



**ΕΘΝΙΚΟ ΜΕΤΣΟΒΙΟ ΠΟΛΥΤΕΧΝΕΙΟ  
ΣΧΟΛΗ ΧΗΜΙΚΩΝ ΜΗΧΑΝΙΚΩΝ  
ΤΟΜΕΑΣ ΑΝΑΛΥΣΗΣ, ΣΧΕΔΙΑΣΜΟΥ &  
ΑΝΑΠΤΥΞΗΣ ΔΙΕΡΓΑΣΙΩΝ ΚΑΙ  
ΣΥΣΤΗΜΑΤΩΝ (II)**

Διπλωματική Εργασία

---

**ΠΡΟΣΟΜΟΙΩΣΗ ΤΗΣ ΚΑΤΑΛΥΤΙΚΗΣ  
ΠΥΡΟΛΥΣΗΣ ΜΕ ΧΡΗΣΗ ΜΗΧΑΝΙΚΗΣ  
ΜΑΘΗΣΗΣ ΚΑΙ ΕΝΣΩΜΑΤΩΣΗΣ ΔΕΔΟΜΕΝΩΝ**

---

Δημήτριος Μπλήτας

Επιβλέπων καθηγητής: Αντώνιος Κοκόσης

ΑΘΗΝΑ 2023



## Ευχαριστίες

Η εκπόνηση της παρούσας διπλωματικής εργασίας δεν θα είχε καταστεί εφικτή χωρίς την πολύτιμη συνδρομή των συνεργατών μας από την HelleniQ Energy - Ελληνικά Πετρέλαια και την AspenTech. Θα ήθελα να ευχαριστήσω τους κ.κ. Θανάση Στεφανάκη, Δήμητρα Κολοκοτσά και Γιάννη Γκαραβούνη από τα ΕΛ.ΠΕ. για την παροχή των δεδομένων λειτουργίας της μονάδας FCC στον Ασπρόπυργο και για τη συνεχή τους υποστήριξη καθ' όλη τη διάρκεια της έρευνάς μας. Από την AspenTech, θα ήθελα να ευχαριστήσω τον Δρ. Δημήτρη Βαρβαρέζο, που μερίμνησε για την παροχή των απαραίτητων αδειών χρήσης λογισμικού και τους κ. Daniel Clenzi, John Dryer για την ομαλή και ταχύτατη επίλυση όλων των προβλημάτων που προέκυψαν κατά τη διάρκεια της χρήσης του λογισμικού για τους σκοπούς της έρευνας.

## Περίληψη

Η καταλυτική πυρόλυση είναι μια εξαιρετικά σύνθετη, αλλά και εξαιρετικά κρίσιμη διεργασία για το διυλιστήριο. Η ίδια η φύση της διεργασίας περιέχει διάφορες πηγές που επιφέρουν υψηλούς βαθμούς πολυπλοκότητας (πολυσύνθετη τροφοδοσία, δαιδαλώδεις μηχανισμοί αντιδράσεων και ασύμμετρες κατανομές προϊόντων) και για τον λόγο αυτό η μοντελοποίησή της αποτελεί έως και σήμερα εξαιρετικά δύσκολο εγχείρημα. Ταυτόχρονα, η υψηλή αξία των προϊόντων της καταλυτικής πυρόλυσης δημιουργεί σημαντικά κίνητρα για την παραγωγή μοντέλων υψηλής ακρίβειας, τα οποία θα λειτουργούν βοηθητικά στη λήψη αποφάσεων για τον προγραμματισμό λειτουργίας της μονάδας. Στη σχετική βιβλιογραφία καταγράφονται δύο κατηγορίες μοντέλων: γραμμικά μοντέλα που χρησιμοποιούν την κλασική κινητική και εμπειρικές παραδοχές για να μειώσουν την πολυπλοκότητα και μοντέλα μηχανικής μάθησης ωθούμενα από τα δεδομένα, τα οποία συσχετίζουν δεδομένα εισόδου και εξόδου χωρίς ρητή διατύπωση εξισώσεων. Υπάρχουν κίνητρα για την συνδυαστική χρήση στοιχείων και από τις δύο κατηγορίες προς σχηματισμό υβριδικών μοντέλων, με ανώτερες επιδόσεις. Η παρούσα εργασία πραγματεύεται την ανάπτυξη τέτοιων μοντέλων, με χρήση μιας νέας τεχνικής, η οποία ονομάζεται ενσωμάτωση δεδομένων ή data embedding. Η τεχνική αυτή χρησιμοποιεί ως βάση τα μοντέλα κλασικής κινητικής και τα εμπλουτίζει με εμβόλιμη χρήση λειτουργικών δεδομένων από πραγματική μονάδα καταλυτικής πυρόλυσης. Τα δεδομένα αυτά επιδρούν απευθείας πάνω στις παραμέτρους των κινητικών μοντέλων, βελτιώνοντας την ακρίβεια των προβλέψεων χωρίς να υπάρχει ανάγκη για αναθεώρηση των εξισώσεων του μοντέλου. Επιπλέον, προσφέρει προοπτικές βελτίωσης μεθόδων μηχανικής μάθησης που ήδη εφαρμόζονται με συνδυαστική χρήση δεδομένων διυλιστηρίου και δεδομένων που προέρχονται από μοντέλα κατά τη διαδικασία εκπαίδευσης, διότι μειώνει την ανάγκη χρήσης των πραγματικών δεδομένων, χωρίς να μειώνει την ακρίβεια του μοντέλου.

Για να εφαρμόσουμε την ενσωμάτωση δεδομένων εργαστήκαμε ως εξής: Αρχικά συλλέχθηκαν δεδομένα λειτουργίας από βιομηχανική μονάδα καταλυτικής πυρόλυσης η οποία βρίσκεται στο διυλιστήριο των ΕΛΠΕ στον Ασπρόπυργο. Με χρήση του HYSYS αναπτύχθηκε μια προσομοίωση της διεργασίας, η οποία βαθμονομήθηκε με χρήση των δεδομένων αυτών. Με επαναλαμβανόμενη χρήση της προσομοίωσης δημιουργήθηκε ένα σύνολο δεδομένων εισόδου-εξόδου, που περιγράφει τη λειτουργία της μονάδας σε μεγάλο εύρος καταστάσεων. Τα δεδομένα αυτά χρησιμοποιήθηκαν για την εκπαίδευση νευρωνικού δικτύου, το οποίο δέχεται ως εισόδους δεδομένα τροφοδοσίας και λειτουργικών συνθηκών και δίνει ως έξοδο την κατανομή των προϊόντων στην έξοδο του αντιδραστήρα. Στη διαδικασία της εκπαίδευσης του δικτύου, μαζί με τα δεδομένα αυτά, ενσωματώθηκαν σε βήματα δεδομένα από την πραγματική διεργασία και μελετήθηκε η επίδραση της χρήσης τους στην ακρίβεια των προβλέψεων.

Προβλέψεις πραγματοποιήθηκαν σε ανεξάρτητο σετ δεδομένων, το οποίο δεν μετείχε στη διαδικασία εκπαίδευσης, ώστε να είναι δυνατή η αξιολόγηση της ικανότητας γενίκευσης του δικτύου. Τα αποτελέσματα της πρόβλεψης του δικτύου σε κάθε βήμα ενσωμάτωσης συγκρίθηκαν: I. Με τα αποτελέσματα που πραγματοποίησε το HYSYS πάνω στα ίδια δεδομένα, ώστε να αξιολογηθεί η βελτίωση της ακρίβειας που πετυχαίνει το δίκτυο σε σχέση με ένα κλασικό μοντέλο κινητικής. II. Με τις πραγματικές εξόδους στα ίδια σημεία, ώστε να αξιολογηθεί η βελτιωτική επίδραση της συνδυαστικής χρήσης δεδομένων στην ικανότητα γενίκευσης του δικτύου. Επιπλέον, πραγματοποιήθηκε διερεύνηση της επίδρασης των εσωτερικών χαρακτηριστικών του δικτύου στην πρόβλεψη και τα μοντέλα που αναπτύχθηκαν (HYSYS, νευρωνικά) αξιολογήθηκαν ως προς την ταχύτητά τους στην πραγματοποίηση προβλέψεων. Πραγματοποιήθηκε σύγκριση με μοντέλα της βιβλιογραφίας και αξιολογήθηκε η βελτίωση που επιτεύχθηκε. Αποδεικνύεται πρώτον ότι η ενσωμάτωση δεδομένων μπορεί να συμβάλλει στην βελτίωση των επιδόσεων των μοντέλων μηχανικής μάθησης υπό την προϋπόθεση της ορθής χρήσης των δεδομένων και ότι προκύπτουν μοντέλα της καταλυτικής πυρόλυσης πιο γρήγορα και εύχρηστα από τα μηχανιστικά μοντέλα από τα οποία προήλθαν.

## Abstract

Fluid catalytic cracking (FCC) is a markedly complex, yet critical operation for the refinery. The process contains a variety of factors contributing to its complexity, including but not limited to: complex feedstock composition, poorly understood reaction pathways and asymmetrical distribution of cracked products in output streams. The combined effect of these factors makes fluid catalytic cracking modeling a difficult task. At the same time, the immense economic value of the process provides strong incentives for the development of rigorous and accurate models, to assist both back-office and frontline operations. Currently used types of FCC models generally fall into one of two categories: Essentially linear models derived from first principles, which reduce process complexity at the cost of reduced accuracy and non-linear machine learning models, which offer accurate results but compromise the interpretability of the process. There is an apparent motivation to combine elements from both approaches towards the creation of hybrid models, which exhibit better performance than the constituent approaches on their own. This paper proposes methods for the development of such models, complimented by the use of a novel methodology, termed data embedding. Data embedding uses first principles models as a base-case and enriches them through embedded use of real process data, with the goal of improving accuracy. Process data operates directly upon model parameters, eschewing the need for the development of better equations. Furthermore, combined use of data from different sources provides for the betterment of currently used machine learning methods, by lowering requirements for training data collection without compromising model performance.

To deploy data embedding in the development of models for the FCC process, the following methodology was used: Operational data was collected from a real FCC unit in the HELPE Aspropyrgos refinery. This data was used to develop and calibrate a HYSYS model of the FCC process. A separate set of curated simulation data (inputs-outputs) was created by repeated deployment of the HYSYS model in a wide range of operating conditions. This curated set was used as an initial training set for a neural network model, which, similarly to HYSYS, receives as input data about feed and operating conditions and predicts product distribution at reactor exit. Real operational data was incrementally introduced in the training process, to determine the effect of data embedding on prediction accuracy.

Predictions were conducted on separate sets of data (test sets), kept hidden from the training process, in order to evaluate the generalization capacity of the developed model. Prediction results at each test set point were compared to: I. HYSYS predictions, to determine the level of accuracy improvement achieved through data embedding, II. Real unit outputs, to determine the impact of combined data use on the ability of the neural network to generalize, i.e., the ability to correctly predict outputs on data points not included in the original training set. As a secondary objective, the effect of internal model characteristics on prediction accuracy and general performance metrics of the models was analyzed and conclusions drawn as to the optimal configuration of neural network models to achieve best results. Models are compared to existing bibliography and the extent of achieved improvement is assessed. It is concluded that data embedding has conditional advantages in comparison to conventional model training and that resulting have favorable characteristics when compared to existing first principles models.

## Λέξεις κλειδιά

**Καταλυτική πυρόλυση:** Χημική διεργασία διυλιστηρίου, η οποία αξιοποιεί υψηλές θερμοκρασίες και ειδικούς καταλύτες με σκοπό τη διάσπαση υδρογονανθράκων με μεγάλα μήκη αλυσίδων σε πιο πολύτιμα ελαφρά προϊόντα. Δέχεται ως τροφοδοσία βαριά κλάσματα του αργού (gas oils) και τα κύρια προϊόντα της καταλυτικής πυρόλυσης είναι η νάφθα (συστατικό βενζίνης) και το υγραέριο. Χαρακτηριστικό γνώρισμα της διεργασίας είναι η παραγωγή μεγάλων ποσοτήτων κοκ, το οποίο επικάθεται στον καταλύτη και καταστρέφεται με καύση σε συζευγμένη μονάδα που ονομάζεται αναγεννητής.

**Μηχανική μάθηση:** Ο τομέας της επιστήμης των υπολογιστών που έχει ως αντικείμενο την ανάπτυξη και εφαρμογή μεθόδων και αλγορίθμων τεχνητής νοημοσύνης που επιτρέπουν στους υπολογιστές να δρουν και να εξελίσσονται αυτόνομα και εκτός των ορίων του αρχικού προγραμματισμού τους. Αυτό πραγματοποιείται με έκθεση των αλγορίθμων σε μεγάλο όγκο δεδομένων περιγραφής ενός συστήματος και χρήση ειδικών μαθηματικών εργαλείων που επιτρέπουν στους αλγόριθμους να τροποποιούν την εσωτερική δομή τους με προοδευτικά καλύτερα αποτελέσματα όσο αυξάνεται η έκθεση τους στα δεδομένα.

**Νευρωνικά δίκτυα:** Ισχυρά υπολογιστικά εργαλεία που μπορούν να επιτελέσουν το έργο της μηχανικής μάθησης και έχουν πληθώρα εφαρμογών. Τα νευρωνικά δίκτυα έχουν σειριακές δομές που προσιδιάζουν τη λειτουργία του ανθρώπινου εγκεφάλου. Σε ένα νευρωνικό δίκτυο, η πληροφορία εισόδου διοχετεύεται προς τα εμπρός, υφιστάμενη επεξεργασία από θεμελιώδεις υπολογιστικές μονάδες (νευρώνες) κάθετα οργανωμένες σε στρώματα, έως ύστατου στρώματος, που παράγει μια έξοδο. Με ανάστροφη διαδικασία (έξοδος → είσοδος), πραγματοποιείται προσαρμογή των παραμέτρων του δικτύου, σε μια διαδικασία που ονομάζεται εκπαίδευση του δικτύου και στόχο έχει την προσαρμογή της δομής αυτού σε ένα σύνολο δεδομένων, τα οποία καλούνται δεδομένα εκπαίδευσης.

**Ενσωμάτωση δεδομένων ή data embedding:** Ως ενσωμάτωση δεδομένων ορίζεται η εμβόλιμη χρήση δεδομένων λειτουργίας πραγματικής μονάδας στην αλυσίδα ανάπτυξης μοντέλων προσομοίωσης της μονάδας με βάση την κλασσική κινητική. Το data embedding εφαρμόζεται με συνδυαστική χρήση μεθόδων μηχανικής μάθησης και μοντέλων που στηρίζονται στην κινητική και παρέχει προοπτικές βελτίωσης αμφοτέρων.

# ΠΙΝΑΚΑΣ ΠΕΡΙΕΧΟΜΕΝΩΝ

Ευχαριστίες.....	3
Περίληψη .....	4
Abstract.....	5
Λέξεις κλειδιά.....	6
<b>1. Καταλυτική Πυρόλυση.....</b>	<b>10</b>
1.1 Συνοπτική Περιγραφή – Οικονομική αξία .....	10
1.2 Ιστορική αναδρομή .....	10
1.3 Στοιχεία εξοπλισμού.....	12
1.3.1 Αντιδραστήρας-Ανυψωτής .....	13
1.3.2 Αναγεννητής.....	14
1.4 Τροφοδοσία καταλυτικής πυρόλυσης .....	15
1.5 Αντιδράσεις.....	20
1.5.1 Καταλυτική Πυρόλυση .....	21
1.5.2 Θερμική Πυρόλυση.....	24
1.6 Προϊόντα .....	25
1.7 Καταλύτες FCC.....	28
1.7.1 Μικροδομή καταλυτών FCC.....	29
1.7.2 Διαχωρισμός καταλύτη .....	30
1.7.3 Απογύμνωση καταλύτη.....	31
1.7.4 Ανάλυση Καταλύτη σε Ισορροπία (E-Cat Analysis) .....	31
<b>2. Μηχανική Μάθηση .....</b>	<b>33</b>
2.1 Γενικά στοιχεία – ιστορική αναδρομή .....	33
2.2 Κατηγορίες μηχανικής μάθησης.....	33
2.3 Νευρωνικά Δίκτυα.....	38
2.4 Εκπαίδευση νευρωνικών δικτύων .....	41
2.4.1 Γενικά Στοιχεία.....	41
2.4.2 Εμπρόσθια Διάδοση .....	41
2.4.3 Συνάρτηση Ενεργοποίησης.....	43
2.4.4 Συνάρτηση Κόστους .....	45
2.4.5 Κατάβαση βαθμίδας .....	46
2.4.6 Οπισθοδιάδοση .....	47

3. Ανασκόπηση βιβλιογραφίας .....	49
3.1 Μοντελοποίηση καταλυτικής πυρόλυσης .....	49
3.2 Μοντέλα συγκεντρωμένης κινητικής (lumped kinetics) .....	49
3.3 Μοντέλα FCC: Η περίπτωση των νευρωνικών δικτύων.....	53
3.4 Στοχοθεσία της διπλωματικής εργασίας.....	56
3.5 Μεθοδολογία.....	58
3.5.1 Διαχείριση ροών δεδομένων.....	58
3.5.2 Ενίσχυση δεδομένων μέσω βαθμονόμησης του μηχανιστικού μοντέλου .....	61
3.5.3 Εφαρμογή ενσωμάτωσης δεδομένων.....	62
3.5.4 Μοντέλα μηχανικής μάθησης ωθούμενα από τα δεδομένα .....	63
4. Υπολογιστική Διαδικασία .....	65
4.1 Υπολογιστικά προγράμματα που χρησιμοποιήθηκαν .....	65
4.2 Κατασκευή μηχανιστικού υπολογιστικού μοντέλου στο Aspen HYSYS ....	65
4.2.1 Συμπλήρωση δεδομένων εισόδου στο Aspen HYSYS .....	66
4.2.2 Βαθμονόμηση της προσομοίωσης με χρήση δεδομένων δυλιστηρίου	68
4.2.3 Παραγωγή των εικονικών δεδομένων προσομοίωσης .....	73
4.3 Ανάπτυξη νευρωνικού δικτύου.....	74
4.3.1 Προεπεξεργασία δεδομένων.....	75
4.3.2 Ανάπτυξη αρχικού δικτύου.....	76
4.3.3 Συνάρτηση ενεργοποίησης και αλγόριθμος εκπαίδευσης .....	76
4.3.4 Αναλογία τμηματοποίησης (data splitting) των δεδομένων.....	77
4.4 Ενσωμάτωση δεδομένων στα μοντέλα.....	78
4.5 Μοντέλο πολυμεταβλητής γραμμικής παλινδρόμησης με μηχανική μάθηση	80
.....	
4.6 Καίριοι δείκτες απόδοσης .....	82
5. Αποτελέσματα .....	83
5.1 Διερεύνηση χαρακτηριστικών δομής νευρωνικού δικτύου .....	83
5.2 Πολυμεταβλητή γραμμική παλινδρόμηση με χρήση του AIMB .....	87
5.3 Μοντέλα ενσωμάτωσης δεδομένων .....	91
5.4 Επίδραση ενσωμάτωσης δεδομένων στην ακρίβεια της πρόβλεψης .....	100
5.5 Συγκριτική αξιολόγηση μοντέλων.....	104
5.6 Διερεύνηση ικανότητας γενίκευσης του νευρωνικού δικτύου.....	107
5.7 Παρατηρήσεις για τον υπολογιστικό χρόνο .....	110
6. Συμπεράσματα – Προτάσεις .....	111



<b>6.1 Συμπεράσματα.....</b>	<b>111</b>
<b>6.2 Προτάσεις για μελλοντική έρευνα .....</b>	<b>113</b>
<b>6.2.1 Επέκταση της βάσης δεδομένων.....</b>	<b>113</b>
<b>6.2.2 Ανάστροφη λειτουργία του μοντέλου.....</b>	<b>114</b>
<b>6.2.3 Εναλλακτικές αρχιτεκτονικές δικτύου.....</b>	<b>115</b>
<b>7. Βιβλιογραφία .....</b>	<b>117</b>
<b>ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ Α - Κώδικας .....</b>	<b>120</b>
<b>ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ Β – Διαγράμματα προβλέψεων .....</b>	<b>122</b>

# 1. Καταλυτική Πυρόλυση

## 1.1 Συνοπτική Περιγραφή – Οικονομική αξία

Η καταλυτική πυρόλυση (Fluid Catalytic Cracking ή FCC) είναι ενδεχομένως η σημαντικότερη από οικονομικής πλευράς διεργασία ενός διυλιστηρίου<sup>[1]</sup>. Στόχος της διεργασίας είναι η μετατροπή των βαρέων προϊόντων της κλασματικής απόσταξης σε συστατικά που χρησιμοποιούνται για την παραγωγή συστατικού βενζίνης (εφεξής «νάφθα» ή «βενζίνη») με υψηλό αριθμό οκτανίου (ΑΟ) και άλλα επιθυμητά χαρακτηριστικά, καθώς και άλλα συστατικά τα οποία χρησιμοποιούνται ως πρώτες ύλες της πετροχημικής βιομηχανίας. Αποτελεί με άλλα λόγια μία διεργασία αναβάθμισης των ευτελών κλασμάτων του αργού, που εξέρχονται από τις μονάδες πρωτοβάθμιας επεξεργασίας του διυλιστηρίου, σε προϊόντα υψηλότερης αξίας.

Η καταλυτική πυρόλυση έχει τεράστια οικονομική αξία για το διυλιστήριο και συχνά αποτελεί την μόνη κερδοφόρα μονάδα ενός διυλιστηρίου. Το 2020 λειτουργούσαν παγκοσμίως πάνω από 400 μονάδες καταλυτικής πυρόλυσης<sup>[2]</sup>, συνολικής δυναμικότητας 21050 χιλ. βαρελιών ανά ημέρα (bpd). Η συνολική δυναμικότητα αναμένεται να αυξηθεί στα 22240 χιλ. bpd το 2024<sup>[3]</sup>, ισχυροποιώντας περαιτέρω τη θέση της διεργασίας ως θεμελιώδες μέρος της διύλισης του αργού. Συνεισφέρει περίπου το 35%-50% της συνολικής βενζίνης που εμπορεύεται το διυλιστήριο. Επιπλέον, η ευελιξία της καταλυτικής πυρόλυσης ως προς την τροφοδοσία έχει οδηγήσει στην εφαρμογή της σε αναδυόμενους κλάδους της πράσινης οικονομίας, επεκτείνοντας την χρησιμότητά της και εκτός των ορίων του διυλιστηρίου.

## 1.2 Ιστορική αναδρομή

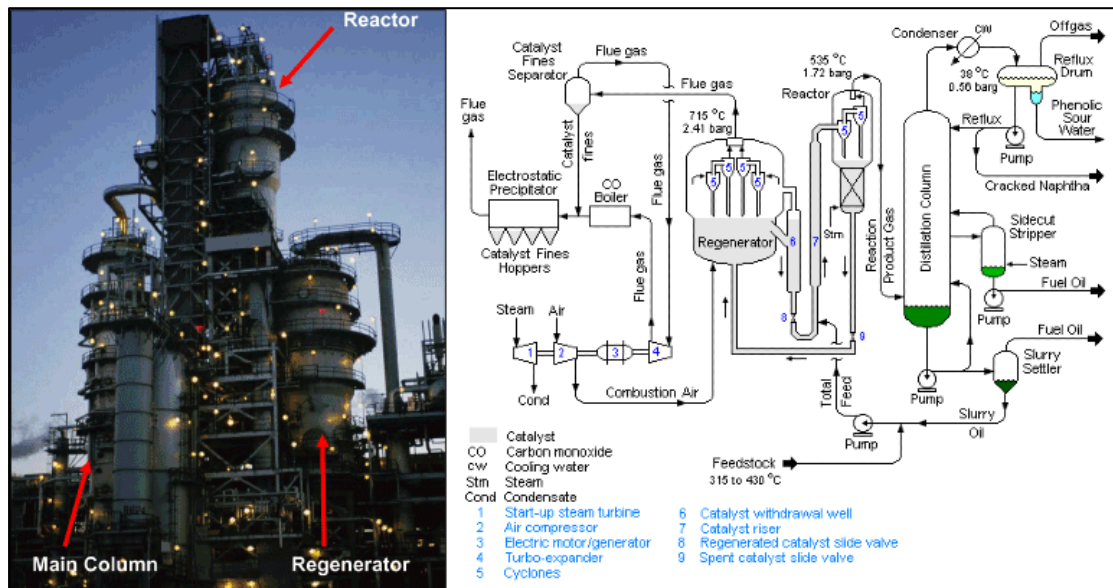
Όπως φανερώνει και η ονομασία, ο παράγοντας που διαχωρίζει την διεργασία από τις υπόλοιπες διεργασίες αναβάθμισης βαρέων κλασμάτων είναι η χρήση καταλύτη. Η πλήρης απόδοση της αγγλικής ονομασίας της στα ελληνικά, *ρευστοποιημένη καταλυτική πυρόλυση*, υποδηλώνει ότι οι αντιδράσεις λαμβάνουν χώρα εντός ρευστοποιημένης κλίνης καταλύτη-τροφοδοσίας. Για να γίνει περισσότερο κατανοητή η φιλοσοφία λειτουργίας και τα εγγενή πλεονεκτήματα της διεργασίας σε σχέση με άλλες διεργασίες αναβάθμισης βαρέων κλασμάτων, θα παρατεθεί μια σύντομη αναδρομή σε σημεία κλειδιά στην ανάπτυξή της.<sup>[4],[5],[6]</sup>

- Η εφεύρεση του αυτοκινήτου με κινητήρα εσωτερικής καύσης στα τέλη του 19<sup>ου</sup> αιώνα και η ραγδαία επέκτασή του στις αρχές του 20<sup>ου</sup>, δημιούργησε αυξημένη ζήτηση για βενζίνη, την οποία η πενιχρή απόδοση της κλασματικής απόσταξης του αργού δεν μπορούσε να καλύψει. Για πολλά χρόνια από την διάνοιξη της πρώτης πετρελαιοπηγής το 1859, το πολυτιμότερο κλάσμα του πετρελαίου ήταν η κηροζίνη, η οποία χρησιμοποιούνταν ως καύσιμο για λάμπες. Η βενζίνη εκείνη την περίοδο θεωρούνταν ευτελές προϊόν και συχνά απορριπτόταν μαζί με τα υπόλοιπα απόβλητα του διυλιστηρίου.

- Στις αρχές του 20<sup>ου</sup> αιώνα και δουλεύοντας ανεξάρτητα, ερευνητές από τις ΗΠΑ και την Ρωσία αναπτύσσουν διεργασίες αναβάθμισης του αργού πετρελαίου μέσω κατεργασίας σε υψηλή θερμοκρασίας και πίεση. Μία συνεχής διεργασία κατοχυρώνεται εμπορικά το 1913 στις ΗΠΑ με την ονομασία «Θερμική Πυρόλυση».
- Οι πωλήσεις αυτοκινήτων σημειώνουν μεγάλη αύξηση στις ΗΠΑ μετά το λανσάρισμα του Ford Model T, του πρώτου προσβάσιμου αυτοκινήτου για τα μεσαία κοινωνικά στρώματα. Η θερμική πυρόλυση αδυνατεί να ικανοποιήσει την ολοένα αυξανόμενη κατανάλωση βενζίνης. Επιπλέον, είναι διεργασία μη εκλεκτική και «βρώμικη», η οποία παράγει μικρή ποσότητα βενζίνης και μεγάλη ποσότητα κοκ, επιβάλλοντας τη συχνή διακοπή της λειτουργίας της μονάδας για καθαρισμό.
- Το 1925, ο Eugene Houdry ανακαλύπτει ότι καταλύτες μπορούν να διασπάσουν βαριά κλάσματα του πετρελαίου με υψηλή για τα δεδομένα της εποχής εκλεκτικότητα προς βενζίνη. Επιπλέον, το κοκ συσσωρεύεται στον καταλύτη, αντί στα τοιχώματα της μονάδας, όπου μπορεί εύκολα να καεί και να απελευθερώσει άμεσα τον καταλύτη για νέα χρήση. Λαμβάνει πατέντα για τη διεργασία και συνεχίζει την έρευνά του μέχρι το 1940, ενώ ταυτόχρονα στήνονται πειραματικές μονάδες καταλυτικής πυρόλυσης πιλοτικής κλίμακας σε διάφορα διυλιστήρια. Ο καταλύτης είναι φυσική άργιλος ή άργιλος κατεργασμένη με ισχυρά οξέα.
- Το 1942 και με την τεχνολογία να έχει πια ωριμάσει, κατασκευάζεται η πρώτη εμπορικής κλίμακας μονάδα FCC. Η ικανότητα της μονάδας να παράγει μεγάλες ποσότητες βενζίνης υψηλού οκτανίου ενισχύει τη θέση της αμερικανικής αεροπορίας στον Β'ΠΠ και καθιστά τη διεργασία αναπόσπαστο κομμάτι του διυλιστηρίου.
- Τα επόμενα χρόνια, οι ερευνητές εστιάζουν στην ανάπτυξη συνθετικών καταλυτών. Το 1964 η Mobil λανσάρει τους καταλύτες αλούμινας/ζεόλιθου, οι οποίοι αυξάνουν την απόδοση των μονάδων σε βενζίνη έως και 5 ποσοστιαίες μονάδες με αποτέλεσμα έκτοτε να συνδεθούν αναπόσπαστα με τη διεργασία.
- Από την δεκαετία του 1960 ως σήμερα, το ερευνητικό ενδιαφέρον εστιάζει στην ανάπτυξη προσθέτων καταλύτη που βελτιστοποιούν συγκεκριμένα κομμάτια της διεργασίας. Τα σημαντικότερα από αυτά αφορούν την απενεργοποίηση μετάλλων που δηλητηριάζουν τον καταλύτη, την μείωση εκπομπών και την αύξηση της παραγωγής προπυλενίου (ZSM-5). Μετρώντας 90 και πλέον χρόνια παρουσίας, παραμένει μια διεργασία που συγκεντρώνει το ενδιαφέρον ερευνητών του κλάδου από όλες τις ηπείρους.

### 1.3 Στοιχεία εξοπλισμού

Οι διατάξεις που χρησιμοποιούνται στα σύγχρονα διυλιστήρια για την πραγματοποίηση της καταλυτικής πυρόλυσης είναι εξαιρετικά σύνθετα συμπλέγματα εξοπλισμού με μεγάλες διαστάσεις. Τα δύο κύρια κομμάτια εξοπλισμού στα οποία λαμβάνει χώρα το σύνολο των αντιδράσεων της καταλυτικής πυρόλυσης είναι ο ανυψωτής-αντιδραστήρας (riser-reactor) και ο αναγεννητής (regenerator). Το εξυγениσμένο gasoil εξέρχεται από την κορυφή του ανυψωτή και κατευθύνεται σε αποστακτική στήλη, από την οποία λαμβάνονται τα προϊόντα της καταλυτικής πυρόλυσης. Στον αναγεννητή λαμβάνει χώρα ο καθαρισμός του καταλύτη από το κοκ. Το τρίπτυχο ανυψωτής-αναγεννητής-αποστακτική στήλη είναι ο λειτουργικός πυρήνας μιας μονάδας καταλυτικής πυρόλυσης, τον οποίο συμπληρώνουν διάφορα βοηθητικά κομμάτια εξοπλισμού. Ένα τυπικό διάγραμμα ροής αποτυπώνεται στην Εικόνα 1.1:



Εικόνα 1.1: Μονάδα Καταλυτικής Πυρόλυσης σε Διυλιστήριο και διάγραμμα ροής διεργασίας. Αποτυπώνονται τα βασικά κομμάτια εξοπλισμού της διεργασίας και τυπικές συνθήκες λειτουργίας. Αναδημοσιεύεται με άδεια CC BY 4.0.

Τα βοηθητικά κομμάτια του εξοπλισμού επιτελούν διάφορες λειτουργίες. Στην κορυφή αντιδραστήρα και αναγεννητή βρίσκονται πρωτοβάθμιοι και δευτεροβάθμιοι κυκλώνες, οι οποίοι διαχωρίζουν τον καταλύτη που έχει παρασυρθεί με τα αέρια ρεύματα προϊόντων και καυσαερίων αντιστοίχως. Ο διαχωρισμός καταλύτη από τα καυσαέρια του αναγεννητή ενισχύεται με χρήση ηλεκτροστατικών κατακρημνιστών. Η νάφθα που εξέρχεται από την κλασματική στήλη κατευθύνεται προς αποβουτανίωση. Τέλος, το προϊόν πυθμένα διέρχεται από δεξαμενές καθίζησης και το ίζημα ανακυκλώνεται στην είσοδο του ανυψωτή.

### 1.3.1 Αντιδραστήρας-Ανυψωτής

Στις σύγχρονες μονάδες καταλυτικής πυρόλυσης, η προθερμασμένη τροφοδοσία ψεκάζεται με ακροφύσια στην βάση του αντιδραστήρα-ανυψωτή, όπου έρχεται σε επαφή με τον θερμό καταλύτη και εξατμίζεται ακαριαία. Η απότομη αυτή εκτόνωση οδηγεί το gasoil και τον καταλύτη που παγιδεύεται προς τα πάνω, δημιουργώντας ρευστοποιημένη κλίνη. Κατά τη διάρκεια της ανύψωσης συμβαίνουν όλες οι αντιδράσεις καταλυτικής και θερμικής πυρόλυσης σε διάστημα μικρότερο των τριών δευτερολέπτων<sup>[7]</sup>. Για να διασφαλιστεί η επιθυμητή ροή, στη βάση του ανυψωτή μαζί με το gasoil ψεκάζεται υπέρθερμος ατμός, ο οποίος κατευθύνει το αερόλυμα προς τα πάνω.

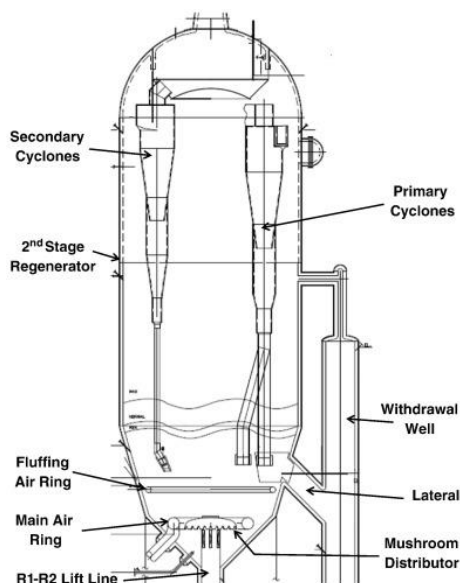


*Εικόνα 1.2: Ανυψωτής καταλυτικής πυρόλυσης. Θερμός αναγεννημένος καταλύτης ανέρχεται από τον αναγεννητή και τροφοδοσία ψεκάζεται μαζί με ατμό προώθησης από πλευρικούς ψεκαστήρες. Πνευματικά δικαιώματα: Spraying Systems CO, αναδημοσιεύεται με άδεια.*

Οι αντιδράσεις της καταλυτικής πυρόλυσης έχουν ως παράπλευρο αποτέλεσμα τον σχηματισμό σημαντικής ποσότητας κοκ, το οποίο εναποτίθεται στον καταλύτη, απενεργοποιώντας τον. Στην κορυφή του ανυψωτή, κυκλώνες διαχωρίζουν τα στερεά σωματίδια από το αέριο ρεύμα. Το μίγμα ατμών-καταλύτη διέρχεται πρώτα από τμήμα απογύμνωσης, στο οποίο χρησιμοποιείται ατμός για να αφαιρέσει τους υδρογονάνθρακες που έχουν προσροφηθεί στους πόρους του καταλύτη. Ο στερεός απενεργοποιημένος καταλύτης οδηγείται έπειτα με εξαναγκασμένη ροή στον αναγεννητή.

### 1.3.2 Αναγεννητής

Στον αναγεννητή, το κοκ που έχει επικαλύψει την εισερχόμενη τροφοδοσία απενεργοποιημένου καταλύτη καίγεται, ώστε πλέον καθαρός να μπορεί να εισαχθεί εκ νέου στον ανυψωτή-αντιδραστήρα. Η καύση πραγματοποιείται με έγχυση αέρα, συχνά ενισχυμένου με καθαρό οξυγόνο μέσα από σύστημα διανομής στη βάση του αναγεννητή. Στον αναγεννητή, λόγω της εξώθερμης καύσης του κοκ, εκτός από αναγέννηση του καταλύτη παράγεται και σημαντική θερμότητα, η οποία διοχετεύεται στον ανυψωτή για να ενισχύσει τις ενδόθερμες αντιδράσεις καταλυτικής πυρόλυσης. Η συζευγμένη διεργασία πυρόλυσης-αναγέννησης είναι θερμικά ουδέτερη.

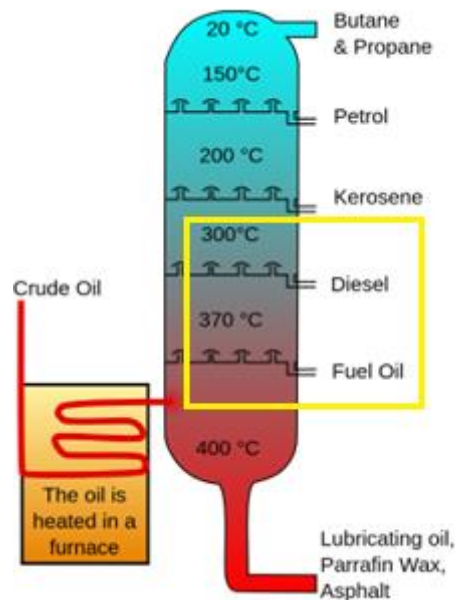


Εικόνα 1.3: Τομή αναγεννητή μονάδας καταλυτικής πυρόλυσης.

Ο απενεργοποιημένος καταλύτης τυπικά περιέχει από 0.5% έως 1.5% κ.β. κοκ<sup>[8]</sup>. Στο τέλος της διεργασίας καύσης, ο αναγεννημένος καταλύτης τυπικά περιέχει λιγότερο από 0.10% κατά βάρος κοκ. Η ποσότητα κοκ που βρίσκεται δεσμευμένη στον καταλύτη είναι σημαντική παράμετρος στη λειτουργία και την προσομοίωση της μονάδας FCC και συχνά αναφέρεται για συντομία ως Coke-On-Catalyst (COC). Το κοκ αποτελείται κατά κύριο λόγο από άνθρακα και υδρογόνο, καθώς και μικρά ποσοστά θείου και αζώτου. Το ποσοστό υδρογόνου του κοκ είναι μια άλλη παράμετρος που επηρεάζει τη λειτουργία του αναγεννητή. Τυπικά, ένας αναγεννητής λειτουργεί σε θερμοκρασίες από 640°C έως 840°C, ανάλογα με το αν είναι επιθυμητή πλήρης ή μερική καύση και πιέσεις από 15 έως 25 psi. Η μερική καύση, αλλιώς αναγέννηση δύο σταδίων, ενδείκνυται σε μονάδες που επεξεργάζονται πολύ βαριά κλάσματα του αργού, και επιθυμείται εξουδετέρωση του κοκ χωρίς υπέρμετρη αύξηση της θερμοκρασίας του αναγεννημένου καταλύτη (η οποία οδηγεί σε δευτεροβάθμια διάσπαση της βενζίνης σε ευτελή αέρια προϊόντα (overcracking)).

## 1.4 Τροφοδοσία καταλυτικής πυρόλυσης

Η διάταξη FCC δέχεται ως τροφοδοσία το λεγόμενο «βαρύ» *gasoil* (*heavy gasoil* ή *HGO*), το οποίο αντιστοιχεί στο κλάσμα του αργού το οποίο έχει θερμοκρασία ζέσεως από 260-400°C σε ατμοσφαιρική πίεση (Καρώνης, Λόης, Ζαννίκος). Σε ειδικά διαμορφωμένες μονάδες μπορεί επίσης να χρησιμοποιηθεί *gasoil* κενού (*heavy vacuum gas oil* ή *HVGO* ή *VGO*), το οποίο έχει θερμοκρασία ζέσεως από 320-420 °C ή υπόλειμμα απόσταξης υπό κενό (*vacuum residue*, σ.ζ. >420°C). Η σύσταση του HGO διαφέρει ανάλογα με τον τύπο του αργού από το οποίο προήλθε και επηρεάζει το ύψος και την κατεύθυνση της μετατροπής που επιτυγχάνει η μονάδα FCC και κατά συνέπεια και τα οικονομικά της μονάδας. Αν και η καταλυτική πυρόλυση είναι ευέλικτη διεργασία, ικανή να χειριστεί μεγάλο εύρος τροφοδοσιών με απλή προσαρμογή των συνθηκών λειτουργίας, είναι σημαντικό κάθε φορά να εξασφαλίζεται ότι τα διάφορα κομμάτια του εξοπλισμού είναι κατάλληλα για διαχείριση μιας δεδομένης τροφοδοσίας.



Εικόνα 1.4: Διαχωρισμός αργού πετρελαίου στις συνιστώσες ενώσεις μέσω κλασματικής απόσταξης. Με κίτρινο πλαίσιο σημειώνεται το εύρος σημείων ζέσεως των *gas oils* που χρησιμοποιούνται ως τροφοδοσίες FCC. Αναδημοσιεύεται με άδεια CC BY 3.0.

