριακές συνθήκες του εκάστοτε προβλήματος, οι οποίες ως επί το πλείστον προκύπτουν από τις συνθήκες λειτουργίας του αντιδραστήρα. Επίσης, σε περίπτωση υπολογισμών σε μεταβατική κατάσταση αναγκαία είναι και η τροφοδοσία αρχικών συνθηκών, ενώ αυτονόητο είναι ότι το μοντέλο προαπαιτεί γνώση των φυσικοχημικών ιδιοτήτων όλων των συστατικών που συμμετέχουν στη διεργασία. Από την επίλυση του μακροσκοπικού μοντέλου τα σημαντικότερα μεγέθη που προκύπτουν είναι τα πεδία ταχυτήτων, οι κατανομές πίεσης και θερμοκρασίας, οι συγκεντρώσεις των συστατικών και ο ρυθμός απόδοσης. Για τον προσδιορισμό των ιδιοτήτων του υμενίου που σχετίζονται άμεσα με την ποιότητα του (π.χ. τραχύτητα ή καθαρότητα) συνήθως απαιτείται η επίλυση μοντέλων μικρότερων κλιμάκων, καθώς το μακροσκοπικό μοντέλο αδυνατεί να τις προβλέψει [1], [5], [7].

Η εφαρμογή του μακροσκοπικού μοντέλου προϋποθέτει ότι το ρευστό εντός του αντιδραστήρα είναι συνεχές μέσο, κάτι που διαπιστώνεται από τον αδιάστατο αριθμό Knudsen, ο οποίος πρέπει να είναι πολύ μικρότερος της μονάδας ( $Kn \ll 1$ ) και ορίζεται ως εξής:

$$Kn = \frac{\lambda}{L} \quad (2.1)$$

όπου  $\lambda$  το μήκος ελεύθερης διαδρομής των μορίων και  $L$  το χαρακτηριστικό μήκος του προβλήματος. Τυπική τιμή του αριθμού Knudsen για τον αντιδραστήρα που θα μελετηθεί στην παρούσα διπλωματική εργασία και για το εύρος των λειτουργικών παραμέτρων όπου αυτός λειτουργεί είναι  $Kn=1.92 \times 10^{-5}$ . Συνεπώς, η θεώρηση του συνεχούς μέσου είναι εύλογη και στο εξής θεωρείται δεδομένη. Επιπλέον, η ροή εντός, δια μέσου και εκτός του αντιδραστήρα θεωρείται στρωτή, διότι έχει υπολογιστεί τυπική τιμή του αριθμού Reynolds, η οποία είναι  $Re=202.52$  [5].

### 2.2.1. Εξισώσεις φαινομένων μεταφοράς

Η γενική εξίσωση μεταφοράς που μπορεί να διατυπωθεί για οποιοδήποτε μέγεθος  $\phi$ , είναι η εξής:

$$\frac{\partial(\rho\phi)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho\mathbf{u}\phi) = \nabla \cdot \Gamma_\phi \nabla\phi + S_\phi \quad (2.2)$$

όπου  $t$  ο χρόνος,  $\rho$  η πυκνότητα του ρευστού,  $\phi$  το μεταφερόμενο μέγεθος,  $\mathbf{u}$  η ταχύτητα του ρευστού,  $\Gamma_\phi$  ο συντελεστής διάχυσης και  $S_\phi$  ο όρος της πηγής. Στην εξίσωση εμφανίζονται με τη σειρά από αριστερά προς τα δεξιά ο μεταβατικός όρος, ο όρος της συναγωγής, ο όρος της διάχυσης και ο όρος της πηγής. Όσον αφορά το μέγεθος  $\phi$  αυτό μπορεί να είναι η ταχύτητα  $\mathbf{u}$  για την εξίσωση ορμής, η θερμοκρασία  $T$  για την εξίσωση ενέργειας, το εκάστοτε κλάσμα μάζας  $\omega$  για τις εξισώσεις των χημικών συστατικών και η μονάδα για την εξίσωση συνέχειας (μάζας) [4], [11].

#### A. Εξίσωση Συνέχειας

$$\frac{\partial\rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho\mathbf{u}) = 0 \quad (2.3)$$

όπου  $t$  ο χρόνος,  $\rho$  η πυκνότητα και  $\mathbf{u}$  το διάνυσμα της ταχύτητας [11].

#### B. Εξίσωση Ορμής

$$\frac{\partial(\rho\mathbf{u})}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho\mathbf{u}\mathbf{u}) = -\nabla p + \nabla \cdot \boldsymbol{\tau} + \rho\mathbf{g} \quad (2.4)$$

όπου  $p$  η πίεση λειτουργίας,  $\mathbf{g}$  η επιτάχυνση της βαρύτητας και  $\boldsymbol{\tau}$  ο τανυστής τάσης ο οποίος ορίζεται ως εξής:

$$\boldsymbol{\tau} = \mu \left[ (\nabla\mathbf{u} + \nabla\mathbf{u}^T) - \frac{2}{3} (\nabla \cdot \mathbf{u})\mathbf{I} \right] \quad (2.5)$$

όπου  $\mu$  το ιξώδες και  $\mathbf{I}$  ο μοναδιαίος δυαδικός [11].

#### C. Εξίσωση Ενέργειας

$$C_p \frac{\partial(\rho T)}{\partial t} + C_p \nabla \cdot (\rho\mathbf{u}T) = \nabla \cdot (\lambda \nabla T) - \sum_{i=1}^N \left( \mathbf{j}_i \cdot \frac{\nabla H_i}{M_i} \right) - \sum_{i=1}^{N_g} H_i r_i^g \quad (2.6)$$

όπου  $T$  η απόλυτη θερμοκρασία,  $C_p$  η ειδική θερμοχωρητικότητα σε σταθερή πίεση,  $\lambda$  η θερμική αγωγιμότητα,  $\mathbf{j}_i$  ο ρυθμός διάχυσης του χημικού συστατικού  $i$ ,  $H_i$  η ενθαλπία

σηματισμού του συστατικού  $i$ ,  $M_i$  το μοριακό βάρος του συστατικού  $i$ ,  $N$  το σύνολο των συστατικών του μίγματος,  $N_g$  το πλήθος των αέριων συστατικών που λαμβάνουν μέρος στις ογκομετρικές αντιδράσεις και  $r_i^g$  ο καθαρός ρυθμός παραγωγής ή κατανάλωσης του συστατικού  $i$ , ο οποίος υπολογίζεται παρακάτω από την εξίσωση (2.18) [11].

#### D. Εξίσωση Ιδανικών Αερίων

$$p_i = c_i RT \quad (2.7)$$

όπου  $p_i$  η πίεση του  $i$  συστατικού,  $c_i$  η συγκέντρωση του  $i$  συστατικού και  $R$  η σταθερά των ιδανικών αερίων. Η καταστατική αυτή εξίσωση επιλύεται μαζί με τις θεμελιώδεις εξισώσεις διατήρησης, κάνοντας την παραδοχή ότι το ρευστό της διεργασίας είναι ιδανικό αέριο [11].

#### E. Εξισώσεις Χημικών Συστατικών

$$\frac{\partial(\rho\omega_i)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho\mathbf{u}\omega_i) = -\nabla \cdot \mathbf{j}_i + M_i \sum_{k=1}^{N_g} r_i^g \quad (2.8)$$

όπου  $\omega_i$  το κλάσμα μάζας του συστατικού  $i$ . Καθώς το άθροισμα των κλασμάτων μάζας είναι ίσο με μονάδα, η εξίσωση επιλύεται για όλα τα συστατικά εκτός από ένα, το οποίο συνήθως επιλέγεται να είναι το φέρον αέριο [4], [11], [12].

Σε διεργασίες ΧΑΑ, ο ρυθμός διάχυσης  $\mathbf{j}_i$  υπολογίζεται από το μοντέλο πλήρους πολυσυστατικής διάχυσης. Σε πολυσυστατικά μίγματα δεν είναι εφικτή η παραγωγή σχέσεων για τον κάθε ρυθμό διάχυσης που να περιλαμβάνουν τη βαθμίδα συγκέντρωσης μόνο ενός συστατικού, όπως απαιτείται από το νόμο του Fick. Συνεπώς, για τον υπολογισμό του ρυθμού διάχυσης χρησιμοποιούνται οι εξισώσεις Stephan-Maxwell, οι οποίες για ιδανικά αέρια παίρνουν την εξής μορφή [14]:

$$\sum_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^N \frac{f_i f_j}{D_{ji}} \left( \mathbf{j}_j - \frac{\mathbf{j}_i}{\rho_i} \right) = \nabla f_i - \frac{\nabla T}{T} \sum_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^N \frac{f_i f_j}{D_{ji}} \left( \frac{D_{T,j}}{\rho_j} - \frac{D_{T,i}}{\rho_i} \right) \quad (2.9)$$

όπου  $f_i, f_j$  τα μοριακά κλάσματα των συστατικών  $i$  και  $j$ ,  $D_{ji}$  ο δυαδικός συντελεστής διάχυσης του συστατικού  $i$  στο συστατικό  $j$  και  $D_{T,i}$  και  $D_{T,j}$  οι συντελεστές θερμικής διάχυσης των συστατικών  $i$  και  $j$ . Στη συνέχεια, ο όρος  $\mathbf{j}_i$  υπολογίζεται από τη σχέση [14]:

$$\mathbf{j}_i = - \sum_{j=1}^{N-1} \rho D_{ij} \nabla \omega_i - D_{T,i} \frac{\nabla T}{T} \quad (2.10)$$

Η παραπάνω εξίσωση αποτελεί έκφραση του νόμου του Fick λαμβάνοντας υπόψη την επίδραση Soret, και έχει ισχύ μόνο όταν η σύσταση του μίγματος παραμένει σταθερή ή όταν ο συντελεστής  $D_{ij}$  είναι ανεξάρτητος από αυτή. Ο υπολογισμός του τελευταίου γίνεται μέσω της εξίσωσης Chapman-Enskog [14]:

$$D_{ij} = 0.00188 \frac{[T^3(\frac{1}{M_i} + \frac{1}{M_j})]^{0.5}}{P_{abs}\sigma_{ij}^2\Omega_D} \quad (2.11)$$

όπου  $P_{abs}$  η απόλυτη πίεση,  $M_i$  και  $M_j$  τα μοριακά βάρη των συστατικών  $i$  και  $j$ ,  $\sigma_{ij}$  η ενεργή διατομή των συγκρούσεων και  $\Omega_D$  το ολοκλήρωμα σύγκρουσης, το οποίο εκφράζει το μέτρο της αλληλεπίδρασης μεταξύ των μορίων του συστήματος και είναι συνάρτηση της ποσότητας [14]:

$$T_D^* = \frac{T}{(\mathcal{E}/k_B)_{ij}} \quad (2.12)$$

όπου  $k_B$  η σταθερά Boltzmann ίση με  $1.3807 \cdot 10^{-23} \frac{\text{m}^2\text{kg}}{\text{s}^2\text{K}}$  και ο όρος  $(\mathcal{E}/k_B)_{ij}$  η ενεργειακή παράμετρος που υπολογίζεται από το γεωμετρικό μέσο ως εξής [14]:

$$(\mathcal{E}/k_B)_{ij} = \sqrt{(\mathcal{E}/k_B)_i * (\mathcal{E}/k_B)_j} \quad (2.13)$$

Η ενεργή διατομή των συγκρούσεων  $\sigma_{ij}$  υπολογίζεται από τον αριθμητικό μέσο των ατομικών  $\sigma$  ως εξής [14]:

$$\sigma_{ji} = \frac{1}{2}(\sigma_i + \sigma_j) \quad (2.14)$$

Οι συντελεστές θερμικής διάχυσης  $D_T$  υπολογίζονται μέσω της παρακάτω εμπειρικής σχέσης, η οποία ποσοτικοποιεί το φαινόμενο Soret [14]:

$$D_{T,i} = -2,59 * 10^{-7} T^{0,659} \left[ \frac{M_i^{0,511} f_i}{\sum_{i=1}^N M_i^{0,511} f_i} - \omega_i \right] \left[ \frac{\sum_{i=1}^N M_i^{0,511} f_i}{\sum_{i=1}^N M_i^{0,489} f_i} \right] \quad (2.15)$$

## F. Συνοριακές και άλλες συνθήκες

Οι παραπάνω εξισώσεις διατήρησης επιλύονται, όπως όλες οι διαφορικές εξισώσεις, σε συνδυασμό με κατάλληλες συνοριακές *συνθήκες*, οι οποίες αναφέρονται κατά πλειονότητα στους κύριους αγνώστους του προβλήματος, δηλαδή στην ταχύτητα, την πίεση, τη θερμοκρασία και τις συγκεντρώσεις των συστατικών. Κατά κανόνα, οι συνοριακές συνθήκες στα προβλήματα XAA ανήκουν στους εξής τρεις τύπους [5]:

- i. **Τύπου Dirichlet:** Καθορισμένες τιμές των αγνώστων μεταβλητών.
- ii. **Τύπου Neumann:** Καθορισμένες τιμές των παραγώγων των αγνώστων μεταβλητών.

- iii. **Τύπου Robin:** Γραμμικός συνδυασμός των τιμών των αγνώστων μεταβλητών και των παραγώγων τους.

Επιπλέον, σε περίπτωση που οι παραπάνω εξισώσεις επιλύονται σε μεταβατική κατάσταση, απαραίτητη είναι και η ύπαρξη αρχικών συνθηκών, δηλαδή κατανομών στο χώρο των αγνώστων μεταβλητών για χρόνο  $t=0$ . Οι αρχικές συνθήκες προκύπτουν από επίλυση του προβλήματος στη μόνιμη κατάσταση, δηλαδή παραλείποντας τους όρους  $\frac{\partial(\varphi)}{\partial t}$  από τις παραπάνω εξισώσεις [12], [13].

Τονίζεται ότι οι παραπάνω ΜΔΕ μπορούν να εφαρμοστούν είτε ως ένα *τρι-διάστατο* μαθηματικό μοντέλο, είτε ως ένα *δι-διάστατο*, με την τρίτη διάσταση να παραβλέπεται. Κατά συνέπεια, η εξάρτηση των εξισώσεων από τον χώρο θα περιλαμβάνει εξάρτηση από τρεις ή δύο μεταβλητές, αντίστοιχα, όπως και η διακριτοποίηση της γεωμετρίας του αντιδραστήρα. Προφανώς, τα τρισδιάστατα μοντέλα παρουσιάζουν αρκετά μεγαλύτερη ακρίβεια, πολλές φορές σε σημείο που ενώ κάποια πολύπλοκα φαινόμενα μπορεί να μην παρατηρηθούν κατά την προσομοίωση της διεργασίας μέσω δι-διάστατου μοντέλου, τα ίδια φαινόμενα «συλλαμβάνονται» και μάλιστα με αρκετή λεπτομέρεια κατά την προσομοίωση του αντίστοιχου τρι-διάστατου. Ωστόσο, η υπολογιστική προσομοίωση τρισδιάστατων μοντέλων είναι πολύ πιο απαιτητική σε υπολογιστικό χρόνο και μνήμη συγκριτικά με τα διδιάστατα, σε βαθμό που ενώ τα διδιάστατα μοντέλα ολοκληρώνουν έναν πλήρη κύκλο προσομοίωσης μέσα σε λίγα λεπτά της ώρας έως και το πολύ λίγες ώρες σε έναν συνηθισμένο ηλεκτρονικό υπολογιστή, τα τρισδιάστατα απαιτούν την αξιοποίηση τεχνολογίας παράλληλης επεξεργασίας και προγραμματισμού με την προσομοίωση να γίνεται σε Υπερυπολογιστές ή Συστοιχίες Υπολογιστών. Συνεπώς, σε περίπτωση που το δι-διάστατο μοντέλο παρουσιάζει ικανοποιητική ακρίβεια στο εκάστοτε πρόβλημα, τότε προτιμάται η χρήση του έναντι του αντίστοιχου τρι-διάστατου. Το παραπάνω παρατηρείται συχνά στην περίπτωση που η γεωμετρία του αντιδραστήρα παρουσιάζει αξονική συμμετρία.

Τέλος, επισημαίνεται η ανάγκη για βιβλιοθήκες και βάσεις δεδομένων οι οποίες θα τροφοδοτούν το μοντέλο με τα αναγκαία δεδομένα για τον υπολογισμό των απαραίτητων φυσικοχημικών ιδιοτήτων κάθε συστατικού που συμμετέχει στη διεργασία και επακόλουθα και στο μαθηματικό μοντέλο της [12].

Από τις παραπάνω εξισώσεις διαπιστώνεται αυτό που αναφέρθηκε και στο προηγούμενο κεφάλαιο περί δυσκολίας στην υπολογιστική μελέτη της διεργασίας, καθώς ένα μακροσκοπικό μοντέλο που περιλαμβάνει εξισώσεις διατήρησης και μεταφοράς είναι εν γένει μη γραμμικό. Επιπλέον μη γραμμικότητα προέρχεται και από τις εξισώσεις κινητικής της διεργασίας (βλ. παρακάτω ενότητα).

## 2.2.2. Κινητικές εξισώσεις χημικών αντιδράσεων

Εκτός από φαινόμενα μεταφοράς, όπως έχει προαναφερθεί, οι μηχανισμοί που λαμβάνουν χώρα εντός ενός αντιδραστήρα ΧΑΑ περιλαμβάνουν και χημικές αντιδράσεις, οι οποίες συμβαίνουν τόσο στον όγκο της αέριας φάσης, όσο και στην επιφάνεια του υποστρώματος. Σε περίπτωση στρωτής ροής, ένα από τα μοντέλα που περιγράφει με ικανοποιητική ακρίβεια τις αντιδράσεις μιας διεργασίας ΧΑΑ και για αυτό το λόγο χρησιμοποιείται συχνά είναι το *μοντέλο στρωτής ροής – πεπερασμένων ρυθμών*, το οποίο εφαρμόζεται και στην παρούσα εργασία [11].

Σύμφωνα με το μοντέλο αυτό, οι χημικές αντιδράσεις, ανεξαρτήτως του αν είναι ογκομετρικές ή επιφανειακές, περιγράφονται από την παρακάτω γενική χημική εξίσωση:

$$\sum_{i=1}^{N_g} \gamma'_{ik} G_i \stackrel{r_k}{=} \sum_{i=1}^{N_g} \gamma''_{ik} G_i + \sum_{i=1}^{N_s} \gamma''_{ik} S_i \quad (2.16)$$

όπου  $G_i$  το στοιχείο  $i$  που βρίσκεται στην αέρια φάση,  $S_i$  το στοιχείο  $i$  που βρίσκεται στη στερεή φάση,  $N_g$  και  $N_s$  το πλήθος των αέριων και στερεών χημικών συστατικών αντίστοιχα,  $\gamma'_{ik}$  ο στοιχειομετρικός συντελεστής του αντιδρώντος  $i$  στην αντίδραση  $k$ ,  $\gamma''_{ik}$  ο στοιχειομετρικός συντελεστής του προϊόντος  $i$  στην αντίδραση  $k$  και  $r_k$ ,  $r'_k$  οι συνολικοί ρυθμοί των δύο αντίθετων κατευθύνσεων της αντίδρασης  $k$ , είτε αυτή είναι ογκομετρική, είτε επιφανειακή. Η εξίσωση (2.16) ισχύει εκτός από αμφίδρομες και για μονόδρομες αντιδράσεις, όπου ο ρυθμός  $r'_k$  ισούται με 0. Αν και τα αθροίσματα στους όρους της παραπάνω εξίσωσης αναφέρονται σε όλα τα συστατικά του χημικού συστήματος, στην πράξη, μόνο τα συστατικά που συμμετέχουν ως αντιδρώντα ή προϊόντα έχουν αντίκτυπο στην εξίσωση, καθώς τα αδρανή παρουσιάζουν μηδενικούς στοιχειομετρικούς συντελεστές και επακόλουθα παραλείπονται [11].

### A. Ογκομετρικές αντιδράσεις στην αέρια φάση

Ο ρυθμός για μια στοιχειώδη αντίδραση στην αέρια φάση υπολογίζεται από την εξής τύπου Arrhenius έκφραση:

$$r_k^g = k_{0,k} T^b \exp\left(-\frac{E_{a,k}}{RT}\right) f(C_1, \dots, C_{N_g}) \left(\frac{\text{Μάζα}}{\text{Όγκο} * \text{Χρόνος}}\right) \quad (2.17)$$

όπου  $k_{0,k}$  είναι ο προ-εκθετικός συντελεστής της αντίδρασης  $k$ ,  $b$  ο εκθέτης της θερμοκρασίας της αντίδρασης  $k$ ,  $E_{a,k}$  η ενέργεια ενεργοποίησης της αντίδρασης  $k$ ,  $R$  η παγκόσμια σταθερά των αερίων,  $C_i$  η μοριακή συγκέντρωση των αντιδρώντων και  $f$  η συνάρτηση που εκφράζει την εξάρτηση του ρυθμού της αντίδρασης από τις συγκεντρώσεις των συστατικών [11].

Συνεπώς, ο καθαρός μοριακός ρυθμός παραγωγής ή κατανάλωσης του χημικού συστατικού  $i$  στην αέρια φάση δίνεται από τη σχέση:

$$r_i^g = \sum_{k=1}^{K_g} (\gamma_{ik}'' - \gamma_{ik}') r_k^g, i = 1, \dots, N_g \quad (2.18)$$

όπου  $K_g$  το πλήθος των ογκομετρικών αντιδράσεων στην αέρια φάση [11].

## **B. Επιφανειακές αντιδράσεις στο υπόστρωμα**

Ο ρυθμός για μια στοιχειώδη αντίδραση στην επιφάνεια του υποστρώματος υπολογίζεται από μια αντίστοιχη με την (2.17) τύπου Arrhenius έκφραση:

$$r_k^s = k_{0,k} T^b \exp\left(-\frac{E_{a,k}}{RT}\right) f(C_1, \dots, C_{N_s}) \left( \frac{\text{Μάζα}}{\text{Επιφάνεια} * \text{Χρόνος}} \right) \quad (2.19)$$

όπου όλα τα σύμβολα αντιστοιχούν στα ίδια με την (2.17), με τη διαφορά ότι σε αυτή την περίπτωση αναφέρονται σε επιφανειακές και όχι ογκομετρικές αντιδράσεις [11].

Συνεπώς, ο καθαρός μοριακός ρυθμός παραγωγής ή κατανάλωσης του χημικού συστατικού  $i$  στην επιφάνεια του υποστρώματος δίνεται από τη σχέση:

$$r_i^s = \sum_{k=1}^{K_s} (\gamma_{ik}'' - \gamma_{ik}') r_k^s, i = 1, \dots, N_s \quad (2.20)$$

όπου  $K_s$  το πλήθος των ογκομετρικών αντιδράσεων στην αέρια φάση [11].

Για τον υπολογισμό των συγκεντρώσεων των χημικών συστατικών στο υπόστρωμα, θεωρείται ότι κατά τη διάρκεια μιας επιφανειακής αντίδρασης, η ροή μάζας κάθε χημικού συστατικού από την αέρια φάση προς την επιφάνεια του υποστρώματος ισούται με το ρυθμό παραγωγής ή κατανάλωσης του λόγω των χημικών αντιδράσεων που συμμετέχει, δηλαδή:

$$\rho_s D_i \mathbf{n} \cdot \nabla \omega_{i,s} = M_i r_i^s \quad (2.21)$$

όπου  $\rho_s$  είναι η πυκνότητα στο υπόστρωμα,  $D_i$  ο συντελεστής διάχυσης του χημικού συστατικού  $i$ ,  $\omega_{i,s}$  το κλάσμα μάζας του χημικού συστατικού  $i$  στο υπόστρωμα,  $\mathbf{n}$  το μοναδιαίο κάθετο διάνυσμα στο επίπεδο του υποστρώματος [11].

### 2.3. Διακριτοποίηση υπολογιστικού χωρίου – Μέθοδος επίλυσης

Όπως αναφέρθηκε και στην Εν. 2.2, οι παραπάνω ΜΔΕ μαζί με τις υπόλοιπες «βοηθητικές» εξισώσεις, το σύνολο των οποίων σε συνδυασμό με τις συνοριακές και αρχικές συνθήκες συνθέτουν το μακροσκοπικό μοντέλο της ΧΑΑ, επιλύονται αριθμητικά με χρήση εμπορικών (και μη) λογισμικών που έχουν ενσωματωμένους κώδικες Υπολογιστικής Ρευστοδυναμικής (CFD) και αξιοποιούν μεθόδους διακριτοποίησης των ΜΔΕ στο χώρο, αλλά και στο χρόνο μετατρέποντας έτσι το σύστημα των ΜΔΕ σε σύστημα αλγεβρικών ή αλγεβρο-διαφορικών εξισώσεων, το οποίο λύνεται αριθμητικά μέσω επαναληπτικών μεθόδων. Η παραπάνω γενική τεχνική επίλυσης οδηγεί στην προσεγγιστική επίλυση των εξισώσεων. Ωστόσο, με χρήση των κατάλληλων για το εκάστοτε πρόβλημα μεθόδων, τα σφάλματα στις τιμές των μεταβλητών που προκύπτουν από την προσομοίωση της διεργασίας μπορεί πάρουν πολύ μικρές τιμές, δίνοντας έτσι μια αρκετά ρεαλιστική «εικόνα» του αντιδραστήρα και ουσιαστικά επιτρέποντας με αρκετή αξιοπιστία την αξιοποίηση όλων εκείνων των εφαρμογών που αναφέρθηκαν στην Εν. 2.1 [1], [5], [7].

#### 2.3.1. Διακριτοποίηση χώρου αντιδραστήρα

Έχοντας δημιουργήσει τη γεωμετρία του αντιδραστήρα μέσω κάποιου λογισμικού τεχνικής σχεδίασης, είτε αυτή είναι τρι-διάστατη είτε δι-διάστατη, το υπολογιστικό χωρίο διακριτοποιείται σε ένα «μωσαϊκό» από στοιχειώδη κελιά, το σύνολο των οποίων σχηματίζουν το λεγόμενο πλέγμα. Κάθε κελί αντιπροσωπεύει έναν πεπερασμένο όγκο ελέγχου, εντός του οποίου οι τιμές κάθε μεταβλητής που υπολογίζονται από τις εξισώσεις που παρουσιάστηκαν στην εν. 2.2 θεωρούνται σταθερές. Δηλαδή, εντός κάθε απειροστού κελιού, δεν θεωρείται μεταβολή των τιμών κάθε μεταβλητής προς οποιαδήποτε κατεύθυνση του χώρου. Κάθε κελί οριοθετείται από τις πλευρές/έδρες του, οι οποίες καθορίζονται κατά τη δημιουργία του πλέγματος. Το σύνολο των ΜΔΕ επιλύεται ξεχωριστά για κάθε μεμονωμένο κελί και στη συνέχεια οι τιμές που προκύπτουν παρεμβάλλονται και στον υπόλοιπο χώρο, με αποτέλεσμα τη μετατροπή της διακριτής λύσης σε μια λύση για ολόκληρο το υπολογιστικό χωρίο [5].

Η δημιουργία του πλέγματος είναι ένα πολύ κρίσιμο βήμα της υπολογιστικής διαδικασίας, καθώς από αυτό επηρεάζονται σε μεγάλο βαθμό τόσο η ακρίβεια των προσομοιώσεων, όσο και η ίδια η διαδικασία επίλυσης αλλά και οι υπολογιστικές απαιτήσεις. Οι δύο σημαντικότερες πτυχές ενός πλέγματος είναι (α) η πυκνότητα και (β) η ποιότητα του [5].

Όσον αφορά την ποιότητα ενός πλέγματος, τα δύο κριτήρια που λαμβάνονται συχνότερα υπόψη είναι (i) η αναλογία διαστάσεων, η οποία ορίζεται ως ο λόγος της μεγαλύτερης προς τη μικρότερη πλευρά κάθε κελιού, και (ii) η παραμόρφωση, η οποία

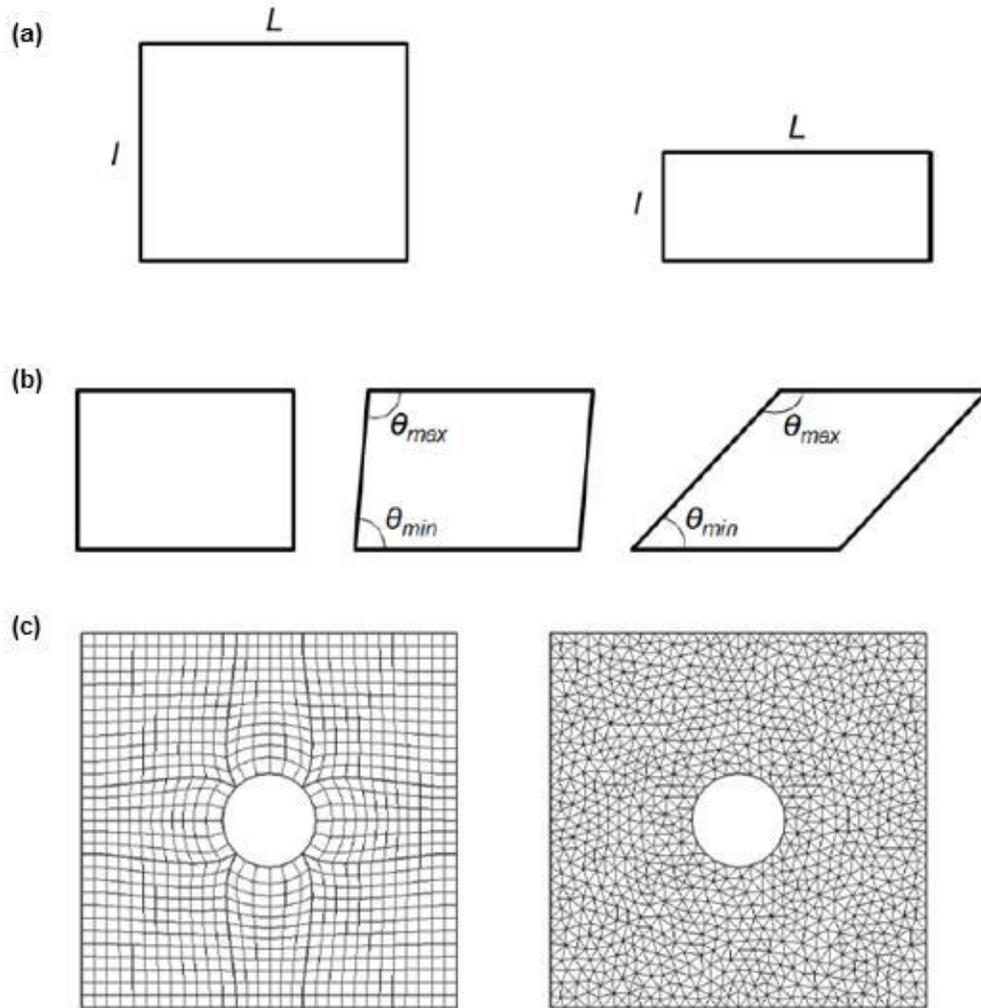
εκφράζεται από το λόγο της μεγαλύτερης προς τη μικρότερη γωνία κάθε κελιού. Κελιά με ενδεικτικές τιμές των δύο παραπάνω δεικτών παρουσιάζονται στο Σχήμα 2.2 (α και β, αντίστοιχα) [5].

Η επίδραση της πυκνότητας ενός πλέγματος στην υπολογιστική διαδικασία, από την άλλη, είναι πιο ξεκάθαρη συγκριτικά με την ποιότητα. Όσο πιο πυκνό είναι το πλέγμα, τόσο μειώνεται το σφάλμα της υπολογισθείσας λύσης, αλλά ταυτόχρονα αυξάνονται πολύ και οι απαιτήσεις σε υπολογιστικό χρόνο και μνήμη. Την αντίθετη επίδραση εμφανίζει η αραιώση του πλέγματος. Στην πράξη, η τυπική πρακτική που ακολουθείται είναι η εξής: Αρχικά, γίνονται κάποιοι δοκιμαστικοί υπολογισμοί με ένα αρκετά αραιό πλέγμα. Στη συνέχεια, το πλέγμα πυκνώνεται συνεχώς και σταδιακά κατά σχετικά μικρά ποσοστά. Η διαδικασία αυτή παύει όταν διαπιστωθεί ότι περαιτέρω πύκνωση του πλέγματος δεν βελτιώνει άλλο την ακρίβεια της λύσης, δηλαδή πλέον η λύση είναι ανεξάρτητη του πλέγματος. Η παραπάνω διαδικασία ονομάζεται *επαλήθευση ανεξαρτησίας πλέγματος* [5].

Τα πλέγματα ταξινομούνται στις εξής δύο κατηγορίες με βάση τα σχήματα των κελιών τους:

- **Δομημένα πλέγματα:** Αποτελούνται από τετράπλευρα (2-D-πλέγματα) ή εξάεδρα (3-D-πλέγματα), τα οποία σχηματίζουν πλέγμα ομοιόμορφου μοτίβου.
- **Μη δομημένα πλέγματα:** Αποτελούνται από τρίγωνα (2-D-πλέγματα) ή πυραμίδες (3-D-πλέγματα), τα οποία δεν ακολουθούν οποιοδήποτε μοτίβο, αλλά αντιθέτως βρίσκονται ανομοιόμορφα κατανεμημένα στο χώρο.

Τα δομημένα πλέγματα στην πλειονότητα των περιπτώσεων πλεονεκτούν έναντι των μη δομημένων, αφού όχι μόνο παρουσιάζουν μειωμένες υπολογιστικές απαιτήσεις, αλλά επίσης επιτρέπουν τον καλύτερο έλεγχο της πυκνότητας και της διευθέτησης των κελιών. Ωστόσο, τα μη δομημένα πλέγματα προτιμούνται σε περιπτώσεις πολύπλοκης γεωμετρίας, καθώς προσφέρουν υψηλότερη ευελιξία τόσο στη διευθέτηση, όσο και στην πυκνότητα του πλέγματος, επιτρέποντας τοπικές πυκνώσεις ή αραιώσεις του. Δύο ενδεικτικές χωρικές διακριτοποιήσεις -μία από κάθε κατηγορία- παρουσιάζονται στο Σχήμα 2.2c [5].



Σχήμα 2.2: (α) Ορθογώνια 2-D κελιά με μικρή (αριστερά) και μεγάλη (δεξιά) αναλογία διαστάσεων, (β) Παραλληλόγραμμα 2-D κελιά με μηδενική (αριστερά), μικρή (μέση) και μεγάλη (δεξιά) παραμόρφωση, (γ) Χωρική διακριτοποίηση με δομημένο (αριστερά) και μη δομημένο (δεξιά) πλέγμα

### 2.3.2. Επίλυση διακριτοποιημένου μοντέλου – Μέθοδος πεπερασμένων όγκων

Μετά και τη διακριτοποίηση του υπολογιστικού χωρίου, ακολουθεί η επίλυση των εξισώσεων του μακροσκοπικού μοντέλου (Εν 2.2). Συνήθως, η μέθοδος που εφαρμόζεται είναι μία από τις τρεις που αναφέρονται συνοπτικά παρακάτω:

- **Μέθοδος πεπερασμένων διαφορών (ΜΠΔ):** Βασίζεται στην αντικατάσταση των μερικών διαφορικών από αναπτύγματα Taylor σε κάθε σημείο διακριτοποίησης. Όσοι περισσότεροι όροι παραλειφθούν από τις σειρές Taylor, τόσο μειώνεται η ακρίβεια αλλά και το υπολογιστικό κόστος. Εφαρμόζεται εύκολα σε απλές γεωμετρίες λόγω των

όχι ιδιαίτερα πολύπλοκων μαθηματικών που τη συνοδεύουν, αλλά η εφαρμογή της δυσκολεύει αισθητά σε περιπτώσεις πολύπλοκων γεωμετριών [15], [16], [17].

- **Μέθοδος πεπερασμένων στοιχείων (ΜΠΣ):** Στη μέθοδο αυτή, οι άγνωστοι προσεγγίζονται με συναρτήσεις βάσης οι οποίες έχουν περιορισμένη αλληλοεπικάλυψη στο χωρίο και είναι πολυώνυμα χαμηλού βαθμού. Σε συνδυασμό με τη μέθοδο σταθμισμένων υπολοίπων Galerkin, οι ΜΔΕ μετατρέπονται σε ένα σύστημα αλγεβρικών εξισώσεων. Η μέθοδος συνοδεύεται με σχετικά πολύπλοκα μαθηματικά, καθιστώντας την πιο δύσκολα εφαρμόσιμη από τις υπόλοιπες. Ωστόσο, το ίδιο αυτό μειονέκτημα της προσδίδει αρκετή ευελιξία ως προς τις παραμέτρους επίλυσης, επιτρέποντας την επίτευξη πολύ υψηλής ακρίβειας. Επίσης, συχνά παρουσιάζει αρκετά υψηλές υπολογιστικές απαιτήσεις, αν και αυτό εξαρτάται σε μεγάλο βαθμό και από το προς επίλυση πρόβλημα [15], [16], [17].
- **Μέθοδος πεπερασμένων όγκων (ΜΠΟ):** Οι ΜΔΕ ολοκληρώνονται αναλυτικά για κάθε κελί ξεχωριστά. Η αναλυτική τους ολοκλήρωση είναι εφικτή λόγω της θεώρησης ότι όλες οι μεταβλητές παραμένουν αμετάβλητες εντός κάθε όγκου ελέγχου (κελί). Έτσι, οι ΜΔΕ μετασχηματίζονται σε αλγεβρικές εξισώσεις, οι οποίες ονομάζονται *εξισώσεις πεπερασμένων όγκων* και το σύστημα τους μπορεί να επιλυθεί με οποιαδήποτε γνωστή αριθμητική (ή και αναλυτική) μέθοδο επίλυσης συστημάτων. Λόγω παρεμβολής των τιμών κάθε μεταβλητής από το κέντρο των κελιών στα μέσα των πλευρών του, οι υπολογισμοί στο ένα κελί επηρεάζονται και επηρεάζουν άμεσα τους υπολογισμούς από/στα γειτονικά τους κελιά. Με άλλα λόγια, διατυπώνονται τοπικά ισοζύγια για κάθε μεταβλητή. Η παραπάνω λογική συνάδει σε μεγάλο βαθμό με μοντέλα που αποτελούνται κυρίως από εξισώσεις διατήρησης, όπως το μακροσκοπικό μοντέλο μιας διεργασίας ΧΑΑ. Για αυτό το λόγο, η ΜΠΟ παρατηρείται συχνά σε προβλήματα ρευστοδυναμικής [4], [7], [15], [16], [17].

Στην παρούσα εργασία, το μακροσκοπικό μοντέλο επιλύθηκε με τη βοήθεια του εμπορικού λογισμικού Υπολογιστικής Ρευστοδυναμικής ANSYS Fluent 17, το οποίο είναι κώδικας που χρησιμοποιεί τη μέθοδο πεπερασμένων όγκων. Κατά συνέπεια, η ΜΠΟ θα αναλυθεί εκτενέστερα στη συνέχεια.

### **Μέθοδος πεπερασμένων όγκων**

Όπως έχει ήδη αναφερθεί, κατά τη ΜΠΟ κάθε ΜΔΕ ολοκληρώνεται σε κάθε στοιχειώδη όγκο ελέγχου ξεχωριστά. Για λόγους συντομίας η μέθοδος θα παρουσιαστεί μόνο για τη γενική εξίσωση διατήρησης (2.2), με ολοκλήρωση της οποίας προκύπτει [5], [11]:

$$\int_V \frac{\partial(\rho\varphi)}{\partial t} dV + \int_V \nabla \cdot (\rho\mathbf{u}\varphi) dV = \int_V \nabla \cdot \Gamma_\varphi \nabla \varphi dV + \int_V S_\varphi dV \quad (2.22)$$

η οποία σύμφωνα με το θεώρημα απόκλισης γίνεται:

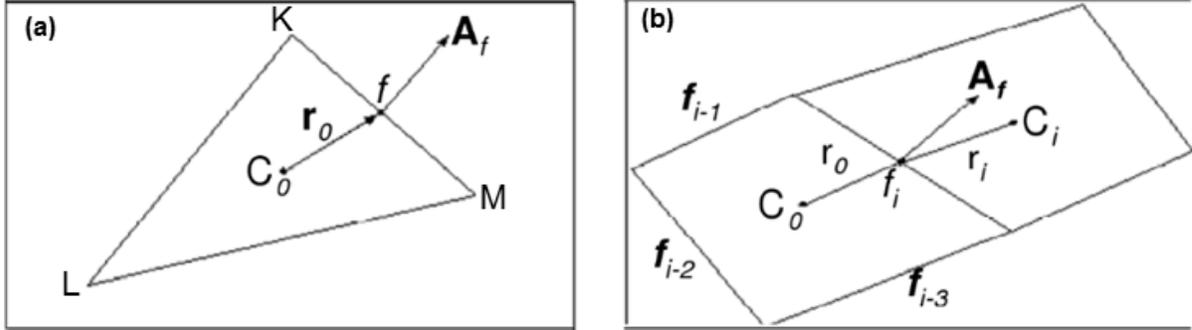
$$\int_V \frac{\partial(\rho\varphi)}{\partial t} dV + \int_A \mathbf{n} \cdot (\rho\mathbf{u}\varphi) dA = \int_A \mathbf{n} \cdot \Gamma_\varphi \nabla \varphi dA + \int_V S_\varphi dV \quad (2.23)$$

όπου A τα όρια του όγκου ελέγχου V (πλευρές κελιού) και  $\mathbf{n}$  το μοναδιαίο διάνυσμα κάθετο στην A. Η παραπάνω εξίσωση προσεγγίζεται για ένα διακριτό κελί, όπως αυτό του Σχήμα 2.3, ως εξής:

$$\frac{\partial(\rho\varphi)}{\partial t} V + \sum_i^{N_f} \rho_{f_i} \varphi_{f_i} \mathbf{u}_{f_i} \mathbf{A}_{f_i} = \sum_i^{N_f} \Gamma_\varphi \nabla \varphi_{f_i} \mathbf{A}_{f_i} + S_\varphi V \quad (2.24)$$

όπου ο δείκτης  $i$  αναφέρεται στις πλευρές του κελιού με  $N_f$  το πλήθος των πλευρών, ενώ  $f_i$  το μέσο κάθε πλευράς  $i$  και κατά συνέπεια όλα τα μεγέθη με δείκτη  $f_i$  υπολογίζονται στα αντίστοιχα σημεία. Τα παραπάνω παρουσιάζονται διαγραμματικά και στο Σχήμα 2.3a, όπου  $C_0$  το κέντρο του κελιού,  $\mathbf{r}_0$  το διάνυσμα θέσης από το κέντρο του κελιού προς το μέσο κάποιας πλευράς και  $\mathbf{A}_f$  το κάθετο στην πλευρά διάνυσμα. Όσον αφορά τον πρώτο όρο της (2.24), αυτός αναφέρεται σε χρονική μεταβολή και για λόγους απλοποίησης της παρουσίασης παραλείπεται στη συνέχεια αυτής της υποενότητας. Ωστόσο, περαιτέρω αναφορά σε αυτόν θα γίνει στην επόμενη υποενότητα (2.3.3), όπου θα αναλυθούν τα σχετικά με τον υπολογισμό του [5], [11].

Η άγνωστη μεταβλητή  $\varphi_{C_0}$ , δηλαδή το μέγεθος  $\varphi$  υπολογιζόμενο στο κέντρο του κελιού, πρέπει να εισαχθεί στην εξίσωση (2.24). Αυτό πραγματοποιείται μέσω της ανάπτυξης εξισώσεων παρεμβολής όλων των  $\varphi_{f_i}$  στο  $\varphi_{C_0}$ , οι οποίες αντικαθίστανται στην (2.24) με αποτέλεσμα τη δημιουργία μιας (εν γένη) μη γραμμικής εξίσωσης. Η παρεμβολή μπορεί να είναι πρώτης τάξης, δεύτερης τάξης, εκθετικός νόμος ή και άλλες ακόμα πιο πολύπλοκες τεχνικές. Επιπλέον κρίνεται σημαντικό να τονιστεί ότι οι υπολογισμοί ενός κελιού δεν επηρεάζουν τους υπολογισμούς των γειτονικών του μόνο μέσω των τιμών των μεταβλητών στις κοινές τους πλευρές, αλλά και μέσω της ίδιας της τιμής στο κέντρο τους. Πιο συγκεκριμένα, μία από τις εξισώσεις παρεμβολής εκφράζει τη σχέση που συνδέει τις τιμές του  $\varphi$  στα κέντρα δύο γειτονικών κελιών Σχήμα 2.3b. Η σχέση αυτή μπορεί να πάρει από τη μορφή ενός απλού μέσου όρου έως και μια αρκετά πιο πολύπλοκη μορφή [5], [11].



Σχήμα 2.3: Τυπικά κελιά στα οποία εφαρμόζεται η ΜΠΟ. (α) Τριγωνικό 2-D κελί, β) Δύο γειτονικά τετράπλευρα 2-D κελιά

Τέλος, γραμματικοποιώντας την (εν γένη) μη γραμμική εξίσωση που προκύπτει με αντικατάσταση των εξισώσεων παρεμβολής στην (2.24), λαμβάνεται μια εξίσωση της γενικής μορφής:

$$a_{C_0} \varphi_{C_0} = \sum_{nb} a_{nb} \varphi_{nb} + b \quad (2.25)$$

όπου ο δείκτης nb αναφέρεται στα γειτονικά κελιά, ενώ  $a_{C_0}$  και  $a_{nb}$  οι συντελεστές γραμμικοποίησης του  $\varphi_{C_0}$  και  $\varphi_{nb}$ , αντίστοιχα. Σε κάθε κελί αντιστοιχεί και μια τέτοια εξίσωση. Συνεπώς, το σύνολο των εξισώσεων κάθε κελιού του πλέγματος σχηματίζει το σύστημα αλγεβρικών, πλέον, εξισώσεων που έγινε αναφορά προηγουμένως, οι οποίες ονομάζονται εξισώσεις πεπερασμένων όγκων. Το σύστημα αυτό μπορεί να επιλυθεί με οποιαδήποτε μέθοδο επίλυσης συστημάτων, με το Fluent να χρησιμοποιεί αριθμητικές επαναληπτικές μεθόδους. Η ακριβής μέθοδος που θα χρησιμοποιηθεί εξαρτάται από τον *επιλύτη* που θα επιλεγεί από το χρήστη του κώδικα, με το Fluent να προσφέρει δύο διαφορετικές επιλογές (περαιτέρω πληροφορίες στη βιβλιογραφία [11], [14]). Επίσης, από τον επιλεγμένο επιλύτη εξαρτάται και η μέθοδος γραμμικοποίησης που εφαρμόζεται σε προαναφερθέν βήμα της υπολογιστικής διαδικασίας [5], [11].

Ο αλγόριθμος που μόλις περιγράφηκε είναι εκ κατασκευής επαναληπτικός. Συνεπώς, η σύγκλιση του σε μια λύση αποδεκτής ακρίβειας βασίζεται στη μείωση συγκεκριμένων «δεικτών σφάλματος» κάτω από κάποια προκαθορισμένα όρια. Αυτοί οι δείκτες σφάλματος ονομάζονται *υπόλοιπα*, συμβολίζονται ως  $R_\varphi$  και ορίζονται από την παρακάτω εξίσωση:

$$R_\varphi = \frac{\sum_{C_0} |\sum_{nb} (a_{nb} \varphi_{nb}) + b - a_{C_0} \varphi_{C_0}|}{\sum_{C_0} |a_{C_0} \varphi_{C_0}|} \quad (2.26)$$

Τα αποδεκτά όρια είναι συνήθως ίσα με  $10^{-3}$ , αλλά ο χρήστης έχει τη δυνατότητα να τα μεταβάλλει, με την αντίστοιχη επίδραση σε ακρίβεια λύσης και υπολογιστικές απαιτήσεις [5], [11].

### 2.3.3. Διακριτοποίηση στο χρόνο και επίλυση σε μεταβατική κατάσταση

Σε περίπτωση όπου η προσομοίωση της διεργασίας πραγματοποιηθεί σε μεταβατική κατάσταση, στη παραπάνω υπολογιστική διαδικασία προστίθενται λίγα ακόμα βήματα. Πιο συγκεκριμένα, εκτός από χωρική διακριτοποίηση απαιτείται και χρονική, αφού ο χρόνος είναι μια ακόμη ανεξάρτητη μεταβλητή από την οποία εξαρτάται η λύση.

Αφού διακριτοποιηθεί ο χώρος και υπολογισθούν εξισώσεις πεπερασμένων όγκων, ακολουθεί η διακριτοποίηση του χρόνου, η οποία περιλαμβάνει την ολοκλήρωση κάθε όρου των εξισώσεων αυτών κατά ένα χρονικό βήμα  $\Delta t$  [11].

Πιο αναλυτικά, μια γενική εξίσωση που εκφράζει τη χρονική εξέλιξη του μεγέθους  $\phi$  είναι η εξής [11]:

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = F(\phi) \quad (2.27)$$

όπου  $F$  η συνάρτηση που περιλαμβάνει οποιαδήποτε χωρική διακριτοποίηση του  $\phi$  (π.χ. η συνάρτηση που προκύπτει αν στην Εξ. (2.25) όλοι οι όροι έρθουν στη μια πλευρά). Η διακριτοποίηση μπορεί να ακολουθήσει διάφορες τεχνικές. Το Fluent δίνει τη δυνατότητα στο χρήστη να επιλέξει μεταξύ **διακριτοποίησης πρώτης τάξης**, η οποία εκφράζεται από την εξίσωση [11]:

$$\frac{\phi^{n+1} - \phi^n}{\Delta t} = F(\phi) \quad (2.28)$$

ή **διακριτοποίησης δεύτερης τάξης**, η οποία με τη σειρά της εκφράζεται από την εξίσωση:

$$\frac{3\phi^{n+1} - 4\phi^n + \phi^{n-1}}{2\Delta t} = F(\phi) \quad (2.29)$$

όπου οι δείκτες  $n+1$ ,  $n$  και  $n-1$  αναφέρονται στο επόμενο ( $t+\Delta t$ ), στο τωρινό ( $t$ ) και στο προηγούμενο ( $t-\Delta t$ ) χρονικό βήμα [11].

Σε ό,τι αφορά το χρονικό βήμα, το Fluent διαθέτει δύο επιλογές στο χρήστη [11]:

- A. Έμμεση χρονική ολοκλήρωση:** Σε αυτή τη μέθοδο η  $F(\phi)$  υπολογίζεται στο επόμενο χρονικό βήμα, άρα για διακριτοποίηση πρώτης τάξης η τελική εξίσωση, η οποία προκύπτει μετά από λίγες πράξεις στην (2.28), παίρνει τη μορφή:

$$\varphi^{n+1} = \varphi^n + \Delta t F(\varphi^{n+1}) \quad (2.30)$$

Η παραπάνω εξίσωση λύνεται επαναληπτικά όπως και στην περίπτωση μόνιμης κατάστασης που περιγράφηκε στην Εν. 2.3.2 για κάθε χρονικό βήμα, πριν η προσομοίωση μεταβεί στο επόμενο. Η μέθοδος ονομάζεται «έμμεση» λόγω του γεγονότος ότι το  $\varphi^{n+1}$  σε ένα ορισμένο κελί συσχετίζεται με τα  $\varphi^{n+1}$  των γειτονικών του κελιών μέσω του όρου  $F(\varphi^{n+1})$  [11].

**Β. Άμεση χρονική ολοκλήρωση:** Εδώ η  $F(\varphi)$  υπολογίζεται στο τωρινό χρονικό βήμα, άρα για διακριτοποίηση πρώτης τάξης η τελική εξίσωση, η οποία προκύπτει μετά από λίγες πράξεις στην (2.28), παίρνει τη μορφή:

$$\varphi^{n+1} = \varphi^n + \Delta t F(\varphi^n) \quad (2.31)$$

Η παραπάνω εξίσωση λύνεται επαναληπτικά όπως και στην περίπτωση μόνιμης κατάστασης που περιγράφηκε στην Εν. 2.3.2 για κάθε χρονικό βήμα, πριν η προσομοίωση μεταβεί στο επόμενο. Η μέθοδος ονομάζεται «άμεση» λόγω του γεγονότος ότι το  $\varphi^{n+1}$  ορίζεται από όρους που αναφέρονται αποκλειστικά στην τωρινή λύση ( $\varphi^n$  και  $F(\varphi^n)$ ) [11].

Στην πλειονότητα των περιπτώσεων εφαρμόζεται η πρώτη μέθοδος, καθώς παρουσιάζει αξιοσημείωτη ευστάθεια ως προς τις χρονικές μεταβολές. Αντιθέτως, η άμεση μέθοδος απαιτεί την ικανοποίηση κάποιων προϋποθέσεων για να παρουσιάσει ικανοποιητική χρονική ευστάθεια και κατά συνέπεια χρησιμοποιείται μόνο για πολύ συγκεκριμένες εφαρμογές [11].

Τέλος, σημειώνεται ότι το μέγεθος του χρονικού βήματος επιλέγεται από το χρήστη, ενώ μπορεί ακόμη και να μεταβάλλεται με το πέρασμα του χρόνου. Επίσης, υπάρχει η δυνατότητα επιλογής του πλήθους των επαναλήψεων εντός κάθε χρονικού βήματος αλλά και των χρονικών βημάτων αυτών καθ' αυτών, ελέγχοντας έτσι το κατά πόσο θα έχει συγκλίνει η επανάληψη [14].



## 3. Μελετώμενη διεργασία – Σκοπός παρούσας εργασίας

### 3.1. Χημική απόθεση από ατμό υμενίων αλουμινίου (Al)

#### 3.1.1. Γενικά περί διεργασίας

Όπως έχει ήδη αναφερθεί (Εν. 1.1), η ΧΑΑ βρίσκει ευρεία εφαρμογή στον τομέα της μικροηλεκτρονικής, ιδιαίτερα στη βιομηχανία ημιαγωγών, με σκοπό την κατασκευή λεπτών υμενίων που ενσωματώνονται σε *ολοκληρωμένα κυκλώματα (IC)*, συσκευές που είναι κοινώς γνωστές και ως «μικροτσιπ» ή και ως *συσκευές ολοκλήρωσης πολύ μεγάλης κλίμακας (VLSI)*, λόγω της διαδικασίας που ακολουθείται για την κατασκευή τους, η οποία περιλαμβάνει το συνδυασμό χιλιάδων τρανζίστορ. Τα υμένια **αλουμινίου** παρουσιάζουν μερικές -ιδιαίτερα χρήσιμες για την παραπάνω εφαρμογή- ιδιότητες, όπως υψηλή ηλεκτρική αγωγιμότητα, σημαντική αντίσταση σε ηλεκτρομεταφορά και σε διάβρωση, ικανοποιητική προσκόλληση στο πυρίτιο (υλικό που συναντάται συχνά σε IC συσκευές) κ.α., οι οποίες τα καθιστούν ιδανικά «συστατικά» τέτοιου είδους συσκευών. Επίσης, το αλουμίνιο είναι ένα σχετικά φθινό υλικό, ενώ η προστασία του επιτυγχάνεται εύκολα μέσω της χημικής δημιουργίας οξειδίων στην επιφάνεια του. Συγκεκριμένες εφαρμογές περιλαμβάνουν τη χρήση τους σε καλώδια, πολυεπίπεδες ηλεκτρικές διασυνδέσεις ή/και μικρο-βύσματα. Επιπλέον, το αλουμίνιο αξιοποιείται συχνά και για την παραγωγή σύνθετων υμενίων που αποτελούνται από μεταλλικά κράματα, όπως το  $AlFe_3$ , το  $AlPt_3$  ή το  $Al_{13}Fe_4$ , τα οποία χαρακτηρίζονται από ενισχυμένες μηχανικές και θερμικές ιδιότητες, καταλυτική δράση και ιδιότητες διαβροχής [18], [19], [20], [21].

Έως και σήμερα, η πιο καθιερωμένη τεχνική σύνθεσης υμενίων αλουμινίου είναι η ιοντοβολή, η οποία ανήκει στις μεθόδους φυσικής απόθεσης από ατμό. Ωστόσο, η ιοντοβολή, όπως και όλες οι τεχνικές ΦΑΑ, υστερούν στην απόθεση σε πολύπλοκες επιφανειακές διαμορφώσεις που περιλαμβάνουν οπές και κοιλότητες συγκριτικά με τη ΧΑΑ (Εν. 1.6), γεγονός που συχνά οδηγεί στο σχηματισμό μικρο-ρωγμών και ασυνεχειών σε τέτοιες διαμορφώσεις. Το παραπάνω μειονέκτημα της ΦΑΑ είναι σημαντικό στην περίπτωση των IC ή VLSI συσκευών, καθώς σε αυτές συναντάται πληθώρα τέτοιων διαμορφώσεων, ενώ γενικότερα χαρακτηρίζονται από αρκετά πολύπλοκες επιφανειακές μορφολογίες. Μάλιστα, όσο αυξάνεται η πολυπλοκότητα των συσκευών αυτών, τόσο αυξάνονται και οι αντίστοιχες διαμορφώσεις, με αποτέλεσμα την αναπόφευκτη αύξηση και των προαναφερθεισών ατελειών [18], [19], [20], [21], [22].

Επιπλέον, η ΧΑΑ αλουμινίου όχι μόνο δεν περιορίζεται από το παραπάνω φαινόμενο, το οποίο ονομάζεται «απόθεση οπτικής επαφής» (Εν. 1.6), οδηγώντας σε ομοιόμορφες αποθέσεις, αλλά επίσης δεν απαιτεί τη χρήση πηγών ενέργειας που μπορεί να προκαλέσουν βλάβες στο υπόστρωμα, όπως ραδιενέργεια ή ηλεκτρικά φορτία. Ο κυριότερος λόγος που δεν έχει ακόμα επικρατήσει ως η καθιερωμένη τεχνική για τη σύνθεση υμενίων αλουμινίου είναι η αξιοσημείωτη πολυπλοκότητα που συνοδεύει τους μηχανισμούς ανάπτυξης των υμενίων, ιδιαίτερα των χημικών αντιδράσεων. Παρά την εκτεταμένη και πολύχρονη μελέτη της ΧΑΑ αλουμινίου, η κλιμάκωση της από εργαστηριακή/πυλοτική σε βιομηχανική κλίμακα είναι περιορισμένη [18], [20], [21].

Ο λόγος αυτός, μαζί και με τη σημαντική εφαρμογή της στη βιομηχανία σύνθεσης IC/VLSI συσκευών, αλλά και το ότι πρόκειται για μια διεργασία που αναδεικνύει το σύνολο των πιο σημαντικών φαινομένων που συναντά κανείς σε διεργασίες ΧΑΑ, την καθιστούν ιδανική για να μελετηθεί διεξοδικά και από πολλές διαφορετικές σκοπιές [21].

### 3.1.2. Πρόδρομες ενώσεις - DMEAA

Στην παρούσα εργασία μελετάται η οργανομεταλλική ΧΑΑ (ΜΟ-ΧΑΑ) αλουμινίου, δηλαδή ως πρόδρομη ουσία χρησιμοποιείται οργανική ένωση που περιέχει άτομο/-α κάποιου μεταλλικού στοιχείου (Εν. 1.5), στην προκειμένη περίπτωση προφανώς αλουμινίου. Η πρόδρομη ένωση πρέπει να ικανοποιεί όσο το δυνατόν περισσότερα από τα κριτήρια που παρατέθηκαν στην Εν. 1.4. Έχει αναφερθεί ένα μεγάλο πλήθος πρόδρομων ενώσεων που έχουν δοκιμαστεί από ερευνητές με ποικίλα αποτελέσματα, εκ των οποίων αυτές που βρίσκουν πλέον πιο ευρεία εφαρμογή είναι το *τρισοβουταλουμίνιο (ΤΙΒΑ)*, το *διμεθυλαλουμίνιο (DMAH)*, το *τριμεθυλαλουμίνιο (TMA)*, το *τριμεθυλαμινικό υδρίδιο του αλουμινίου (TMAA)*, το *τριαιθυλαμινικό υδρίδιο του αλουμινίου (TEAA)* και τέλος το *διμεθυλ-αιθυλαμινικό υδρίδιο του αλουμινίου (DMEAA)* [5].

Τα ΤΙΒΑ, DMAH και TMA, εκτός άλλων προβλημάτων που μπορεί να συνεπάγεται η χρήση τους, μειονεκτούν αισθητά στην καθαρότητα των παραγόμενων υμενίων, καθώς για διάφορους λόγους η χρήση τους οδηγεί σε υμένια επιμολυσμένα με άτομα άνθρακα (C). Κατά συνέπεια, η διεργασία οδηγήθηκε αναπόφευκτα στα αμινικά αλουμινοϋδρίδια, όπως το TMAA, το TEAA και το DMEAA, με σκοπό τη σύνθεση υμενίων χωρίς προσμίξεις άνθρακα. Επίσης, η χρήση των παραπάνω προδρόμων συνεπάγεται και μειωμένες θερμοκρασιακές απαιτήσεις, γεγονός που ενισχύει τη συγκριτική υπεροχή τους.

Από αυτά, το DMEAA προτιμάται για τους εξής λόγους [5]:

- ✓ Είναι υγρό σε θερμοκρασία δωματίου, το οποίο διευκολύνει την εξάτμιση και μεταφορά του εντός του αντιδραστήρα
- ✓ Διασπάται ευκολότερα από τα άλλα δύο
- ✓ Χαρακτηρίζεται από μικρότερο πυροφθορισμό
- ✓ Έχει υψηλότερη τάση ατμών

Όπως διαπιστώνεται και παραπάνω, το **DMEAA** ικανοποιεί τα περισσότερα κριτήρια της Εν. 1.4. Βέβαια, αυτό δεν σημαίνει ότι πρόκειται και για μια ιδανική πρόδρομη ένωση, αφού ο χειρισμός του πρέπει να γίνεται αρκετά προσεκτικά λόγω της ύπαρξης μιας -έστω και μικρής- επικινδυνότητας, ενώ το κόστος του είναι σχετικά υψηλό. Η τάση ατμών του προσδιορίζεται από τη σχέση [5]:

$$\log[P(Torr)] = 10.85 - \frac{3080}{T(K)} \quad (3.1)$$

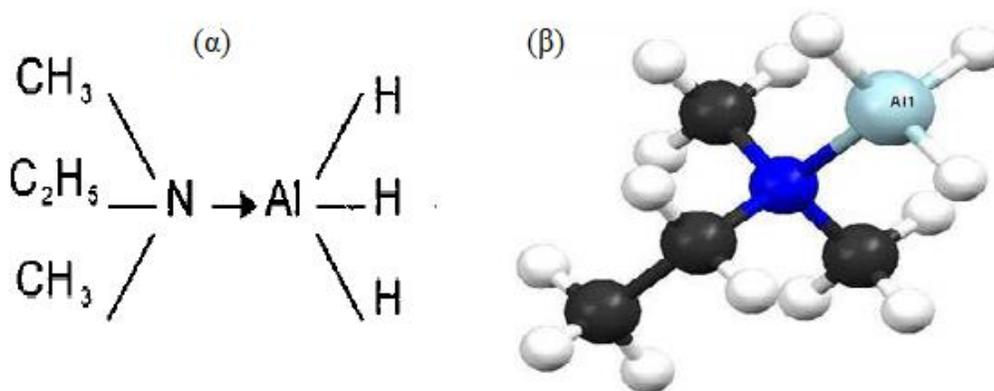
απ' όπου προκύπτει ότι ακόμα και για σχετικά χαμηλές θερμοκρασίες, η ουσία εμφανίζει υψηλές τιμές τάσης ατμών. Στον Πίνακα 3.1 παρατίθενται οι κυριότερες φυσικοχημικές ιδιότητες της ένωσης [5].

Πίνακας 3.1: Φυσικοχημικές ιδιότητες DMEAA

Identification	Name	Dimethylethylamine alane			
	CAS Number	124330-23-0			
Appearance	Colourless liquid				
Chemical characteristics	Chemical formula	$(CH_3)_2(C_2H_5)N \cdot AlH_3 = C_4H_{14}Al$			
	Molecular structure	Tertiary amine ligand			
	Composition	C	H	N	Al
		46.58%	13.68%	13.58%	26.16%
	Molecular weight	103.14			
	Chemical stability	Degradation in normal conditions of P and T			
	Decomposition products	Dimethylethylamine (DMEA), alane ( $AlH_3$ ), solid aluminium (Al) and molecular hydrogen ( $H_2$ )			
	Physical characteristics	Density	0.78 g/cm <sup>3</sup>		
T <sub>m</sub>		5°C			
T <sub>b</sub>		-			
Solubility		Violent reaction with air and water			
Security	Toxicity	Material is extremely destructive to tissue of the mucous membranes and upper respiratory tract, eyes, and skin.			
	Pyrophoricity	Auto-ignition with air contact, explosive with water contact			

(Επισημαίνεται ότι στη στήλη του χημικού τύπου το σύμβολο = αναφέρεται σε ισότητα και όχι διπλό δεσμό)

Το μόριο του DMEAA αποτελείται από ένα αλουμινοϋδρίδιο ( $\text{AlH}_3$ ) και μια αμινομάδα, όπου το άζωτο (N) συνδέεται με δύο μεθύλια ( $\text{CH}_3$ ) και ένα αιθύλιο ( $\text{C}_2\text{H}_5$ ). Η δομή του είναι παρόμοια με τα υπόλοιπα αμινικά αλουμινοϋδρίδια (TMAA και TEAA), λόγω της οποίας παρουσιάζουν τα δύο προαναφερθέντα πλεονεκτήματα που τα οδηγούν να υπερτερούν έναντι άλλων αλουμινο-οργανικών ενώσεων. Πιο συγκεκριμένα, ο ασθενής δεσμός Al-N, δηλαδή του υδριδίου και αμινομάδας οδηγεί στην εύκολη διάσπαση του μορίου και κατά συνέπεια σε μειωμένες θερμοκρασιακές απαιτήσεις, ενώ η έλλειψη δεσμών Al-C διασφαλίζει την παραγωγή υμενίων καθαρών από προσμίξεις άνθρακα. Σχηματικές απεικονίσεις του μορίου παρουσιάζονται στο Σχήμα 3.1 [5].



Σχήμα 3.1: Το μόριο του DMEAA (α) Σε διάγραμμα, (β) Στο χώρο

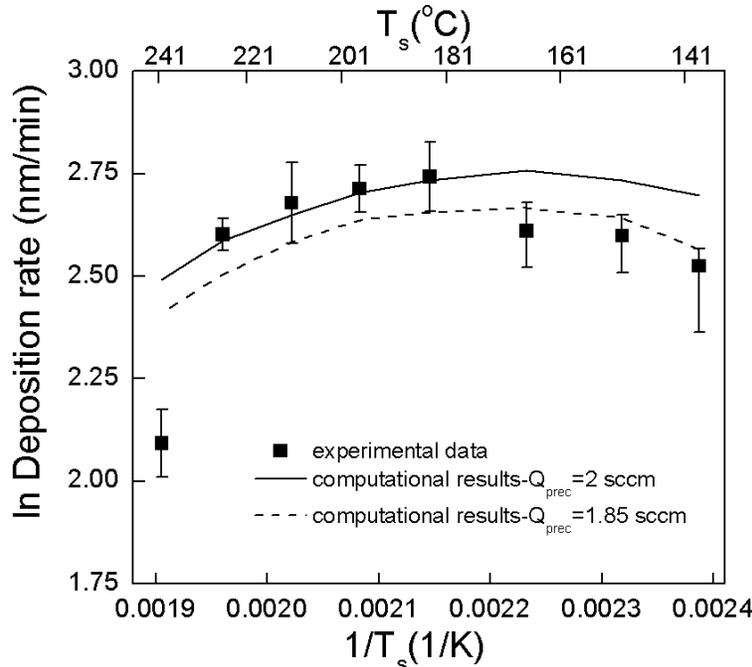
### 3.1.3. Χημικό μοντέλο διεργασίας

Όπως προαναφέρθηκε, παρόλη την εκτεταμένη έρευνα που έχει διεξαχθεί για τη μελέτη της ΧΑΑ αλουμινίου, οι χημικοί μηχανισμοί που τη συνθέτουν δεν έχουν ακόμα διαλευκανθεί πλήρως. Εξάιρεση δεν αποτελούν ούτε οι μηχανισμοί αποσύνθεσης του DMEAA. Αν και έχουν προταθεί διάφορα κινητικά μοντέλα, έως και πρόσφατα κανένα από αυτά δεν είχε καταφέρει να προβλέψει τα διαθέσιμα πειραματικά αποτελέσματα σε ικανοποιητικό βαθμό εντός ενός μεγάλου εύρους παραμέτρων [5], [18], [23].

Κοινή βάση όλων αυτών των μοντέλων είναι η αρχική διάσπαση του DMEAA σε DMEA (DMEAA χωρίς και  $\text{AlH}_3$ , με το τελευταίο να είναι και το «δραστικό» μόριο της διεργασίας. Η παραπάνω διάσπαση έχει επιβεβαιωθεί πειραματικά στην αέρια φάση μέσω in situ FTIR ανάλυσης. Επιπλέον, πολλοί ερευνητές έχουν θεωρήσει ότι μια παρόμοια αντίδραση λαμβάνει χώρα και στην επιφάνεια του υποστρώματος, όπου το DMEAA διασπάται σε DMEA,  $\text{H}_2$  και Al, δίνοντας έτσι καθαρό στερεό αλουμίνιο, το οποίο αποτίθεται στρώμα ανά στρώμα με

αποτέλεσμα τη δημιουργία υμενίου, ενώ τα παραπροϊόντα DMEA και  $H_2$  εκροφούνται γρήγορα από την επιφάνεια, χωρίς να παρεμποδίζουν την πραγματοποίηση της αντίδρασης [5], [18].

Οι δύο αυτές αντιδράσεις, μία στην ογκομετρική και μια επιφανειακή, μπορούν από μόνες τους να αποτελέσουν ένα κινητικό μοντέλο της διεργασίας. Αυτό έχει πραγματοποιηθεί εκτεταμένα στο παρελθόν, με αρκετά θετικά αποτελέσματα. Στο Σχήμα 3.2 παρατίθεται το διάγραμμα Arrhenius μιας τέτοιας μελέτης, όπου το απλό αυτό μοντέλο χρησιμοποιήθηκε σε CFD ανάλυση του ίδιου αντιδραστήρα που χρησιμοποιείται και στην παρούσα εργασία. Όπως διαπιστώνεται εύκολα από το διάγραμμα, αν και το μοντέλο εμφανίζει μεγάλη ακρίβεια σε χαμηλές θερμοκρασίας υποστρώματος, ειδικά λαμβάνοντας υπόψη την απλότητα του, αυτό παύει να ισχύει με αύξηση της θερμοκρασίας. Το γεγονός αυτό οδήγησε τους ερευνητές στη διαπίστωση ότι σε υψηλές θερμοκρασίες ενεργοποιούνται ανταγωνιστικά φαινόμενα (βλ. Εν. 1.3), τα οποία επιφέρουν σημαντική μείωση στο ρυθμό απόθεσης και κατά συνέπεια επιβάλλεται να ληφθούν υπόψη στο κινητικό μοντέλο εάν αυτό πρόκειται να προβλέψει το ρυθμό απόθεσης σε μεγάλο θερμοκρασιακό εύρος. Πιθανά ανταγωνιστικά φαινόμενα που αναφέρονται στη βιβλιογραφία, εκ των οποίων κάποια είναι πειραματικές διαπιστώσεις ενώ κάποια άλλα προκύπτουν από προσομοιώσεις, είναι (i) ο πολυμερισμός του  $AlH_3$  στην αέρια φάση και (ii) η εκρόφηση από την επιφάνεια του DMEAA, του  $AlH_3$  αλλά και άλλων ενδιάμεσων που περιέχουν ακόμα το άτομο του αλουμινίου πριν αυτά διασπαστούν [18].



Σχήμα 3.2: Διάγραμμα Arrhenius πειραματικών αλλά και υπολογιστικών αποτελεσμάτων του απλοϊκού μοντέλου [5]

## Εφαρμοζόμενο κινητικό μοντέλο

Το μοντέλο που χρησιμοποιείται στις προσομοιώσεις τις παρούσας εργασίας κατά τη μελέτη και μοντελοποίηση του αντιδραστήρα ΧΑΑ αλουμινίου αναπτύχθηκε στο πλαίσιο προηγούμενης διπλωματικής εργασίας, του Γ. Ψαρέλλη, υπό την επίβλεψη του καθηγητή Α. Μπουντουβή και τη συνεργασία της ερευνητικής ομάδας του. Πρόκειται για ένα μοντέλο που λαμβάνει υπόψη τις παραπάνω διαπιστώσεις και στοχεύει στην πρόβλεψη των πειραματικών τιμών του ρυθμού απόθεσης και σε υψηλές θερμοκρασίες, εκεί δηλαδή που άλλα κινητικά μοντέλα έχουν αποτύχει. Συνεπώς, οι χημικοί μηχανισμοί που προτείνει είναι αρκετά πιο πολύπλοκοι από το προαναφερθέν απλό μοντέλο των δύο αντιδράσεων, με την κυριότερη διαφορά του να έγκειται στο ότι λαμβάνει υπόψη ένα πλήθος ανταγωνιστικών φαινομένων που αναλύονται παρακάτω [18], [23].

### A. Ογκομετρικές αντιδράσεις αέριας φάσης

Το μοντέλο περιλαμβάνει τρεις ογκομετρικές αντιδράσεις, εκ των οποίων η μία είναι η διάσπαση του DMEAA σε DMEA και  $\text{AlH}_3$ , ενώ οι άλλες δύο είναι αντιδράσεις ολιγομερισμού του  $\text{AlH}_3$ , οι οποίες εισάγονται στο μοντέλο ως παράγοντες μείωσης του ρυθμού απόθεσης, όπως έχει ήδη αναφερθεί. Το  $\text{AlH}_3$  είναι ένα σημαντικό ενδιάμεσο των χημικών αντιδράσεων, καθώς όχι μόνο συντελεί σε ανάσχεση μέσω του πολυμερισμού του, αλλά (ίσως πιο σημαντικό) είναι αυτό που διατηρεί το άτομο του Al μετά τη διάσπαση του DMEAA και συνακόλουθα θεωρείται ότι είναι το μόνο που προσροφάται στην επιφάνεια του υποστρώματος και αντιδρά επιφανειακά και όχι το ίδιο το DMEAA. Δηλαδή, αφού το DMEAA εισέλθει στον αντιδραστήρα και διασπαστεί στην αέρια φάση, παύει να συμμετέχει σε άλλες αντιδράσεις και το ρόλο του ως «πρόδρομη ένωση» αναλαμβάνει το  $\text{AlH}_3$  [18], [23].

Όσον αφορά τις αντιδράσεις ολιγομερισμού, πρόκειται για μια αντίδραση διμερισμού και μια τριμερισμού. Αν και στη βιβλιογραφία έχει γίνει αναφορά και για αντιδράσεις πολυμερισμού μεγαλύτερου βαθμού, αυτές αγνοούνται στο πλαίσιο του μοντέλου, καθώς η εισαγωγή των συγκεκριμένων αντιδράσεων εξυπηρετεί την ύπαρξη ανταγωνιστικών φαινομένων και όχι τη διεξοδική μελέτη των μηχανισμών πολυμερισμού του  $\text{AlH}_3$ . Κατά συνέπεια, οι δύο αυτές αντιδράσεις δρουν ως μια πηγή «άχρηστης» κατανάλωσης του  $\text{AlH}_3$ , πριν αυτό προλάβει να διαχυθεί προς και να απορροφηθεί από την επιφάνεια του υποστρώματος [18], [23].

Οι ρυθμοί των τριών αντιδράσεων υπολογίζονται από την εξής μορφή της Εξ. (2.17):

$$r_{G_i} = k_{0,G_i} \exp\left(-\frac{E_{a,G_i}}{RT_g}\right) \prod_{j=1}^{N_g} C_j^n \quad (3.2)$$

όπου  $G_i$  ο συμβολισμός της  $i$  αέριας αντίδρασης,  $k_{0,G_i}$  η προ-εκθετική της σταθερά,  $E_{a,G_i}$  η ενέργεια ενεργοποίησης της,  $T_g$  η θερμοκρασία στην αέρια φάση,  $C_j$  η συγκέντρωση του  $j$  συστατικού,  $N_g$  το πλήθος των αέριων συστατικών και  $n$  η τάξη της αντίδρασης [18], [23].

Στον Πίνακα 3.2 παρουσιάζονται οι τρεις αντιδράσεις μαζί με τις κινητικές τους σταθερές [18], [23]:

Πίνακας 3.2: Ογκομετρικές αντιδράσεις κινητικού μοντέλου

A/A	Αντίδραση	$k_0$	$E_a$ (kJ mol <sup>-1</sup> )
G <sub>1</sub>	DMEAA(g) → DMEA(g)+AlH <sub>3</sub> (g)	2.00*10 <sup>7</sup> s <sup>-1</sup>	40.06
G <sub>2</sub>	2AlH <sub>3</sub> (g) → Al <sub>2</sub> H <sub>6</sub> (g)	2.55*10 <sup>20</sup> m <sup>3</sup> kmol <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup>	118.00
G <sub>3</sub>	Al <sub>2</sub> H <sub>6</sub> (g)+AlH <sub>3</sub> (g) → Al <sub>3</sub> H <sub>9</sub> (g)	7.75*10 <sup>20</sup> m <sup>3</sup> kmol <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup>	90.70

Από τις ενέργειες ενεργοποίησης διαπιστώνεται ότι η πρώτη αντίδραση έχει σημαντικά μικρότερη ενέργεια ενεργοποίησης συγκριτικά με τις άλλες δύο. Συνεπώς, η ενεργοποίηση της αντίδρασης διάσπασης είναι εφικτή σε χαμηλότερες θερμοκρασίες από τις αντιδράσεις ολιγομερισμού. Το γεγονός αυτό ενισχύει σημαντικά την εισαγωγή των αντιδράσεων αυτών ως ανταγωνιστικών φαινομένων, ενώ επίσης συνάδει σε μεγάλο βαθμό με τα πειραματικά αποτελέσματα του διαγράμματος στο Σχήμα 3.2 [18], [23].

## B. Επιφανειακές αντιδράσεις υποστρώματος

Σύμφωνα με το μοντέλο, οι επιφανειακές αντιδράσεις απόθεσης αλουμινίου από DMEAA είναι εννέα, τέσσερις εκ των οποίων αναφέρονται σε προσρόψεις και εκρόψεις, ενώ οι υπόλοιπες πέντε αφορούν τη διάσπαση του AlH<sub>3</sub> προς καθαρό Al [18], [23].

Όσον αφορά τις τέσσερις αντιδράσεις προσρόφησης και εκρόφησης, πρόκειται για ετερογενείς αντιδράσεις όπου στην πρώτη περίπτωση τα αντιδρώντα είναι αέρια και τα προϊόντα είναι προσροφημένα στη στερεά φάση, ενώ στη δεύτερη ισχύει το αντίθετο. Το μοντέλο αρχικά προβλέπει την προσρόφηση του AlH<sub>3</sub> στο υπόστρωμα, το οποίο θεωρείται ότι καταλαμβάνει τρεις επιφανειακές θέσεις ( $S$ ), τιμή που προκύπτει από τη βιβλιογραφία σύμφωνα με μελέτες στερεοχημείας που έχουν πραγματοποιηθεί στο παρελθόν. Επιπλέον, προβλέπεται και η εκρόφηση μοριακού υδρογόνου, το οποίο σχηματίζεται από άτομα υδρογόνου που παράγονται κατά τις αντιδράσεις διάσπασης του AlH<sub>3</sub>, στις οποίες θα αναφερθούμε παρακάτω. Το μοριακό υδρογόνο θεωρείται ότι καταλαμβάνει δύο  $S$ , καθώς πρόκειται για διατομικό μόριο. Οι υπόλοιπες δύο αντιδράσεις που ανήκουν σε αυτή την κατηγορία είναι οι αντίστροφες των προηγούμενων, δηλαδή πρόκειται για την εκρόφηση του AlH<sub>3</sub> από την επιφάνεια και για την προσρόφηση μοριακού υδρογόνου σε αυτή. Πρακτικά,

αυτές οι δύο αντιδράσεις όχι μόνο δεν προωθούν την απόθεση αλουμινίου, αλλά την παρεμποδίζουν: η μεν πρώτη με την απομάκρυνση από την επιφάνεια του κύριου αντιδρώντος των αντιδράσεων, η δε δεύτερη με τη σπατάλη επιφανειακών θέσεων, οι οποίες θα μπορούσαν αξιοποιηθούν στην προσρόφηση περισσότερων μορίων  $\text{AlH}_3$  [18], [23].

Αφού το  $\text{AlH}_3$  προσροφηθεί στην επιφάνεια του υποστρώματος, ακολουθεί η διάσπαση του σε αλουμινοϋδρίδια μικρότερης τάξης έως και εν τέλει να μείνει καθαρό αλουμίνιο. Η διάσπαση ακολουθεί μηχανισμό διαδοχικών αφυδρογονώσεων, δηλαδή αντιδράσεων απομάκρυνσης ατομικού υδρογόνου από τα υδρίδια, εκ των οποίων οι δύο πρώτες είναι αντιστρεπτές, ενώ η τελευταία μη αντιστρεπτή. Συνεπώς, το σύνολο των παραπάνω αντιδράσεων αποτελείται από πέντε ξεχωριστές μονόδρομες αντιδράσεις. Οι δύο αντίστροφες αντιδράσεις που αναφέρθηκαν είναι αντιδράσεις υδρογόνωσης και θα μπορούσαν επίσης να θεωρηθούν ως ανταγωνιστικά φαινόμενα, καθώς πρακτικά αποτρέπουν το  $\text{AlH}_3$  να «φτάσει» στην τελευταία μη αντιστρεπτή αντίδραση αφυδρογονώσης του, από την οποία παράγεται το αποτιθέμενο αλουμίνιο [18], [23].

Οι ρυθμοί των πέντε αντιδράσεων υπολογίζονται από την εξής μορφή της Εξ. (2.19):

$$r_{S_i} = k_{0,S_i} \exp\left(-\frac{E_{a,S_i}}{RT_S}\right) \prod_{j=1}^{N_s} C_j^n \quad (3.3)$$

όπου  $S_i$  ο συμβολισμός της  $i$  αέριας αντίδρασης,  $k_{0,S_i}$  η προ-εκθετική της σταθερά,  $E_{a,S_i}$  η ενέργεια ενεργοποίησης της,  $T_S$  η θερμοκρασία στην αέρια φάση,  $C_j$  η συγκέντρωση του  $j$  συστατικού,  $N_s$  το πλήθος των προσροφημένων συστατικών και  $n$  η τάξη της αντίδρασης. Η διαφορά με την Εξ. (3.2) έγκειται στον όρο της συγκέντρωσης, όπου στην παραπάνω εξίσωση υπεισέρχονται επιφανειακές και όχι ογκομετρικές συγκεντρώσεις, οι οποίες υπολογίζονται από την εξίσωση [18], [23].:

$$C_j = \theta_j * d \quad (3.4)$$

όπου  $\theta$  είναι η επιφανειακή κάλυψη για κάθε χημικό είδος (αδιάστατο) και  $d$  είναι η πυκνότητα των ενεργών θέσεων του υποστρώματος (σε  $\text{kmol/m}^3$ ). Σημειώνεται πως η επιφανειακή κάλυψη ενός συστατικού  $i$  ορίζεται ως:

$$\theta_j = \frac{N_j}{N_{tot}} \quad (3.5)$$

όπου  $N_j$  οι ενεργές θέσεις του υποστρώματος που είναι κατειλημμένες από το χημικό είδος  $j$ , και  $N_{tot}$  είναι το σύνολο των ενεργών θέσεων του υποστρώματος [18], [23].

Στον Πίνακα 3.3 παρουσιάζονται οι εννέα αντιδράσεις μαζί με τις κινητικές τους σταθερές [18], [23]:

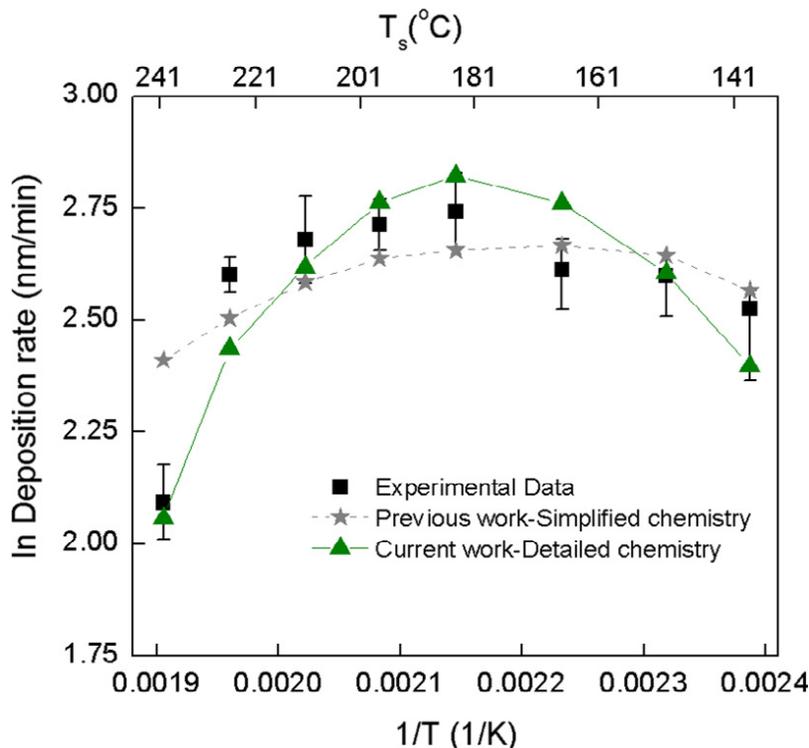
Πίνακας 3.3: Επιφανειακές αντιδράσεις κινητικού μοντέλου

A/A	Αντίδραση	$k_0$	$E_a$ (kJ mol <sup>-1</sup> )
S <sub>1</sub>	AlH <sub>3</sub> (g)+3S → AlH <sub>3</sub> (ads)	4.42*10 <sup>8</sup> m s <sup>-1</sup>	19.68
S <sub>2</sub>	AlH <sub>3</sub> (ads) → AlH <sub>3</sub> (g)+3S	2.38*10 <sup>18</sup> m s <sup>-1</sup>	86.84
S <sub>3</sub>	AlH <sub>3</sub> (ads) → AlH <sub>2</sub> (ads)+H(ads)	1.02*10 <sup>12</sup> m s <sup>-1</sup>	19.25
S <sub>4</sub>	AlH <sub>2</sub> (ads)+H(ads) → AlH <sub>3</sub> (ads)	5.11*10 <sup>12</sup> m <sup>4</sup> kmol <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup>	18.41
S <sub>5</sub>	AlH <sub>2</sub> (ads) → AlH(ads)+H(ads)	4.98*10 <sup>12</sup> m s <sup>-1</sup>	37.43
S <sub>6</sub>	AlH(ads)+H(ads) → AlH <sub>2</sub> (ads)	1.05*10 <sup>14</sup> m <sup>4</sup> kmol <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup>	8.37
S <sub>7</sub>	AlH(ads) → Al(s)+H(ads)	2.93*10 <sup>10</sup> m s <sup>-1</sup>	76.82
S <sub>8</sub>	2H(ads) → H <sub>2</sub> (g)+2S	5.50*10 <sup>16</sup> m <sup>4</sup> kmol <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup>	12.55
S <sub>9</sub>	H <sub>2</sub> (g)+2S → 2H(ads)	3.07*10 <sup>10</sup> m s <sup>-1</sup>	76.97

Από τις ενέργειες ενεργοποίησης διαπιστώνεται ότι η  $E_a$  της προσρόφησης του AlH<sub>3</sub> είναι μικρότερη από την  $E_a$  της εκρόφησης του. Το ίδιο ισχύει και για την εκρόφηση του υδρογόνου σε σχέση με την προσρόφηση του. Συνεπώς, η ενεργοποίηση των αντιδράσεων που ευνοούν στην απόθεση του αλουμινίου είναι εφικτή σε χαμηλότερες θερμοκρασίες συγκριτικά με τις αντιδράσεις που την παρεμποδίζουν. Συνεπώς, οι αντιδράσεις αυτές είναι ανταγωνιστικές της απόθεσης, διαπίστωση που συνάδει με τα πειραματικά αποτελέσματα του διαγράμματος στο Σχήμα 3.2 [18], [23].

Συνοψίζοντας, το κινητικό μοντέλο που εφαρμόζεται στην παρούσα εργασία βασίζεται στη διάσπαση του DMEAA σε DMEA και AlH<sub>3</sub>, εκ των οποίων το τελευταίο λειτουργεί από εκεί και πέρα ως η δραστική ουσία της διεργασίας. Στη συνέχεια, αυτό προσροφάται στην επιφάνεια του υποστρώματος, όπου εκεί υφίσταται διαδοχικές αφυδρογονώσεις έως ότου μείνει στην επιφάνεια μόνο το καθαρό άτομο του αλουμινίου. Τα υδρογόνα που παράγονται κατά τις παραπάνω αντιδράσεις εκροφούνται ως μοριακό υδρογόνο. Τα ανταγωνιστικά φαινόμενα που ενεργοποιούνται μόνο σε υψηλές θερμοκρασίας, παρεμποδίζοντας τη διεργασία και μειώνοντας το ρυθμό απόθεσης, περιλαμβάνουν τον ολιγομερισμό του AlH<sub>3</sub> στην αέρια φάση πριν αυτό προλάβει να φτάσει την επιφάνεια του υποστρώματος, την εκρόφηση του AlH<sub>3</sub> πριν αυτό προλάβει να διασπαστεί και τέλος την προσρόφηση του H<sub>2</sub> που είχε εκροφηθεί προηγουμένως. Σύμφωνα με τη βιβλιογραφία, το παραπάνω μοντέλο παρέχει πιο ικανοποιητικά αποτελέσματα σε σχέση με τα προηγούμενα, όπως φαίνεται και από το Σχήμα 3.3, όπου παρατίθεται το διάγραμμα Arrhenius της διεργασίας με βάση τα αποτελέσματα του παραπάνω μοντέλου. Αυτό το κινητικό μοντέλο είναι ικανό να προβλέψει τα πειραματικά αποτελέσματα καθ' όλο το θερμοκρασιακό εύρος, με αξιοσημείωτα αποτελέσματα στις υψηλές

θερμοκρασίες, εκεί που τα προηγούμενα μοντέλα υστερούσαν λόγω της έλλειψης τους σε ανταγωνιστικά φαινόμενα [18], [23].

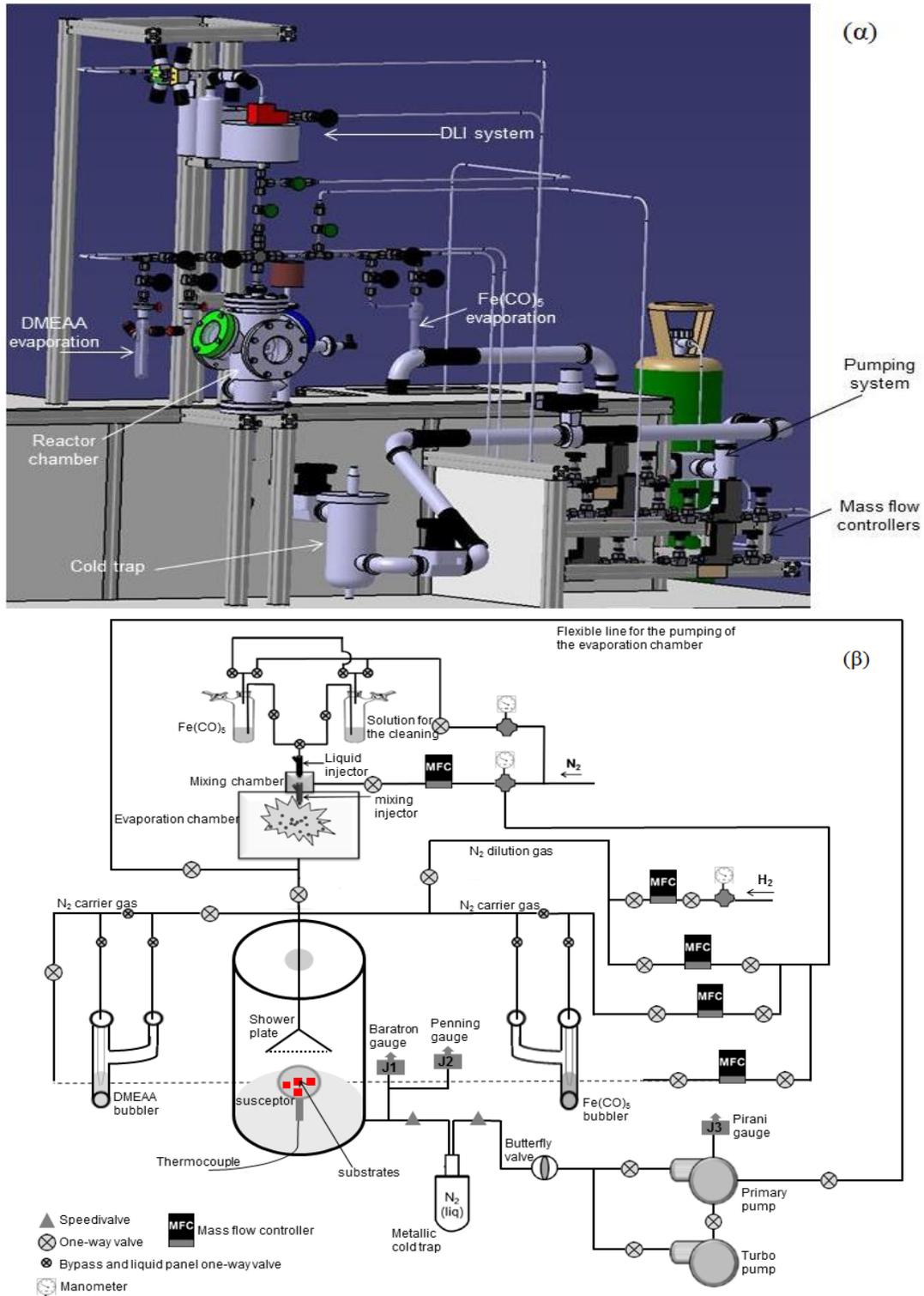


Σχήμα 3.3: Διάγραμμα Arrhenius πειραματικών αλλά και υπολογιστικών αποτελεσμάτων του λεπτομερούς μοντέλου [5]

### 3.2. Πειραματική διάταξη: Αντιδραστήρας διεργασίας

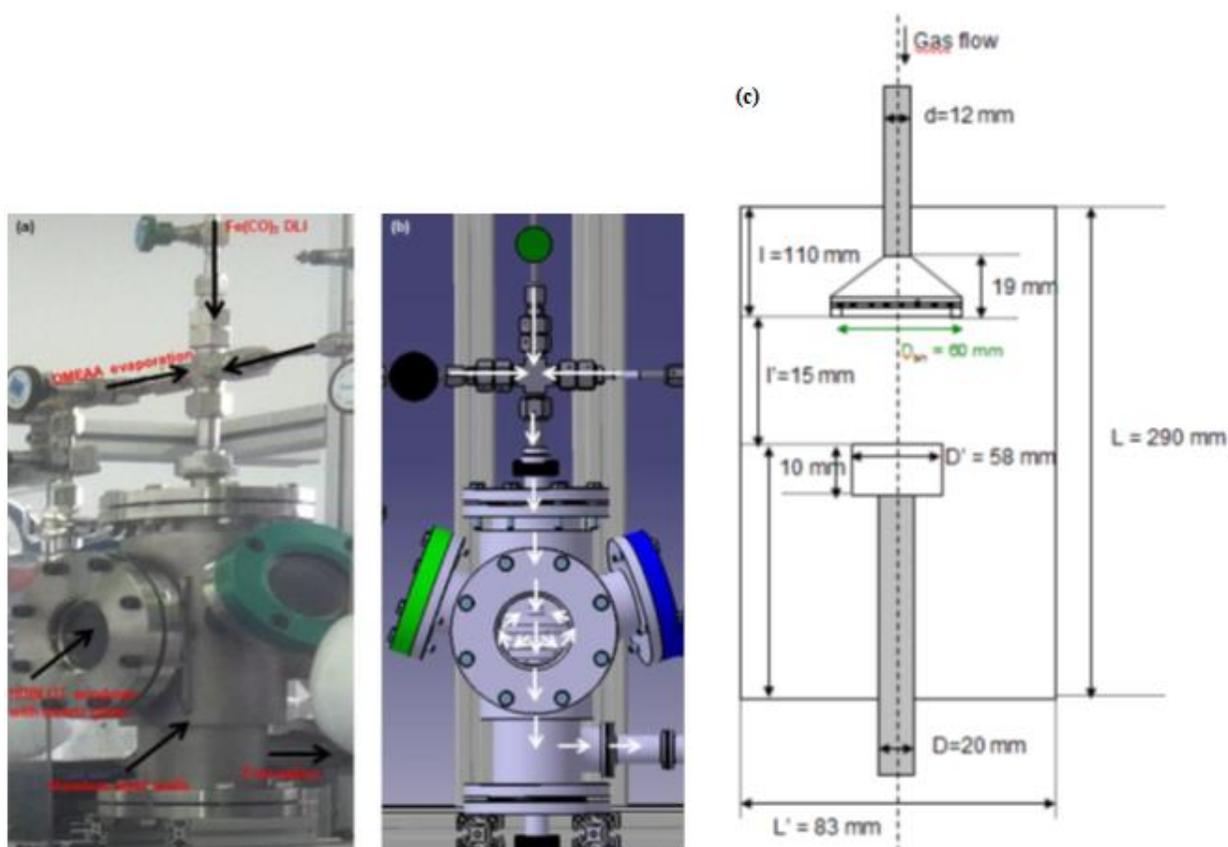
Ο αντιδραστήρας που μελετάται στην παρούσα εργασία είναι ένας κάθετος, κυλινδρικός αντιδραστήρας OM-XAA, ο οποίος είναι κατασκευασμένος από ανοξείδωτο ασάλι και χρησιμοποιείται εκτός από την απόθεση αλουμινίου και σε άλλες OM-XAA διεργασίες, όπως για απόθεση σιδήρου, χαλκού ή και συναπόθεση παραπάνω του ενός, μετάλλων. Ο αντιδραστήρας είναι εγκατεστημένος σε εργαστήριο του CIRIMAT (Centre Inter-universitaire de Recherche et d'Ingénierie des Matériaux) στο INP Toulouse στη Γαλλία. Τα πειράματα διεξάγονται από την εκεί ερευνητική ομάδα, στο πλαίσιο μακράς συνεργασίας με την ομάδα του ΕΜΠ. Ως υπόστρωμα χρησιμοποιούνται δισκία από πυρίτιο, τα οποία τοποθετούνται πάνω σε μια επιφάνεια στήριξης, μέσω της οποίας πραγματοποιείται και η θέρμανση τους. Όσον αφορά τα τοιχώματα, υπάρχει η δυνατότητα για τη λειτουργία του αντιδραστήρα είτε ως ψυχρών, είτε ως θερμών τοιχωμάτων (βλ. Εν. 1.5). Η θέρμανση των τοιχωμάτων, του υποστρώματος αλλά και των γραμμών (σωλήνων) όλων των ροών της διεργασίας ελέγχονται από PID ρυθμιστές [5], [18].

Στο Σχήμα 3.4 παρουσιάζεται σχηματικά η συνολική πειραματική διάταξη του αντιδραστήρα. Στην πάνω εικόνα (α) παρατίθεται μια ψηφιακή 3-D απεικόνιση της διάταξης, ενώ στην κάτω εικόνα (β) παρατηρείται το διάγραμμα ροής της [5].