Η ποιότητα της τροφοδοσίας καθορίζεται από το είδος των υδρογονανθράκων που περιέχει, καθώς και την παρουσία ακαθαρσιών με την μορφή ετεροατόμων εντός αυτής. Για τον λόγο αυτό, πριν επιλεγεί η τροφοδοσία την οποία θα επεξεργαστεί η μονάδα, οι δύο αυτές παράμετροι αξιολογούνται μέσω μιας διαδικασίας που ονομάζεται *χαρακτηρισμός της τροφοδοσίας* ή *feed characterization*. Ο χαρακτηρισμός της τροφοδοσίας είναι απαραίτητος ώστε η τροφοδοσία που επεξεργάζεται η μονάδα να μπορεί να αξιολογηθεί αντικειμενικά και συστηματικά ως προς τα αναμενόμενα αποτελέσματα της καταλυτικής πυρόλυσης. Ένα τυπικό *gas oil* περιέχει εκατοντάδες<sup>[9]</sup> οργανικές ενώσεις. Για να καταστεί πιο εύκολη η μελέτη των ιδιοτήτων του *gas oil* και να υπολογιστεί η αναμενόμενη απόδοση της διεργασίας, μέσω του χαρακτηρισμού

τροφοδοσίας οι εκατοντάδες αυτές ενώσεις οργανώνονται ως προς την κατηγορία οργανικών ενώσεων στην οποία ανήκουν βάσει συντακτικού τύπου. Υπό το πρίσμα αυτό, μια τροφοδοσία gasoil καταλυτικής πυρόλυσης περιέχει:

- Παραφίνες
- Ολεφίνες
- Ναφθένια
- Αρωματικά

Οι *παραφίνες* ή *αλκάνια* ( $C_nH_{2n+2}$ ) αποτελούν το μεγαλύτερο κλάσμα όγκου των τροφοδοσιών καταλυτικής πυρόλυσης (τυπικά 50-65% κ.ο.). Οι παραφίνες των τροφοδοσιών gasoil γενικά εμφανίζουν χαμηλό βαθμό διακλάδωσης και για τον λόγο αυτό οι υπέρμετρα παραφινικές τροφοδοσίες γενικά δεν προτιμώνται για την καταλυτική πυρόλυση. Η διάσπαση τους είναι σχετικά εύκολη και δίνει συνήθως μικρότερες παραφίνες και ολεφίνες. Διασπώνται κυρίως προς βενζίνη, αλλά η παραγόμενη βενζίνη έχει χαμηλότερο αριθμό οκτανίου (Α.Ο.). Αυξάνουν όμως τον αριθμό κετανίου (Α.Κ.) του παραγόμενου LCO.

Οι *ολεφίνες* ή *αλκένια* ( $C_nH_{2n}$ ) αποτελούν μικρό μόνο κλάσμα της τροφοδοσίας (τυπικά μικρότερο του 5% κ.ο.) και συνήθως δεν λαμβάνονται υπόψη στον χαρακτηρισμό της τροφοδοσίας. Είναι εξαιρετικά ανεπιθύμητες ενώσεις επειδή είναι ασταθείς και διασπώνται ακανόνιστα, συνήθως προς ευτελή αέρια προϊόντα. Επιπλέον, λόγω της παρουσίας διπλού δεσμού στο μόριο, τείνουν να πολυμερίζονται προς βαρείς υδρογονάνθρακες που καταλήγουν στο προϊόν πυθμένα και στο κοκ. Ωστόσο, όταν καταλήγουν αδιάσπαστες στη νάφθα οδηγούν σε αύξηση του αριθμού οκτανίου. Τα *ναφθένια* (5-10% κ.ο. της τροφοδοσίας) ή *κυκλοαλκάνια* είναι επιθυμητά ως μέρος της τροφοδοσίας, καθώς δίνουν συστατικό βενζίνης πλούσιο σε αρωματικά και με υψηλό Α.Ο.

Οι *αρωματικές ενώσεις* (σε ορισμένες περιπτώσεις έως και 50% της τροφοδοσίας) περιέχουν τουλάχιστον έναν αρωματικό δακτύλιο και εν γένει δεν είναι επιθυμητά συστατικά τροφοδοσίας. Αφενός, ο αρωματικός δακτύλιος είναι σταθερός και δεν μπορεί να διασπαστεί σε μικρότερες ενώσεις και αφετέρου έχουν την τάση να συσσωματώνονται προς σχηματισμό πολυαρωματικών ενώσεων μεγάλου μοριακού βάρους, οι οποίες επικάθονται στον καταλύτη ως κοκ (chicken wire coke). Καταλυτική πυρόλυση λαμβάνει χώρα μόνον σε πλευρικές αλυσίδες-υποκαταστάτες των δακτυλίων. Η βενζίνη που παράγεται ωστόσο έχει αυξημένη περιεκτικότητα σε αρωματικά και συνεπώς υψηλό Α.Ο. Οι υδρογονάνθρακες που βρίσκονται εντός της τροφοδοσίας, καθώς και οι σχετικές επιδράσεις αυτών στην παραγωγή και την ποιότητα της παραγόμενης βενζίνης παρουσιάζονται στον Πίνακα 1.1:



Πινάκας 1.1: Κατηγορίες ενώσεων που βρίσκονται σε μία τυπική τροφοδοσία FCC, τυπικά κλάσματα όγκου αυτών στις τροφοδοσίες, ποσοτική και ποιοτική επίδρασή τους στην παραγωγή συστατικού βενζίνης<sup>[10],[11]</sup>.

Κατηγορία	Κλάσμα όγκου (%)	Επιθυμητότητα	Παραγωγή Βενζίνης	Επίδραση στον ΑΟ Βενζίνης
Παραφίνες	50-65	Επιθυμητά	Αύξηση	Αρνητική
Ολεφίνες	<5	Ανεπιθύμητα	Μείωση	Θετική
Ναφθένια	5-10	Επιθυμητά	Αύξηση	Θετική
Αρωματικά	έως 50	Ανεπιθύμητα	Μείωση	Θετική

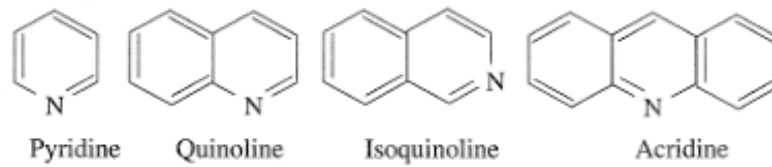
### Ακαθαρσίες τροφοδοσίας

Στις τροφοδοσίες FCC ευρίσκονται πάντοτε ακαθαρσίες/ετεροάτομα, είτε αυτούσιες, είτε ως μέρος μεγάλων οργανικών μορίων. Το είδος και η ποσότητα των ετεροατόμων είναι συνάρτηση της προέλευσης της τροφοδοσίας και του βαθμού της προεπεξεργασίας που έχει υποστεί πριν φτάσει στη μονάδα FCC<sup>[12]</sup>. Τα ετεροάτομα απενεργοποιούν (συνήθως αναντιστρεπτά) τον καταλύτη, μειώνοντας καταστροφικά την ικανότητα του να παράγει συστατικό βενζίνης και κατά συνέπεια επιδρούν αρνητικά στην απόδοση της μονάδας. Οι ακαθαρσίες με την μεγαλύτερη επίδραση στην λειτουργία του καταλύτη είναι τα μέταλλα, το άζωτο και το θείο. Στις επόμενες παραγράφους θα αναλυθούν οι πηγές και η επίδραση των αμέταλλων ακαθαρσιών στην απόδοση της μονάδας, καθώς και οι τακτικές εξουδετέρωσής τους. Για τα μέταλλα θα γίνει ειδική μνεία στην ενότητα 1.7, όπου αναλύονται οι ιδιότητες των καταλυτών που χρησιμοποιούνται στην καταλυτική πυρόλυση.

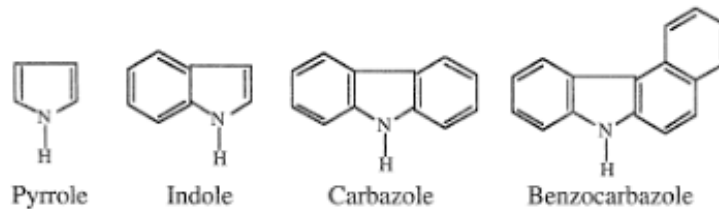
### Άζωτο

Το άζωτο ευρίσκεται εκ φύσεως στο πετρέλαιο ως μέρος αζωτούχων οργανικών ενώσεων<sup>[13]</sup>. Στον χαρακτηρισμό της τροφοδοσίας, το άζωτο χωρίζεται σε *βασικό* και *μη βασικό*. Εκ των δύο, το βασικό άζωτο είναι εκείνο το οποίο προκαλεί τα σημαντικότερα προβλήματα, καθώς καταλαμβάνει εύκολα τις όξινες θέσεις του καταλύτη, μειώνοντας την μετατροπή. Το μη βασικό άζωτο δεν είναι διαβρωτικό, αλλά αυξάνει το φορτίο του αναγεννητή επειδή μετατρέπεται σε στοιχειακό άζωτο (N<sub>2</sub>) κατά την καύση του. Στα gasoils που επεξεργάζεται μια μονάδα καταλυτικής πυρόλυσης ευρίσκεται μεγάλος αριθμός διαφορετικών αζωτούχων ενώσεων, με διαφορετικά επίπεδα βασικότητας:

### Basic Nitrogen Compounds



### Non-Basic Nitrogen Compounds



Εικόνα 1.5: Βασικές και μη βασικές αζωτούχες ενώσεις που απαντώνται στο αργό πετρέλαιο. Η παρουσία του εξαιρετικά ευσταθούς αρωματικού δακτυλίου στο μόριό τους δυσχεραίνει την καταστροφή τους και συντελεί στην αύξηση παραγωγής κοκ και την διάβρωση του εξοπλισμού της μονάδας.

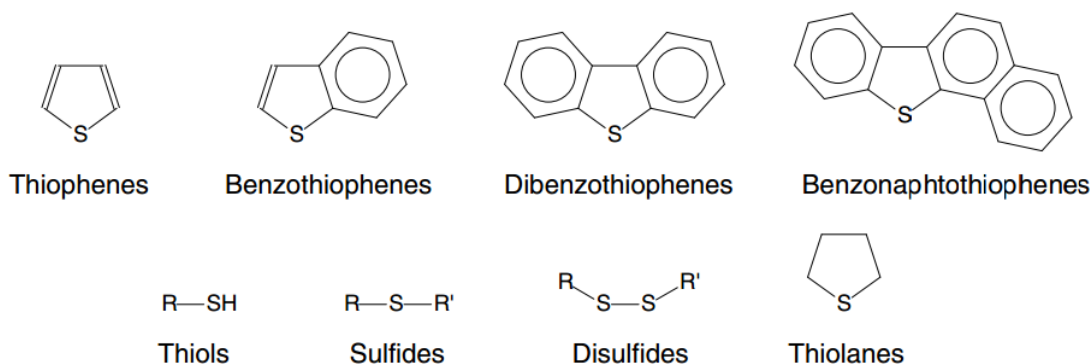
Πέραν της απενεργοποίησης του καταλύτη, η παρουσία βασικού αζώτου στην τροφοδοσία έχει διαβρωτική επίδραση σε διάφορα κομμάτια του εξοπλισμού<sup>[14]</sup>. Ιδιαίτερος στον ανυψωτή, οι αζωτούχες ενώσεις μετατρέπονται σε υδροκυάνιο (HCN), το οποίο καταστρέφει τις προστατευτικές επιστρώσεις των σωληνώσεων, εκθέτοντας τον μεταλλικό σκελετό της μονάδας σε διάβρωση. Αυτού του είδους η διάβρωση πρέπει να αξιολογείται τακτικά, καθώς προσωρινή αμέλεια από την πλευρά του επιβλέποντος μπορεί να οδηγήσει σε ταχύτατη καταστροφή τμημάτων του εξοπλισμού ή καταστροφική αστοχία, με επικίνδυνες συνέπειες για το προσωπικό και τον εξοπλισμό.

Η τακτική για την αντιμετώπιση του αζώτου στην τροφοδοσία έγκειται στην εξισορρόπηση μεταξύ εντονότερης υδρογονοκατεργασίας (βλ. «Υδρογονοκατεργασία») και αύξησης της θερμοκρασίας του αντιδραστήρα και του αναγεννητή, με στόχο την καταστροφή τους εντός της μονάδας. Η αύξηση της θερμοκρασίας είναι η πιο εύκολη λύση, ωστόσο υπερβολική αύξηση της θερμοκρασίας μπορεί να οδηγήσει σε δευτεροβάθμια διάσπαση (overcracking) της βενζίνης και να αυξήσει σημαντικά το θερμαντικό φορτίο του αναγεννητή. Εν τέλει, είναι μια απόφαση που καθορίζεται από τα οικονομικά της μονάδας.

### Θείο

Όλες οι ακατέργαστες τροφοδοσίες που επεξεργάζεται η καταλυτική πυρόλυση περιέχουν θείο, σε συγκεντρώσεις που δεν υπερβαίνουν το 5%. Οι βαρύτερες και πιο αρωματικές τροφοδοσίες περιέχουν τις υψηλότερες συγκεντρώσεις θείου. Το θείο βρίσκεται στην τροφοδοσία με την μορφή μερκαπτανών, σουλφιδίων, δισουλφιδίων, πολυσουλφιδίων και θειοφαινών. Η παρουσία θείου είναι ανεπιθύμητη διότι οδηγεί σε

εκπομπές ρυπογόνων οξειδίων του θείου, αυξάνοντας το κόστος καθαρισμού των προϊόντων και καταστρέφοντας αργά τα διάφορα κομμάτια του εξοπλισμού<sup>[15]</sup>.



Εικόνα 1.6: Συντακτικοί τύποι θειούχων οργανικών ενώσεων που απαντώνται συχνά στα gasoils καταλυτικής πυρόλυσης.

Η ίδια η διεργασία της καταλυτικής πυρόλυσης καταστρέφει ποσότητα του θείου, η οποία αφορά κυρίως τις μη-θειοφαινικές ενώσεις, καθώς ο ευσταθής αρωματικός θειοφαινικός δακτύλιος αποτρέπει την διάσπαση. Η καταστροφή του θείου μέσω μετατροπής προς  $H_2S$  αυξάνει με την επιτυγχανόμενη μετατροπή της μονάδας. Η μετατροπή, μαζί με παράγοντες όπως ο χρόνος παραμονής και το είδος του καταλύτη καθορίζει την κατανομή του θείου στα διάφορα προϊόντα. Προφανώς είναι επιθυμητό να κατευθυνθεί όσο περισσότερη ποσότητα θείου γίνεται στα βαριά έναντι των ελαφρών προϊόντων, διότι τα δεύτερα τυπικά υπόκεινται σε αυστηρές προδιαγραφές εκπομπών.

### Υδρογονοκατεργασία

Η υδρογονοκατεργασία είναι η ενδεδειγμένη μέθοδος για την αντιμετώπιση όλων των προβλημάτων που προκαλεί η παρουσία ετεροατόμων εντός της τροφοδοσίας όπου και όταν αυτή είναι εφικτή. Κατά την διεργασία αυτή, η τροφοδοσία αντιδρά με υδρογόνο, με σκοπό αφενός να αναβαθμιστούν τα ανεπιθύμητα οργανικά συστατικά της τροφοδοσίας και αφετέρου να εξουδετερωθούν τα ανασταλτικά ετεροάτομα.

- Εξουδετέρωση του θείου προς υδρόθειο, που είναι και ο κυριότερος στόχος της διεργασίας. Μειώνοντας το θείο της τροφοδοσίας, μειώνεται αναλογικά και το θείο που καταλήγει στα προϊόντα, εξασφαλίζοντας συμμόρφωση με τις προδιαγραφές για τα καύσιμα μεταφορών σε Ευρώπη και Αμερική.
- Οι ολεφίνες μετατρέπονται σε παραφίνες, βελτιώνοντας την απόδοση της μονάδας. Οι κατεργασμένες τροφοδοσίες θεωρούνται ελεύθερες ολεφινών.
- Υδρογόνο προστίθεται στους εξωτερικούς δακτυλίους των πολυαρωματικών ενώσεων της τροφοδοσίας, καθιστώντας τους λιγότερο σταθερούς και επιρρεπείς σε συσσωμάτωση.
- Μείωση συγκέντρωσης βασικού αζώτου, εξουδετέρωση μετάλλων.

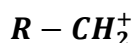
## 1.5 Αντιδράσεις

Ο όρος καταλυτική «πυρόλυση» δεν αποδίδει με ακρίβεια τον αγγλικό «cracking», ο οποίος αναφέρεται γενικώς σε διάσπαση ενός δεσμού C-C σε κάποια θέση του μορίου ενός υδρογονάνθρακα, είτε καταλυτική είτε θερμική/πυρολυτική. Η χημεία της καταλυτικής πυρόλυσης είναι η χημεία της διάσπασης των δεσμών C-C των υδρογονανθράκων της τροφοδοσίας, αφού αντιδράσεις διάσπασης συμβαίνουν με πολύ μεγαλύτερη συχνότητα σε σχέση με τις υπόλοιπες. Το προσωνύμιο «καταλυτική» προσδιορίζει τη διάσπαση/πυρόλυση που πραγματοποιείται με χρήση καταλύτη εκλεκτικά προς κάποια ελαφρότερη ουσία, συνήθως βενζίνη, για να διαχωρίσει τη διεργασία από τη θερμική πυρόλυση, η οποία αξιοποιεί μόνον τις υψηλές θερμοκρασίες για να διασπάσει την τροφοδοσία και δρα μέσω άλλου μηχανισμού. Στο σύστημα ανυψωτή-αντιδραστήρα μιας μονάδας FCC συμβαίνουν κατά κύριο λόγο αντιδράσεις καταλυτικής πυρόλυσης και δευτερευόντως αναπόφευκτες αντιδράσεις θερμικής πυρόλυσης λόγω των υψηλών θερμοκρασιών λειτουργίας, καθώς και της μη ιδανικής ανάμιξης στην ρευστοστερεά κλίνη αερίου/καταλύτη<sup>[16]</sup>. Επιπλέον, αναποτελεσματική λειτουργία του συστήματος απογύμνωσης μπορεί να οδηγήσει σε περαιτέρω θερμική πυρόλυση των υδρογονανθράκων που παγιδεύονται στους πόρους του καταλύτη που εισέρχεται στον απογυμνωτή<sup>[17]</sup>.

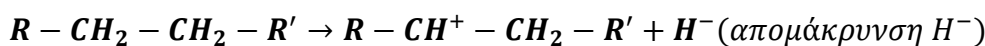
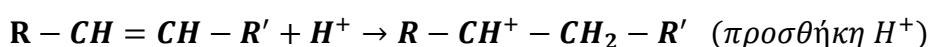
Η τυπική τροφοδοσία μιας μονάδας καταλυτικής πυρόλυσης περιέχει εκατοντάδες οργανικές ενώσεις (βλ. «Τροφοδοσία καταλυτικής πυρόλυσης»), οι οποίες υφίστανται ισάριθμες αντιδράσεις διάσπασης σε διαφορετικό βαθμό, ανάλογα με τη δομή και τις χημικές ιδιότητές τους. Οι αντιδράσεις που συμβαίνουν στο εσωτερικό της διάταξης οργανώνονται σε κατηγορίες πρώτον βάσει μηχανισμού και δεύτερον βάσει τελικού αποτελέσματος, ώστε να καταστεί δυνατή η διερεύνηση των μηχανισμών τους και η συγκριτική αξιολόγησή τους ως προς τη συνεισφορά στην τελική μετατροπή που επιτυγχάνει η μονάδα και στις ιδιότητες των παραγόμενων προϊόντων. Στην παρούσα ενότητα θα αναλυθούν εν συντομία οι κυρίαρχες κατηγορίες αντιδράσεων καταλυτικής και θερμικής πυρόλυσης ως προς τον μηχανισμό και την επίδραση τους στα τελικά αποτελέσματα μιας μονάδας FCC.

### 1.5.1 Καταλυτική Πυρόλυση

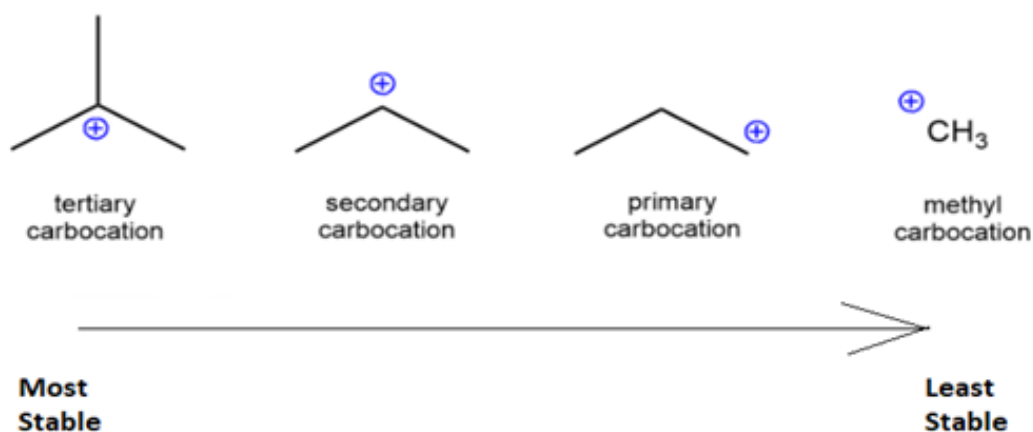
Το είδος και οι μηχανισμοί των αντιδράσεων καταλυτικής πυρόλυσης που συμβαίνουν σε έναν αντιδραστήρα καταλυτικής πυρόλυσης είναι στενά συνδεδεμένα με τις χημικές ιδιότητες των ιόντων καρβενίου<sup>[18]</sup>, με γενικό τύπο (πρωτοταγές):



Ο σχηματισμός ενός ιόντος καρβενίου είναι το πρώτο βήμα για την πραγματοποίηση μίας αντίδρασης καταλυτικής πυρόλυσης, όποιο και αν είναι το είδος της και όποιες και αν είναι οι ενώσεις που εμπλέκονται σε αυτή. Σε θέσεις Bronsted του καταλύτη, ολεφίνες δέχονται πρωτόνιο ενώ σε θέσεις Lewis, υδρογόνο και ζεύγος ηλεκτρονίων απομακρύνεται από παραφίνες (βλ. «Καταλύτες FCC»). Το τελικό αποτέλεσμα σε κάθε περίπτωση είναι ένα ιόν καρβενίου:



Λόγω της σταθεροποίησης μέσω του Επαγωγικού Φαινομένου<sup>[19]</sup>, τα ιόντα καρβενίου ακολουθούν την εξής σειρά σταθερότητας:



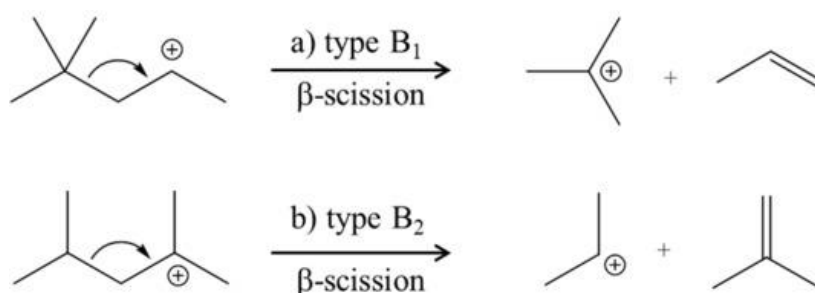
Εικόνα 1.7: Σειρά σταθερότητας ιόντων καρβενίου. Η παρουσία υποκαταστατών που «προσφέρουν» ηλεκτρόνια (μεθύλια) σταθεροποιεί τα περισσότερο υποκατεστημένα ιόντα καρβενίου.

Τα ασταθέστερα αυτών (πρωτοταγή και δευτεροταγή) αναδιατάσσονται προς σχηματισμό τριτοταγών. Μακροσκοπικά, αυτή η τάση αποτυπώνεται στον υψηλό βαθμό διακλάδωσης που εμφανίζουν τα προϊόντα της καταλυτικής πυρόλυσης. Εφόσον συμβεί ο σχηματισμός ιόντος καρβενίου, συμβαίνει:

1. Διάσπαση δεσμού C-C
2. Ισομερίωση
3. Μεταφορά υδριδίου

## Αντιδράσεις Διάσπασης

Οι αντιδράσεις διάσπασης, γνωστές και ως αντιδράσεις β-σχάσης, αφού η διάσπαση συμβαίνει στον δεσμό του δευτέρου («β») σε σειρά άνθρακα μετρώντας από τον ιοντισμένο άνθρακα, οδηγούν σε σχάση του μορίου προς δύο νέα μόρια. Οι αντιδράσεις αυτές λαμβάνουν χώρα εύκολα, τόσο λόγω της χαμηλής ενέργειας που απαιτείται, όσο και της υψηλότερης σταθερότητας των μικρότερων, έναντι των μεγαλύτερων αλκενίων. Η υψηλότερη σταθερότητα αυτή είναι και κατά κάποιον τρόπο περιοριστικός παράγοντας της αντίδρασης διάσπασης. Σε μικρά μήκη αλυσίδων δεν είναι δυνατή η διατήρηση φορτίου από καρβενικό ιόν, αφού δεν υπάρχουν αρκετοί υποκαταστάτες για να το σταθεροποιήσουν. Συνεπώς, η ύπαρξή του είναι βραχύβια και ο βαθμός διάσπασής του πενιχρός.

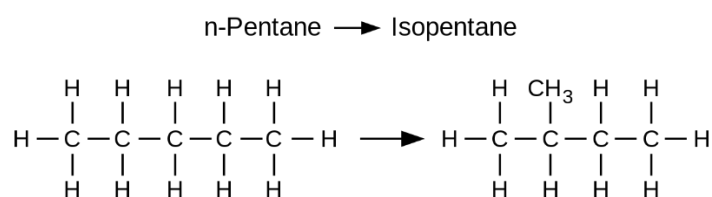


Εικόνα 1.8: Αντίδραση β-σχάσης. Πηγή: Rey et. al 2020, *Dynamic Features of Transition States for β-Scission Reactions of Alkenes over Acid Zeolites Revealed by AIMD Simulations*.

Όπως φανερώνει η εξίσωση, η β-σχάση είναι μία αλυσιδωτή αντίδραση, με προϊόντα μία ολεφίνη και ένα νέο ιόν καρβενίου. Το νέο ιόν μεταδίδει το φορτίο του σε άλλο μόριο μεγαλύτερης αλύσου κ.ο.κ. Έτσι διαδίδεται η β-σχάση σε ένα σύστημα καταλυτικής πυρόλυσης. Οι αντιδράσεις διάσπασης δεσμού C-C είναι ενδόθερμες και μονόδρομες<sup>[20]</sup>.

## Ισομερίωση

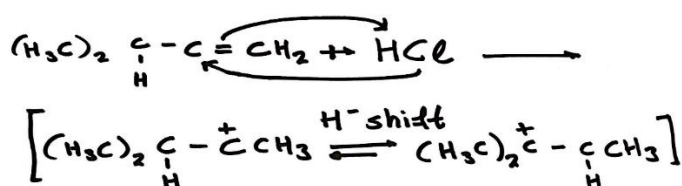
Όπως φανερώνει το όνομά τους, οι αντιδράσεις ισομερίωσης μετατρέπουν τα ιόντα καρβενίου σε ισομερείς ενώσεις. Όπως είδαμε προηγουμένως, ο δεσμός C-C σπάει με β-σχάση. Ύστερα, υποκαταστάτες αλλάζουν θέση στο μόριο, δίνοντας το τελικό διακλαδισμένο ισομερές:



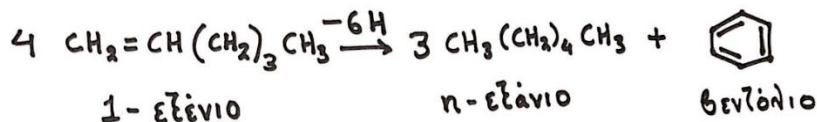
Η ισομερίωση είναι επιθυμητή στην καταλυτική πυρόλυση και για τον λόγο αυτό πολλή έρευνα έχει αφιερωθεί στην ανάπτυξη καταλυτών και διεργασιών που την ενισχύουν. Αυτό κυρίως γιατί μετατρέπει τις n-παραφίνες σε ισοπαραφίνες, αυξάνοντας τον Α.Ο. του κλάσματος της βενζίνης, αλλά και γιατί ενισχύει την παραγωγή ισοβουτυλενίου<sup>[21]</sup>, το οποίο χρησιμοποιείται ως πρώτη ύλη για την παραγωγή βελτιωτικού αμόλυβδης βενζίνης.

### Μεταφορά Υδριδίου

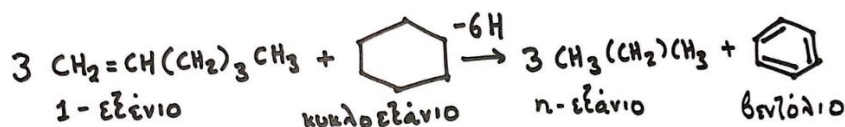
Υδρίδια ονομάζονται τα ανιόντα του υδρογόνου ( $H^-$ ). Ο όρος «μεταφορά υδριδίου» δεν είναι συνώνυμος με την «μετάθεση υδριδίου», η οποία συμβαίνει ενδομοριακά προς σταθεροποίηση των καρβοκατιόντων στην περίπτωση της όξινης ενυδάτωσης αλκενίων και άλλων αντιδράσεων:



Αντιθέτως, είναι μία αντίδραση που συμβαίνει μεταξύ δύο μορίων, κατά την οποία μεταφέρεται άτομο υδρογόνου και ζεύγος ηλεκτρονίων από το ένα μόριο στο άλλο. Στις μονάδες FCC, τέτοιες αντιδράσεις λαμβάνουν χώρα μεταξύ δύο ολεφινών:



ή μεταξύ μίας ολεφίνης και ενός ναφθενίου:



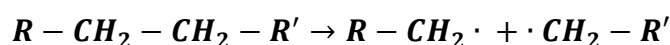
Η μεταφορά υδριδίου προτιμάται σε ολεφινικές τροφοδοσίες, καθώς καταναλώνει τις ολεφίνες, αυξάνοντας ταυτόχρονα την ποσότητα και σταθερότητα της παραγόμενης βενζίνης. Ωστόσο, η παραγόμενη βενζίνη έχει χαμηλότερο Α.Ο., λόγω της μείωσης της αναλογίας διπλών/απλών δεσμών C-C. Επιπλέον, καταναλώνει τις ελαφρές ολεφίνες του LPG, οι οποίες συχνά έχουν υψηλή εμπορική αξία.

Για να συμβεί η μεταφορά υδριδίου, πρέπει τα δύο μόρια να προσροφηθούν σε κοντινές θέσεις του καταλύτη. Η παρουσία σπαινίων γαιών στο πλέγμα του καταλύτη εξυπηρετεί ακριβώς την ενίσχυση των αντιδράσεων μεταφοράς υδριδίου<sup>[22]</sup>, διότι οι σπάνιες γαίες δημιουργούν «γέφυρες» μεταξύ των ενεργών κέντρων του καταλύτη, διευκολύνοντας

την διεπαφή μεταξύ των μορίων δοτών και των μορίων δεκτών σε μία αντίδραση μεταφοράς υδριδίου (βλ. 1.7 «Καταλύτες FCC»).

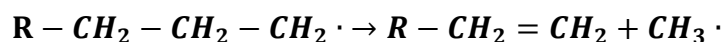
### 1.5.2 Θερμική Πυρόλυση

Αντιδράσεις θερμικής πυρόλυσης συμβαίνουν αναπόφευκτα σε «βαριούς» υδρογονάνθρακες οι οποίοι εκτίθενται σε υψηλές θερμοκρασίες, όπως αυτές που αναπτύσσονται σε μία μονάδα FCC. Η ανάμιξη gasoil και καταλύτη δεν είναι απόλυτη και συνεπώς τα σταγονίδια του gasoil δεν μπορούν αμέσως να καταλάβουν τις ενεργές του θέσεις και να αντιδράσουν εκλεκτικά προς τα προϊόντα της καταλυτικής πυρόλυσης. Η θερμική πυρόλυση έχει ως χαρακτηριστικό της τον σχηματισμό ελεύθερων ριζών<sup>[22]</sup> μέσω ομολυτικής διάσπασης ενός δεσμού C-C:

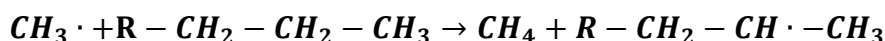


Οι ρίζες είναι χημικά είδη εξαιρετικά ασταθή, τα οποία αντιδρούν γρήγορα. Οι σχηματιζόμενες ρίζες συμμετέχουν σε μία εκ τριών αντιδράσεων:

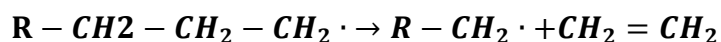
1. *α-σχάση*. Κατά την α-σχάση, διασπάται ο δεσμός C-C στον άνθρακα πλησίον της ρίζας. Ως αποτέλεσμα παράγεται μια ολεφίνη και μια νέα ρίζα μεθυλίου:



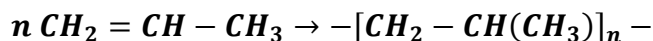
Οι ρίζες μεθυλίου είναι εξαιρετικά δραστικές ουσίες. Αντιδρούν ταχύτατα με γειτονικά μόρια παραφινών, από τα οποία αποσπών υδρογόνο, προς σχηματισμό μεθανίου και νέας ρίζας:



2. *β-σχάση*, στην οποία διασπάται ο δεσμός C-C δύο άνθρακες μακριά από την ρίζα (β-άνθρακας) προς σχηματισμό αιθυλενίου και καινούριας ρίζας:



3. *Πολυμερισμός*. Οι ολεφίνες που σχηματίζονται κατά την α- και β-σχάση, καθώς και οι ολεφίνες που βρίσκονται ήδη στην τροφοδοσία, υφίστανται πολυμερισμό, προς σχηματισμό πολυανθρακικού κοκ:



Τερματισμός των αντιδράσεων συμβαίνει όταν δύο ρίζες συγκρούονται και εξουδετερώνουν τα μονήρη φορτία τους. Η θερμική πυρόλυση είναι ανεπιθύμητη στις μονάδες FCC. Όπως φαίνεται από τους προαναφερθέντες μηχανισμούς, παράγει μεγάλες ποσότητες ευτελών αερίων C<sub>1</sub> και C<sub>2</sub>, ολεφινών και προϊόντων πολυμερισμού (κυρίως κοκ). Οι ελεύθερες ρίζες είναι πολύ ασταθείς και συνεπώς τα προϊόντα θερμικής πυρόλυσης εμφανίζουν μικρό βαθμό ισομερίωσης. Η θερμική πυρόλυση



διασπά κυρίως τις παραφίνες. Οι ολεφίνες υφίστανται πολυμερισμό και σε μικρό βαθμό μεταφορά διπλών δεσμών. Σε ακόμα μικρότερο βαθμό, συμβαίνει μεταφορά υδριδίου και ισομερίωση.

## 1.6 Προϊόντα

Οι Καρώνης, Λόης, Ζαννίκος<sup>[23]</sup> δίνουν μία τυπική κατανομή προϊόντων μίας μονάδας καταλυτικής πυρόλυσης, καθώς και τις χρήσεις κάθε προϊόντος, η οποία παρουσιάζεται στον Πίνακα 1.2:

*Πίνακας 1.2: Κατηγορίες προϊόντων της καταλυτικής πυρόλυσης. Για κάθε κατηγορία καταγράφονται τα διαστήματα θερμοκρασιών ζέσης, η τυπική απόδοση κατά βάρος και οι ενδεχόμενες χρήσεις του προϊόντος.*

Προϊόν	Περιοχή Βρασμού (°C)	Απόδοση (% κ.β)	Χρήσεις
Αέρια κορυφής, LPG	-42	30	Πώληση ή ίδια χρήση
Νάφθα	40-220	46	Συστατικό βενζίνης
Light Cycle Oil	220-340	12	Προσθετικό ντίζελ, λιπαντικό
Heavy Cycle Oil	340-450	0	-
Υπόλειμμα	450+	7	Πρώτη ύλη βαφής
Κοκ	-	5 (% κ.β.)	-

Το *αέριο κορυφής* (εφεξής «Fuel gas» ή «Sour gas») είναι το ελαφρύτερο από όλα τα προϊόντα της καταλυτικής πυρόλυσης. Περιέχει C<sub>1</sub> και C<sub>2</sub> υδρογονάνθρακες, υδρόθειο, υδρογόνο και λοιπά αδρανή αέρια. Είναι ανεπιθύμητο προϊόν διότι υπερφορτώνει τους συμπιεστές της μονάδας (bottlenecking)<sup>[24]</sup> και η παρουσία του υποδεικνύει την πραγματοποίηση αντιδράσεων θερμικής πυρόλυσης. Ως *LPG* (Liquefied Petroleum Gas) αναφέρεται το μίγμα των C<sub>3</sub> και C<sub>4</sub> υδρογονανθράκων που προκύπτουν από την καταλυτική πυρόλυση. Ανάλογα με τους στόχους των διυλιστηρίων, η μονάδα μπορεί να λειτουργεί ώστε να ελαχιστοποιήσει ή να αυξήσει την παραγωγή του LPG. Ιδιαίτερο οικονομικό ενδιαφέρον έχει το προπυλένιο, το οποίο συχνά πωλείται ως βιομηχανική πρώτη ύλη για οργανική σύνθεση. Αλλιώς, το προπυλένιο και τα βουτένια κατευθύνονται σε μονάδα αλκυλίωσης προς παρασκευή συστατικού βενζίνης υψηλού Α.Ο. Η παραγωγή LPG αυξάνεται με αύξηση θερμοκρασίας του αντιδραστήρα, μείωση του χρόνου παραμονής του μίγματος τροφοδοσίας/καταλύτη στον ανυψωτή και χρήση πρόσθετου ZSM-5 στον καταλύτη<sup>[25]</sup>. Ιδιαίτερος η παρουσία κρυστάλλου ZSM-5 στο πλέγμα του καταλύτη αυξάνει εκλεκτικά την παραγωγή προπυλενίου.

Η βενζίνη ή νάφθα είναι το σημαντικότερο<sup>[26],[27]</sup> προϊόν της καταλυτικής πυρόλυσης. Ως βενζίνη λογίζονται όλες οι ενώσεις C<sub>5</sub> και άνω, έως τελικού σημείου βρασμού 220°C. Η μεγιστοποίηση της παραγωγής βενζίνης είναι ο συνήθης στόχος κάθε μονάδας καταλυτικής πυρόλυσης, αφού τυπικά αποτελεί το προϊόν με την μεγαλύτερη οικονομική αξία για το διυλιστήριο. Η βενζίνη που λαμβάνεται από την καταλυτική πυρόλυση αξιολογείται ως προς την ποιότητα βάσει των εξής κριτηρίων:

- Αριθμός οκτανίου, ερευνητικός (Research Octane Number, RON)
- Αριθμός οκτανίου, κινητήρα (Motor Octane Number, MON)
- Τάση ατμών (Reid Vapor Pressure, RVP)
- Θείο
- Βενζόλιο

Πέραν της μέγιστης ποσότητας, είναι επιθυμητό να επιτυγχάνεται ο μέγιστος δυνατός αριθμός οκτανίου. Τα RON και MON εξαρτώνται από τις λειτουργικές συνθήκες της μονάδας, το είδος της τροφοδοσίας και τις ιδιότητες του καταλύτη. Οι συγκεντρώσεις θείου και βενζολίου αξιολογούνται τακτικά ώστε να εξασφαλίζεται συμμόρφωση με τα πρότυπα εκπομπών για τα καύσιμα μεταφορών, των χωρών στις οποίες διατίθεται η FCC βενζίνη.

*Light Cycle Oil* ή *LCO* ονομάζεται το προϊόν της καταλυτικής πυρόλυσης το οποίο βράζει στην περιοχή του diesel (220-390°C). Ιστορικά, ο λειτουργικός στόχος των μονάδων FCC είναι η μεγιστοποίηση του κλάσματος της βενζίνης, καθώς αυτό είναι το προϊόν με την μεγαλύτερη αξία. Ωστόσο, η εποχιακή αύξηση της ζήτησης σε ντίζελ θέρμανσης παρέχει κίνητρο στα διυλιστήρια να τροποποιούν τις συνθήκες, ώστε να μεγιστοποιείται η παραγωγή LCO έναντι βενζίνης. Επιπλέον, η παγκόσμια ζήτηση σε ντίζελ αυξάνεται κάθε χρόνο<sup>[28]</sup> και αναμένεται να συνεχίσει για τα επόμενα χρόνια, δίνοντας επιπλέον κίνητρο για τροποποίηση της υφιστάμενης διεργασίας και των διαθέσιμων καταλυτών. Το LCO που προκύπτει από την καταλυτική πυρόλυση χρησιμοποιείται κατά κύριο λόγο ως συστατικό του ντίζελ. Μόνο του, έχει περιορισμένες χρήσεις ως λιπαντικό<sup>[29]</sup>.

Η τυπική απόδοση σε LCO είναι περίπου 10-20% της τροφοδοσίας κατ' όγκο. Αν επιθυμείται αύξηση της παραγωγής, ο απλούστερος τρόπος είναι με μείωση του σημείου αποκοπής της βενζίνης στην στήλη κλασμάτωσης. Αυτό επιτυγχάνεται με αύξηση της αναρροής στην κορυφή της στήλης, η οποία μειώνει τη θερμοκρασία της, με αποτέλεσμα τα βαρύτερα κλάσματα της νάφθας να εξέρχονται μαζί με το LCO. Η ποιότητα του ντίζελ μετράται σε κετάνια αντί για οκτάνια. Δείγματα υψηλά σε παραφίνες και χαμηλά σε αρωματικά και ναφθένια έχουν υψηλό αριθμό κετανίου. Καθώς η τροφοδοσία FCC είναι κατά κύριο λόγο παραφινική, θα αναμέναμε να είναι εξαιρετικά κατάλληλη για την παραγωγή LCO υψηλού κετανίου. Ωστόσο στην πραγματικότητα, το LCO που παράγεται από την καταλυτική πυρόλυση έχει υψηλή περιεκτικότητα σε αρωματικά και συνεπώς πολύ χαμηλό αριθμό κετανίου<sup>[30]</sup>. Για να αυξηθεί ο αριθμός κετανίου, συνίσταται υδρογονοκατεργασία του LCO, η οποία αυξάνει τον αριθμό κετανίου αναλογικά με την ένταση της κατεργασίας<sup>[31]</sup>.

Υδρογονοκατεργασία συνίσταται επίσης για την αφαίρεση θείου, με στόχο την παραμονή εντός των αυστηρών προδιαγραφών ΗΠΑ και Ευρώπης σε σχέση με το ντίζελ κίνησης.

*Heavy Cycle Oil* ή *HCO* ονομάζεται το προϊόν με σημείο βρασμού ανάμεσα στο *LCO* και στο προϊόν πυθμένα. Σπανίως επεξεργάζεται μόνο του και συνήθως αναμιγνύεται με το προϊόν πυθμένα πριν σταλεί για περαιτέρω επεξεργασία. Το *Υπόλειμμα* αναφέρεται τυπικά ως *Slurry* ή *Decant Oil* και είναι το προϊόν της καταλυτικής πυρόλυσης με την μικρότερη αξία. Είναι ένα βαρύ, μαύρο υγρό με ιδιότητες παρόμοιες με την πίσσα. Τυπικά ανακυκλώνεται έως εξάντλησης, εισερχόμενο μαζί με την τροφοδοσία στη βάση του ανυψωτή. Αν προέρχεται από τροφοδοσία υψηλής καθαρότητας και συνθήκες επεξεργασίας που μειώνουν το περιεχόμενο σε αρωματικά, μπορεί να διατεθεί προς πώληση ως βιομηχανική πρώτη ύλη για την παραγωγή του carbon black<sup>[32]</sup>, μιας μαύρης κοκκώδους ουσίας, που χρησιμοποιείται ως πληρωτικό υλικό στην παραγωγή λάστιχου ή ως βαφή.

*Κοκ* ονομάζεται το στερεό, κοκκώδες, πλούσιο σε άνθρακα υλικό, το οποίο παράγεται από διάφορες διεργασίες ενός διυλιστηρίου. Ιδιαίτερα στην περίπτωση της καταλυτικής πυρόλυσης, ένα από τα κύρια γνωρίσματα της διεργασίας είναι η παραγωγή αξιοσημείωτης ποσότητας κοκ, το οποίο γρήγορα καταλαμβάνει τους πόρους του καταλύτη, καθώς προχωρούν οι αντιδράσεις διάσπασης. Ο μηχανισμός σχηματισμού του κοκ δεν είναι πλήρως κατανοητός. Στην καταλυτική πυρόλυση, κοκ σχηματίζεται:<sup>[33]</sup>

1. Ως απευθείας αποτέλεσμα της διαδικασίας διάσπασης των βαρύτερων υδρογονανθράκων σε ελαφρύτερους. Η ποσότητα του κοκ διάσπασης εξαρτάται από την εσωτερική δομή του καταλύτη και τον χρόνο παραμονής της τροφοδοσίας στον ανυψωτή.
2. Από τα βαρύτερα κλάσματα της τροφοδοσίας, με απευθείας επικάλυψη του καταλύτη (ένδειξη της τάσης αυτής είναι τα αποτελέσματα της τροφοδοσίας στα Conradson και Ramsbottom tests).
3. Ως παράπλευρη επίπτωση της παρουσίας μετάλλων (ιδίως του νικελίου και του βαναδίου) στην τροφοδοσία, τα οποία καταλύουν τον σχηματισμό του. Σε αντίθεση με τις υπόλοιπες κατηγορίες, το μεταλλικό κοκ καταστρέφει αναντιστρέπτα<sup>[34]</sup> την δομή του πλέγματος του καταλύτη.
4. Ως αποτέλεσμα αναποτελεσματικής λειτουργίας του συστήματος απογύμνωσης. Αυτή ρυθμίζεται με αύξηση της τροφοδοσίας ατμού ή προσαρμογή της γεωμετρίας του δοχείου στο σημείο αυτό.

Η παραγόμενη ποσότητα κοκ τυπικά αγγίζει το 5% της τροφοδοσίας κ.β. και περιορίζεται από την ικανότητα του αναγεννητή να το απομακρύνει από την επιφάνεια του καταλύτη. Συγκεκριμένα, περιορίζεται από τις μέγιστες παροχές αέρα και συμπληρωματικού οξυγόνου στον αναγεννητή. Το κοκ που λαμβάνεται από την καταλυτική πυρόλυση είναι συνήθως υπερβολικά χαμηλής ποιότητας για να διατεθεί ως βιομηχανική α' ύλη.

Μία παράμετρος που επηρεάζει ευθέως την απόδοση της μονάδας είναι το delta coke, το οποίο ορίζεται ως η διαφορά του κοκ στον απενεργοποιημένο καταλύτη με το κοκ που απομένει στον αναγεννημένο καταλύτη (εξ. (1)). Μειώνοντας το delta coke, αυξάνεται η απόδοση της μονάδας.

$$\text{Delta coke} = \text{Spent Coke} - \text{Regen Coke} = \frac{\text{Παραγωγή κοκ (\%)}}{\text{Λόγος καταλύτη/τροφοδοσίας}} \quad (1)$$

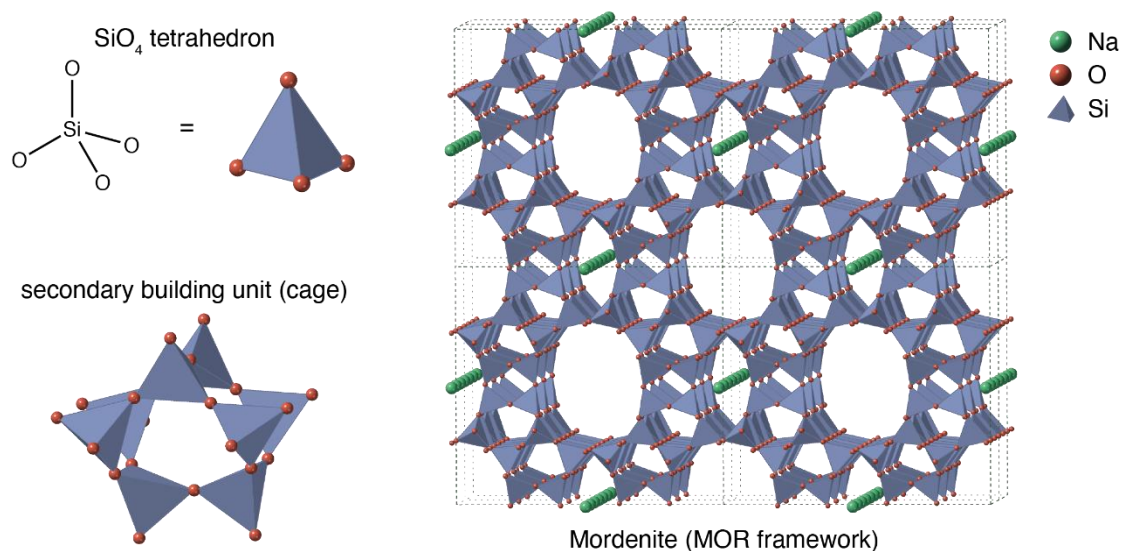
## 1.7 Καταλύτες FCC

Ο καταλύτης είναι χωρίς σύγκριση η σημαντικότερη παράμετρος λειτουργίας μιας μονάδας FCC, τόσο σε καθαρά λειτουργικό όσο και οικονομικό επίπεδο. Είναι το εικονικό «δοχείο» στο οποίο λαμβάνουν χώρα όλες οι αντιδράσεις καταλυτικής πυρόλυσης. Οι εγγενείς ιδιότητες του καταλύτη είναι η αφετηρία των υπολογισμών και των προβλέψεων που αφορούν την επιτυγχανόμενη μετατροπή, καθώς επηρεάζουν αυτήν σε βαθμό πολύ μεγαλύτερο απ' ό,τι οι υπόλοιπες λειτουργικές παράμετροι (πίεσεις, θερμοκρασίες, χρόνοι παραμονής)<sup>[36]</sup>. Επιπλέον, το γεγονός ότι μια μονάδα FCC καταναλώνει τεράστιες ποσότητες καταλύτη σε ημερήσια βάση καθιστά την επιλογή καταλύτη μια εξαιρετικά σημαντική οικονομική επιλογή, η οποία υπόκειται σε τροποποίηση ανάλογα με τις συνθήκες της αγοράς.

Όπως αναφέρθηκε στην ενότητα 1.2, οι πρώτοι καταλύτες που χρησιμοποιήθηκαν για την καταλυτική πυρόλυση ήταν καταλύτες άμορφης αργίλου και ύστερα άμορφοι καταλύτες πυριτίου-αλούμινας (silica-alumina ή Si-Al). Τη δεκαετία του 1960 αρχίζει η χρήση καταλυτών με βάση τους ζεόλιθους (αρχικά φυσικούς και ύστερα συνθετικούς), οι οποίοι παραμένουν το standard της βιομηχανίας έως σήμερα. Οι καταλύτες ζεόλιθων προσφέρουν υψηλότερη ικανότητα πυρόλυσης αλλά και μεγαλύτερη εκλεκτικότητα προς βενζίνη. Όλοι οι καταλύτες που χρησιμοποιούνται πλέον στην καταλυτική πυρόλυση είναι συνθετικοί. Η παρασκευή ζεόλιθων επιτρέπει την στρατηγική τροποποίηση της μικροδομής τους, ώστε να επιτευχθούν συγκεκριμένοι στόχοι λειτουργίας (περισσότερο ντίζελ αντί βενζίνης, πυρόλυση πολύ βαριάς τροφοδοσίας κ.α.)<sup>[37]</sup>. Πλέον, οι προμηθευτές παρασκευάζουν πλήθος καταλυτών για διάφορες συνθήκες λειτουργίας και λειτουργικούς στόχους. Εξειδικευμένοι καταλύτες, που επιτελούν ένα συγκεκριμένο σκοπό (π.χ. αύξηση βουτανίου) παρασκευάζονται για χρήση ως πρόσθετα<sup>[38]</sup>. Σε κάθε περίπτωση τα μακροσκοπικά αποτελέσματα της χρήσης δεδομένου καταλύτη αντανακλούν τα μικροσκοπικά χαρακτηριστικά της μικροδομής του.

### 1.7.1 Μικροδομή καταλυτών FCC

Οι ζεόλιθοι είναι μικροπορώδεις ανόργανες αργιλοπυριτικές ενώσεις, με σαφώς καθορισμένη δομή πλέγματος. Η θεμελιώδης συνθετική μονάδα ενός πλέγματος ζεόλιθου είναι ένα κανονικό τετράεδρο, στο κέντρο του οποίου βρίσκεται ένα άτομο πυριτίου (Si) ή αργιλίου (Al) και στις κορυφές τέσσερα άτομα οξυγόνου (O). Τα τετράεδρα αυτά δευτερευόντως διατάσσονται ως κλωβοί και τριτευόντως συνιστούν την επαναλαμβανόμενη δομική μονάδα του κρυσταλλικού πλέγματος (μονάδα πλέγματος ή *unit cell*). Η απόσταση μεταξύ δύο επαναλαμβανόμενων μονάδων ονομάζεται μέγεθος μονάδας πλέγματος και είναι χαρακτηριστική της ιδιαίτερης δομής κάθε ζεόλιθου. Όλοι οι ζεόλιθοι που χρησιμοποιούνται στις διεργασίες καταλυτικής πυρόλυσης έχουν ανοίγματα πόρων περί τα 8.0 angstrom, με στενή κατανομή μεγέθους. Στην κατανομή αυτή οφείλεται η ιδιότητα των ζεόλιθων να διασπών εκλεκτικά τους μικρότερους υδρογονάνθρακες προς συστατικά βενζίνης (C5 και κάτω) και όχι τους μεγαλύτερους. Η εσωτερική πυκνότητα επιφάνειας του καταλύτη λαμβάνει τιμές περί τα 600 m<sup>2</sup>/g, αλλά μπορεί να φτάσει και τα 1100 m<sup>2</sup>/g<sup>[39]</sup>.



Εικόνα 1.8: Με φορά αντίστροφη των δεικτών του ρολογιού, από πάνω αριστερά: Πρωτοταγής δομή ζεόλιθου (τετράεδρο), δευτεροταγής δομή ζεόλιθου (κλωβός), τριτοταγής δομή ζεόλιθου (πλέγμα). Αναδημοσιεύεται με άδεια CC BY 4.0.

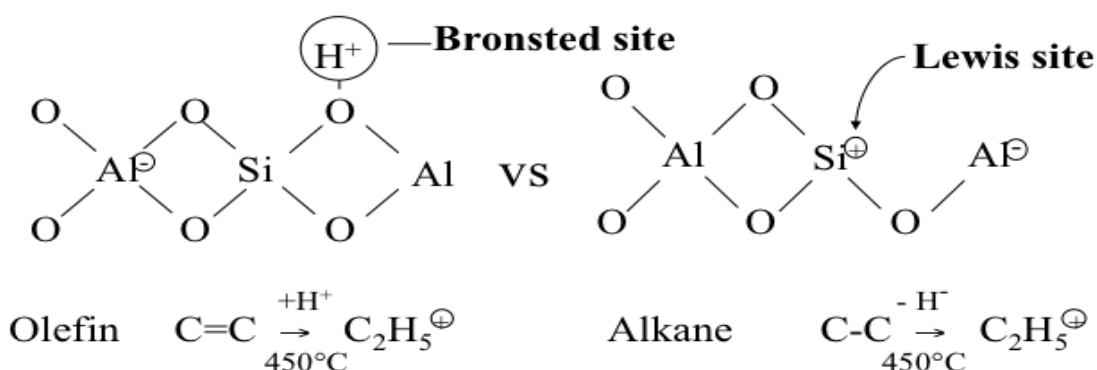
Από χημικής άποψης, τα τετράεδρα πυριτίου και αλουμινίου δεν είναι ισοδύναμα. Το πυρίτιο έχει Α.Ο. +4, ενώ το αλουμίνιο +3. Συνεπώς, τα τετράεδρα πυριτίου είναι ηλεκτρονιακά ουδέτερα, ενώ τα τετράεδρα αλουμινίου έχουν συνολικό φορτίο -1. Κατά τον σχηματισμό και τη διάδοση (propagation) του κρυστάλλου, ή περίσσεια φορτίου πρέπει να αντισταθμιστεί από ένα θετικό φορτίο ώστε να εξασφαλιστεί η σταθερότητα και ομοιομορφία του κρυσταλλικού πλέγματος. Στην παρασκευή των τεχνητών ζεόλιθων, για τον σκοπό αυτό χρησιμοποιείται το νάτριο (Na), τα άτομα του οποίου εν συνεχεία εκτοπίζονται από κατιόντα αμμωνίου (NH<sup>+</sup><sub>4</sub>), τα οποία με τη σειρά τους

απομακρύνονται με ξήρανση. Ο κρύσταλλος που προκύπτει διαθέτει ενεργές θέσεις οξέων Bronsted και Lewis,<sup>[40]</sup> οι οποίες συνιστούν την συνολική ενεργότητα του κρυστάλλου. Στην παρακάτω εικόνα απεικονίζεται ο μηχανισμός αλληλεπίδρασης των παραφινών και των ολεφινών της τροφοδοσίας με τις ενεργές θέσεις του καταλύτη προς σχηματισμό καρβοκατιόντων. Οι ολεφίνες αλληλεπιδρούν με τις θέσεις Bronsted και αποσπούν πρωτόνιο, ενώ οι παραφίνες αλληλεπιδρούν με τις θέσεις Lewis και προσφέρουν ζεύγος ηλεκτρονίων. Σε κάθε περίπτωση, το τελικό αποτέλεσμα είναι ο σχηματισμός του ίδιου καρβοκατιόντος, το οποίο λειτουργεί ως πρόδρομη ένωση για το τελικό προϊόν διάσπασης.

## Formation of Carbocations on Acid Sites of Catalysts

**Bronsted acid sites** – donate protons

**Lewis acid sites** – accept electrons



Εικόνα 1.9: Χημική δομή καταλύτη με βάση τον ζεόλιθο. Καταγράφονται οι θέσεις οξέων Bronsted και Lewis και ο τρόπος αλληλεπίδρασης με τις ενώσεις της τροφοδοσίας.

### 1.7.2 Διαχωρισμός καταλύτη

Ο διαχωρισμός του καταλύτη από το αέριο ρεύμα εξόδου δεν είναι η πιο κρίσιμη παράμετρος της απόδοσης μιας μονάδας FCC όσον αφορά την μετατροπή, αλλά πρέπει να ελέγχεται ώστε να ελαχιστοποιούνται οι απώλειες σε καταλύτη που πρέπει να αναπληρωθεί. Οι παλαιότερες μονάδες FCC χρησιμοποιούσαν κυκλώνες σε συνδυασμό με το ίδιο το δοχείο του αντιδραστήρα ώστε να επιτευχθεί διαχωρισμός. Οι σύγχρονες μονάδες σχεδόν πάντα χρησιμοποιούν κάποια μέθοδο συζευγμένου διαχωρισμού. Δηλαδή, το άκρο του ανυψωτή είναι συζευγμένο απευθείας με την επιθυμητή μονάδα διαχωρισμού, τυπικά με πολλαπλούς αεροκυκλώνες δύο σταδίων, οι οποίοι κατευθύνουν τον καταλύτη προς τα κάτω και το αέριο ρεύμα προς τα πάνω. Σε τέτοιες διατάξεις, το δοχείο του αντιδραστήρα λειτουργεί περισσότερο ως περίβλημα για τους κυκλώνες και τη διάταξη απογύμνωσης. Κατά τον τρόπο αυτό, επιτυγχάνεται διαχωρισμός της τάξεως του 75-99.99%. Αν επιπλέον χρησιμοποιούνται

βαλβίδες καταρροής, η απόδοση διαχωρισμού αυξάνεται στο 99.999% και πάνω<sup>[41]</sup>. Τροποποίηση των συσκευών τερματικού διαχωρισμού σωματιδίων μετά την παραλαβή βελτιώνει την απόδοσή τους.

### 1.7.3 Απογύμνωση καταλύτη

Ο φυσικός διαχωρισμός του καταλύτη από το αέριο ρεύμα εξόδου είναι κρίσιμης σημασίας ώστε να αποφεύγεται η μεταφορά καταλύτη στις μετέπειτα μονάδες επεξεργασίας. Ωστόσο, μετά τον διαχωρισμό παραμένουν στους πόρους του καταλύτη σημαντικές ποσότητες παγιδευμένων υδρογονανθράκων. Για την απομάκρυνση αυτών απαιτείται η διέλευση του καταλύτη μέσα από μονάδα απογύμνωσης με ατμό. Η συσκευή απογύμνωσης βρίσκεται τυπικά στη βάση του αντιδραστήρα της μονάδας FCC και αποσκοπεί στην απομάκρυνση των παγιδευμένων υδρογονανθράκων από τον καταλύτη μέσω επαφής με υπέρθερμο ατμό. Ο ατμός κινείται προς τα πάνω, ωθώντας τους διαχωρισμένους υδρογονάνθρακες προς την έξοδο και ο καταλύτης προς τα κάτω, διαχωριζόμενος προς τον Αναγεννητή με χρήση πλευρικής βαλβίδας. Ο διαχωρισμός καταλύτη-υδρογονανθράκων δεν είναι ούτε μπορεί να καταστεί πλήρης. Ωστόσο, είναι σημαντικό να εξασφαλίζεται ικανοποιητικός βαθμός διαχωρισμού ώστε να αποφεύγονται οι παρακάτω δυσμενείς συνέπειες:

- Απώλεια αέριου προϊόντος, το οποίο διαφεύγει εγκλωβισμένο στον καταλύτη και καταστρέφεται στον αναγεννητή αντί να ανακτηθεί.
- Διατάραξη της λειτουργίας του αναγεννητή. Οι υδρογονάνθρακες είναι πλούσιοι σε υδρογόνο και κατά συνέπεια κατά την καύση τους απελευθερώνονται πολλαπλάσια ποσά θερμότητας απ' ό,τι σε καύση τροφοδοσίας πλούσιας σε άνθρακα. Απότομη αύξηση της θερμοκρασίας του Αναγεννητή κατευθύνει το σύστημα ελέγχου της μονάδας σε ενέργειες αποκοπής, συγκεκριμένα μείωση του ρυθμού τροφοδοσίας ή και απόλυτη διακοπή της λειτουργίας.
- Καταστροφή καταλύτη. Πέραν του περιορισμού της τροφοδοσίας ως περιοριστικό μέτρο, η ανάπτυξη υψηλών θερμοκρασιών στο εσωτερικό του Αναγεννητή οδηγεί σε καταστροφή της κρυσταλλικής δομής του καταλύτη, μειώνοντας την ενεργότητά του και κατά συνέπεια την απόδοση της μονάδας.

### 1.7.4 Ανάλυση Καταλύτη σε Ισορροπία (E-Cat Analysis)

Ο καταναλισκόμενος καταλύτης μιας μονάδας FCC που λειτουργεί σε μόνιμες συνθήκες αναφέρεται ως καταλύτης ισορροπίας ή E-Cat. Τα διυλιστήρια στέλνουν σε τακτική βάση δείγματα από τις μονάδες FCC στους κατασκευαστές, οι οποίοι πραγματοποιούν αναλύσεις και αναφέρουν τα αποτελέσματά τους στους υπεύθυνους μηχανικούς. Η ανάλυση του E-Cat είναι από τα πιο σημαντικά εργαλεία που έχει στη διάθεση του ο μηχανικός για να αξιολογήσει τη λειτουργία της μονάδας και να πραγματοποιήσει προβλέψεις για την βραχυχρόνια και μακροχρόνια απόδοσή της. Τα

στοιχεία που περιλαμβάνονται στις αναλύσεις είναι επίσης χρήσιμα στην προσομοίωση της διεργασίας, είτε ως ανεξάρτητες μεταβλητές είτε ως περιορισμοί, ανάλογα με το είδος του προβλήματος που πρέπει να επιλυθεί. Ένα παράδειγμα μιας τυπικής ανάλυσης E-cat παρουσιάζεται παρακάτω:

*Πίνακας 1.3: Ενδεικτικά αποτελέσματα μιας ανάλυσης E-Cat. Για λόγους διαφύλαξης της εμπιστευτικότητας, τα στοιχεία που παρουσιάζονται δεν προέρχονται από ανάλυση E-Cat οποιασδήποτε πραγματικής μονάδας FCC, αλλά αποτελούν αντιπροσωπευτικές τιμές για κάθε κατηγορία..*

Παράμετρος	Τιμή	Μονάδα
MAT%	69	-
Surface Area	147	m <sup>2</sup> /g
P	4000	ppmwt
Ni	1997	ppmwt
V	4100	ppmwt
Na	4000	ppmwt
RE <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	22500	ppmwt
Ca	900	ppmwt
Cu	100	ppmwt
Fe	5500	ppmwt
Ti	7500	ppmwt
Pb	150	ppmwt
App. Bulk Density (ABD)	0.850	g/cm <sup>3</sup>
Pore Volume (PV)	0.35	cm <sup>3</sup> /g
0-40u	5	wt%
0-80u	70	wt%
Average Particle Size (APS)	70	μm

Η ανάλυση μικροενεργότητας του καταλύτη ισορροπίας (MAT%) προσφέρει εικόνα του αριθμού των διαθέσιμων θέσεων του μη αναγεννημένου καταλύτη ως ποσοστό των συνολικών θέσεων και είναι σημαντική παράμετρος που αξιολογείται τακτικά. Αύξηση 10% του MAT% αντιστοιχεί σε αύξηση 1% της μετατροπής. Όμοιο σκοπό εξυπηρετεί η καταγραφή της πυκνότητας επιφάνειας (SA) και όγκου πόρων (PV) του καταλύτη.

Όλες οι τροφοδοσίες περιέχουν σε κάποιο ποσοστό βαρέα μέταλλα, τα οποία επικάθονται στον καταλύτη. Υπάρχει εκτεταμένη βιβλιογραφία σχετικά με την επίδραση του νικελίου (Ni) και του βαναδίου (V) στον καταλύτη, καθώς επηρεάζουν την ενεργότητα αυτού σε μεγαλύτερο βαθμό από οποιοδήποτε άλλο μέταλλο<sup>[42]</sup>. Επιπλέον, σίδηρος περνά στον καταλύτη κατά κύριο λόγο μέσω μακροχρόνιας διάβρωσης της εσωτερικής επιφάνειας των σωληνώσεων της μονάδας. Τα μέταλλα αυτά εν γένει μειώνουν την παραγωγή βενζίνης, επειδή προσδένονται ισχυρά στις ενεργές θέσεις του καταλύτη, εμποδίζοντας την είσοδο των μορίων gasoil. Επιπλέον, ενισχύουν τις αντιδράσεις αφυδρογόνωσης, οδηγώντας σε αυξημένη παραγωγή κοκ και ελαφρών αερίων<sup>[43]</sup>. Τα στοιχεία για την κατανομή των μεγεθών των σωματιδίων του καταλύτη χρησιμοποιούνται για την εκτίμηση της μηχανικής τριβής που υφίσταται ο καταλύτης κατά την κυκλοφορία του στο εσωτερικό της μονάδας.



## 2. Μηχανική Μάθηση

### 2.1 Γενικά στοιχεία

Ο όρος *Μηχανική Μάθηση* (Machine Learning, συντομογραφία “ML”) αναφέρεται στον τομέα της επιστήμης των υπολογιστών που μελετά την ανάπτυξη μεθόδων και αλγορίθμων οι οποίοι παρέχουν στα διάφορα υπολογιστικά προγράμματα τη δυνατότητα να πραγματοποιούν προβλέψεις και να αυτοβελτιώνονται *χωρίς να έχουν προγραμματιστεί ρητά για αυτόν το σκοπό*<sup>[44]</sup>. Οι αλγόριθμοι αυτοί αξιοποιούν μεγάλους όγκους δεδομένων (σε μορφή ζευγών εισόδου εξόδου ή μόνον εισόδου, αναλόγως της μεθόδου μάθησης, βλ. 2.2) και στατιστικά μοντέλα, με σκοπό να «μάθουν» από αυτά, δηλαδή να μπορούν μετά τη διαδικασία της «μάθησης» να πραγματοποιήσουν ακριβείς προβλέψεις για τις εξόδους όταν δέχονται ως είσοδο μόνον δεδομένα εισόδου.

Η ανάπτυξη της μηχανικής μάθησης ως υπολογιστική μέθοδος έχει τις απαρχές της στο έργο του Alan Turing και εφαρμόστηκε για πρώτη φορά τις δεκαετίες του '50 και του '60 από την IBM, με μικρή αρχικά επιτυχία και αποδοχή από τις επιχειρήσεις και την ακαδημαϊκή κοινότητα. Βελτιώσεις που επετεύχθησαν τη δεκαετία του '70 και του '80, αναζωπύρωσαν το ενδιαφέρον των ερευνητών και οδήγησαν στις πρώτες ευρηματικές εφαρμογές των μεθόδων μηχανικής μάθησης για επίλυση σύνθετων προβλημάτων. Η σημαντικότερη εξ' αυτών είναι η χρήση μοντέλων μηχανικής μάθησης (συγκεκριμένα: *νευρωνικών δικτύων*) από την αμερικανική Ταχυδρομική Υπηρεσία για την αναγνώριση δυσανάγνωστης γραφής στους φακέλους ως μέρος της επεξεργασίας της αλληλογραφίας στα κέντρα διαλογής (1999). Πλέον, η μηχανική μάθηση ευδοκιμεί σε όλους τους τομείς της ανθρώπινης δραστηριότητας στους οποίους απαιτείται διαχείριση μεγάλων όγκων δεδομένων. Χαρακτηριστικά παραδείγματα εφαρμογής μεθόδων μηχανικής μάθησης σε μεγάλη κλίμακα αποτελούν οι αλγόριθμοι επιλεκτικής προώθησης ψηφιακού περιεχομένου των Facebook και YouTube και η τεχνολογία αυτόνομης οδήγησης αυτοκινήτων.

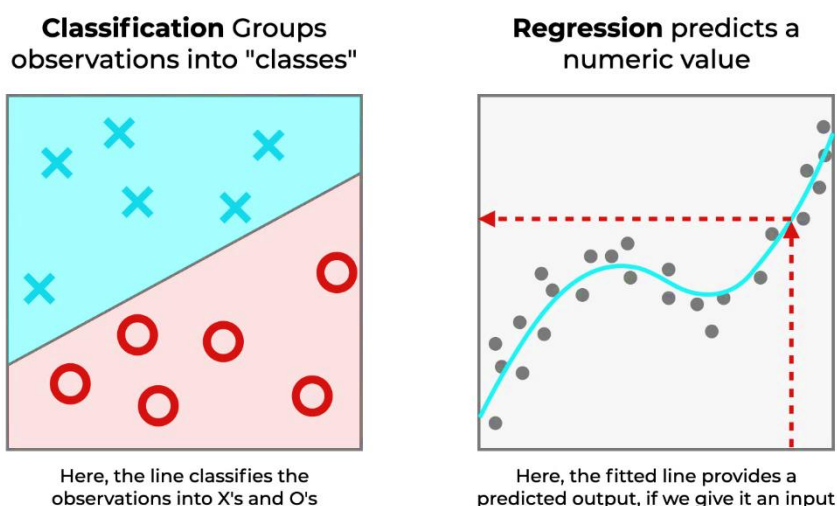
### 2.2 Κατηγορίες και τρόποι υλοποίησης της μηχανικής μάθησης

Ένας πιο ακριβής ορισμός, που θα διαλευκάνει μερικώς τους ορισμούς και τις μεθοδολογίες που θα χρησιμοποιηθούν στην παρούσα εργασία και θα αναλυθούν περαιτέρω παρακάτω, δίδεται από τον Tom Mitchell στο εγχειρίδιό του, *Machine Learning*<sup>[45]</sup>: «Ένα πρόγραμμα υπολογιστή λέμε ότι «μαθαίνει» από μία εμπειρία (E=Experience), όσον αφορά ένα έργο (T=Task) και έναν δείκτη επίδοσης (P=Performance Index), όταν ο δείκτης P για την επιτυχή εκτέλεση του T βελτιώνεται με την έκθεση του προγράμματος στην E». Οι τρεις αυτές παράμετροι (T,P,E) στοιχειοθετούν κάθε απόπειρα επίλυσης κάποιου προβλήματος με χρήση των μεθόδων της μηχανικής μάθησης. Τον ρόλο της εμπειρίας παίζουν τα σετ δεδομένων που χρησιμοποιούμε για να εκπαιδεύσουμε τα μοντέλα. Για την επίτευξη της «διδασκαλίας» του προγράμματος χρησιμοποιούνται διάφορες προσεγγίσεις, ανάλογα με το επιθυμητό αποτέλεσμα καθώς και το είδος των διαθέσιμων δεδομένων. Για τους

σκοπούς της παρούσας εργασίας, θα αναλυθούν συνοπτικά μόνον οι προσεγγίσεις της επιβλεπόμενης και μη επιβλεπόμενης μάθησης:

- *Επιβλεπόμενη μάθηση – Supervised Learning* έχουμε όταν είναι γνωστά τα inputs και τα επιθυμητά outputs και το ζητούμενο είναι να προσαρμοστεί ένα μαθηματικό μοντέλο ώστε να μπορεί να πραγματοποιεί προβλέψεις σε νέα inputs.
- *Μάθηση χωρίς επίβλεψη – Unsupervised Learning* όταν είναι γνωστά μόνον τα inputs και είναι επιθυμητό να ανιχνευθούν τάσεις συσσωμάτωσης ή ομαδοποίησης (clustering) των δεδομένων. Τέτοιοι αλγόριθμοι εξετάζουν τα δεδομένα σειριακά, προσπαθώντας να ανιχνεύσουν κοινά σημεία, ώστε να τα κατατάξουν σε υποσύνολα.

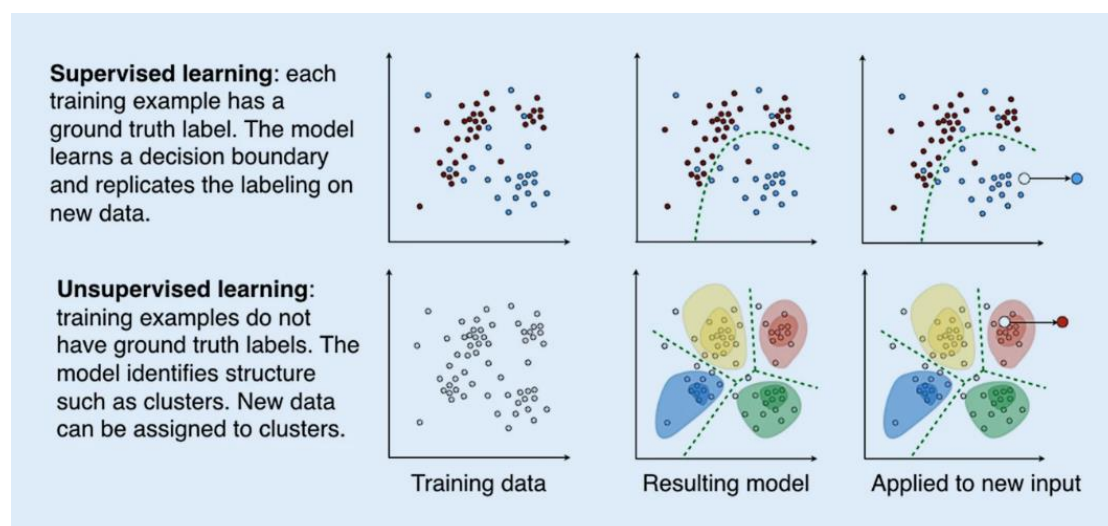
Στα πλαίσια της παρούσας διπλωματικής εργασίας, θα εξεταστούν μόνον περιπτώσεις επιβλεπόμενης μάθησης. Τα προβλήματα επιβλεπόμενης μάθησης κατηγοριοποιούνται περαιτέρω<sup>[46]</sup> ως προβλήματα ταξινόμησης (classification) και παλινδρόμησης (regression). Στα προβλήματα ταξινόμησης, το έργο-Task είναι η κατάταξη των δεδομένων εισόδου σε κατηγορίες ή «κλάσεις» (classes), ανάλογα με τα χαρακτηριστικά τους. Στην απλούστερη περίπτωση ενός προβλήματος ταξινόμησης, ένας αλγόριθμος καλείται να λάβει μια δυαδική απόφαση (θετικό-αρνητικό) και να κατατάξει ένα αντικείμενο εισόδου στην αντίστοιχη κατηγορία. Χαρακτηριστικό παραδείγματα είναι η διαλογή των εισερχόμενων e-mails ως spam και μη-spam και η αξιολόγηση αποτελεσμάτων βιοψίας ως προς την καλοήθεια ή κακοήθεια του δείγματος. Πιο σύνθετα προβλήματα ταξινόμησης είναι η αναγνώριση αντικειμένων/προσώπων σε φωτογραφίες ή η ανάγνωση χειρόγραφων κειμένων. Στα προβλήματα παλινδρόμησης, το έργο είναι η ανάπτυξη μοντέλων τα οποία αφού εκπαιδευθούν, μπορούν να πραγματοποιήσουν προβλέψεις πάνω σε νέες εισόδους.



Εικόνα 2.1: Αποτελέσματα χρήσης μηχανικής μάθησης για την επίλυση προβλήματος (α) ταξινόμησης και (β) παλινδρόμησης. Αναδημοσιεύεται με άδεια CC BY 3.0

Από μαθηματικής πλευράς, οι δύο κατηγορίες διαφέρουν ως προς τον τύπο των μεταβλητών εξόδου που θέλουμε να προβλέψουμε. Όταν οι μεταβλητές εξόδου είναι *διακριτές*, το πρόβλημα είναι *ταξινόμησης*. Όταν οι μεταβλητές εξόδου είναι *συνεχείς*, το πρόβλημα χαρακτηρίζεται ως *παλινδρόμησης*. Για να γίνει κατανοητή η διαφορά μεταξύ των δύο, θα παραθέσουμε ένα παράδειγμα. Έστω ότι αναπτύσσεται ένας αλγόριθμος ο οποίος λαμβάνει ως είσοδο τα χιλιόμετρα που γράφει το κοντέρ ενός στόλου μεταχειρισμένων αυτοκινήτων. Ως δεδομένα εκπαίδευσης χρησιμοποιεί τις τιμές όλων των χαρακτηριστικών τους (χιλιόμετρα, μάρκα, τύπος, ιστορικό ιδιοκτησίας, κυβισμός κλπ).

- Αν ζητείται να δημιουργηθεί ένας αλγόριθμος που λαμβάνει ως είσοδο τα χιλιόμετρα ενός αυτοκινήτου και δίνει ως έξοδο την μάρκα του αυτοκινήτου, είναι πρόβλημα ταξινόμησης.
- Αν ζητείται να δημιουργηθεί ένας αλγόριθμος που λαμβάνει ως είσοδο τα χιλιόμετρα ενός αυτοκινήτου και δίνει ως έξοδο την εμπορική αξία ενός αυτοκινήτου, είναι πρόβλημα παλινδρόμησης.

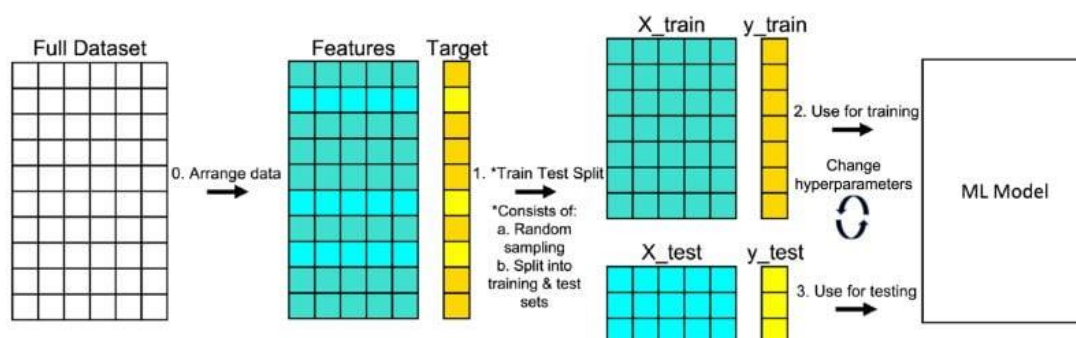


Εικόνα 2.2: Τρόπος λειτουργίας αλγόριθμου (αρ.) μη επιβλεπόμενης και (δεξ.) επιβλεπόμενης μάθησης. Αναδημοσιεύεται με άδεια CC BY 3.0

Το παράδειγμα αυτό ρίχνει φως και σε μία άλλη πτυχή της μηχανικής μάθησης που θα αναλυθεί περαιτέρω σε επόμενη ενότητα. Και στις δύο περιπτώσεις, αν διαθέτουμε επαρκή όγκο δεδομένων, είναι εξαιρετικά πιθανό ότι θα κατασκευαστεί ένα μοντέλο το οποίο προσαρμόζεται στα πειραματικά δεδομένα εκπαίδευσης με αυθαίρετη ακρίβεια. Στην δεύτερη περίπτωση, αυτό μοιάζει αυτονόητο. Ένας ερευνητής θα περίμενε ότι σε γενικές γραμμές, η εμπορική αξία ενός μεταχειρισμένου αυτοκινήτου θα μειωνόταν καθώς αυξάνεται η ένδειξη του μετρητή χιλιομέτρων και ότι η μείωση αυτή θα μπορούσε να προβλεφθεί από κάποιο μοντέλο. Αντιθέτως, δεν υπάρχει κάποιος λόγος να περιμένει ότι η μάρκα ενός αυτοκινήτου παρουσιάζει κάποια συσχέτιση με τα χιλιόμετρα που έχει διανύσει. Παραδόξως, οι ευέλικτες δομές των αλγορίθμων ενδέχεται να παράξουν τέτοιες αβάσιμες συσχετίσεις, επειδή τα μοντέλα μηχανικής

μάθησης δεν περιορίζονται από φυσικές αρχές, όπως αυτές διατυπώνονται για παράδειγμα σε μια εξίσωση μοντέλου που αναδύεται από κάποια φυσική αρχή, αλλά ωθούνται αποκλειστικά από τα δεδομένα, με στόχο λειτουργίας τη μέγιστη προσαρμογή σε αυτά. Συμπεραίνουμε πρώτον ότι η καλή προσαρμογή ενός μοντέλου στα δεδομένα εκπαίδευσης και μόνον δεν είναι καλή ένδειξη για την καταλληλότητα του μοντέλου για τη δουλειά που θέλουμε να κάνουμε. Ισοδύναμα, συμπεραίνουμε ότι η χρήση μηχανικής μάθησης για τη μοντελοποίηση μιας διεργασίας μπορεί εύκολα να οδηγήσει σε υπερπροσαρμογή (overfitting). Για να αποφύγουμε την υπερπροσαρμογή όταν εκπαιδεύσουμε τα διάφορα είδη μοντέλων μηχανικής μάθησης με κάποιο σύνολο δεδομένων, τέμνουμε το σύνολο αυτό σε δύο υποσύνολα:

- Το *σύνολο ή σετ εκπαίδευσης (training set)* το οποίο χρησιμοποιείται για να καθοδηγήσει την προσαρμογή των παραμέτρων του μοντέλου στην πραγματική λειτουργία της μελετώμενης διεργασίας.
- Το *σύνολο ή σετ ελέγχου (test set)*, το οποίο δεν συμμετέχει στη διαδικασία της εκπαίδευσης. Τα εκπαιδευμένα μοντέλα δοκιμάζονται πάνω στο σετ ελέγχου για να εξακριβωθεί ότι η ποιότητα της προσαρμογής που επετεύχθη στο σύνολο εκπαίδευσης διατηρείται (ως έναν βαθμό) και σε σημεία δεδομένων εκτός αυτού.