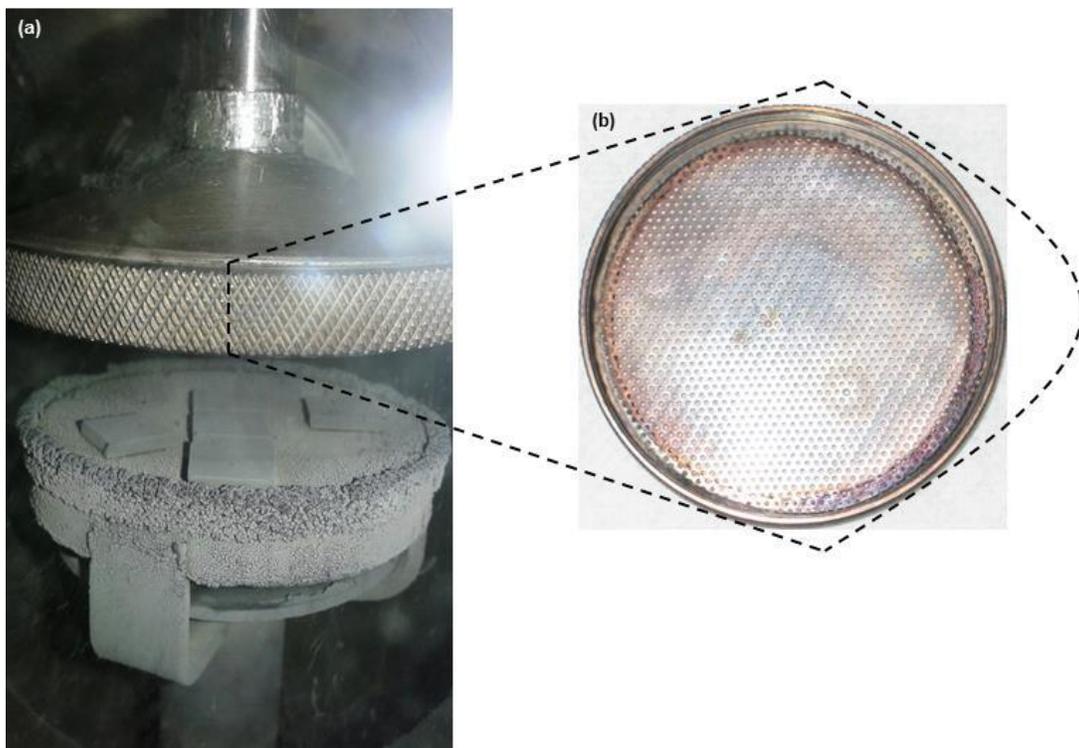
Σχήμα 3.4: Πειραματική διάταξη αντιδραστήρα ως: (α) 3-D Ψηφιακή απεικόνιση, (β) Διάγραμμα ροής

Παρακάτω ακολουθούν συμπληρωματικές εικόνες του αντιδραστήρα. Στο Σχήμα 3.5 απεικονίζονται κατά σειρά από αριστερά προς τα δεξιά: (α) Φωτογραφία του αντιδραστήρα, (β) Ψηφιακή 3-D απεικόνιση, (γ) Διάγραμμα διαστάσεων του. Στις εικόνες αυτές εμφανίζεται και η κατεύθυνση της ροής δια μέσω του αντιδραστήρα [5], [23].



Σχήμα 3.5: Αντιδραστήρας διεργασίας: (α) Φωτογραφία, (β) 3-D Ψηφιακή απεικόνιση, (γ) Διάγραμμα διαστάσεων

Αφού το αντιδρών μίγμα (πρόδρομη ουσία+ φέρον αέριο) εισαχθεί στον αντιδραστήρα μέσω ενός συστήματος εξάτμισης-έγχυσης, στη συνέχεια κατευθύνεται δια μέσω ενός σωλήνα σε μια καταλωνιστική κεφαλή, η οποία το ψεκάζει ομοιόμορφα στο υπόστρωμα. Ο καταλωνιστήρας και το υπόστρωμα βρίσκονται σε τέτοια απόσταση μεταξύ τους ώστε να διασφαλίζεται ότι δεν υπάρχουν θερμοκρασιακές αλληλεπιδράσεις μεταξύ τους. Τέλος, τα αέρια παραπροϊόντα της διεργασίας, μαζί με το φέρον αέριο και την πρόδρομη ουσία που δεν αντέδρασε, απομακρύνονται από το κάτω μέρος του αντιδραστήρα. Στο σχήμα Σχήμα 3.6 παρουσιάζεται λεπτομερώς το τμήμα καταλωνιστήρα – υποστρώματος. Ο ρόλος του καταλωνιστήρα είναι η διασφάλιση κατά το δυνατόν ομοιόμορφης ροής εντός του αντιδραστήρα, η οποία με τη σειρά της ευνοεί την ομοιόμορφη απόθεση στην επιφάνεια του υποστρώματος και συνεπώς την ομοιομορφία πάχους του αναπτυσσόμενου υμενίου. Ως φέρον αέριο χρησιμοποιείται άζωτο ( $N_2$ ) [5].



Σχήμα 3.6: Εσωτερικό αντιδραστήρα: (α) Καταιωνιστήρας – Υπόστρωμα, (β) Τρύπες καταιωνιστήρα

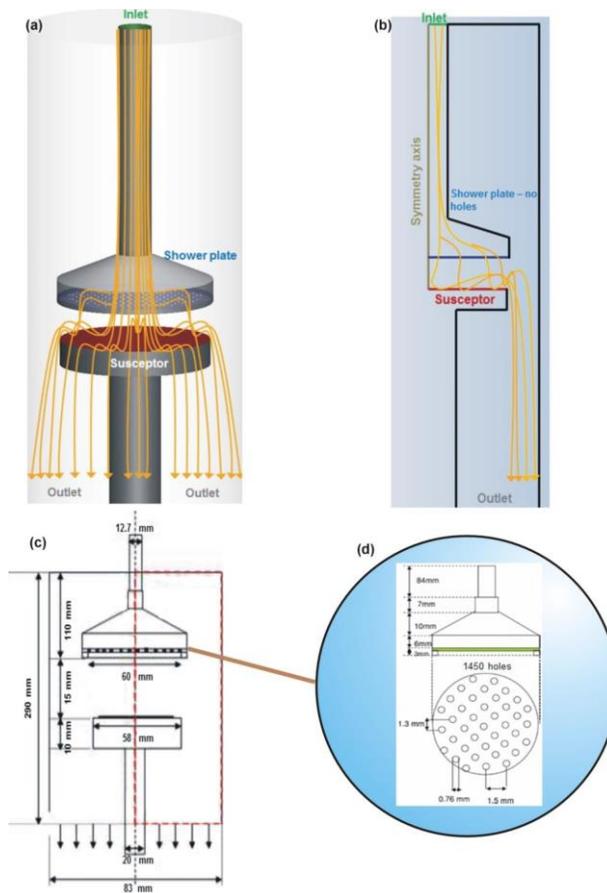
Στην εικόνα (b), παρατηρείται το κάτω μέρος του καταιωνιστήρα, όπου είναι εμφανείς οι τρύπες από όπου εξέρχεται η ροή εισόδου, οι οποίες λαμβάνονται υπόψη στη μοντελοποίηση του αντιδραστήρα [5].

### 3.3. Υπολογιστική προσομοίωση διεργασίας

#### 3.3.1. Υπολογιστικό χωρίο

Το υπολογιστικό χωρίο της προσομοίωσης καθορίζεται άμεσα από τη γεωμετρία του αντιδραστήρα, η οποία αναλύθηκε στην προηγούμενη υποενότητα, ενώ η ψηφιακή του σχεδίαση πραγματοποιείται μέσω λογισμικών σχεδίασης, όπως το AutoCAD, το Gambit και το ANSYS DesignModeler. Η τρισδιάστατη (3-D) σχεδίαση του χωρίου, η οποία έχει πραγματοποιηθεί με το Gambit, απεικονίζεται στο Σχήμα 3.6 και για την ακρίβεια στην πρώτη εικόνα του σχήματος (Εικόνα α). Όπως και στην πειραματική διάταξη, το αντιδρών μίγμα εισέρχεται στον αντιδραστήρα από την είσοδο και ρέει κατά μήκος του καταιωνιστήρα, στο τέλος του οποίου ψεκάζεται ομοιόμορφα πάνω στο υπόστρωμα. Εκεί, πραγματοποιείται η απόθεση και κατά συνέπεια η ανάπτυξη του υμενίου, ενώ τα αέρια παραπροϊόντα και το υπόλειμμα του αντιδρώντος μίγματος εξέρχονται από την έξοδο. Κατά τη διαστασιοποίηση του

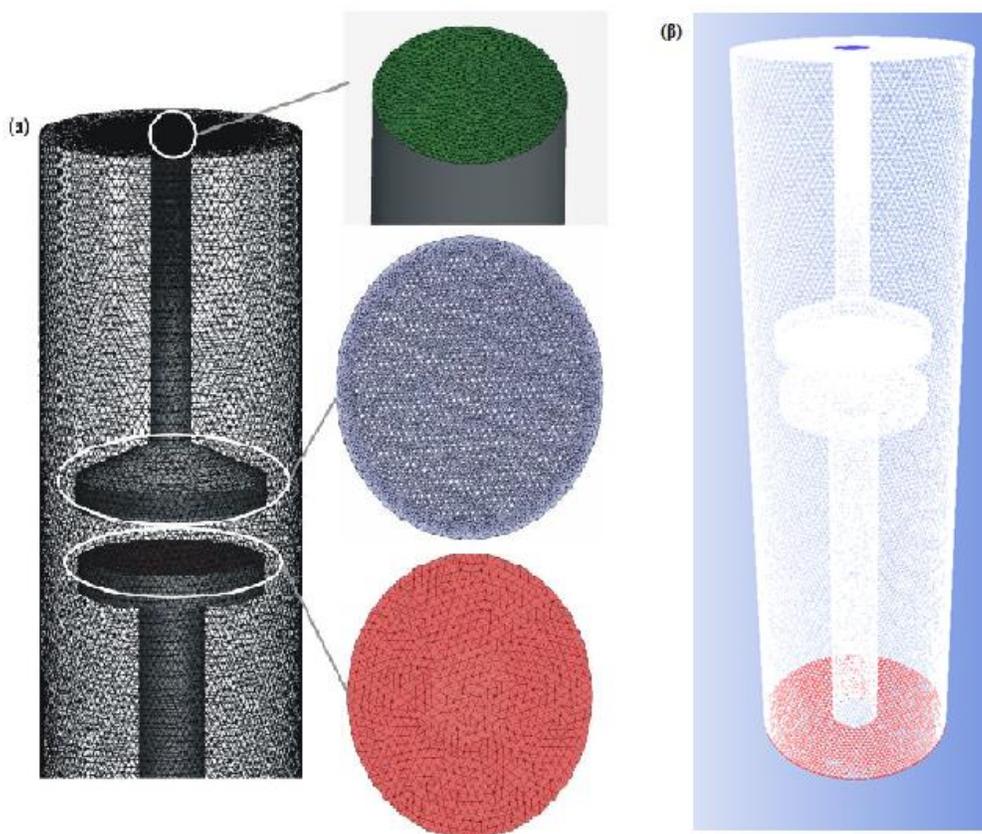
χωρίου χρησιμοποιούνται οι πραγματικές διαστάσεις του αντιδραστήρα, οι οποίες ξανά απεικονίζονται στην εικόνα (c) του σχήματος. Επιπλέον, συμπεριλαμβάνονται και οι τρύπες του καταλωνιστήρα, από τις οποίες ψεκάζεται το αντιδρών μίγμα, το πλήθος και οι διαστάσεις των οποίων φαίνονται στην εικόνα (d) του σχήματος. Λόγω του κυλινδρικού σχήματος του αντιδραστήρα, αυτός παρουσιάζει αξονική συμμετρία. Το γεγονός αυτό καθιστά εφικτή τη χρήση δι-διάστατου (2-D) υπολογιστικού χωρίου και κατά συνέπεια 2-D μαθηματικού μοντέλου για την προσομοίωση της διεργασίας χωρίς σημαντικές απώλειες στην ακρίβεια των υπολογιζόμενων λύσεων (Εικόνα b). Το όφελος του παραπάνω είναι οι σημαντικά μειωμένες υπολογιστικές απαιτήσεις. Ωστόσο, στη συγκεκριμένη περίπτωση η χρήση του 2-D μοντέλου περιορίζεται σημαντικά από το γεγονός ότι δεν μπορεί να συμπεριλάβει τις τρύπες της καταλωνιστικής κεφαλής, οι οποίες αναπαριστώνται ως μια ενιαία δακτυλιοειδής τρύπα που καλύπτει ολόκληρη την επιφάνεια της κεφαλής. Το γεγονός αυτό, λαμβάνοντας υπόψη το σημαντικό ρόλο των τρυπών στην απόθεση, περιορίζει το 2-D μοντέλο σε χρήση του μόνο για προκαταρκτικές μελέτες, ενώ για λεπτομερείς αναλύσεις προτιμάται το τρι-διάστατο. Στην παρούσα εργασία χρησιμοποιείται το 3-D μοντέλο [5].



Σχήμα 3.7: Υπολογιστικό χωρίο: (a) 3-D απεικόνιση, (b) 2-D απεικόνιση, (c) Διάγραμμα διαστάσεων, (d) Διαστάσεις καταλωνιστήρα

### 3.3.2. Διακριτοποίηση υπολογιστικού χωρίου

Η διακριτοποίηση του υπολογιστικού χωρίου έχει επίσης γίνει με το λογισμικό Gambit, ένα παράδειγμα της οποίας παρουσιάζεται στο Σχήμα 3.8(α), με εστιασμένες μερικές περιοχές «ενδιαφέροντος», όπως η είσοδος, η κατακλιμακωτή κεφαλή και το υπόστρωμα. Στο Σχήμα 3.8β παρουσιάζεται η διακριτοποίηση που χρησιμοποιήθηκε στην παρούσα εργασία, απεικονιζόμενη μέσω του γραφικού περιβάλλοντος του λογισμικού Ansys Fluent 17, το οποίο χρησιμοποιείται για την προσομοίωση της διεργασίας. Και στις δύο περιπτώσεις, το πλέγμα είναι μη δομημένο, δηλαδή δεν ακολουθεί κάποιο μοτίβο, οπότε αφού πρόκειται για τρισδιάστατη γεωμετρία, τα κελιά έχουν σχήμα πυραμίδας (βλ. Εν. 2.3.1) [5].



Σχήμα 3.8: Διακριτοποιημένο υπολογιστικό χωρίο: (α) Τυχαίο παράδειγμα, (β) Παρούσας εργασίας

Το πλέγμα της εικόνας (β), το οποίο όπως προαναφέρθηκε είναι αυτό που χρησιμοποιήθηκε στην παρούσα εργασία, αποτελείται από 1.232.468 κελιά. Η συγκεκριμένη πυκνότητα έχει προκύψει από τη διαδικασία επαλήθευσης ανεξαρτησίας πλέγματος που περιγράφηκε στην Εν. 2.3.1 και κατά συνέπεια κρίνεται ως το βέλτιστο για την ορθή προσομοίωση του μελετώμενου αντιδραστήρα. Λόγω του μεγάλου μεγέθους του υπολογιστικού προβλήματος, η επιστράτευση τεχνικών παράλληλης επεξεργασίας σε συστοιχίες υπολογιστών είναι αναπόφευκτη. Περισσότερα πάνω στο θέμα αναφέρονται στην Εν. 3.4, καθώς και σε επόμενα κεφάλαια [5].

### 3.3.3. Συνθήκες λειτουργίας διεργασίας → συνοριακές συνθήκες μοντέλου

Οι συνοριακές συνθήκες του μακροσκοπικού μοντέλου (βλ. Εν. 2.2) προσδιορίζονται ως επί το πλείστον από τις συνθήκες λειτουργίας της πραγματικής διεργασίας. Πιο συγκεκριμένα, οι συνοριακές συνθήκες του προβλήματος αποτελούνται από τις εξής τέσσερις κατηγορίες:

- A. Συνοριακές συνθήκες εισόδου:** Περιγράφουν την «κατάσταση» της ροής εισόδου και όσον αφορά το πρόβλημα είναι η εξής:  $T_{in}=100\text{ }^{\circ}\text{C}$ ,  $P_{in}=1333\text{ Pa (10 Torr)}$ ,  $\dot{m}_{in}=6.403\cdot 10^{-6}$  έως  $6.438\cdot 10^{-6}\text{ kg/s}$ ,  $\gamma_{DMEAA,in}=0.0167$  έως  $0.0223$  (το  $\gamma_{N_2,in}$  προκύπτει από αφαίρεση της τιμής του  $\gamma_{DMEAA,in}$  από τη μονάδα), ροή κάθετη στην είσοδο. Όπως παρατηρείται, πρόκειται για τη θερμοκρασία, πίεση, ποσότητα, σύσταση και κατεύθυνση της ροής, αντίστοιχα. Όσον αφορά τη μαζική ροή και τη σύσταση, αυτές μεταβάλλονται κατά τη διάρκεια της μελέτης, καθώς όπως θα αναφερθεί και στην επόμενη ενότητα (Εν. 3.4), στο επίκεντρο της παρούσας εργασίας είναι η δυναμική μοντελοποίηση της διεργασίας. Ωστόσο, επισημαίνεται ότι οι μεταβολές γίνονται με βάση το εύρος της ποσότητας DMEAA που μπορεί να εισαχθεί στον αντιδραστήρα με δεδομένη την ποσότητα αζώτου. Πιο συγκεκριμένα, η ροή εισόδου του αζώτου παραμένει σταθερή και ίση με 330 sccm, στην οποία αντιστοιχεί μέγιστη δυνατή ποσότητα DMEAA ίση με 2 sccm που υπολογίζεται από την εξίσωση:

$$Q_{DMEAA} = Q_{N_2} \frac{P_{sat}(T_{DMEAA})}{P_{reactor} - P_{sat}(T_{DMEAA})} \quad (3.6)$$

Επιπλέον, για τιμές του  $Q_{DMEAA}$  μικρότερες του 1.5 sccm η απόθεση εξελίσσεται υπερβολικά αργά, σε βαθμό που η πραγματοποίηση της διεργασίας δεν έχει καν νόημα. Συνεπώς, τα όρια των τιμών των  $\dot{m}_{in}$  και  $\gamma_{DMEAA,in}$  έχουν υπολογιστεί με βάση τη σταθερή ποσότητα του αζώτου (330 sccm) και τα δύο αυτά όρια της ποσότητας του DMEAA (1.5-2 sccm) [5].

- B. Συνοριακές συνθήκες τοιχωμάτων αντιδραστήρα:** Στα τοιχώματα του αντιδραστήρα εφαρμόζεται η συνθήκη μη ολίσθησης (μηδενική ταχύτητα) και η θερμοκρασία τους τίθεται σταθερή και ίση με  $T_{wall}=75\text{ }^{\circ}\text{C}$  [5].
- C. Συνοριακές συνθήκες υποστρώματος:** Το υποστρώμα συμπεριφέρεται και κατά συνέπεια μοντελοποιείται όπως τα τοιχώματα. Εφαρμόζεται και σε αυτό η συνθήκη μη ολίσθησης, ενώ η θερμοκρασία του μεταβάλλεται μεταξύ των τιμών  $T_s=139$  έως  $241\text{ }^{\circ}\text{C}$ . Βέβαια, η θερμοκρασία δεν μεταβάλλεται για να γίνει δυναμική μελέτη, αφού πρακτικά για κάθε θερμοκρασία αναπτύσσεται και διαφορετικό μοντέλο (βλ. Εν. 3.4), αλλά για σύγκριση της αξιοπιστίας των μοντέλων σε όλο το θερμοκρασιακό εύρος που έχει μελετηθεί πειραματικά [5].

**D. Συνοριακές συνθήκες εξόδου:** Εφαρμόζεται η **συνθήκη εκροής**, η οποία περιλαμβάνει δύο επιμέρους συνθήκες: **i) Πλήρως ανεπτυγμένη ροή**, σύμφωνα με την οποία οι – κάθετες προς το επίπεδο εξόδου- βαθμίδες όλων των μεταβλητών εκτός της πίεσης τίθενται ίσες με το μηδέν. Η συνθήκη αυτή συναντάται φυσικά σε πλήρως ανεπτυγμένες ροές, όπου το προφίλ ταχυτήτων (και άλλων μεταβλητών) δεν μεταβάλλεται κατά τη διεύθυνση της ροής. **ii) Διόρθωση συνολικού ισοζυγίου μάζας**, η οποία επιτρέπει στο χρήστη να επιλέξει το ποσοστό της συνολικής ροής που εξέρχεται από κάθε έξοδο (στην περίπτωση μιας εξόδου αναγκαστικά ίσο με 1), ενώ επίσης επιβάλλοντας κάποιες μικρές διορθώσεις στο συνολικό ισοζύγιο μάζας διασφαλίζει ότι δεν εμφανίζεται παρακράτηση κάποιου μέρους της ροής στην έξοδο (πχ. λόγω αναρροών). Συνεπώς, σε περιπτώσεις όπου έχει παρατηρηθεί έστω και μικρή παρακράτηση στην έξοδο του αντιδραστήρα, η συγκεκριμένη συνθήκη δεν προτείνεται [5], [14].

Τέλος, η πίεση λειτουργίας του αντιδραστήρα, η οποία αποτελεί μόνο συνθήκη λειτουργίας και όχι και συνοριακή συνθήκη όπως οι υπόλοιπες συνθήκες λειτουργίας, είναι ίση με  $P_{\text{reactor}}=1333 \text{ Pa (10 Torr)}$  [5].

### 3.4. Σκοπός παρούσας εργασίας

Η αξιόπιστη προσομοίωση προβλημάτων ρευστοδυναμικής όπως αυτό που έχει περιγραφεί διεξοδικά έως τώρα είναι μια υπολογιστικά επίπονη διαδικασία. Ενδεικτικά, αναφέρεται ότι η επίλυση μόνιμης κατάστασης του μοντέλου του αντιδραστήρα ΧΑΑ της παρούσας εργασίας, χρησιμοποιώντας το κινητικό μοντέλο και το πλέγμα που αναφέρονται στις παραπάνω ενότητες, σε έναν τυπικό υπολογιστή θα χρειαζόταν παραπάνω από τρεις ολόκληρες μέρες, χρόνος υπερβολικά μεγάλος που καθιστά πρακτικά μη αποδοτική την προσομοίωση. Ο κυριότερος παράγοντας που καθιστά την προσομοίωση τέτοιων συστημάτων τόσο υπολογιστικά απαιτητική είναι τα πολύπλοκα φαινόμενα που υπεισέρχονται και η μεταξύ τους αλληλεπίδραση, είτε πρόκειται για φαινόμενα μεταφοράς, είτε για ογκομετρικές και επιφανειακές χημικές αντιδράσεις (βλ. Εν. 1.2). Επιπλέον, η πολύπλοκη τρι-διάστατη γεωμετρία, καθώς επίσης και η ανάγκη πολύ πυκνού πλέγματος έτσι ώστε να μη «χαθεί» πληροφορία από το οριακό στρώμα, το οποίο χαρακτηρίζεται από πολύ μικρότερη κλίμακα μεγέθους σε σχέση με τον υπόλοιπο αντιδραστήρα, συνεισφέρουν σημαντικά στην αύξηση των υπολογιστικών απαιτήσεων. Κατά συνέπεια, όπως αναφέρθηκε και στην Εν. 3.3.2, η επιστράτευση τεχνικών παράλληλης επεξεργασίας είναι μονόδρομος για την ουσιαστική μελέτη τέτοιου είδους μη γραμμικών διεργασιών. Για την επίλυση του παρόντος προβλήματος σε συστοιχία υπολογιστών, ένας τυπικός υπολογιστικός χρόνος είναι περίπου τέσσερις 4 ώρες,

με αντίστοιχο υπολογιστικό κόστος μνήμης ίσο με 5 GB, ενώ σε περιπτώσεις που επιδιώκεται επίλυση σε μεταβατική κατάσταση, ο χρόνος αγγίζει τις 9 ώρες.

Αν και αυτές οι υπολογιστικές απαιτήσεις είναι «υποφερτές» για τη γενική μελέτη του συστήματος σε εύλογο υπολογιστικό χρόνο, σε περιπτώσεις όπου επιδιώκονται εφαρμογές όπως η αυτόματη ρύθμιση της διεργασίας, η «ταχεία» αριστοποίηση της ή έστω και μια γενικής σκοπιάς δυναμική μελέτη της, δημιουργείται η ανάγκη της κατά πολύ ταχύτερης επίλυσης του μοντέλου. Εδώ εντάσσεται η παρούσα εργασία, σκοπός της οποίας είναι η δημιουργία ενός γενικής χρήσεως υπολογιστικού πλαισίου, με το οποίο επιδιώκεται η αποδοτική και αποτελεσματική αντιμετώπιση προβλημάτων υπολογιστικής ρευστοδυναμικής που αποτελούνται από τρισδιάστατα λεπτομερή CFD μοντέλα μεγάλης κλίμακας. Ο πυρήνας αυτού του πλαισίου είναι η **ανάπτυξη μοντέλου μειωμένης τάξης** από τα αποτελέσματα των προσομοιώσεων του λεπτομερούς μοντέλου, η επίτευξη του οποίου βασίζεται στη συνδυασμένη χρήση της **Μεθόδου των Στιγμιότυπων** -η οποία αποτελεί παραλλαγή της γενικότερης Ανάλυσης Κυρίων Συνιστωσών (PCA)- και της χρήσης **Τεχνητών Νευρωνικών Δικτύων (ANN)**, δηλαδή υπολογιστικών αλγορίθμων μηχανικής μάθησης. Από την πρώτη τεχνική υπολογίζονται τα ιδιοδιανύσματα που περιέχουν το μεγαλύτερο ποσοστό της «πληροφορίας» του μοντέλου και πρακτικά αντιστοιχούν σε καταστάσεις του αντιδραστήρα, με κατάλληλο γραμμικό συνδυασμό των οποίων μπορεί να προκύψει οποιαδήποτε πραγματική κατάσταση του αντιδραστήρα με αμελητέο σφάλμα. Τα ιδιοδιανύσματα αυτά περιέχουν μόνο τη χωρική εξάρτηση της λύσης, οπότε για τη χρονική εξάρτηση εφαρμόζεται η δεύτερη τεχνική, από την οποία υπολογίζονται οι συντελεστές του προαναφερθέντος γραμμικού συνδυασμού. Έτσι, δημιουργείται ένα συνολικό μοντέλο της διεργασίας ικανό να προβλέψει τη δυναμική αλλά και στατική συμπεριφορά του συστήματος, ενώ η τάξη του και κατά συνέπεια οι υπολογιστικές απαιτήσεις για την προσομοίωση του είναι συντριπτικά μικρότερη/-ες συγκριτικά με το λεπτομερές μοντέλο. Άλλες τεχνικές που αξιοποιούνται εντός του πλαισίου για την αποδοτική μοντελοποίηση 3-D CFD προβλημάτων περιλαμβάνουν τον **παράλληλο προγραμματισμό** με σκοπό την «εξόρυξη» δεδομένων (data mining) από πολλούς υπολογιστικούς πυρήνες ταυτόχρονα και με τη σωστή σειρά, αλλά και την **παρεμβολή** λύσης αραιού πλέγματος σε πυκνό πλέγμα ως αρχική εκτίμηση λύσης.

Επισημαίνεται ότι κατά την προσομοίωση του αναλυτικού μοντέλου δεν λαμβάνονται υπόψη οι χημικές αντιδράσεις αλλά μόνο τα φαινόμενα μεταφοράς. Η απλοποιητική αυτή επιλογή βασίζεται στο γεγονός ότι η συγκέντρωση της πρόδρομης ουσίας στη ροή εισόδου είναι κατά πολύ μικρότερη από αυτή του φέροντος αερίου, οπότε η ύπαρξη της αλλά και η διάσπαση της επηρεάζει σε αμελητέο βαθμό τη ροή. Συνεπώς, το μοντέλο μειωμένης τάξης αποτελεί μοντέλο υδροδυναμικής και όχι συνολικό μοντέλο της διεργασίας, οπότε οι καταστάσεις που υπολογίζονται από αυτό τροφοδοτούνται εν τέλει στο συνολικό λεπτομερές

μοντέλο, το οποίο συγκλίνει σε πολύ λιγότερες επαναλήψεις σε σχέση με την απευθείας επίλυση του.

Το υπολογιστικό πλαίσιο που περιγράφηκε στην προηγούμενη παράγραφο και θα αναλυθεί πιο διεξοδικά στα επόμενα κεφάλαια, παρόλο που αναπτύχθηκε με βάση τον αντιδραστήρα και τη διεργασία που περιγράφονται στις προηγούμενες ενότητες αυτού του κεφαλαίου, έχει γενική χρήση και μπορεί να εφαρμοστεί σε οποιοδήποτε CFD πρόβλημα. Επιπλέον, για την αρχική προσομοίωση του λεπτομερούς μοντέλου μπορεί να χρησιμοποιηθούν και άλλοι CFD κώδικες, εκτός από αυτόν του Fluent, αρκεί αυτοί να περιλαμβάνουν επιλογές που θα επιτρέπουν την παράλληλη επεξεργασία και προγραμματισμό, την εξόρυξη δεδομένων και τέλος την παρεμβολή από ένα πλέγμα σε άλλο. Φυσικά, για να έχει νόημα η όλη διαδικασία θα πρέπει το μελετώμενο πρόβλημα να είναι πολύ μεγάλης κλίμακας και η επιδιωκόμενη εφαρμογή να απαιτεί την επίλυση του μοντέλου σε πολύ μικρό υπολογιστικό χρόνο. Τέλος, επισημαίνεται ότι ο πυρήνας του πλαισίου, δηλαδή η μέθοδος στιγμιοτύπων και τα τεχνητά νευρωνικά δίκτυα μπορούν να εφαρμοστούν και σε τελείως διαφορετικού τύπου προβλήματα, μη ρευστοδυναμικής φύσεως, καθώς για την ανάπτυξη του μοντέλου μειωμένης τάξης απαιτείται μόνο η ύπαρξη δεδομένων από κατάλληλες προσομοιώσεις και όχι η γνώση των φυσικοχημικών φαινομένων που απαρτίζουν το σύστημα ή των μαθηματικών εξισώσεων που το διέπουν.

Σε δεύτερη φάση, πραγματοποιείται και η αξιολόγηση του πολύπλοκου κινητικού μοντέλου της διεργασίας απόθεσης αλουμινίου από DMEAA, το οποίο περιγράφηκε λεπτομερώς στις προηγούμενες ενότητες. Το μοντέλο αυτό αναπτύχθηκε στο πλαίσιο προηγούμενης εργασίας, όπου οι κινητικές του σταθερές προσδιορίστηκαν με προσαρμογή των υπολογιστικών αποτελεσμάτων δι-διάστατου πλέγματος, με τα αποτελέσματα να είναι πολύ ικανοποιητικά. Στην παρούσα εργασία επιχειρείται η επαλήθευση των παραπάνω ευρημάτων και σε τρι-διάστατο πλέγμα, καθώς επίσης διαπιστώνεται εάν είναι αναγκαία η επαναπροσαρμογή των κινητικών παραμέτρων του μοντέλου με βάση το 3-D μοντέλο, καθώς αυτό θεωρείται σε γενικές γραμμές πιο αξιόπιστο από το αντίστοιχο 2-D.



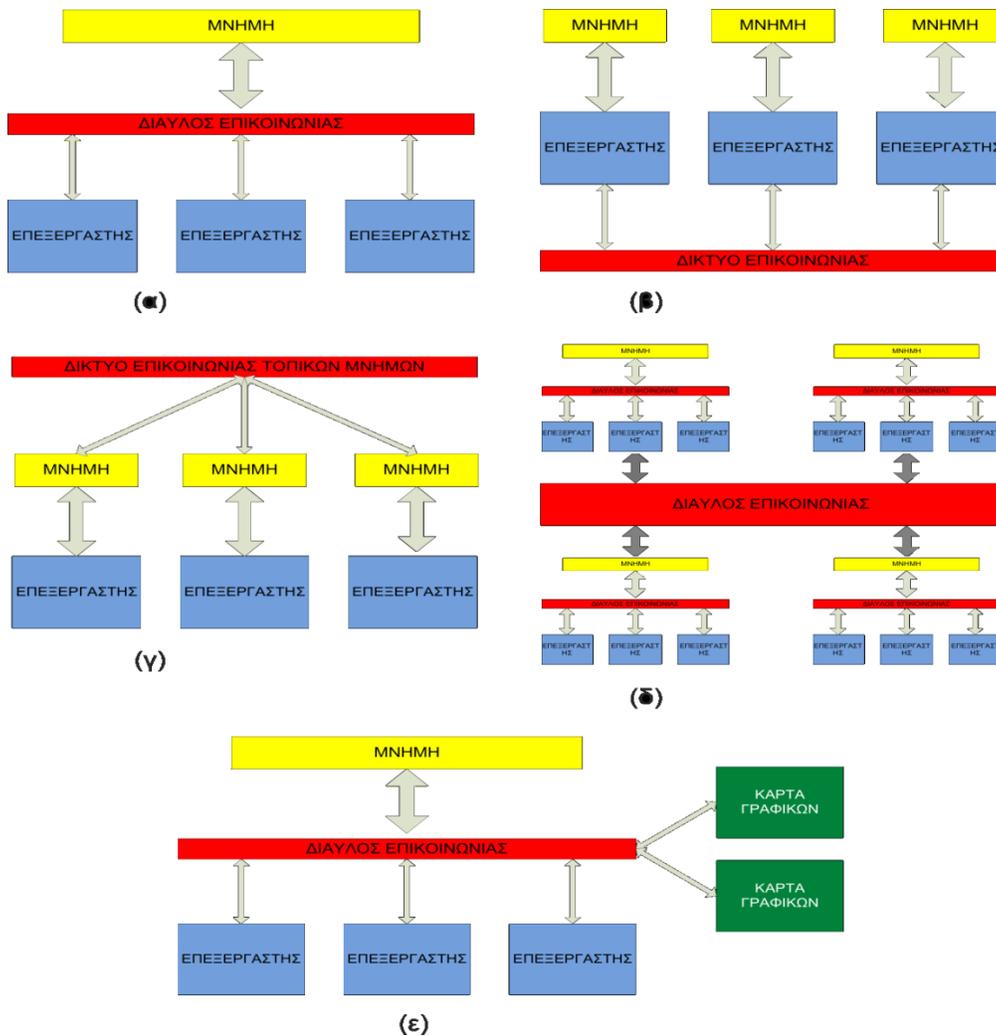
## 4. Δευτερεύουσες τεχνικές: Α) Παράλληλη επεξεργασία και προγραμματισμός, Β) Παρεμβολή πλέγμα-σε-πλέγμα

### 4.1. Παράλληλη επεξεργασία και προγραμματισμός

#### 4.1.1. Εισαγωγή

Στη σύγχρονη εποχή, η επίλυση των μεγάλης κλίμακας υπολογιστικών προβλημάτων σε εύλογο χρόνο απαιτεί υπολογιστική ισχύ και μνήμη που δεν μπορεί να διαθέσει ούτε ο καλύτερος σειριακός υπολογιστής. Έχει πλέον καθιερωθεί τέτοια προβλήματα να λύνονται με τεχνικές παράλληλης επεξεργασίας σε υπολογιστικά συστήματα που είναι γνωστά ως *Υπερυπολογιστές*, *Υπολογιστές Υψηλής Απόδοσης* ή απλά *Παράλληλοι Υπολογιστές* [1].

Η πιο σημαντική κατηγορία βασικής αρχιτεκτονικής παράλληλων υπολογιστών είναι η Αρχιτεκτονική Πολλαπλών Εντολών – Πολλαπλών Δεδομένων (MIMD), στην οποία κάθε επεξεργαστική μονάδα λειτουργεί ανεξάρτητα από τις υπόλοιπες, εκτελώντας -κατά τη γενικότητα- διαφορετικές εντολές σε διαφορετικά σύνολα δεδομένων, ενώ ο συγχρονισμός τους γίνεται μέσω ανταλλαγής μηνυμάτων. Αυτοί με τη σειρά τους διακρίνονται σε δύο περαιτέρω κύριες υποκατηγορίες, τους *υπολογιστές κοινής μνήμης* και τους *υπολογιστές κατανεμημένης μνήμης*. Η διαφορά τους έγκειται στον τρόπο προσπέλασης της μνήμης από τους επεξεργαστές, όπου στην πρώτη υποκατηγορία όλοι οι επεξεργαστές έχουν πρόσβαση σε μια κοινή μνήμη μέσω ενός διαύλου επικοινωνίας, ενώ στη δεύτερη κάθε επεξεργαστής έχει πρόσβαση μόνο στο δικό του χώρο μνήμης και η επικοινωνία μεταξύ των επεξεργαστών γίνεται μέσω κάποιου δικτύου. Στην πρώτη περίπτωση ο προγραμματισμός τέτοιων υπολογιστών είναι αρκετά απλός και παρόμοιος με τον προγραμματισμό σειριακών υπολογιστών. Ωστόσο, η υπολογιστική τους ισχύς περιορίζεται από το πλήθος των επεξεργαστών, καθώς για τεχνικούς λόγους δεν είναι δυνατή η ταυτόχρονη πρόσβαση πολλαπλών επεξεργαστών στην ίδια μνήμη. Αντιθέτως, στη δεύτερη περίπτωση το πλήθος των επεξεργαστών μπορεί να φτάσει θεωρητικά ακόμα και το άπειρο με αποτέλεσμα να υπερτερούν όσον αφορά την υπολογιστική ισχύ που διαθέτουν, όμως ο προγραμματισμός τους είναι αρκετά πιο πολύπλοκος. Τέλος, ενδεικτικά αναφέρεται ότι έχουν αναπτυχθεί και άλλοι τύποι MIMD Υπερυπολογιστών, οι οποίοι συνδυάζουν χαρακτηριστικά από τους δύο παραπάνω και απεικονίζονται διαγραμματικά μαζί με αυτούς στο Σχήμα 4.1 [1].



Σχήμα 4.1: Δομές υπολογιστών αρχιτεκτονικής MIMD: (α) Κοινής μνήμης, (β) Καταμεμημένης μνήμης, (γ) Εικονικής κοινής μνήμης, (δ) Αρχιτεκτονικής NUMA, (ε) Υβριδική αρχιτεκτονική

#### 4.1.2. Συστοιχίες υπολογιστών και άλλες βασικές έννοιες παράλληλης επεξεργασίας

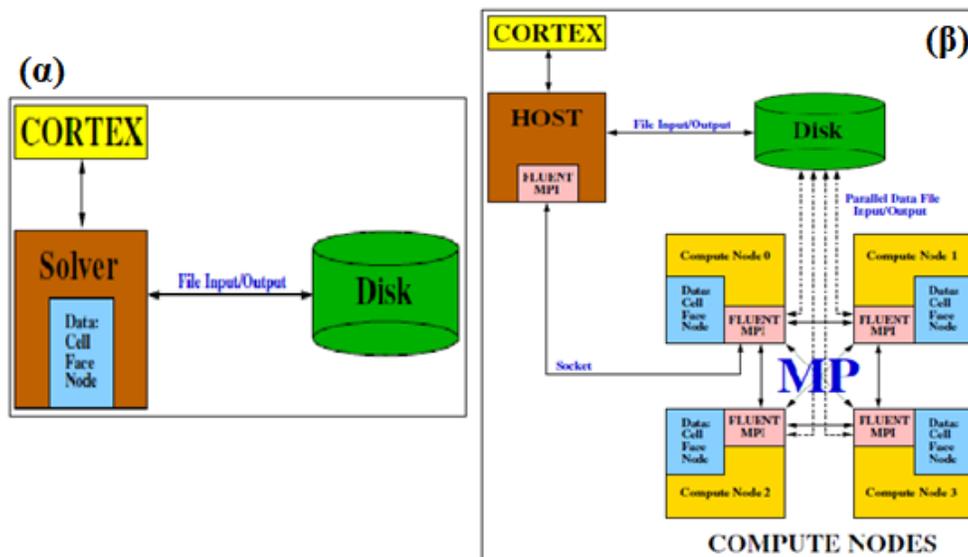
Η πιο διαδεδομένη και καθιερωμένη προσέγγιση παράλληλης επεξεργασίας είναι οι **συστοιχίες προσωπικών υπολογιστών (PC clusters)**, κυρίως λόγω του χαμηλού κόστους που τις συνοδεύει. Η αρχή λειτουργίας τους βασίζεται στην αποτελεσματική διασύνδεση των ξεχωριστών υπολογιστών που απαρτίζουν τη συστοιχία, η οποία επιτυγχάνεται μέσω ταχέων τοπικών δικτύων, όπως το Gigabit Ethernet και το Myrinet [1].

Οι συστοιχίες συνήθως χρησιμοποιούν ως λειτουργικό σύστημα το ελεύθερο λογισμικό Linux και πιο συγκεκριμένα ειδικές εκδοχές του που έχουν αναπτυχθεί αποκλειστικά για χρήση σε συστοιχίες. Η επικοινωνία των διαφορετικών μονάδων που απαρτίζουν τη συστοιχία προϋποθέτει εκτός από κατάλληλο υλικό (hardware), όπως τα προαναφερθέντα δίκτυα, και την ύπαρξη κατάλληλου λογισμικού, δηλαδή *βιβλιοθήκες εντολών ανταλλαγής μηνυμάτων*, μεταξύ

των οποίων οι πιο διαδεδομένες είναι αυτές που ανήκουν στη γενικότερη οικογένεια των **MPI βιβλιοθηκών**. Το ακρωνύμιο προκύπτει από το Message Passing Interface (*Διεπαφή Ανταλλαγής Μηνυμάτων*) και ουσιαστικά πρόκειται για ένα πρότυπο/πρωτόκολλο δημιουργίας βιβλιοθηκών που περιλαμβάνει έναν πυρήνα ρουτινών, διαφορετικές εφαρμογές του οποίου αποδίδουν και διαφορετικές βιβλιοθήκες. Επίσης, οι βιβλιοθήκες MPI επιτρέπουν τον προγραμματισμό της επικοινωνίας των διαφορετικών υπολογιστικών μονάδων σε C, σε C++ ή σε Fortran [1].

### 4.1.3. Ο παράλληλος επιλύτης του Fluent

Ο CFD κώδικας του λογισμικού Fluent διαθέτει εκτός από σειριακό επιλύτη και παράλληλο, παρέχοντας έτσι τη δυνατότητα στο χρήστη να προσομοιώσει μακροσκοπικά μοντέλα ρευστοδυναμικής με παράλληλη επεξεργασία. Η τεχνική παράλληλης επεξεργασίας που εφαρμόζεται από τον παράλληλο επιλύτη είναι ο **διαμοιρισμός του υπολογιστικού χωρίου**, όπου πρακτικά αυτό χωρίζεται σε επιμέρους υποχωρία. Οι υπολογισμοί εντός των υποχωρίων διαμοιράζονται στους διαθέσιμους επεξεργαστές. Στο Σχήμα 4.2 παρουσιάζονται διαγραμματικά (και συνοπτικά) οι δύο επιλύτες του Fluent [14].



Σχήμα 4.2: (α) Σειριακός και (β) Παράλληλος επιλύτης Fluent

### Αρχή λειτουργίας παράλληλου επιλύτη

Ο παράλληλος επιλύτης αποτελείται από τρεις βασικές αλληλεπιδρώσες διεργασίες: **i) Τη διεργασία CORTEX**, **ii) Τη διεργασία HOST** και **iii) Τις διεργασίες υπολογιστικών κόμβων**. Η CORTEX επιτελεί τη λειτουργία επικοινωνίας του χρήστη με τον υπόλοιπο κώδικα του Fluent και κατά συνέπεια μεταφέρει οποιαδήποτε εντολή και δεδομένο εισάγει ο χρήστης στη

διεργασία HOST, την κεντρική διεργασία του επιλύτη. Η HOST από την άλλη, η οποία αποτελεί και η ίδια κόμβος, έχει το ρόλο του «εγκεφάλου» του επιλύτη και δεν διαθέτει κανένα τμήμα του πλέγματος, οπότε δεν «τρέχει» κάποιον υπολογισμό. Αντ' αυτού, αναλαμβάνει το έργο επικοινωνίας και συγχρονισμού των υπόλοιπων διεργασιών μέσω του κόμβου-0. Ο κόμβος-0, με τη σειρά του, είναι ταυτόχρονα κόμβος επικοινωνίας αλλά και υπολογισμών, αφού εκτός από την επίλυση του μοντέλου στο υποχωρίο που του έχει ανατεθεί, αναλαμβάνει και το διαμερισμό των εντολών και δεδομένων που λαμβάνει από την HOST στους υπόλοιπους υπολογιστικούς κόμβους. Στη συνέχεια, οι κόμβοι αυτοί εκτελούν το κοινό πρόγραμμα εντολών που έχει οριστεί από το χρήστη, ο καθένας στο τμήμα του πλέγματος που του έχει ανατεθεί, ανεξάρτητα από τους υπόλοιπους. Βέβαια, οι υπολογιστικοί κόμβοι μπορούν να επικοινωνήσουν μεταξύ τους με σκοπό την ανταλλαγή διανυσμάτων/πινάκων, το συγχρονισμό ή την πραγματοποίηση ολικών λειτουργιών (π.χ. άθροισμα μεγέθους από όλα τα κελιά του πλέγματος). Τέλος, ο κόμβος-0 συλλέγει από όλους τους άλλους υπολογιστικούς κόμβους τα επιμέρους τμήματα της λύσης που έχουν προκύψει και τα διαβιβάζει στην HOST, ο οποίος τα κάνει διαθέσιμα στο χρήστη όπως θα τα έκανε και ο σειριακός επιλύτης. Επισημάνεται ότι όλες οι προαναφερθείσες μεταφορές πληροφορίας πραγματοποιούνται μέσω MPI βιβλιοθήκης [14].

### Διαμερισμός υπολογιστικού χωρίου

Η μορφοποίηση του πλέγματος μπορεί να γίνει με πολλούς διαφορετικούς τρόπους, ανάλογα τη μέθοδο διαχωρισμού, τις μεθόδους βελτιστοποίησης και άλλες παραμέτρους που επηρεάζουν τη διαδικασία. Σε κάθε περίπτωση, ο αριθμός των τμημάτων που προκύπτουν πρέπει να είναι ακέραιο πολλαπλάσιο του αριθμού των υπολογιστικών κόμβων που επιλέχθηκαν από το χρήστη για να λύσουν το πρόβλημα (π.χ. για 4 υπολογιστικούς κόμβους τα τμήματα πρέπει να είναι 4 ή 8 ή 12 κ.ο.κ.). Συνεπώς, γίνεται εύκολα κατανοητό ότι κάθε υπολογιστικός κόμβος έχει τη δυνατότητα να αναλάβει και πάνω του ενός τμήματα του πλέγματος. Στο Σχήμα 4.3 απεικονίζεται μέρος 2-D πλέγματος πριν και μετά το διαχωρισμό του σε δύο τμήματα [14].

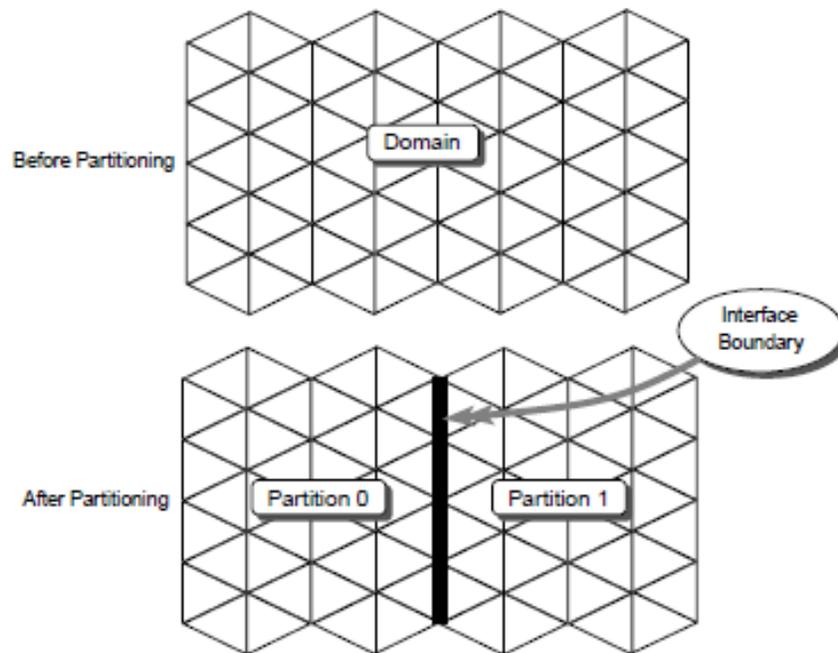
Το Fluent παρέχει τη δυνατότητα στο χρήστη να επιλέξει μεταξύ αυτόματου ή χειροκίνητου διαμερισμού. Στη δεύτερη περίπτωση, ο χρήστης καλείται να επιλέξει τις παραμέτρους διαμερισμού, οι σημαντικότερες των οποίων είναι οι εξής: **i) Αριθμός τμημάτων**, **ii) Μέθοδος διαχωρισμού** και **iii) Μέθοδοι βελτιστοποίησης** [14].

Όσον αφορά τις μεθόδους διαχωρισμού, αυτές βασίζονται είτε σε διαδοχικές διχοτομήσεις του χωρίου έως ότου επιτευχθεί ο επιθυμητός αριθμός τμημάτων, είτε στην περίπτωση της μεθόδου *METIS* σε πιο πολύπλοκους αλγόριθμους που δεν αναφέρονται στην παρούσα εργασία. Η διαφορά των μεθόδων μεταξύ τους (εκτός της *METIS*) έγκειται στην

τεχνική διχοτόμησης που ακολουθείται. Η επιλογή της αποτελεσματικότερης μεθόδου είναι ένα ζήτημα που εξαρτάται σε μεγάλο βαθμό από το εκάστοτε πρόβλημα, οπότε η πιο ασφαλής λύση είναι η δοκιμή κάθε μεθόδου και η σύγκριση τους [14].

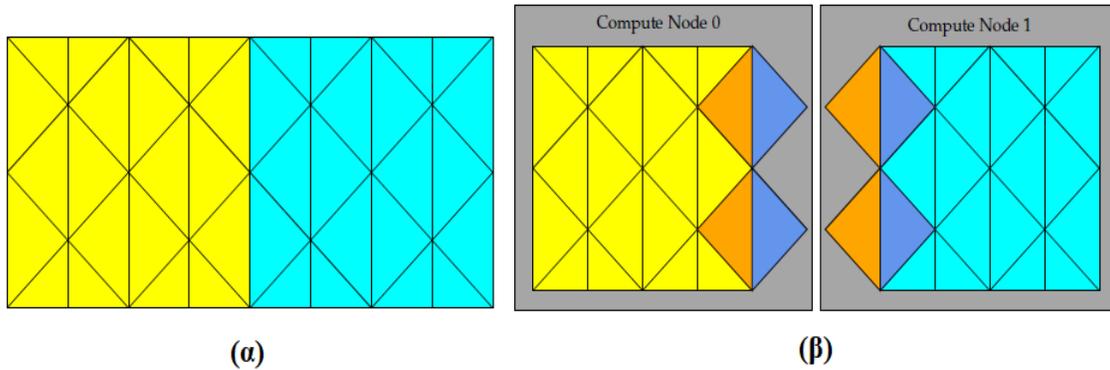
Σχετικά με τις μεθόδους βελτιστοποίησης, αυτές καταλήγουν στις δύο εξής διαφορετικές τεχνικές που μπορούν να επιλεχθούν ανεξάρτητα η μια από την άλλη [14]:

- **Λείανση:** Πραγματοποιείται μεταφορά κελιών μεταξύ διαφορετικών τμημάτων με σκοπό τη μείωση της διεπιφάνειας μεταξύ γειτονικών τμημάτων.
- **Συγχώνευση:** Μικρές ομάδες κελιών που λειτουργούν ως ξεχωριστά τμήματα πλέγματος συγχωνεύονται με άλλες αντίστοιχες ομάδες κελιών, με σκοπό πάλι τη μείωση της διεπιφάνειας μεταξύ γειτονικών τμημάτων.