Εικόνα 2.3: Βήματα εκπαίδευσης αλγορίθμου μηχανικής μάθησης. Απεικονίζεται ο χωρισμός του συνόλου δεδομένων σε μεταβλητές εισόδου και εξόδου και η κατάτμηση του συνόλου σε δεδομένα εκπαίδευσης και ελέγχου.

Δεύτερον, συμπεραίνουμε ότι τα αποτελέσματα συσχέτισης ενός μοντέλου μηχανικής μάθησης δεν έχουν πάντοτε φυσική σημασία. Στην περίπτωση της προσομοίωσης διεργασιών, αυτό σημαίνει ότι ο μηχανικός καλείται να επιλέξει μεταβλητές εισόδου και εξόδου για τις οποίες υπάρχει υπόνοια συσχέτισης τεκμηριωμένη από κάποια φυσική αρχή και να αξιολογεί προσεκτικά την απόδοση των παραγόμενων νευρωνικών δικτύων, αντί να εμπιστεύεται τυφλά την ποσότητα των δεδομένων εκπαίδευσης. Προφανώς, η προσομοίωση μιας μονάδας καταλυτικής πυρόλυσης εντάσσεται στα προβλήματα παλινδρόμησης, καθώς όλες οι μεταβλητές που την περιγράφουν (θερμοκρασία, πίεση, μετατροπές, χαρακτηριστικά ροής) είναι συνεχείς. Στη συνέχεια, θα αναλυθεί πλήρως η φιλοσοφία με την οποία επιλέχθηκαν οι μεταβλητές εισόδου και εξόδου και η διαδικασία με την οποία επιλέχθηκαν τα κατάλληλα δεδομένα

εκπαίδευσης από τη μονάδα FCC των ΕΛΠΕ. Τούτων δοθέντων, αρχίζει ενδεχομένως να διαφαίνεται η αξία των νευρωνικών δικτύων στην επίλυση ενός τόσο πολυσύνθετου προβλήματος. Όπως αναφέρθηκε στην ενότητα περιγραφής της διεργασίας, η καταλυτική πυρόλυση περιλαμβάνει εκατοντάδες αντιδράσεις που λαμβάνουν χώρα μεταξύ ισάριθμων διαφορετικών οργανικών ενώσεων. Για να αποτυπωθεί εικονικά η διεργασία αυτή υπάρχουν δύο επιλογές:

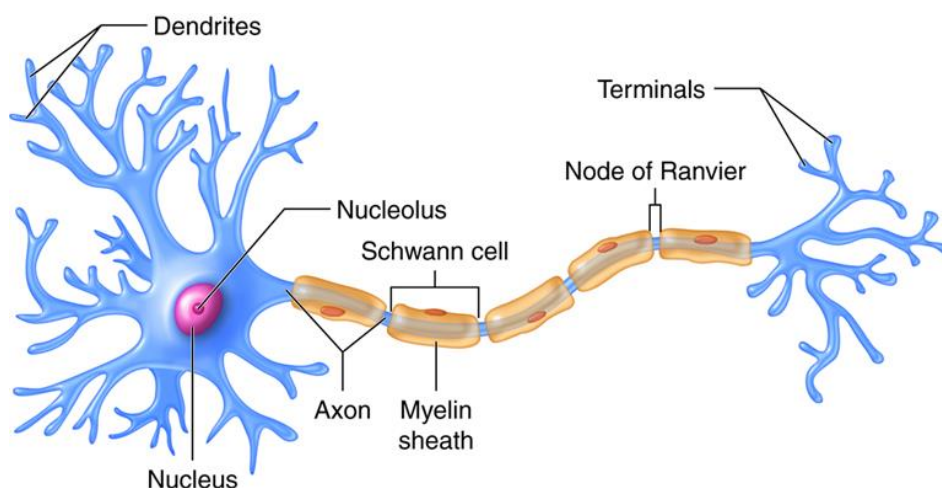
- Να πραγματοποιηθεί απλή οπισθοδρόμηση με κάποιο γραμμικό ή πολυωνυμικό μοντέλο. Η λύση αυτή είναι απλούστερη, αλλά χάνει σε ακρίβεια.
- Να καταστρωθούν ισάριθμες διαφορικές εξισώσεις που περιγράφουν φυσικά και χημικά την διεργασία (ισοζύγια μάζας, ενέργειας) και να επιλυθούν αριθμητικά. Για ένα σύστημα που περιλαμβάνει τόσα πολλά χημικά είδη, μία τέτοια λύση βελτιώνει την ακρίβεια των προβλέψεων, αλλά καθιστά το προκύπτον μοντέλο εξαιρετικά πολύπλοκο και δαπανηρό σε υπολογιστικές απαιτήσεις.

Τα μοντέλα μηχανικής μάθησης είναι η χρυσή τομή στην αντιμετώπιση αυτού του δυσεπίλυτου προβλήματος, ακριβώς επειδή ευδοκιμούν στο σημείο που σταματά η ικανότητα των κλασικών μοντέλων να ερμηνεύουν τόσο περίπλοκες διεργασίες. Στο επόμενο κεφάλαιο θα αναλυθεί η κύρια υποκατηγορία μοντέλων μηχανικής μάθησης, τα *νευρωνικά δίκτυα*. Συγκεκριμένα, θα παρατεθούν στοιχεία για τη δομή τους και τον τρόπο με τον οποίο πραγματοποιούν προβλέψεις. Οι δομές αυτές είναι η ραχοκοκκαλιά των μοντέλων της καταλυτικής πυρόλυσης που αναπτύχθηκαν στην παρούσα εργασία.

## 2.3 Νευρωνικά Δίκτυα

Τα νευρωνικά δίκτυα, γνωστά επίσης ως τεχνητά νευρωνικά δίκτυα ή προσομοιωμένα νευρωνικά δίκτυα είναι υπολογιστικά συστήματα που εντάσσονται στο ευρύτερο πλαίσιο της μηχανικής μάθησης. Είναι θεμελιώδης υποκατηγορία των αλγορίθμων μηχανικής μάθησης, οι οποίοι επιτρέπουν στους υπολογιστές να διαβάζουν δεδομένα και να εξάγουν από αυτά τις απαραίτητες πληροφορίες, ώστε να είναι δυνατή η κατασκευή υποθέσεων σχετικά με την κατανομή των δεδομένων, χωρίς την ανάγκη για a priori κατάστρωση ενός μαθηματικού μοντέλου.

Όπως φανερώνει και η ονομασία τους, τα νευρωνικά δίκτυα έχουν εμπνευστεί στη δομή και την ανάπτυξή τους από τη λειτουργία των νευρώνων του εγκεφάλου. Για να γίνει κατανοητή η σύγκριση, ας εστιάσουμε στον τρόπο με τον οποίο μαθαίνει και προσαρμόζεται στις μεταβολές του άμεσου περιβάλλοντος ο ανθρώπινος εγκέφαλος. Ο εγκέφαλος του ανθρώπου αποτελείται από περίπου 120 δισεκατομμύρια νευρώνες<sup>[47]</sup>. Ένας νευρώνας είναι το θεμελιώδες κομμάτι του εγκεφάλου στο οποίο διεξάγεται η διαδικασία που ονομάζουμε νόηση και αποτελείται από τρία διακριτά κομμάτια: τον άξονα, το νευρικό σώμα και τους δενδρίτες/τερματικά (Εικόνα 2.3):



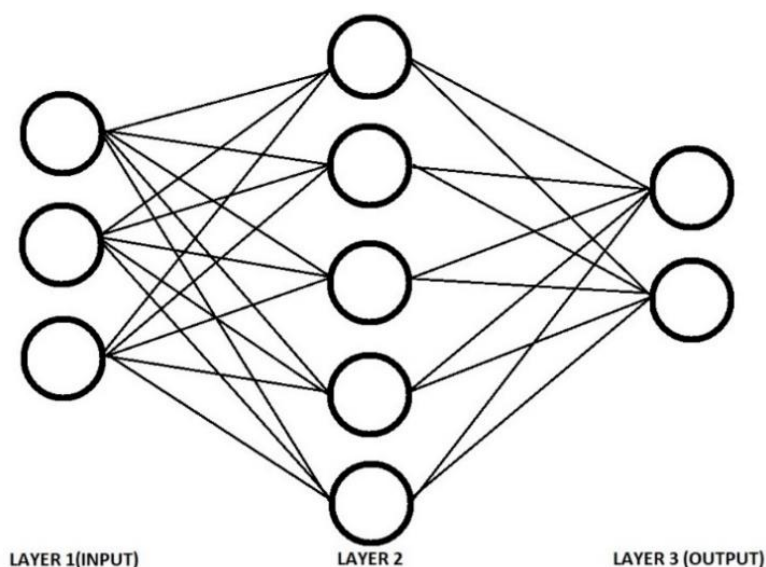
Εικόνα 2.4: Συστατικά μέρη ενός νευρώνα ανθρώπινου εγκεφάλου. Αναδημοσιεύεται με άδεια CC BY 4.0

Οι νευρώνες επικοινωνούν μεταξύ τους με χρήση ηλεκτρικών σημάτων, τα οποία εισέρχονται στους δενδρίτες, διαδίδονται κατά μήκος του νευράξονα και καταλήγουν στα τερματικά. Συγκεκριμένα, η επικοινωνία επιτυγχάνεται με ανεπαίσθητες μεταβολές της ηλεκτρικής τάσης στην επιφάνεια του κυττάρου, οι οποίες γίνονται αντιληπτές από νευρώνες εμπρός ή πίσω από τον νευρώνα από τον οποίο πηγάζει η διαταραχή. Η σύνδεση των νευρώνων πραγματοποιείται πάντοτε σειριακά, δηλαδή οι δενδρίτες του ενός συνδέονται με τα τερματικά του άλλου κ.ο.κ., σχηματίζοντας πυκνά δίκτυα διάδοσης της πληροφορίας και επιτυγχάνεται μέσω μικροδομών σύνδεσης ηλεκτροχημικής βάσης στα άκρα των δενδριτών, οι οποίες ονομάζονται συνάψεις. Η διανομή της πληροφορίας δεν γίνεται τυχαία, αλλά πάντοτε προς μία κατεύθυνση. Ένας δεδομένος νευρώνας είναι συνδεδεμένος με έως και χιλιάδες άλλους, από τους οποίους λαμβάνει εισερχόμενα ηλεκτρικά σήματα. Τα ηλεκτρικά σήματα αυτά μπορεί να είναι



διεγερτικά ή κατασταλτικά. Στο νευρωνικό σώμα πραγματοποιείται μια σταθμισμένη άθροιση των εισερχόμενων σημάτων. Αν το άθροισμα ξεπερνά το κατώφλι ενεργοποίησης του νευρώνα, το οποίο διαφέρει ανάλογα με την κατηγοριοποίηση του νευρώνα ως προς την εγκεφαλική λειτουργία που εξυπηρετεί, ο νευρώνας προωθεί το σήμα σε επόμενα επίπεδα νευρώνων ή την αποκόπτει. Τα ηλεκτρικά σήματα που προκύπτουν από την αντίληψη των μεταβολών του εξωτερικού περιβάλλοντος από τα αισθητήρια όργανα προωθούνται τακτικά και όχι συγκεχυμένα. Κατά αυτόν τον τρόπο, οι επιμέρους εγκεφαλικές λειτουργίες μπορούν να εκτελεστούν ταυτόχρονα, αφού σε κάθε μία εκχωρείται μοναδική δίοδος (pathway) εκτέλεσης, η οποία διαμορφώνεται με συνεχή έκθεση των νευρώνων στα ίδια σήματα, που επιφέρει ανεπαίσθητες, αλλά σωρευτικά σημαντικές αλλαγές στα εσωτερικά κριτήρια ενεργοποίησής τους. Σε μακροσκοπικό επίπεδο, η διαδικασία αυτή αποτυπώνεται στην ικανότητα του ανθρώπου να βελτιώνει την αντίδρασή του σε αναδυόμενες καταστάσεις όσο περισσότερο εκτίθεται σε αυτές. Το παρκάρισμα ενός αυτοκινήτου είναι δοκιμασία για έναν νέο οδηγό, αλλά δεύτερη φύση για έναν έμπειρο.

Τα νευρωνικά δίκτυα είναι το υπολογιστικό ανάλογο των δικτύων νευρώνων του εγκεφάλου. Συνίστανται από θεμελιώδεις υπολογιστικές μονάδες, οι οποίες ονομάζονται κόμβοι ή νευρώνες, και οι οποίες ενώνονται μεταξύ τους και μεταδίδουν σήματα μεταβαλλόμενης έντασης. Η ένταση των μεταδιδόμενων σημάτων καθορίζεται από εσωτερικές παραμέτρους του δικτύου που ονομάζονται βάρη ή συναπτικά βάρη. Κάθε σύνδεση νευρώνα-νευρώνα χαρακτηρίζεται από ένα μοναδικό βάρος. Οι νευρώνες ενεργοποιούνται και απενεργοποιούνται κατευθυνόμενοι από εσωτερικές συναρτήσεις ενεργοποίησης που εμπεριέχονται σε αυτούς και καθορίζουν σε κάθε περίπτωση το κατώφλι (threshold) ενεργοποίησης. Η οπτική απεικόνιση των νευρωνικών δικτύων γίνεται συνήθως με χρήση συνεκτικών διαγραμμάτων, που απεικονίζουν τον αριθμό των νευρώνων και τις συνδέσεις μεταξύ τους:



Εικόνα 2.5: Τυπική μορφή νευρωνικού δικτύου εμπρόσθιας προώθησης (feed-forward neural network). Απεικονίζονται οι τρεις κατηγορίες στρωμάτων.

Όπως φαίνεται στην Εικόνα 2.5, ένα νευρωνικό δίκτυο μπορεί να περιγραφεί συνοπτικά ως ένα σύνολο στοιχειωδών μονάδων επεξεργασίας (κόμβοι ή νευρώνες), οι οποίοι διατάσσονται καθέτως σε διακριτά στρώματα (*layers*). Κάθε νευρώνας που ανήκει σε στρώμα  $i$ , δέχεται ως είσοδο αριθμό σημάτων ίσο με τον αριθμό των νευρώνων που απαρτίζουν το αμέσως προηγούμενο στρώμα  $i - 1$ . Τα διαδοχικά επίπεδα ή «στρώματα» ενός νευρωνικού δικτύου ανήκουν σε μία από τρεις κατηγορίες:

- *Στρώμα Εισόδου (Input Layer)*: Είναι το στρώμα στο οποίο εισάγονται τα δεδομένα τα οποία θα επεξεργαστεί ο αλγόριθμος. Τα δεδομένα τα οποία επεξεργαζόμαστε σε μία διαδικασία εκπαίδευσης ενός αλγορίθμου χαρακτηρίζονται περαιτέρω ως δεδομένα εκπαίδευσης, διασταυρούμενης επικύρωσης και δοκιμής. Οι κόμβοι του στρώματος αυτού ονομάζονται κόμβοι εισόδου και δεν τροποποιούν τα δεδομένα. Εξ' ορισμού, το στρώμα εισόδου έχει αριθμό κόμβων ίσο με τη διάσταση του διανύσματος που περιέχει τα δεδομένα εισόδου.
- *Κρυφά ή Ενδιάμεσα Στρώματα (Hidden Layers)*: Μεταξύ των στρωμάτων εισόδου και εξόδου παρεμβάλλονται τα λεγόμενα κρυφά στρώματα, τα οποία συνιστούν τον εσωτερικό μηχανισμό του δικτύου. Κάθε ένα από αυτά τα στρώματα δέχεται ως είσοδο την έξοδο του αμέσως προηγούμενου στρώματος, την επεξεργάζεται και την προωθεί στο αμέσως επόμενο στρώμα. Ο αριθμός και οι διαστάσεις των κρυφών επιπέδων είναι η κατ' εξοχήν μεταβλητή σχεδιασμού ενός νευρωνικού δικτύου. Δεν υπάρχει συγκεκριμένη θεωρητική μέθοδος καθορισμού του βέλτιστου αριθμού ενδιάμεσων στρωμάτων και των διαστάσεών τους για την επίλυση δεδομένου προβλήματος και συνεπώς ο καθορισμός τους επαφίεται στην εμπειρία του χειριστή.
- *Στρώμα Εξόδου (Output Layer)*: Το στρώμα αυτό αποτελεί την έξοδο του συστήματός και τροφοδοτείται από το τελευταίο κρυφό στρώμα. Κάθε νευρώνας του διαμορφώνει την τιμή μίας και μόνο μίας μεταβλητής εξόδου. Συνεπώς, όπως και για το στρώμα εισόδου, η διάστασή του ταυτίζεται πάντοτε με τη διάσταση του διανύσματος των μεταβλητών εξόδου. Στα στρώματα εξόδου χρησιμοποιείται συνήθως διαφορετική συνάρτηση ενεργοποίησης, απ' ό,τι στα ενδιάμεσα στρώματα<sup>[48]</sup>.

Κάθε νευρωνικό δίκτυο καλείται να πραγματοποιήσει προβλέψεις καθοδηγούμενο από το σύνολο δεδομένων που θέλουμε να μοντελοποιήσουμε. Αποκρύπτοντας τις τιμές εξόδου, τροφοδοτούμε τις εισόδους του συνόλου αυτού στο δίκτυο και παρακολουθούμε τις προβλέψεις του δικτύου, όπως αυτές αποτυπώνονται στις τιμές που δίνει το στρώμα εξόδου. Προφανώς, η πρόβλεψη αυτή θα έχει κάποιο σφάλμα. Η ελαχιστοποίηση του σφάλματος αυτού μέσω στοχευμένης τροποποίησης των συναπτικών βαρών του δικτύου είναι το αντικείμενο της εκπαίδευσης των νευρωνικών δικτύων, τα βήματα της οποίας παρουσιάζονται στην επόμενη ενότητα.



## 2.4 Εκπαίδευση νευρωνικών δικτύων

### 2.4.1 Γενικά Στοιχεία

Γενικώς, ως «εκπαίδευση» (training) των νευρωνικών δικτύων χαρακτηρίζεται κάθε απόπειρα προσαρμογής των συναπτικών βαρών του νευρωνικού δικτύου ώστε να δίνει αποτελέσματα-εξόδους τα οποία ανταποκρίνονται στην πραγματικότητα. Εν αντιθέσει με τον αριθμό των ενδιάμεσων στρωμάτων και τον αριθμό των νευρώνων σε κάθε ένα από αυτά, τα οποία χαρακτηρίσαμε εν γένει σχεδιαστικές μεταβλητές, υπάρχουν αυτοματοποιημένες επαναληπτικές μέθοδοι, οι οποίες καταφέρνουν πάντοτε την προσαρμογή των αποτελεσμάτων του δικτύου στις προδιαγραφές που έχουμε θέσει (βλ. «Συνάρτηση Κόστους»).

Οι συνήθεις μέθοδοι εκπαίδευσης νευρωνικών δικτύων εντάσσονται στο πλαίσιο των μεθόδων επιβλεπόμενης μάθησης (supervised learning). Η φιλοσοφία της διαδικασίας εκπαίδευσης είναι η εξής:

- Το δίκτυο τροφοδοτείται με πραγματικά δεδομένα, μαθηματικά εκφρασμένα ως ζεύγη μεταβλητών εισόδου-εξόδου  $(x,y)$ .
- Μέσω επαναληπτικής, σειριακής, διαδικασίας, τα συναπτικά βάρη τροποποιούνται διαδοχικά ώστε με κάθε νέα επανάληψη της εμπρόσθιας διάδοσης να επιτυγχάνεται όλο και μεγαλύτερη ακρίβεια αποτελεσμάτων.
- Στο τέλος της διαδικασίας, το εκπαιδευμένο πλέον δίκτυο δέχεται ως τροφοδοσία νέα σετ πραγματικών δεδομένων εισόδου.
- Οι εξοδοί του δικτύου ελέγχονται ως προς την ακρίβειά τους, συγκρινόμενες με τις πραγματικές εξόδους.

Όπως γίνεται κατανοητό, στην διαδικασία εκπαίδευσης τον μεγαλύτερο ρόλο παίζουν τα πραγματικά δεδομένα της διεργασίας την οποία το μοντέλο καλείται να προσομοιώσει και πάνω στα οποία εκπαιδεύεται και δοκιμάζεται. Πέραν των βελτιστοποιήσεων που μπορούν να επιτευχθούν στο επίπεδο της δομής, η ποσότητα και η ποιότητα των δεδομένων που τροφοδοτούνται στο δίκτυο είναι ο μείζων καθοριστικός παράγοντας της ποιότητας των αποτελεσμάτων χρήσης του. Στην παρούσα ενότητα παρουσιάζονται συνοπτικά τα βήματα μιας εκπαίδευσης νευρωνικού δικτύου, από την είσοδο των δεδομένων έως την τροποποίηση των εσωτερικών δομών του.

### 2.4.2 Εμπρόσθια Διάδοση

Η διαδικασία της εκπαίδευσης ενός νευρωνικού δικτύου ξεκινά με την εισαγωγή των δεδομένων που θα χρησιμοποιηθούν για τον σκοπό αυτό στο στρώμα εισόδου. Από το πλήρες σύνολο δεδομένων, κρατάμε τα στοιχεία εισόδου  $x_k$  και πληρώνουμε με αυτά ισάριθμους νευρώνες του αρχικού στρώματος (έστω στρώμα 0):

$$x_{input,k} = x_k^{(0)}$$

Ο αριθμός  $k$  είναι ο αριθμός των χαρακτηριστικών, δηλαδή των ανεξάρτητων μεταβλητών που περιλαμβάνονται στην θεώρηση του δικτύου. Ένας  $i$ -νευρώνας του

αμέσως επόμενου στρώματος λαμβάνει ως είσοδο το σταθμισμένο άθροισμα των μεταβλητών εισόδου επί τα συναπτικά βάρη (διάνυσμα  $\mathbf{w}_{ik}^{(1)}$ ), που κατευθύνονται από το στρώμα 0 στο στρώμα 1. Στο γινόμενο αυτό προστίθεται η μεροληψία (bias,  $\mathbf{b}_k^{(1)}$ ), ένα σταθερό μέγεθος που χρησιμοποιείται για την καλύτερη προσαρμογή των συναρτήσεων ενεργοποίησης στα εισερχόμενα δεδομένα. Σε κάθε νευρώνα του δικτύου αντιστοιχεί ένα bias. Η συνολική είσοδος στο στρώμα 1 διαμορφώνεται ως εξής:

$$\mathbf{z}_{ik}^{(1)} = \mathbf{w}_{ik} * \mathbf{x}_k^{(0)} + \mathbf{b}_k^{(1)}$$

Με χρήση της συνάρτησης ενεργοποίησης  $A$  στο στρώμα 1 λαμβάνουμε την έξοδο  $a$  του πρώτου στρώματος του νευρωνικού δικτύου:

$$\mathbf{a}^1 = A\left(\sum_k \mathbf{z}_i^{(1)}\right) = A\left(\sum_k (\mathbf{w}_{ik} * \mathbf{x}_k^{(0)}) + \mathbf{b}_k^{(1)}\right)$$

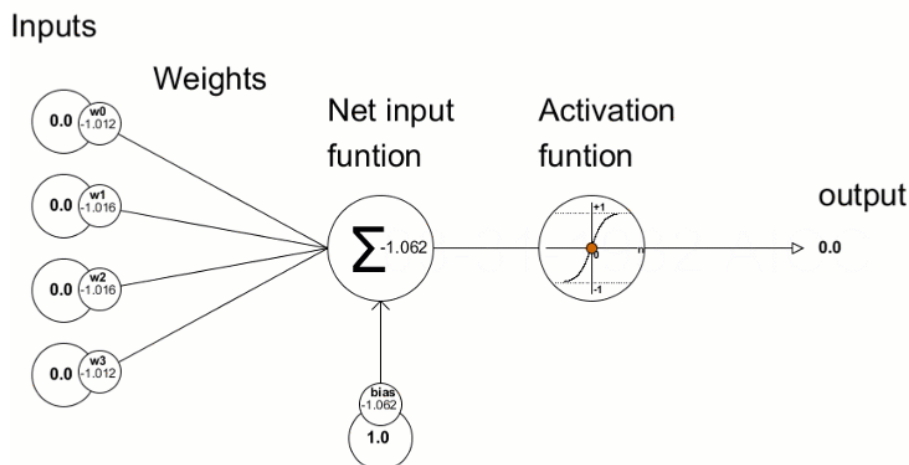
Το  $a^{(1)}$  λειτουργεί ως είσοδος του στρώματος 2, το  $a^{(2)}$  του στρώματος 3 κ.ο.κ. Συνεπώς, γενικεύουμε για στρώμα  $l$  μεταξύ 1 και  $L$ :

$$\mathbf{a}^l = A\left(\sum_k \mathbf{z}_i^{(l)}\right) = A\left(\sum_k (\mathbf{w}_{ik} * \mathbf{a}_k^{(l-1)}) + \mathbf{b}_k^{(l)}\right)$$

Στο τελικό στρώμα παράγεται η πρόβλεψη, ή υπόθεση,  $h$  του νευρωνικού δικτύου, η οποία είναι η σωρευτική επίδραση των εσωτερικών παραγόντων του στην πρόβλεψη.

$$\mathbf{y} = \mathbf{a}^{(L)} = \mathbf{h}(x)$$

Η εξίσωση αυτή είναι η συνεκτική μαθηματική αποτύπωση ενός νευρωνικού δικτύου. Ο τρόπος με τον οποίο πραγματοποιείται η εμπρόσθια προώθηση στο επίπεδο ενός νευρώνα παρουσιάζεται στην Εικόνα 2.6:



Εικόνα 2.6: Είσοδοι, έξοδοι και τρόπος επεξεργασίας των δεδομένων στο επίπεδο του νευρώνα.

### 2.4.3 Συνάρτηση Ενεργοποίησης

Η συνάρτηση ενεργοποίησης αποτελεί τον συνδυαστικό κρίκο μεταξύ των νευρώνων που βρίσκονται εκατέρωθεν ενός νευρώνα που εντοπίζεται σε κάποιο ενδιάμεσο στρώμα ή στο στρώμα εξόδου. Σε ένα νευρωνικό δίκτυο, η συνάρτηση ενεργοποίησης ενός νευρώνα δέχεται ως είσοδο το σταθμισμένο άθροισμα των εξόδων όλων των νευρώνων που συνδέονται με τον νευρώνα αυτόν και δίνει ως έξοδο μία τιμή, η οποία με τη σειρά της καθορίζει ποιοί από τους νευρώνες του επόμενου στρώματος θα παίξουν ρόλο στη διαμόρφωση του τελικού αποτελέσματος κ.ο.κ. Η συνάρτηση Heaviside είναι η απλούστερη, αλλά ταυτόχρονα λιγότερο αξιοποιήσιμη συνάρτηση για τον σκοπό αυτό, για λόγους που θα αναλυθούν παρακάτω:

$$H(x) = \begin{cases} 1, & w * x + b > 0 \\ 0, & \text{αλλιώς} \end{cases}$$

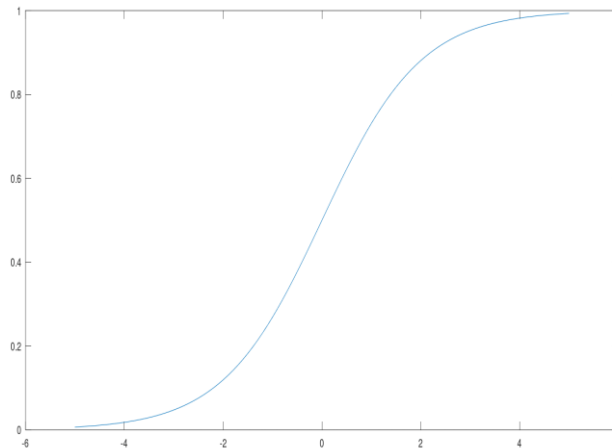
Πράγματι, τα πρώιμα νευρωνικά δίκτυα που αναπτύχθηκαν τη δεκαετία του 1950 από τον Frank Rosenblatt και την IBM, χρησιμοποιούσαν την συνάρτηση αυτή για να επιλύσουν προβλήματα ταξινόμησης. Ωστόσο, η χρήση της βηματικής συνάρτησης περιορίζει τις πιθανές εφαρμογές λόγω της αναπόφευκτα γραμμικής φύσης του δικτύου. Στην βιβλιογραφία έχουν προταθεί πολλές άλλες συναρτήσεις που μπορούν να εκτελέσουν τον σκοπό αυτό και η επιλογή της κατάλληλης εξαρτάται τόσο από τη φύση του προβλήματος που επιθυμούμε να εξετάσουμε, αλλά και την καθαρή υπολογιστική δύναμη του συστήματος στο οποίο πραγματοποιείται η μελέτη. Ωστόσο, κάθε συνάρτηση ενεργοποίησης θα πρέπει να έχει ορισμένα χαρακτηριστικά τα οποία την καθιστούν κατάλληλη για τον σκοπό αυτό<sup>[49]</sup>:

- Να είναι κεντραρισμένη στο μηδέν, ώστε οι κλίσεις των συναρτήσεων να μην τείνουν προς κάποια συγκεκριμένη κατεύθυνση, εισάγοντας σφάλματα που διαδίδονται κατά μήκος του δικτύου.
- Να μην έχει μεγάλη απαίτηση σε υπολογιστική ισχύ για να υπολογιστεί η τιμή της σε κάθε νευρώνα. Τα σύγχρονα νευρωνικά δίκτυα μπορεί να διαθέτουν δεκάδες εκατομμύρια νευρώνες. Συνεπώς, ο υπολογισμός της συνάρτησης ενεργοποίησης δεν μπορεί να «κοστίζει» υπερβολικά πολύ από υπολογιστικής άποψης.
- Να είναι διαφορίσιμη. Μιας και τα νευρωνικά δίκτυα εκπαιδεύονται με τη μέθοδο της κατάβασης βαθμίδας, όλα τα παρεμβαλλόμενα στρώματα θα πρέπει να περιέχουν συναρτήσεις διαφορίσιμες ώστε να μπορούν να λειτουργούν ως ενδείξεις ενεργοποίησης.
- Να μην είναι ευάλωτη στο πρόβλημα της εξαφανιζόμενης βαθμίδας.

Η πρώτη συνάρτηση που χρησιμοποιήθηκε ως συνάρτηση ενεργοποίησης στα πρώιμα προβλήματα ταξινόμησης είναι η σιγμοειδής συνάρτηση, με τύπο:

$$S(x) = \frac{1}{1 + e^{-x}}$$

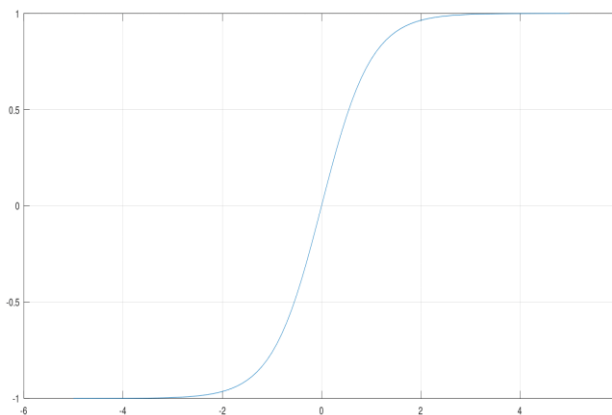
Η οποία γραφικά απεικονίζεται ως εξής:



Η σιγμοειδής συνάρτηση είναι απείρως διαφορίσιμη και φραγμένη. Ωστόσο, πλέον δεν χρησιμοποιείται επειδή έχει υψηλό υπολογιστικό κόστος και είναι επιρρεπής στο πρόβλημα εξαφανιζόμενης βαθμίδας. Ακόμη, δεν είναι κεντραρισμένη στο μηδέν.

Η υπερβολική εφαπτομένη ως συνάρτηση επιλύει το πρόβλημα του κεντραρίσματος που παρουσιάζει η σιγμοειδής και συνεπώς αποτελεί ένα βήμα προς τη σωστή κατεύθυνση, ωστόσο διατηρεί τα υπόλοιπα:

$$\tanh(x) = \frac{e^x - e^{-x}}{e^x + e^{-x}}$$

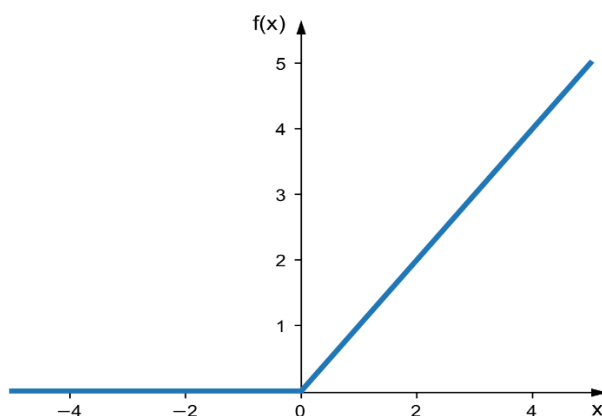


Στα σύγχρονα νευρωνικά δίκτυα χρησιμοποιείται συνήθως η συνάρτηση ReLU (Rectified Linear Activation Function).

$$\mathbf{ReLU} = \begin{cases} x, & x > 0 \\ 0, & x \leq 0 \end{cases}$$

Η συνάρτηση αυτή έχει αρκετά πλεονεκτήματα έναντι της σιγμοειδούς και της υπερβολικής εφαπτομένης, συγκεκριμένα:

- Λόγω της γραμμικής της φύσης, είναι εύκολη στον χειρισμό και στην βελτιστοποίηση, εξαλείφοντας τις εκθετικές πράξεις. Επιπλέον, δεν είναι επιρρεπής στο πρόβλημα της εξαφανιζόμενης βαθμίδας.
- Η ικανότητα της να αποτυπώνει το απόλυτο μηδέν μας επιτρέπει να κατασκευάσουμε ένα πιο «αραιό» δίκτυο, με μηδενικά outputs στα hidden layers. Κατ' αυτόν τον τρόπο, το δίκτυο απλοποιείται και η μάθηση προχωρά πιο γρήγορα.



Παρατηρούμε ότι η ReLU είναι μερικώς παραγωγίσιμη. Στο σημείο 0 μπορούμε να θεωρήσουμε ότι η παράγωγος λαμβάνει επίσης την τιμή 0, χωρίς να προκληθούν προβλήματα στους υπολογισμούς. Επίσης, είναι μη φραγμένη, το οποίο σημαίνει ότι μπορεί να οδηγήσει σε ραγδαία αύξηση των outputs, εμποδίζοντας την ομαλή λειτουργία ορισμένων νευρώνων. Το σημαντικότερο της μειονέκτημα επαφίεται στο γεγονός ότι όλες οι αρνητικές εισοδοί δίνουν ως output 0. Αυτό μπορεί να εμποδίσει τη διαδικασία μάθησης σε ορισμένους νευρώνες (παραμένουν οιονεί κλειστοί).

#### 2.4.4 Συνάρτηση Κόστους

Όπως αναφέρθηκε και παραπάνω, σε μία διαδικασία εκπαίδευσης ενός αλγορίθμου, είναι επιθυμητή η βελτίωση της απόδοσης του αλγορίθμου όπως μετράται από έναν συγκεκριμένο δείκτη απόδοσης. Με άλλα λόγια, η απόκλιση των εξόδων ενός αλγορίθμου από τις πραγματικές τιμές πρέπει να ποσοτικοποιηθεί και για το σκοπό αυτό αξιοποιείται η Συνάρτηση Κόστους (Cost Function). Ο υπολογιστής διαβάζει την τιμή της συνάρτησης κόστους για κάθε χαρακτηριστικό  $x_k$  και λαμβάνει τη μέση τιμή των συναρτήσεων ως ένδειξη του βαθμού επιτυχίας των προβλέψεων. Για τα δεδομένα της παρούσας εργασίας, αρκεί να αναφερθούμε μονάχα στην συνάρτηση μέσου τετραγωνικού σφάλματος, η οποία λαμβάνει τη μορφή:

$$MSE = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^m (y_i - \hat{y}_i)^2$$

Όπου:  $n$  ο πληθυσμός των δειγμάτων του συνόλου εκπαίδευσης,  $y_i$  η πραγματική έξοδος και  $\hat{y}_i$  η πρόβλεψη του δικτύου. Στόχος της μάθησης είναι να ελαχιστοποιηθεί η Συνάρτηση Κόστους. Αυτό πραγματοποιείται με τη μέθοδο της κατάβασης βαθμίδας, η οποία αναλύεται παρακάτω.

#### 2.4.5 Κατάβαση βαθμίδας

Η κατάβαση βαθμίδας έχει ως στόχο την ελαχιστοποίηση των απολύτων σφαλμάτων πρόβλεψης ( $y_i - \hat{y}_i$ ) και πραγματοποιεί την ελαχιστοποίηση με αναζήτηση των τοπικών ελαχίστων κάθε δεδομένης συνάρτησης κόστους,  $C(x)$  ή ισοδύναμα σημεία στα οποία η βαθμίδα της συνάρτησης ενεργοποίησης λαμβάνει την τιμή μηδέν. Αν θεωρήσουμε μια συνάρτηση ενεργοποίησης  $C(x)$ , καλώς ορισμένη και διαφορίσιμη στην περιοχή ενός σημείου εκκίνησης  $a$ , για να βρεθούμε στο τοπικό ελάχιστο στον μικρότερο χρόνο πρέπει να ακολουθήσουμε βηματική πορεία αντίστροφη της βαθμίδας της  $C$  στο σημείο αυτό. Αυτή τη διαδικασία τυποποιεί ο αλγόριθμος της κατάβασης βαθμίδας.

$$\mathbf{x}_{n+1} = \mathbf{x}_n - \lambda * \nabla C(\mathbf{x}_n)$$

Το  $x_n$  είναι το σημείο εκκίνησης και η σταθερά  $\lambda$  ονομάζεται ρυθμός μάθησης. Προφανώς, ο ρυθμός μάθησης μπορεί να προσαρμοστεί αυθαίρετα ανάλογα με τις ιδιότητες της συνάρτησης στην περιοχή του σημείου εκκίνησης. Μπορεί επίσης να μεταβάλλεται καθώς προχωρά η διαδικασία της κατάβασης βαθμίδας, ώστε να αποφευχθεί ο κίνδυνος να ξεπεράσουμε το ελάχιστο σε κάποιο βήμα κατάβασης. Το επιθυμητό αποτέλεσμα είναι η ελαχιστοποίηση της συνάρτησης κόστους ή ισοδύναμα σε κάθε βήμα ο ρυθμός μάθησης να είναι επαρκώς μικρός ώστε να ισχύει:

$$C(\mathbf{x}_n) \geq C(\mathbf{x}_{n+1})$$

Και σε βάθος χρόνου να δημιουργήσουμε μια σειρά σημείων για τα οποία ισχύει:

$$C(\mathbf{x}_0) \geq C(\mathbf{x}_1) \geq \dots \geq C(\mathbf{x}_{n-1}) \geq C(\mathbf{x}_n)$$

Όπου  $C(\mathbf{x}_n)$  η τελική τιμή της συνάρτησης κόστους, ιδανικά ισοδύναμη με το ελάχιστο της συνάρτησης κόστους, στην πράξη απειροστά μακριά από αυτό, θεωρώντας βέλτιστο ρυθμό μάθησης σε κάθε βήμα κατάβασης. Για να τερματίσουμε την κατάβαση βαθμίδας, εισάγουμε ένα κατώφλι σφάλματος. Όταν μια νόρμα της τιμής της διαφοράς  $\mathbf{x}_{n+1} - \mathbf{x}_n$  πέσει κάτω από ένα συγκεκριμένο όριο σφάλματος  $e$ , θεωρούμε ότι έχουμε πλησιάσει επαρκώς κοντά το τοπικό ελάχιστο της συνάρτησης και παύουμε την κατάβαση:

$$\|\mathbf{x}_{n+1} - \mathbf{x}_n\| < e \quad \text{ή} \quad \|\nabla C(\mathbf{x}_n)\| < e$$

### 2.4.6 Οπισθοδιάδοση

Όπως αναφέραμε, η εκπαίδευση του νευρωνικού δικτύου πραγματοποιείται με τροποποίηση των βαρών και των biases ώστε οι ίδιες εισόδοι να δίνουν καλύτερες εξόδους. Η τροποποίηση αυτή πραγματοποιείται βηματικά με χρήση της κατάβασης βαθμίδας. Για να πραγματοποιήσουμε κατάβαση βαθμίδας, βάσει αυτών που αναφέραμε στην ενότητα 2.4.5, πρέπει να γνωρίζουμε τις τιμές της βαθμίδας της συνάρτησης κόστους σε κάθε σημείο  $x$ . Η οπισθοδιάδοση (backpropagation) είναι ο τρόπος με τον οποίο υπολογίζουμε (και τροποποιούμε, στα πλαίσια της κατάβασης βαθμίδας) τις τιμές αυτές και ο τρόπος με τον οποίο η τροποποίηση αυτή διαδίδεται στα στρώματα του νευρωνικού δικτύου, με αφετηρία το στρώμα εξόδου και τερματισμό το στρώμα εισόδου. Έστω ότι το νευρωνικό δίκτυό μας έχει βάρη  $W$  και χρησιμοποιεί μια συνάρτηση κόστους  $C$ . Στόχος της εκπαίδευσης είναι να προσδιορίσουμε ένα  $C^*$  ώστε:

$$C^* = \underset{W}{\operatorname{argmin}} C(W)$$

Αυτό ισοδυναμεί με μηδενισμό των μερικών παραγώγων (των συνιστωσών της βαθμίδας) της συνάρτησης κόστους ως προς κάθε συνιστώσα του πίνακα  $W$ :

$$\frac{\partial}{\partial (W_{ij}^l)} C(W) = 0, \quad \forall i, j$$

Το  $W_{ij}^l$  είναι η συνιστώσα του βάρους που πηγαίνει από τον  $i$ -νευρώνα δεδομένου στρώματος στον  $j$ -νευρώνα προπορευόμενου στρώματος. ( $l$  είναι ο αριθμός του προπορευόμενου στρώματος, και λαμβάνει τιμές  $1-L$ , όπου  $L$  το βάθος (αριθμός στρωμάτων πλην του αρχικού) του δικτύου. Έστω ότι μας δίνεται σετ δεδομένων εκπαίδευσης  $m$  σημείων με αυθαίρετο αριθμό χαρακτηριστικών:

$$(\mathbf{x}^{(i)}, \mathbf{y}^{(i)}), \quad i = 1, 2, \dots, m$$

Κατασκευάζουμε τον πίνακα  $D$ , κάθε συστατικό του οποίου έχει τη μορφή  $D_{ij}^l$  και αρχικά λαμβάνει την τιμή 0. Πραγματοποιούμε εμπρόσθια διάδοση με δεδομένα εισόδου  $\mathbf{x}^{(1)}$  και το δίκτυο πραγματοποιεί τους εξής υπολογισμούς:

$$\mathbf{a}^{(1)} = \mathbf{x}^{(1)} + \mathbf{b}^{(1)}$$

$$\mathbf{z}^{(2)} = W^{(1)} * \mathbf{a}^{(1)} + \mathbf{b}^{(2)}$$

$$\mathbf{a}^{(2)} = \operatorname{activation}(\mathbf{z}^{(2)})$$

$$\mathbf{z}^{(3)} = W^{(2)} * \mathbf{a}^{(2)} + \mathbf{b}^{(3)}$$

$$\mathbf{a}^{(3)} = \operatorname{activation}(\mathbf{z}^{(3)})$$

...

$$\hat{\mathbf{y}}^{(L)} = \operatorname{activation}(\mathbf{z}^{(L)})$$

Η τελευταία γραμμή είναι η πρόβλεψη εξόδου του νευρωνικού δικτύου, στο στρώμα εξόδου L. Ορμώμενοι από αυτή, υπολογίζουμε τα απόλυτα σφάλματα της πρόβλεψης:

$$\delta^{(L)} = \hat{\mathbf{y}}^{(L)} - \mathbf{y}^{(L)}$$

Τα σφάλματα στα στρώματα πίσω του τελικού υπολογίζονται με πολλαπλασιασμό του διανύσματος σφαλμάτων του (l) στρώματος με τον πίνακα βαρών του αμέσως προηγούμενου (l-1) και την παράγωγο της συνάρτησης ενεργοποίησης  $A^{(l)}$  στο l-στρώμα:

$$\delta^{l-1} = \left( (W^{l-1})^T \delta^l \right) * A'^{(l-1)}$$

Για να υπολογίσουμε την τιμή της παραγώγου, μπορούμε να χρησιμοποιήσουμε την προσέγγιση:

$$A'^l = A^l * (1 - A^l)$$

Οπότε, ισοδύναμα γράφουμε:

$$\delta^{l-1} = \left( (W^{l-1})^T \delta^l \right) * A^l * (1 - A^l)$$

Αναβαθμίζουμε τα στοιχεία του Δ ως εξής:

$$D_{ij}^{l-1}{}_{new} = D_{ij}^{l-1}{}_{old} + a_j^{l-1} * \delta_i^l$$

Επιβάλλουμε τέλος μεταβολές όπως καθορίζονται από τον ρυθμό εκπαίδευσης για τα βάρη και τα biases αντίστοιχα:

$$D_{ij}^{l-1}{}_{upd} = \frac{1}{m} (D_{ij}^{l-1}{}_{new} + \lambda W_{ij}^l), j \neq 0$$

$$D_{ij}^{l-1}{}_{upd} = \frac{1}{m} (D_{ij}^{l-1}{}_{new}), j = 0$$

Έτσι, υπολογίζουμε τις τιμές της μερικής παραγώγου σε όλους τους νευρώνες και τα biases:

$$\frac{\partial}{\partial (W_{ij}^l)} C(W) = D_{ij}^l{}_{upd}$$

Η μεταβολή εφαρμόζεται σε όλα τα βάρη και η εκπαίδευση του δικτύου έχει ολοκληρωθεί. Ένας κύκλος εμπρόσθιας και οπίσθιας διάδοσης ονομάζεται εποχή (epoch) εκπαίδευσης. Ένα σύνολο εποχών ονομάζεται κύκλος εκπαίδευσης.



### 3. Ανασκόπηση βιβλιογραφίας

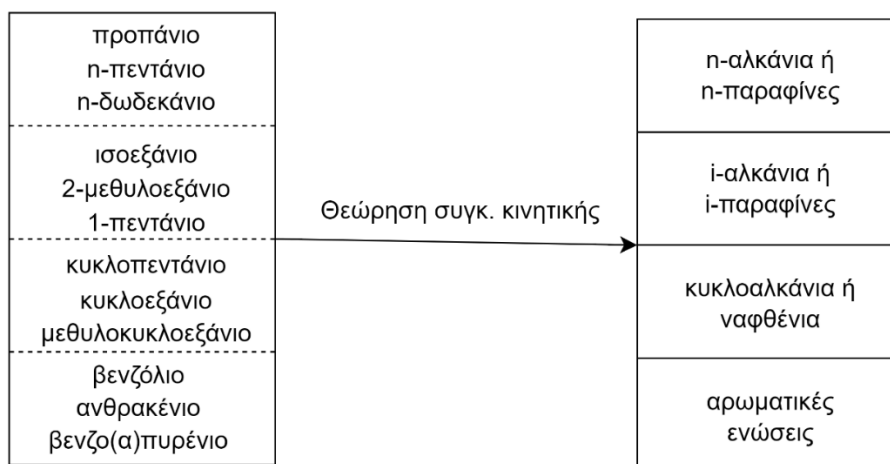
#### 3.1 Μοντελοποίηση καταλυτικής πυρόλυσης

Όπως αναφέρθηκε και προηγουμένως, η καταλυτική πυρόλυση είναι ενδεχομένως η σημαντικότερη από οικονομικής απόψεως διεργασία του διυλιστηρίου. Συνεπώς, υπάρχουν σημαντικά κίνητρα, οικονομικά και μη, για την ανάπτυξη μοντέλων που περιγράφουν την διεργασία και, το κυριότερο, επιτρέπουν στους άμεσα εμπλεκόμενους να πραγματοποιήσουν *προβλέψεις* σχετικά με την μελλοντική λειτουργία μιας μονάδας FCC. Πράγματι, στη σχετική βιβλιογραφία καταγράφεται πληθώρα μοντέλων για την καταλυτική πυρόλυση, τα οποία απορρέουν από ποικίλες μεθοδολογίες και φιλοσοφίες δόμησης. Στην παρούσα ενότητα θα επιχειρηθεί μια σύντομη ανασκόπηση της βιβλιογραφίας, στην οποία θα συζητηθούν οι κυρίαρχες τάσεις στην μοντελοποίηση της διεργασίας, καθώς και τα πλεονεκτήματα και τα μειονεκτήματα τους. Θα καταγραφούν επίσης ορισμένα αξιοσημείωτα παραδείγματα εφαρμογής των μεθοδολογιών αυτών και τα ευρήματά τους. Επιπλέον, θα διερευνηθεί η εφαρμογή των νευρωνικών δικτύων στα προβλήματα μοντελοποίησης της διεργασίας FCC ως προς τα ευρήματα και τις προκλήσεις που αντιμετώπισαν οι ερευνητές. Τέλος, θα καταγραφούν οι στόχοι της παρούσας έρευνας και η μεθοδολογία που ακολουθήθηκε, οι διάφορες προκλήσεις που συναντήσαμε κατά την ανάπτυξη των μοντέλων μας και οι μέθοδοι που αναπτύξαμε για να τις υπερβούμε.

#### 3.2 Μοντέλα συγκεντρωμένης κινητικής (lumped kinetics)

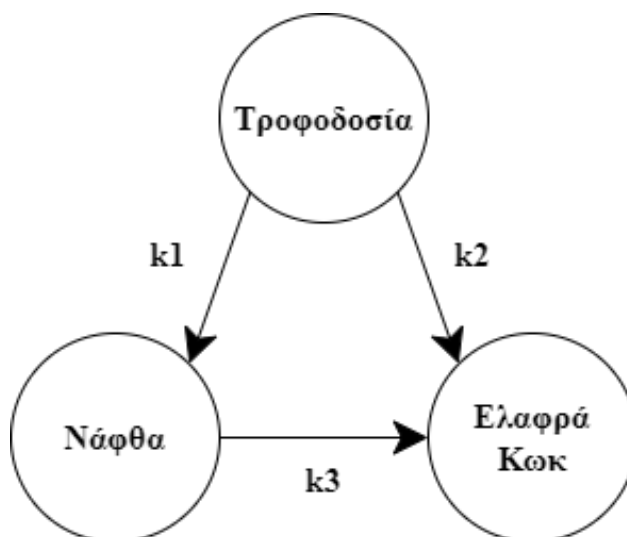
Η μοντελοποίηση μιας μονάδας FCC στο σύνολό της αλλά και τμηματικά είναι ένα εξαιρετικά δύσκολο εγχείρημα. Μια τυπική τροφοδοσία καταλυτικής πυρόλυσης περιέχει χιλιάδες οργανικές ενώσεις, οι οποίες συμμετέχουν σε ισάριθμες, ταχύτατες αντιδράσεις πυρόλυσης στο εσωτερικό του αντιδραστήρα. Στο πρόβλημα της κινητικής προστίθενται άλλα παραπλήσια: η αλληλεπίδραση τριών φάσεων (στερεά, υγρή, αέρια) στο εσωτερικό του ανυψωτή, η ισχυρή αλληλεπίδραση της διάταξης αντίδρασης με τον αναγεννητή και η διαφασική ροή του μίγματος gasoil-καταλύτη<sup>[50]</sup>. Συνολικά, η διεργασία της καταλυτικής πυρόλυσης είναι εξαιρετικά περίπλοκη, λόγω της ύπαρξης εντός αυτής μη γραμμικών και αλληλεξαρτώμενων παραγόντων.

Για να απλοποιηθεί το πρόβλημα της πολυπλοκότητας της κινητικής, συνήθως ακολουθείται η προσέγγιση της συγκεντρωμένης κινητικής (εφεξής «lumped kinetics» ή «LK» ή «μηχανιστικά μοντέλα») για να περιγραφούν οι αντιδράσεις στο εσωτερικό του ανυψωτή. Τα LK μοντέλα απλοποιούν τους υπολογισμούς συγκεντρώνοντας τις ενώσεις της τροφοδοσίας βάσει των κοινών χαρακτηριστικών τους σε υποσύνολα, τα οποία ονομάζονται «συστάδες» ή «lumps».



Εικόνα 3.1: Θεωρητική βάση και *modus operandi* των μοντέλων συγκεντρωμένης κινητικής. Οι ενώσεις της τροφοδοσίας που μοιράζονται κοινά χαρακτηριστικά συγκεντρώνονται σε ψευδοχημικά σώματα, τα οποία θεωρείται ότι υφίστανται διάσπαση με ίδιο μηχανισμό και ρυθμό. Η κατάτμηση που προτείνεται εδώ είναι ενδεικτική και δεν αντιπροσωπεύει απαραίτητα πραγματικό σχήμα κατάτμησης της τροφοδοσίας.

Κατ' αυτόν τον τρόπο, μια τροφοδοσία που περιέχει εκατοντάδες ή χιλιάδες ενώσεις εκφυλίζεται σε ένα χημικό σώμα που αποτελείται από έναν μικρό αριθμό ψευδοσυστατικών, τα οποία θεωρείται ότι διασπώνται σε ισάριθμες αντιδράσεις πυρόλυσης, χαρακτηριζόμενες από ισάριθμες κινητικές σταθερές διάσπασης. Τα προϊόντα της καταλυτικής πυρόλυσης επίσης συγκεντρώνονται σε συστάδες προϊόντων και ενδέχεται να υποστούν με τη σειρά τους μερική πυρόλυση προς ελαφρύτερα τελικά προϊόντα. Το πρώτο LK μοντέλο προτάθηκε από τους Weekman, Nace (1970)<sup>[51]</sup> και θεωρούσε τρία lumps: τροφοδοσία, νάφθα, ελαφρά αέρια και κοκ (θεωρούμενα ως ενιαίο σώμα):



Εικόνα 3.2: Μοντέλο τριών lumps των Weekman, Nace (1970). Απεικονίζεται η κατεύθυνση των αντιδράσεων πυρόλυσης και οι κινητικές σταθερές. Η τροφοδοσία θεωρείται ενιαίο σώμα.

Στα μοντέλα lumped kinetics, τυπικά θεωρείται κινητική δευτέρας τάξεως για τη διάσπαση της τροφοδοσίας και πρώτης τάξεως για τη δευτερεύουσα διάσπαση των προϊόντων<sup>[52]</sup> Θεωρώντας μόνιμη κατάσταση και εμβολική ροή στο εσωτερικό του ανυψωτή, προκύπτουν οι εξής ρυθμοί μεταβολής των συγκεντρώσεων των τριών συστατικών:

$$r_{gasoil} = -(k_1 + k_2)C_{go}^2$$

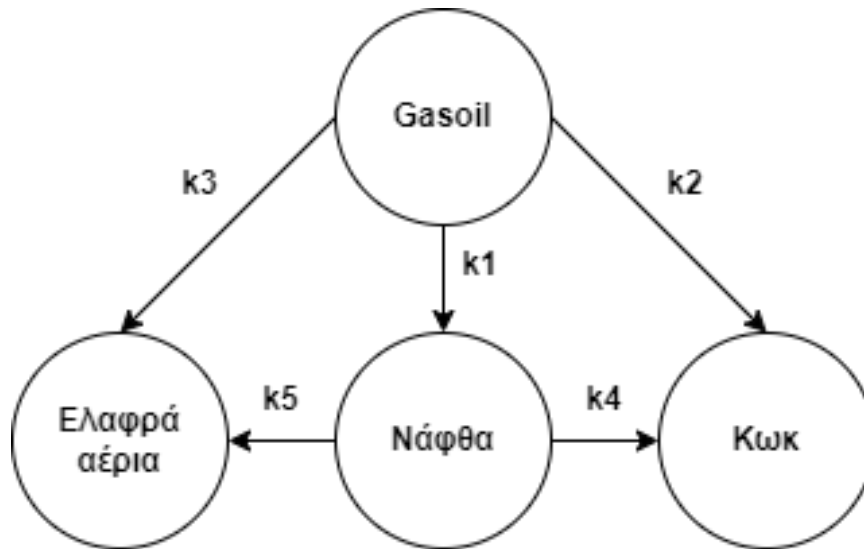
$$r_{naphtha} = k_1C_{go}^2 - k_3C_n$$

$$r_{coke,gas} = k_2C_{go}^2 + k_3C_n$$

Όπου  $C_{go}$ ,  $C_n$  οι συγκεντρώσεις gasoil και νάφθας,  $k_i$  συντελεστές κινητικής αντιδράσεων διάσπασης.

Το κοκ και τα ελαφρά αέρια έχουν διακριτές ιδιότητες και μηχανισμούς σχηματισμού. Οι Lee et. al (1989)<sup>[53]</sup> διαχώρισαν τη συστάδα ελαφρών και κοκ στα επιμέρους συστατικά, δημιουργώντας το πρώτο μοντέλο με τέσσερα lumps. Το μοντέλο αυτό λαμβάνει υπόψη την απώλεια ενεργότητας του καταλύτη όσο προχωρούν οι αντιδράσεις καταλυτικής πυρόλυσης με εισαγωγή του σχετικού όρου φ στις εξισώσεις κινητικής, με την τροφοδοσία να παραμένει ενιαία (Εικόνα 3.3).

Τα μοντέλα τριών και τεσσάρων lumps έχουν έως σήμερα τις περισσότερες αναφορές στην βιβλιογραφία<sup>[54]</sup>. Ωστόσο, πλέον χρησιμοποιούνται περισσότερο ως εύχρηστα base cases πάνω στα οποία προτείνονται βελτιώσεις, παρά ως μοντέλα πρόβλεψης. Αυτό συμβαίνει διότι η θεώρηση ενιαίας τροφοδοσίας δεν ανταποκρίνεται στην πραγματικότητα<sup>[55]</sup>. Τα συστατικά των πραγματικών τροφοδοσιών gasoil διασπώνται με διαφορετικές αναλογίες και διαφορετικούς ρυθμούς στα επιμέρους προϊόντα. Για να επιτευχθεί καλύτερη απεικόνιση της τροφοδοσίας, έχουν προταθεί διάφορα σχήματα κατάτμησης της τροφοδοσίας. Οι Larocca et al. (1990)<sup>[56]</sup> πρότειναν τον διαχωρισμό της τροφοδοσίας σε τρία lumps, που αντιπροσωπεύουν τις κύριες κατηγορίες ενώσεων που ευρίσκονται σε διαφορετικές αναλογίες σε όλες τις τροφοδοσίες καταλυτικής πυρόλυσης (βλ. Πίνακα 1.1): παραφίνες, ολεφίνες, αρωματικά. Παρόμοιες προσεγγίσεις έχουν προταθεί και για το lump της βενζίνης, ώστε να μπορούν να πραγματοποιηθούν προβλέψεις για τις ιδιότητες της παραγόμενης βενζίνης ως συνάρτηση της αναλογίας των συστατικών της.



Εικόνα 3.3: Μοντέλο τεσσάρων lumps των Lee et. al (1989).

Η προσέγγιση της συγκέντρωσης βάσει της δομής (Structure oriented lumping ή SOL) προτάθηκε από τους Quann, Jaffe (1992)<sup>[57]</sup> και προτείνει την κατάτμηση της τροφοδοσίας βάσει της παρουσίας συγκεκριμένων στερεοχημικών χαρακτηριστικών στα μόρια της τροφοδοσίας (ταξινόμηση βάσει αριθμού αρωματικών δακτυλίων, αριθμού διπλών δεσμών κ.ο.κ.). Πιο πρόσφατες δημοσιεύσεις αναφέρουν στρατηγικές κατάτμησης της τροφοδοσίας οι οποίες λαμβάνουν υπόψη σχεδόν όλες τις ενώσεις της τροφοδοσίας και όλα τα πιθανά προϊόντα. Οι Chen et al. (2020)<sup>[58]</sup> επιχείρησαν μια λεπτομερή κατάτμηση και ανασύσταση της τροφοδοσίας με χρήση ενός αλγορίθμου ο οποίος «διαβάζει» μια πραγματική ανάλυση ιδιοτήτων της τροφοδοσίας και την ανακατασκευάζει με προσαρμογή ενός μοντέλου 46 παραμέτρων. Μεταξύ άλλων, στη θεώρηση αυτή περιλαμβάνονται τα μήκη αλυσίδων, η παρουσία και ο αριθμός αρωματικών δακτυλίων και η παρουσία ετεροατόμων.

Τα μοντέλα συγκεντρωμένης κινητικής επινοήθηκαν για να προσφέρουν μια υποτυπώδη μηχανιστική περιγραφή της καταλυτικής πυρόλυσης χρησιμοποιώντας τα θεμελιώδη εργαλεία της χημικής μηχανικής. Μαθηματικά, εκφράζονται ως ένα σύστημα συνήθων διαφορικών εξισώσεων, η οποίες επιλύονται με χρήση μιας αριθμητικής μεθόδου. Το πλεονέκτημα τέτοιων δομών είναι ότι προσφέρουν μια υποτυπώδη βάση ανάλυσης της καταλυτικής πυρόλυσης και επιπλέον ότι είναι «ανοικτά» μοντέλα, δηλαδή μπορούν να υποστούν επεξεργασία/βελτίωση με απλή προσαρμογή των παραμέτρων τους. Αυξάνοντας τον αριθμό των χαρακτηριστικών του συστήματος βελτιώνεται και η ακρίβεια της πρόβλεψης, με κόστος την αύξηση της υπολογιστικής δυσκολίας της επίλυσης του συστήματος<sup>[59]</sup>. Η ακρίβεια ενός LK μοντέλου σε κάθε περίπτωση είναι το αποτέλεσμα ενός συμβιβασμού μεταξύ του βάθους της περιγραφής του εξεταζόμενου συστήματος και των απαιτήσεων σε υπολογιστικό χρόνο ώστε το μοντέλο να παράγει αποτελέσματα σε εύλογο χρόνο, δηλαδή να παραμένει χρηστικό.

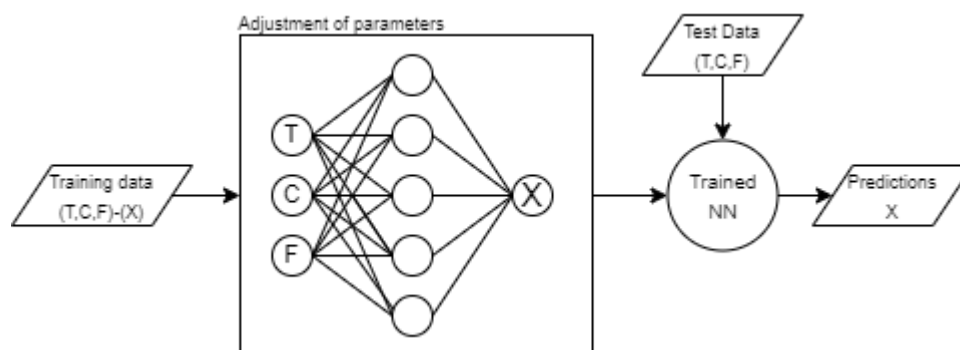
### 3.3 Μοντέλα FCC: Η περίπτωση των νευρωνικών δικτύων

Η γνώση της κινητικής μιας αντίδρασης είναι ενδεχομένως το πιο δυσπρόσιτο κομμάτι σε κάθε έρευνα που αφορά χημικά συστήματα, όποιος και αν είναι ο τελικός σκοπός της μελέτης (σχεδιασμός, ανάλυση, ρύθμιση, αριστοποίηση). Η γνώση της κινητικής είναι απαραίτητη όχι μόνον στη διαστασιολόγηση αντιδραστήρων, αλλά και στον καθορισμό της γεωμετρίας τους και του χρόνου παραμονής της τροφοδοσίας με παράμετρο τις λειτουργικές συνθήκες της μονάδας. Αμέσως προκύπτει μια δυσκολία: Ένα σύστημα πολλών, αλληλεξαρτώμενων χημικών αντιδράσεων στο οποίο οι συνιστώσες αντιδράσεις λαμβάνουν χώρα με σημαντικά διαφορετικούς μηχανισμούς και ρυθμούς είναι ελλιπώς προσδιορισμένο από μαθηματικής/αριθμητικής πλευράς. Ο υπολογιστικός χρόνος για να επιλυθεί αριθμητικά ένα τέτοιο σύστημα αυξάνει εκθετικά με την αύξηση των χαρακτηριστικών που περιέχει. Αυτό ακριβώς το πρόβλημα αντιμετωπίζουν οι αναπαραστάσεις της καταλυτικής πυρόλυσης που βασίζονται στα μηχανιστικά μοντέλα.

Τα νευρωνικά δίκτυα και η μηχανική μάθηση γενικότερα προσφέρουν δυνατότητες επίλυσης αυτών των προβλημάτων. Ως εργαλεία μοντελοποίησης ακολουθούν διαφορετική προσέγγιση από τα κλασικά μοντέλα: Στα κλασικά μοντέλα κινητικής, οι μηχανισμοί/δρόμοι αντίδρασης εικάζονται από την αρχή και οι παράμετροι τροποποιούνται στη συνέχεια. Αντιθέτως, τα μοντέλα μηχανικής μάθησης (εφεξής «μοντέλα ML» ή «μοντέλα δεδομένων» ή «μοντέλα ωθούμενα από τα δεδομένα»), *δεν επιχειρούν να απεικονίσουν αναλυτικά τη διεργασία, αλλά την παρουσιάζουν με την μορφή απλών αποκρίσεων εισόδου-εξόδου. Ο τελικός στόχος δεν είναι η διαμόρφωση εξισώσεων, αλλά η παραγωγή αποκρίσεων κοντινότερων στις πραγματικές εξόδους της μονάδας, μέσω μιας διαδικασίας που στηρίζεται στην εκπαίδευση του εσωτερικού μηχανισμού του μοντέλου από πραγματικά δεδομένα λειτουργίας που προέρχονται από την πραγματική διάταξη. Αυτή η προσέγγιση ανοίγει διόδους βελτίωσης: Εστιάζοντας στα πραγματικά δεδομένα και μόνον, τα δίκτυα μπορούν να παράγουν γενικότερα μοντέλα, που δεν περιορίζονται από την μορφή των εξισώσεων που τα θεμελιώνουν. Ένα καλά κατασκευασμένο νευρωνικό δίκτυο που εκπαιδεύεται σε συγκεκριμένα δεδομένα ενδέχεται να αναγνωρίσει νέες διόδους αντιδράσεων (reaction pathways), ή σχέσεις εξάρτησης μεταξύ μεταβλητών που δεν είχαν συμπεριληφθεί στην αρχική θεώρηση του συστήματος.*

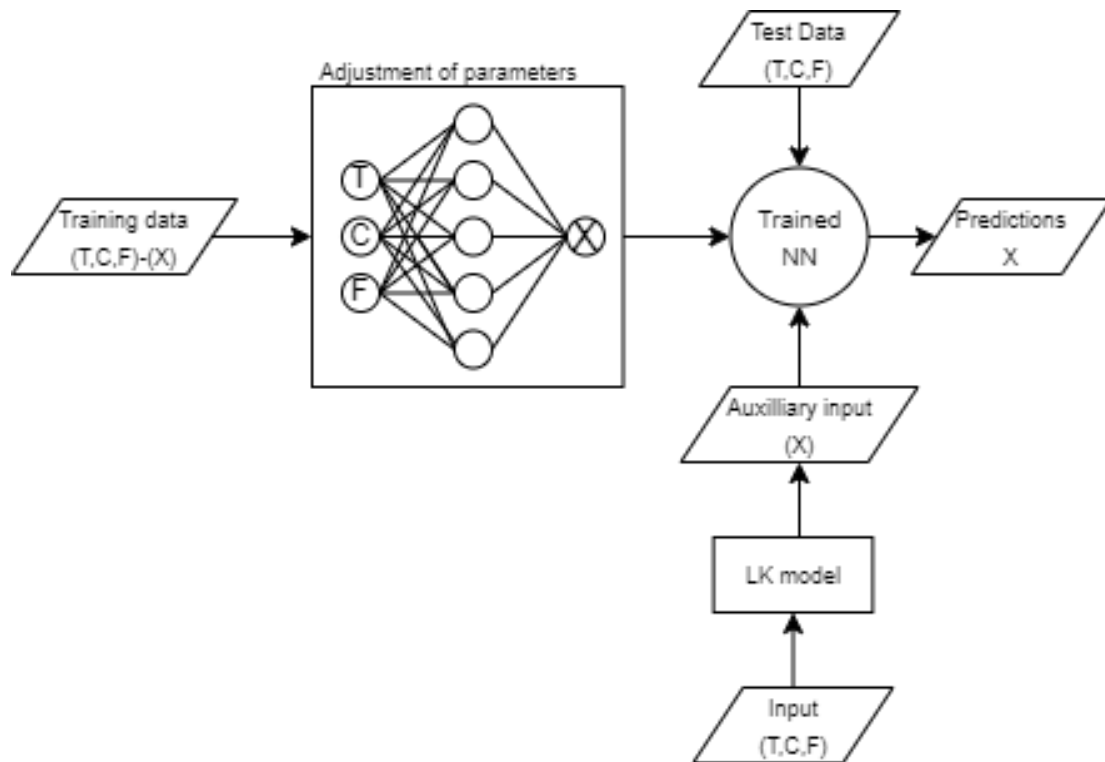
Ο αριθμός των αναφορών στα νευρωνικά δίκτυα και στις μεθόδους μηχανικής μάθησης είναι σημαντικά μικρότερος στην σχετική βιβλιογραφία σε σχέση με τα μηχανιστικά μοντέλα. Ωστόσο, τα μοντέλα που έχουν προταθεί σημειώνουν υψηλούς βαθμούς ακρίβειας, με πολύ μικρό υπολογιστικό κόστος. Σε μία από τις πρώτες εφαρμογές των νευρωνικών μοντέλων για τη μοντελοποίηση της καταλυτικής πυρόλυσης, Michalopoulos et. Al (2001)<sup>[60]</sup>, αναφέρονται εξαιρετικά ακριβείς προβλέψεις, καλύτερες από αυτές που προσφέρουν στατιστικά ή μηχανιστικά μοντέλα και μάλιστα σε νευρωνικό δίκτυο μόνον ενός στρώματος. Αν και πολλές παράμετροι που χρησιμοποιήθηκαν σε αυτή τη μελέτη πλέον έχουν αντικατασταθεί από άλλες λιγότερο απαιτητικές σε υπολογιστικό χρόνο (π.χ. χρήση ReLU αντί σιγμοειδούς συνάρτησης

ενεργοποίησης), η πρώτη αυτή απόπειρα εφαρμογής των νευρωνικών δικτύων αποδεικνύει την ισχύ των δομών αυτών στην πρόβλεψη.



Εικόνα 3.4: Απλουστευμένη δομή νευρωνικού δικτύου που χρησιμοποιείται στην προσομοίωση καταλυτικής πυρόλυσης, όμοιο με αυτό των Michalopoulos et al. Το δίκτυο τροφοδοτείται με ζεύγη δεδομένων εκπαίδευσης και ακολουθεί διαδικασία εκπαίδευσης μέσω *backpropagation*. Το εκπαιδευμένο πλέον δίκτυο μπορεί να πραγματοποιεί προβλέψεις διαβάζοντας μόνον δεδομένα εισόδου (T: δεδομένα θερμοκρασιών, C: δεδομένα καταλύτη, F: δεδομένα τροφοδοσίας, X: μετατροπή τροφοδοσίας).

Σε πιο πρόσφατες μελέτες, τα νευρωνικά δίκτυα και οι συναφείς δομές μηχανικής μάθησης είτε αξιολογούνται καθαυτά<sup>[61]</sup> είτε σε σύγκριση με δομές που εμπεριέχουν κάποια μορφή υβριδισμού<sup>[62],[63]</sup>. Τυπικά, αυτή εμφανίζεται με τη μορφή κάποιου LK μοντέλου, η πρόβλεψη του οποίου ενσωματώνεται στο νευρωνικό δίκτυο ως εφεδρική είσοδος. Το νευρωνικό δίκτυο παραμένει το εκτελεστικό κομμάτι όσον αφορά την πρόβλεψη. Η υπόθεση είναι ότι η σύζευξη με το LK μοντέλο ωθεί το νευρωνικό δίκτυο σε καλύτερες προβλέψεις, διότι κατευθύνει την πρόβλεψη βάσει εξισώσεων που έχουν φυσική σημασία (Εικόνα 3.5). Σε άλλες περιπτώσεις, τα νευρωνικά δίκτυα χρησιμοποιούνται ως υποστηρικτικό εργαλείο για τον προσδιορισμό των συντελεστών σύνθετων μηχανιστικών μοντέλων ή για τη διαχείριση μεγάλων όγκων δεδομένων γενικότερα<sup>[64]</sup>.



Εικόνα 3.5: Παράδειγμα υβριδισμένου μοντέλου καταλυτικής πυρόλυσης. Ένα LK μοντέλο δέχεται δεδομένα εισόδου και παράγει προβλέψεις, οι οποίες χρησιμοποιούνται ως βοηθητική είσοδος για το εκπαιδευμένο νευρωνικό δίκτυο σε κάποιο ενδιάμεσο στρώμα. Η υπόθεση είναι ότι οι προβλέψεις του LK μοντέλου δίνουν μια ένδειξη στο NN για την πραγματική τιμή του  $X$ .

Τα μοντέλα μηχανικής μάθησης δεν βασίζονται στις εξισώσεις κλασικής κινητικής για να παράγουν προβλέψεις και ως εκ τούτου, η εσωτερική τους δομή δεν έχει φυσικοχημικό νόημα. Στην ουσία, είναι «μαύρα κουτιά» (βλ. black-box models), που δίνουν τυφλές απαντήσεις, εξ' ολοκλήρου εξαρτώμενες από τα δεδομένα εκπαίδευσης και τα δεδομένα ελέγχου. Ωστόσο, μπορούν να παράγουν καλά αποτελέσματα διότι οι πολυπαραμετρικές εσωτερικές τους δομές μπορούν εύκολα να προσαρμοστούν σε πραγματικά δεδομένα λειτουργίας, βελτιώνοντας δραματικά την ακρίβειά τους μετά από επαρκή αριθμό διαδικασιών εκπαίδευσης. Επιπλέον, εξαιρώντας τον χρόνο που απαιτείται για την εκπαίδευσή τους, μπορούν να παράγουν προβλέψεις πολύ πιο γρήγορα από τα μηχανιστικά μοντέλα<sup>[65]</sup>. Τα μειονεκτήματα των δομών αυτών είναι ότι αφενός δεν προσφέρουν γνώση του μηχανισμού της διεργασίας λόγω της τυφλής φύσης τους και αφετέρου ότι συχνά δίνουν πολύ μεγαλύτερα σφάλματα όταν καλούνται να πραγματοποιήσουν προβλέψεις πάνω σε δεδομένα εισόδου στα οποία δεν εκτέθηκαν κατά τη διάρκεια εκπαίδευσης. Το δεύτερο μπορεί να επιλυθεί ως κάποιον βαθμό με καλύτερη διαλογή δεδομένων και αριστοποίηση της διαδικασίας εκπαίδευσης, αλλά παραμένει μια παράμετρος που συχνά αγνοείται<sup>[66]</sup>.

### 3.4 Στοχοθεσία της διπλωματικής εργασίας

Στις προηγούμενες παραγράφους αναλύθηκαν εν συντομία τα πλεονεκτήματα και μειονεκτήματα των δύο κυρίαρχων μεθόδων μοντελοποίησης της καταλυτικής πυρόλυσης. Για τα μηχανιστικά μοντέλα, αναφέρθηκε ότι η μεγαλύτερή τους συνεισφορά είναι ότι προσφέρουν ένα υποτυπώδες μαθηματικό πλαίσιο ώστε ο μηχανισμός της καταλυτικής πυρόλυσης να καταστεί φυσικοχημικά κατανοητός. Ωστόσο, πολλά από αυτά τα μοντέλα είναι υπεραπλουστευτικά, και δεν καταφέρνουν να αποτυπώσουν τη μη γραμμική φύση της διεργασίας. Κατά συνέπεια, συχνά παράγουν δεδομένα κακής ποιότητας, που δεν αντικατοπτρίζουν την πραγματική λειτουργία της διάταξης. Για τα μοντέλα δεδομένων, αναφέρθηκε ότι εν γένει παράγουν καλύτερες προβλέψεις από τα μηχανιστικά μοντέλα, ενώ έχουν μειωμένες απαιτήσεις σε υπολογιστικό χρόνο για να παραχθούν αποτελέσματα με συγκρίσιμη ακρίβεια. Ωστόσο, δεν διευρύνουν την υφιστάμενη γνώση του χρήστη για τη διεργασία και συχνά αστοχούν όταν εκτελούν προβλέψεις για δεδομένα τα οποία δεν έχουν «δει» στη διαδικασία εκπαίδευσης.

Ο πρώτος στόχος της παρούσας ΔΕ είναι να αναπτυχθούν μοντέλα για την καταλυτική πυρόλυση τα οποία θα συνδυάζουν τα καλύτερα στοιχεία από τις δύο προσεγγίσεις (μηχανιστικά μοντέλα και μοντέλα ωθούμενα από τα δεδομένα). Θα επιχειρηθεί να συνδυαστεί η υφιστάμενη γνώση μαζί με μια νέα προσέγγιση υβριδισμού των μοντέλων, η οποία ονομάζεται *ενσωμάτωση δεδομένων ή data embedding*. Ως «ενσωμάτωση» δεδομένων ορίζουμε κάθε μέθοδο ή απόπειρα εμβόλιμης χρήσης λειτουργικών δεδομένων από μια πραγματική μονάδα, με στόχο τη βελτίωση μοντέλων που περιγράφουν τη λειτουργία της. Τα λειτουργικά δεδομένα μπορούν να επιδρούν με διάφορους τρόπους σε μοντέλα που έχουν αναπτυχθεί για να περιγράψουν πολυσύνθετες διεργασίες, όπως η καταλυτική πυρόλυση. Μπορούν να ενταχθούν στην έξοδο του μοντέλου, ως επιπρόσθετο κριτήριο ελέγχου της ακρίβειας των προβλέψεων, σε ενδιάμεσο στρώμα, ως εφεδρική είσοδος, ή στην αρχή, συμπληρωματικά των δεδομένων εκπαίδευσης του μοντέλου.

Στα πλαίσια της παρούσας έρευνας εξετάστηκε η τρίτη περίπτωση. Συγκεκριμένα συνδυάστηκαν δεδομένα που προκύπτουν από επαναληπτική λειτουργία ενός μηχανιστικού μοντέλου υψηλής ευκρίνειας με τα λειτουργικά δεδομένα της πραγματικής διεργασίας προς σχηματισμό ενός υβριδικού υπερσυνόλου δεδομένων, το οποίο εν συνεχεία τροφοδοτήθηκε σε αλγόριθμο μηχανικής μάθησης για να πραγματοποιηθεί διαδικασία εκπαίδευσης. Η υπόθεση είναι ότι η ενσωμάτωση πραγματικών δεδομένων επιδρά στη συνδυαστική δομή μηχανιστικού μοντέλου-μοντέλου μηχανικής μάθησης με δυο τρόπους:

- Βελτιώνει την *ακρίβεια* της πρόβλεψης του μηχανιστικού μοντέλου
- Βελτιώνει την δυνατότητα *γενίκευσης* του νευρωνικού δικτύου, δηλαδή τη δυνατότητα πραγματοποίησης προβλέψεων ικανοποιητικής ακρίβειας σε δεδομένα στα οποία το νευρωνικό δίκτυο δεν έχει εκπαιδευθεί.