Σχήμα 4.3: Διαμερισμός τμήματος 2-D πλέγματος σε δύο τμήματα

Στο Σχήμα 4.4 παρουσιάζεται ένα διαμερισμένο πλέγμα: (α) πριν τη διανομή των τμημάτων σε υπολογιστικούς κόμβους και (β) μετά τη διανομή του. Τα κίτρινα και γαλάζια κελιά αποτελούν εσωτερικά κελιά των κόμβων-0 και 1, αντίστοιχα, ενώ τα πορτοκαλί και μωβ κελιά ονομάζονται εξωτερικά και βρίσκονται ταυτόσημα και στους δύο κόμβους, δημιουργώντας έτσι μια επικάλυψη. Αυτό εξυπηρετεί τη διατήρηση της συνέχειας του υπολογιστικού χωρίου ακόμα και μετά το διαμερισμό, ενώ επιτρέπει την επικοινωνία των γειτονικών τμημάτων διά μέσω της διεπιφάνειας τους. Ωστόσο, όσο αυξάνεται το πλήθος τους τόσο μειώνεται η απόδοση του διαμερισμού [14].



Σχήμα 4.4: Διαμερισμένο πλέγμα (α)πριν και (β)μετά τη διανομή του σε υπολογιστικούς κόμβους

#### 4.1.4. Παράλληλος προγραμματισμός: Παραλληλοποίηση σειριακού κώδικα και χρήση του ως UDF στον Fluent

Για τη δημιουργία του μοντέλου μειωμένης τάξης που αναφέρθηκε στην Εν. 3.4, απαιτείται η εξόρυξη δεδομένων από τα αποτελέσματα των προσομοιώσεων του λεπτομερούς μοντέλου. Η διαδικασία αυτή είναι εφικτή στο Fluent, με χρήση των λεγόμενων «**Συναρτήσεων Ορισμένων από το χρήστη**» ή **User Defined Functions (UDFs)**. Ένα UDF αποτελεί κώδικα γραμμένο σε C, ο οποίος συζεύξετε με το συνολικό CFD κώδικα του Fluent, επιτρέποντας του να επιτελέσει λειτουργίες που δεν είχε από μόνος του ενσωματωμένες. Οι λειτουργίες αυτές ποικίλουν σε μεγάλο βαθμό και μπορεί να είναι από την εγγραφή ή ανάγνωση συγκεκριμένων αρχείων έως και τον ορισμό μεγεθών του μοντέλου με τρόπο που δεν επιτρέπει από μόνο του το Fluent (π.χ. ορισμός ρυθμού αντίδρασης μορφής διαφορετικής από Arrhenius), ενώ η χρονική στιγμή ενεργοποίησης τους κατά τη διάρκεια της υπολογιστικής διαδικασίας καθορίζεται από το χρήστη μέσω ειδικών ορισμάτων στην αρχή του κώδικα [24].

Η συγγραφή ενός σειριακού UDF είναι μια αρκετά απλή και ευθύς διαδικασία, αν και φυσικά αυτό εξαρτάται κατά μεγάλο βαθμό και από την επιδιωκόμενη λειτουργία που προσπαθεί ο χρήστης να ενσωματώσει στον κώδικα. Από την άλλη, η συγγραφή ενός παράλληλου UDF ή αντίστοιχα η παραλληλοποίηση ενός σειριακού, αποτελεί μια αρκετά πιο πολύπλοκη διαδικασία, καθώς πρέπει να ληφθούν υπόψη όλες οι αλληλεπιδράσεις και ανταλλαγές πληροφορίες που λαμβάνουν χώρα ανάμεσα στους υπολογιστικούς κόμβους αλλά και την HOST. Βασικές αρχές της διαδικασίας αυτής θα περιγραφούν συνοπτικά παρακάτω [24].

Αρχικά, μια πολύ σημαντική αρχή της συγγραφής παράλληλου UDF είναι ο ορισμός του τύπου διεργασίας που αποτελεί κάθε τμήμα του κώδικα. Αυτό πραγματοποιείται μέσω συγκεκριμένων εντολών που ονομάζονται «*οδηγίες μεταγλωττιστή*» και είναι οι εξής [24]:

- **#if RP\_HOST**: Ορίζει ότι οι εντολές που ακολουθούν εκτελούνται μόνο από την HOST

- **#if RP\_NODE:** Ορίζει ότι οι εντολές που ακολουθούν εκτελούνται μόνο από υπολογιστικούς κόμβους
- **#if PARALLEL:** Ορίζει ότι στις εντολές που ακολουθούν εμπλέκονται και ο HOST και οι υπολογιστικοί κόμβοι, αλλά όχι σειριακές αντίστοιχες διεργασίες

Αντίστοιχα με τις παραπάνω εντολές, προκύπτουν και οι αντίθετες τους με προσθήκη θαυμαστικού (!) πριν το όνομα της διεργασίας.

Άλλες βασικές εντολές που χρησιμοποιούνται αποκλειστικά κατά τη συγγραφή παράλληλων UDF είναι *i) Εντολές ανταλλαγής μηνυμάτων ή/και δεδομένων μεταξύ HOST και υπολογιστικών κόμβων, ii) Εντολές εκτέλεσης καθολικών διαδικασιών και iii) Εντολές εκτέλεσης βρόγχου πάνω στα κελιά του πλέγματος*. Ιδιαίτερη προχρή απαιτείται όταν συμπεριλαμβάνονται εντολές της τελευταίας κατηγορίας, καθώς πρέπει να ληφθεί υπόψη το γεγονός ότι στο διαμερισμένο πλέγμα περιέχονται εσωτερικά και εξωτερικά κελιά, με τα τελευταία να υπάρχουν εις διπλούν στις διεπιφάνειες τμημάτων, για λόγους που αναφέρθηκαν στην Εν. 4.1.3 [24].

Η ακριβής διαδικασία που εφαρμόστηκε στην παρούσα εργασία με σκοπό την παραλληλοποίηση σειριακού UDF εξόρυξης δεδομένων περιγράφεται στην Εν. 7.3.2.

## 4.2. Παρεμβολή λύσης από-πλέγμα-σε-πλέγμα

Ως παρεμβολή ορίζεται η διαδικασία δημιουργίας νέων τιμών μιας μεταβλητής εντός ενός συνόλου γνωστών τιμών της μεταβλητής αυτής. Οι άγνωστες τιμές δημιουργούνται «ανάμεσα» στις γνωστές, ενώ αυτές μπορεί να βρίσκονται διασκορπισμένες σε χωρικές διαστάσεις, στο χρόνο ή γενικά οποιοδήποτε διανυσματικό χώρο. Η βασική αρχή λειτουργίας της διαδικασίας αυτής είναι η χρήση συναρτήσεων που συσχετίζουν τις τιμές της μεταβλητής σε γνωστά σημεία του χώρου με τιμές της στα γειτονικά τους άγνωστα σημεία. Ο τύπος της συνάρτησης που χρησιμοποιείται καθορίζει και την εκάστοτε μέθοδο παρεμβολής. Μερικές τυπικές και συνηθισμένες μέθοδοι παρεμβολής αναφέρονται στη συνέχεια, κατά αύξουσα σειρά ακρίβειας αλλά και πολυπλοκότητας: *i) Τμηματικά σταθερή παρεμβολή, ii) Γραμμική παρεμβολή, iii) Πολυωνυμική παρεμβολή, iii) Τμηματικά πολυωνυμική παρεμβολή* [25].

Το Fluent εφαρμόζει τη γενική τεχνική της παρεμβολής σε αρκετές περιπτώσεις, κάποιες εκ των οποίων αναφέρθηκαν στην Εν. 2.3.2. Μια άλλη εφαρμογή της παρεμβολής αποτελεί η χρήση της λύσης που προέκυψε από την προσομοίωση ενός μοντέλου σε ένα πλέγμα ως αρχική εκτίμηση κατά την προσομοίωση του ίδιου μοντέλου σε άλλο πλέγμα. Η διαφορά των δύο πλεγμάτων μπορεί να έγκειται σε διάφορα χαρακτηριστικά, όπως το σχήμα των κελιών, ενώ μια συνηθισμένη περίπτωση είναι αυτή που το μοντέλο επιλύεται σε ένα αραιό πλέγμα και η λύση που προκύπτει παρεμβάλλεται σε ένα πυκνότερο. Το όφελος της παραπάνω διαδικασίας είναι η σημαντική μείωση του υπολογιστικού χρόνου της δεύτερης προσομοίωσης [11].

Στην περίπτωση της παρεμβολής λύσης από-πλέγμα-σε-πλέγμα, το Fluent αξιοποιεί τη μέθοδο της **Τμηματικά Σταθερής Παρεμβολής**, η οποία αλλιώς ονομάζεται και **Παρεμβολή Μηδενικής Τάξης** ή **Παρεμβολή Κοντινότερου Γείτονα**. Σύμφωνα με τη μέθοδο αυτή, κάθε κελί (ή κατά τη γενικότερη περίπτωση, σημείο) του νέου πλέγματος λαμβάνει αυτούσιες τις τιμές των μεταβλητών της λύσης από το κοντινότερο κελί του προηγούμενου πλέγματος, αγνοώντας τις τιμές των υπόλοιπων γειτονικών του κελιών. Η μέθοδος αυτή είναι αναπόφευκτο να συνοδεύεται από μεγάλα σφάλματα παρεμβολής και χρησιμοποιείται σπάνια, καθώς η μέθοδος Γραμμικής Παρεμβολής (ή αλλιώς Πρώτης Τάξης) παρουσιάζει πολύ μικρότερα σφάλματα, ενώ η πολυπλοκότητα της δεν αυξάνεται σημαντικά. Ωστόσο, το μεγάλο της σφάλμα δεν παίζει ιδιαίτερο ρόλο στην περίπτωση που χρησιμοποιείται απλά ως αρχική εκτίμηση, καθώς η Μέθοδος Πεπερασμένων Όγκων θα συγκλίνει στην ίδια τελική λύση ανεξάρτητα της αρχικής εκτίμησης. Συνεπώς, θεωρείται προτιμότερο αυτή η σύγκλιση να καθυστερήσει ελάχιστα παραπάνω από ότι να αυξηθεί η πολυπλοκότητα της παρεμβολής και επακόλουθα ο υπολογιστικός χρόνος και το κόστος πραγματοποίησης της [25].



## 5. Μείωση τάξης δυναμικών μοντέλων: Ανάλυση Κυρίων Συνιστωσών μέσω της Μεθόδου των Στιγμοτύπων

### 5.1. Εισαγωγή

Οι υπολογιστικές προσομοιώσεις έχουν πλέον καθιερωθεί ως ο τρίτος τρόπος μελέτης συστημάτων και διεργασιών, μαζί με τη θεωρία και τα πειράματα. Κύριο παράγοντα σε αυτό έχει παίξει η ραγδαία εξέλιξη της τεχνολογίας και πιο συγκεκριμένα η αύξηση της διαθέσιμων υπολογιστικών δυνατοτήτων. Βέβαια, ταυτόχρονα με την αύξηση αυτή αυξήθηκαν και οι απαιτήσεις σε ακρίβεια των προσομοιώσεων, η οποία επέρχεται τόσο από την ανάπτυξη καινοτόμων υπολογιστικών αλγορίθμων και μεθόδων, όσο και από τη δημιουργία ρεαλιστικών πλήρων μοντέλων υψηλής τάξης. Ωστόσο, όσο αξιοθαύμαστη και να είναι η ακρίβεια αυτών των μοντέλων, οι υπολογιστικές απαιτήσεις που συνοδεύουν την επίλυση τους είναι αρκετά υψηλές και σε ορισμένες περιπτώσεις απαγορευτικές, ακόμα και με τη σύγχρονη διαθέσιμη τεχνολογία [26].

Στις περιπτώσεις αυτές επιχειρείται η απλοποίηση των αναλυτικών μοντέλων, αφαιρώντας από αυτά λεπτομέρειες που δεν χρησιμεύουν στο σκοπό της εκάστοτε μοντελοποίησης, ενώ ταυτόχρονα διατηρούνται οι βασικές ιδιότητες του πλήρους μοντέλου. Συχνή τακτική είναι η *εκ των προτέρων* απλοποίηση του μοντέλου, είτε μέσω της **λειτουργικής μείωσης τάξης**, είτε μέσω της **συμπαγούς μοντελοποίησης**. Κατά την πρώτη προσέγγιση, αξιοποιείται η τυχόν θεωρητική γνώση των φαινομένων που απαρτίζουν το σύστημα, με σκοπό τη συμμετοχή στο μοντέλο μόνο των φαινομένων και διαστάσεων που επιχειρείται να μελετηθούν αλλά και αυτών που το επηρεάζουν (π.χ. 2-D μοντελοποίηση 3-D διεργασίας). Αντιστοίχως, η δεύτερη προσέγγιση εφαρμόζεται στην περίπτωση συστημάτων μεγάλης κλίμακας που απαρτίζονται από επί μέρους μικρότερα υποσυστήματα, όπου αντί να επιχειρηθεί η μοντελοποίηση ολόκληρου του συστήματος, αναπτύσσονται μοντέλα για τα επιμέρους υποσυστήματα, τα οποία επιλύονται συνδυαστικά [26].

Σε πολλές περιπτώσεις, όμως, τεχνικές εκ των προτέρων απλοποίησης δεν είναι εφικτές, οπότε απαιτείται η ανάπτυξη μαθηματικών αλγορίθμων **Μείωσης Τάξης Μοντέλου (MTM)** ή **Reduced Order Modeling (ROM)**, οι οποίοι επιχειρούν να απλοποιήσουν μοντέλα υψηλής πολυπλοκότητας που αποτελούνται από τεράστιο αριθμό εξισώσεων και μεταβλητών ( $10^5 - 10^9$ ). Η ROM αρχικά αναπτύχθηκε στο πεδίο της θεωρίας συστημάτων και αυτόματης ρύθμισης, αν και αργότερα επεκτάθηκε και στο πεδίο της αριθμητικής ανάλυσης. Κύριος σκοπός της είναι να συλλάβει όσο το δυνατόν πιο γρήγορα τη βασική δομή και ιδιότητες του αρχικού μοντέλου, παραλείποντας τις λιγότερο σημαντικές λεπτομέρειες του. Έτσι, προκύπτει ένα *Μοντέλο Μειωμένης Τάξης (MMT)*, το οποίο μπορεί να επιλυθεί με σημαντικά μικρότερο

υπολογιστικό κόστος, διατηρώντας ταυτόχρονα τη συμπεριφορά εισόδου-εξόδου του αρχικού μοντέλου. Λόγω όλων των παραπάνω, η ROM συναντά συχνή εφαρμογή στην αυτόματη ρύθμιση και στη βελτιστοποίηση διεργασιών σε πραγματικό χρόνο, όπου απαιτείται η πρόβλεψη της κατάστασης του συστήματος μέσα σε λίγα λεπτά (ή και δευτερόλεπτα), κάτι που σε καμία περίπτωση δεν είναι εφικτό με τη χρήση λεπτομερών μοντέλων [26].

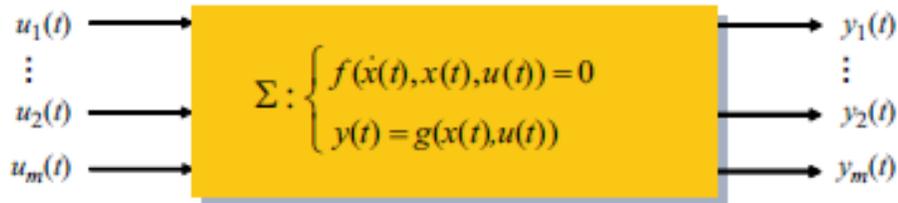
## 5.2. Βασική αρχή μείωσης τάξης δυναμικών μοντέλων

Στην υπολογιστική μηχανική, ένα μεγάλο ποσοστό των μελετώμενων μοντέλων αποτελούνται από ένα σύστημα μερικών ή/και συνήθων διαφορικών εξισώσεων και τις αντίστοιχες συνοριακές τους συνθήκες. Εξαιρέση δεν αποτελούν και τα μακροσκοπικά μοντέλα ρευστοδυναμικής, η μείωση τάξης των οποίων είναι ο βασικός σκοπός της παρούσας εργασίας (βλ. Εν. 2.2 και 3.4). Σε τέτοιες περιπτώσεις, όπου το μοντέλο αποτελείται αποκλειστικά από ΜΔΕ με ανεξάρτητες μεταβλητές τη θέση και το χρόνο, μετά από χωρική διακριτοποίηση προκύπτει το εξής γενικό σύστημα συνήθων διαφορικών εξισώσεων στο χρόνο [26]:

$$\frac{dx}{dt} = f(x, u) \quad (5.1)$$

$$y = g(x, u) \quad (5.2)$$

όπου  $u$  η είσοδος του συστήματος,  $y$  η έξοδος και  $x$  το διάνυσμα κατάστασης. Το παραπάνω σύστημα εισόδου-εξόδου απεικονίζεται διαγραμματικά στο Σχήμα 5.1 [26].



Σχήμα 5.1: Δυναμικό σύστημα εισόδου - εξόδου

Η πολυπλοκότητα αυτού του συστήματος έγκειται στο πλήθος των μεταβλητών κατάστασης, δηλαδή στη διάσταση  $N$  του διανύσματος  $x$ . Συνεπώς, ο στόχος της ROM είναι η μείωση της διάστασης του παραπάνω διανύσματος, με ταυτόχρονη διατήρηση της σχέσης μεταξύ εισόδου και εξόδου του συστήματος. Το νέο δυναμικό σύστημα παίρνει την εξής μορφή [26]:

$$\frac{d\hat{x}}{dt} = \hat{f}(\hat{x}, u) \quad (5.3)$$

$$y = \hat{g}(\hat{x}, u) \quad (5.4)$$

όπου  $\hat{\mathbf{x}}$  η προσέγγιση του  $\mathbf{x}$ , διάστασης κατά πολύ μικρότερης από  $N$ . Επίσης,  $\hat{\mathbf{f}}$  και  $\hat{\mathbf{g}}$  οι προσεγγίσεις των αντίστοιχων συναρτήσεων  $\mathbf{f}$ ,  $\mathbf{g}$ , ενώ όπως παρατηρείται τα  $\mathbf{u}$  και  $\mathbf{y}$  έχουν παραμείνει ίδια. Για την επίτευξη μιας ικανοποιητικής προσέγγισης του αρχικού συστήματος είναι σημαντικό να ικανοποιούνται τα εξής κριτήρια [26]:

- ✓ Μικρό σφάλμα προσέγγισης
- ✓ Διατήρηση βασικών ιδιοτήτων του αρχικού συστήματος
- ✓ Υπολογιστικά αποδοτική διαδικασία μείωσης τάξης

Για την επίτευξη της παραπάνω συνοπτικής διαδικασίας έχει αναπτυχθεί ένα μεγάλο εύρος διαφορετικών μεθόδων και τεχνικών, η συντριπτική πλειονότητα των οποίων βασίζεται στην έννοια της **προβολής**, δηλαδή στη «συρρίκνωση» της λύσης του λεπτομερούς μοντέλου προς τη δημιουργία μιας **βάσης**. Λεπτομέρειες θα αναφερθούν παρακάτω, και αφορούν τη μέθοδο που εφαρμόζεται στην παρούσα εργασία [26].

Τέλος, σημειώνεται ότι στην παρούσα εργασία η είσοδος του προαναφερθέντος γενικού συστήματος  $\mathbf{u}$  είναι η μαζική παροχή του DMEAA στον αντιδραστήρα  $\dot{n}_{DMEAA}$ , ενώ η έξοδος του ταυτίζεται με το διάλυμα κατάστασης, δηλαδή την κατάσταση του αντιδραστήρα, οπότε η εξίσωση (5.2) παίρνει τη μορφή [26]:

$$\mathbf{y} = \mathbf{x} \quad (5.5)$$

### 5.3. Ανάλυση Κυρίων Συνιστωσών

Πρόκειται για μια μέθοδο μείωσης τάξης που αρχικά αναπτύχθηκε στο πλαίσιο της υπολογιστικής ρευστοδυναμικής, αν και πλέον έχει επεκταθεί και σε άλλους κλάδους όπως η ηλεκτρονική, και βρίσκει συχνή εφαρμογή σε CFD προβλήματα. Όπως έχει ήδη αναλυθεί διεξοδικά, τα μοντέλα τέτοιων προβλημάτων αποτελούνται κατά κύριο λόγο από μη γραμμικές ΜΔΕ, οι οποίες διακριτοποιούνται στο χώρο και στο χρόνο. Η επίλυση τέτοιων μοντέλων είναι υπολογιστικά επίπονη διαδικασία, ενώ ακόμα και η μείωση τάξης τους δεν είναι απλή εργασία. Η *Ανάλυση Κυρίων Συνιστωσών* ή *Principal Components Analysis (PCA)* αποτελεί όχι μόνο μια από τις λίγες διαθέσιμες μεθόδους ικανές να απλοποιήσουν μοντέλα μη γραμμικών ΜΔΕ, αλλά θεωρείται και η πιο εξελιγμένη από αυτές [26].

Η PCA, η οποία αλλιώς ονομάζεται και *Ορθή Ορθογώνια Αποσύνθεση (Proper Orthogonal Decomposition - POD)* ή *Αποσύνθεση Karhunen-Loève*, βασίζεται στην κύρια ιδέα ότι η χρονική απόκριση ενός συστήματος σε μια συγκεκριμένη είσοδο εμπεριέχει τη συμπεριφορά και τις βασικές ιδιότητες του εν λόγω συστήματος. Έτσι, με κατάλληλη μαθηματική επεξεργασία της εξόδου μπορεί κανείς να δημιουργήσει ένα μοντέλο μειωμένης

τάξης που θα περιέχει τα παραπάνω, κάτι πολύ σημαντικό για την ακρίβεια του μοντέλου, όπως αναφέρθηκε και στην προηγούμενη ενότητα [26].

Βασικά πλεονεκτήματα της μεθόδου αποτελούν α) Το γεγονός ότι βασίζεται αποκλειστικά σε επεξεργασία δεδομένων και όχι εξισώσεων και β) Η διαδικασία δημιουργίας του μοντέλου αποτελείται από απλές πράξεις μεταξύ πινάκων, παρά το γεγονός ότι εφαρμόζεται σε μη γραμμικά συστήματα. Έτσι, μπορεί να εφαρμοστεί ακόμα και σε περιπτώσεις με μηδενική γνώση των ιδιοτήτων του συστήματος που μοντελοποιείται ή σε περιπτώσεις όπου οι εξισώσεις που περιγράφουν το σύστημα είναι ιδιαίτερα πολύπλοκες. Ωστόσο, το πλεονέκτημα (α) «δρα» πολλές φορές και ως περιορισμός της μεθόδου, καθώς το MMT είναι ικανό να προβλέψει τη συμπεριφορά του συστήματος μόνο εντός της περιοχής λειτουργίας από όπου λήφθηκαν τα δεδομένα, αφού δεν είναι γνωστή η σφαιρική συμπεριφορά του συστήματος [26].

Η μέθοδος βασίζεται στο γεγονός ότι οι μεταβλητές κατάστασης  $x$  μπορούν να προσεγγιστούν από τις  $\hat{x}$  (βλ. 5.2) εκφρασμένες ως το γινόμενο συναρτήσεων βάσης που διατηρούν τη χωρική εξάρτηση της κατάστασης αλλά είναι χρονικά αμετάβλητες και συντελεστών που αντίστοιχα διατηρούν τη χρονική εξάρτηση αλλά όχι τη χωρική, δηλαδή [26], [27], [28], [29]:

$$\hat{x}(\mathbf{r}, t) = \sum_{i=1}^d a_i(t) \varphi_i(\mathbf{r}) \quad (5.6)$$

όπου  $\hat{x}(\mathbf{r}, t)$  μια μεταβλητή κατάσταση του συστήματος στη θέση  $\mathbf{r}$  και χρονική στιγμή  $t$ ,  $a_i(t)$  ο συντελεστής και  $\varphi_i(\mathbf{r})$  οι συναρτήσεις βάσης. Αν ληφθεί υπόψη η χωρική διακριτοποίηση και οι μεταβλητές κατάστασης μετατραπούν στο διάνυσμα κατάστασης (βλ. 5.2), τότε η παραπάνω εξίσωση μετασχηματίζεται στην:

$$\hat{\mathbf{x}}(t) = \sum_{i=1}^d \mathbf{a}_i(t) \boldsymbol{\varphi}_i \quad (5.7)$$

όπου  $\boldsymbol{\varphi}_i$  τα διανύσματα βάσης, τα οποία εμπεριέχουν τη χωρική εξάρτηση του μοντέλου [12], [13].

Η POD, αν και βασίζεται στις δύο παραπάνω εξισώσεις, είναι ικανή από μόνη της να προσδιορίσει μόνο τη βέλτιστη βάση του μειωμένου μοντέλου. Η βέλτιστη αυτή βάση υπολογίζεται με προβολή των διανυσμάτων που περιέχουν τα δεδομένα που χρησιμοποιούνται για την κατασκευή του MMT από το συνολικό χώρο  $V$  διάστασης  $N$  στον υποχώρο  $V_d$  διάστασης  $d$  με  $d \ll N$ , ενώ για να επιτευχθεί ελαχιστοποίηση του σφάλματος προσέγγισης πρέπει η προβολή και επακόλουθα και η βάση, να είναι ορθοκανονικές, υπό την έννοια των ελαχίστων τετραγώνων. Φυσικά, πολύ σημαντικό ρόλο παίζει και η επιλογή των δεδομένων που θα

προβληθούν, αν και αυτή πολύ συχνά βασίζεται σε στρατηγικές διερεύνησης και όχι κάποιον επιστημονικά εμπειριστατωμένο αλγόριθμο. Μια σημαντική παραλλαγή της γενικότερης POD μεθόδου, η οποία σχετίζεται με τον τρόπο οργάνωσης των προβαλλόμενων δεδομένων είναι αυτή των **Στιγμιότυπων**, όπου το σύνολο των δεδομένων είναι διακριτοποιημένο στο χρόνο και αποτελείται από ξεχωριστές καταστάσεις του συστήματος για κάθε χρονική στιγμή, οι οποίες ονομάζονται στιγμιότυπα, σε αντίθεση με την ύπαρξη συνεχόμενης «χρονικής τροχιάς» όπως στη γενική μέθοδο POD [26].

Για τον υπολογισμό των συντελεστών της προσέγγισης, συχνά εφαρμόζεται η μέθοδος *Galerkin*, η οποία επίσης βασίζεται στις εξισώσεις (5.6) και (5.7). Σύμφωνα με τη μέθοδο αυτή, οι μερικές διαφορικές εξισώσεις του αναλυτικού μοντέλου προβάλλονται πάνω στην ορθοκανονική βάση που υπολογίζεται από την POD, επιδιώκοντας και εδώ την ελαχιστοποίηση της διαφοράς τετραγώνων. Η Galerkin, όπως και η POD, αποτελεί μέθοδο προβολής και συνήθως εφαρμόζονται συνδυαστικά για τη μείωση τάξης ενός μοντέλου. Ωστόσο, σε αντίθεση με την POD, η μέθοδος Galerkin βασίζεται σε εξισώσεις και όχι δεδομένα. Για το λόγο αυτόν, στο πλαίσιο της παρούσας εργασίας οι συντελεστές του μοντέλου προσδιορίζονται με χρήση **Τεχνητών Νευρωνικών Δικτύων (ΤΝΔ) ή Artificial Neural Networks (ANN)**, η οποία είναι στατιστική μέθοδος και απαιτεί τη γνώση δεδομένων και όχι εξισώσεων, όπως η POD. Συνεπώς, το ΜΜΤ κατασκευάζεται εξ' ολοκλήρου από αποτελέσματα προσομοιώσεων του αναλυτικού μοντέλου. Περισσότερα για τα ANN θα αναφερθούν στο επόμενο κεφάλαιο, ενώ η Galerkin δεν θα αναλυθεί στην παρούσα εργασία [26], [27].

### 5.3.1. Κατασκευή POD βάσης

Έστω ότι τα δεδομένα που χρησιμοποιούνται για τον υπολογισμό της βάσης οργανώνονται στον πίνακα  $\mathbf{Y} = [\mathbf{y}_1(t) \ \cdots \ \mathbf{y}_m(t)]$ , ο οποίος ανήκει στο διανυσματικό χώρο  $V = \mathbb{R}^{N \times m}$  και αποτελείται από τις επιμέρους  $m$  τροχιές  $\mathbf{y}_i(t) \in \mathbb{R}^N$  με  $i = 1, \dots, m$  και  $t \in [0, T]$ . Οι τροχιές αυτές αποτελούν την απόκριση (έξοδος) του συστήματος σε επιβολές (είσοδος) που του ασκούνται [26].

Στη συνέχεια, πραγματοποιείται η *ανάλυση κυρίων συνιστωσών* του πίνακα  $\mathbf{Y}$ , με σκοπό την εύρεση ενός  $d$ -διάστατου υποχώρου  $V_d \subset V$ , εντός του οποίου θα βρίσκεται η προσέγγιση του παραπάνω πίνακα. Συνεπώς, αναζητείται η ορθογώνια προβολή  $\Pi_d : V \rightarrow V_d$  σταθερής διάστασης  $d$ , για την οποία ελαχιστοποιείται η συνολική διαφορά τετραγώνων [26]:

$$\|\mathbf{Y} - \Pi_d \mathbf{Y}\|^2 = \sum_{i=1}^m \int_0^T \|\mathbf{y}_i(t) - \Pi_d \mathbf{y}_i(t)\|^2 dt \quad (5.8)$$

Η λύση αυτού του προβλήματος επιτυγχάνεται μέσω του πίνακα *συσχέτισης*  $\mathbf{K} \in \mathbb{R}^{N \times N}$  [26]:

$$\mathbf{K} = \sum_{i=1}^m \int_0^T \mathbf{y}_i(t) \mathbf{y}_i(t)^T dt \quad (5.9)$$

όπου  $\mathbf{y}_i(t)^T$  ο ανάστροφος του  $\mathbf{y}_i(t)$  πίνακας. Εξ' ορισμού, ο  $\mathbf{K}$  είναι ένας συμμετρικός, θετικός, ημι-ορισμένος πίνακας με πραγματικές, μη αρνητικές, διατεταγμένες κατά αύξουσα σειρά ιδιοτιμές  $\lambda_1 \geq \dots \geq \lambda_N \geq 0$ , στις οποίες αντιστοιχούν τα ιδιοδιανύσματα  $\mathbf{u}_j$ , τα οποία ορίζονται από την εξής σχέση [26]:

$$\mathbf{K} \mathbf{u}_j = \lambda_j \mathbf{u}_j, \quad j = 1, \dots, N \quad (5.10)$$

Λόγω της δομής του πίνακα συσχέτισης, τα ιδιοδιανύσματα αυτά μπορούν να χρησιμοποιηθούν για την κατασκευή της ορθοκανονικής βάσης της POD. Έτσι, προκύπτει ότι ο βέλτιστος υποχώρος διάστασης  $d$ , ικανός να εκπροσωπήσει ικανοποιητικά το συνολικό πίνακα  $\mathbf{Y}$ , είναι ο  $V_d = \text{span}\{\mathbf{u}_1, \dots, \mathbf{u}_d\}$ , όπου ως span συμβολίζεται το γραμμικό περίβλημα (ή θήκη) των πρώτων  $d$  ιδιοδιανυσμάτων, τα οποία πλέον ονομάζονται *κύρια POD διανύσματα* [26].

Συνεπώς, από την παραπάνω διαδικασία προκύπτει ότι το ελάχιστο σφάλμα ισούται με

$$\min_{V_d} \|\mathbf{Y} - \Pi_d \mathbf{Y}\| = \sum_{j=N-d+1}^N \lambda_j \quad (5.11)$$

δηλαδή το σφάλμα της προσέγγισης ισούται με το άθροισμα των ιδιοτιμών που δεν λήφθηκαν υπόψη κατά τη δημιουργία του υποχώρου και της βάσης. Επιπλέον, ισχύει ότι η βέλτιστη προσέγγιση  $\Pi_d : V \rightarrow V_d$  δίνεται από τον τύπο [26]:

$$\Pi_d = \sum_{j=1}^d \mathbf{u}_j \mathbf{u}_j^T \quad (5.12)$$

Έτσι, αν κάθε διάνυσμα  $\mathbf{y}_i(t)$  του πίνακα  $\mathbf{Y}$  γραφεί στη μορφή:

$$\mathbf{y}_i(t) = \sum_{j=1}^N \mathbf{y}_{ij}(t) \mathbf{u}_j \quad (5.13)$$

όπου:

$$\mathbf{y}_{ij}(t) = \mathbf{y}_i(t)^T \mathbf{u}_j \quad (5.14)$$

τότε η προβολή  $\Pi_d$  πάνω στα διανύσματα  $\mathbf{y}_i(t)$  θα ισούται με:

$$\Pi_d \mathbf{y}_i(t) = \sum_{j=1}^d \mathbf{u}_j \mathbf{u}_j^T \sum_{j=1}^N \mathbf{y}_{ij}(t) \mathbf{u}_j \quad (5.15)$$

που απλοποιείται στην εξής μορφή, η οποία αποτελεί και την τελική μορφή του μοντέλου μειωμένης τάξης  $\widehat{\mathbf{y}}_i(t)$  [26]:

$$\widehat{\mathbf{y}}_i(t) = \Pi_d \mathbf{y}_i(t) = \sum_{j=1}^d \mathbf{y}_{ij}(t) \mathbf{u}_j \quad (5.16)$$

### 5.3.2. Μέθοδος στιγμιοτύπων

Σε πολλές εφαρμογές της POD, η διάσταση  $N$  των διανυσμάτων τροχιάς μπορεί να είναι ένας πολύ μεγάλος αριθμός ( $10^6 - 10^{10}$ ). Σε αυτή την κατηγορία εμπίπτουν και τα προβλήματα ρευστοδυναμικής, όπου το πλήθος των μεταβλητών κατάστασης είναι συνήθως τεράστιο λόγω της χωρικής διακριτοποίησης των ΜΔΕ διατήρησης (βλ. Εν. 2.2). Όπως περιγράφηκε στην παραπάνω ενότητα, ο υπολογισμός των κυρίων POD διανυσμάτων, δηλαδή πρακτικά της POD βάσης, απαιτεί τον προσδιορισμό των ιδιοτιμών και ιδιοδιανυσμάτων του πίνακα συσχέτισης  $\mathbf{K} \in \mathbb{R}^{N \times N}$ , ένα πρόβλημα τουλάχιστον επίπονο, υπό την υπολογιστική έννοια. Πολλές φορές μάλιστα, αυτό θα ήταν εντελώς αδύνατο, λόγω της τεράστιας απαίτησης σε υπολογιστική μνήμη που απαιτεί ένα πρόβλημα που περιλαμβάνει έναν πίνακα διαστάσεων  $N \times N$ , όπου  $N > 10^6$ . Λύση στο πρόβλημα αυτό έδωσε ο L. Sirovich, ο οποίος πρότεινε την εναλλακτική μέθοδο των στιγμιοτύπων, η οποία είναι μια παραλλαγή της γενικότερης POD ως προς τον τρόπο οργάνωσης του πίνακα  $\mathbf{Y}$  και ως προς τον πίνακα συσχέτισης που χρησιμοποιείται για να προσδιοριστεί η βέλτιστη βάση. Στην παρούσα εργασία εφαρμόζεται αυτή η μέθοδος [26].

Πιο συγκεκριμένα, στη μέθοδο αυτή οι τροχιές  $\mathbf{y}_i(t)$  έχουν διακριτοποιηθεί στο χρόνο, οπότε ο πίνακας  $\mathbf{Y}$  αποτελείται από μεμονωμένα στιγμιότυπα του συστήματος αντί για συνεχείς τροχιές, όπως στη γενική POD. Σημειώνεται, ότι ο όρος στιγμιότυπο αναφέρεται στο διάνυσμα κατάστασης  $\mathbf{x}(t_j) \in \mathbb{R}^N$  του συστήματος τη χρονική στιγμή  $t_j$ . Συνεπώς, κάθε τροχιά είναι διακριτοποιημένη ως  $\mathbf{Y}_i(t) = [\mathbf{x}(t_0) \mathbf{x}(t_1) \dots \mathbf{x}(t_{m_i-1})] \in \mathbb{R}^{N \times m_i}$ , όπου  $m_i$  το πλήθος των χρονικών βημάτων της διακριτοποίησης και επακόλουθα το πλήθος των στιγμιοτύπων της τροχιάς  $\mathbf{Y}_i(t)$ . Αντιστοίχως, ο συνολικός πίνακας των δεδομένων παίρνει τη μορφή  $\mathbf{Y} = [\mathbf{Y}_1(t) \dots \mathbf{Y}_{N_{traj}}(t)] \in \mathbb{R}^{N \times m}$ , όπου  $N_{traj}$  το πλήθος των τροχιών και  $m$  ο αριθμός όλων των στιγμιοτύπων του πίνακα, ο οποίος υπολογίζεται από την εξίσωση [12], [13], [26]:

$$m = \sum_{i=1}^{N_{traj}} m_i \quad (5.17)$$

Παρατηρείται ότι κάθε στήλη του πίνακα  $\mathbf{Y}$  αποτελεί και ένα στιγμιότυπο του συστήματος.

Σύμφωνα με τα παραπάνω, ο πίνακας συσχέτισης που ορίστηκε στην Εξ. (5.9) λαμβάνει τη μορφή [12], [13], [26]:

$$\mathbf{K} = \mathbf{Y}\mathbf{Y}^T \in \mathbb{R}^{N \times N} \quad (5.18)$$

Εδώ, όμως, εμφανίζεται και η δεύτερη διαφοροποίηση της μεθόδου στιγμιοτύπων από τη γενική POD, καθώς αντί για τον πίνακα  $\mathbf{K}$  χρησιμοποιείται ο πίνακας συσχέτισης  $\mathbf{K}'$ , ο οποίος ορίζεται ως [12], [13], [26]:

$$\mathbf{K}' = \mathbf{Y}^T \mathbf{Y} \in \mathbb{R}^{m \times m} \quad (5.19)$$

και του οποίου οι ιδιοτιμές (όχι όμως και τα ιδιοδιανύσματα) ταυτίζονται με αυτές του  $\mathbf{K}$ . Στη συντριπτική πλειονότητα των φυσικών προβλημάτων, θα ισχύει ότι  $m \ll N$ , οπότε ο χειρισμός του παραπάνω πίνακα είναι πολύ ευκολότερος από ότι του  $\mathbf{K}$ , του οποίου οι ιδιοτιμές είναι πολλές φορές αδύνατο να υπολογισθούν λόγω περιορισμών σε υπολογιστική μνήμη [12], [13].

Στη συνέχεια, αφού πρώτα προσδιορισθούν τα ιδιοδιανύσματα  $\mathbf{v}_j$  του πίνακα  $\mathbf{K}'$ , τα οποία ορίζονται αντιστοίχως με αυτά του  $\mathbf{K}$  (βλ. Εξ. (5.10)), ακολουθεί μέσω αυτών ο υπολογισμός των ιδιοδιανυσμάτων  $\mathbf{u}_j$  του πίνακα  $\mathbf{K}$ , από τα οποία, όπως αναφέρθηκε και στην προηγούμενη ενότητα, επιλέγονται τα κύρια διανύσματα POD που σχηματίζουν τη βάση. Η μετάβαση από τα  $\mathbf{v}_j$  στα  $\mathbf{u}_j$  πραγματοποιείται μέσω της εξίσωσης [12], [13], [26]:

$$\mathbf{u}_j = \frac{1}{\sqrt{\lambda_j}} \mathbf{Y} \mathbf{v}_j, \quad j = 1, \dots, m \quad (5.20)$$

Συνεπώς, κατά αντιστοιχία με τις Εξ. (5.13) και (5.14), μπορούν να γραφούν οι εξισώσεις προσέγγισης κάθε στιγμιοτύπου και του αντίστοιχου συντελεστή του ως εξής [12], [13]:

$$\hat{\mathbf{x}}_i = \sum_{j=1}^d a_{ij} \mathbf{u}_j \quad (5.21)$$

$$a_{ij} = \mathbf{x}_i^T \mathbf{u}_j \quad (5.22)$$

Ο πίνακας που περιέχει τα  $d$  πρώτα ιδιοδιανύσματα, δηλαδή τα κύρια POD διανύσματα αποτελεί και την ορθοκανονική POD βάση  $\mathbf{Z}$ , δηλαδή [12], [13]:

$$\mathbf{Z} = [\mathbf{u}_1 \quad \dots \quad \mathbf{u}_d] \in \mathbb{R}^{N \times d} \quad (5.23)$$

Επίσης, ορίζεται και το διάνυσμα που περιέχει όλους τους συντελεστές του  $i$  στιγμιοτύπου [12], [13]:

$$\mathbf{a}_i = [a_{i1} \quad \dots \quad a_{id}] \in \mathbb{R}^d \quad (5.24)$$

οπότε πλέον οι σχέσεις (5.21) και (5.22) γράφονται σε μορφή πινάκων ως εξής [12], [13]:

$$\hat{\mathbf{x}}_i = \mathbf{Z} \mathbf{a}_i \quad (5.25)$$

$$\mathbf{a}_i = \mathbf{Z}^T \mathbf{x}_i \quad (5.26)$$

Τέλος, οι δύο τελευταίες εξισώσεις γενικεύονται για ολόκληρες επιβολές ή και για ολόκληρο τον πίνακα δεδομένων  $\mathbf{Y}$ , όπου στην τελευταία περίπτωση παίρνουν τη μορφή [12], [13]:

$$\hat{\mathbf{Y}} = \mathbf{Z}\mathbf{A} \quad (5.27)$$

$$\mathbf{A} = \mathbf{Z}^T \mathbf{Y} \quad (5.28)$$

όπου  $\mathbf{A}$  ο συνολικός πίνακας όλων των διανυσμάτων  $\mathbf{a}_i$ , δηλαδή:

$$\mathbf{A} = [\mathbf{a}_1 \quad \dots \quad \mathbf{a}_m] \in \mathbb{R}^{d \times m} \quad (5.29)$$

Σημειώνεται, ότι για τον ακριβή προσδιορισμό μιας κατάστασης ή μιας τροχιάς του συστήματος με το παραπάνω σύνολο εξισώσεων, απαιτείται εκτός από τη βάση και η γνώση των συντελεστών. Όμως, από τις εξισώσεις (5.22), (5.26) ή (5.28) παρατηρείται ότι ο υπολογισμός τους προϋποθέτει την εκ των προτέρων γνώση της κατάστασης/τροχιάς που επιχειρείται να προσδιοριστεί, το οποίο προφανώς είναι πρακτικά ανώφελο. Για αυτό το λόγο, αναφέρθηκε και στην Εν. 5.3 ότι η POD από μόνη της έχει τη δυνατότητα να προσδιορίσει μόνο τη βάση και όχι και τους συντελεστές του συνολικού μοντέλου μειωμένης τάξης. Βέβαια, επισημαίνεται ότι οι Εξ. (5.22), (5.26) και (5.28) δεν είναι παντελώς περιττές, καθώς χρησιμεύουν κατά τον προσδιορισμό της ακρίβειας που προκύπτει από τη χρήση της βάσης για την προσέγγιση του λεπτομερούς μοντέλου (βλ. Εν. 5.3.5) [12], [13]:

### 5.3.3. Επιλογή διάστασης βάσης

Η επιλογή της διάστασης της βάσης  $d$  γίνεται πάντα με γνώμονα τους δύο παρακάτω αντικρουόμενους στόχους [12], [26]:

- ✓ Η προσέγγιση να είναι όσο το δυνατόν καλύτερη, δηλαδή το σφάλμα (ή αντίστοιχα η διαφορά τετραγώνων) να ελαχιστοποιείται.
- ✓ Η διάσταση να είναι όσο το δυνατόν μικρότερη, έτσι ώστε να επιτυγχάνεται η μέγιστη δυνατή μείωση των υπολογιστικών απαιτήσεων επίλυσης του μοντέλου.

Για την ταυτόχρονη ικανοποίηση όσο το δυνατόν περισσότερο και των δύο αυτών κριτηρίων, η επιλογή βασίζεται στις διατεταγμένες, κατά αύξουσα σειρά, ιδιοτιμές του πίνακα  $\mathbf{K}$  (και  $\mathbf{K}'$ ). Οι ιδιοτιμές του πίνακα συσχέτισης ενός δυναμικού συστήματος αντιπροσωπεύουν χαρακτηριστικά του συστήματος αυτού, με τις μεγάλες ιδιοτιμές να αντιστοιχούν σε κύριες ιδιότητες της συμπεριφοράς του, ενώ οι μικρές ιδιοτιμές εκπροσωπούν μονάχα κάποιες «εκκεντρικότητες» της δυναμικής συμπεριφοράς [12], [13], [26].

Πιο συγκεκριμένα, σύμφωνα με τη γενική μέθοδο POD και για την ακρίβεια την Εξ. (5.11), το ελάχιστο σφάλμα διαφοράς τετραγώνων ισούται με το άθροισμα των ιδιοτιμών που δεν χρησιμοποιούνται κατά την κατασκευή της βάσης. Συνεπώς, το άθροισμα των ιδιοτιμών που χρησιμοποιούνται εκπροσωπεί την ποσότητα της πληροφορίας που διατηρείται στην POD βάση από το λεπτομερές μοντέλο, ή για την ακρίβεια από τα δεδομένα του λεπτομερούς μοντέλου που χρησιμοποιήθηκαν για τη δημιουργία της. Με βάση την παραπάνω διαπίστωση, μπορεί να οριστεί το **σχετικό πληροφοριακό περιεχόμενο** της βάσης ως εξής [12], [13], [26]:

$$I(d) = \frac{\sum_{i=1}^d \lambda_j}{\sum_{i=1}^N \lambda_j} \quad (5.30)$$

όπου ο αριθμητής εκφράζει την πληροφορία που διατηρείται στη βάση, ενώ ο παρανομαστής το σύνολο της πληροφορίας του συνολικού πίνακα  $\mathbf{Y}$ . Ο επιθυμητός σχεδιαστικός στόχος επιλογής του  $d$  είναι το  $I(d)$  να τείνει στη μονάδα. Βέβαια, αυτό όπως καταλαβαίνει κανείς έρχεται σε άμεση σύγκρουση με το δεύτερο προαναφερθέν κριτήριο, οπότε συνήθως μια μέση λύση είναι και η βέλτιστη. Έτσι, μια συχνή και εύκολα εφαρμοζόμενη τακτική που ακολουθείται είναι ο σχεδιαστής να επιλέγει εκ των προτέρων το απαραίτητο ποσοστό  $p\%$  του πληροφοριακού περιεχομένου που κρίνει ως ικανοποιητικό για τη δημιουργία της βάσης, όπου τότε [12], [13], [26]:

$$I(d) = \min\{d \in N | I(d) \geq p\} \quad (5.31)$$

Τέλος, αναφέρεται ότι η παραπάνω ποσότητα αρχικά αυξάνεται απότομα, καθώς οι πρώτες ιδιοτιμές είναι πολύ μεγάλες, ενώ στη συνέχεια υφίσταται πολύ μικρές αυξήσεις λόγω της απότομης μείωσης του μεγέθους των ιδιοτιμών. Αυτός είναι και ένας κύριος λόγος που η μέθοδος POD (και επακόλουθα η μέθοδος στιγμιοτύπων) θεωρείται μια τόσο αποδοτική μέθοδος μείωσης τάξης, αφού ακόμα και με πολύ μικρό αριθμό ιδιοδιανυσμάτων επιτυγχάνεται η διατήρηση μεγάλου ποσοστού πληροφοριακού περιεχομένου [13].

#### 5.3.4. Κανονικοποίηση δεδομένων

Σε περιπτώσεις όπου η κατάσταση του συστήματος αποτελείται από σύνολα διαφορετικών μεταξύ τους μεταβλητών, οι τιμές των οποίων ίσως διαφέρουν κατά κάποιες τάξεις μεγέθους, την εφαρμογή της μεθόδου POD είθισται να προηγείται η *κανονικοποίηση* του πίνακα  $\mathbf{Y}$ , έτσι ώστε να εξαλείφονται οι μεγάλες αυτές διαφορές και να επιτυγχάνεται ομοιομορφία εντός του πίνακα. Η επιλογή αυτή ακολουθείται και στην παρούσα εργασία, καθώς η κατάσταση του αντιδραστήρα αποτελείται από πεδία ταχυτήτων, πίεσης και θερμοκρασίας, μεταβλητές που μπορεί να διαφέρουν ακόμα και κατά 8 ολόκληρες τάξεις

μεγέθους. Η μαθηματική διαδικασία κανονικοποίησης που ακολουθείται έχει ως εξής [12], [13]:

- I. Αρχικά, υπολογίζεται η μέση τιμή κάθε γραμμής του  $\mathbf{Y}$ , δηλαδή η μέση τιμή της εκάστοτε μεταβλητής στην εκάστοτε θέση για όλα τα στιγμιότυπα:

$$\bar{x}_i = \frac{1}{m} \sum_{j=1}^m (\mathbf{Y})_{ij}, i = 1, \dots, N \quad (5.32)$$

- II. Στη συνέχεια, υπολογίζεται η τυπική απόκλιση κάθε γραμμής του πίνακα:

$$s_i = \left( \frac{1}{m-1} \sum_{j=1}^m ((\mathbf{Y})_{ij} - \bar{x}_i)^2 \right)^{0.5} \quad i = 1, \dots, N \quad (5.33)$$

- III. Τέλος, από κάθε στοιχείο του πίνακα αφαιρείται η μέση τιμή της γραμμής που αυτό ανήκει και το αποτέλεσμα διαιρείται με την αντίστοιχη τυπική απόκλιση:

$$(\mathbf{Y}_N)_{ij} = \begin{cases} \frac{(\mathbf{Y})_{ij} - \bar{x}_i}{s_i}, & s_i \neq 0 \\ 0, & s_i = 0 \end{cases} \quad i = 1, \dots, N, j = 1, \dots, m \quad (5.34)$$

όπου  $(\mathbf{Y}_N)_{ij}$  τα στοιχεία του κανονικοποιημένου πίνακα δεδομένων  $\mathbf{Y}_N$ .