Η προοπτική βελτίωσης των μηχανιστικών μοντέλων με χρήση πραγματικών δεδομένων και μεθόδων μηχανικής μάθησης παρουσιάζει μεγάλο ερευνητικό ενδιαφέρον. Συγκεκριμένα, η ενίσχυση του δειγματικού χώρου που εξερευνούν τα μοντέλα δεδομένων με διαλεγμένα δεδομένα που έχουν προκύψει από επαναληπτική χρήση μηχανιστικών μοντέλων μπορούν να βελτιώσουν την απόδοσή τους, χωρίς να υπάρχει απαίτηση για ευρύτερη συλλογή δεδομένων από πραγματικές μονάδες (έργο δύσκολο, που αντιβαίνει στη βέλτιστη λειτουργία μιας μονάδας FCC). Τούτων δοθέντων, μπορεί να τεθεί ένα θεμελιώδες πλαίσιο εργασίας για το παρόν έργο. Τα πειράματα που θα διεξαχθούν θα έχουν ως απώτερο σκοπό:

- Να διερευνηθεί η αξία του data embedding ως μέθοδος βελτίωσης των υφιστάμενων μοντέλων lumped kinetics.
- Να αναπτυχθούν υβριδικά μοντέλα για την διεργασία, τα οποία θα συνδυάζουν στοιχεία από τα μοντέλα LK και τα μοντέλα δεδομένων.

Όσον αφορά τα μοντέλα που θα αναπτυχθούν, θα πρέπει:

- Να εμφανίζουν ακρίβεια προβλέψεων συγκρίσιμη ή ανώτερη της βιβλιογραφίας.
- Να δίνουν αποτελέσματα με φυσική σημασία (να ικανοποιείται η αρχή διατήρησης μάζας).
- Να είναι χρηστικά, δηλαδή να έχουν μικρές απαιτήσεις σε υπολογιστική ισχύ. Συγκεκριμένα, να μπορούν να δίνουν προβλέψεις σε εύλογο χρόνο και να μπορούν να «τρέξουν» σε προσωπικό H/Y.

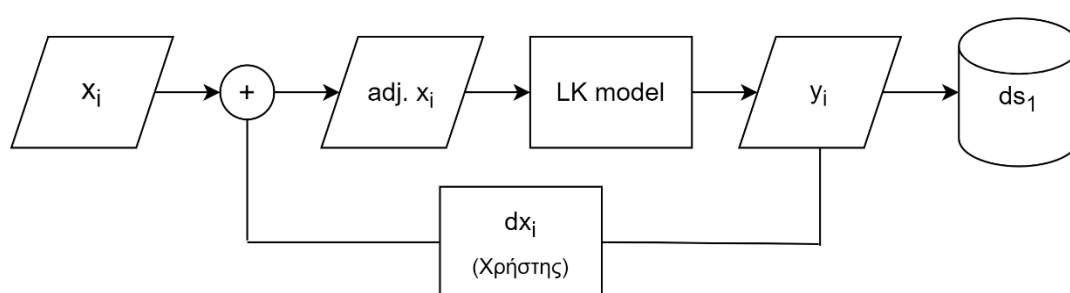
Δεύτερος στόχος της παρούσας ΔΕ είναι να αξιολογηθούν συγκριτικά όλες οι υφιστάμενες φιλοσοφίες μοντελοποίησης της καταλυτικής πυρόλυσης τόσο από τη σκοπιά της επιτυγχανόμενης ακρίβειας των προβλέψεων αλλά και από τη σκοπιά του χρόνου που απαιτείται για την πραγματοποίηση προβλέψεων. Μια τέτοια ανάλυση θα ρίξει φως στον τρόπο με τον οποίο τα εσωτερικά χαρακτηριστικά των μοντέλων επιδρούν στα τελικά αποτελέσματα τους και θα αποσκοπεί στην ανάδειξη βέλτιστων αρχιτεκτονικών για τη μοντελοποίηση της καταλυτικής πυρόλυσης, τουλάχιστον στο βαθμό που επιτρέπει η έκταση και η ποιότητα των δεδομένων μας. Αναλύσεις τέτοιου τύπου, στις οποίες τα χαρακτηριστικά των μοντέλων χρησιμοποιούνται ως ανεξάρτητες μεταβλητές σπανίζουν στη βιβλιογραφία, αλλά μπορούν να αποτελέσουν ένα πρώτο βήμα για την ανίχνευση των κρίσιμων παραμέτρων σχεδιασμού ενός μοντέλου νευρωνικού δικτύου που προσομοιώνει την καταλυτική πυρόλυση.

### 3.5 Μεθοδολογία

Για να υλοποιήσουμε τους στόχους που θέσαμε στην ενότητα 3.4 και ορμώμενοι από τη θεωρητική βάση που προσφέρουν τα μηχανιστικά μοντέλα και τα μοντέλα μηχανικής μάθησης θα αναπτύξουμε υπολογιστικά μοντέλα για την καταλυτική πυρόλυση. Ο πειραματισμός θα εστιάσει τόσο στα εσωτερικά χαρακτηριστικά των μοντέλων, αλλά και ως προς το είδος των δεδομένων που θα χρησιμοποιήσουμε για τη διαμόρφωσή τους. Όπως αναφέρθηκε και στο Κεφάλαιο 2, τα χαρακτηριστικά (ποσότητα-ποιότητα) των δεδομένων που χρησιμοποιούνται για την ανάπτυξη των μοντέλων διαμορφώνουν σε μεγάλο βαθμό την ποιότητα των αποτελεσμάτων τους. Για τον λόγο αυτό, θα γίνει πρώτα αναφορά στα σύνολα δεδομένων που θα χρησιμοποιηθούν, την προέλευσή τους και τη χρήση που θα γίνει σε κάθε υποσύνολο δεδομένων. Επιπλέον, θα αναφερθούν ορισμένες προκλήσεις που ανέκυψαν σε θεωρητικό επίπεδο και τις προτάσεις μας για την υπέρβασή τους.

#### 3.5.1 Διαχείριση ροών δεδομένων

Για τους σκοπούς της παρούσας εργασίας συλλέχθηκαν δεδομένα από δύο διαφορετικές πηγές. Το πρώτο σετ δεδομένων, εφεξής  $ds_1$ , δημιουργήθηκε από το μηδέν για να εγκιβωτίσει δεδομένα τα οποία έχουν προκύψει από επαναληπτική λειτουργία μηχανιστικού μοντέλου καταλυτικής πυρόλυσης. Το σετ αυτό συμπληρώθηκε με χρήση ενός μηχανιστικού μοντέλου, λεπτομέρειες για το οποίο θα παρατεθούν σε επόμενη ενότητα. Ξεκινώντας από μια αρχική είσοδο και μεταβάλλοντας ελαφρώς τις εισόδους του μοντέλου, λαμβάνουμε μια διαφορετική έξοδο, η οποία εντάσσεται στο  $ds_1$  ως διακριτό σημείο δεδομένων (Εικόνα). Κατά τον τρόπο αυτό, με επαρκείς επαναλήψεις, κατασκευάζεται ένα σετ δεδομένων  $ds_1$ . Το σετ αυτό λέμε ότι απαρτίζεται από δεδομένα «διαλογής» ή «curated» δεδομένα, αφού δεν έχουν προκύψει από πραγματική, αλλά εικονική λειτουργία της μονάδας.



Εικόνα 3.6: Διαδικασία πλήρωσης συνόλου δεδομένων  $ds_1$ . Απεικονίζεται η επαναληπτική διαδικασία κατά την οποία ο χρήστης, εξετάζοντας τα αποτελέσματα  $y_i$ , επιβάλλει μεταβολές στα  $x_i$  και κατατάσσει τα αποτελέσματα στο σύνολο  $ds_1$ .

Το δεύτερο σετ δεδομένων, εφεξής  $ds_2$ , περιέχει πραγματικά δεδομένα λειτουργίας μιας μονάδας FCC, από το διυλιστήριο των ΕΛ.ΠΕ. στον Ασπρόπυργο Αττικής για το διάστημα 2020-2022. Τα δεδομένα αυτά συλλέχθηκαν με την μορφή ημερήσιων αναφορών, στις οποίες καταγράφονται οι μέσες τιμές των κυρίων μεταβλητών της

διεργασίας για μια δεδομένη ημέρα λειτουργίας. Από τις αναφορές αυτές, κρατήθηκαν οι τιμές των μεταβλητών που θεωρήθηκαν ως μέρος της ανάλυσής μας εντάχθηκαν στο σύνολο δεδομένων  $ds_2$ . Τα δύο σύνολα που κατασκευάστηκαν χρησιμοποιήθηκαν χωριστά και συνδυαστικά στην εκπαίδευση μοντέλων, ώστε να αξιολογηθεί η επίδραση της χρήσης δεδομένων διαφορετικής προέλευσης στην ακρίβεια της πρόβλεψης και η πιθανή αξία χρήσης της ενσωμάτωσης δεδομένων. Επίσης, η συνδυαστική χρήση των  $ds_1$  και  $ds_2$  έγινε βηματικά, ώστε να αξιολογηθεί η επιτυγχανόμενη βελτίωση σε κάθε βαθμίδα ενσωμάτωσης.

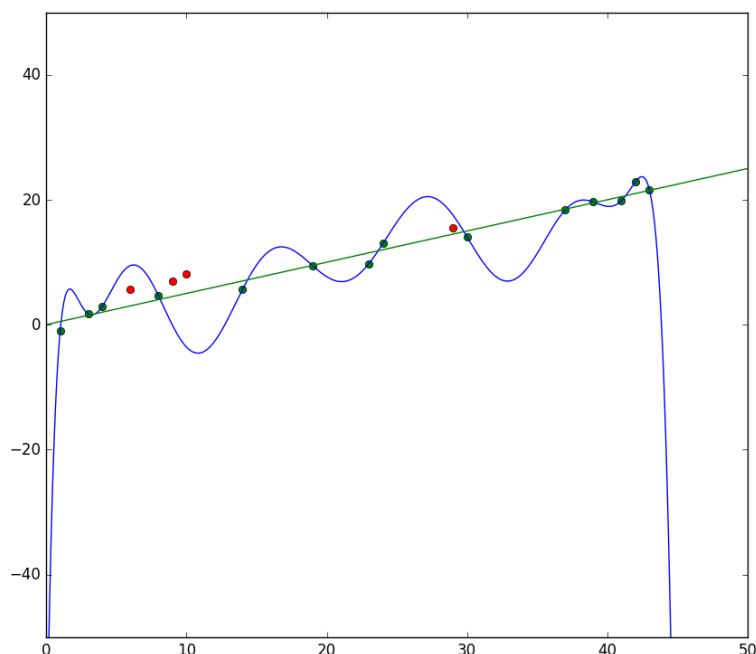
Στην πρώτη φάση σχεδιασμού των δικτύων αναγνωρίστηκαν και καταγράφηκαν ορισμένα προβλήματα των δεδομένων που αναπόφευκτα θα έπρεπε να αντιμετωπιστούν:

- Τα δεδομένα του  $ds_2$  δεν επαρκούν σε αριθμό για να εκπαιδεύσουν αποτελεσματικά ένα μοντέλο μηχανικής μάθησης
- Τα δεδομένα του  $ds_2$  δεν εμφανίζουν μεγάλο βαθμό ποικιλομορφίας ως προς τις καταστάσεις λειτουργίας της μονάδας τις οποίες απεικονίζουν

Όσον αφορά το πρώτο σημείο, συχνά αναφέρεται στην βιβλιογραφία ότι οι απόπειρες μοντελοποίησης της διεργασίας καταλυτικής πυρόλυσης κωλύονται από την περιορισμένη διαθεσιμότητα δεδομένων λειτουργίας από τα διυλιστήρια και την χαμηλή ποιότητα των δεδομένων αυτών. Από τη μία πλευρά, τα δεδομένα λειτουργίας αποτελούν εμπιστευτικές πληροφορίες, τόσο για το διυλιστήριο, όσο και για τον προμηθευτή του καταλύτη. Συνεπώς, η αποδέσμευση μεγάλου τμήματός τους για ερευνητικούς σκοπούς είναι συχνά δύσκολη διαδικασία. Ωστόσο, ακόμα και αν δεν υφίστανται τέτοιοι περιορισμοί, συχνά προκύπτει ότι το διυλιστήριο δεν καταγράφει δεδομένα με την επιθυμητή συχνότητα, ή ότι αυτά τα δεδομένα δεν καταγράφονται τακτικά, πλήρως και με κατάλληλες ετικέτες. Αυτό μπορεί να εμποδίσει μία απόπειρα προσομοίωσης μέσω νευρωνικών δικτύων, η οποία μπορεί να χρειάζεται για παράδειγμα 10000 γραμμές δεδομένων, χωρίς ελλείψεις και καταχωρημένα με τακτικό τρόπο.

Στην περίπτωση της καταλυτικής πυρόλυσης, όπως και σε άλλες χημικές διεργασίες υψηλής οικονομικής σημασίας, το πρόβλημα ευρίσκεται κυρίως στην ποιότητα, παρά στην ποσότητα των δεδομένων. Ας αναλογιστούμε την καθημερινή λειτουργία μιας μονάδας FCC. Τα συστήματα ρύθμισης αναλαμβάνουν την λεπτό-προς-λεπτό σταθεροποίηση των outputs της μονάδας με έλεγχο των ροών τροφοδοσίας, καταλύτη και αέρα καύσης. Ο μηχανικός αξιολογεί τα αποτελέσματα της μέρας, τα οποία αφορούν το ποσοστό μετατροπής σε προϊόντα και τις συστάσεις και ιδιότητες των προϊόντων αυτών. Αξιολογώντας τα αποτελέσματα πολλών ημερών σε σειρά, είναι σε θέση να διακρίνει μακροχρόνιες τάσεις της μονάδας και να προχωρήσει σε ενέργειες αποκατάστασης ή αριστοποίησης. Οι ενέργειες αποκατάστασης αποσκοπούν σχεδόν πάντα στο να λειτουργεί η μονάδα εντός στενού εύρους θερμοκρασιών, πιέσεων και ροής καταλύτη το οποίο εξασφαλίζει μέγιστη μετατροπή προς βενζίνη, ή οποία είναι το προϊόν με την μεγαλύτερη οικονομική αξία για το διυλιστήριο.

Το αθροιστικό αποτέλεσμα όλων αυτών των ενεργειών είναι η μακροχρόνια λειτουργία της μονάδας σε πρακτικά σταθερές συνθήκες, δίχως μεταβολή των λειτουργικών μεταβλητών της. Κατά συνέπεια, τα δεδομένα λειτουργίας που προκύπτουν, όσο πολυπληθή και να είναι, είναι αναπόφευκτα περιορισμένα σε μία πολύ στενή περιοχή λειτουργίας της μονάδας. Αυτό σημαίνει ότι και να κατασκευαστεί ένα μοντέλο της μονάδας αξιοποιώντας τα δεδομένα, αναπόφευκτα θα είναι αποτελεσματικό μόνον σε ένα πολύ περιορισμένο διάστημα λειτουργικών συνθηκών, το οποίο ταυτίζεται με το διάστημα των δεδομένων με τα οποία εκπαιδεύτηκε. Ένα τόσο περιορισμένο μοντέλο δεν έχει αξία για τον μηχανικό. Ειδικότερα στην περίπτωση των data-driven μοντέλων, τα οποία όπως είπαμε μπορούν να δώσουν εξαιρετικά ακριβείς προβλέψεις αν εκπαιδευθούν με ικανό όγκο δεδομένων, ελλοχεύει ο κίνδυνος υπερπροσαρμογής (overfitting) του μοντέλου στα πραγματικά δεδομένα.



Εικόνα 3.7: Παράδειγμα υπερπροσαρμογής μοντέλου στα δεδομένα, σε ανάλυση παλινδρόμησης

Για να εκπαιδευτεί ένα νευρωνικό δίκτυο, τα δεδομένα εκπαίδευσης πρέπει να έχουν (α) μεγάλο πληθυσμό και (β) ποικιλία. Αν τα στοιχεία αυτά απουσιάζουν από το σετ δεδομένων, το δίκτυο κατά τη διαδικασία της εκπαίδευσης «σαρώνει» διαρκώς τα ίδια λίγα σημεία δεδομένων και είναι σχεδόν σίγουρο ότι οι παράμετροι του δικτύου θα υπερπροσαρμοστούν σε αυτά με υψηλά biases. Τέτοια δεδομένα δεν θα παράξουν ένα εύχρηστο μοντέλο. Για να αναπτύξουμε το μοντέλο μας, καταφύγαμε σε τεχνικές ενίσχυσης των δεδομένων (data augmentation), οι οποίες κατέστησαν τα  $ds_1$  και  $ds_2$  καταλληλότερα ως δεδομένα εκπαίδευσης.

### 3.5.2 Ενίσχυση δεδομένων μέσω βαθμονόμησης του μηχανιστικού μοντέλου

Για να επιλυθεί το πρόβλημα της επαναληψιμότητας των δεδομένων, χρησιμοποιήθηκαν τα συμπληρωματικά εικονικά δεδομένα προσομοίωσης του σετ ds1 για να εκπαιδευτεί το δίκτυο (βλ. 3.5.1). Δηλαδή, να χρησιμοποιήθηκε μία προϋπάρχουσα μηχανιστική προσομοίωση μιας μονάδας FCC ώστε να δημιουργηθεί με πολλές επαναλήψεις ένα σετ εικονικών δεδομένων, το οποίο θα έχει καταλληλότερα χαρακτηριστικά για να χρησιμοποιηθεί ως σύνολο δεδομένων εκπαίδευσης και εξακρίβωσης απ' ότι ένα σύνολο πραγματικών δεδομένων λειτουργίας. Η χρήση εικονικών δεδομένων στην ανάπτυξη νευρωνικών δικτύων είναι συνήθης πρακτική, κυρίως όταν επιχειρείται μια πρόχειρη εκτίμηση των ικανοτήτων ενός νευρωνικού δικτύου. Ωστόσο, στην βιβλιογραφία δεν αναφέρεται κάποια απόπειρα χρήσης της στην περίπτωση προσομοίωσης διεργασιών καταλυτικής πυρόλυσης ή διεργασίας διωλιστηρίου γενικότερα. Η χρήση εικονικών έναντι πραγματικών δεδομένων έχει δύο προφανή πλεονεκτήματα:

- Τα εικονικά δεδομένα μπορούν να παραχθούν σε οποιαδήποτε ποσότητα απαιτείται.
- Τα εικονικά δεδομένα μπορούν να απεικονίζουν οποιαδήποτε επιθυμητή περιοχή λειτουργίας της μονάδας, μη περιοριζόμενα από τη λειτουργική περιχαράκωση που επιβάλλουν τα οικονομικά του διωλιστηρίου.

Η χρήση εικονικών δεδομένων ενέχει φυσικά τον κίνδυνο απώλειας ακρίβειας. Γενικώς, είναι αδύνατον να εξακριβωθεί η εγκυρότητα των εικονικών δεδομένων σε μια περιοχή λειτουργίας αν δεν είναι διαθέσιμα και πραγματικά στοιχεία για την περιοχή αυτή (εξαλείφοντας την ανάγκη για χρήση εικονικών δεδομένων). Ακόμα και ένα ακριβές μοντέλο είναι ακριβές για το εύρος δεδομένων στο οποίο έχει προσαρμοστεί. Για να αντιμετωπιστεί το πρόβλημα της εξακρίβωσης θα εφαρμοστεί η εξής τακτική:

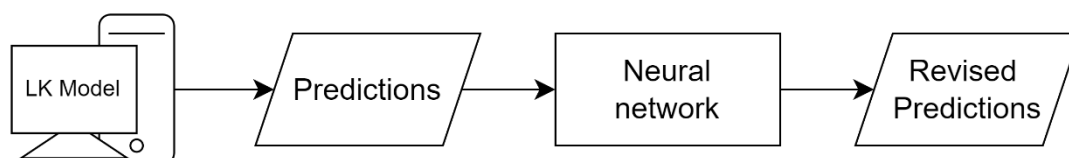
- Τα δεδομένα που θα χρησιμοποιηθούν για την εξακρίβωση θα αντικατοπτρίζουν μια μακροχρόνια μεταβολή των συνθηκών λειτουργίας της μονάδας. Για την παρούσα ΔΕ, επιλέχθηκε μία διαδικασία αλλαγής καταλύτη που έλαβε χώρα στην μονάδα.
- Η προσαρμογή του μοντέλου του HYSYS δεν θα γίνει σε ένα βήμα. Αντιθέτως, θα γίνουν πέντε προσαρμογές σε πέντε διαδοχικές καταστάσεις της μονάδας, κατασκευάζοντας πέντε διαφορετικές εκδόσεις του μοντέλου. Κάθε μία θα έχει προσαρμοστεί σε καταστάσεις λειτουργίας πλησίον του επιπέδου του νέου καταλύτη που βρίσκεται στην μονάδα ανά πάσα στιγμή (20%,40%,60%,80%,100%).

### 3.5.3 Εφαρμογή ενσωμάτωσης δεδομένων

Όπως αναφέρθηκε προηγουμένως, η κύρια μέριμνα της παρούσας ΔΕ είναι να εξεταστεί η βιωσιμότητα του data embedding ως μέσο βελτίωσης των υφιστάμενων δομών ενός μοντέλου που βασίζεται στα lumped kinetics. Σκοπός δεν είναι η δημιουργία νέων μαθηματικών σχέσεων μεταξύ εισόδων και εξόδων, αλλά η ενσωμάτωση των δεδομένων στα υφιστάμενα μοντέλα με απευθείας επίδραση στους συντελεστές τους, ώστε οι ίδιες είσοδοι να δίνουν καλύτερες εξόδους. Προς εκπλήρωση αυτού του σκοπού, αυτονόητο είναι ότι απαιτούνται:

- Η ανάπτυξη ενός μοντέλου lumped kinetics
- Η ανάπτυξη μιας μεθόδου ενσωμάτωσης των δεδομένων στο μοντέλο

Στην παρούσα μελέτη, ως LK μοντέλο χρησιμοποιήθηκε λογισμικό προσομοίωσης διεργασιών του εμπορίου, το οποίο τροποποιήθηκε/βαθμονομήθηκε ώστε να ανταποκρίνεται στην πραγματική λειτουργία της μονάδας FCC στο διυλιστήριο του Ασπρόπυργου. Η χρήση έτοιμου λογισμικού έναντι της από την αρχή δημιουργίας μοντέλου επιλέχθηκε ως στρατηγική για να εξασφαλιστεί συνδεσιμότητα σε όλα τα κομμάτια της αλυσίδας ανάπτυξης του τελικού μοντέλου. Η πρώτη πρόκληση εμφανίζεται στο κομμάτι της ανάπτυξης μιας μεθόδου η οποία θα ενσωματώνει τα δεδομένα από την πραγματική λειτουργία της μονάδας στην προσομοίωση. Η αρχιτεκτονική του έτοιμου μοντέλου είναι κλειστή και συνεπώς, ο χρήστης δεν μπορεί να τροποποιήσει τον εσωτερικό μηχανισμό του. Για να παρακαμφθεί αυτό το εμπόδιο και να παραχθούν παράλληλα δεδομένα σχετικά με την ικανότητα της ενσωμάτωσης δεδομένων να βελτιώσει τις προβλέψεις ενός μηχανιστικού μοντέλου, το μηχανιστικό μοντέλο συνδέθηκε σε σειρά με ένα νευρωνικό δίκτυο (Εικόνα 3.8):



Εικόνα 3.8: Τελική δομή συνδυαστικού μοντέλου. Τα αποτελέσματα της πρόβλεψης του μηχανιστικού μοντέλου χρησιμοποιούνται ως δεδομένα εκπαίδευσης του νευρωνικού δικτύου.

Το νευρωνικό δίκτυο λειτουργεί ως το «ανοικτό» κομμάτι της συνολικής διάταξης, δηλαδή το κομμάτι αυτό το οποίο θα μπορεί να υφίσταται επεξεργασία/ενσωμάτωση δεδομένων και το οποίο δίνει αποτελέσματα που μπορούν να καταγραφούν και να υποστούν περαιτέρω επεξεργασία. Με την ενσωμάτωση δεδομένων δημιουργούνται ουσιαστικά υβριδισμένα σετ δεδομένων εκπαίδευσης, τα οποία ανατροφοδοτούνται στο νευρωνικό δίκτυο και μετράται η βελτίωση της πρόβλεψης. Ως ανεξάρτητη μεταβλητή χρησιμοποιείται το ποσοστό πραγματικών δεδομένων στο υβριδισμένο σετ δεδομένων και ως εξαρτημένη η απόκριση του συστήματος (μετρημένη με έναν KPI, βλ. 4.6) στην μεταβολή του ποσοστού αυτού. Η διαδικασία της ενσωμάτωσης αποτελείται από τα εξής βήματα:

- Αρχικά αναπτύσσεται ένα μηχανιστικό μοντέλο, το οποίο δέχεται ως δεδομένα εισόδου τις λειτουργικές συνθήκες της μονάδας και δίνει ως εξόδους τη σύσταση του ρεύματος εξόδου
- Το μοντέλο ρυθμίζεται (calibration) ώστε να προσομοιάζει κατά το δυνατόν την πραγματική έξοδο της μονάδας σε δεδομένες εισόδους
- Παράγονται δεδομένα εκπαίδευσης τα οποία τροφοδοτούνται στο νευρωνικό δίκτυο (εφεξής «διαλεγμένα» ή «curated» δεδομένα) για να ξεκινήσει η διαδικασία εκπαίδευσης του δικτύου.
- Το δίκτυο παράγει τις τελικές, αναθεωρημένες εξόδους της διάταξης, δηλαδή την κατανομή των προϊόντων στην έξοδο του αντιδραστήρα.
- Στην διαδικασία εκπαίδευσης του νευρωνικού δικτύου σταδιακά εισάγονται συστάδες πραγματικών δεδομένων λειτουργίας από τη μονάδα FCC των ΕΛΠΕ στον Ασπρόπυργο, προς σχηματισμό ενός υβριδισμένου συνόλου δεδομένων εκπαίδευσης. Το δίκτυο πραγματοποιεί νέες προβλέψεις.
- Οι νέες προβλέψεις καταγράφονται και αξιολογείται η βελτίωση ή όχι της πρόβλεψης σε σχέση: 1. Με την πρόβλεψη του Aspen 2. Με τις προηγούμενες προβλέψεις του μοντέλου.

Η υπόθεση που εξετάζεται είναι ότι τα πραγματικά δεδομένα διευρύνουν τον σχετικά γραμμικό χώρο των δεδομένων της προσομοίωσης, δίνοντας μια καλύτερη αναπαράσταση της μη γραμμικής φύσης της καταλυτικής πυρόλυσης. Στην παρούσα ΔΕ θα εξεταστεί η απλοϊκότερη εκδοχή της υπόθεσης αυτής, αφού τα πραγματικά δεδομένα θα επιδράσουν στο νευρωνικό δίκτυο, παρά στην κλειστή δομή της προσομοίωσης. Με την σταδιακή εισαγωγή των δεδομένων δίνεται η δυνατότητα εκτίμησης της ακρίβειας του συνολικού μοντέλου με ποσοτικούς όρους σε κάθε βαθμό ενσωμάτωσης. Σε κάθε περίπτωση, η τελική δομή του μοντέλου θα συνδυάζει τα μηχανιστικά μοντέλα, ως μηχανή παραγωγής δεδομένων εκπαίδευσης, και τα ωθούμενα από τα δεδομένα μοντέλα, ως το εκτελεστικό κομμάτι του μοντέλου. Περιπτώσεις υβριδισμένων μοντέλων καταγράφονται στην βιβλιογραφία, αλλά με ανάστροφη σειρά: δηλαδή μηχανιστικά μοντέλα που επιδρούν σε μοντέλα με βάση τα δεδομένα. Στην παρούσα εργασία θα διερευνηθεί το αντίστροφο, δηλαδή η επίδραση των μοντέλων δεδομένων στις προβλέψεις των μηχανιστικών μοντέλων.

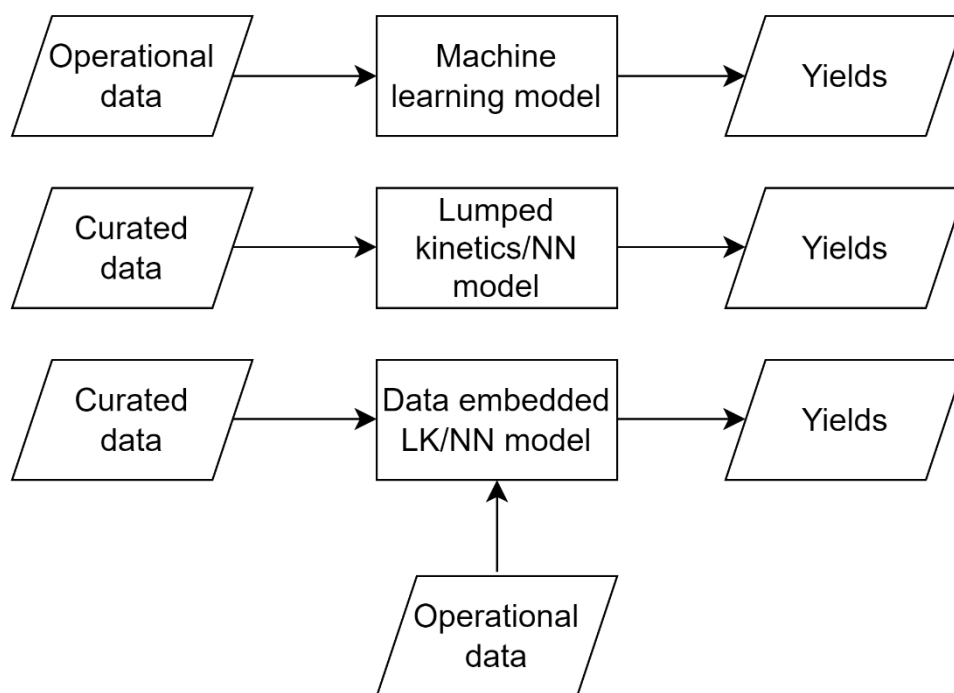
#### **3.5.4 Μοντέλα μηχανικής μάθησης ωθούμενα από τα δεδομένα**

Τέλος, αναπτύχθηκε επίσης ένα γραμμικό μοντέλο μηχανικής μάθησης ωθούμενο αποκλειστικά από τα δεδομένα, το οποίο θα λειτουργεί ως base-case σύγκρισης με το υβριδικό μοντέλο που χρησιμοποιεί την ενσωμάτωση δεδομένων. Το μοντέλο αυτό εκπαιδεύτηκε αποκλειστικά με δεδομένα πραγματικής λειτουργίας και για τους σκοπούς της παρούσας ΔΕ θα θεωρηθεί αντιπροσωπευτικό των μοντέλων δεδομένων, ώστε το υβριδικό μοντέλο που θα κατασκευάσουμε να μπορεί να συγκριθεί με όλες τις κατηγορίες μοντέλων που υπάρχουν. Το μοντέλο αυτό αναπτύχθηκε με χρήση κατάλληλου λογισμικού. Μελετήθηκε επίσης μια περίπτωση χρήσης του μοντέλου νευρωνικού δικτύου μόνον με πραγματικά δεδομένα λειτουργίας (παρακάμπτοντας τη σειρά βημάτων που παρουσιάσαμε στην ενότητα 3.5.3). Η μελέτη αυτή έχει ως

αντικείμενο τη σύγκριση μεθόδων μηχανικής μάθησης με διαφορετικές αφετηρίες και δομές, ως προς την ακρίβεια των προβλέψεων που παράγουν. Γραμμικά μοντέλα απαντώνται συχνά σε «πρακτικές» απόπειρες μοντελοποίησης της καταλυτικής πυρόλυσης οι οποίες διεξάγονται συνήθως σε επίπεδο διυλιστηρίου. Σε αυτές, οι μηχανικοί καταγράφουν τις τιμές εξόδου σε δύο ακραίες τιμές της μελετώμενης ανεξάρτητης μεταβλητής και προσεγγίζουν τις ενδιάμεσες με χρήση γραμμικής παλινδρόμησης.

Συνοψίζοντας, συγκρίθηκαν τρία μοντέλα:

- Ένα συνδυαστικό μοντέλο, το οποίο χρησιμοποιεί αποκλειστικά curated δεδομένα και ένα νευρωνικό δίκτυο συνδεδεμένο σε σειρά.
- Ένα υβριδικό μοντέλο, το οποίο χτίζεται πάνω στην υφιστάμενη δομή του συνδυαστικού μοντέλου, συνδυάζοντας curated δεδομένα από την προσομοίωση και πραγματικά δεδομένα από τη μονάδα καταλυτικής πυρόλυσης.
- Ένα μοντέλο μηχανικής μάθησης, το οποίο χρησιμοποιεί μόνον πραγματικά δεδομένα λειτουργίας.



Εικόνα 3.9: Από πάνω προς τα κάτω: Μοντέλο μηχανικής μάθησης, συνδυαστικό μοντέλο, υβριδικό μοντέλο ενσωμάτωσης δεδομένων.



## 4. Υπολογιστική Διαδικασία

### 4.1 Υπολογιστικά προγράμματα που χρησιμοποιήθηκαν

Για την εκπλήρωση του υπολογιστικού/πειραματικού μέρους της παρούσας ΔΕ, χρησιμοποιήθηκαν τα εξής προγράμματα:

- I. Aspen HYSYS®
- II. Aspen Multi-Case®
- III. Aspen AIMB®
- IV. PyCharm Community Edition και συναφή modules

Όλα τα παραπάνω εκτός του PyCharm αποτελούν πνευματική ιδιοκτησία της Aspen Technology, Inc. Άδεια απομακρυσμένης χρήσης του Aspen HYSYS παρέχεται από το ΕΜΠ σε όλους τους σπουδαστές. Στα πλαίσια της παρούσας ΔΕ και μόνον για τους σκοπούς αυτής, δόθηκε από την Aspen Technology πρόσβαση στα Aspen Multi-Case και Aspen AIMB μέσω άδειας χρήσης ορισμένου χρόνου. Το PyCharm είναι ένα δωρεάν λογισμικό ανάπτυξης προγραμμάτων στην υπολογιστική γλώσσα python, το οποίο υποστηρίζεται από μία τεράστια κοινότητα προγραμματιστών που συνεισφέρουν στην ανάπτυξη βιβλιοθηκών υπολογιστικών εργαλείων (libraries) και πακέτων κώδικα (modules) που χρησιμεύουν στην ανάπτυξη αλγορίθμων προς επίλυση διάφορων προβλημάτων.

### 4.2 Κατασκευή μηχανιστικού υπολογιστικού μοντέλου στο Aspen HYSYS

Το Aspen HYSYS είναι ένα ολοκληρωμένο πρόγραμμα προσομοίωσης φυσικών και χημικών διεργασιών. Μπορεί να χρησιμοποιηθεί για να πραγματοποιηθούν υπολογισμοί που αφορούν ισοζύγια μάζας και ενέργειας, σχεδιασμό αντιδραστήρων, μεταφορά θερμότητας, κινητική χημικών αντιδράσεων κ.α. Προσφέρει επίσης πακέτα που αφορούν περιφερειακούς υπολογισμούς, που σχετίζονται κυρίως με τα κόστη ενέργειας και εξοπλισμού και τον προγραμματισμό λειτουργίας μιας μονάδας. Χρησιμοποιείται ευρέως από εταιρείες που δραστηριοποιούνται στις βιομηχανίες πετρελαίου και πετροχημικών, καθώς διαθέτει μοντέλα ειδικά σχεδιασμένα για να προσομοιώνουν διεργασίες υψηλής σημασίας για τον κλάδο.

Στο Aspen HYSYS κατασκευάστηκε το μηχανιστικό μοντέλο το οποίο χρησιμοποιήθηκε για τη δημιουργία των curated δεδομένων που συνιστούν το σύνολο ds1 και το οποίο θα θεωρηθεί εν γένει αντιπροσωπευτικό των μηχανιστικών μοντέλων που ευρίσκονται στη σχετική βιβλιογραφία. Τα μοντέλα του HYSYS χαρακτηρίζονται από υψηλό βαθμό πολυπλοκότητας και συνδυάζουν διάφορες προσεγγίσεις μοντελοποίησης για να αντιμετωπίσουν την πολυπλοκότητα της διεργασίας. Στα πλαίσια της παρούσας ΔΕ, αξιοποιήθηκαν στο έπακρο οι δυνατότητες του HYSYS ως υποστηρικτικό εργαλείο, ώστε να απλοποιηθεί η διαδικασία ανάπτυξης των νευρωνικών δικτύων και να εξεταστεί η λειτουργία της μονάδας σε συνθήκες που δεν περιλαμβάνονται στα σετ δεδομένων των ΕΛΠΕ. Στις επόμενες ενότητες αναλύεται

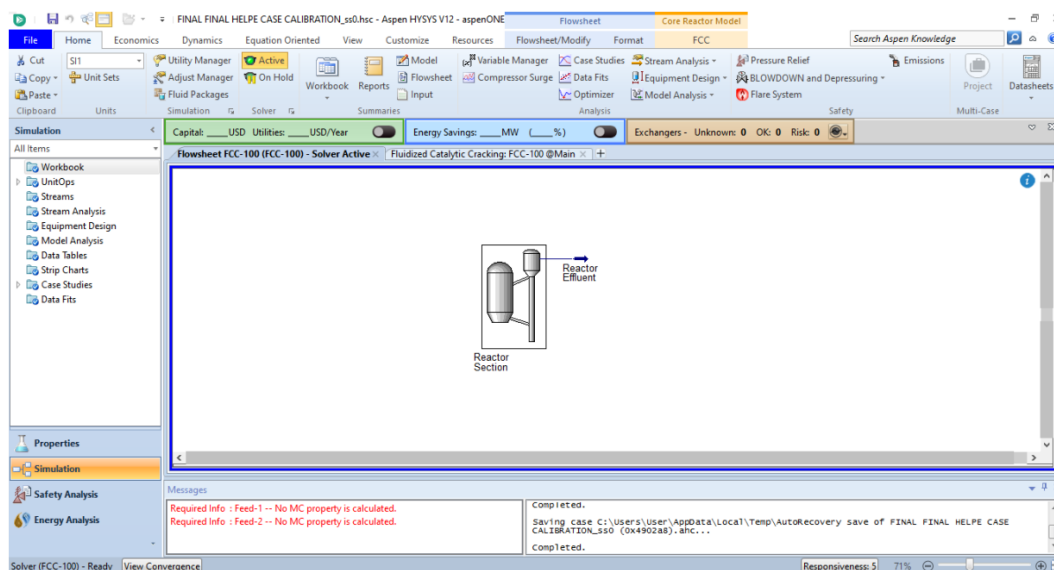
διεξοδικά η πορεία από το HYSYS στα νευρωνικά δίκτυα, οι αναδυόμενες προκλήσεις και οι τρόποι υπέρβασής τους.

#### 4.2.1 Συμπλήρωση δεδομένων εισόδου στο Aspen HYSYS

Το πρώτο βήμα της υπολογιστικής διαδικασίας είναι η διενέργεια μιας απλής ανάλυσης what-if, στην οποία είσοδος είναι στοιχεία της τροφοδοσίας της καταλυτικής πυρόλυσης, παράμετροι λειτουργίας και στοιχεία καταλύτη και έξοδος τα κλάσματα των διάφορων προϊόντων στην έξοδο του αντιδραστήρα. Πριν την είσοδο στο περιβάλλον προσομοίωσης, καθορίζονται στο περιβάλλον ιδιοτήτων:

- I. Οι χημικές ενώσεις και τα χημικά στοιχεία που συμμετέχουν στην διεργασία.
- II. Η καταστατική εξίσωση που χρησιμοποιείται για να προβλέψει τις ιδιότητες των ενώσεων σε διάφορες συνθήκες.

Τα δύο στοιχεία αυτά συνιστούν το υπολογιστικό «πακέτο» ιδιοτήτων ρευστών που χρησιμοποιείται στην προσομοίωση. Στα πλαίσια της συγκεκριμένης ΔΕ, επιλέχθηκε η καταστατική εξίσωση Peng-Robinson. Δεν είναι ξεκάθαρο το πώς η επιλογή της καταστατικής εξίσωσης επηρεάζει τα αποτελέσματα της προσομοίωσης, και δεν θα αποτελέσει αντικείμενο της παρούσας εργασίας.

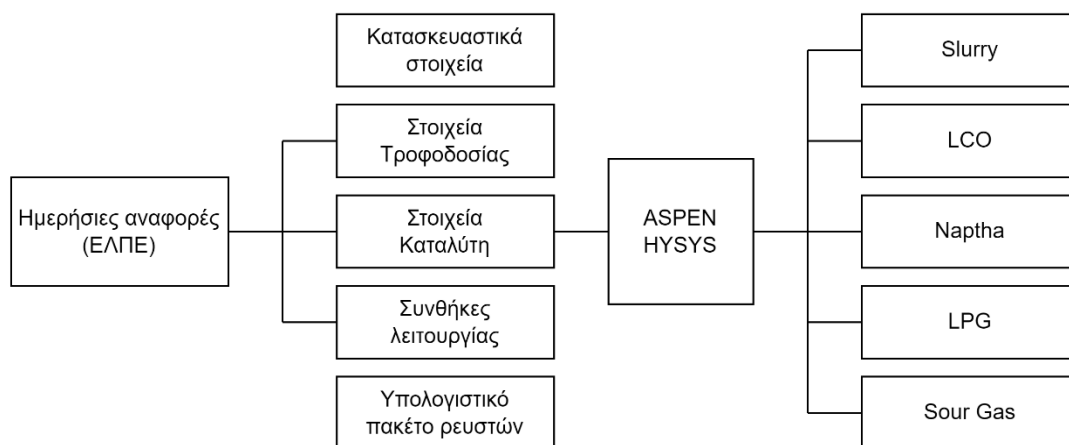


Εικόνα 4.1: Περιβάλλον προσομοίωσης του Aspen HYSYS.

Αφού συμπληρώθηκαν τα στοιχεία στο περιβάλλον ιδιοτήτων, πραγματοποιήθηκε διαμόρφωση του μοντέλου της μονάδας FCC στο περιβάλλον προσομοίωσης (Εικόνα 4.1). Στο περιβάλλον προσομοίωσης καθορίζονται πρώτα από όλα τα κατασκευαστικά στοιχεία της μονάδας FCC. Στο παράθυρο αυτό, συμπληρώνονται τιμές που αφορούν τις διαστάσεις της μονάδας FCC. Συγκεκριμένα, συμπληρώθηκαν τα μήκη και οι εσωτερικές διαμέτρους του ανυψωτή, του απογυμνωτή και του αναγεννητή. Επιπλέον, συμπληρώθηκαν στοιχεία για την θέση και τη διάμετρο εισόδου και εξόδου των κυκλώνων της μονάδας. Τα στοιχεία αυτά χρησιμοποιούνται από το HYSYS για να υπολογιστούν οι χρόνοι παραμονής gasoil και καταλύτη στα αντίστοιχα τμήματα.

Δεδομένα για τις διαστάσεις της μονάδας δόθηκαν από τα ΕΛΠΕ υπό όρους εμπιστευτικότητας και για τον λόγο αυτό δεν θα περιληφθούν σε καμία ενότητα ή παράρτημα της παρούσας διπλωματικής. Αφού συμπληρωθούν οι διαστάσεις της μονάδας, συμπληρώνονται τα στοιχεία εισόδου που απαιτούνται για να πραγματοποιηθούν προβλέψεις για την παραγωγή της μονάδας. Αυτά είναι:

- I. Στοιχεία της τροφοδοσίας gasoil. Για την τροφοδοσία, συμπληρώθηκαν στοιχεία που αφορούν την περιεκτικότητα σε παραφίνες, ολεφίνες και αρωματικά, όπως εκφράζονται από την σχετική πυκνότητα αυτής, καθώς και τα αποτελέσματα του τεστ ASTM D2887. Επιπλέον, συμπληρώθηκαν στοιχεία που αφορούν την παρουσία ετεροατόμων στην τροφοδοσία (άζωτο και βασικό άζωτο, θείο, CCR, μέταλλα).
- II. Στοιχεία καταλύτη. Για τον καταλύτη, συμπληρώθηκε η ροή φρέσκου καταλύτη, η συνολική ποσότητα που βρίσκεται εντός της μονάδας (catalyst inventory), το ποσοστό προσθέτου ZSM-5 που εισέρχεται μαζί με αυτόν στην θέση τροφοδοσίας και στοιχεία από την ανάλυση του καταλύτη ισορροπίας (MAT, μέταλλα)
- III. Στοιχεία λειτουργίας της μονάδας. Συγκεκριμένα, οι θερμοκρασίες του αναγεννητή και του αντιδραστήρα, οι πιέσεις αυτών, η ροή αέρα στον αναγεννητή, οι ροές ατμού απογύμνωσης και ατμού προώθησης και οι συνθήκες του περιβάλλοντος (θερμοκρασία, σχετική υγρασία).



Εικόνα 4.2: Πηγές και κατηγορίες δεδομένων εισόδου του Aspen HYSYS. Στα δεξιά της εικόνας απεικονίζονται οι μεταβλητές εξόδου του μοντέλου, η οποίες είναι τα κλάσματα μάζας των προϊόντων στο ρεύμα εξόδου του αντιδραστήρα.

Όλα τα στοιχεία αυτά καταγράφονται στις ημερήσιες αναφορές των ΕΛΠΕ και από αυτές αντλήθηκαν για να χρησιμοποιηθούν ως είσοδοι του HYSYS. Αφού καθοριστούν όλες οι απαραίτητες ιδιότητες, το HYSYS πραγματοποιεί έλεγχο για να διαπιστωθεί αν ικανοποιούνται τα ισοζύγια μάζας και ενέργειας της μονάδας εντός των ορίων που θέσαμε. Αν ικανοποιούνται, τότε λέμε ότι η ανάλυση συγκλίνει και το πρόγραμμα

παράγει μια πρόβλεψη σχετικά με την κατανομή των προϊόντων στην έξοδο του αντιδραστήρα, καθώς και τις ιδιότητες των προϊόντων αυτών (Εικ. 4.3).

	Volume Flow [m <sup>3</sup> /h]	Mass Flow [kg/h]	Volume [%]	Weight [%]
H <sub>2</sub> S				0,2451
Fuel Gas			3,7035	3,5158
Propane			2,9622	1,6700
Propylene			12,8027	7,4208
nButane			3,4215	2,2203
iButane			7,4202	4,6396
Butenes			12,6737	8,5315
Naphtha C5-430F			61,9830	52,8613
LCO 430-650F			8,6104	8,6805
Bottoms 650F+			4,8377	5,9995
Coke Yield				4,2157
Total			114,7113	100,0000
Conversion			86,5519	85,3200

Εικόνα 4.3: Αποτελέσματα σύγκλισης του μηχανιστικού μοντέλου του Aspen HYSYS, με είσοδο λειτουργικά στοιχεία της μονάδας FCC των ΕΛΠΕ στον Ασπρόπυργο.

#### 4.2.2 Βαθμονόμηση της προσομοίωσης με χρήση δεδομένων διωλιστηρίου

Το Aspen απεικονίζει τις εγγενείς ιδιότητες του καταλύτη με χρήση ενός συνόλου 70 συντελεστών, οι οποίοι συσχετίζουν εξόδους και εισόδους, με σχέσεις της μορφής:

$$\hat{y}_i = f(x_1, x_2, \dots, x_6, k), \quad i = 1, 2, 3, \dots, 6 \quad (4.1)$$

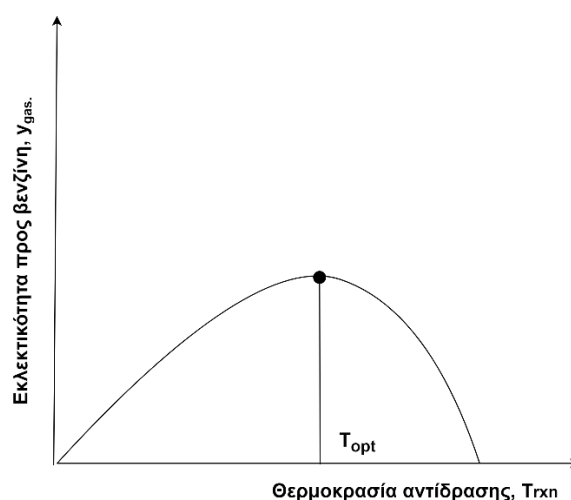
Όπου  $\hat{y}_i$  η έξοδος του συστήματος,  $x_1$ - $x_6$  οι μεταβλητές εισόδου και  $k$  οι συντελεστές του μοντέλου. Λόγω της κλειστής αρχιτεκτονικής του HYSYS, η μορφή των συναρτήσεων είναι κρυφή. Ωστόσο, οι συντελεστές είναι διαθέσιμοι προς επεξεργασία. Είναι φανερό πώς αν μεταβάλλουμε χειροκίνητα τους συντελεστές με γνώμονα τα πραγματικά στοιχεία λειτουργίας μιας μονάδας FCC, για τις ίδιες τιμές εισόδου πετυχαίνουμε καλύτερες προβλέψεις. Κατ' αυτόν τον τρόπο, δίνεται η δυνατότητα να βαθμονομήσουμε (calibrate) το μοντέλο του HYSYS. Το έργο της βαθμονόμησης βοηθά το γεγονός ότι στις περισσότερες περιπτώσεις υπάρχει 1-προς-1 αντιστοιχία μεταξύ εξόδου, συντελεστή και εισόδου:

$$\hat{y}_i = k [f(x)] \quad (4.2)$$

Συνεπώς, μπορούμε εύκολα να ρυθμίσουμε κάθε έξοδο του μοντέλου ξεχωριστά, χωρίς ταυτόχρονα να μεταβάλλουμε τις τιμές των υπολοίπων. Είναι σημαντικό το μοντέλο του HYSYS να βαθμονομηθεί πριν ακολουθήσει η διαδικασία γένεσης των εικονικών δεδομένων προσομοίωσης, ώστε τα δεδομένα που θα προκύψουν να αποτυπώνουν πιστά την πραγματική διεργασία. Αναφέρθηκε επίσης σε προηγούμενη ενότητα πως είναι επιθυμητό τα δεδομένα να απεικονίζουν μεγάλο εύρος καταστάσεων λειτουργίας της μονάδας. Για να εξασφαλιστεί ότι το μοντέλο θα «δει» μεγάλο εύρος καταστάσεων

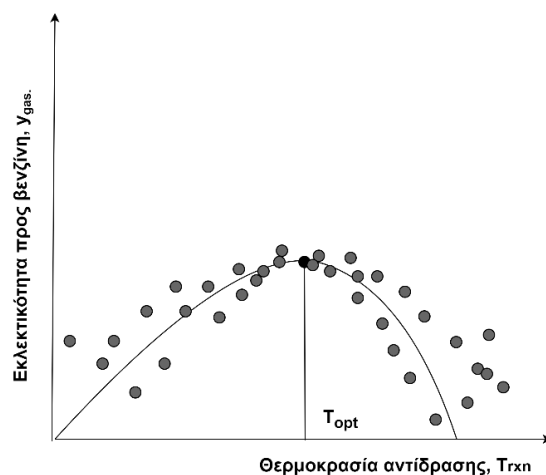
λειτουργίας, πραγματοποιήθηκε τμηματική βαθμονόμηση του μοντέλου, η οποία χαρτογραφεί μια αλλαγή καταλύτη στην μονάδα που έλαβε χώρα κατά το διάστημα Ιούνιος-Δεκέμβριος 2022.

Δεν είναι προφανής η αξία χρήσης δεδομένων από μια μεταβατική κατάσταση έναντι μιας περιόδου τυπικής λειτουργίας της μονάδας για την παραγωγή των δεδομένων εκπαίδευσης που θα χρησιμοποιήσουμε. Για να γίνει αντιληπτό το πώς τα δεδομένα αυτά διευρύνουν τον μαθηματικό χώρο που θα εξερευνήσει το μοντέλο θα παραθέσουμε ένα παράδειγμα. Αν θεωρηθεί ότι η εκλεκτικότητα της μετατροπής που επιτυγχάνει η μονάδα προς βενζίνη είναι συνάρτηση μόνον της θερμοκρασίας αντίδρασης, ο διδιάστατος χώρος των καταστάσεων λειτουργίας της μονάδας είναι μια καμπύλη της μορφής:



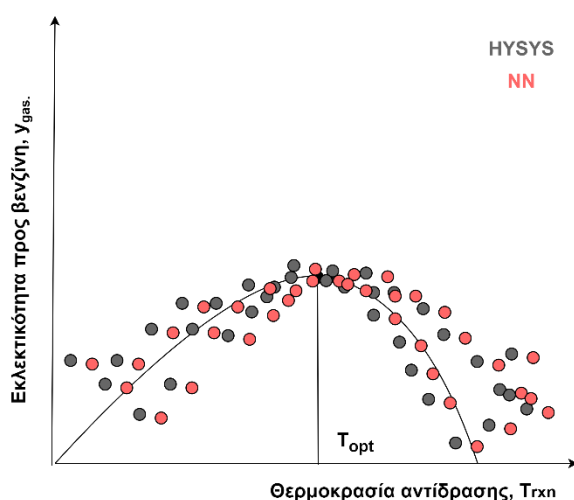
*Εικόνα 4.4: Τυπική καμπύλη λειτουργίας μονάδας καταλυτικής πυρόλυσης. Αύξηση της θερμοκρασίας αυξάνει την μετατροπή, αλλά μειώνει την εκλεκτικότητα της μετατροπής πέραν του σημείου βέλτιστης λειτουργίας.*

Αυτή είναι μια απλοποιημένη αναπαράσταση σε διδιάστατο χώρο της καμπύλης λειτουργίας της μονάδας. Παρατηρούμε ότι η εκλεκτικότητα σε βενζίνη αυξάνεται με αύξηση της θερμοκρασίας του αντιδραστήρα, έως βέλτιστης τιμής στο  $T_{opt}$  και ύστερα πέφτει, καθώς σε υψηλές θερμοκρασίες υπερισχύουν οι αντιδράσεις δευτεροβάθμιας διάσπασης της βενζίνης (overcracking). Παράμετροι αυτής της καμπύλης είναι ο τύπος της τροφοδοσίας (παραφινική, αρωματική, παρουσία ολεφινών), οι ιδιότητες δομής του καταλύτη και ο λόγος ροής τροφοδοσίας/ροής καταλύτη. Οι παράμετροι δεν μεταβάλλονται κατά την τυπική λειτουργία μιας μονάδας FCC. Έστω ότι βαθμονομούμε το μοντέλο με βάση τα διαθέσιμα στοιχεία και ύστερα πραγματοποιούμε μια ανάλυση ευαισθησίας για το μοντέλο του HYSYS στο διάστημα 400-500K. Αν όλα τα λειτουργικά δεδομένα που χρησιμοποιούμε για τη βαθμονόμηση του μοντέλου προέρχονται από αυτή την περιοχή λειτουργίας, το HYSYS θα πραγματοποιήσει προβλέψεις κοντά και εκατέρωθεν της καμπύλης λειτουργίας:



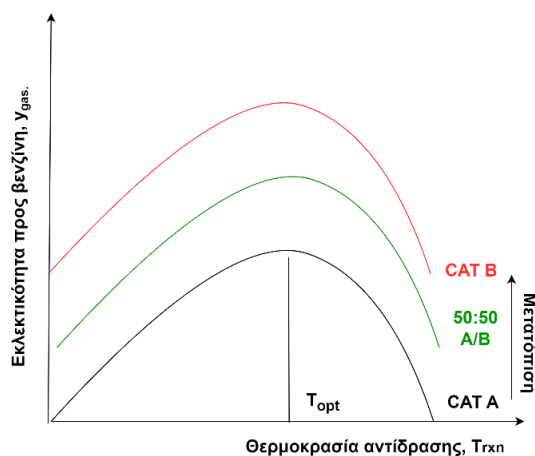
Εικόνα 4.5: Προβλέψεις εκλεκτικότητας μηχανιστικού μοντέλου, βαθμονομημένου από λειτουργικά δεδομένα τυπικής λειτουργίας μονάδας FCC.

Από τα σημεία αυτά περιγράφεται ο πειραματικός χώρος στον οποίον περιέχονται οι πιθανές προβλέψεις του υπολογιστικού μοντέλου. Παρατηρείται ότι τα σφάλματα της πρόβλεψης είναι μικρότερα κοντά στη βέλτιστη θερμοκρασία και μεγαλύτερα όσο απομακρυνόμαστε από αυτή. Αυτές οι τάσεις είναι λογική συνέπεια της βαθμονόμησης του υπολογιστικού μοντέλου με δεδομένα λειτουργίας τα οποία επίσης αντικατοπτρίζουν καταστάσεις λειτουργίας κοντά στη βέλτιστη. Αν τα δεδομένα αυτά χρησιμοποιηθούν για την εκπαίδευση νευρωνικού δικτύου, το προκύπτον δίκτυο θα εμφανίζει τις ίδιες τάσεις. Δηλαδή, θα παράγει επιτυχημένες προβλέψεις κοντά στη βέλτιστη περιοχή λειτουργίας και αστοχίες μακριά από αυτήν.



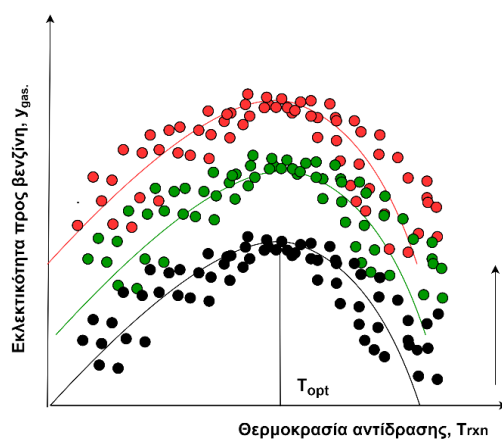
Εικόνα 4.6: Προβλέψεις εκλεκτικότητας μηχανιστικού μοντέλου και μοντέλου νευρωνικού δικτύου, βαθμονομημένου από λειτουργικά δεδομένα τυπικής λειτουργίας μονάδας FCC.

Αν ακολουθήσουμε μια διαφορετική τακτική βαθμονόμησης, μπορούμε να βελτιώσουμε την ποιότητα των δεδομένων. Μια αλλαγή καταλύτη αναπαρίσταται ως κάθετη μεταβολή της καμπύλης λειτουργίας, προς τα πάνω ή προς τα κάτω (δηλαδή στην ίδια θερμοκρασία επιτυγχάνεται υψηλότερη ή χαμηλότερη μετατροπή προς βενζίνη):



Εικόνα 4.7: Μετατόπιση καμπυλών λειτουργίας ως αποτέλεσμα αλλαγής καταλύτη.

Αν χωρίσουμε το σετ δεδομένων που χρησιμοποιείται ως οδηγός για τη βαθμονόμηση σε τμήματα, κάθε ένα από τα οποία αντιπροσωπεύει διαφορετικό βαθμό ενσωμάτωσης του νέου καταλύτη στη μονάδα και εν συνεχεία πραγματοποιήσουμε ανάλυση ευαισθησίας του μοντέλου σε κάθε τμήμα χωριστά, τα δεδομένα που παράγουμε πληρώνουν τον χώρο που δημιουργείται από τη μετατόπιση της καμπύλης όπως φαίνεται στην Εικόνα 4.8:

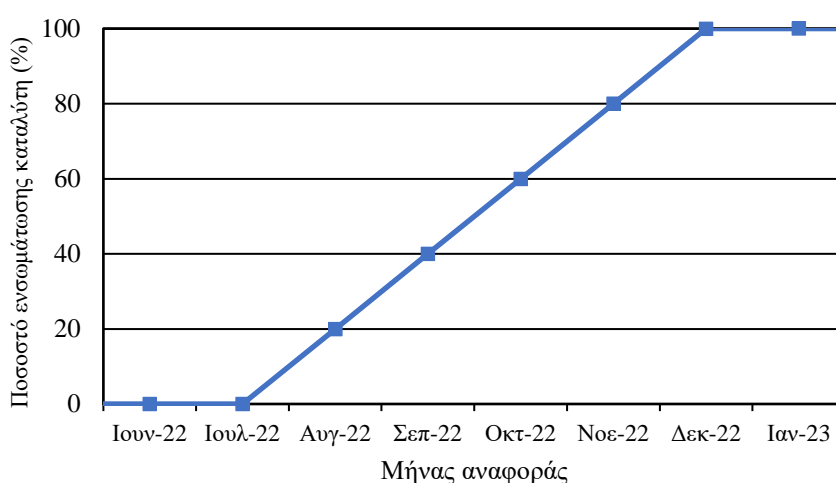


Εικόνα 4.8: Διεξαγωγή διαδικασίας βαθμονόμησης μοντέλου σε στάδια, ακολουθώντας μια διαδικασία αλλαγής καταλύτη.

Κατ' αυτόν τον τρόπο, το μοντέλο διερευνά μεγαλύτερη περιοχή του χώρου των δεδομένων κατά τη διαδικασία βαθμονόμησης και την παραγωγή δεδομένων. Επιπλέον, επειδή η μονάδα βρίσκεται σε μεταβατική κατάσταση, δεν λειτουργεί μόνον κοντά στην περιοχή της βέλτιστης μετατροπής, που σημαίνει ότι τα αντίστοιχα

λειτουργικά δεδομένα για την περίοδο αυτή παρουσιάζουν μικρότερο βαθμό συσσωμάτωσης κοντά στο βέλτιστο. Συνεπώς, εκτός της διεύρυνσης του χώρου των δεδομένων, πετυχαίνουμε και ομαλότερη κατανομή των σφαλμάτων σε όλο το διερευνώμενο εύρος θερμοκρασιών και λαμβάνουμε χρήσιμες πληροφορίες για περιοχές λειτουργίας που δεν συναντώνται συχνά στην πραγματικότητα.

Για να υλοποιήσουμε αυτή τη μέθοδο βαθμονόμησης, εργαστήκαμε ως εξής: Τα δεδομένα λειτουργίας της μονάδας (σύνολο  $ds_2$ ) αναδιατάχθηκαν ανά ημερομηνία λήψης, από τα παλαιότερα στα πιο πρόσφατα. Θεωρήθηκε ότι η αλλαγή καταλύτη που διεξήχθη κατά το διάστημα Ιούνιος-Δεκέμβριος 2022 έλαβε τη μορφή μιας γραμμικής επιβολής, κατά τη διάρκεια της οποίας το ποσοστό του νέου καταλύτη ως μέρος του συνολικού μίγματος καταλυτών στη μονάδα αυξανόταν με σταθερό ρυθμό κάθε μήνα.



Εικόνα 4.9: Απεικόνιση της αλλαγής καταλύτη ως γραμμική επιβολή που έλαβε χώρα κατά το διάστημα Ιούλιος-Δεκέμβριος 2022.

Οι καταστάσεις εκατέρωθεν της μεταβατικής γραμμικής περιοχής αναφέρονται ως «καταλύτης Α» και «καταλύτης Β». Στις περιοχές αυτές, η μονάδα λειτουργεί με χρήση μόνον ενός καταλύτη και θεωρείται ότι έχει «πιάσει» το βέλτιστο σημείο. Με βάση τη διάτμηση αυτή, μπορούμε να ονομάσουμε 6 περιοχές λειτουργίας: 0%, 20%, 40%, 60%, 80%, 100% ενσωμάτωσης καταλύτη Β. Τα δεδομένα του  $ds_2$  χωρίστηκαν σε 6 τμήματα, κάθε ένα από τα οποία αντιπροσωπεύει δεδομένα λειτουργίας στο αντίστοιχο ποσοστό. Για κάθε υποσύνολο του  $ds_2$ , παίρνουμε τις μέσες τιμές των εξεταζόμενων μεταβλητών. Χρησιμοποιώντας τις μέσες τιμές, πραγματοποιήθηκαν 6 διαφορετικές βαθμονομήσεις του μοντέλου του HYSYS, με γνώμονα τις 6 μέσες τιμές που υπολογίσαμε. Λήφθηκαν 6 διαφορετικές υπό-εκδόσεις του μοντέλου, κάθε μία από τις οποίες περιγράφει ένα διαφορετικό στάδιο ενσωμάτωσης του καταλύτη. Οι έξι υπο-εκδόσεις του μοντέλου αποτέλεσαν τη βάση για τις αναλύσεις ευαισθησίας που θα πραγματοποιήσουμε για να πάρουμε το σετ δεδομένων  $ds_1$ .



### 4.2.3 Παραγωγή των εικονικών δεδομένων προσομοίωσης

Αφού τελείωσε η διαδικασία της βαθμονόμησης, προχωρήσαμε στη δημιουργία του curated σετ δεδομένων εκπαίδευσης, *ds1*, η οποία έγινε στο υπολογιστικό περιβάλλον του Aspen Multi-Case. Το Aspen Multi-Case μας επιτρέπει να πραγματοποιήσουμε με αυτοματοποιημένο τρόπο μελέτες περιπτώσεων (case studies) πάνω στα μοντέλα του HYSYS που βαθμονομήθηκαν στο προηγούμενο βήμα. Κατά τη διεξαγωγή μιας μελέτης περίπτωσης, η τιμή μιας μεταβλητής εισόδου μεταβάλλεται σε ένα διάστημα με σταθερό βήμα και καταγράφεται η απόκριση του συστήματος όπως αποτυπώνεται στην αντίστοιχη μεταβολή των μεταβλητών εξόδων. Εκτελώντας πολλές μελέτες περιπτώσεων παράγονται ζεύγη δεδομένων με τη μορφή είσοδος-εξόδος ή  $(x,y)$ . Καταγράφοντας αυτά τα δεδομένα για μια σειρά μελετών, δημιουργείται ένα σετ δεδομένων *ds1*, το οποίο περιέχει τα σωρευτικά αποτελέσματα προβλέψεων του μηχανιστικού μοντέλου που δημιουργήθηκε στο HYSYS για το μελετώμενο εύρος συνθηκών. Στον παρακάτω πίνακα καταγράφονται οι μεταβλητές εισόδου και εξόδου που μελετήθηκαν:

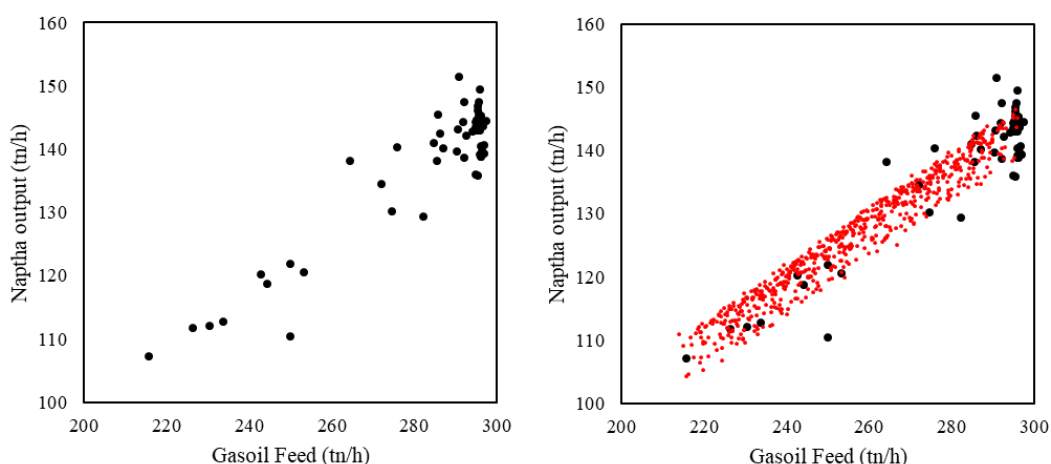
Πίνακας 4.1: Μεταβλητές εισόδου και εξόδου του μοντέλου HYSYS και μελετώμενο εύρος στα πλαίσια των case studies που διεξήχθησαν στο Aspen Multi-Case.

Μεταβλητή	Σύμβολο	Τύπος	Μονάδα	Εύρος	Εισόδου	Εξόδου
Ροή τροφοδοσίας	$x_1$	Ογκομετρική ροή	$m^3/h$	216-301	X	
Θερμοκρασία τροφοδοσίας	$x_2$	Θερμοκρασία	$^{\circ}C$	308-397	X	
Θερμοκρασία αντιδραστήρα	$x_3$	Θερμοκρασία	$^{\circ}C$	519-540	X	
Θερμοκρασία αναγεννητή	$x_4$	Θερμοκρασία	$^{\circ}C$	691-712	X	
Ροή αέρα στον αναγεννητή	$x_5$	Ογκομετρική ροή	$kNm^3/h$	113-157	X	
Slurry	$y_1$	Μετατροπή	-	0-1		X
LCO	$y_2$	Μετατροπή	-	0-1		X
Total Naptha	$y_3$	Μετατροπή	-	0-1		X
Coke	$y_4$	Μετατροπή	-	0-1		X
LPG	$y_5$	Μετατροπή	-	0-1		X
Sour Gas	$y_6$	Μετατροπή	-	0-1		X

Στο παράθυρο του Multi-Case, εισάγονται τα επτά υπομοντέλα του HYSYS που βαθμονομήθηκε στο προηγούμενο βήμα και τις ανεξάρτητες και εξαρτημένες μεταβλητές τις οποίες θέλουμε να μελετήσουμε. Για τις ανεξάρτητες μεταβλητές, επιλέχθηκε μια κατώτερη και μια ανώτατη τιμή (οι οποίες αντιστοιχούν στην ανώτερη και την κατώτερη τιμή της μεταβλητής στα πραγματικά δεδομένα των ΕΛΠΕ). Το Multi-Case επιλέγει έναν συνδυασμό τιμών για τα  $x_1$ - $x_6$ . Δεν απαιτείται να επιλέξουμε βήμα, διότι το Multi-Case δεν πραγματοποιεί βηματική μεταβολή κάθε μεταβλητής εισόδου διατηρώντας τις υπόλοιπες σταθερές, όπως σε μια τυπική ανάλυση ευαισθησίας. Αντιθέτως, χρησιμοποιεί τη μέθοδο Sobol για να εξερευνήσει το χώρο των δεδομένων εισόδου με έξυπνο τρόπο. Με χρήση της μεθόδου αυτής, το Multi-Case

παράγει πυκνά σετ δεδομένων προσομοίωσης που αντικατοπτρίζουν ευρύ φάσμα καταστάσεων λειτουργίας της μονάδας με λιγότερες απαιτήσεις σε υπολογιστικό χρόνο από ότι με χρήση ευθέως βηματικής μεταβολής κάθε μίας μεταβλητής εισόδου σε σχέση με τις υπόλοιπες.

Στο τέλος της διαδικασίας, το Aspen Multi-Case έδωσε έξι σύνολα δεδομένων για ισάριθμα υπομοντέλα, που αντιστοιχούν σε διαφορετικά στάδια ενσωμάτωσης του καταλύτη. Ενώνοντας τα υποσύνολα αυτά, δημιουργήθηκε το πλήρες σύνολο curated δεδομένων ds1, με πληθυσμό 651 γραμμών δεδομένων, το οποίο κατευθύνεται για χρήση ως σετ δεδομένων εκπαίδευσης των μοντέλων νευρωνικών δικτύων που θα αναπτυχθούν σε επόμενο βήμα.



Εικόνα 4.10: Αποτελέσματα χρήσης του μηχανιστικού μοντέλου του HYSYS σε συνδυασμό με τις μεθόδους του Multi-Case για την πλήρωση του χώρου των δεδομένων. (αρ.-δεδομένα ELPIE, δεξ.-δεδομένα ELPIE και HYSYS):

### 4.3 Ανάπτυξη νευρωνικού δικτύου

Αφού περατώθηκε η διαδικασία παραγωγής curated δεδομένων, ακολούθησε η διαμόρφωση του νευρωνικού δικτύου, το οποίο θα λειτουργήσει ως το εκτελεστικό κομμάτι για όλα τα μοντέλα που αναπτύχθηκαν πλην του γραμμικού μοντέλου με χρήση μηχανικής μάθησης (βλ. 4.5). Στην φάση αυτή πραγματοποιήθηκαν κατά σειρά:

- I. Προεπεξεργασία δεδομένων
- II. Επιλογή συνάρτησης ενεργοποίησης
- III. Επιλογή αλγορίθμου εκπαίδευσης
- IV. Επιλογή αναλογίας τμηματοποίησης των δεδομένων

Με μεταβολή των παραμέτρων αυτών, αναπτύχθηκαν πολλές υποψήφιες δομές για το μοντέλο μας. Κάθε μία εκπαιδεύθηκε με χρήση των δεδομένων του συνόλου ds1, πραγματοποίησε προβλέψεις και τα αποτελέσματα αξιολογήθηκαν συγκριτικά. Στόχος

ήταν να αναλυθεί, τουλάχιστον σε πρώτο βαθμό, η επίδραση κάθε μιας παραμέτρου στην ακρίβεια των προβλέψεων και να προκύψει μια βέλτιστη δομή του δικτύου.

#### 4.3.1 Προεπεξεργασία δεδομένων

Προτού χρησιμοποιηθούν για την ανάπτυξη του μοντέλου, τα δεδομένα πρέπει να υποστούν επεξεργασία, ώστε να εξασφαλίζεται ότι αντικατοπτρίζουν πλήρως την διερευνώμενη διεργασία, αλλά και ότι βρίσκονται σε κατάλληλη μορφή ώστε το δίκτυο μας να μπορέσει να τις διαχειριστεί αποτελεσματικά. Εκτελέστηκαν κατά σειρά οι εξής ενέργειες:

- I. Καταγραφή σε excel
- II. Ανίχνευση και απομόνωση έκτροπων τιμών
- III. Scaling των δεδομένων

#### *Ανίχνευση και απομόνωση έκτροπων τιμών*

Ως έκτροπες τιμές ορίζονται όσες θεωρούνται ότι δεν αντικατοπτρίζουν την τυπική συμπεριφορά του μοντέλου. Στην περίπτωση μας, για κάθε στήλη δεδομένων υπολογίστηκαν η μέση τιμή( $m$ ) και η απόκλιση( $d$ ) και ως αποκλίνουσες τιμές θεωρήθηκαν όσες ευρίσκοντο πλέον του  $\pm 3d$  από την μέση τιμή. Οι τιμές αυτές χαρακτηρίζονται ως έκτροπες ή outliers και διαγράφονται από το σετ δεδομένων.

$$if x \geq m + 3d \text{ then } x = x_{outlier}$$

#### *Κλιμακοποίηση (scaling) των δεδομένων*

Για να αποφευχθεί το πρόβλημα της εξαφανιζόμενης βαθμίδας κατά την επεξεργασία των δεδομένων, συνίσταται όλες οι μεταβλητές να βρίσκονται σε παρόμοιο εύρος. Τυπικά, ως ιδανικό εύρος επιλέγεται το διάστημα  $[0,1]$ . Για τον λόγο αυτό, οι μεταβλητές που βρίσκονται εκτός του εύρους αυτού υφίστανται κλιμακοποίηση (scaling) προτού εισαχθούν στο νευρωνικό δίκτυο. Από κάθε τιμή δεδομένων εισόδου αφαιρείται η μέση τιμή αυτής στο σετ δεδομένων εκπαίδευσης και η διαφορά διαιρείται με το εύρος της μεταβλητής αυτής στο σετ δεδομένων.

$$x_{scaled} = \frac{x - \bar{x}}{x_{max} - x_{min}}$$

Η αντίστροφη διεργασία πραγματοποιείται κανονικά στις μεταβλητές εξόδου ώστε να πάρουμε τις αποκλιμακοποιημένες τιμές. Ωστόσο, επειδή οι μεταβλητές εξόδου αφορούν την μετατροπή σε διάφορα προϊόντα, βρίσκονται ήδη στο εύρος που επιθυμούμε  $([0,1])$  και δεν απαιτείται αποκλιμάκωσή τους σε πραγματικές τιμές.

### 4.3.2 Ανάπτυξη αρχικού δικτύου

Στο περιβάλλον του PyCharm, με χρήση της υπολογιστικής βιβλιοθήκης keras, αναπτύχθηκε η πρώτη έκδοση του νευρωνικού δικτύου. Στην αρχική του μορφή το δίκτυο είχε:

- I. Ένα (1) στρώμα εισόδου με έξι (5) νευρώνες, που δέχονται ως είσοδο τις τιμές των μεταβλητών  $x_1-x_5$ , όπως ορίζονται στον Πίνακα 4.1.
- II. Πέντε (5) κρυφά στρώματα, με πενήντα (50) νευρώνες έκαστο, που εκτελούν τους ενδιάμεσους υπολογισμούς.
- III. Ένα (1) στρώμα εξόδου, με (6) νευρώνες, που δίνει ως έξοδο τις τιμές πρόβλεψης του δικτύου ( $\hat{y}_i$ ).

Γράφτηκε κώδικας (Παράρτημα Α), ο οποίος εκτελεί τις εξής ενέργειες: Ανάγνωση/φόρτωση δεδομένων εκπαίδευσης/ελέγχου, καθορισμός παραμέτρων εκπαίδευσης, εκτέλεση διαδικασίας εκπαίδευσης του δικτύου, εκτέλεση πρόβλεψης, χρονομέτρηση εκτέλεσης, καταγραφή ΚΔΑ του μοντέλου (βλ. 4.6). Η εκπαίδευση πραγματοποιείται με αλγόριθμο υλοποίησης οπίσθιας διάδοσης (backpropagation) και η πρόβλεψη με εμπρόσθια τροφοδοσία του δικτύου. Οι χρόνοι πρόβλεψης μετρούνται σε δευτερόλεπτα (s). Οι αρχικές παράμετροι του δικτύου ήταν οι εξής:

*Πίνακας 4.2: Αρχικές παράμετροι εκπαίδευσης του νευρωνικού δικτύου, όπως αυτές διαμορφώθηκαν κατά την εκκίνηση της διαδικασίας βελτιστοποίησης της εσωτερικής δομής του δικτύου*

Παράμετρος	Τιμή
Αριθμός κρυφών στρωμάτων	5
Συνάρτηση Ενεργοποίησης (κρυφά)	Σιγμοειδής
Συν. Ενεργοποίησης (στρ. Εξόδου)	Σιγμοειδής
Αλγόριθμος εκπαίδευσης	adam
Εποχές εκπαίδευσης	1000
Κύκλοι εκπαίδευσης	10
Αναλογία δεδομένων (εκπαίδευσης:ελέγχου)	80:20

### 4.3.3 Συνάρτηση ενεργοποίησης και αλγόριθμος εκπαίδευσης

Δοκιμάστηκαν συγκριτικά πέντε (5) υποψήφιες συναρτήσεις ενεργοποίησης. Αυτές ήταν: η σιγμοειδής, η υπερβολική εφαπτομένη (tanh), η SoftMax, η ReLU και η SeLU. Η μορφή και τα χαρακτηριστικά τους αναλύθηκαν στην ενότητα 2.1.1. Τα τελευταία χρόνια έχει αναδειχθεί η αξία συνδυαστικής χρήσης δύο διαφορετικών συναρτήσεων ενεργοποίησης στο ίδιο δίκτυο, συνήθως μιας γραμμικής για τα κρυφά στρώματα και μιας μη γραμμικής για το στρώμα εξόδου. Ένας τέτοιος συνδυασμός μειώνει τις υπολογιστικές απαιτήσεις του μοντέλου (δεν χρειάζονται να υπολογιστούν δυνάμεις του e), διατηρώντας παράλληλα τη μη-γραμμική φύση των προβλέψεων μέσω του στρώματος εξόδου. Δοκιμάστηκαν όλοι οι δυνατοί συνδυασμοί μεταξύ γραμμικών (ReLU, SeLU) και μη γραμμικών (σιγμοειδής, υπερβ. Εφαπτομένη, SoftMax) συναρτήσεων ενεργοποίησης, όπως φαίνεται στον πίνακα 4.3:

Πίνακας 4.3: Πιθανοί συνδυασμοί μεταξύ των θεωρούμενων συναρτήσεων ενεργοποίησης.

Συνάρτηση κρυφών (οριζ.) /τελικού (καθ.) στρώματος	ReLU (D)	SeLU (E)
Σιγμοειδής (A)	AD	AE
Tanh (B)	BD	BE
SoftMax (C)	CD	CE

Παρόμοια διαδικασία ακολουθήσαμε και για την επιλογή του κατάλληλου αλγορίθμου εκπαίδευσης του νευρωνικού δικτύου, μεταξύ των υποψηφίων adam, RMSPROP και adamdelta. Τα αποτελέσματα της έρευνας καταγράφονται στους Πίνακες 5.1 και Εικόνες 5.1-5.2.

Πίνακας 4.4: Υποψήφιοι αλγόριθμοι εκπαίδευσης του νευρωνικού δικτύου.

Δοκιμαστική έκδοση μοντέλου	1	2	3
Αλγόριθμος εκπαίδευσης	adam	RMS	adamdelta

#### 4.3.4 Αναλογία τμηματοποίησης (data splitting) των δεδομένων

Πριν ξεκινήσει η διαδικασία εκπαίδευσης, το σύνολο των δεδομένων που θα χρησιμοποιηθεί χωρίζεται σε δεδομένα εκπαίδευσης και δεδομένα ελέγχου. Με διαχωρισμό των δεδομένων, τα συστηματικά σφάλματα (biases) που προκύπτουν κατά τη διαδικασία εκπαίδευσης δεν υπεισέρχονται στις τελικές προβλέψεις του μοντέλου. Δεν υπάρχει μέθοδος a priori προσδιορισμού της καλύτερης αναλογίας τμηματοποίησης. Στα πλαίσια της παρούσας ΔΕ εξετάστηκαν οι εξής αναλογίες δεδομένων εκπαίδευσης/ελέγχου:

Πίνακας 4.5: Αναλογίες κατάτμησης των δεδομένων που δοκιμάστηκαν στα πλαίσια της παρούσας έρευνας.

Δοκιμαστική έκδοση μοντέλου	1	2	3	4	5
Αναλογία train/test	90:10	80:20	70:30	60:40	50:50

Τα αποτελέσματα της σύγκρισης καταγράφονται στην εικόνα 5.4.