Συνεπώς, ο προσδιορισμός της βέλτιστης βάσης, σύμφωνα με όσα αναφέρθηκαν στις προηγούμενες ενότητες, πραγματοποιείται στον πίνακα  $\mathbf{Y}_N$  και όχι  $\mathbf{Y}$ . Τότε, όμως, απαιτείται και η αποκανονικοποίηση της βάσης POD, έτσι ώστε αυτή να αντιστοιχεί σε καταστάσεις και τροχιές του πραγματικού συστήματος, όχι του κανονικοποιημένου. Για την αποκανονικοποίηση αρκεί απλά να ακολουθηθεί η αντίστροφη διαδικασία από αυτή που περιγράφηκε με τα παραπάνω τρία βήματα [12].

### 5.3.5. Σφάλματα μεθόδου

Η αξιολόγηση της ακρίβειας της μεθόδου πραγματοποιείται με προσδιορισμό του σχετικού σφάλματος κάθε στιγμιότυπου κατά τη δυναμική προσομοίωση του μοντέλου μειωμένης τάξης που προκύπτει από την προσδιορισμένη βάση. Υπενθυμίζεται, ότι αν και η POD είναι ικανή να προσδιορίζει μόνο τη βάση και όχι συντελεστές για άγνωστες καταστάσεις/τροχιές, υπάρχει η δυνατότητα υπολογισμού των συντελεστών για γνωστή τροχιά, η οποία δυνατότητα αξιοποιείται για τον υπολογισμό των σφαλμάτων που συνοδεύουν την προσδιορισμένη βάση (βλ. Εν. 5.3.2).

Σε περίπτωση που υπολογίζεται μια μόνιμη κατάσταση του αντιδραστήρα (δηλαδή για  $t \rightarrow \infty$ ), τότε το σχετικό σφάλμα της προσέγγισης υπολογίζεται από τον τύπο [12], [13]:

$$\mathbf{Error}(x(t)) = \frac{\|\hat{x}(t) - x(t)\|}{\|x(t)\|} \quad (5.35)$$

όπου  $x(t)$  το διάνυσμα κατάστασης και  $\hat{x}(t)$  η προσέγγιση του που υπολογίζεται από το ΜΜΤ.

Σε περίπτωση υπολογισμού δυναμικής απόκρισης, δηλαδή ολόκληρης τροχιάς, του συστήματος, τότε παρακολουθείται η χρονική εξέλιξη του σχετικού σφάλματος συναρτήσει του χρόνου, με το σχετικό σφάλμα να ορίζεται πάλι από την παραπάνω εξίσωση, μόνο που πλέον  $x(t)$  και  $\hat{x}(t)$  αντιστοιχούν σε στιγμιότυπα και τις προσεγγίσεις τους, αντίστοιχα, και όχι σε μόνιμες καταστάσεις. Επιπλέον, υπολογίζεται και το μέσο τετραγωνικό σχετικό σφάλμα ως [12], [13]:

$$\mathbf{avg\ error} = \left( \frac{1}{m} \sum_{j=1}^m \mathbf{Error}^2(x(t_j)) \right)^{0.5} \quad (5.36)$$

καθώς και το μέγιστο σχετικό σφάλμα:

$$\mathbf{max\ error} = \max(\mathbf{Error}(x(t_j))) \quad (5.37)$$

με σκοπό την ολοκληρωμένη στατιστική μελέτη της ακρίβειας της μεθόδου [12], [13].



## 6. Υπολογισμός συντελεστών μείωσης τάξης μέσω Τεχνητών Νευρωνικών Δικτύων

### 6.1. Εισαγωγή

Με βάση όσα αναφέρθηκαν στο προηγούμενο κεφάλαιο, το διάνυσμα κατάστασης ενός δυναμικού συστήματος μπορεί να προσεγγιστεί από το γραμμικό συνδυασμό διανυσμάτων βάσης που περιέχουν τη χωρική εξάρτηση, με τους συντελεστές τους να περιέχουν τη χρονική εξάρτηση της κατάστασης (βλ. Εξ. (5.7)). Τα διανύσματα της βάσης, τα οποία αλλιώς ονομάζονται κύρια POD διανύσματα, προσδιορίζονται σύμφωνα με την Ορθή Ορθογώνια Αποσύνθεση ενός πίνακα δεδομένων του συστήματος, ο οποίος κατά τη γενικότητα μπορεί να προκύψει είτε από πειράματα, είτε από υπολογιστικές προσομοιώσεις αναλυτικού μοντέλου του συστήματος. Η μέθοδος αυτή απαιτεί μόνο τη γνώση δεδομένων ικανοποιητικής ποσότητας και ποιότητας και όχι των φαινομένων που διέπουν το σύστημα και των αντίστοιχων εξισώσεων τους [26], [27], [28], [29].

Από την άλλη, οι συντελεστές συνήθως υπολογίζονται μέσω προβολής Galerkin των βασικών εξισώσεων του λεπτομερούς μοντέλου πάνω στην POD βάση. Αν και οι δύο αυτές τεχνικές λειτουργούν πολύ αποτελεσματικά κατά το συνδυασμό τους, καθώς και οι δύο αποτελούν μεθόδους προβολής και πρακτικά αλληλοσυμπληρώνονται, η Galerkin προϋποθέτει τη γνώση των προαναφερθέντων εξισώσεων. Σε περίπτωση που οι εξισώσεις αυτές είναι ιδιαίτερα πολύπλοκες, αβέβαιες ή ακόμα και άγνωστες, η εφαρμογή της είναι από δύσκολη έως και αδύνατη. Συνεπώς, στο πλαίσιο της παρούσας εργασίας προτείνεται μια άλλη μέθοδος για τον υπολογισμό των χρονικών συντελεστών, η οποία είναι ικανή να τους προσδιορίσει μόνο με γνώση δεδομένων και όχι εξισώσεων. Η μέθοδος αυτή είναι τα *Τεχνητά Νευρωνικά Δίκτυα (ANN)*, όπου ο συνδυασμός της με την POD αποδίδει μια συνολική προσέγγιση μείωσης τάξης δυναμικών μοντέλων βασιζόμενη αποκλειστικά σε δεδομένα εισόδου-εξόδου του συστήματος [26], [27].

Αν και οι ηλεκτρονικοί υπολογιστές έχουν φτάσει εδώ και πολλά χρόνια σε ένα επίπεδο όπου είναι ικανοί να επιτελέσουν μαθηματικές λειτουργίες πολύ ταχύτερα και αποδοτικότερα από τον ανθρώπινο εγκέφαλο, δεν είναι παρά μόνο λίγα χρόνια που έχουν καταφέρει να επιλύσουν, έστω και απλοϊκά, προβλήματα αντίληψης (π.χ. διάκριση μεταξύ γάτας/σκύλου). Η αντιμετώπιση τέτοιων προβλημάτων από υπολογιστικά προγράμματα οδηγεί στην ανάπτυξη μιας νέας επιστήμης, αυτής της *Τεχνητής Νοημοσύνης (AI)*, όπου υπολογιστικά συστήματα είναι ικανά να διεκπεραιώνουν εργασίες για τις οποίες δεν προγραμματίζονται απευθείας από το χρήστη, αλλά αντιθέτως εκπαιδεύονται μέσω «χειροπιαστών» παραδειγμάτων. Μάλιστα,

η διαδικασία εκπαίδευσης αποτελεί από μόνη της ολόκληρο επιστημονικό τομέα, ο οποίος ονομάζεται *Μηχανική Μάθηση* και βασίζεται στην προαναφερθείσα αρχή [12], [30].

Τα ANN αποτελούν εργαλεία που συναντώνται τόσο σε τομείς όπως η Τεχνητή Νοημοσύνη, η Μηχανική Μάθηση αλλά και η Εξόρυξη Δεδομένων, όπου λειτουργούν συνδυαστικά με άλλες τεχνικές, όσο και σε πιο παραδοσιακούς τομείς όπως η Μηχανική ή τα Οικονομικά, όπου δρουν, κατά κανόνα, μόνα τους με σκοπό την επίλυση δύσκολων προβλημάτων με αποδοτικό τρόπο. Στην πράξη, πρόκειται για υπολογιστικούς αλγορίθμους, οι οποίοι αποτελούνται από πολλά στοιχεία που λειτουργούν παράλληλα και βασίζονται κατά μεγάλο ποσοστό σε αρχές της Στατιστικής. Η λειτουργία τους προσομοιάζει αυτή του ανθρώπινου νευρικού συστήματος, το οποίο είναι ικανό να επεξεργάζεται με ιδιαίτερη ευκολία οποιοδήποτε εξωτερικό ερέθισμα και να χρησιμοποιεί την πληροφορία του για να πραγματοποιεί λογικές συνδέσεις και να βγάζει συμπεράσματα στο μέλλον. Συνεπώς, τα ANN επιχειρούν να αξιοποιήσουν τη μαθηματική μοντελοποίηση των βιολογικών νευρωνικών δικτύων (*BNN*) με αποτέλεσμα την επίτευξη παρόμοιων λειτουργιών [30], [31].

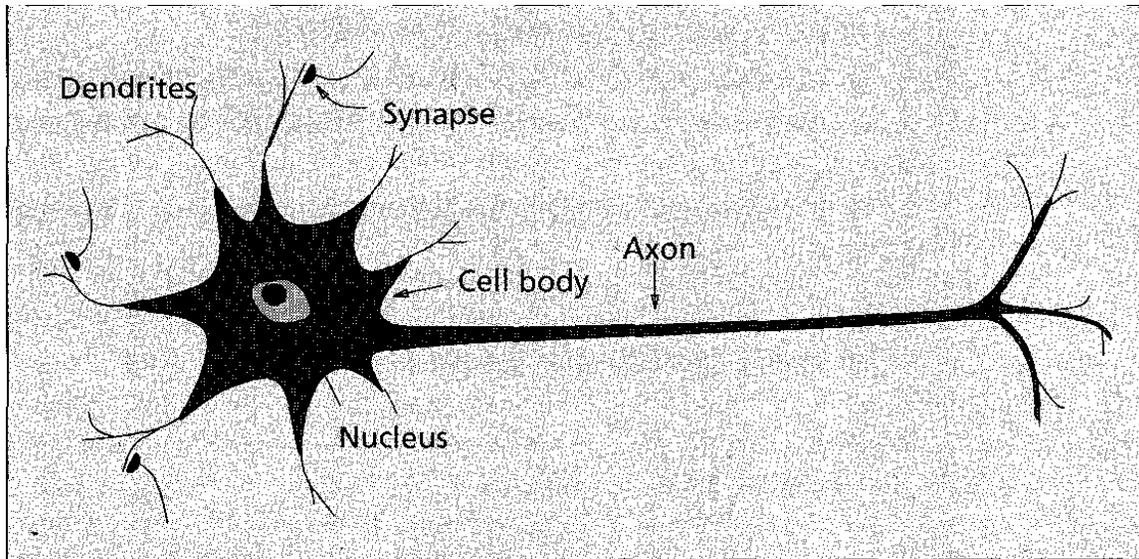
Σημαντικές εφαρμογές των ANN έως σήμερα αποτελούν οι εξής [30]:

- Προσέγγιση συνάρτησης – Προσδιορισμός σχέσης εισόδου-εξόδου
- Αναγνώριση προτύπων
- Ταξινόμηση δεδομένων
- Χρονική πρόβλεψη δεδομένων
- Βελτιστοποίηση και ρύθμιση συστημάτων/διεργασιών

Τέλος, υπενθυμίζεται το γεγονός ότι τα ANN απαιτούν για την εκπαίδευση τους και κατά συνέπεια τη συνολική τους λειτουργία μόνο την ύπαρξη δεδομένων από το μελετώμενο σύστημα και όχι περαιτέρω γνώση αυτού.

## 6.2. Βιολογικά νευρωνικά δίκτυα

Ο βιολογικός νευρώνας είναι ένα εξειδικευμένο κύτταρο που είναι υπεύθυνο για τη μεταφορά και επεξεργασία της πληροφορίας στο σώμα όλων των ζώων και -κατά μεγάλο ποσοστό- τα ξεχωρίζει από τις υπόλοιπες μορφές ζωής. Ένα τεράστιο πλήθος τέτοιων κυττάρων διασυνδεδεμένων μεταξύ τους, σχηματίζει το νευρικό σύστημα των ζώων, το οποίο προσδίδει σε αυτά τις γνωστικές λειτουργίες και ικανότητες που, όπως προαναφέρθηκε, τα διακρίνουν σε ανώτατες μορφές ζωής. Στο κέντρο αυτού του συστήματος βρίσκεται ο εγκέφαλος, ο φλοιός του οποίου αποτελείται από περίπου  $10^{11}$  νευρώνες και «ελέγχει» το συνολικό σύστημα. Στο Σχήμα 6.1 παρουσιάζεται σχηματικά ένας τυπικός νευρώνας [12], [13], [30].



Σχήμα 6.1: Βιολογικός νευρώνας

Ένας νευρώνας αποτελείται από τα εξής τμήματα:

- **Κυτταρικό σώμα:** Αποτελεί το κύριο μέρος του νευρώνα και περιέχει όλα τα τυπικά οργανίδια που περιέχουν και τα υπόλοιπα κύτταρα του οργανισμού, όπως το γενετικό υλικό. Σε αυτό καταλήγουν όλα τα ερεθίσματα, είτε τα εξωτερικά από κάποιο αισθητήριο όργανο, είτε τα εσωτερικά από άλλους νευρώνες, όπου αθροίζονται, δημιουργώντας έτσι το τελικό σήμα που δέχεται ο νευρώνας. Το μέγεθος αυτού του σήματος καθορίζει το αν θα ενεργοποιηθεί ο συγκεκριμένος νευρώνας, καθώς όταν η τιμή του ξεπεράσει ένα «κατώφλι», η τιμή του οποίου διαφοροποιείται από νευρώνα σε νευρώνα, τότε ο νευρώνας «πυροδοτείται». Αλλιώς, παραμένει αδρανής εξασφαλίζοντας ότι εντός του νευρωνικού συστήματος διαδίδονται μόνο πραγματικές πληροφορίες και όχι λανθασμένα σήματα που δημιουργήθηκαν λόγω τυχαίων διακυμάνσεων του κυτταρικού δυναμικού [12], [13], [30].
- **Άξονας και δενδρίτες:** Αποτελούν λεπτές διακλαδιζόμενες επεκτάσεις του σώματος και είναι υπεύθυνα για τη διάδοση των σημάτων προς και από αυτό. Πιο συγκεκριμένα, ο άξονας λειτουργεί ως ο *πομπός* του νευρώνα και κατά συνέπεια εκπέμπει σήμα σε περίπτωση που αυτός ενεργοποιηθεί, ενώ οι δενδρίτες λειτουργούν ως οι *δέκτες* του νευρώνα, από τους οποίους το σώμα συλλέγει όλα τα εξωτερικά και εσωτερικά σήματα. Και τα δύο μέρη διακλαδίζονται σε μεγάλο βαθμό, σχηματίζοντας τα λεγόμενα αξονικά και δενδριτικά δένδρα, επιτρέποντας έτσι τη μεταφορά πληροφορίας μεταξύ ενός τεράστιου πλήθους νευρώνων, ταυτόχρονα [12], [13], [30].
- **Συνάψεις:** Αποτελούν τις μονάδες διασύνδεσης μεταξύ δύο νευρώνων, και κατά συνέπεια βρίσκονται ανάμεσα στην απόληξη ενός άξονα του πρώτου και την αρχή του

δενδρίτη του επόμενου νευρώνα. Όταν ο παλμός φτάσει τη σύναψη ελευθερώνονται συγκεκριμένες χημικές ενώσεις, οι *νευροδιαβιβαστές*, οι οποίες με τη σειρά τους ενισχύουν ή παρεμποδίζουν, ανάλογα με το είδος της εκάστοτε σύναψης, την περαιτέρω διάδοση ηλεκτρικού παλμού προς το σώμα του νευρώνα – παραλήπτη. Η τιμή του μεγέθους του εισερχόμενου σήματος, η οποία είναι ικανή να συνεχίσει τη διάδοση του προς το σώμα, όχι μόνο διαφέρει από σύναψη σε σύναψη αλλά είναι μεταβαλλόμενη και για δεδομένη σύναψη, με αυτή να προσαρμόζεται από τα διαδιδόμενα σήματα. Συνεπώς, οι συνάψεις «μαθαίνουν» από τις δραστηριότητες που συμμετέχουν, διατηρώντας έτσι ένα είδος μνήμης, το οποίο είναι υπεύθυνο και για τη μνήμη του συνολικού ζωικού οργανισμού. Η προαναφερθείσα τιμή ονομάζεται *κατώφλι* του νευρώνα [12], [13], [30].

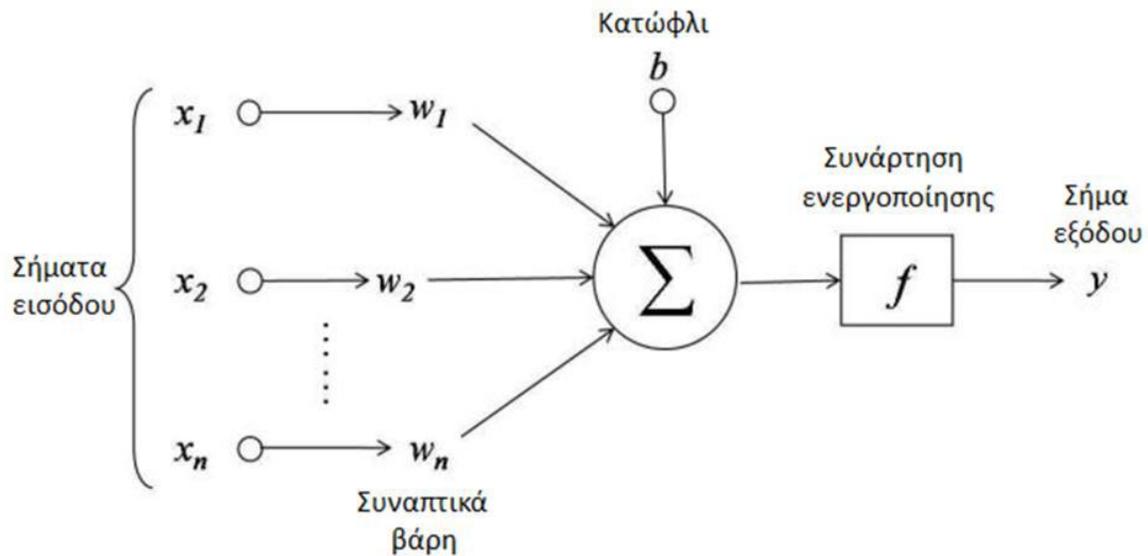
Οι νευρώνες, όσο ικανοί και να είναι από μόνοι τους, δεν θα ήταν ικανοί να επεξεργασθούν μεγάλες ποσότητες πληροφορίας αρκετά γρήγορα αν δούλευαν ο καθένας ανεξάρτητα. Ενώ τα συνηθισμένα προβλήματα αντίληψης (όπως η αναγνώριση ενός προσώπου) λαμβάνουν χώρα εντός λίγων εκατοντάδων χιλιοστών του δευτερολέπτου (ms), η ταχύτητα λειτουργίας κάθε νευρώνα δεν ξεπερνά το μονοψήφιο αριθμό ms. Συνεπώς, η επεξεργασία όλων των εισερχόμενων ερεθισμάτων, καθώς και η απόκριση σε αυτά θα έπρεπε να πραγματοποιηθεί σε, το πολύ, 100 διαδοχικά στάδια. Όμως, στην πραγματικότητα η επεξεργασία συμβαίνει παράλληλα και όχι σειριακά, με αποτέλεσμα πολλοί νευρώνες να πραγματοποιούν ταυτόχρονα τη δικιά τους εργασία, η οποία φυσικά δεν πρέπει να ξεπερνάει τα 100 διαδοχικά στάδια. Επιπλέον, λόγω της υψηλής απαιτούμενης ταχύτητας, προκύπτει ότι το μεγαλύτερο ποσοστό της πληροφορίας δεν διαδίδεται απευθείας και συνεχώς μεταξύ των διαφορετικών νευρώνων, αλλά αντιθέτως αποθηκεύεται και διανέμεται στις συνάψεις, δηλαδή τις διασυνδέσεις ανάμεσα σε νευρώνες. Όπως προαναφέρθηκε, η ιδιότητα αυτή είναι που καθιστά το νευρωνικό σύστημα των ζώων ικανό να διατηρεί μνήμη και να μαθαίνει από προηγούμενες εμπειρίες, την οποία γνώση εφαρμόζει κατά την επίλυση μετέπειτα παρόμοιων προβλημάτων [30].

Τέλος, αναφέρεται ότι το συνολικό σύστημα διαχωρίζεται σε επιμέρους νευρωνικά δίκτυα, τα οποία αποτελούνται από μεγάλο αριθμό νευρώνων οι οποίοι διεκπεραιώνουν ίδιου τύπου διεργασίες. Επίσης, επισημάνεται ότι αν και τα ANN έχουν αναπτυχθεί σύμφωνα με το παραπάνω πρότυπο, δεν μπορούν σε καμία περίπτωση ούτε καν να πλησιάσουν το επίπεδο λειτουργίας των βιολογικών δικτύων, καθώς κάθε νευρώνας αυτών συνδέεται ταυτόχρονα με περίπου  $10^3 - 10^4$  άλλους νευρώνες, αριθμός που δεν νοείται σε ένα τεχνητό δίκτυο [12], [30].

## 6.3. Τεχνητός νευρώνας

### 6.3.1. Αρχή λειτουργίας - μαθηματική μοντελοποίηση

Κρίσιμο ρόλο στην αποτελεσματική και αποδοτική λειτουργία ενός ANN παίζουν τόσο οι μεμονωμένες μονάδες, όσο και η δομή οργάνωσής τους. Αρχικά, γίνεται αναφορά στις πρώτες, δηλαδή στους τεχνητούς νευρώνες ενός ANN, όπου στο Σχήμα 6.2 παρουσιάζεται σχηματικά η αρχή λειτουργίας τους [12], [13], [30], [32].



Σχήμα 6.2: Τεχνητός νευρώνας

Σύμφωνα με την παραπάνω εικόνα, εντός ενός τεχνητού νευρώνα λαμβάνουν χώρα τα εξής στάδια [12], [13], [30], [32]:

- Αρχικά, οι **μεταβλητές εισόδου**  $x_i$ , κατά αντιστοιχία με το εισερχόμενο σήμα των βιολογικών νευρώνων, εισέρχονται στο νευρώνα.
- Στη συνέχεια, κάθε μεταβλητή εισόδου πολλαπλασιάζεται με τον αντίστοιχο συντελεστή της, ο οποίος ονομάζεται **συναπτικό βάρος** της μεταβλητής  $w_i$  και αντιστοιχεί στις συνάψεις των βιολογικών νευρώνων.
- Τα γινόμενα που προκύπτουν εισέρχονται σε έναν τελεστή αθροίσματος, μαζί και με έναν επιπλέον σταθερό όρο, το **μέτρο αμεροληψίας**  $b$  του νευρώνα. Η διαδικασία αντιστοιχεί στη διεργασία που συμβαίνει εντός του κυρίου σώματος των βιολογικών νευρώνων, ενώ το μέτρο αμεροληψίας στο κατώφλι. Η παραπάνω πρόσθεση μπορεί να γραφεί ως:

$$net = \sum_{i=1}^n w_i x_i + b \quad (6.1)$$

όπου  $net$  το αποτέλεσμα του τελεστή. Φυσικά, ο  $b$  μπορεί επίσης να θεωρηθεί ως ένα συναπτικό βάρος που αντιστοιχεί σε σταθερή μεταβλητή εισόδου ίση με ένα (1).

- Τέλος, η «μεταβλητή»  $net$  εισέρχεται στη **συνάρτηση ενεργοποίησης**  $f(u)$ , η οποία είναι επίσης γνωστή και με το όνομα **συνάρτηση μεταφοράς**, από όπου και προκύπτει η **μεταβλητή εξόδου** του νευρώνα  $y$ .

Η παραπάνω διαδικασία συνοψίζεται στην παρακάτω εξίσωση, η οποία αποτελεί και το γενικό μαθηματικό μοντέλο ενός τεχνητού νευρώνα [12], [13], [30], [32]:

$$y = f\left(\sum_{i=1}^n w_i x_i + b\right) \quad (6.2)$$

Εκφράζοντας όλες τις παραπάνω ποσότητες σε μορφή διανυσμάτων, τότε προκύπτουν οι εξής εξισώσεις [12], [13]:

$$\mathbf{x} = \begin{bmatrix} x_0 \\ x_1 \\ \vdots \\ x_n \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 \\ x_1 \\ \vdots \\ x_n \end{bmatrix} \quad (6.3)$$

$$\mathbf{w} = \begin{bmatrix} w_0 \\ w_1 \\ \vdots \\ w_n \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} b \\ w_1 \\ \vdots \\ w_n \end{bmatrix} \quad (6.4)$$

όπου  $\mathbf{x}$  και  $\mathbf{w}$  τα διανύσματα εισόδου και συναπτικών βαρών, αντίστοιχα. Με χρήση των παραπάνω, η Εξ. (6.2) λαμβάνει την εξής διανυσματική μορφή:

$$y(t) = f(\mathbf{w}^T \mathbf{x}) \quad (6.5)$$

Οι σημαντικότερες παράμετροι ενός νευρώνα είναι τα συναπτικά βάρη, καθώς αυτά καθορίζουν το μέγεθος της βαρύτητας που δίνεται σε κάθε μεταβλητή εισόδου κατά τον υπολογισμό της μεταβλητής εξόδου, κατά απόλυτη αντιστοιχία με τα BNN, όπου τον κρισιμότερο ρόλο παίζουν οι συνάψεις. Ο λόγος είναι πως οι διασυνδέσεις αυτές πρακτικά περιέχουν την πληροφορία-ανάμνηση που απέκτησε το δίκτυο κατά την εκπαίδευση του και την οποία χρησιμοποιεί για την επίλυση μελλοντικών προβλημάτων, οπότε οι τιμές που θα αποκτήσει το διάνυσμα  $\mathbf{w}$  κατά την εκπαίδευση ενός ANN κρίνουν κατά μεγάλο ποσοστό την αποτελεσματικότητα του δικτύου. Περισσότερα σχετικά με το θέμα θα αναπτυχθούν στην Εν. 6.5. Πάντως, η επιλογή της συνάρτησης ενεργοποίησης δεν θα πρέπει υποτιμηθεί, καθώς αυτή είναι που εν τέλει μετατρέπει την  $net$  σε  $y$ , ενώ επίσης καθορίζει και τις δυνατότητες ενός δικτύου, όπως θα αναλυθεί και στην επόμενη υποενότητα [30].

### 6.3.2. Συνάρτηση Ενεργοποίησης

Όσον αφορά τη συνάρτηση ενεργοποίησης, πρόκειται για μια γενικά μη γραμμική συνάρτηση, σκοπός της οποίας είναι να λαμβάνει το άθροισμα των σταθμισμένων μεταβλητών εισόδου και να «παράγει» τη σωστή μεταβλητή εξόδου. Το όνομα της προκύπτει από την αντίστοιχη διαδικασία που συμβαίνει εντός του νευρωνικού σώματος, όπου όταν το σήμα είναι μεγαλύτερο από το κατώφλι ο νευρώνας ενεργοποιείται, ενώ σε αντίθετη περίπτωση μένει αδρανής. Η διαδικασία αυτή μοντελοποιείται από τη βηματική συνάρτηση:

$$f(u) = \begin{cases} 0, & u < 0 \\ 1, & u \geq 0 \end{cases} \quad (6.6)$$

όπου  $u$  το σήμα του νευρώνα. Στην περίπτωση των τεχνητών νευρώνων, το  $u$  αντιστοιχεί στη μεταβλητή  $net$ , η οποία ορίστηκε παραπάνω από την εξ. (6.1). Συνεπώς, προκύπτει ότι ένας τεχνητός νευρώνας ενεργοποιείται όταν το άθροισμα των σταθμισμένων μεταβλητών εισόδου είναι μεγαλύτερο του μέτρου αμεροληψίας. Για αυτό, όπως αναφέρθηκε το τελευταίο λειτουργεί κατά αντιστοιχία με το κατώφλι των βιολογικών νευρώνων [13], [30], [32].

Η βηματική συνάρτηση δεν χρησιμοποιείται πάρα πολύ συχνά στα ANN, κυρίως λόγω του σημαντικού περιορισμού ότι οι τιμές εξόδου μπορούν να πάρουν μόνο δύο τιμές (0 και 1). Νευρώνες τέτοιου τύπου καλούνται **Αντίληπτρα** και χρησιμεύουν αποκλειστικά στη γραμμική ταξινόμηση δεδομένων, καθώς έχει αποδειχθεί ότι αν είναι δυνατός ο διαχωρισμός των μεταβλητών εισόδου με μια ευθεία γραμμή ή ένα επίπεδο, τότε ένα **Δίκτυο Αντιλήπτρων** είναι ικανό να επιτελέσει αυτή τη λειτουργία. Ωστόσο, πέρα του παραπάνω δεν είναι ικανά να επιτελέσουν κάποια άλλη εργασία [32].

Λόγω των παραπάνω, δημιουργήθηκε η ανάγκη χρήσης και άλλων συναρτήσεων ενεργοποίησης, οι οποίες θα είναι ικανές να προσδιορίσουν πολύ πολυπλοκότερες σχέσης από την απλή γραμμική ταξινόμηση. Έτσι, οι συναρτήσεις αυτές έγιναν γνωστές και με το όνομα Συναρτήσεις Μεταφοράς, καθώς «μεταφέρουν» τη μεταβλητή εισόδου στη μεταβλητή εξόδου για το σύστημα που περιγράφουν. Μια άλλη σχετικά κοινή αλλά ταυτόχρονα και απλή συνάρτηση ενεργοποίησης είναι η γραμμική, η οποία πλεονεκτεί σημαντικά έναντι της βηματικής, καθώς μπορεί να δώσει μεταβλητές εξόδου οποιασδήποτε τιμής. Ωστόσο, η τιμή αυτή πρέπει να συνδέεται γραμμικά με τις μεταβλητές εξόδου, οπότε η γραμμική συνάρτηση μπορεί να προσδιορίσει μόνο γραμμικές σχέσεις μεταξύ εισόδου-εξόδου. Οι νευρώνες που τη χρησιμοποιούν ονομάζονται **Γραμμικά Φίλτρα**, ενώ τα αντίστοιχα δίκτυα τους καλούνται **Γραμμικά Δίκτυα**. Η γραμμική συνάρτηση εκφράζεται από τη σχέση [32]:

$$f(u) = u \quad (6.7)$$

Τέλος, αναφέρονται οι σιγμοειδής συναρτήσεις ενεργοποίησης, οι οποίες είναι με διαφορά η πιο συχνή κατηγορία που παρατηρείται σε ANN. Οι συναρτήσεις αυτές είναι μη

γραμμικές, παραγωγίσιμες συναρτήσεις, ιδιότητα πολύ σημαντική κατά την εκπαίδευση ενός ANN με τη γενική μέθοδο της **Οπισθοδιάδοσης (Backpropagation)**, η οποία θα αναλυθεί διεξοδικά σε παρακάτω ενότητα. Επιπλέον, ένας άλλος λόγος που τις καθιστά τόσο ισχυρές είναι το γεγονός ότι θεωρητικά έχουν την ικανότητα να προσεγγίσουν οποιαδήποτε σχέση, ανεξαρτήτως τη πολυπλοκότητα αυτής. Στην πράξη, συνήθως χρησιμοποιούνται οι λογαριθμική-σιγμοειδής και εφαπτομενική-σιγμοειδής συναρτήσεις, οι οποίες εκφράζονται από τις εξής (κατά σειρά) σχέσεις [32]:

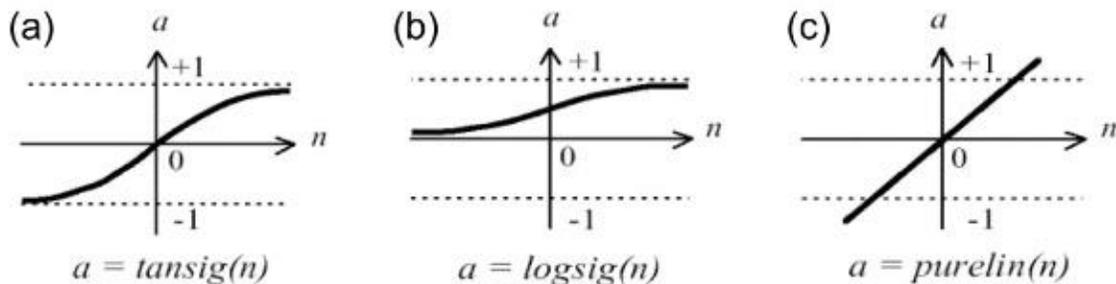
$$f(u) = \frac{1}{1 + e^{-u}} \quad (6.8)$$

$$f(u) = \tanh(u) = \frac{e^u - e^{-u}}{e^u + e^{-u}} \quad (6.9)$$

Σημειώνεται ότι στην περίπτωση της tan-sig, πολλές φορές αντί για την πραγματική συνάρτηση χρησιμοποιείται μια άλλη που παράγει σχεδόν τα ίδια αποτελέσματα για δεδομένη είσοδο, ενώ «τρέχει» πολύ ταχύτερα κατά την προσομοίωση των ANN. Συνεπώς, πολλά υπολογιστικά περιβάλλοντα την προτιμούν, στα οποία συγκαταλέγεται και το Matlab, με το οποίο έχει πραγματοποιηθεί μεγάλο ποσοστό της υπολογιστικής διαδικασίας στο πλαίσιο της παρούσας εργασίας. Η μορφή αυτή είναι η εξής [32]:

$$f(u) = \frac{2}{1 + e^{-2u}} - 1 \approx \tanh(u) \quad (6.10)$$

Διαγράμματα των τριών προαναφερθεισών συναρτήσεων παρατίθενται στο Σχήμα 6.3.

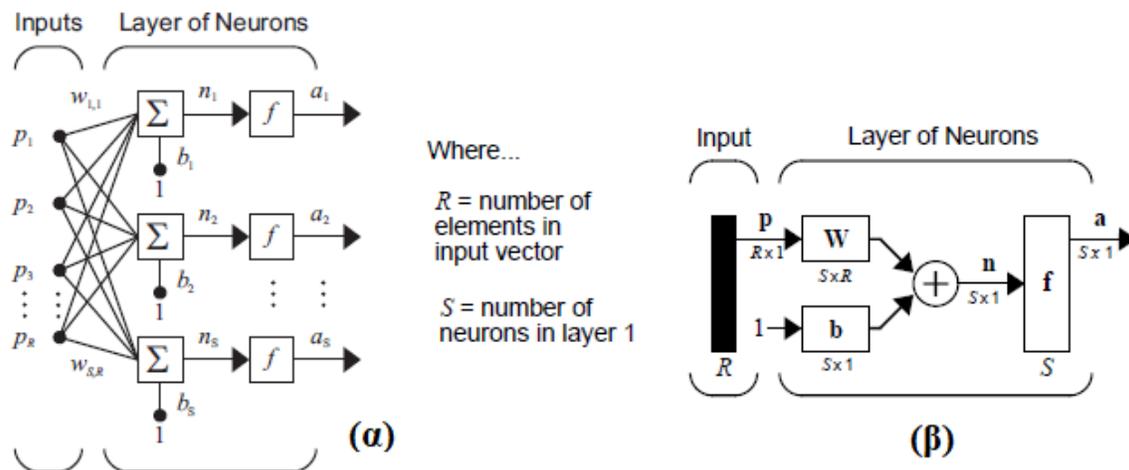


Σχήμα 6.3: Γραφικές παραστάσεις των συναρτήσεων: α) Εφαπτομενική-σιγμοειδή, β) Λογαριθμική-σιγμοειδή, γ) Γραμμική

## 6.4. Αρχιτεκτονική Τεχνητών Νευρωνικών Δικτύων

### 6.4.1. Βασική δομή

Οι τεχνητοί νευρώνες που περιγράφηκαν διεξοδικά στην προηγούμενη ενότητα οργανώνονται παράλληλα σε πολλές διατάξεις, κάθε μια από τις οποίες αποτελεί και ένα **επίπεδο** του δικτύου. Η παράλληλη αυτή διαμόρφωση επιτρέπει την ταυτόχρονη επεξεργασία των ίδιων δεδομένων από πολλούς διαφορετικούς νευρώνες, οι οποίοι εξάγουν διαφορετικό (κατά τη γενικότητα) αποτέλεσμα, επιτρέποντας έτσι την ταχύτερη επεξεργασία πληροφορίας με τρόπο παρόμοιο με τα βιολογικά νευρωνικά δίκτυα. Ένα ANN αποτελείται από πολλά επίπεδα, συνδεδεμένα κατά σειρά μεταξύ τους, ενώ η διασύνδεση πραγματοποιείται μέσω των συναπτικών βαρών που αναλύθηκαν παραπάνω. Συνεπώς, προκύπτει ότι οι μεταβλητές (ή αντίστοιχα το διάνυσμα) εξόδου ενός επιπέδου αποτελούν επίσης και μεταβλητές εισόδου του επόμενου επιπέδου. Επιπλέον, σε κάθε επίπεδο, σύμφωνα και με την αρχή λειτουργίας κάθε μεμονωμένου νευρώνα (βλ. Εν. 6.3), οι μεταβλητές εισόδου είναι κοινές για όλους τους νευρώνες του ίδιου επιπέδου (όλες), ενώ από κάθε ξεχωριστό νευρώνα προκύπτει μόνο μια (διαφορετική) μεταβλητή εξόδου. Η διάταξη αυτή παρουσιάζεται και σχηματικά στο Σχήμα 6.4 [12], [13], [30], [32], [33].



Σχήμα 6.4: Βασική δομή οργάνωσης ενός Τεχνητού Νευρωνικού Δικτύου

Οι τρεις διαφορετικοί τύποι επιπέδων που συναντώνται σε κάθε ANN είναι οι εξής: [12], [33]:

- **Επίπεδο Εισόδου:** Πρόκειται για το πρώτο επίπεδο κάθε ANN, το οποίο είναι υπεύθυνο για την τροφοδότηση των μεταβλητών εισόδου στο δίκτυο. Παρουσιάζει την ιδιαιτερότητα πως είναι το μόνο επίπεδο που δεν εμπεριέχει νευρώνες και κατά συνέπεια δεν πραγματοποιείται κανένας υπολογισμός εντός του. Αντιθέτως, κάθε

μονάδα του επιπέδου αυτού ονομάζεται **κόμβος εισόδου** και αντιστοιχεί σε μια μεταβλητή εισόδου. Για τον παραπάνω λόγο, πολλοί ερευνητές δεν το θεωρούν πραγματικό επίπεδο του δικτύου, αλλά το χαρακτηρίζουν ως την απλή εισαγωγή των αρχικών δεδομένων στο δίκτυο. Ωστόσο, επίσης πολλοί είναι και αυτοί που, παρόλο το γεγονός ότι δεν εμπεριέχει νευρώνες, το θεωρούν διακριτό επίπεδο του δικτύου. Στην παρούσα εργασία, υιοθετείται η δεύτερη θεώρηση. Η διάσταση αυτού του επιπέδου, δηλαδή το πλήθος των κόμβων που περιέχει, είναι πάντα ίσο με τη διάσταση του διανύσματος εισόδου, δηλαδή το πλήθος των μεταβλητών εισόδου.

- **Κρυφά Επίπεδα:** Το πρώτο από αυτά δέχεται τις μεταβλητές εισόδου, τις οποίες και επεξεργάζεται σύμφωνα με τα όσα έχουν ήδη αναφερθεί σε αυτή και στην προηγούμενη ενότητα. Από κάθε νευρώνα του εξέρχεται και μια «ενδιάμεση» μεταβλητή εξόδου, το σύνολο των οποίων εισέρχεται στο επόμενο επίπεδο. Αυτή η διαδικασία επαναλαμβάνεται συνεχώς, έως και το τελευταίο επίπεδο του δικτύου. Τα επίπεδα συνδέονται πλήρως μεταξύ τους, το οποίο επιτυγχάνεται μέσω των συναπτικών βαρών. Κάθε νευρώνας ενός κρυφού επιπέδου έχει την ίδια συνάρτηση ενεργοποίησης με τους υπόλοιπους, ενώ συνήθως το ίδιο ισχύει και για όλα τα διαφορετικά κρυφά επίπεδα του συνολικού δικτύου. *Το πλήθος αλλά και η διάσταση των κρυφών επιπέδων ορίζονται από το χρήστη και αποτελούν δύο από τις κρισιμότερες σχεδιαστικές παραμέτρους ενός ANN, καθώς επηρεάζουν άμεσα το «βάθος», την πολυπλοκότητα και την ευελιξία του δικτύου, οπότε έμμεσα την αποτελεσματικότητα και αποδοτικότητα του.*
- **Επίπεδο Εξόδου:** Αποτελεί το τελευταίο επίπεδο ενός ANN και λειτουργεί με τον ίδιο τρόπο που λειτουργούν και τα κρυφά επίπεδα. Δέχεται ως μεταβλητές εισόδου τις μεταβλητές εξόδου του τελευταίου κρυφού επιπέδου, ενώ οι μεταβλητές εξόδου αυτού είναι και οι μεταβλητές εξόδου του συνολικού δικτύου, δηλαδή το αποτέλεσμα της συνολικής υπολογιστικής διαδικασίας. Όπως και στα κρυφά επίπεδα, όλοι οι νευρώνες του επιπέδου εξόδου έχουν την ίδια συνάρτηση ενεργοποίησης. Ωστόσο, αυτή συνήθως διαφέρει από την αντίστοιχη των κρυφών επιπέδων και για την ακρίβεια κατά την πλειονότητα των περιπτώσεων είναι η γραμμική συνάρτηση λόγω της απλότητας που τη διακατέχει. *Η διάσταση του ταυτίζεται πάντα με τη διάσταση του διανύσματος εξόδου, το οποίο είναι προφανές, αφού κάθε νευρώνας μπορεί να υπολογίζει μια μεταβλητή εξόδου, οπότε για τον προσδιορισμό  $N$  τελικών μεταβλητών εξόδου απαιτούνται  $N$  νευρώνες στο επίπεδο εξόδου.*

#### 6.4.2. Κύριες αρχιτεκτονικές

Ανά τα χρόνια, έχει αναπτυχθεί ένα μεγάλο πλήθος διαφορετικών αρχιτεκτονικών ANN, οι οποίες μπορούν να ταξινομηθούν με πολλά διαφορετικά κριτήρια και κατά μήκος διαφόρων «επιπέδων». Ένα πρώτο κριτήριο που συχνά χρησιμοποιείται αφορά τη γενική λογική εκπαίδευσης του δικτύου, με βάση την οποία τα ANN διακρίνονται στις εξής τρεις κατηγορίες: **i) Επιβλεπόμενης μάθησης, ii) Μη-Επιβλεπόμενης μάθησης και iii) Υβριδικής Μάθησης**. Στην πρώτη περίπτωση, το δίκτυο τροφοδοτείται με ζεύγη διανυσμάτων εισόδου – εξόδου και μέσω κάποιας μεθόδου βελτιστοποίησης τα συναπτικά βάρη ανανεώνονται επαναληπτικά έως ότου το δίκτυο να μπορεί να προσδιορίζει μόνο του τη σωστή έξοδο, έχοντας γνώση μόνο της εισόδου. Σε αυτή τη γενική κατηγορία ανήκουν, μεταξύ άλλων, τα **δίκτυα πρόσθιας τροφοδότησης, τα δίκτυα ανατροφοδότησης και τα δίκτυα ακτινικής βάσης**. Στην περίπτωση (ii), τα δίκτυα τροφοδοτούνται μόνο με διανύσματα εισόδου, των οποίων αναλύουν τη βασική δομή αναζητώντας μοτίβα, τα οποία εν τέλει κατηγοριοποιούν. Στην τρίτη περίπτωση γίνεται συνδυασμός και των δύο προηγούμενων λογικών [12], [30].

Στο πλαίσιο της παρούσας εργασίας θα αναλυθούν αποκλειστικά δίκτυα επιβλεπόμενης μάθησης και για την ακρίβεια δίκτυα πρόσθιας τροφοδότησης και ανατροφοδότησης, τα οποία εκπαιδεύονται με βάση τη γενική μέθοδο της **Οπισθοδιάδοσης (Backpropagation)**. Περαιτέρω πληροφορίες για αυτή τη μέθοδο και για τους αλγόριθμους της αναφέρονται στην Εν. 6.5.

Το πιο απλό δίκτυο οπισθοδιάδοσης είναι το *δίκτυο πρόσθιας τροφοδότησης ή Feed Forward Neural Networks (FFNN)*, το οποίο αποτελείται από το επίπεδο εισόδου, ένα ή και περισσότερα κρυφά επίπεδα με σιγμοειδή συνάρτηση ενεργοποίησης και τέλος από το επίπεδο εξόδου, το οποίο έχει γραμμική συνάρτηση ενεργοποίησης. Τα δίκτυα αυτής της αρχιτεκτονικής δεν περιέχουν βρόγχους, οπότε η πληροφορία «ταξιδεύει» αποκλειστικά από την είσοδο προς την έξοδο. Το γεγονός αυτό τα καθιστά, κατά τη γενικότητα, *στατικά δίκτυα*, δηλαδή για δεδομένο διάνυσμα εισόδου «παράγουν» μονοσήμαντα συγκεκριμένο διάνυσμα εξόδου, το οποίο δεν εξαρτάται από προηγούμενες εισόδους, εξόδους ή καταστάσεις του δικτύου. Συνεπώς, τα δίκτυα αυτά θεωρούνται δίκτυα χωρίς μνήμη. Ωστόσο, αναφέρεται ότι είναι δυνατή η έμμεση δυναμική λειτουργία FFNN δικτύων, το οποίο όμως σπάνια προτιμάται [12], [13], [30], [32].

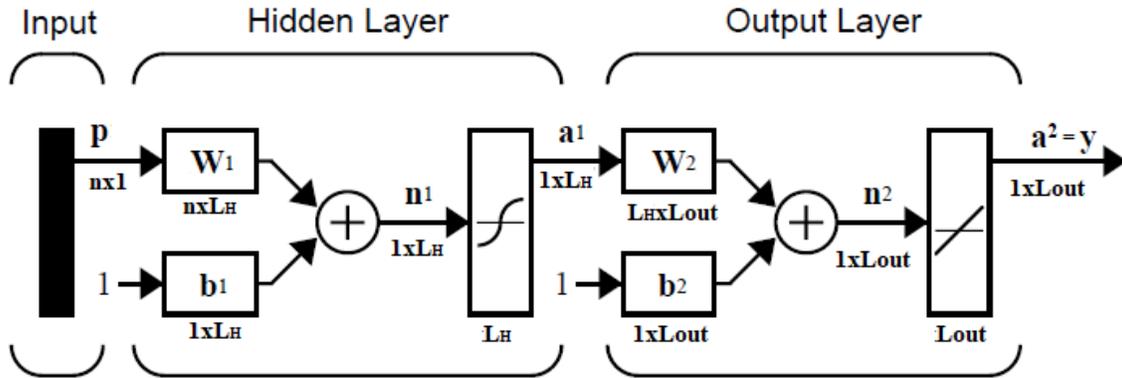
Η δεύτερη αρχιτεκτονική δικτύων οπισθοδιάδοσης είναι αυτή των *αναδρομικών δικτύων ή δικτύων ανατροφοδότησης (Feed Back Neural Networks -FBNN)*. Τα δίκτυα αποτελούνται από επίπεδα ίδιας μορφής με τα FFNN, όμως η πληροφορία ταξιδεύει και προς τις δύο κατευθύνσεις λόγω της ύπαρξης βρόγχων ανατροφοδότησης εντός του δικτύου. Οι βρόγχοι αυτοί τροφοδοτούν την έξοδο ενός επιπέδου προς προηγούμενα επίπεδα, ενώ δεν

υπάρχει περιορισμός σχετικά με το είδος των συνδεδεμένων επιπέδων. Δηλαδή, μπορεί να σχηματιστούν βρόγχοι μεταξύ επιπέδου εξόδου και κρυφών επιπέδων, επιπέδου εξόδου και επιπέδου εισόδου, κρυφού επιπέδου με προηγούμενα κρυφά επίπεδα και κρυφού επιπέδου με επίπεδο εισόδου. Αν και τα FBNN έχουν τη δυνατότητα να λειτουργήσουν στατικά, συνήθως αξιοποιούνται ως δυναμικά συστήματα. Σε κάθε χρονικό βήμα, μαζί με το νέο διάνυσμα εισόδου εισέρχονται και διανύσματα εξόδου ή ενδιάμεσα διανύσματα, τα οποία αλλοιώνουν τη μονοσήμαντη σχέση εισόδου – εξόδου που παρατηρείται στα FFNN, και κατά συνέπεια η έξοδος δεν εξαρτάται μόνο από την εκάστοτε είσοδο αλλά και από αυτά. Έτσι, μπορεί να θεωρηθεί ότι, σε αντίθεση με τα FFNN, τα δίκτυα αυτά εμφανίζουν μνήμη. Βέβαια, κατά τη δυναμική λειτουργία FBNN συνήθως δεν τροφοδοτούνται ανεξάρτητα διανύσματα εισόδου αλλά συγκεκριμένη χρονική ακολουθία αυτών, οπότε αντίστοιχα παράγεται (μονοσήμαντα) μια ακολουθία διανυσμάτων εξόδου. Τέλος, επισημάνεται ότι το «βάθος» της μνήμης αυτών των δυναμικών δικτύων ορίζεται ως **καθυστέρηση** της εξόδου και εισόδου, αντίστοιχα. Η πρώτη καθορίζει πόσα παρελθοντικά διανύσματα εξόδου θα λαμβάνονται υπόψη για τον υπολογισμό του παρόντος διανύσματος εξόδου, ενώ η δεύτερη το ίδιο αλλά αναφερόμενη στα διανύσματα εισόδου [12], [13], [30], [32].

#### 6.4.3. Δίκτυο πρόσθιας τροφοδότησης τριών επιπέδων

Αν και το πιο απλό δίκτυο πρόσθιας τροφοδότησης είναι αυτό των δύο επιπέδων (εισόδου + εξόδου), συνήθως στην πράξη αυτά τα δίκτυα δεν χρησιμοποιούνται πολύ συχνά. Από την άλλη, πολύ συνηθισμένα δίκτυα είναι αυτά των τριών επιπέδων, το οποίο είναι επίσης αρκετά απλό αλλά και ταυτόχρονα υπολογιστικά πολύ ισχυρό. Μάλιστα, θεωρητικά έχει αποδειχθεί ότι όσο πολύπλοκη και να είναι η σχέση μεταξύ εισόδου και εξόδου, ένα δίκτυο οπισθοδιάδοσης, πρόσθιας τροφοδότησης τριών επιπέδων είναι ικανό να την προσεγγίσει. Στην πράξη βέβαια, σε ορισμένες περιπτώσεις αυτό ίσως να είναι ελάχιστα αποδοτικό, έτσι ώστε πρακτικά να καθίσταται αδύνατο [32].

Ένα δίκτυο αυτής της αρχιτεκτονικής απεικονίζεται σε διανυσματική μορφή στο Σχήμα 6.5. Το διάνυσμα εισόδου αποτελείται από  $n$  στοιχεία, το κρυφό επίπεδο από  $L_H$  νευρώνες με σιγμοειδής συνάρτηση ενεργοποίησης και τέλος το επίπεδο εξόδου από  $L_{out}$  νευρώνες με γραμμική συνάρτηση ενεργοποίησης. Κάθε νευρώνας λειτουργεί με τον τρόπο που περιγράφηκε στην Εν. 6.3 [32].



Σχήμα 6.5: Δίκτυο πρόσθιας τροφοδότησης τριών επιπέδων

Με βάση τα παραπάνω, η μαθηματική μοντελοποίηση αυτού του δικτύου πραγματοποιείται σε δύο στάδια, όπου το πρώτο αντιστοιχεί στο κρυφό επίπεδο και το δεύτερο στο επίπεδο εξόδου. Για τον τυχαίο  $k$  νευρώνα του κρυφού επιπέδου ισχύει η εξής εξίσωση [31]:

$$a_k^1 = f_{sigm} \left( \sum_{i=1}^n w_{k,i}^1 p_i + b_k^1 \right), \quad k = 1, \dots, L_H \quad (6.11)$$

όπου  $a_k$  η μεταβλητή εξόδου του νευρώνα,  $f_{sigm}$  σιγμοειδής συνάρτηση,  $w_{k,i}$  το συναπτικό βάρος του νευρώνα για τη μεταβλητή εισόδου  $p_i$  και  $b_k$  το μέτρο αμεροληψίας του νευρώνα. Ο δείκτης 1 αναφέρεται στο κρυφό επίπεδο. Αντιστοίχως, για τον  $k$  νευρώνα του επιπέδου εξόδου ισχύει η εξής εξίσωση [31]:

$$y_k = a_k^2 = f_{line} \left( \sum_{i=1}^{L_H} w_{k,i}^2 a_i^1 + b_k^2 \right), \quad k = 1, \dots, L_{out} \quad (6.12)$$

όπου  $f_{line}$  γραμμική συνάρτηση, ενώ οι υπόλοιποι συμβολισμοί ταυτίζονται με αυτούς της Εξ. (6.11).

Αντίστοιχα με τις διανυσματικές μορφές της εξίσωσης του ενός νευρώνα ((6.5)), οι δύο παραπάνω εξισώσεις μπορούν να μετασχηματιστούν σε μορφές πινάκων. Έτσι, ορίζοντας τους πίνακες συναπτικών βαρών  $\mathbf{W}^1$  και  $\mathbf{W}^2$  ως εξής [13]:

$$\mathbf{W}^1 = \begin{bmatrix} b_1 & b_2 & b_{L_H} \\ w_{1,1} & w_{1,2} & w_{1,L_H} \\ w_{2,1} & w_{2,2} & \dots & w_{2,L_H} \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ w_{n,1} & w_{n,2} & \dots & w_{n,L_H} \end{bmatrix} \quad (6.13)$$

$$\mathbf{W}^2 = \begin{bmatrix} b_1 & b_2 & b_{L_{out}} \\ w_{1,1} & w_{1,2} & w_{1,L_{out}} \\ w_{2,1} & w_{2,2} & \dots & w_{2,L_{out}} \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ w_{L_H,1} & w_{L_H,2} & \dots & w_{L_H,L_{out}} \end{bmatrix} \quad (6.14)$$

προκύπτουν οι Εξ. (6.11) και (6.12) λαμβάνουν τις εξής μορφές [31]:

$$\mathbf{a}^1 = f_{sigm} \left[ (\mathbf{W}^1)^T \mathbf{p} \right] \quad (6.15)$$

$$\mathbf{y} = \mathbf{a}^2 = f_{line} \left[ (\mathbf{W}^2)^T \mathbf{a}^1 \right] \quad (6.16)$$

Συνδυάζοντας τις δύο αυτές εξισώσεις προκύπτει η εξής τελική εξίσωση που περιγράφει το συνολικό δίκτυο του Σχήμα 6.5 [31]:

$$\mathbf{y} = f_{line} \left[ (\mathbf{W}^2)^T f_{sigm} \left[ (\mathbf{W}^1)^T \mathbf{p} \right] \right] \quad (6.17)$$

## 6.5. Εκπαίδευση Τεχνητών Νευρωνικών Δικτύων

### 6.5.1. Γενικά στοιχεία

Όπως έχει ήδη αναφερθεί, τα συναπτικά βάρη είναι από τις κρισιμότερες παραμέτρους ενός ANN, καθώς σε αυτά είναι αποθηκευμένη η πληροφορία που απέκτησε το δίκτυο κατά την εκπαίδευση του. Έτσι, γίνεται αμέσως κατανοητό ότι ως εκπαίδευση ορίζεται η διαδικασία όπου πραγματοποιείται προσδιορισμός της τιμής κάθε συναπτικού βάρους, το σύνολο των οποίων «συνδέει» τα επίπεδα του δικτύου μεταξύ τους, έτσι ώστε το δίκτυο να μπορεί να επιτελέσει μια συγκεκριμένη εργασία αποτελεσματικά και αποδοτικά. Επίσης, συμπεραίνεται ότι οι αρχικές τιμές των συναπτικών βαρών είναι τυχαίες και δεν έχουν καμία σημασία, ενώ οι τιμές μετά την εκπαίδευση υποδεικνύουν τη σχέση που συνδέει την είσοδο και την έξοδο του δικτύου [30], [31].

Αν και γενικά είναι δυνατός ο καθορισμός των βαρών απευθείας από το σχεδιαστή-χρήστη του δικτύου, αυτό σπάνια πραγματοποιείται στην πράξη. Αντιθέτως, ο προσδιορισμός τους επιτυγχάνεται μέσω επαναληπτικών μεθόδων βελτιστοποίησης, οι οποίες μπορούν να εφαρμόζονται με γνώμονα διάφορα κριτήρια. Οι τρεις κύριες «λογικές» εκμάθησης αναφέρθηκαν στην προηγούμενη ενότητα, ενώ όπως επισημάνθηκε στο πλαίσιο της παρούσας εργασίας μελετώνται μέθοδοι που ανήκουν μόνο στην πρώτη, δηλαδή στην *Επιβλεπόμενη μάθηση*, όπου το δίκτυο τροφοδοτείται με ζεύγη διανυσμάτων εισόδου – εξόδου και μέσω κάποιας μεθόδου βελτιστοποίησης τα συναπτικά βάρη ανανεώνονται επαναληπτικά έως ότου

το δίκτυο να μπορεί να προσδιορίζει μόνο του τη σωστή έξοδο, έχοντας γνώση μόνο της εισόδου [30], [32].

Όσον αφορά τα απαραίτητα δεδομένα που χρειάζονται για την ικανοποιητική εκπαίδευση ενός δικτύου, αυτά μπορεί να έχουν προκύψει είτε πειραματικά, είτε υπολογιστικά, ενώ η αποτελεσματικότητά τους κρίνεται με βάση τα εξής τρία κριτήρια [30]:

- ✓ **Ποσότητα:** Απαιτείται αρκετή ποσότητα δεδομένων, έτσι ώστε αυτά να περιλαμβάνουν όλο το εύρος των μελετώμενων παραμέτρων.
- ✓ **Ποιότητα:** Υποδεικνύει πόσα διαφορετικά πρότυπα εμπεριέχονται στα δεδομένα. Πολύ μικρός αριθμός επαρκεί για την ικανοποιητική εκπαίδευση του δικτύου, ενώ πολύ μεγάλος θα προκαλέσει το πρόβλημα της **υπερπροσαρμογής** του δικτύου, στο οποίο γίνεται αναφορά στη συνέχεια.
- ✓ **Υπολογιστική πολυπλοκότητα:** Δηλώνει τον υπολογιστικό χρόνο που απαιτείται για να ολοκληρωθεί η εκπαίδευση του δικτύου από τα συγκεκριμένα δεδομένα. Φυσικά, επηρεάζεται σημαντικά και από τη δομή του δικτύου, καθώς και από τον αλγόριθμο εκπαίδευσης.

Όσον αφορά την υπερπροσαρμογή, πρόκειται για ένα στατιστικό φαινόμενο που παρατηρείται πολύ συχνά κατά την εκπαίδευση και προσομοίωση ANN, με σημαντικές αρνητικές συνέπειες στην αποτελεσματικότητά τους, οπότε απαιτείται ιδιαίτερη σημασία στους παράγοντες που το προκαλούν. Καθώς τα ANN δεν έχουν γνώση της πραγματικής συνάρτησης που συνδέει την είσοδο με την έξοδο που επιχειρούν να προσδιορίσουν, η προσέγγιση που υπολογίζουν παρουσιάζει υψηλή ακρίβεια μόνο εντός των δεδομένων από τα οποία εκπαιδεύτηκαν. Φυσικά, όσο πιο προσεκτικά πραγματοποιηθεί ο σχεδιασμός και η εκπαίδευση τους, τόσο υψηλότερη θα είναι και η δυνατότητα τους να γενικεύσουν σε μεγαλύτερα εύρη παραμέτρων [13], [30], [32], [33].

Ωστόσο, ορισμένες φορές τα δίκτυα εστιάζουν υπερβολικά ακόμα και σε υποπεδία του συνολικού πεδίου των δεδομένων, το οποίο ορίζεται ως το φαινόμενο της υπερπροσαρμογής που αναφέρθηκε παραπάνω. Σε αυτές τις περιπτώσεις, ενώ τα σφάλματα της προσεγγιστικής εξόδου με την πραγματική μπορεί να είναι πολύ μικρά κατά την εκπαίδευση, όταν επιχειρηθεί να προσομοιωθεί το δίκτυο σε ακόμα και λίγο διαφορετικές τιμές των μεταβλητών εισόδου, τότε αποτυγχάνει παταγωδώς να παράσχει λύσεις υψηλής ακρίβειας. Οι παράγοντες που καθορίζουν την εμφάνιση αλλά και την έκταση αυτού του φαινομένου είναι πολλοί, αλλά οι κρισιμότεροι που λαμβάνονται συνήθως υπόψη είναι *i) Η ποσότητα-ποιότητα των δεδομένων εκπαίδευσης, ii) Ο αριθμός των κρυφών επιπέδων και των διαστάσεων τους, iii) Η μέθοδος εκπαίδευσης που εφαρμόζεται*. Όσον αφορά το πρώτο έχει γίνει ήδη αναφορά παραπάνω, ενώ η μέθοδος εκπαίδευσης θα αναλυθεί στη συνέχεια. Σχετικά με τα κρυφά επίπεδα και τους

νευρώνες που αυτά περιέχουν, ουσιαστικά αυτά καθορίζουν το «βάθος» του δικτύου και την ικανότητα του να προσδιορίζει πολύπλοκες σχέσεις. Πολύ μικρός αριθμός συνεπάγεται ανεπαρκή εκπαίδευση, ενώ πολύ μεγάλος προκαλεί τον προσδιορισμό της προσέγγισης μέσω υπερβολικά πολύπλοκης σχέσης, η οποία εκδηλώνεται ως το φαινόμενο της υπερπροσαρμογής. Συνεπώς, η βέλτιστη τιμή αυτών των σχεδιαστικών παραμέτρων πρέπει να προσδιορίζεται με προσοχή και μετά από εκτενής διερεύνηση για το εκάστοτε πρόβλημα [13], [30], [32], [33].

### 6.5.2. Αλγόριθμοι εκπαίδευσης: Οπισθοδιάδοση

Η πιο διαδεδομένοι αλγόριθμοι επιβλεπόμενης μάθησης ανήκουν στη γενικότερη κατηγορία των αλγόριθμων οπισθοδιάδοσης. Το όνομα προκύπτει από το γεγονός ότι οι υπολογισμοί ξεκινούν στο επίπεδο εξόδου, όπου υπολογίζεται το σφάλμα ανάμεσα στην προσεγγιστική και την πραγματική έξοδο, και στη συνέχεια διαδίδεται προς τα «πίσω» οδηγώντας στην ανανέωση κάθε βάρους ξεχωριστά, με την όλη διαδικασία να λειτουργεί αλυσιδωτά [32], [33].

Στον **τυπικό αλγόριθμο οπισθοδιάδοσης**, ως αντικειμενική συνάρτηση χρησιμοποιείται το άθροισμα των τετραγωνικών σφαλμάτων του δικτύου, ενώ για την ελαχιστοποίησή της υπολογίζεται η παράγωγός της, με τα βάρη να υπολογίζονται έτσι ώστε η παράγωγος αυτή να μειώνεται συνεχώς. Για αυτό το λόγο, οι αλγόριθμοι αυτής της κατηγορίας ονομάζονται αλλιώς και *αλγόριθμοι μείωσης της βαθμίδας*. Μια μαθηματική μορφή που μπορεί να γραφεί για κάθε επανάληψη αυτού του αλγορίθμου είναι η εξής:

$$\mathbf{W}_{k+1} = \mathbf{W}_k - a_k \mathbf{g}_k \quad (6.18)$$

όπου  $\mathbf{W}_{k+1}$  και  $\mathbf{W}_k$  οι συνολικοί πίνακες των συναπτικών βαρών του δικτύου στην  $k+1$  και  $k$  επανάληψη του αλγορίθμου, αντίστοιχα,  $\mathbf{g}_k$  η παράγωγος της αντικειμενικής συνάρτησης στην  $k$  επανάληψη και τέλος  $a_k$  ο ρυθμός εκμάθησης επίσης στην  $k$  επανάληψη [32].

Ο παραπάνω αλγόριθμος παρουσιάζει το μεγάλο πλεονέκτημα ότι όταν εφαρμόζεται σε δίκτυα σιγμοειδών συναρτήσεων ενεργοποίησης, μπορεί να οδηγήσει στην προσέγγιση οποιασδήποτε σχέσης εισόδου-εξόδου ανεξαρτήτως της πολυπλοκότητας της. Ωστόσο, δεν παύει να αποτελεί έναν πολύ αργό αλγόριθμο, ειδικά όταν συγκρίνεται με τις αντίστοιχες μεθόδους εκπαίδευσης γραμμικών ή βηματικών δικτύων. Συνεπώς, έχουν αναπτυχθεί πάρα πολλές παραλλαγές του με σκοπό την επιτάχυνση της διαδικασίας εκπαίδευσης. Οι αλγόριθμοι αυτοί με τη σειρά τους διακρίνονται στους *i) Ευρετικούς αλγόριθμους* και *ii) Αλγόριθμους αριθμητικής βελτιστοποίησης*, από τους οποίους θα αναφερθούν αλγόριθμοι μόνο της

δεύτερης κατηγορίας και για την ακρίβεια αλγόριθμοι που βασίζονται στη **μέθοδο του Newton** [32], [33].

Σύμφωνα με τη μέθοδο αυτή, τα συναπτικά βάρη μπορούν να υπολογιστούν με βάση την εξής σχέση για κάθε επανάληψη:

$$\mathbf{W}_{k+1} = \mathbf{W}_k - \mathbf{H}_k^{-1} \mathbf{g}_k \quad (6.19)$$

όπου  $\mathbf{H}_k$  η Εσσιανή μήτρα, δηλαδή πίνακας μερικών παραγώγων δεύτερης τάξης. Αν και η μέθοδος αυτή επιταχύνει κατά μεγάλο βαθμό τη διαδικασία εκπαίδευσης, παρουσιάζει το μειονέκτημα ότι απαιτεί τον υπολογισμό της Εσσιανής μήτρας, ο οποίος είναι πολύ περίπλοκος και υπολογιστικά κοστοβόρος. Συνεπώς, αντί για αυτή τη γενική μέθοδο, στην πράξη εφαρμόζονται παραλλαγές της που αποφεύγουν τον προαναφερθέν υπολογισμό χρησιμοποιώντας σχέσεις προσέγγισης της Εσσιανής μήτρας, από τις οποίες καλύτερη επίδοση όσον αφορά την ταχύτητα παρουσιάζει ο **αλγόριθμος Levenberg-Marquardt** [32].

Σύμφωνα με τον αλγόριθμο αυτό, σε περιπτώσεις όπου η αντικειμενική συνάρτηση έχει μορφή αθροίσματος τετραγώνων ισχύουν οι παρακάτω προσεγγιστικές σχέσεις για την Εσσιανή μήτρα και την παράγωγο της αντικειμενικής συνάρτησης:

$$\mathbf{H} = \mathbf{J}^T \mathbf{J} \quad (6.20)$$

$$\mathbf{g} = \mathbf{J}^T \mathbf{e} \quad (6.21)$$

όπου  $\mathbf{e}$  το διάνυσμα των σφαλμάτων του δικτύου και  $\mathbf{J}$  η Ιακωβιανή μήτρα, η οποία αποτελείται από τις παραγώγους πρώτης τάξης και ο υπολογισμός της έναντι της Εσσιανής είναι πολύ πιο απλός και γρήγορος. Έτσι, με βάση τις παραπάνω σχέσεις η Εξ. (6.19) λαμβάνει τη μορφή:

$$\mathbf{W}_{k+1} = \mathbf{W}_k - (\mathbf{J}^T \mathbf{J} - \mu \mathbf{I})^{-1} \mathbf{J}^T \mathbf{e} \quad (6.22)$$

όπου ο συντελεστής  $\mu$  καθορίζει το πόσο απότομη θα είναι η μείωση της αντικειμενικής συνάρτησης [31], [32], [33].

Ο αλγόριθμος Levenberg-Marquardt, όπως έχει ήδη αναφερθεί, επιταχύνει κατά μεγάλο ποσοστό την εκπαίδευση ενός δικτύου σε σύγκριση με άλλες τεχνικές οπισθοδιάδοσης, οπότε έχει πλέον καθιερωθεί ως η προτεινόμενη μέθοδος σε περιπτώσεις όπου το δίκτυο αποτελείται από έως και λίγες εκατοντάδες συναπτικά βάρη. Ωστόσο, όταν το δίκτυο είναι ακόμα μεγαλύτερο, ο αλγόριθμος αυτός προκαλεί έντονα προβλήματα υπερπροσαρμογής του δικτύου, φαινόμενο που αναλύθηκε λεπτομερώς παραπάνω. Αν και το πρόβλημα αυτό μπορεί να αντιμετωπιστεί και με άλλους τρόπους, όπως αύξηση των δεδομένων εκπαίδευσης ή τροποποίηση του μεγέθους του δικτύου, συχνά λύση δίνεται μέσω τροποποίησης του αλγορίθμου Levenberg-Marquardt, έτσι ώστε να διατηρείται η υψηλή ταχύτητα του αλλά

ταυτόχρονα να ενισχύεται η δυνατότητα του δικτύου να γενικεύει. Η τροποποίηση αυτή πραγματοποιείται είτε μέσω της **Αυτόματης Διακοπής**, είτε μέσω της **Κανονικοποίησης** [32].

Στην πρώτη περίπτωση, ταυτόχρονα με την εκπαίδευση πραγματοποιείται και προσομοίωση του δικτύου πάνω σε ανεξάρτητα δεδομένα εισόδου, οπότε αν παρατηρηθεί αύξηση των σφαλμάτων σε αυτά τα δεδομένα ενώ ταυτόχρονα τα σφάλματα της εκπαίδευσης είναι πολύ μικρά, τότε υποδεικνύεται ότι έχει ξεκινήσει η υπερπροσαρμογή του δικτύου και κατά συνέπεια η διαδικασία της εκπαίδευσης διακόπτεται αυτόματα, παρόλο που δεν έχει επιτευχθεί ελαχιστοποίηση της αντικειμενικής συνάρτησης. Στη δεύτερη περίπτωση, πραγματοποιείται τροποποίηση της αντικειμενικής συνάρτησης, έτσι ώστε αυτή να αποτελείται όχι μόνο από το άθροισμα των τετραγωνικών σφαλμάτων, αλλά και από το άθροισμα των τετραγώνων των συναπτικών βαρών, οδηγώντας έτσι στην ταυτόχρονη μείωση και των δύο. Έχει αποδειχθεί ότι τα δίκτυα που αποτελούνται από μικρές τιμές συναπτικών βαρών είναι πολύ σταθερότερα και παρουσιάζουν πολύ πιο δύσκολα υπερπροσαρμογή, καθώς αποφεύγεται να δοθεί υπερβολικά μεγάλη βαρύτητα σε συγκεκριμένες μεταβλητές εις βάρος των υπολοίπων [32].

Η αντικειμενική συνάρτηση  $F$  στην περίπτωση ενός κανονικοποιημένου αλγορίθμου οπισθοδιάδοσης δίνεται από τη σχέση [31], [32], [33]:

$$F = \alpha E_w + \beta E_d \quad (6.23)$$

όπου  $E_w$  και  $E_d$  οι δύο προαναφερθέντες όροι, οι οποίοι ορίζονται ως:

$$E_w = \sum w_i^2 \quad (6.24)$$

$$E_d = \sum (\hat{y}_i - y_i)^2 \quad (6.25)$$

Οι συντελεστές  $\alpha$  και  $\beta$  έχουν ως σκοπό τη στάθμιση των δύο όρων, έτσι ώστε να δίνεται στον καθένα η ανάλογη βαρύτητα που επιθυμείται. Αν  $\alpha \gg \beta$  δίνεται έμφαση στη μείωση των συναπτικών βαρών και την επακόλουθη αύξηση της σταθερότητας του δικτύου αλλά η εκπαίδευση του δικτύου ίσως να μην είναι επαρκής, ενώ αν  $\beta \gg \alpha$  δίνεται έμφαση στη μείωση των σφαλμάτων εκπαίδευσης αλλά γίνεται πιθανότερη η εμφάνιση υπερπροσαρμογής. Προφανώς, πάντα ισχύει ότι  $\alpha + \beta = 1$ , ενώ για  $\alpha = 0$  η αντικειμενική συνάρτηση καταλήγει στην τυπική της μορφή που χρησιμοποιείται στις κλασικές μεθόδους οπισθοδιάδοσης [31], [34].

Τώρα, πρέπει να αντιμετωπιστεί το ζήτημα της επιλογής κατάλληλων τιμών για τους δύο συντελεστές κανονικοποίησης, έτσι ώστε να μην εμφανιστεί καμία από τις δύο παραπάνω ακραίες περιπτώσεις. Η απάντηση δίνεται μέσω του Μπεϋζιανού πλαισίου κανονικοποίησης και για αυτό το λόγο η μέθοδος εκπαίδευσης που χρησιμοποιεί την αντικειμενική συνάρτηση της Εξ. (6.23) σε συνδυασμό με αυτό το πλαίσιο ονομάζεται **Μπεϋζιανή Κανονικοποίηση** [32].

Στη μέθοδο αυτή, οι παράμετροι  $\alpha$ ,  $\beta$  θεωρούνται τυχαίες μεταβλητές που περιγράφονται από συγκεκριμένες κατανομές, οπότε ο προσδιορισμός των βέλτιστων τιμών τους πραγματοποιείται μέσω του θεωρήματος του Bayes, σύμφωνα με το οποίο για συγκεκριμένο σύνολο δεδομένων εκπαίδευσης  $D$  και μοντέλο νευρωνικού δικτύου  $M$  η τελική κατανομή των συναπτικών βαρών δίνεται από τη σχέση [31], [34]:

$$P(\mathbf{W}|D, \alpha, \beta, M) = \frac{P(D|\mathbf{W}, \beta, M)P(\mathbf{W}|\alpha, M)}{P(D|\alpha, \beta, M)} \quad (6.26)$$

όπου  $P(\mathbf{W}|\alpha, M)$  η αρχική κατανομή των συναπτικών βαρών πριν την εκπαίδευση,  $P(D|\mathbf{W}, \beta, M)$  η πιθανότητα να προκύψουν τα δεδομένα εκπαίδευσης από τα βάρη που υπολογίστηκαν και τέλος  $P(D|\alpha, \beta, M)$  ο παράγοντας κανονικοποίησης. Ελαχιστοποίηση της αντικειμενικής συνάρτησης ισοδυναμεί με μεγιστοποίηση του όρου  $P(\mathbf{W}|D, \alpha, \beta, M)$ , το οποίο με τη σειρά του ισοδυναμεί με μεγιστοποίηση της κατανομής των  $\alpha$  και  $\beta$ , η οποία δίνεται από την εξής σχέση [31], [34]:

$$P(\alpha, \beta|D, M) = \frac{P(D|\alpha, \beta, M)P(\alpha, \beta|M)}{P(D|M)} \quad (6.27)$$

από την οποία συμπεραίνεται ότι η μεγιστοποίηση της κατανομής των  $\alpha$  και  $\beta$  ισοδυναμεί με μεγιστοποίηση της πιθανότητας  $P(D|\alpha, \beta, M)$ . Μετά από αρκετούς μαθηματικούς χειρισμούς προσδιορίζεται η ακριβής σχέση που δίνει αυτή την πιθανότητα, ενώ μετά από επιπλέον μαθηματικούς χειρισμούς υπολογίζονται οι τιμές των  $\alpha$  και  $\beta$  που τη μεγιστοποιούν. Αναφέρεται ότι στις σχέσεις αυτές συμμετέχει και η Εσσιανή μήτρα, η οποία προσεγγίζεται σύμφωνα με την Εξ. (6.20). Τέλος, αφού προσδιοριστούν οι βέλτιστες τιμές των παραμέτρων κανονικοποίησης  $\alpha$ ,  $\beta$  και κατά συνέπεια η ακριβής μορφή της αντικειμενικής συνάρτησης  $F$ , η μέθοδος αξιοποιεί τον αλγόριθμο Levenberg-Marquardt [31], [34].

## 6.6. Δυναμικά Τεχνητά Νευρωνικά Δίκτυα: Δίκτυο NARX

Όπως αναφέρθηκε και στην Εν. 6.4.2, τα ANN διακρίνονται σε στατικά και δυναμικά δίκτυα, με τα πρώτα να είναι κατά κύριο λόγο δίκτυα πρόσθιας τροφοδότησης ενώ τα δεύτερα είναι συνήθως αναδρομικά δίκτυα, δηλαδή περιέχουν τουλάχιστο μια ανατροφοδότηση. Φυσικά, υπάρχουν και εξαιρέσεις και για τις δύο περιπτώσεις. Τα δυναμικά δίκτυα είναι γενικώς πιο ισχυρά από τα στατικά, καθώς μπορούν να προσεγγίσουν όχι μόνο αμφιμονοσήμαντες σχέσεις εισόδου-εξόδου αλλά και χρονικά μεταβαλλόμενα πρότυπα. Η σημαντική αυτή ιδιότητα έχει οδηγήσει στην αξιοποίηση τους σε ένα μεγάλο εύρος εφαρμογών, όπως το μη γραμμικό φιλτράρισμα, την πρόβλεψη μελλοντικών τιμών εξόδου για δεδομένη είσοδο, τη ρύθμιση και τη μαθηματική μοντελοποίηση μη γραμμικών δυναμικών συστημάτων. Η τελευταία τους αυτή δυνατότητα αξιοποιείται και στην παρούσα εργασία [32].

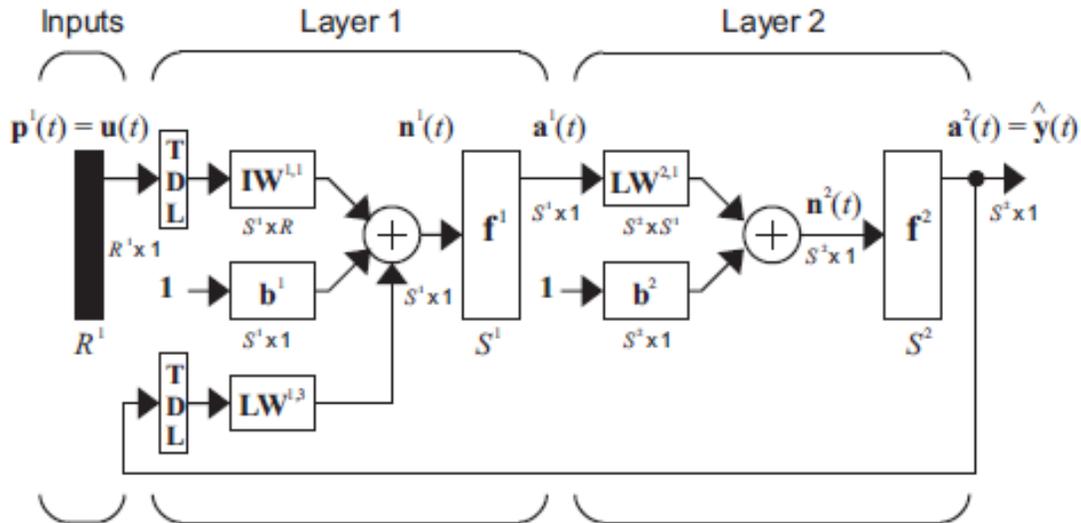
Φυσικά, τα δίκτυα αυτά είναι αρκετά πιο πολύπλοκα από τα στατικά πρόσθιας τροφοδότησης, καθώς η πληροφορία κατευθύνεται και προς τα πίσω, ενώ επίσης κάθε μεταβλητή εξαρτάται και από το χρόνο. Το γεγονός αυτό καθιστά την εκπαίδευση τους αρκετά πιο υπολογιστικά επίπονη. Κατά τη συντριπτική πλειονότητα των περιπτώσεων, η εκπαίδευση τους πραγματοποιείται με αλγόριθμους οπισθοδιάδοσης, οι οποίοι αναλύθηκαν σε μεγάλο βαθμό στην προηγούμενη ενότητα. Ωστόσο, ο υπολογισμός της παραγώγου είναι αρκετά πιο πολύπλοκος σε αυτή την περίπτωση, καθώς από το δεύτερο χρονικό βήμα και μετά, κάποιες από τις εισόδους του δικτύου εξαρτώνται από τα συναπτικά βάρη που υπολογίσθηκαν στο προηγούμενο χρονικό βήμα. Όταν αυτές οι «ιδιαιτερότητες» που προκύπτουν λόγω της δυναμικής συμπεριφοράς του δικτύου λαμβάνονται υπόψη κατά την εκπαίδευση τους, τότε η μέθοδος ονομάζεται **Δυναμική Οπισθοδιάδοση**. Τέλος, επισημαίνεται ότι πολλές φορές η δυναμική οπισθοδιάδοση μπορεί να αποφευχθεί και ένα δυναμικό δίκτυο μπορεί να εκπαιδευτεί και μέσω τυπικής οπισθοδιάδοσης, κάτι που θα εξηγηθεί παρακάτω [32].

Ένα πολύ ισχυρό δυναμικό αναδρομικό δίκτυο είναι το **NARX**, το οποίο έχει πάρει το όνομα του από το ομώνυμο στατιστικό μοντέλο «**Nonlinear autoregressive with external input**», το οποίο περιγράφεται από την εξής εξίσωση:

$$\mathbf{y}(t_k) = f \left[ \mathbf{x}(t_{k-n_x}), \dots, \mathbf{x}(t_{k-1}), \mathbf{x}(t_k), \mathbf{y}(t_{k-n_y}), \dots, \mathbf{y}(t_{k-1}) \right] \quad (6.28)$$

δηλαδή η έξοδος του μοντέλου τη χρονική στιγμή  $t_k$  εξαρτάται από την είσοδο την ίδια χρονική στιγμή, καθώς και από τις εισόδους και τις εξόδους προηγούμενων χρονικών στιγμών. Οι παράμετροι  $n_x$  και  $n_y$  ονομάζονται καθυστερήσεις ή τάξεις μνήμης της εισόδου και της εξόδου, αντίστοιχα, και πρακτικά ορίζουν τον αριθμό των παρελθοντικών χρονικών βημάτων που επηρεάζουν την «τωρινή» έξοδο. Όταν η μη γραμμική συνάρτηση  $f$  προσδιορίζεται μέσω εκπαίδευσης κάποιου ANN, τότε το μοντέλο αυτό περιγράφει συγκεκριμένα ένα δυναμικό αναδρομικό δίκτυο NARX [32], [35], [36].

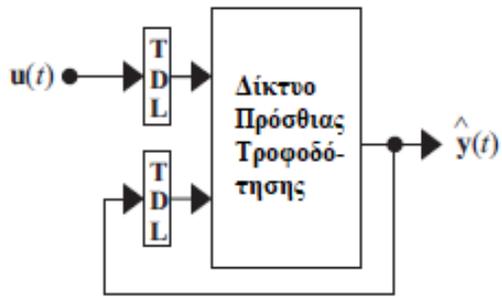
Σε αντίθεση με άλλα αναδρομικά δίκτυα, το NARX περιέχει μόνο μια ανατροφοδοσία, η οποία ξεκινά από το επίπεδο εξόδου και καταλήγει στο επίπεδο εισόδου. Το γεγονός αυτό όχι μόνο δεν οδηγεί σε απώλεια υπολογιστικής δύναμης, αλλά αντιθέτως καθιστά τα δίκτυα NARX πολύ ισχυρά, ενώ επίσης τους προσδίδει αρκετά πλεονεκτήματα, όπως πιο αποτελεσματική εκπαίδευση μέσω οπισθοδιάδοσης και μείωση της ευαισθησίας του δικτύου σε μακροπρόθεσμες εξαρτήσεις. Επιπλέον, τα δίκτυα αυτά συγκλίνουν πιο γρήγορα και παρουσιάζουν αυξημένη δυνατότητα γενίκευσης. Ένα τυπικό NARX δίκτυο τριών επιπέδων απεικονίζεται στο Σχήμα 6.6 [35], [36].



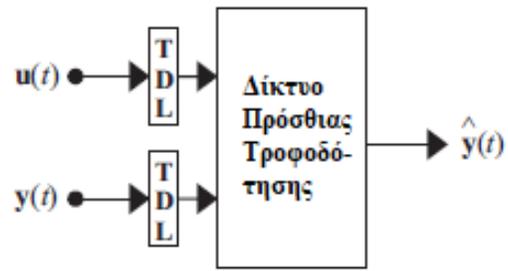
Σχήμα 6.6: Δίκτυο NARX τριών επιπέδων

Τα NARX δίκτυα μπορούν να λειτουργήσουν σε δύο διαφορετικές αρχιτεκτονικές διαμορφώσεις, την *Παράλληλη* και τη *σειριακή-Παράλληλη*, οι οποίες παρουσιάζονται στο Σχήμα 6.7. Η παράλληλη διαμόρφωση, η οποία ταυτίζεται με το δίκτυο του Σχήμα 6.6, χρησιμοποιείται κατά την προσομοίωση του δικτύου, όπου η έξοδος του προηγούμενου χρονικού βήματος τροφοδοτείται πίσω στο επίπεδο εισόδου κατά το τωρινό χρονικό βήμα, προσδίδοντας την ιδιότητα της μνήμης και επακόλουθα της δυναμικότητας που χαρακτηρίζει αυτά τα δίκτυα. Τονίζεται ότι λόγω της συγκεκριμένης δομής υπάρχει σημαντικός κίνδυνος συσσώρευσης σφαλμάτων με την πάροδο του χρόνου. Για αυτό το λόγο, η ορθή εκπαίδευση και ο ακριβής προσδιορισμός της συνάρτησης  $f$  παίζει τεράστιο ρόλο στην αποτελεσματική λειτουργία ενός NARX δικτύου [32].

Στη σειριακή-παράλληλη διαμόρφωση η ανατροφοδοσία εξαλείφεται και αντ' αυτού το δίκτυο τροφοδοτείται με τα πραγματικά διανύσματα εξόδου που αντιστοιχούν σε κάθε διάνυσμα εισόδου που τροφοδοτεί το δίκτυο. Φυσικά, και τα δύο αυτά διανύσματα είναι χρονικά μεταβαλλόμενα καθώς ακόμα και χωρίς την ανατροφοδοσία πρόκειται για ένα δυναμικό δίκτυο. Η διαμόρφωση αυτή εφαρμόζεται συνήθως κατά την εκπαίδευση του δικτύου, όπου οι πραγματικές έξοδοι είναι διαθέσιμες. Αν και το NARX μπορεί να εκπαιδευτεί και στην παράλληλη αρχιτεκτονική, η εκπαίδευση του στη σειριακή-παράλληλη παρουσιάζει το πολύ σημαντικό πλεονέκτημα πως το δίκτυο ακολουθεί μια αρχιτεκτονική καθαρά πρόσθιας τροφοδότησης, σαν αυτές που παρουσιάζονται στα Σχήμα 6.4 και Σχήμα 6.5, το οποίο επιτρέπει τη χρήση αλγορίθμων στατικής οπισθοδιάδοσης (βλ. Εν. 6.5.2), οι οποίοι είναι πολύ πιο απλοί και υπολογιστικά «φθηνοί» συγκριτικά με τη δυναμική οπισθοδιάδοση [32].



**α) Παράλληλη Αρχιτεκτονική**



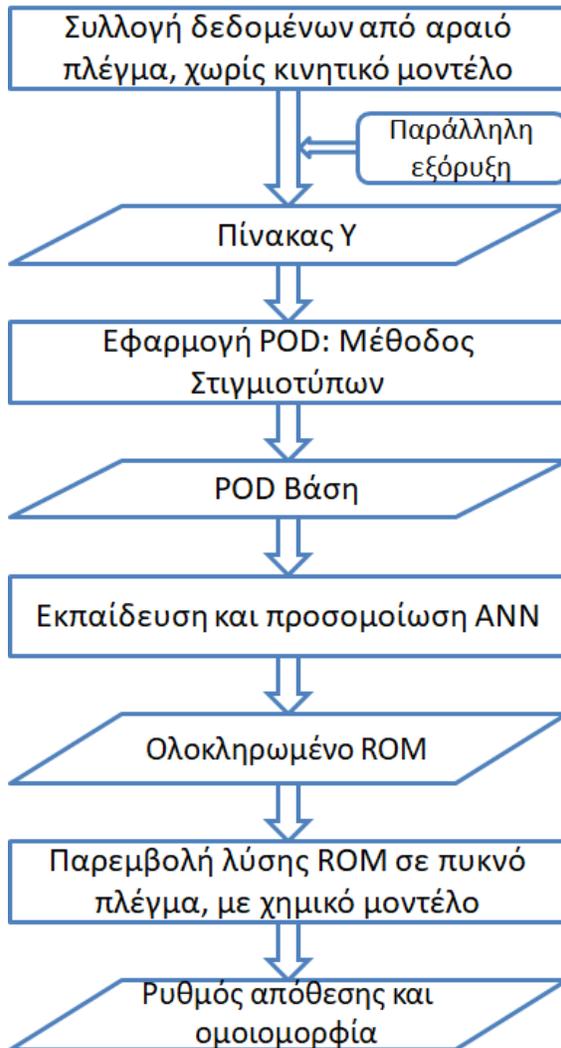
**β) Σειριακή-Παράλληλη Αρχιτεκτονική**

Σχήμα 6.7: Οι δύο τυπικές αρχιτεκτονικές διαμορφώσεις των NARX δικτύων



## 7. Υπολογιστική διαδικασία και αποτελέσματα

### 7.1. Υπολογιστική διαδικασία



Σχήμα 7.1: Διάγραμμα ροής υπολογιστικής διαδικασίας – Υπολογιστικό πλαίσιο εργασίας

Στο Σχήμα 7.1 παρουσιάζεται το συνολικό διάγραμμα ροής της υπολογιστικής διαδικασίας που ακολουθήθηκε στο πλαίσιο της παρούσας εργασίας, η οποία ουσιαστικά αποτελεί το υπολογιστικό πλαίσιο που προτείνεται για την αποδοτική και αποτελεσματική αντιμετώπιση προβλημάτων υπολογιστικής ρευστοδυναμικής που αποτελούνται από τρισδιάστατα λεπτομερή CFD μοντέλα μεγάλης κλίμακας. Όπως αναφέρθηκε και στην Εν. 3.4, ο πυρήνας αυτού του πλαισίου είναι η δημιουργία ενός μοντέλου μειωμένης τάξης (ROM) με εφαρμογή Ορθής Ορθογώνιας Αποσύνθεσης (POD) και Τεχνητών Νευρωνικών Δικτύων (ANN), ενώ επιπλέον το πλαίσιο εμπλουτίζεται με τεχνικές παράλληλου προγραμματισμού και παρεμβολής από-πλέγμα-σε-πλέγμα. Το μοντέλο που προκύπτει έχει τη δυνατότητα μέσα σε ελάχιστα λεπτά να προβλέπει τα πεδία ροής, τα οποία τροφοδοτούνται στο πλήρες μοντέλο, με αποτέλεσμα την ταχύτερη σύγκλιση του και τον υπολογισμό του ρυθμού απόθεσης και της ομοιομορφίας των υμενίων για διάφορες συνθήκες της διεργασίας. Τέλος, επισημαίνεται ότι το πλαίσιο αυτό μπορεί να

εφαρμοστεί σε οποιοδήποτε CFD πρόβλημα και με χρήση οποιουδήποτε CFD κώδικα, αρκεί να τηρούνται κάποιες προϋποθέσεις (βλ. 3.4), ενώ ο πυρήνας του, δηλαδή η μείωση τάξης, μπορεί να εφαρμοστεί σε οποιοδήποτε υπολογιστικό πρόβλημα, καθώς βασίζεται αποκλειστικά σε αξιοποίηση δεδομένων και όχι εκ των προτέρων γνώση των ιδιοτήτων του συστήματος και των εξισώσεων που το διέπουν. Στις υποενότητες που ακολουθούν περιγράφονται συνοπτικά τα επιμέρους στάδια της διαδικασίας που απεικονίζονται στο Σχήμα 7.1.

## 7.2. Συλλογή δεδομένων – Επίλυση λεπτομερούς υδροδυναμικού μοντέλου

Τα δεδομένα που χρησιμοποιούνται για την κατασκευή του μοντέλου μειωμένης τάξης αποτελούν αποτελέσματα προσομοίωσης του λεπτομερούς υδροδυναμικού μοντέλου του μελετώμενου αντιδραστήρα (βλ. Εν. 2.2) και συλλέγονται από την επίλυση του μοντέλου αυτού σε μεταβατική κατάσταση. Η επίλυση του μοντέλου πραγματοποιείται στο **αραιό πλέγμα**, το οποίο αποτελείται από 309155 κελιά, οπότε το διάλυμα κατάστασης που υπολογίζεται κάθε φορά περιέχει 1545775 στοιχεία, τα οποία αντιστοιχούν στις τιμές των συνιστωσών  $x$ ,  $y$  και  $z$  της ταχύτητας, στην πίεση και τέλος στη θερμοκρασία, για κάθε κελί του πλέγματος. Επισημαίνεται ότι οι λύσεις που προκύπτουν από το αραιό πλέγμα δεν αποτελούν πραγματικές καταστάσεις του αντιδραστήρα, λόγω του υψηλού σφάλματος που εμπεριέχουν. Ενδεικτικά αναφέρεται ότι το πυκνό πλέγμα αποτελείται από 1232468 κελιά και το αντίστοιχο διάλυμα κατάστασης από 6162340 στοιχεία.

Αρχικά, υπολογίζονται μόνιμες καταστάσεις του αντιδραστήρα για διάφορες τιμές της παροχής εισόδου του DMEAA, η οποία όπως έχει ήδη αναφερθεί αποτελεί και τη μεταβλητή εισόδου του συστήματος (βλ. Εν. 5.2). Στη συνέχεια, οι μόνιμες καταστάσεις χρησιμοποιούνται ως αρχικές καταστάσεις σε βηματικές επιβολές που ασκούνται στην παροχή, εντός του εύρους 1.5 έως 2 sccm, το οποίο επιλέχθηκε με βάση τις ρεαλιστικές τιμές που χρησιμοποιούνται στον πραγματικό αντιδραστήρα. Η μεταβλητή εξόδου του συστήματος είναι το διάλυμα κατάστασης του αντιδραστήρα  $x(t)$  μετά από κάθε χρονικό βήμα  $\Delta t$  των παραπάνω επιβολών, το οποίο αποτελεί το στιγμιότυπο του αντιδραστήρα τη συγκεκριμένη χρονική στιγμή. Το σύνολο όλων των στιγμιότυπων για μια επιβολή συνθέτει την τροχιά του αντιδραστήρα στο χρόνο για την επιβολή αυτή, η οποία αποτελεί πρακτικά τη δυναμική απόκριση του συστήματος  $Y_i = [x(t_0) \ x(t_1) \ \dots \ x(t_{m_i-1})]$ .

Κατά την προαναφερθείσα δυναμική μελέτη του αντιδραστήρα, οι βηματικές επιβολές γίνονται μέσω του προγραμματιστικού περιβάλλοντος Matlab, το οποίο καλεί εξωτερικά το Fluent. Για κάθε χρονικό βήμα  $k$ , ως αρχική συνθήκη λαμβάνεται η κατάσταση του προηγούμενου βήματος, δηλαδή  $x(t_{k-1})$ , ενώ σε κάθε βήμα πραγματοποιούνται 200 επαναλήψεις της μεθόδου πεπερασμένων όγκων (βλ. Εν. 2.3.2). Η διαδικασία επίλυσης ξεκινάει τη χρονική στιγμή  $t_0 = 0 \text{ s}$ , ενώ το στιγμιότυπο  $x(t_0)$  αντιστοιχεί στη μόνιμη κατάσταση που χρησιμοποιήθηκε ως αρχική συνθήκη για την επιβολή.

Η σύγκλιση της επίλυσης στη νέα μόνιμη κατάσταση της επιβολής ελέγχεται επίσης μέσω του Matlab, με υπολογισμό της νόρμας της διαφοράς δύο διαδοχικών διανυσμάτων κατάστασης (στιγμιότυπων), η οποία πρέπει να είναι μικρότερη ενός προκαθορισμένου ορίου ανοχής, το οποίο στην προκειμένη περίπτωση είναι  $10^{-6}$ , δηλαδή:

$$\frac{\|x(t_{k-1}) - x(t_k)\|}{\|x(t_k)\|} < 10^{-6} \quad (7.1)$$

Η ανοχή  $10^{-6}$  στην επίλυση του συστήματος εξισώσεων υποδηλώνει σύγκλιση (χρονικά) στη νέα μόνιμη κατάσταση. Με σκοπό την επιβεβαίωση της συγκεκριμένης παραδοχής, τα διανύσματα κατάστασης που καταλήγουν οι επιβολές στο τέλος τους συγκρίνονται με τα διανύσματα κατάστασης που είχαν υπολογισθεί αρχικά ως μόνιμες καταστάσεις για διάφορες τιμές της παροχής του DMEAA. Το σχετικό σφάλμα των δύο καταστάσεων τείνει στο μηδέν και άρα η κατάσταση του αντιδραστήρα έχει συγκλίνει στη νέα μόνιμη κατάσταση, συνεπώς η παραδοχή της συγκεκριμένης ανοχής κρίνεται αποδεκτή.

Τέλος, οι τροχιές των επιβολών που συλλέχθηκαν μέσω εξόρυξης τους από το Fluent «ενώνονται» σε έναν κοινό πίνακα, ο οποίος αποτελεί την είσοδο της POD. Ο πίνακας αυτός δεν είναι κανένας άλλος από τον πίνακα  $\mathbf{Y}$  που περιγράφηκε διεξοδικά στην ενότητα 5.3.2. και περιέχει όλα τα στιγμιότυπα όλων των επιβολών.

### 7.3. Παράλληλη επεξεργασία και προγραμματισμός

#### 7.3.1. Παράλληλη επεξεργασία

Όλες οι προσομοιώσεις που πραγματοποιήθηκαν στο πλαίσιο της παρούσας εργασίας, έτρεξαν στη συστοιχία υπολογιστών Polyglas, η οποία στεγάζεται στο Υπολογιστικό Κέντρο της Σχολής Χημικών Μηχανικών του Εθνικού Μετσόβιου Πολυτεχνείου. Πρόκειται για μια συστοιχία 32 πυρήνων, με τον κάθε πυρήνα να αποτελείται από έναν οκταπύρρηνο επεξεργαστή συχνότητας 2.4 GHz και 4 GB μνήμης RAM, με αποτέλεσμα να διαθέτει συνολικά 32 οκταπύρρους επεξεργαστές και 128 GB μνήμης RAM.

Όσον αφορά τις προσομοιώσεις αυτές καθ' αυτές, οι πυρήνες που επιστρατεύονται να λειτουργήσουν ως υπολογιστικοί κόμβοι είναι πάντα 12, ενώ το πλέγμα διαμερίζεται σε επίσης 12 τμήματα. Συνεπώς, σε κάθε κόμβο αντιστοιχεί και ένα τμήμα του πλέγματος. Τονίζεται ότι αυτές οι τιμές προέκυψαν από ανάλυση της μείωσης του υπολογιστικού χρόνου κατά την παράλληλη επεξεργασία μεταξύ του εύρους 10 έως 14 κόμβων. Σημειώνεται ότι αύξηση των κόμβων πάνω από ένα συγκεκριμένο όριο επιφέρει μείωση της ταχύτητας επίλυσης, λόγω του ότι αυξάνεται υπερβολικά ο χρόνος επικοινωνίας μεταξύ των κόμβων.

Τέλος, η μέθοδος διαμερισμού που εφαρμόζεται είναι η Principal Axis, κατά την οποία το υπολογιστικό χωρίο διχοτομείται με βάση τις κύριες συντεταγμένες του (αυτές μπορεί και να ταυτίζονται με τις καρτεσιανές). Η μέθοδος επιλέχθηκε λόγω του γεγονότος ότι διευκολύνει σημαντικά την εξόρυξη δεδομένων από τα αποτελέσματα των προσομοιώσεων, διαδικασία

που αποτελεί αναπόσπαστο κομμάτι του υπολογιστικού πλαισίου που οικοδομείται στην παρούσα εργασία, όπως αναφέρθηκε και στην Εν. 3.4. Φυσικά, πραγματοποιήθηκε και μελέτη σύγκρισης της ταχύτητας αυτής της μεθόδου με την METIS, η οποία συχνά αποτελεί την προτιμότερη μέθοδο, με τα αποτελέσματα να είναι συγκρίσιμα. Επιπλέον, πραγματοποιήθηκε και βελτιστοποίηση του διαμερισμού με χρήση της τεχνικής της λείανσης που αναφέρθηκε στην Εν. 4.1.3.

### 7.3.2. Παράλληλος προγραμματισμός

Τα δεδομένα των οποίων απαιτείται η εξόρυξη (για λόγους που αναφέρθηκαν στην Εν. 3.4 και θα αναλυθούν παρακάτω) είναι τα πεδία των τριών συνιστωσών της ταχύτητας, η πίεση και η θερμοκρασία, τα οποία εγγράφονται σε αρχεία για χρήση τους στη διαδικασία δημιουργίας του μοντέλου μειωμένης τάξης. Τα 5 αυτά πεδία συνιστούν τα υδροδυναμικά χαρακτηριστικά της ροής εντός του αντιδραστήρα. Η εξόρυξη τους από αποτελέσματα σειριακού επιλύτη πραγματοποιείται μέσω ενός UDF, το οποίο πρακτικά δημιουργεί βρόγχους επανάληψης πάνω σε όλα τα κελιά του πλέγματος, ενώ εντός κάθε βρόγχου περιέχονται εντολές που διαβάζουν και στη συνέχεια γράφουν τις τιμές των παραπάνω πεδίων για το εκάστοτε κελί σε ένα αρχείο που είχε ανοίξει πριν την εκτέλεση των βρόγχων και αντίστοιχα κλείνει μετά την εγγραφή των προαναφερθέντων τιμών. Το UDF ενεργοποιείται κατά το κλείσιμο του Fluent.

Τα στάδια της παραλληλοποίησης αυτού του UDF που ακολουθήθηκαν είναι συνοπτικά τα εξής:

1. Ο HOST ανοίγει το αρχείο.
2. Κάθε υπολογιστικός κόμβος λαμβάνει πρόσβαση στα αποτελέσματα των κελιών του τμήματος του πλέγματος που αυτός είχε αναλάβει κατά την παράλληλη προσομοίωση του μοντέλου.
3. Κάθε υπολογιστικός κόμβος δημιουργεί βρόγχους πάνω στα κελιά του, διαβάζει τις τιμές των επιζητούμενων μεγεθών και τέλος τις αποθηκεύει σε κατάλληλους πίνακες.
4. Ο κόμβος-0 στέλνει πρώτος τα δικά του δεδομένα στην HOST.
5. Οι υπόλοιποι κόμβοι στέλνουν τα δικά τους δεδομένα στον κόμβο-0.
6. Ο κόμβος-0 τα παραλαμβάνει και με τη σειρά του τα στέλνει στην HOST με την κατάλληλη σειρά.
7. Ο HOST τα παραλαμβάνει και τα συμπυκνώνει σε έναν πίνακα για κάθε πεδίο.
8. Τέλος, ο HOST γράφει τους 5 πίνακες στο αρχείο και στη συνέχεια το κλείνει.

Σημειώνεται ότι και το παράλληλο UDF ενεργοποιείται κατά το κλείσιμο του Fluent.

## 7.4. Σχεδιασμός POD βάσης

Η κατασκευή της βάσης βασίζεται στην POD και πιο συγκεκριμένα στη μέθοδο στιγμιοτύπων, ενώ πραγματοποιείται αποκλειστικά μέσω του Matlab. Αφού δημιουργηθεί ο πίνακας  $\mathbf{Y}$ , ακολουθεί η κανονικοποίηση του μέσω των εξισώσεων (5.32), (5.33) και (5.34). Στη συνέχεια, υπολογίζεται ο πίνακας συσχέτισης  $\mathbf{K}'$  (Εξ. (5.19)), καθώς και οι ιδιοτιμές και ιδιοδιανύσματα αυτού μέσω κατάλληλων εντολών του Matlab. Τέλος, από την εξίσωση (5.20) υπολογίζονται τα ιδιοδιανύσματα του πίνακα συσχέτισης  $\mathbf{K}$ , τα οποία σχηματίζουν την ορθοκανονική POD βάση  $\mathbf{Z}$  (Εξ. (5.23)). Η επιλογή της διάστασης της βάσης κρίνεται με ταυτόχρονη σύγκριση των τιμών  $I(d)$ , οι οποίες υπολογίζονται από την Εξ. (5.30) και από τον προσδιορισμό των σφαλμάτων (Εξ. (5.35) - (5.37)). Οι προσεγγιστικές καταστάσεις-στιγμιότυπα που υπεισέρχονται στις εξισώσεις των σφαλμάτων υπολογίζονται από την Εξ. (5.27) και οι αντίστοιχοι συντελεστές από την Εξ. (5.28).

Κατά το σχεδιασμό της διαδικασίας της αποσύνθεσης, οι δύο κρισιμότερες παράμετροι που πρέπει να διερευνηθούν διεξοδικά από το σχεδιαστή είναι:

- a) Το απαραίτητο πλήθος στιγμιοτύπων στον πίνακα  $\mathbf{Y}$
- b) Το απαραίτητο πλήθος των κυρίων POD διανυσμάτων, δηλαδή η διάσταση της βάσης  $\mathbf{Z}$

Η στρατηγική σχεδιασμού που ακολουθήθηκε στην παρούσα εργασία λαμβάνει υπόψη της και τα δύο αυτά κριτήρια. Πιο συγκεκριμένα, μελετώνται δύο ανεξάρτητα μεταξύ τους σενάρια όσον αφορά το κριτήριο (a), μεταβάλλοντας τον αριθμό των επιβολών που απαρτίζουν τον πίνακα  $\mathbf{Y}$ , ενώ το κριτήριο (b) διερευνάται σε κάθε σενάριο, συγκρίνοντας το ποσοστό πληροφορίας καθώς και τα σφάλματα των βάσεων που προκύπτουν για διάφορα πλήθη χρησιμοποιούντων ιδιοδιανυσμάτων. Στο τέλος, γίνεται μια «πανοραμική» σύγκριση όλων των περιπτώσεων ώστε να αποφασισθεί ποια βάση είναι η βέλτιστη.

Επίσης, υπενθυμίζεται ότι η μελέτη περιορίζεται στο διάστημα παροχής DMEAA=1.5 – 2.0 scst, καθώς για λόγους που αναφέρθηκαν στην Εν. 3.3.3 αυτό αποτελεί το ρεαλιστικό εύρος παροχών που χρησιμοποιείται και στην πειραματική διάταξη. Τέλος, επισημαίνεται πως η συνολική διαδικασία πραγματοποιήθηκε για τρεις διαφορετικές θερμοκρασίες (151, 185, 241 °C) αλλά παρουσιάζονται αποτελέσματα μόνο από την πρώτη καθώς αυτά ταυτίζονται σε πολύ μεγάλο βαθμό και με τα αντίστοιχα που προέκυψαν από τη μείωση τάξης που πραγματοποιήθηκε στις υπόλοιπες θερμοκρασίες.

### 7.4.1. Σενάριο 1: 4 Επιβολές

Αρχικά, χρησιμοποιούνται τέσσερις επιβολές για τη δημιουργία του πίνακα  $\mathbf{Y}$ , ένας αριθμός που επιλέχθηκε ως μια λογική αφετηρία έτσι ώστε να κριθεί αν χρειάζεται αύξηση ή μείωση του. Επιπλέον, οι τέσσερις επιβολές που χρησιμοποιήθηκαν επιλέχθηκαν έτσι ώστε να

καλύπτουν πλήρως το διάστημα, να περιλαμβάνουν μικρές αλλά και μεγάλες μεταβολές και τέλος να περιέχονται επιβολές τόσο από το πάνω προς το κάτω όριο όσο και με την αντίθετη «κατεύθυνση». Οι τέσσερις επιβολές που χρησιμοποιήθηκαν με βάση τα παραπάνω παρατίθενται στον Πίνακας 7.1:

Πίνακας 7.1: Επιβολές πίνακα Y

Αρχική Παροχή (sccm)	Τελική Παροχή (sccm)
1.5	2.0
1.9	1.5
1.5	1.8
1.8	2.0

Η μελέτη περιορίζεται σε βάσεις από ένα έως και τέσσερα κύρια διανύσματα, καθώς η χρήση περισσότερων, τουλάχιστον σε πρώτη φάση, κρίνεται ως υπερβολική. Στον Πίνακας 7.2 παρουσιάζονται τα σχετικά πληροφοριακά περιεχόμενα I(d) κάθε βάσης, όπου d οι στήλες. Ο δείκτης των Z δείχνει αυτή τη διάσταση. Υπενθυμίζεται ότι όπως και το διάνυσμα κατάστασης, έτσι και κάθε στήλη της βάσης περιέχει 1545775 στοιχεία (βλ. Εν.7.2), δηλαδή η βάση αποτελείται από 1545775 γραμμές.

Πίνακας 7.2: Σχετικά πληροφοριακά περιεχόμενα βάσεων

Βάση διάστασης d	Σχετικό πληροφοριακό περιεχόμενο I(d)
Z <sub>1</sub>	0.4747
Z <sub>2</sub>	0.7846
Z <sub>3</sub>	0.8915
Z <sub>4</sub>	0.9313

Όπως παρατηρείται, και οι τέσσερις βάσεις περιέχουν ένα σχετικά χαμηλό πληροφοριακό περιεχόμενο σε σχέση με τα συνηθισμένα «στάνταρ» της POD. Πιο συγκεκριμένα, η βάση Z<sub>1</sub> δεν διατηρεί ούτε το μισό της πληροφορίας του πίνακα Y, ενώ με την προσθήκη ενός ακόμα ιδιοδιανύσματος το ποσοστό αυξάνει σημαντικά. Περαιτέρω προσθήκες ιδιοδιανυσμάτων επιφέρουν όλο και μικρότερες αυξήσεις, το οποίο είναι αναμενόμενο καθώς όπως αναφέρθηκε και στο Κεφ. 5, οι πρώτες ιδιοτιμές είναι κατά πολύ μεγαλύτερες από τις επόμενες ενώ τα αντίστοιχα τους ιδιοδιανύσματα εμπεριέχουν τη μεγαλύτερο ποσοστό της πληροφορίας.

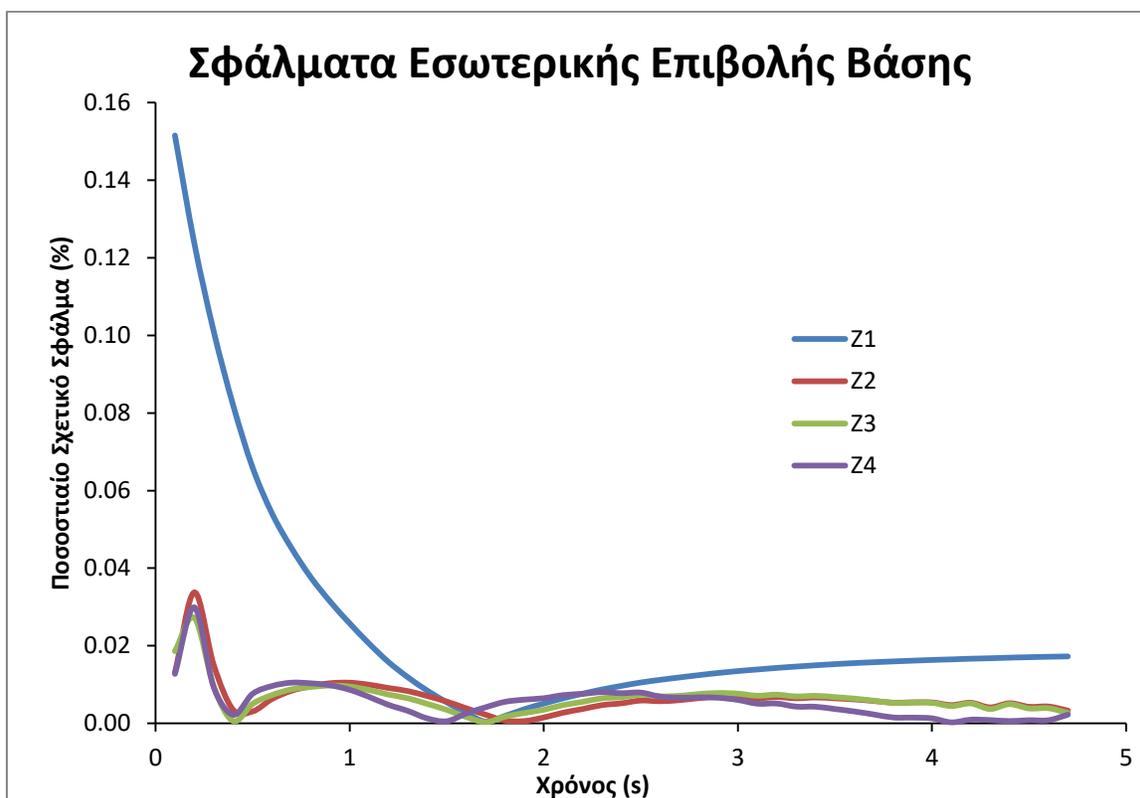
Η ακρίβεια των βάσεων ελέγχεται επιπλέον και με τον υπολογισμό των σφαλμάτων των στιγμιούπων δύο επιβολών, τα οποία προσεγγίζονται από τη βάση και τους συντελεστές που προκύπτουν από αυτή, ενώ η σύγκριση πραγματοποιείται με τις πραγματικές επιβολές που έχουν υπολογιστεί από το λεπτομερές μοντέλο. Οι δύο επιβολές που ελέγχθηκαν είναι οι εξής:

Πίνακας 7.3: Επιβολές ελέγχου ακρίβειας βάσεων

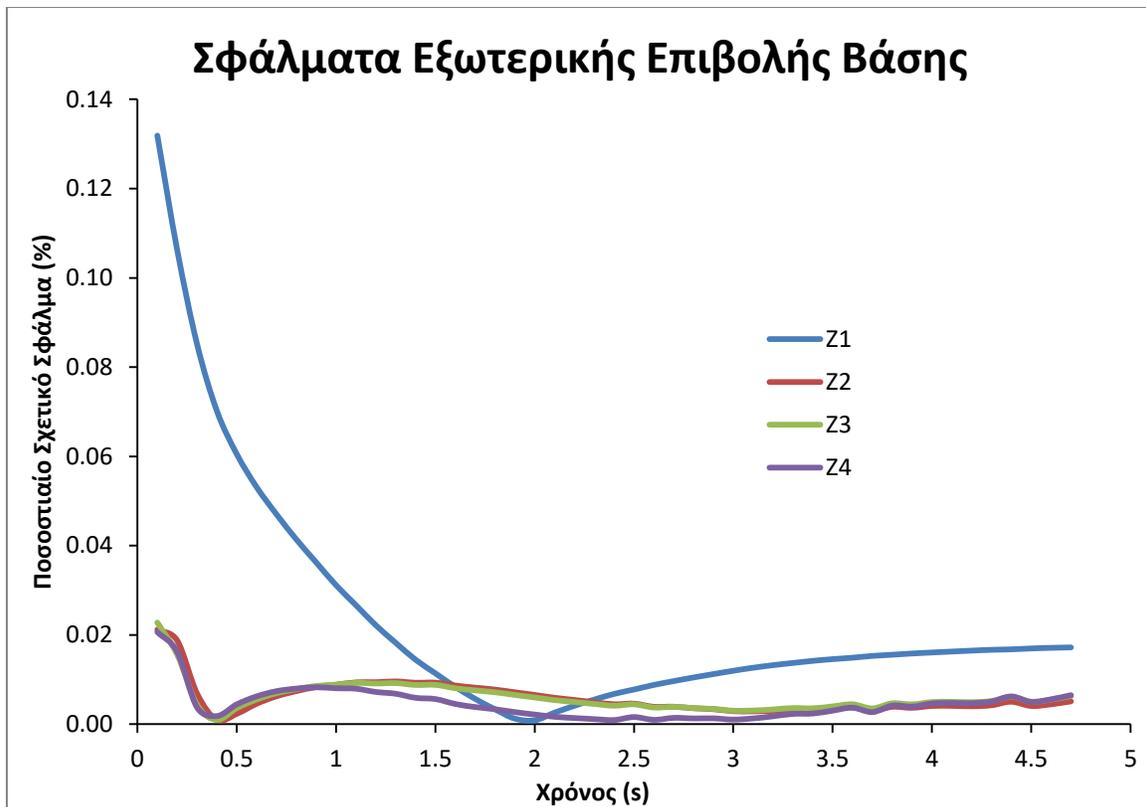
Αρχική Παροχή (scfm)	Τελική Παροχή (scfm)
1.5	2.0
1.6	1.8

Η πρώτη θα αναφέρεται από εδώ και πέρα ως εσωτερική επιβολή, καθώς εμπεριέχεται στον πίνακα Υ, ενώ αντίστοιχα η δεύτερη επιβολή θα αναφέρεται ως εξωτερική, αφού πρόκειται για ανεξάρτητη επιβολή που δεν χρησιμοποιήθηκε στον Υ.

Στα παρακάτω διαγράμματα παρουσιάζεται η χρονική πορεία των σφαλμάτων κάθε βάσης για τις δύο επιβολές ελέγχου, ενώ στους πίνακες που τα ακολουθούν αναφέρονται οι μέσες και μέγιστες τιμές αυτών.



Σχήμα 7.2: Σφάλματα εσωτερικής επιβολής βάσεων (1.5 → 2.0 scfm)



Σχήμα 7.3: Σφάλματα εξωτερικής επιβολής βάσεων (1.6 → 1.8 sccm)

Πίνακας 7.4: Μέσα και μέγιστα σφάλματα εσωτερικής επιβολής βάσεων

Βάση	Μέσο (%)	Μέγιστο (%)
Z <sub>1</sub>	2.49E-02	1.52E-01
Z <sub>2</sub>	6.56E-03	3.38E-02
Z <sub>3</sub>	6.51E-03	2.72E-02
Z <sub>4</sub>	5.57E-03	2.99E-02

Πίνακας 7.5: Μέσα και μέγιστα σφάλματα εξωτερικής επιβολής βάσεων

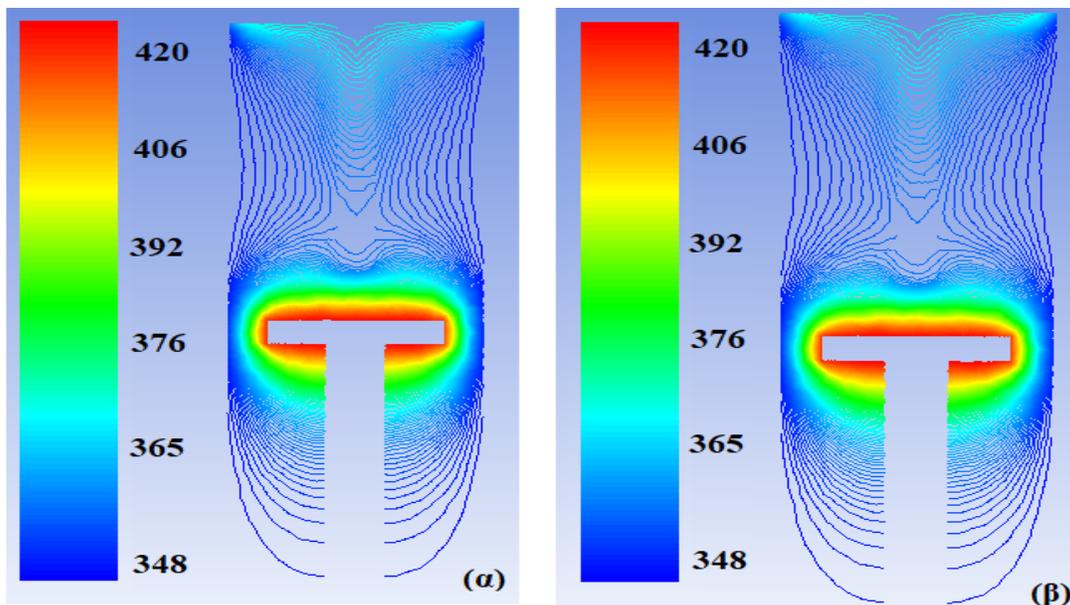
Βάση	Μέσο (%)	Μέγιστο (%)
Z <sub>1</sub>	2.38E-02	1.32E-01
Z <sub>2</sub>	5.92E-03	2.12E-02
Z <sub>3</sub>	6.04E-03	2.28E-02
Z <sub>4</sub>	4.56E-03	2.06E-02

Από τα διαγράμματα και τους πίνακες παρατηρείται ότι οι βάσεις δύο έως και τεσσάρων ιδιοδιανυσμάτων παρουσιάζουν πολύ μικρότερα σφάλματα συγκριτικά με αυτή του ενός ιδιοδιανύσματος, συμπέρασμα που επαληθεύεται και από τις δύο επιβολές. Αντιθέτως,

αύξηση της διάστασης από 2 σε 3 και από 3 σε 4 δεν φαίνεται να προκαλεί ιδιαίτερη μείωση του σφάλματος, με εξαίρεση να αποτελεί η  $Z_4$  στην εξωτερική επιβολή, όπου παρατηρείται μια σημαντική μείωση του μέσου σφάλματος σε σχέση με τις μικρότερες βάσεις. Ωστόσο, η μείωση αυτή οφείλεται κυρίως από τα σφάλματα στην «μέση» της επιβολής, όπως διαπιστώνεται και από το Σχήμα 7.3, ενώ το σφάλμα καθώς η επιβολή φτάνει τη νέα μόνιμη κατάσταση είναι πρακτικά ίδιο και για τις τρεις βάσεις. Με βάση τα παραπάνω, ως «καλύτερη» επιλέγεται η βάση  $Z_2$ , δηλαδή η βάση δύο κυρίων POD διανυσμάτων, καθώς περαιτέρω αύξηση της διάστασης δεν φαίνεται να δικαιολογείται από τις αντίστοιχες μειώσεις στα σφάλματα.

Φυσικά, στις περισσότερες εφαρμογές ακόμα και το σφάλμα που παρουσιάζει η  $Z_1$  θα μπορούσε να θεωρηθεί αποδεκτό από πρακτική άποψη, καθώς πρόκειται για ένα –γενικά μιλώντας– πολύ μικρό σφάλμα. Τα μικρά αυτά σφάλματα πιθανότατα οφείλονται στο αρκετά μικρό μελετώμενο εύρος της παροχής του DMEAA, εντός του οποίου δεν παρατηρούνται τεράστιες αλλαγές της δυναμικής συμπεριφοράς του αντιδραστήρα. Ωστόσο, επειδή σκοπός της παρούσας εργασίας δεν είναι απλά η εφαρμογή του προτεινόμενου πλαισίου στο συγκεκριμένο σύστημα αλλά η γενικότερη ανάπτυξη και αξιολόγηση του, προτιμάται οι επιλογές των βέλτιστων σχεδιαστικών παραμέτρων (όπως για παράδειγμα στην προκειμένη περίπτωση η ιδανική διάσταση της βάσης) να γίνονται κυρίως με γνώμονα τη μεταξύ τους σύγκριση.

Τέλος, στο Σχήμα 7.4 παρουσιάζεται και η κατανομή της θερμοκρασίας για την τελική μόνιμη κατάσταση που φτάνει το σύστημα, α) σύμφωνα με το λεπτομερές μοντέλο και β) σύμφωνα με τους υπολογισμούς που προκύπτουν από τη βάση  $Z_2$ , όπου παρατηρούμε πρακτικά την ίδια κατάσταση, επαληθεύοντας έτσι τα προηγούμενα συμπεράσματα.



Σχήμα 7.4: Κατανομή θερμοκρασία στην τελική μόνιμη κατάσταση, με βάση α) Το λεπτομερές μοντέλο, β) Το ROM

#### 7.4.2. Σενάριο 2: 2 Επιβολές

Αφού παρατηρήθηκαν αρκετά χαμηλά σφάλματα χρησιμοποιώντας 4 επιβολές για τη δημιουργία του πίνακα Υ, επιχειρήθηκε η περαιτέρω μείωση τους έτσι ώστε το τελικό μοντέλο μειωμένης τάξης να είναι όσο το δυνατόν λιγότερο υπολογιστικά κοστοβόρο. Από τις επιβολές του σεναρίου 1 αφαιρέθηκαν οι «ενδιάμεσες» και διατηρήθηκαν μόνο οι δύο επιβολές που εκτείνονται κατά μήκος όλου του μελετώμενου εύρους παροχών. Οι επιβολές αυτές παρατίθενται στον Πίνακα 7.6.

Πίνακας 7.6: Επιβολές πίνακα Υ

Αρχική Παροχή (sccm)	Τελική Παροχή (sccm)
1.5	2.0
1.9	1.5

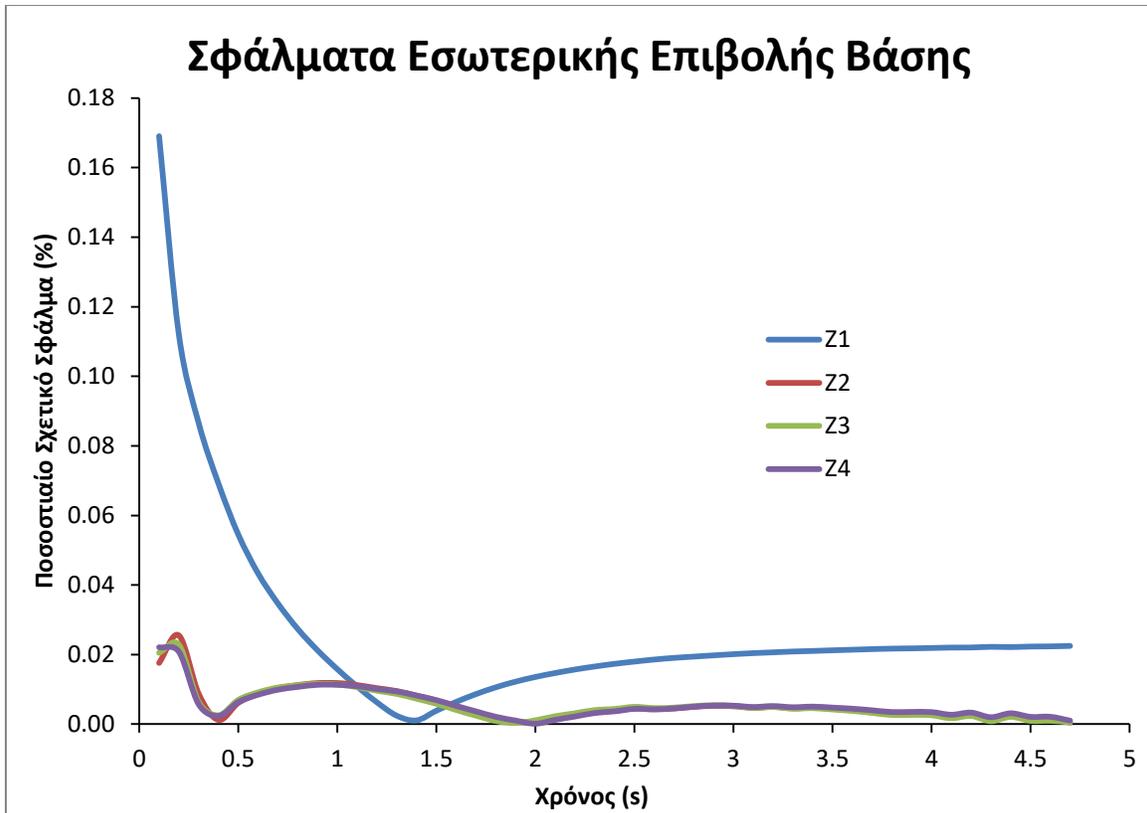
Η μελέτη περιορίζεται πάλι μόνο σε βάσεις από ένα έως και τέσσερα κύρια διανύσματα, ενώ τα σχετικά πληροφοριακά περιεχόμενα I(d) κάθε βάσης παρουσιάζονται στον Πίνακα 7.7.

Πίνακας 7.7: Σχετικά πληροφοριακά περιεχόμενα βάσεων

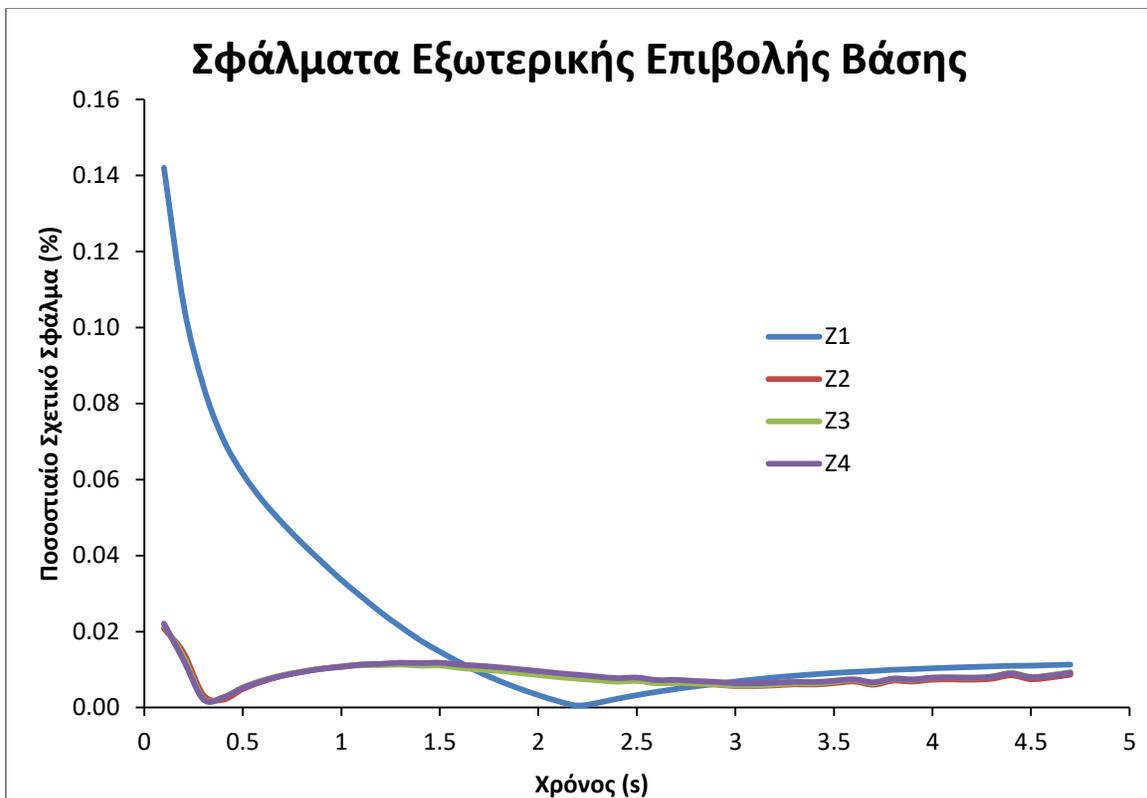
Βάση διάστασης d	Σχετικό πληροφοριακό περιεχόμενο I(d)
Z <sub>1</sub>	0.5322
Z <sub>2</sub>	0.798
Z <sub>3</sub>	0.9153
Z <sub>4</sub>	0.9539

Οι τιμές αυτές ακολουθούν όσα αναφέρθηκαν για τις αντίστοιχες τους στο πρώτο σενάριο, αν και είναι γενικώς λίγο μεγαλύτερες από εκείνες. Αυτό είναι βέβαιο και αναμενόμενο, αφού ο πίνακας Υ αυτού του σεναρίου είναι περίπου ο μισός από του πρώτου, οπότε είναι πιο εύκολο να διατηρηθεί μεγαλύτερο ποσοστό της πληροφορίας στη βάση που προκύπτει κατά την αποσύνθεση του.

Η ακρίβεια των υπολογισμών με χρήση αυτών των βάσεων ελέγχεται με τις ίδιες επιβολές που χρησιμοποιήθηκαν και στο πρώτο σενάριο, οι οποίες φαίνονται στον Πίνακα 7.3. Παρακάτω ακολουθούν διαγράμματα της χρονικής πορείας των σφαλμάτων κάθε βάσης για τις δύο επιβολές ελέγχου, ενώ στους πίνακες που τα συνοδεύουν αναφέρονται οι μέσες και μέγιστες τιμές αυτών.



Σχήμα 7.5: Σφάλματα εσωτερικής επιβολής βάσεων (1.5 → 2.0 sccm)



Σχήμα 7.6: Σφάλματα εξωτερικής επιβολής βάσεων (1.6 → 1.8 sccm)

Πίνακας 7.8: Μέσα και μέγιστα σφάλματα εσωτερικής επιβολής βάσεων

Βάση	Μέσο (%)	Μέγιστο (%)
Z <sub>1</sub>	2.67E-02	1.69E-01
Z <sub>2</sub>	5.58E-03	2.55E-02
Z <sub>3</sub>	5.43E-03	2.28E-02
Z <sub>4</sub>	5.66E-03	2.21E-02

Πίνακας 7.9: Μέσα και μέγιστα σφάλματα εξωτερικής επιβολής βάσεων

Βάση	Μέσο (%)	Μέγιστο (%)
Z <sub>1</sub>	2.20E-02	1.42E-01
Z <sub>2</sub>	8.19E-03	2.08E-02
Z <sub>3</sub>	8.29E-03	2.18E-02
Z <sub>4</sub>	8.63E-03	2.21E-02

Μελετώντας την πορεία των σφαλμάτων αλλά και τις μέσες και μέγιστες τιμές τους κατά την εσωτερική επιβολή, προκύπτει το αρχικό συμπέρασμα πως ακόμα και μόνο δύο (σωστά επιλεγμένες) επιβολές είναι αρκετές για την περιγραφή όλου του μελετώμενου εύρους παροχών, καθώς τα σφάλματα κυμαίνονται στο ίδιο επίπεδο με τα αντίστοιχα της εσωτερικής επιβολής του πρώτου σεναρίου. Ωστόσο, αν κάποιος λάβει υπόψη του και την εξωτερική επιβολή παρατηρεί ότι τα σφάλματα των βάσεων Z<sub>2</sub>, Z<sub>3</sub> και Z<sub>4</sub> είναι σημαντικά μεγαλύτερα σε σχέση τόσο με τα σφάλματα της εσωτερικής επιβολής όσο και με τα αντίστοιχα της εξωτερικής επιβολής του πρώτου σεναρίου. Η παραπάνω διαφορά εσωτερικής-εξωτερικής επιβολής που δεν παρατηρήθηκε στο πρώτο σενάριο αλλά μόνο στο δεύτερο, πιθανότατα οφείλεται στο γεγονός ότι στο πρώτο σενάριο συμπεριλήφθηκαν στον Y επιβολές μεγάλης αλλά και μικρής μεταβολής, οπότε η βάση που προέκυψε από αυτόν μπορεί να προβλέψει ικανοποιητικά αντίστοιχα και τα δύο είδη επιβολών. Αντιθέτως, στο δεύτερο σενάριο οι «μικρές» επιβολές αφαιρέθηκαν από τον Y, οπότε παρατηρείται και μια αναμενόμενη αύξηση των σφαλμάτων που υπολογίζονται από τη βάση σε τέτοιες επιβολές. Τέλος, όσον αφορά τη βέλτιστη διάσταση της βάσης, προκύπτει και σε αυτή την περίπτωση ότι δύο ιδιοδιανύσματα είναι υπεραρκετά.

### 7.4.3. Συμπέρασμα διερεύνησης

Με βάση την παραπάνω διερεύνηση, αποφασίστηκε η χρήση της Z<sub>2</sub> βάσης από το πρώτο σενάριο των τεσσάρων επιβολών, καθώς συνδυάζει τα μικρότερα σφάλματα με την ταυτόχρονα μικρότερη υπολογιστική απαίτηση για την προσομοίωση της. Ξανά επισημαίνεται πως όσον αφορά το συγκεκριμένο εύρος παροχών στο συγκεκριμένο αντιδραστήρα, στις περισσότερες εφαρμογές θα επαρκούσε ακόμα και η χειρότερη περίπτωση όσον αφορά τα

σφάλματα, αλλά επειδή σκοπός της εργασίας είναι η γενικότερη ανάπτυξη και αξιολόγηση του προτεινόμενου πλαισίου, τα αποτελέσματα κρίνονται με βάση τη μεταξύ τους σύγκριση.

## 7.5. Υπολογισμός συντελεστών: Ολοκληρωμένο ROM

Ο υπολογισμός των συντελεστών πραγματοποιείται μέσω προσομοίωσης Τεχνητών Νευρωνικών Δικτύων και για την ακρίβεια δικτύων NARX, αφού σκοπός είναι η δημιουργία ενός δυναμικού μοντέλου, μετά από εκπαίδευση τους από δεδομένα δυναμικής απόκρισης του αντιδραστήρα σε βηματικές επιβολές στην παροχή εισόδου του DMEAA. Οι διαδικασίες αυτές πραγματοποιούνται αποκλειστικά μέσω του Matlab και πιο συγκεκριμένα μέσω της αντίστοιχης βιβλιοθήκη του. Κατά την εκπαίδευση τροφοδοτούνται διανύσματα εισόδου που περιλαμβάνουν χρονικές ακολουθίες της τιμής της παροχής του DMEAA, ενώ επίσης τροφοδοτούνται και διανύσματα εξόδου, τα οποία περιλαμβάνουν τιμές των συντελεστών για κάθε στιγμιότυπο της εκάστοτε επιβολής και για κάθε ιδιοδιάνυσμα της βάσης, αντίστοιχα. Οι συντελεστές αυτοί, για δεδομένη βάση, υπολογίζονται από την Εξ. (5.28). Η αρχιτεκτονική διαμόρφωση που ακολουθείται κατά την εκπαίδευση είναι η σειριακή-παράλληλη (βλ. Εν. 6.6).

Κατά την προσομοίωση του δικτύου, αυτό βρίσκεται στην παράλληλη διαμόρφωση, όπου τροφοδοτείται με την ακολουθία τιμών παροχής DMEAA μιας συγκεκριμένης βηματικής επιβολής καθώς επίσης και με την αρχική έξοδο, δηλαδή τους συντελεστές που αντιστοιχούν στην αρχική μόνιμη κατάσταση της επιβολής. Στη συνέχεια, το δίκτυο υπολογίζει τους συντελεστές για τα υπόλοιπα χρονικά βήματα της επιβολής, οι οποίοι εν τέλει πολλαπλασιάζονται με την POD βάση σύμφωνα με την Εξ. (5.27), δίνοντας έτσι τη συνολική απόκριση του ολοκληρωμένου μοντέλου μειωμένης τάξης για τη συγκεκριμένη επιβολή.

Οι σημαντικότερες παράμετροι που πρέπει να διερευνηθούν διεξοδικά κατά το σχεδιασμό ενός δικτύου NARX είναι οι εξής:

- a) Πλήθος κρυφών επιπέδων
- b) Αριθμός καθυστερήσεων εισόδου και εξόδου
- c) Αλγόριθμος εκπαίδευσης
- d) Επιβολές εκπαίδευσης
- e) Διάσταση κρυφών επιπέδων (πλήθος νευρώνων)

Σε όλες τις διαφορετικές δομές δικτύων που δημιουργήθηκαν στο πλαίσιο της παρούσας εργασίας χρησιμοποιήθηκε ένα κρυφό επίπεδο, καθώς σύμφωνα με τη βιβλιογραφία σπανίως απαιτούνται παραπάνω σε προβλήματα τέτοιας κλίμακας. Επίσης, ο αριθμός καθυστερήσεων ή αλλιώς η τάξη της μνήμης του δικτύου επιλέχθηκε ίση με 1 και για την είσοδο και για την έξοδο

(δηλαδή  $n_x = n_y = 1$ ), κάτι που συνάδει με προβλήματα ρευστοδυναμικής. Συνεπώς, η Εξ. (6.28) λαμβάνει την εξής μορφή για τα δίκτυα της εργασίας:

$$\mathbf{y}(t_k) = f[\mathbf{x}(t_{k-1}), \mathbf{x}(t_k), \mathbf{y}(t_{k-1})] \quad (7.2)$$

Όσον αφορά τον αλγόριθμο εκπαίδευσης, σε όλα τα δίκτυα εφαρμόζεται η μέθοδος Bayesian Regularization, δηλαδή ο αλγόριθμος Levenberg-Marquardt με Μπεϋζιανή Κανονικοποίηση (βλ. Εν.6.5.2). Ο λόγος που επιλέχθηκε αυτή η μέθοδος είναι ότι για μεγάλο αριθμό συνάψεων, κάτι που ισχύει στο παρών πρόβλημα, ο αλγόριθμος Levenberg-Marquardt από μόνος του αδυνατεί να γενικεύσει καλά τα αποτελέσματα, ένα φαινόμενο που ονομάζεται υπερπροσαρμογή του δικτύου (βλ. Εν. 6.5). Επιπλέον, το δίκτυο τροφοδοτείται με 7 επιβολές κατά την εκπαίδευση του, έτσι ώστε αυτές να καλύπτουν όλο το μελετώμενο εύρος, να περιέχουν μικρές και μεγάλες μεταβολές καθώς και μεταβολές προς τις δύο κατευθύνσεις. Οι επιβολές εκπαίδευσης παρατίθενται στον Πίνακα 7.10.

Πίνακας 7.10: Επιβολές εκπαίδευσης NARX δικτύου

Αρχική Παροχή (scm)	Τελική Παροχή (scm)
1.5	2.0
1.9	1.5
1.5	1.8
1.8	2.0
1.9	2.0
1.9	1.7
1.7	1.5

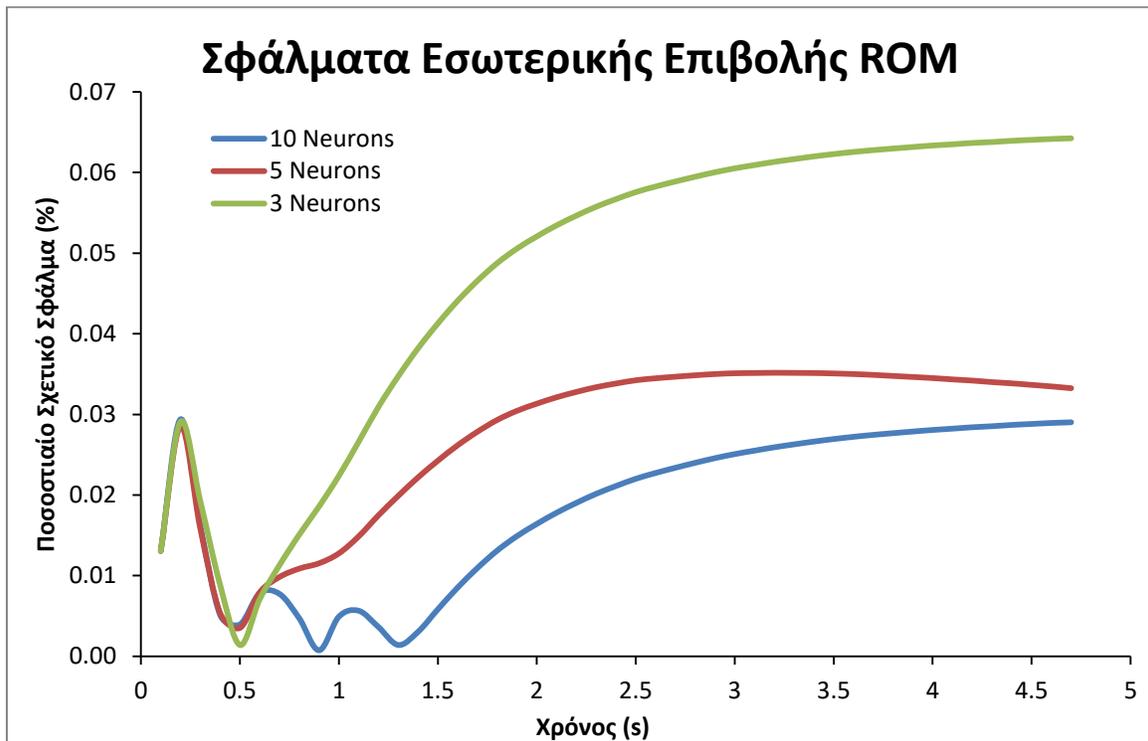
Όπως παρατηρείται, οι τέσσερις πρώτες είναι αυτές που χρησιμοποιήθηκαν και για την κατασκευή του πίνακα  $\mathbf{Y}$  κατά τον προσδιορισμό της POD βάσης, ενώ αυτές εμπλουτίστηκαν με άλλες τρεις επιβολές, εκ των οποίων οι δύο είναι επιβολές από μεγάλη σε μικρή παροχή και η άλλη είναι επιβολή μικρής μεταβολής. Ο μεγαλύτερος αριθμός κρίνεται αναγκαίος μόνο σε περίπτωση που οι παραπάνω επιβολές δεν επιφέρουν ικανοποιητικά αποτελέσματα.

Τέλος, ο βέλτιστος αριθμός νευρώνων εντός του κρυφού επιπέδου προσδιορίζεται μέσω διερεύνησης. Συγκεκριμένα, εκπαιδεύονται δίκτυα με 3, 5 και 10 νευρώνες, τα οποία στη συνέχεια οδηγούνται σε προσομοίωση δύο διαφορετικών επιβολών, μιας «εσωτερικής» και μιας «εξωτερικής», με την έννοια που αναφέρθηκε και κατά τον έλεγχο της ακρίβειας των βάσεων. Τα αποτελέσματα συγκρίνονται με τις «πραγματικές» επιβολές που έχουν υπολογιστεί από το λεπτομερές μοντέλο και προσδιορίζονται τα αντίστοιχα σφάλματα. Οι δύο επιβολές παρατίθενται στον Πίνακα 7.11.

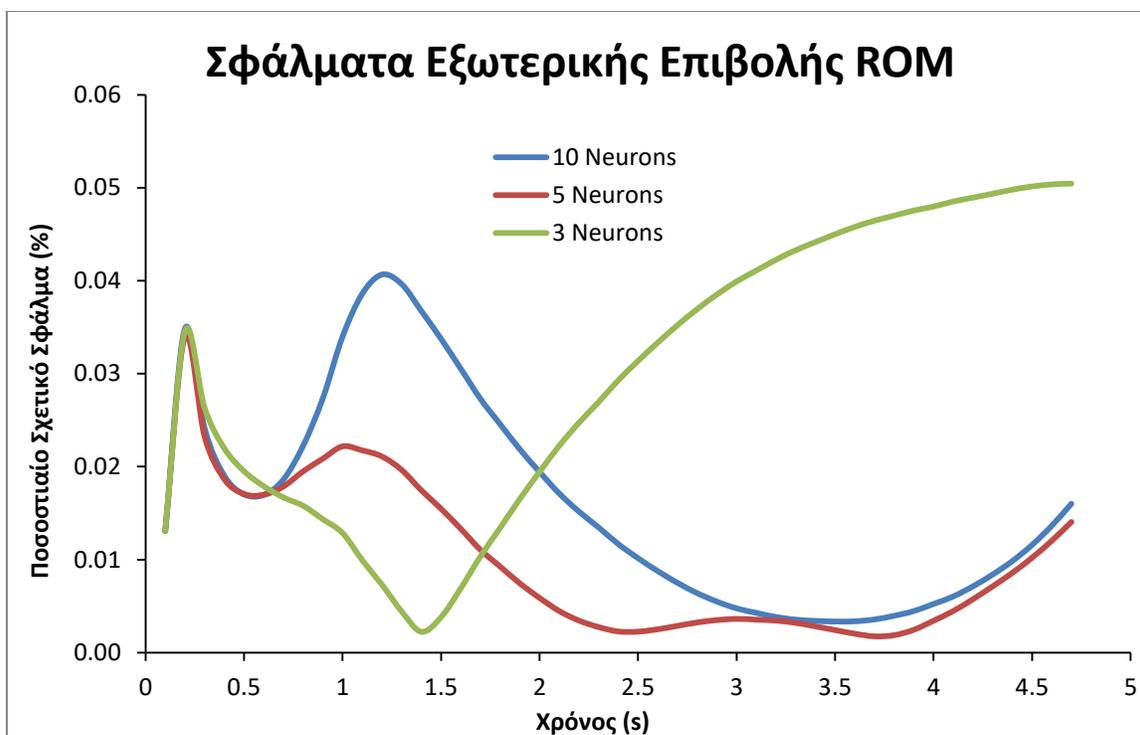
Πίνακας 7.11: Επιβολές ελέγχου ακρίβειας δικτύων

Αρχική Παροχή (scm)	Τελική Παροχή (scm)
1.5	2.0
1.5	1.7

Στα παρακάτω διαγράμματα παρουσιάζεται η χρονική πορεία των σφαλμάτων κάθε δικτύου για τις δύο επιβολές ελέγχου, ενώ στους πίνακες που τα συνοδεύουν αναφέρονται οι μέσες και μέγιστες τιμές αυτών.



Σχήμα 7.7: Σφάλματα εσωτερικής επιβολής δικτύων (1.5 → 2.0 scm)



Σχήμα 7.8: Σφάλματα εξωτερικής επιβολής δικτύων (1.5 → 1.7 sccm)

Πίνακας 7.12: Μέσα και μέγιστα σφάλματα εσωτερικής επιβολής δικτύων

Νευρώνες	Μέσο (%)	Μέγιστο (%)
3	4.69E-02	6.42E-02
5	2.74E-02	3.52E-02
10	1.85E-02	2.94E-02

Πίνακας 7.13: Μέσα και μέγιστα σφάλματα εξωτερικής επιβολής δικτύων

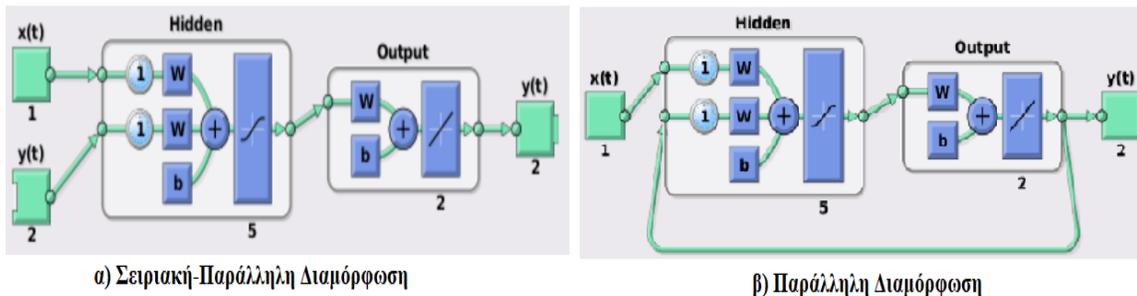
Νευρώνες	Μέσο (%)	Μέγιστο (%)
3	2.99E-02	5.04E-02
5	9.91E-03	3.40E-02
10	1.60E-02	4.07E-02

Αναλύοντας αρχικά τα σφάλματα της εσωτερικής επιβολής, παρατηρείται ότι τα δίκτυα 5 και 10 νευρώνων εμφανίζουν πολύ καλύτερη εκπαίδευση σε σχέση με αυτό των τριών, με τη σχετική διαφορά τους να είναι σχεδόν τριπλάσια. Μάλιστα, από το διάγραμμα φαίνεται ότι με την πάροδο του χρόνου το σφάλμα των 3 νευρώνων αυξάνεται όλο και παραπάνω, ενώ τα σφάλματα των άλλων δύο δικτύων φαίνεται να σταθεροποιούνται. Συνεπώς, το δίκτυο αυτό δεν είναι ικανό να εκπαιδευτεί τόσο καλά όσο τα άλλα δύο και απορρίπτεται από την αρχή.

Όσον αφορά τα υπόλοιπα δύο δίκτυα, αν και αυτό με τους 10 νευρώνες έχει σημαντικά μικρότερο μέσο σφάλμα από το αντίστοιχο των 5, το σφάλμα αυτό μπορεί να θεωρηθεί αποδεκτό, ειδικά αν ληφθεί υπόψη ότι για την εκπαίδευση του απαιτείται περίπου διπλάσιο χρόνο. Επίσης, η διαφορά οφείλεται κυρίως στη μέση της επιβολής, ενώ όπως προαναφέρθηκε στο τέλος όπου το σύστημα συγκλίνει στη νέα μόνιμη κατάσταση και τα δύο σφάλματα φαίνεται να σταθεροποιούνται γύρω από την ίδια (ή έστω κοντινές) τιμή(/ές).

Όσον αφορά την εξωτερική επιβολή, αρχικά παρατηρείται η επαλήθευση του συμπεράσματος που εξήχθη παραπάνω σχετικά με το δίκτυο 3 νευρώνων, καθώς ειδικά προς το τέλος της επιβολής τα σφάλματα του είναι πολύ μεγαλύτερα από τα αντίστοιχα των υπολοίπων δύο δικτύων. Όμως, σε αυτή την επιβολή σε αντίθεση με την εσωτερική, το δίκτυο 5 νευρώνων όχι μόνο επιτυγχάνει ικανοποιητική πρόβλεψη αλλά ακόμα και οριακά καλύτερη από αυτό των 10 νευρώνων. Αυτό πιθανότατα οφείλεται στο φαινόμενο της υπερπροσαρμογής, όπου το δίκτυο εστίασε υπερβολικά στα δεδομένα εκπαίδευσης και δεν κατάφερε τόσο καλή γενίκευση όσο αυτό των 5 νευρώνων. Συνεπώς, οι 10 νευρώνες όχι μόνο κρίνονται ως μη αναγκαίοι, αλλά ακόμα και ως ζημιόγονοι για την ακρίβεια των προβλέψεων του NARX δικτύου και κατά συνέπεια η βέλτιστη διάσταση κρυφού επιπέδου προσδιορίζεται ίση με 5 νευρώνες.

Το δίκτυο αυτό απεικονίζεται στο παρακάτω σχήμα α) σε σειριακή-παράλληλη διαμόρφωση κατά την εκπαίδευση του και β) σε παράλληλη διαμόρφωση κατά την προσομοίωση του.



Σχήμα 7.9: Δίκτυο NARX τελικού ROM

Όπως είναι εμφανές, η είσοδος αποτελείται από μόνο ένα στοιχείο, το οποίο είναι η παροχή εισόδου σε κάθε χρονικό βήμα της επιβολής, το κρυφό επίπεδο αποτελείται από 5 νευρώνες, η οποία κρίθηκε η βέλτιστη διάσταση μετά από την παραπάνω διερεύνηση, ενώ επίσης εμφανές είναι και οι καθυστερήσεις εισόδου και εξόδου, αμφότερες ίσες με 1. Τέλος, το διάνυσμα εξόδου και επακόλουθα και το δίκτυο εξόδου αποτελούνται από δύο στοιχεία, τα οποία είναι οι τιμές των συντελεστών των κυρίων POD διανυσμάτων της βάσης για κάθε χρονικό βήμα της επιβολής. Υπενθυμίζεται ότι χρησιμοποιείται βάση δύο ιδιοδιανυσμάτων.

Τέλος, υπενθυμίζεται ότι η ίδια διαδικασία εφαρμόστηκε και για τις άλλες δύο θερμοκρασίες, όπου τα συμπεράσματα είναι τα ίδια και για αυτό το λόγο δεν παρουσιάζονται.

## 7.6. Παρεμβολή λύσης ROM στο πυκνό πλέγμα με πλήρες μοντέλο

Αφού ολοκληρωθεί το συνολικό υδροδυναμικό μοντέλο μειωμένης τάξης, ικανό να προβλέψει μέσα σε λίγα λεπτά τα πεδία ροής εντός του αντιδραστήρα, οι λύσεις αυτού του μοντέλου τροφοδοτούνται στο λεπτομερές πλήρες μοντέλο, το οποίο εκτός από τις εξισώσεις μεταφοράς συμπεριλαμβάνει και τις εξισώσεις κινητικής των χημικών αντιδράσεων (βλ. Εν. 2.2.2 και 3.1.3), όπου και αξιοποιούνται ως αρχική εκτίμηση με αποτέλεσμα την ταχύτερη σύγκλιση. Το λεπτομερές πλήρες μοντέλο επιλύεται στο πυκνό πλέγμα, το οποίο όπως αναφέρθηκε αποτελείται από 1232468 κελιά, ενώ το αντίστοιχο διάνυσμα κατάστασης από 6162340 στοιχεία, δηλαδή πρόκειται για ένα πλέγμα κατά περίπου 4 φορές πυκνότερο από το αραιό. Όμως, το ROM κατασκευάστηκε από τα δεδομένα του λεπτομερούς μοντέλου επιλυόμενο στο αραιό πλέγμα, οπότε οι λύσεις που υπολογίζει αναφέρονται επίσης στο αραιό. Κατά συνέπεια, η τροφοδότηση τους πραγματοποιείται με παρεμβολή από-πλέγμα-σε-πλέγμα, η οποία περιγράφηκε αναλυτικά στην Εν. 4.2.

Από την επίλυση του λεπτομερούς πλήρες μοντέλου, στο πλαίσιο της παρούσας εργασίας διερευνάται η ακρίβεια του χημικού μοντέλου που είχε αναπτυχθεί στο πλαίσιο προηγούμενων εργασιών. Η διαδικασία αυτή είχε φυσικά πραγματοποιηθεί και στο παρελθόν, αλλά μόνο σε δι-διάστατο πλέγμα, το οποίο αδυνατεί να συμπεριλάβει τις οπές της καταωνιστικής κεφαλής του αντιδραστήρα (βλ. Εν. 3.2 και 3.3.1). Ο προσδιορισμός της αξιοπιστίας του κινητικού μοντέλου επιτυγχάνεται με σύγκριση των ρυθμών απόθεσης για διάφορες θερμοκρασίες που προκύπτουν από αυτό με τις αντίστοιχες πειραματικές τιμές, καθώς και με αυτές του 2-D μοντέλου. Τέλος, πραγματοποιείται και υπολογισμός της ανομοιομορφίας του πάχους των υμενίων, μέσω διαγραμμάτων του κατά μήκος της ακτίνας του υποστρώματος αλλά και άμεσου υπολογισμού της, μέσω της εξίσωσης:

$$A = \frac{DR_{max} - DR_{min}}{DR_{max}} \% \quad (7.3)$$

όπου A η ανομοιομορφία και DR ο ρυθμός απόθεσης.

## 7.7. Υπολογιστικό κέρδος εφαρμογής πλαισίου

Το υπολογιστικό πλαίσιο που προτείνεται δεν περιορίζεται μόνο στη μείωση τάξης των λεπτομερών τρι-διάστατων CFD μοντέλων μεγάλης κλίμακας, η οποία παρόλα αυτά αποτελεί τον πυρήνα του, αλλά επεκτείνεται και στη χρήση άλλων δευτερευόντων τεχνικών, την παράλληλη επεξεργασία και εξόρυξη δεδομένων καθώς και την παρεμβολή από-πλέγμα-σε-πλέγμα. Στις προηγούμενες ενότητες αξιολογήθηκε η ακρίβεια των μεθόδων μείωσης τάξης και γενικότερα του τελικού ROM, ενώ σε αυτή την ενότητα αξιολογείται το υπολογιστικό όφελος της όλης διαδικασίας, με γνώμονα όλες τις προαναφερθείσες τεχνικές. Η αξιολόγηση αυτή πραγματοποιείται συγκρίνοντας τα υπολογιστικά κόστη σε χρόνο και μνήμη για διάφορες περιπτώσεις.

### Υπολογιστικό κόστος προσομοίωσης μοντέλου υδροδυναμικής (χωρίς αντιδράσεις):

Αρχικά, προσδιορίζεται το όφελος χρήσης του ROM αλλά και του γενικότερου πλαισίου για τον προσδιορισμό του διανύσματος κατάστασης του αντιδραστήρα, το οποίο αποτελείται από τα πεδία ταχύτητας, πίεσης και θερμοκρασίας. Ενδεικτικά αναφέρεται και η σύγκριση μεταξύ σειριακής και παράλληλης επίλυσης.

- **Λεπτομερές μοντέλο (πυκνό πλέγμα) – Σειριακή επίλυση:** 58.5 CPU h για δυναμική απόκριση σε βηματική επιβολή / 36 CPU h για υπολογισμό μόνιμης κατάστασης – 5 GB RAM
- **Λεπτομερές μοντέλο (πυκνό πλέγμα) – Παράλληλη επίλυση:** 6.5 CPU h για δυναμική απόκριση σε βηματική επιβολή / 4 CPU h για υπολογισμό μόνιμης κατάστασης – 5 GB RAM
- **Μοντέλο μειωμένης τάξης (αραιό πλέγμα):** 2 CPU min για δυναμική απόκριση και λήψη μόνιμης κατάστασης, +15 CPU min για παρεμβολή της λύσης στο πυκνό πλέγμα και αριστοποίηση της – 2 GB RAM για την προσομοίωση του ROM και 5 GB RAM για την προσομοίωση του λεπτομερούς μοντέλου στο πυκνό πλέγμα

Καταρχήν, παρατηρείται μια τεράστια μείωση του απαιτούμενου CPU χρόνου ανάμεσα στη σειριακή και την παράλληλη επίλυση, κάτι που καθιστά την τεχνική παράλληλης επεξεργασίας και εξόρυξης δεδομένων αναπόσπαστο κομμάτι του πλαισίου. Ωστόσο, επίσης τεράστια είναι και η μείωση ανάμεσα στην προσομοίωση του ROM και την επακόλουθη παρεμβολή και αριστοποίηση της λύσης στο πυκνό πλέγμα, συγκριτικά με την απευθείας επίλυση του λεπτομερούς μοντέλου σε αυτό. **Πιο συγκεκριμένα, η μείωση αυτή είναι περίπου 96%, δηλαδή πρόκειται για μια μείωση χρόνου κατά περίπου 26 φορές.** Υπενθυμίζεται, ότι το αραιό πλέγμα δεν είναι ικανό από μόνο του να παρέχει λύσεις ακρίβειας, οπότε οποιαδήποτε τελική λύση πρέπει να λαμβάνεται από το πυκνό.

### Υπολογιστικό κόστος προσομοίωσης πλήρους λεπτομερούς μοντέλου (με αντιδράσεις):

Στη συνέχεια, προσδιορίζεται το όφελος χρήσης του ROM αλλά και του γενικότερου πλαισίου για την επίλυση και του κινητικού μοντέλου και τον προσδιορισμό παραμέτρων όπως ο μέσος ρυθμός απόθεσης και η ανομοιομορφία των παραγόμενων υμενίων. Ενδεικτικά αναφέρεται και η σύγκριση μεταξύ σειριακής και παράλληλης επίλυσης.

- **Χωρίς τη χρήση της λύσης του ROM – Σειριακή επίλυση:** 72 CPU h για υπολογισμό μόνιμης κατάστασης – 5 GB RAM
- **Χωρίς τη χρήση της λύσης του ROM – Παράλληλη επίλυση:** 7.5 CPU h για υπολογισμό μόνιμης κατάστασης – 5 GB RAM
- **Με χρήση της λύσης του ROM – Παράλληλη Επίλυση:** 3 CPU h για υπολογισμό μόνιμης κατάστασης – 5 GB RAM

Προφανώς, πάλι παρατηρείται τεράστια μείωση του απαιτούμενου CPU χρόνου ανάμεσα στη σειριακή και την παράλληλη επίλυση, ενώ σημαντική είναι και η μείωση του απαιτούμενου CPU χρόνου αν στο πλήρες λεπτομερές μοντέλο πραγματοποιηθεί παρεμβολή της λύσης του ROM και χρήση της ως αρχική εκτίμηση. Με αυτό τον τρόπο, το λεπτομερές μοντέλο χρειάζεται να πραγματοποιήσει ελάχιστες επαναλήψεις για την αριστοποίηση των υδροδυναμικών πεδίων, ενώ από εκεί και πέρα καλείται να επιλύσει μόνο τις εξισώσεις της κινητικής των χημικών αντιδράσεων. **Πιο συγκεκριμένα, η μείωση αυτή ισούται με 60%, δηλαδή πρόκειται για μια μείωση χρόνου του χρόνου παραπάνω από το ήμισυ.**

Επισημαίνεται ότι τα συγκεκριμένα στοιχεία υπολογιστικού κόστους αναφέρονται στις μεσαίες και υψηλές θερμοκρασίες, καθώς σε χαμηλή θερμοκρασία παρουσιάζεται μια διαφοροποίηση στον απαιτούμενο υπολογιστικό χρόνο επίλυσης του πλήρους μοντέλου. Συγκεκριμένα, στους 151 °C, η τροφοδότηση του πλήρους μοντέλου με τα πεδία ροής δεν είναι τόσο αποδοτική όσο στις άλλες δύο θερμοκρασίες, αφού η σύγκλιση επιτυγχάνεται μετά από 6 CPU h αντί για 3 h. Η διαφορά αυτή πιθανόν να οφείλεται στο γεγονός πως σε μικρές θερμοκρασίες ελέγχον στάδιο της XAA είναι οι χημικές αντιδράσεις, οπότε η ύπαρξη των πεδίων ροής ως αρχική εκτίμηση δεν συνεισφέρει κατά τον ίδιο βαθμό στην επιτάχυνση της προσομοίωσης. Αντιθέτως, στους 185 και 241 °C τα φαινόμενα μεταφοράς διαδραματίζουν πολύ σημαντικότερο ρόλο στη συνολική διεργασία, με αποτέλεσμα τα αντίστοιχα πεδία ροής να αποτελούν μεγαλύτερο ποσοστό της πληροφορίας της λύσης και κατά συνέπεια η τροφοδότηση τους στο μοντέλο να μειώνει αισθητά περισσότερο το χρόνο σύγκλισης.

### Υπολογιστικό κόστος κατασκευής ROM:

Τέλος, ακολουθούν κάποια δεδομένα σχετικά με το κόστος κατασκευής του ROM, έτσι ώστε να γίνει εμφανής και η αξία των δευτερευουσών τεχνικών του πλαισίου.

- **Με βάση το συνολικό υπολογιστικό πλαίσιο:** 4 CPU h – 1.5 GB RAM για συλλογή δεδομένων / 0.5 CPU h – 4 GB RAM (max) για POD+ANN
- **Αν δεν χρησιμοποιούνται παρεμβολή από-πλέγμα-σε-πλέγμα:** 37.5 CPU h – 5 GB RAM για συλλογή δεδομένων / 1.5 CPU h – 12 GB RAM (max) για POD+ANN
- **Αν δεν χρησιμοποιούνται ούτε παράλληλη επεξεργασία - προγραμματισμός:** 337.5 CPU h – 5 GB RAM για συλλογή δεδομένων / 1.5 CPU h – 12 GB RAM (max) για POD+ANN

Πάλι, γίνεται εμφανέστατη η αξία των ενσωμάτωσης των δύο αυτών τεχνικών στις δύο μεθόδους μείωσης τάξης, καθώς όχι μόνο μειώνουν επιταχύνουν την επίλυση του υδροδυναμικού μοντέλου και τη λήψη της κατάστασης του αντιδραστήρα, αλλά επίσης καθιστούν τη δημιουργία του ROM από μια επίπονη (έως και απαγορευτική) υπολογιστικά διαδικασία σε διαδικασία «ρουτίνας». Από τις δύο η παράλληλη εξόρυξη κρίνεται ως πρακτικά αναγκαία, ενώ η παρεμβολή μιας πρακτικά «άχρηστης» (από μόνη της) λύσης σε μια λύση που μετά από μόνο λίγες επαναλήψεις ταυτίζεται απόλυτα με την πραγματική (σφάλμα  $\approx 0$ ) ενισχύει ακόμα περισσότερο την αποδοτικότητα του προτεινόμενου πλαισίου.

## **7.8. Εφαρμογή πλαισίου: Αξιολόγηση πολύπλοκου κινητικού μοντέλου**

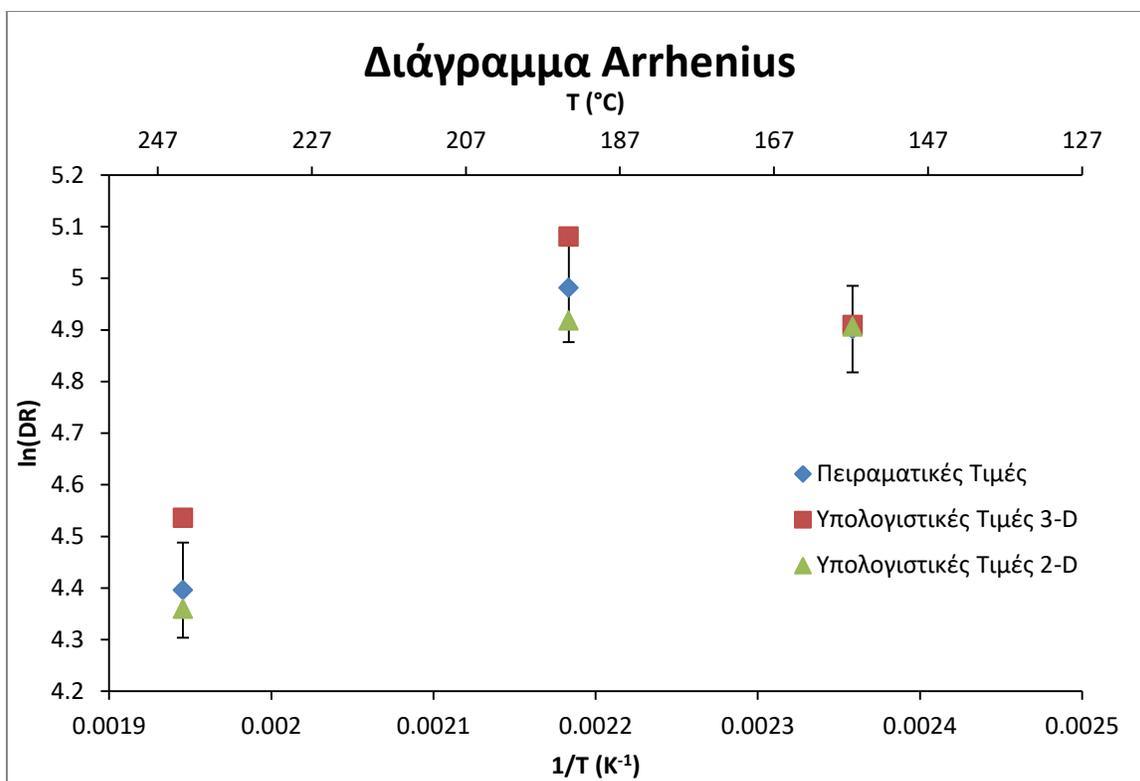
Όπως αναφέρθηκε και στην Εν. 3.4, σε δεύτερη φάση σκοπός της εργασίας είναι και η αξιολόγηση ενός πολύπλοκου κινητικού μοντέλου απόθεσης αλουμινίου από DMEAA που είχε προταθεί και διερευνηθεί με πολύ ικανοποιητικά αποτελέσματα στο παρελθόν, στο πλαίσιο προηγούμενων εργασιών [23]. Η ανάπτυξη του ωστόσο είχε πραγματοποιηθεί αποκλειστικά σε δι-διάστατο πλέγμα, το οποίο είναι η συνήθης στρατηγική για μια προκαταρκτική μελέτη. Το μοντέλο αυτό συμπεριλαμβάνει εκτός από τις αντιδράσεις απόθεσης και παρεμποδιστικές αντιδράσεις, τόσο στην αέρια φάση όσο και στην επιφάνεια του υποστρώματος, σε αντίθεση με παλαιότερα πολύ πιο απλοϊκά μοντέλα. Συνεπώς, είναι ικανό να προβλέψει την απότομη μείωση που παρατηρείται στο ρυθμό απόθεσης σε υψηλές θερμοκρασίες υποστρώματος, κάτι που τα απλά μοντέλα δεν μπορούν να κάνουν. Περισσότερες λεπτομέρειες αναφέρονται στην Εν. 3.1.3.

Η αξιολόγηση και ο έλεγχος αξιοπιστίας του προαναφερθέντος κινητικού μοντέλου σε τρι-διάστατο πλέγμα πραγματοποιείται αποδοτικά με βάση το προτεινόμενο πλαίσιο, εξοικονομώντας έτσι πολύτιμο υπολογιστικό χρόνο. Αρχικά, μελετάται η επίδραση της θερμοκρασίας στο μέσο ρυθμό απόθεσης, ενώ στη συνέχεια υπολογίζονται οι κατανομές του ρυθμού απόθεσης και η ανομοιομορφία των υμενίων για διάφορες θερμοκρασίες. Υπενθυμίζεται πως με βάση το προτεινόμενο πλαίσιο κατασκευάστηκαν τρία διαφορετικά μοντέλα μειωμένης τάξης, ένα για κάθε μια από τις θερμοκρασίες 151, 185 και 241 °C, οι λύσεις των οποίων τροφοδοτήθηκαν στο πλήρες λεπτομερές μοντέλο μέσω παρεμβολής για χρήση τους ως αρχική εκτίμηση της ροής και πολύ ταχύτερη σύγκλιση του συνολικού μοντέλου (βλ. Εν. 7.7).

Τέλος, αναφέρεται ότι η επίλυση σε κάθε θερμοκρασία πραγματοποιείται για παροχή εισόδου του DMEAA ίση με 1.85 sccm, καθώς σε αυτή την παροχή έχουν πραγματοποιηθεί και τα αντίστοιχα πειράματα. Η υδροδυναμική κατάσταση του αντιδραστήρα για αυτή την παροχή υπολογίζεται από το ROM με προσομοίωση του δικτύου σε βηματική επιβολή από 1.7 προς 1.85 sccm και 50 χρονικά βήματα. Η επιβολή αυτή αποτελεί μια παντελώς καινούργια επιβολή που δεν έχει υπολογισθεί στο παρελθόν με κανέναν άλλον τρόπο. Στο τέλος πραγματοποιείται σύγκριση των δύο τελευταίων στιγμιοτύπων και προκύπτει ότι η διαφορά της είναι μικρότερη του  $10^{-9}$ , τιμή παραπάνω από ικανοποιητική για να θεωρηθεί η χρονική σύγκλιση στην τελική μόνιμη κατάσταση.

### 7.8.1. Επίδραση θερμοκρασίας

Η μελέτη της επίδρασης της θερμοκρασίας πραγματοποιείται με βάση το διάγραμμα Arrhenius, δηλαδή το διάγραμμα με το λογάριθμο του ρυθμού απόθεσης στον άξονα  $y$  και το αντίστροφο της θερμοκρασίας στον άξονα  $x$ . Στο διάγραμμα που ακολουθεί παρουσιάζονται τα αποτελέσματα της προσομοίωσης του μοντέλου σε τρι-διάστατο πλέγμα, σύμφωνα με όσα έχουν αναφερθεί έως τώρα, τα αποτελέσματα της προσομοίωσης του μοντέλου σε δι-διάστατο πλέγμα που πραγματοποιήθηκε σε προηγούμενη εργασία [23] και τέλος τα πειραματικά αποτελέσματα στις ίδιες θερμοκρασίες.



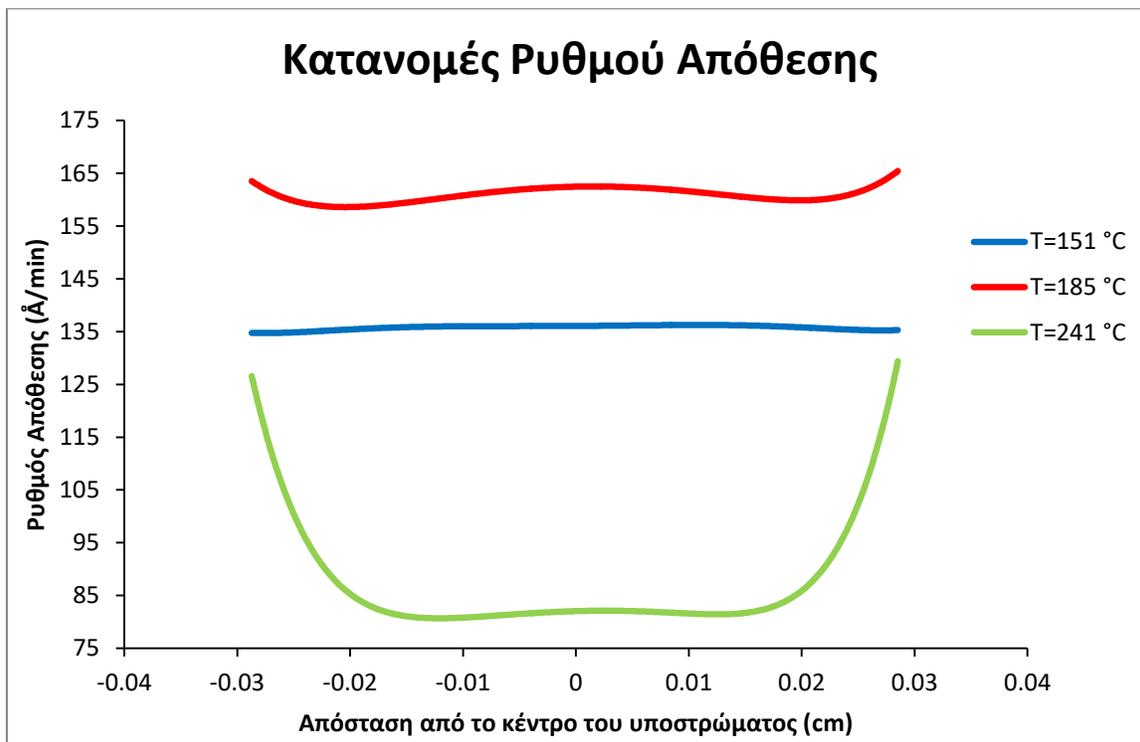
Σχήμα 7.10: Διάγραμμα Arrhenius διεργασίας

Όπως παρατηρείται, τα αποτελέσματα από το τρι-διάστατο πλέγμα βρίσκονται κοντά με τα πειραματικά και αυτά από το δι-διάστατο, κάτι που ήταν αναμενόμενο. Ωστόσο, παρουσιάζονται κάποιες σημαντικές διαφορές στις δύο μεγαλύτερες θερμοκρασίες, ενώ στην τελευταία η πρόβλεψη είναι ακόμα και εκτός των πειραματικών ορίων. Η παρατήρηση αυτή υποδεικνύει κάτι επίσης αναμενόμενο, δηλαδή ότι απαιτείται η αναπροσαρμογή των κινητικών παραμέτρων στα πειραματικά αποτελέσματα μέσω προσομοιώσεων σε τρι-διάστατο πλέγμα, το οποίο είναι γενικώς αποδεκτό ότι δίνει πολύ πιο αξιόπιστα αποτελέσματα από ένα αντίστοιχο δι-διάστατο ίδιας σχετικής πυκνότητας.

### 7.8.2. Κατανομές ρυθμού απόθεσης - Ανομοιομορφίες

Για μια πιο ολοκληρωμένη μελέτη της διεργασίας, σχεδιάστηκαν και οι κατανομές του ρυθμού απόθεσης κατά μήκος της ακτίνας του υμενίου για τις τρεις διαφορετικές θερμοκρασίες, ενώ από τις κατανομές αυτές υπολογίστηκε και η ανομοιομορφία των παραγόμενων υμενίων για κάθε θερμοκρασία. Τα αποτελέσματα αυτά παρουσιάζονται στο σχήμα και πίνακα που ακολουθούν. Σημειώνεται ότι τα πρόσημα των τιμών της ακτίνας στο

σχήμα κατανομών αντιστοιχούν στις δύο κατευθύνσεις αναφοράς, με το κέντρο του υποστρώματος να αντιστοιχεί στη θέση 0.



Σχήμα 7.11: Κατανομή ρυθμού απόθεσης για τις τρεις διαφορετικές θερμοκρασίες

Πίνακας 7.14: Στοιχεία για το ρυθμό απόθεσης και την ανομοιομορφία των υμενίων

Μέγεθος	151 °C	185 °C	245 °C
Μέσος Ρ.Α.	135.57	160.82	93.27
Μέγιστος Ρ.Α.	136.26	165.03	127.35
Ελάχιστος Ρ.Α.	134.74	158.48	80.80
Ανομοιομορφία	1.12%	4.07%	49.91%

Με βάση το παραπάνω σχήμα και τον αντίστοιχο πίνακα, παρατηρείται μια σημαντική αύξηση της ανομοιομορφίας του πάχους των υμενίων με άνοδο της θερμοκρασίας υποστρώματος, ενώ για  $T=245\text{ }^{\circ}\text{C}$  η τιμή αυτή αγγίζει το 50% καθιστώντας πρακτικά τα παραγόμενα υμένια μη λειτουργικά στη συντριπτική πλειονότητα των πιθανών εφαρμογών τους. Για αυτό το λόγο, αλλά και επειδή γενικότερα σε αυτή τη θερμοκρασία ο μέσος ρυθμός απόθεσης είναι αρκετά μικρότερος από ότι σε χαμηλότερες θερμοκρασίες, αποφεύγεται η λειτουργία του αντιδραστήρα σε αυτή τη θερμοκρασία (και τις γειτονικές της).

Όσον αφορά τις άλλες δύο θερμοκρασίες που μελετήθηκαν, η καταλληλότερη προκύπτει με βάση την ειδική βαρύτητα που δίνεται από το σχεδιαστή-χειριστή της διεργασίας στην ταχύτητα και στην ανομοιομορφία για την εκάστοτε εφαρμογή. Σε περιπτώσεις όπου η

προδιαγραφή της ομοιομορφίας του πάχους είναι πολύ αυστηρή, θα προτιμηθεί η λειτουργία στους 151 °C όπου παρουσιάζεται αρκετά περιορισμένη ανομοιομορφία, ενώ σε άλλες περιπτώσεις όπου δεν δίνεται τόσο έμφαση στην ομοιομορφία, ο αντιδραστήρας θα λειτουργήσει στους 185 °C έτσι ώστε η απόθεση και επακόλουθα η παραγωγή υμενίων να είναι ταχύτερη, αφού σε αυτή τη θερμοκρασία παρατηρείται υψηλότερος ρυθμός απόθεσης συγκριτικά με τους 151 °C.



## 8. Συμπεράσματα

Στην παρούσα εργασία προτείνεται ένα υπολογιστικό πλαίσιο για τη δημιουργία ενός ROM ικανού να προβλέψει τη λύση ενός πλήρους, λεπτομερούς μοντέλου με ακρίβεια. Ταυτόχρονα, οι υπολογιστικές απαιτήσεις για την ανάπτυξη του ROM αλλά και για τη λειτουργία του είναι πολύ χαμηλές.

Συγκεκριμένα, σε ό,τι αφορά το ένα "συστατικό" του ROM, την κατασκευή της βάσης POD, προέκυψε ότι απαιτούνται στιγμιότυπα από τροχιές για μόλις τέσσερις διαταραχές στη φυσική παράμετρο, εδώ η παροχή εισόδου του DMEAA. Φροντίζοντας η επιλογή των τιμών παραμέτρων να είναι αντιπροσωπευτική για το ενδεδειγμένο παράθυρο λειτουργίας του αντιδραστήρα, προκύπτει ότι μόνο δύο διανύσματα βάσης είναι ικανά να προβλέψουν, με μικρά σφάλματα, τη δυναμική συμπεριφορά του αντιδραστήρα σε ένα ευρύ φάσμα τιμών παραμέτρων.

Αντίστοιχη διερεύνηση πραγματοποιήθηκε και κατά το σχεδιασμό των ANN, τα οποία υπολογίζουν τους χρονικούς συντελεστές που πολλαπλασιάζονται με την POD βάση για να προκύψει το τελικό συνολικό ROM. Με τη διερεύνηση αυτή προσδιορίστηκαν διάφορα σχεδιαστικά κριτήρια για την όσο το δυνατόν πιο αποδοτική μείωση τάξης. Αρχικά, διαπιστώθηκε ότι επτά επιβολές επαρκούν για την εκπαίδευση του NARX δικτύου, εφόσον αυτές εκτείνονται σε όλο το εύρος παροχών εισόδου. Επιπλέον, επιβεβαιώθηκαν τα εξής: i) Ένα κρυφό επίπεδο είναι υπεραρκετό για τον ικανοποιητικό προσδιορισμό των συντελεστών, ii) Η μέθοδος Bayesian Regularization εμφανίζει αξιόλογα αποτελέσματα κατά την εκπαίδευση του δικτύου, iii) Μία καθυστέρηση τόσο στην είσοδο όσο και στην έξοδο αρκεί για να «δοθεί» στο δίκτυο το απαιτούμενο χρονικό βάθος. Τέλος, προέκυψε το συμπέρασμα ότι για το συγκεκριμένο εύρος παροχών, πέντε νευρώνες όχι μόνο αρκούν αλλά μάλιστα παρουσιάζουν μικρότερο σφάλμα συγκριτικά με μεγαλύτερο πλήθος (10), πιθανότατα λόγω υπερπροσαρμογής του δικτύου στα δεδομένα εκπαίδευσης κατά την τελευταία περίπτωση.

Τελικά, με βάση τις παραπάνω σχεδιαστικές παραμέτρους της POD βάσης και του NARX ANN, προβλέπεται η απόκριση του αντιδραστήρα σε ανεξάρτητη επιβολή που δεν χρησιμοποιήθηκε σε κανένα σημείο της υπολογιστικής διαδικασίας. Το μέσο και μέγιστο σφάλμα ισούται με  $9.91 \cdot 10^{-3} \%$  και  $3.40 \cdot 10^{-2} \%$ , αντίστοιχα.

Όσον αφορά τα υπολογιστικά οφέλη της όλης διαδικασίας, αρχικά παρατηρήθηκε μια μείωση κατά 96% του απαιτούμενου CPU χρόνου για λήψη των υδροδυναμικών πεδίων του αντιδραστήρα, ενώ επίσης παρατηρείται 60% μείωση για την επίλυση του συνολικού μοντέλου και τη λήψη ολοκληρωμένης λύσης που περιλαμβάνει επιπλέον το ρυθμό απόθεσης, την ανομοιομορφία των υμενίων, κτλ. Στα σημαντικά αυτά κέρδη, εκτός από τη μείωση τάξης, συνεισφέρουν και οι δευτερεύουσες τεχνικές που χρησιμοποιήθηκαν, δηλαδή ο παράλληλος

προγραμματισμός και η παρεμβολή λύσης από-πλέγμα-σε-πλέγμα. Η τελευταία μάλιστα επιτρέπει την αξιοποίηση ενός πρακτικά «άχρηστου» αποτελέσματος που όμως λαμβάνεται ταχύτατα, για τον προσδιορισμό μιας λύσης υψηλής ακρίβειας. Επιπλέον, οι δύο αυτές τεχνικές επιτάχυναν σημαντικά και τη δημιουργία του ROM, κάτι που σε άλλη περίπτωση θα απαιτούσε πολύ CPU χρόνο και μνήμη RAM.

Σε δεύτερη φάση, το υπολογιστικό πλαίσιο εφαρμόστηκε άμεσα με σκοπό την πρωταρχική αξιολόγηση ενός πολύπλοκου κινητικού μοντέλο ΧΑΑ αλουμινίου από DMEAA, το οποίο είχε αναπτυχθεί στο πλαίσιο προηγούμενης διπλωματικής εργασίας. Καθώς οι τιμές των κινητικών παραμέτρων του μοντέλου αυτού είχαν προσδιορισθεί με προσαρμογή πειραματικών αποτελεσμάτων στις λύσεις μοντέλου δι-διάστατου πλέγματος, κρίθηκε αναγκαίο να γίνει σύγκριση των πειραματικών τιμών και με αποτελέσματα προσομοίωσης σε τρι-διάστατο πλέγμα. Για αυτόν το σκοπό κατασκευάστηκαν τρία ROM για τρεις διαφορετικές θερμοκρασίες υποστρώματος, από τα οποία υπολογίστηκαν σε πολύ σύντομο χρόνο ο μέσος ρυθμός απόθεσης για κάθε θερμοκρασία. Όπως ήταν αναμενόμενο, παρατηρείται μια μικρή αναντιστοιχία ανάμεσα στις τιμές του τρι-διάστατου μοντέλο και αυτών του δι-διάστατου αλλά και των πειραματικών. Ωστόσο, οι διαφορές βρίσκονται εντός πολύ λογικών ορίων και θεωρείται ότι με βελτιστοποίηση των κινητικών σταθερών με βάση το τρι-διάστατο μοντέλο, αυτές θα εξαλειφθούν.

Τέλος, υπολογίστηκαν και οι κατανομές του ρυθμού απόθεσης κατά μήκος του υποστρώματος και η επακόλουθη ανομοιομορφίες πάχους υμενίων για λόγους πληρότητας της σχετικής μελέτης. Από αυτές τις τιμές αλλά και τους μέσους ρυθμούς απόθεσης προκύπτουν συμπεράσματα για τη βέλτιστη θερμοκρασία υποστρώματος της διεργασίας. Πιο συγκεκριμένα, η λειτουργία σε πολύ υψηλές θερμοκρασίες (245 °C) κρίνεται απαγορευτική λόγω τόσο του χαμηλού ρυθμού απόθεσης αλλά και της υψηλής ανομοιομορφίας πάχους υμενίων. Όσον αφορά τις άλλες δύο θερμοκρασίες, η βέλτιστη προκύπτει με βάση την εκάστοτε βαρύτητα που δίνεται από τον υπεύθυνο της διεργασίας στην ταχύτητα ή στην ανομοιομορφία, όπου στην πρώτη περίπτωση προτιμάται η λειτουργία στους 185 °C ενώ στη δεύτερη στους 151 °C.

## 9. Προτάσεις για το μέλλον

Όσον αφορά το υπολογιστικό πλαίσιο, κρίνεται ως απαραίτητη η εφαρμογή και αξιολόγηση του και σε άλλα συστήματα, όπου οι μεταβολές της δυναμικής συμπεριφοράς θα είναι πιο έντονες. Αυτό μπορεί να επιτευχθεί ακόμα και στον ίδιον αντιδραστήρα για μεγαλύτερο εύρος τιμών παροχής εισόδου DMEAA, αλλά ιδιαίτερα σε άλλους αντιδραστήρες ΧΑΑ (και όχι μόνο), όπου οι μεταβολές της δυναμικής συμπεριφοράς θα επηρεάζονται και από πολλαπλότητα και αλλαγή ευστάθειας των λύσεων.

Σχετικά τη μείωση τάξης, αυτή θα μπορούσε να πραγματοποιηθεί μεταβάλλοντας και άλλες μεταβλητές εισόδου εκτός από την παροχή της πρόδρομης ένωσης, έτσι ώστε να δίνεται η δυνατότητα άμεσης μελέτης της επίδρασης περισσότερων κρίσιμων παραμέτρων της διεργασίας. Παραδείγματα τέτοιων παραμέτρων είναι η συνολική παροχή, η θερμοκρασία υποστρώματος αλλά και τοιχωμάτων, η θερμοκρασία εισόδου και η πίεση του αντιδραστήρα.

Τέλος, όσον αφορά το κινητικό μοντέλο, θεωρείται απαραίτητη η βελτιστοποίηση των κινητικών σταθερών με προσαρμογή των πειραματικών αποτελεσμάτων στο τρι-διάστατο μοντέλο, καθώς ο χώρος λύσεων των τρι-διάστατων μοντέλων είναι πλουσιότερος από των δι-διάστατων, εφόσον φυσικά και στις δύο περιπτώσεις το πλέγμα είναι αρκετά πυκνό έτσι ώστε να μπορεί να διασφαλιστεί η ανεξαρτησία της λύσης από αυτό.



## Βιβλιογραφία

- [1] Ν. Χειμαριός, "Προσομοίωση πολλαπλών χωρικών κλιμάκων και συστημική ανάλυση διεργασιών χημικής απόθεσης από ατμό," Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο, Σχολή Χημικών Μηχανικών, Αθήνα, Διδακτορική Διατριβή 2012.
- [2] Χ. Hou and K.-L. Choy, "Processing and Applications of Aerosol-Assisted Chemical Vapor Deposition," *Chemical Vapor Deposition*, vol. 12, no. 10, pp. 583-596, October 2006.
- [3] J.-H. Park and T. S. Sudarshan, *Chemical Vapor Deposition*, 2nd ed. Materials Park, OH, USA: ASM International, 2001.
- [4] Π. Γκίνης, "Μελέτη απόθεσης GaN σε αντιδραστήρα χημικής απόθεσης από ατμό με περιστρεφόμενο υπόστρωμα," Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο, Σχολή Χημικών Μηχανικών, Αθήνα, Διπλωματική Εργασία 2016.
- [5] Ι. G. Aviziotis, "Chemical vapor deposition of Al, Fe and of the Al<sub>13</sub>Fe<sub>4</sub> approximant intermetallic phase: Experiments and multiscale simulations," National Technical University of Athens, School of Chemical Engineering - University of Toulouse, Athens, Greece, PhD Thesis 2016.
- [6] M. J. Hampden-Smith and T. T. Kodas, "Chemical vapor deposition of metals: Part 1. An overview of CVD processes," *Chemical Vapor Deposition*, vol. 1, no. 1, pp. 8–23, July 1995.
- [7] Ν. Γ. Καλλικούνης, "Σχεδιασμός ομοιόμορφων υμενίων μέσω υπολογισμών πολλαπλών χωρικών κλιμάκων σε διεργασίες χημικής απόθεσης από ατμό," Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο, Σχολή Χημικών Μηχανικών, Αθήνα, Διπλωματική Εργασία 2014.
- [8] L. G. Hubert-Pfalzgraf and H. Guillon, "Trends in precursor design for conventional and aerosol-assisted CVD of high- T<sub>c</sub> superconductors," *Applied Organometallic Chemistry*, vol. 12, no. 3, pp. 221-236, 1998.
- [9] N. Li, Y.-H. A. Wang, M. N. Iliev, T. M. Klein, and A. Gupta, "Growth of Atomically Smooth Epitaxial Nickel Ferrite Films by Direct Liquid Injection CVD," *Chemical Vapor Deposition*, vol. 17, no. 7-9, pp. 261–269, September 2011.
- [10] R. Curley, T. McCormack, and M. Phipps, "Low-pressure CVD and Plasma-Enhanced CVD," University of Maryland, College Park, MD, Course Report 2011.
- [11] ANSYS Inc, *Ansys Fluent Theory Guide*, 12th ed., 2009.

- [12] Ελισάβετ Άγγλου, "Ανάπτυξη ρεαλιστικών μοντέλων μειωμένης τάξης για μη γραμμικές διεργασίες χημικής απόθεσης από ατμό," Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο, Σχολή Χημικών Μηχανικών, Αθήνα, Διπλωματική Εργασία 2017.
- [13] Θεόδωρος - Νέστωρ Παπαπέτρου, "Ανάπτυξη μειωμένης τάξης μοντέλου αντιδραστήρα Χημικής Απόθεσης από Ατμό με τη μέθοδο της ανάλυσης κυρίων συνιστωσών και τεχνητά νευρωνικά δίκτυα," Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο, Σχολή Χημικών Μηχανικών, Αθήνα, Διπλωματική Εργασία 2016.
- [14] ANSYS Inc, *Ansys Fluent User's Guide*, 12th ed., 2009.
- [15] AUTODESK Help. (2015, December) AUTODESK CFD. [Online]. <https://knowledge.autodesk.com/support/cfd/learn-explore/caas/CloudHelp/cloudhelp/2014/ENU/SimCFD/files/GUID-12A9AED8-2047-4D3A-BC80-82BE9CF47517-htm.html>
- [16] Bjorn Sjodin. (2016, April) MachineDesign. [Online]. <http://www.machinedesign.com/fea-and-simulation/what-s-difference-between-fem-fdm-and-fvm>
- [17] Α. Γ. Μπουντουβής, *Υπολογιστική Ανάλυση με τη Μέθοδο των Πεπερασμένων Στοιχείων - Εισαγωγικές Σημειώσεις*. Αθήνα, Ελλάδα: ΕΜΠ, 1992.
- [18] G. M. Psarellis et al., "Investigation of reaction mechanisms in the chemical vapor deposition of Al from DMEAA," *Chemical Engineering Science*, vol. 177, pp. 464–470, February 2018.
- [19] N. Mikoshiba, K. Tsubouchi, and K. Masu, "Plasma CVD of aluminum films," Assignment US5091210 A, February 25, 1992.
- [20] M. L. Green, R. A. Levy, R. G. Nuzzo, and E. Coleman, "Aluminum films prepared by metal-organic low pressure chemical vapor deposition," *Thin Solid Films*, vol. 114, no. 4, pp. 367-377, April 1984.
- [21] B. E. Bent, R. G. Nuzzo, and L. H. Dubois, "Surface organometallic chemistry in the chemical vapor deposition of aluminum films using triisobutylaluminum:  $\beta$ -hydride and  $\beta$ -alkyl elimination reactions of surface alkyl intermediates," *Journal of American Chemical Society*, vol. 111, pp. 1634-1644, 1989.
- [22] A. Sekiguchi, T. Kobayashi, N. Hosokawa, and T. Asamaki, "Gas-Temperature-Controlled (GTC) CVD of Aluminum and Aluminum-Silicon Alloy Film for VLSI Processing," *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 27, no. 11, pp. 2134-2136, November 1988.

- [23] Γ. Μ. Παρέλλης, "ΧΗΜΙΚΗ ΑΠΟΘΕΣΗ ΑΛΟΥΜΙΝΙΟΥ ΑΠΟ ΑΤΜΟ ΑΠΟ ΤΗΝ ΠΡΟΔΡΟΜΗ ΕΝΩΣΗ ΔΜΕΑΑ: ΔΙΕΡΕΥΝΗΣΗ ΜΗΧΑΝΙΣΜΩΝ ΧΗΜΕΙΑΣ ΚΑΙ ΚΙΝΗΤΙΚΗΣ," Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο, Σχολή Χημικών Μηχανικών, Αθήνα, Διπλωματική Εργασία 2017.
- [24] ANSYS Inc, *Ansys Fluent UDF Manual*, 12th ed., 2009.
- [25] R. Franke, "Scattered data interpolation: tests of some methods," *Mathematics of Computation*, no. 38, pp. 181-200 , 1982.
- [26] W. H. A. Schilders, H. A. Vorst, and J. Rommes, *Model Order Reduction: Theory, Research Aspects and Applications.*: Springer, 2008.
- [27] W. Xie, I. Bonis, and C. Theodoropoulos, "Linear MPC based on data-driven Artificial Neural Networks for large-scale nonlinear distributed parameter systems," in *Proceedings of the 22nd European Symposium on Computer Aided Process Engineering*, London, 2012.
- [28] A. J. Newman, "Model Reduction via the Karhunen-Loeve Expansion Part I: An Exposition," Institute for Systems Research and Electrical Engineering Department, University of Maryland, College Park, MD, Technical Research Report 1996.
- [29] M. F. Barone, D. J. Segalman, H. Thornquist, and I. Kalashnikova, "Galerkin Reduced Order Models for Compressible Flow with Structural Interaction," in *46th AIAA Aerospace Sciences Meeting and Exhibit*, Reno, Nevada, 2008.
- [30] A. K. Jain, J. Mao, and K.M. Mohiuddin, "Artificial neural networks: a tutorial," *Computer*, vol. 29, no. 3, pp. 31-44, March 1996.
- [31] M. Kayri, "Predictive Abilities of Bayesian Regularization and Levenberg–Marquardt Algorithms in Artificial Neural Networks: A Comparative Empirical Study on Social Data," *Mathematical and Computational Applications*, vol. 21, no. 2, p. 20, May 2016.
- [32] The MathWorks, *Neural Network Toolbox™ User's Guide (MATLAB)*, 6th ed., 2009.
- [33] O. Baghirli, "COMPARISON OF LAVENBERG-MARQUARDT, SCALED CONJUGATE GRADIENT AND BAYESIAN REGULARIZATION BACKPROPAGATION ALGORITHMS FOR MULTISTEP AHEAD WIND SPEED FORECASTING USING MULTILAYER PERCEPTRON FEEDFORWARD NEURAL NETWORK," Uppsala University, Uppsala, Master Dissertation 2015.
- [34] P. Kumar, S.N. Merchant, and U.B. Desai, "Improving performance in pulse radar detection using Bayesian regularization for neural network training," *Digital Signal Processing*, vol. 14, no. 5, pp. 438-448, September 2004.
- [35] T.-N. Lin, C. L. Giles, B. G. Horne, and S.Y. Kung, "A delay damage model selection algorithm

for NARX neural networks," *IEEE Transactions on Signal Processing*, vol. 45, no. 11, pp. 2719 - 2730, November 1997.

- [36] H. T. Siegelmann, B. G. Horne, and C. L. Giles, "Computational Capabilities of Recurrent NARX Neural Networks," *IEEE Transactions on Systems, Man, and Cybernetics, Part B (Cybernetics)*, vol. 27, no. 2, pp. 208 - 215, April 1997.