#### 4.4 Ενσωμάτωση δεδομένων στα μοντέλα

Για να εξεταστεί η επίδραση της ενσωμάτωσης δεδομένων στην ακρίβεια των μηχανιστικών μοντέλων, το νευρωνικό δίκτυο που αναπτύχθηκε στην ενότητα 4.3 εκπαιδεύθηκε με υβριδικά σετ δεδομένων, τα οποία προέκυψαν από συγχώνευση στοιχείων από τα δύο σετ δεδομένων που ορίσαμε προηγουμένως. Στόχος ήταν να δημιουργηθούν υβριδικά σετ με διαφορετικές αναλογίες πραγματικών/curated δεδομένων ώστε να μπορέσουμε να αξιολογήσουμε σε κάθε βήμα την αντίστοιχη μεταβολή στους ΚΔΑ του μοντέλου, όπως αυτοί ορίζονται στην ενότητα 4.5. Από το  $ds_1$ , με τυχαία διαδικασία, επιλέγουμε 55 γραμμές δεδομένων και εκπαιδεύουμε το νευρωνικό δίκτυο με τις παραμέτρους του Πίνακα 4.6. Οι παράμετροι αυτές περιγράφουν τη βέλτιστη δομή του δικτύου, όπως αυτή προέκυψε από τη διαδικασία που περιγράφηκε στην ενότητα 4.3:

Πίνακας 4.6: Παράμετροι εκπαίδευσης νευρωνικού δικτύου πριν την εισαγωγή σε αυτό των δεδομένων ενσωμάτωσης.

Παράμετρος	Τιμή
Αριθμός κρυφών στρωμάτων	5
Συνάρτηση Ενεργοποίησης (κρυφά)	SeLU
Συν. Ενεργοποίησης (στρ. Εξόδου)	Σιγμοειδής
Αλγόριθμος εκπαίδευσης	adadelta
Εποχές εκπαίδευσης	1000
Κύκλοι εκπαίδευσης	100
Αναλογία δεδομένων (εκπαίδευσης:ελέγχου)	80:20

Από το  $ds_2$ , αφαιρούνται με τυχαία διαδικασία 15 γραμμές δεδομένων, οι οποίες θα λειτουργήσουν ως σύνολο ελέγχου του μοντέλου. Το σύνολο ελέγχου κρατιέται κρυφό κατά τη διάρκεια της εκπαίδευσης, ώστε να λειτουργήσει ως δοκιμασία για την ικανότητα γενίκευσης του δικτύου στο τέλος της εκπαίδευσης. Το υπόλοιπο  $ds_2$  τέμνεται σε πέντε τμήματα, τα οποία συγχωνεύονται διαδοχικά με το  $ds_1$ . Κάθε ένα από αυτά έχει πληθυσμό δεδομένων τέτοιο, ώστε κατά τη συγχώνευσή του με το  $ds_1$ , το ποσοστό πραγματικών δεδομένων ως μέρος του τελικού συνόλου να αυξάνεται κατά 10%. Προκύπτουν πέντε υβριδισμένα σετ δεδομένων ( $hs_1$ - $hs_5$ ):

Πίνακας 4.7: Χαρακτηριστικά των υποσυνόλων του συνόλου λειτουργικών δεδομένων  $ds_2$  που ενσωματώθηκαν διαδοχικά στο σύνολο  $ds_1$ , προς σχηματισμό υβριδικών συνόλων δεδομένων.

	$hs_1$	$hs_2$	$hs_3$	$hs_4$	$hs_5$
Αρ. σημείων	6	8	9	15	17
Βαθμός ενσ.	10%	20%	30%	40%	50%
Σύνολο σημ.	61	69	78	93	110

Στο σημείο αυτό, έλαβε χώρα η ενσωμάτωση των δεδομένων του  $ds_2$  στο αρχικό σύνολο διαλεγμένων δεδομένων  $ds_1$ . Σε κάθε βήμα ενσωμάτωσης λειτουργικών

δεδομένων στα δεδομένα εκπαίδευσης πραγματοποιήθηκε διαδικασία εκπαίδευσης, με τις παραμέτρους που περιγράφηκαν στον Πίνακα 4.6. Σε κάθε βήμα ενσωμάτωσης, έλαβαν χώρα 100 κύκλοι εκπαίδευσης, 1000 εποχών έκαστος. 100000 συνολικές εποχές εκπαίδευσης κρίνονται επαρκείς ώστε τα αποτελέσματα του μοντέλου να είναι στατιστικά αμερόληπτα και να εξασφαλίζεται η βέλτιστη δυνατή προσαρμογή στα δεδομένα εκπαίδευσης.

Στο τέλος κάθε κύκλου εκπαίδευσης, το μοντέλο πραγματοποιεί πρόβλεψη δεχόμενο ως είσοδο: I. Τα δεδομένα εκπαίδευσης, II. Τα δεδομένα ελέγχου. Οι ΚΔΑ, όπως και τα αποτελέσματα της πρόβλεψης του μοντέλου για τις δύο κατηγορίες δεδομένων καταγράφονται στο τέλος κάθε κύκλου και καταχωρούνται στο Excel. Καταγράφονται οι μέσες και οι καλύτερες τιμές των ΚΔΑ σε κάθε βήμα ενσωμάτωσης (0,10%,20%,30%,40%,50%). Τα αποτελέσματα της ενσωμάτωσης δεδομένων καταγράφονται στον Πίνακα 5.3 και τις Εικόνες 5.8-5.17.

## 4.5 Μοντέλο πολυμεταβλητής γραμμικής παλινδρόμησης με μηχανική μάθηση

Με χρήση του Aspen AI Model Builder (AIMB), δημιουργήθηκε ένα απλό μοντέλο μηχανικής μάθησης, το οποίο εκτελεί πολυμεταβλητή γραμμική παλινδρόμηση. Για τους σκοπούς της παρούσας ΔΕ, το μοντέλο αυτό θα θεωρηθεί σε γενικές γραμμές αντιπροσωπευτικό των ωθούμενων από τα δεδομένα μοντέλων που συναντώνται στη σχετική βιβλιογραφία. Το μοντέλο αυτό θα εκπαιδευθεί αποκλειστικά με τα λειτουργικά δεδομένα των ΕΛΠΕ (70 σημεία δεδομένων). Οι μεταβλητές εισόδου και εξόδου είναι αυτές που περιγράφησαν στους Πίνακες . Κάθε απόκριση του μοντέλου,  $\hat{y}_i$ , δίνεται από μια σχέση της μορφής:

$$\hat{y}_i = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \beta_j x_{ij} \quad (4.4)$$

Τα δεδομένα εισόδου χωρίζονται σε δεδομένα εκπαίδευσης (55 σημεία) και ελέγχου (15 σημεία) και εισάγονται στο AIMB. Το AIMB υπολογίζει τους συντελεστές  $\beta_j$  με εφαρμογή της μεθόδου μηχανικής μάθησης LASSO, μέσω της οποίας ελαχιστοποιείται η συνάρτηση κόστους:

$$L = \sum_{i=1}^n \left( y_i - \sum_j^p \beta_j x_{ij} \right)^2 + \lambda \sum_{j=1}^p |\beta_j| \quad (4.5)$$

Αν ο χρήστης το επιθυμεί, μπορεί να πραγματοποιήσει επιπλέον διασταυρούμενη επαλήθευση (cross-validation). Cross-validation ονομάζεται μια πρόσθετη μέθοδος εκπαίδευσης η οποία σε ορισμένες περιπτώσεις βελτιώνει την ικανότητα πρόβλεψης του τελικού μοντέλου. Όπως αναλύθηκε σε προηγούμενη ενότητα, για να εκπαιδεύσουμε ένα νευρωνικό δίκτυο αλλά και ένα μοντέλο μηχανικής μάθησης γενικότερα, χωρίζουμε το σετ δεδομένων σε δεδομένα εκπαίδευσης και δεδομένα ελέγχου-test. Το cross-validation είναι μία εμβόλιμη μέθοδος η οποία αξιοποιεί τα ήδη υπάρχοντα δεδομένα για να «πυκνώσει» το σετ ελέγχου, χωρίς να περιορίσει το σετ εκπαίδευσης. Συγκεκριμένα, το σετ εκπαίδευσης διαιρείται σε  $k$  υποσύνολα, εκ των οποίων:

- $k-1$  χρησιμοποιούνται για την εκπαίδευση του δικτύου
- το τελευταίο χρησιμοποιείται για έλεγχο, ο οποίος ονομάζεται cross-validation

Εναλλάσσοντας την θέση του υποσυνόλου ελέγχου, ουσιαστικά καταφέρνουμε καλύτερη «ανάγνωση» του χώρου των δεδομένων και εκπαιδεύουμε το δίκτυο σε ένα μεγαλύτερο εύρος καταστάσεων (Εικόνα 4.11). Ωστόσο, η επιτυχία της μεθόδου δεν είναι σίγουρη σε μικρά σετ δεδομένων, όπως το δικό μας. Συχνά, η χρήση του cross-validation μειώνει την ακρίβεια πρόβλεψης του αλγορίθμου επειδή αφαιρεί τιμές από το σύνολο δεδομένων εκπαίδευσης. Η χρήση της διασταυρούμενης επαλήθευσης

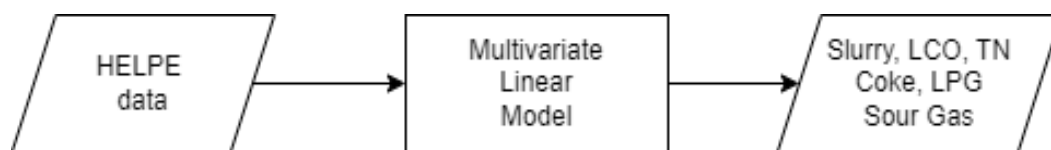


μπορεί να γίνει με ή χωρίς ταυτόχρονη χρήση ανεξάρτητου, τρίτου σετ ελέγχου (test set).



Εικόνα 4.11: Αρχή λειτουργίας του cross-validation. Πηγή: Gufosowa - Own work, αναδημοσιεύεται με άδεια CC BY-SA 4.0,

Μετά τη διαδικασία εκπαίδευσης το μοντέλο δοκιμάζεται στα δεδομένα ελέγχου και παράγει τα αποτελέσματα ως διαγράμματα παλινδρόμησης (Εικόνες 5.5-5.7). Το μοντέλο αυτό προορίζεται να λειτουργήσει περισσότερο ως βάση σύγκρισης για τα υβριδικά μοντέλα, παρά ως ακριβές μοντέλο της διεργασίας και γι' αυτό δεν διερευνήθηκαν σε βάθος όλες οι πιθανές αρχιτεκτονικές. Αναπτύχθηκαν τρεις εκδόσεις (versions) του μοντέλου, ώστε να διερευνηθεί η επίδραση των διάφορων παραμέτρων μάθησης (κυρίως του cross-validation) στα τελικά αποτελέσματα. Η έκδοση που πετυχαίνει τις καλύτερες προβλέψεις χρησιμοποιείται ως βάση σύγκρισης με τα υπόλοιπα μοντέλα που αναπτύξαμε. Το διάγραμμα ροής της λειτουργίας του μοντέλου παρουσιάζεται στην εικόνα :



Εικόνα 4.12: Διάγραμμα ροής λειτουργίας μοντέλου μηχανικής μάθησης που αναπτύχθηκε στο AIMB.

#### 4.6 Καίριοι δείκτες απόδοσης

Για να διευκολυνθεί η σύγκριση των μοντέλων μας μεταξύ τους, αλλά και με τα υφιστάμενα μοντέλα, επιλέχθηκαν ορισμένοι καίριοι δείκτες απόδοσης (εφεξής ΚΔΑ, Key Performance Indicators ή KPIs), βάσει των οποίων θα αξιολογείται η επιτυχία κάθε μοντέλου στις προβλέψεις. Αυτοί είναι οι εξής:

Το σχετικό σφάλμα, (εφεξής ΣΣ ή RE ή MAPE), το οποίο για κάθε ζεύγος πραγματικής τιμής- τιμής πρόβλεψης,  $(y_i, \hat{y}_i)$  ορίζεται ως το πηλίκο του απολύτου σφάλματος της πρόβλεψης προς την πραγματική τιμή:

$$RE = \frac{|y_i - \hat{y}_i|}{y_i} \quad (4.6)$$

Η μέση τετραγωνική απόκλιση ρίζας, (εφεξής Root mean square error ή RMSE), η οποία για έναν πληθυσμό  $N$  πειραματικών δεδομένων ορίζεται ως η ρίζα του αθροίσματος των τετραγώνων των απόλυτων σφαλμάτων ως προς τον πληθυσμό  $N$ :

$$RMSE = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N (y_i - \hat{y}_i)^2}{N}} \quad (4.7)$$

Το  $R_2$  χρησιμοποιείται ως μέτρο ακρίβειας των προβλέψεων των μοντέλων που αναπτύχθηκαν. Για τις προβλέψεις που βασίζονται στα δεδομένα ελέγχου, δηλαδή τα δεδομένα πάνω στα οποία το δίκτυο δεν εκπαιδεύθηκε, το ίδιο μέτρο ονομάζεται  $Q_2$ . Ορίζεται ως εξής:

$$R_2 = 1 - \frac{\sum_{i=1}^N (y_i - \hat{y}_i)^2}{\sum_{i=1}^N (y_i - \bar{y})^2} \quad (4.8)$$

Το σφάλμα γενίκευσης, GE, ορίζεται ως η διαφορά των μέτρων  $R_2$  και  $Q_2$ :

$$GE = R_2 - Q_2 \quad (4.9)$$

## 5. Αποτελέσματα

Στην παρούσα ενότητα θα αναλυθούν τα αποτελέσματα της υπολογιστικής διαδικασίας, θα συγκριθούν με τη σχετική βιβλιογραφία και θα παρουσιαστούν τα κύρια ευρήματα της έρευνας. Θα αναλυθεί η επίδραση της ενσωμάτωσης δεδομένων στην ποιότητα των προβλέψεων και θα συγκριθούν τα τρία μοντέλα μεταξύ τους και με τα προτεινόμενα μοντέλα της βιβλιογραφίας.

### 5.1 Διερεύνηση χαρακτηριστικών δομής νευρωνικού δικτύου

Στα πλαίσια της παρούσας ΔΕ, πραγματοποιήθηκε διεξοδική συγκριτική μελέτη των μοντέλων νευρωνικού δικτύου που παράξαμε ως προς τα χαρακτηριστικά της εσωτερικής δομής τους. Τα εσωτερικά χαρακτηριστικά που εξετάστηκαν είναι αυτά που αναγράφονται στην Ενότητα 4.3. Αξιολογώντας τα αποτελέσματα, εξετάστηκε η συγκριτική επίδραση κάθε χαρακτηριστικού στην ακρίβεια των τελικών προβλέψεων και αναδείχθηκε η βέλτιστη δομή νευρωνικού δικτύου, η οποία στη συνέχεια δέχθηκε την ενσωμάτωση.

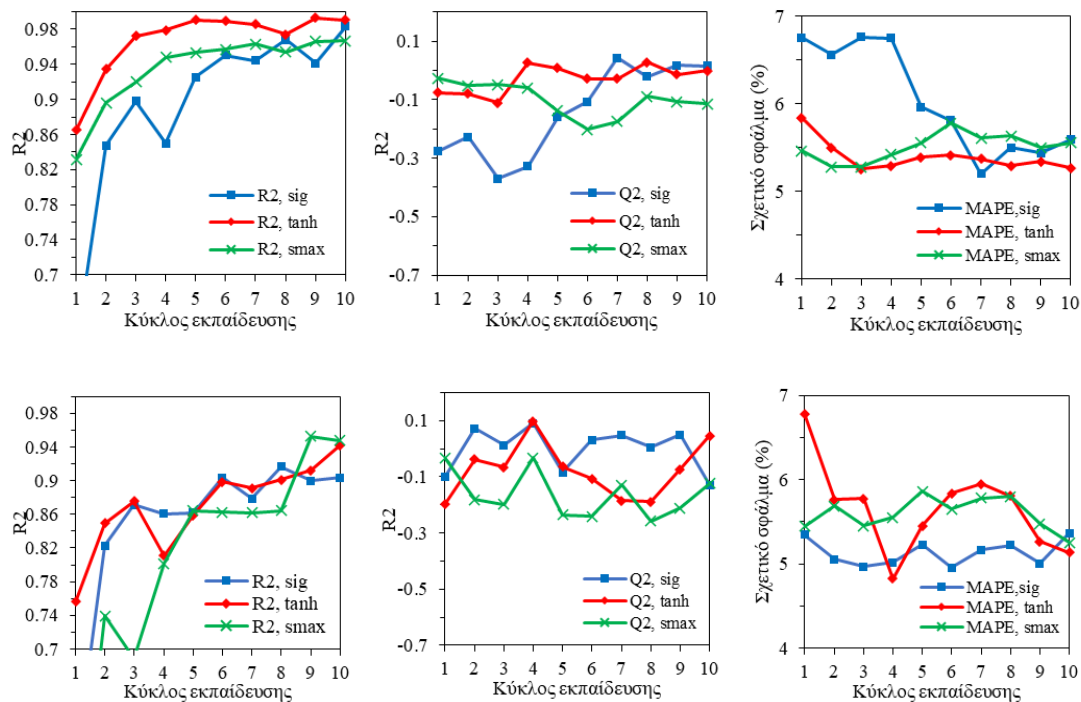
Πρώτη παράμετρος σύγκρισης ήταν ο συνδυασμός συναρτήσεων ενεργοποίησης που χρησιμοποιείται στις εξόδους των στρωμάτων του δικτύου (συνάρτηση κρυφών/συνάρτηση τελικού). Τα αποτελέσματα της σύγκρισης των συνδυασμών του Πίνακα 4.3 καταγράφονται στον Πίνακα 5.1.

*Πίνακας 5.1: Αποτελέσματα χρήσης των διαφορετικών συνδυασμών συναρτήσεων ενεργοποίησης στο νευρωνικό δίκτυο ως προς την ακρίβεια των προβλέψεων*

Δοκιμαζόμενος συνδυασμός	$R_2$	$Q_2$	Σφάλμα Γενίκευσης $R_1-Q_2$
<i>AD</i>	0.892538	-0.14138	1.033918
<i>BD</i>	0.967402	-0.02733	0.994732
<i>CD</i>	0.935542	-0.10122	1.036762
<i>AE</i>	0.84807	-0.00031	0.84838
<i>BE</i>	0.801919	-0.07751	0.879429
<i>CE</i>	0.869565	-0.16393	1.033495

Από τα αποτελέσματα προκύπτει ο AE (SeLU-σιγμοειδής) ως βέλτιστος συνδυασμός, με μικρότερα σφάλματα γενίκευσης ( $Q_2$ ). Όλοι οι συνδυασμοί παρουσιάζουν τάση για υπερπροσαρμογή των δεδομένων, η οποία αποτυπώνεται ως καλή προσαρμογή στα δεδομένα εκπαίδευσης (υψηλό  $R_2$ ), αλλά μη ικανοποιητική στα δεδομένα ελέγχου (χαμηλό  $Q_2$ ). Αξίζει να σημειωθεί ότι αυτή η τάση χαρακτηρίζει το συνολικό μοντέλο· στα επιμέρους προϊόντα τα σφάλματα γενίκευσης είναι από πολύ μικρότερα (κοκ, LPG) έως πολύ μεγαλύτερα (slurry, LCO). Οι συνδυασμοί που χρησιμοποιούν τη γραμμική ReLU (D) ως συνάρτηση ενεργοποίησης των ενδιάμεσων στρωμάτων εμφάνισαν υψηλότερα σφάλματα γενίκευσης από τους συνδυασμούς που χρησιμοποιούν τη SeLU (E). Η παρατήρηση αυτή συνάδει με τη μη γραμμική φύση της καταλυτικής πυρόλυσης και υποδεικνύει ότι δίκτυα με υψηλό βαθμό γραμμικότητας δεν είναι κατάλληλα για την προσομοίωση της διεργασίας. Στα διαγράμματα της εικόνας απεικονίζεται η

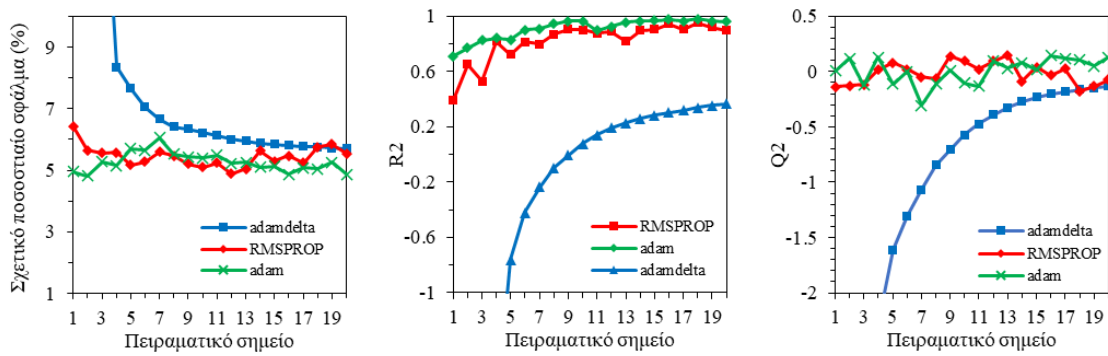
μεταβολή των  $R_2$ ,  $Q_2$ , MAPE σε βάθος δέκα κύκλων εκπαίδευσης για τα μοντέλα που χρησιμοποιούν τη ReLU και τη SeLU:



Εικόνα 5.1: Δείκτες επίδοσης των μοντέλων ( $R_2$ ,  $Q_2$ , MAPE) με χρήση ReLU (πάνω σειρά) και SeLU (κάτω σειρά)

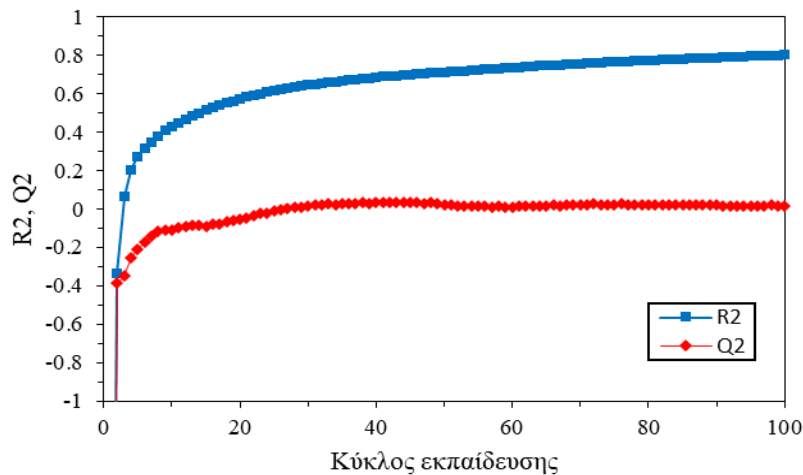
Παρατηρούμε ότι τα δίκτυα που χρησιμοποιούν σιγμοειδή συνάρτηση ενεργοποίησης χρειάζονται περισσότερους κύκλους εκπαίδευσης για να παράξουν συγκρίσιμα αποτελέσματα με όσα χρησιμοποιούν την tanh ή τη SoftMax. Για τα ίδια δίκτυα καταγράφονται χαμηλότερες τιμές  $R_2$  στους περισσότερους κύκλους εκπαίδευσης, αλλά υψηλότερα  $Q_2$  και χαμηλότερα σχετικά σφάλματα και άρα καλύτερη ανθεκτικότητα στην υπερπροσαρμογή. Στο τέλος της εκπαίδευσης, όλες οι συναρτήσεις ενεργοποίησης έδωσαν όμοια αποτελέσματα. Από τα διαγράμματα της εικόνας προκύπτει επίσης το συμπέρασμα ότι η συνάρτηση ενεργοποίησης του τελικού στρώματος δεν μπορεί να αξιολογείται καθαυτή, αλλά πάντα σε συνδυασμό με τη συνάρτηση που χρησιμοποιείται στα εσωτερικά στρώματα. Η ίδια συνάρτηση ενεργοποίησης (σιγμοειδής), είχε τη χειρότερη επίδοση όταν συνδυάστηκε με τη ReLU, αλλά την καλύτερη όταν συνδυάστηκε με τη SeLU, σε κάθε σχεδόν κύκλο εκπαίδευσης. Προκύπτει επίσης πως η συνάρτηση ενεργοποίησης που χρησιμοποιείται στα εσωτερικά στρώματα επηρεάζει πολύ περισσότερο την ακρίβεια των προβλέψεων απ' ό,τι η συνάρτηση του τελικού στρώματος.

Έχοντας καθορίσει τον βέλτιστο συνδυασμό (AE), παρόμοια διαδικασία ακολουθήθηκε για την επιλογή του κατάλληλου αλγορίθμου εκπαίδευσης μεταξύ των adam, adamdelta, RMSPROP (Πίνακας 4.4). Τα αποτελέσματα για 20 κύκλους εκπαίδευσης παρουσιάζονται στην Εικόνα 5.2:



Εικόνα 5.2: Επίδοση των μοντέλων με χρήση των αλγορίθμων εκπαίδευσης RMSPROP, adam και adamdelta.

Οι adam και RMSPROP παρουσίασαν όμοια συμπεριφορά, ενώ ο αλγόριθμος adam εμφάνισε τη γρηγορότερη προσαρμογή στα δεδομένα, μετά το πέρας μόνον μιας περιόδου εκπαίδευσης. Ο adamdelta εμφάνισε τις χαμηλότερες τιμές σε  $R_2$  και  $Q_2$ , αλλά και τα μικρότερα σφάλματα γενίκευσης, ενώ όλοι οι αλγόριθμοι έδωσαν όμοια σφάλματα πρόβλεψης στο πέρας της διαδικασίας εκπαίδευσης του δικτύου. Παρότι ο adamdelta εμφάνισε χαμηλότερα σκορ, παραμένει η καλύτερη επιλογή αλγορίθμου εκπαίδευσης, διότι αποφεύγει περισσότερο από όλους τους υπολοίπους την υπερπροσαρμογή. Επεκτείνοντας την διάρκεια εκπαίδευσης του δικτύου σε 100 κύκλους, μπορούμε να εξετάσουμε τη σχέση μεταξύ  $R_2$  και  $Q_2$  σε μεγαλύτερο βάθος:

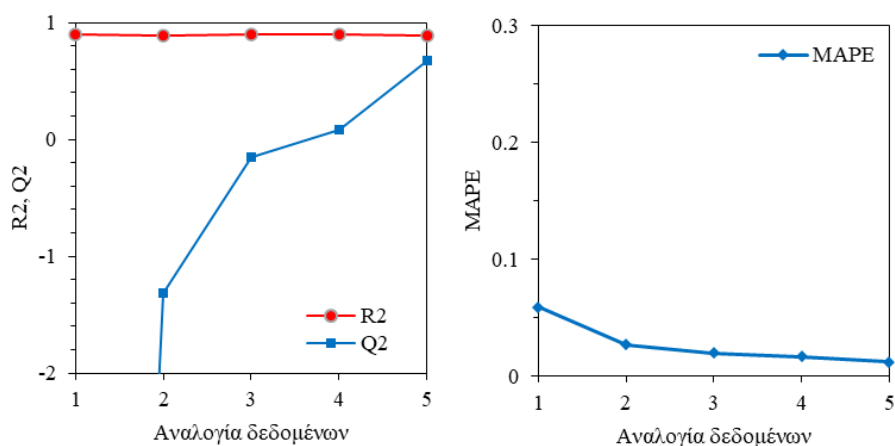


Εικόνα 5.3: Εξέλιξη των  $R_2$ ,  $Q_2$  κατά τη διάρκεια μιας διαδικασίας εκπαίδευσης του δικτύου με  $z$ , που διήρκησε 100 κύκλους.

Στο διάγραμμα μπορούμε να αναγνωρίσουμε τρεις φάσεις εκπαίδευσης: Τη φάση ανάπτυξης, (κύκλοι 0-20), η οποία χαρακτηρίζεται από υπογραμμική αύξηση των  $Q_2, R_2$ , τη φάση στασιμότητας (κύκλοι 25-45), κατά την οποία μόνον το  $R_2$  αυξάνεται, χωρίς μεταβολή του  $Q_2$ , και τη φάση εκφύλισης (κύκλοι 45-), κατά την οποία το  $R_2$

συνεχίζει να αυξάνεται, αλλά το  $Q_2$  μειώνεται, οδηγώντας το δίκτυο σε χειρότερες προβλέψεις όσο συνεχίζεται η διαδικασία της εκπαίδευσης. Το βέλτιστο σημείο, στο οποίο πετυχαίνουμε ελάχιστο σφάλμα γενίκευσης (απόσταση μεταξύ μπλε και κόκκινης καμπύλης) ευρίσκεται στην περιοχή 25-35 κύκλων εκπαίδευσης.

Τέλος, εξετάστηκε η επίδραση της αναλογίας κατάτμησης των δεδομένων στα αποτελέσματα πρόβλεψης του δικτύου. Δοκιμάστηκαν όλοι οι συνδυασμοί του Πίνακα και προέκυψαν τα εξής διαγράμματα (Εικόνα 5.4):



Εικόνα 5.4: Επίδραση αναλογίας δεδομένων (εκπαίδευσης/ελέγχου) στην ακρίβεια της πρόβλεψης (1:50/50 έως 5:90/10).

Παρατηρείται ότι η ακρίβεια της πρόβλεψης αυξάνεται με παραχώρηση περισσότερων σημείων δεδομένων στο σετ δεδομένων εκπαίδευσης και συνεπώς μεγιστοποιείται σε αναλογία 90:10. Για να συγκεράσουμε το συμπέρασμα αυτό με το μικρό μέγεθος του σετ δεδομένων μας και να μπορέσουμε να πραγματοποιήσουμε προβλέψεις σε όσο το δυνατόν μεγαλύτερο αριθμό σημείων, επιλέγουμε την αναλογία 80:20.

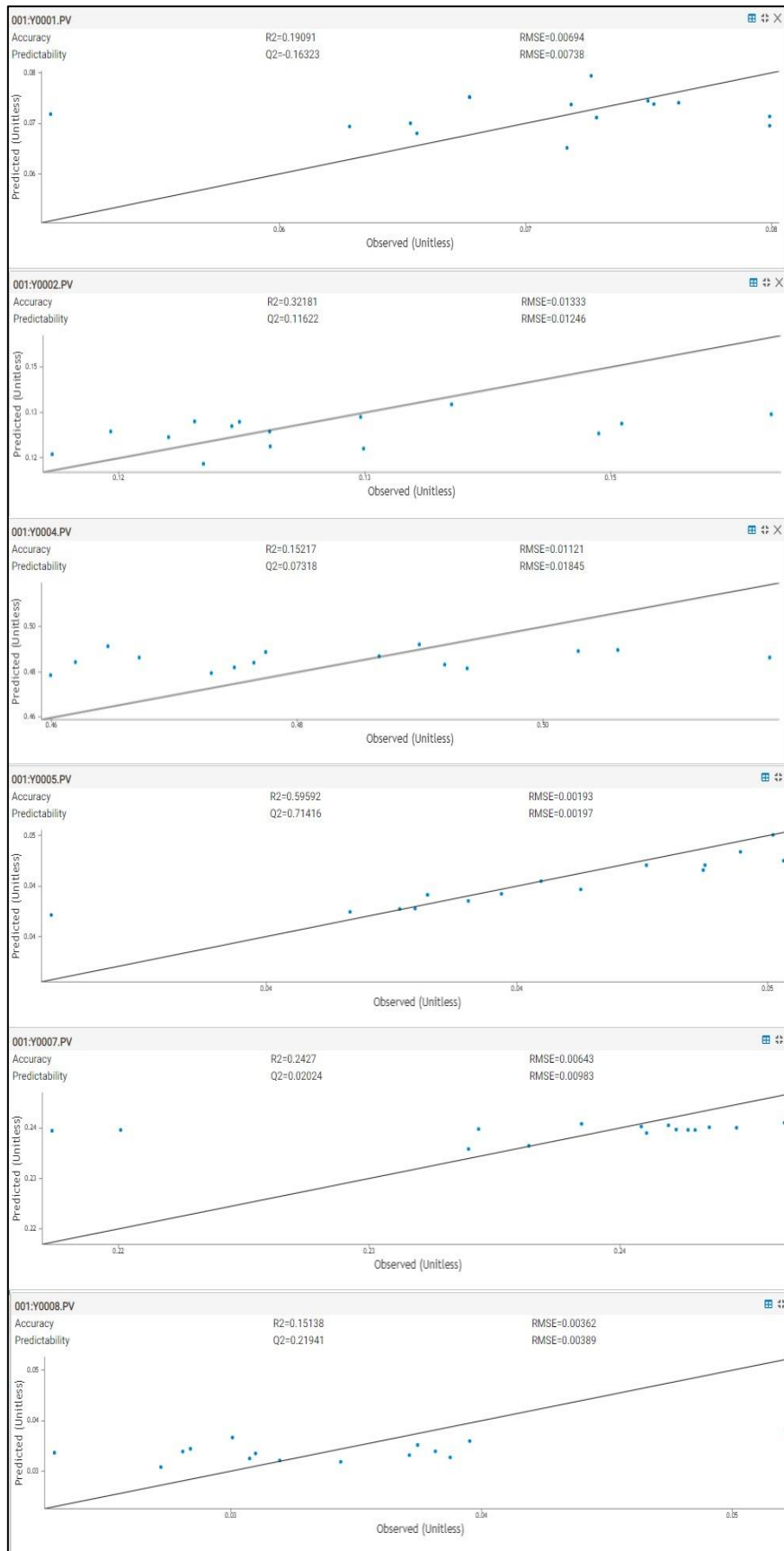
## 5.2 Πολυμεταβλητή γραμμική παλινδρόμηση με χρήση του AIMB

Στους ακόλουθους πίνακες και εικόνες παρουσιάζονται συγκεντρωτικά τα αποτελέσματα της πολυμεταβλητής γραμμικής παλινδρόμησης με χρήση μηχανικής μάθησης η οποία πραγματοποιήθηκε στο Aspen AI Model Builder με δεδομένα διυλιστηρίου και μόνον. Μεταβλητές εισόδου και εξόδου είναι αυτές που περιγράφηκαν στον Πίνακα 4.1. Ως καίριοι δείκτες απόδοσης χρησιμοποιήθηκαν τα R<sup>2</sup> και Q<sup>2</sup>, καθώς και το RMSE.

Κατασκευάστηκαν συνολικά τρεις εκδόσεις (versions) του γραμμικού μοντέλου παλινδρόμησης. Η version 1.0 χρησιμοποιεί την Lasso και κανέναν μετασχηματισμό, η 1.1 χρησιμοποιεί την Lasso CV και κανέναν μετασχηματισμό και η 1.2 χρησιμοποιεί την Lasso CV και μετασχηματισμούς 2<sup>ος</sup> τάξεως. Τα αποτελέσματα της παλινδρόμησης παρουσιάζονται συγκεντρωτικά στον Πίνακα 5.2 και στις Εικόνες 1-3. Το γραμμικό μοντέλο μηχανικής μάθησης δεν έδωσε αξιοσημείωτα καλές προβλέψεις σε καμία κατηγορία προϊόντος πέραν του κοκ, η πρόβλεψη του οποίου σημείωσε υψηλά σκορ πρόβλεψης, Q<sup>2</sup>, σε όλες τις εκδόσεις του μοντέλου.

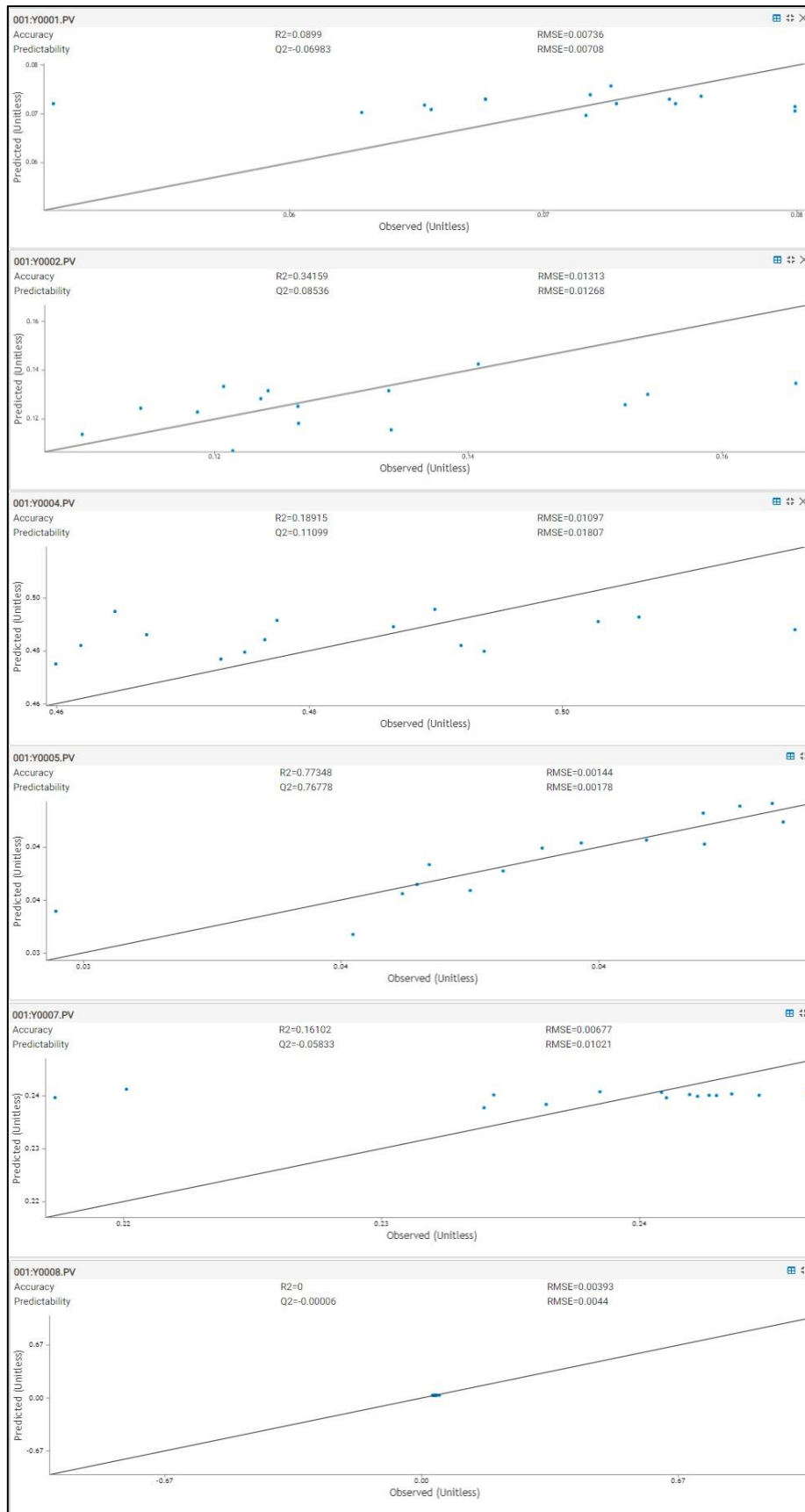
Η εφαρμογή της διασταυρούμενης επαλήθευσης (CV) οδήγησε σε μείωση της παρατηρούμενης ακρίβειας του συνολικού μοντέλου, οδηγούμενη κυρίως από την επιδείνωση των προβλέψεων στο Sour Gas (οι υπόλοιπες κατηγορίες σημείωσαν πενιχρή βελτίωση). Τα αποτελέσματα αυτά συνάδουν με τη θεώρηση της καταλυτικής πυρόλυσης ως εγγενώς μη-γραμμικής διεργασίας. Συμπεραίνουμε ότι ένα πλήρως γραμμικό μοντέλο δεν επαρκεί για την απεικόνιση της καταλυτικής πυρόλυσης, ακόμα κι αν υλοποιείται από μεθόδους μηχανικής μάθησης (αντί των ελαχίστων τετραγώνων). Η ακρίβειά του είναι ισάξια με αυτή ενός μοντέλου ενσωμάτωσης δεδομένων σε ποσοστό 10% (Πίνακας 5.3).

<i>Πίνακας 5.2: Αποτελέσματα παλινδρόμησης γραμμικού μοντέλου μηχανικής μάθησης. Αναγράφονται οι τιμές των RMSE, R<sub>2</sub> και Q<sub>2</sub> ανά κατηγορία προϊόντος για τις τρεις εκδόσεις του μοντέλου</i>					
	Προϊόν	R <sub>2</sub>	RMSE	Q <sub>2</sub>	RMSE
<i>Version 1.0</i>	<i>Slurry</i>	.1909	.0069	-.1632	.0073
	<i>LCO</i>	.3218	.0133	.1162	.0125
	<i>TN</i>	.1521	.0112	.0731	.0185
	<i>Coke</i>	.5959	.0019	.7141	.0020
	<i>LPG</i>	.2427	.0064	.0202	.0019
	<i>Sour Gas</i>	.1513	.0036	.2194	.0039
<i>Version 1.1</i>	<i>Slurry</i>	.0899	.0074	-.0698	.0070
	<i>LCO</i>	.3415	.0131	.0853	.0126
	<i>TN</i>	.1891	.0110	.1109	.0180
	<i>Coke</i>	.7734	.0014	.7677	.0017
	<i>LPG</i>	.1610	.0068	-.0583	.0102
	<i>Sour Gas</i>	.0000	.0039	-.0001	.0044
<i>Version 1.2</i>	<i>Slurry</i>	.1949	.0069	-.1215	.0073
	<i>LCO</i>	.3390	.0132	.0841	.0127
	<i>TN</i>	.2677	.0104	-.1661	.0207
	<i>Coke</i>	.7425	.0015	.7513	.0018
	<i>LPG</i>	.3755	.0058	.1405	.0092
	<i>Sour Gas</i>	.4948	.0028	-.1662	.0048

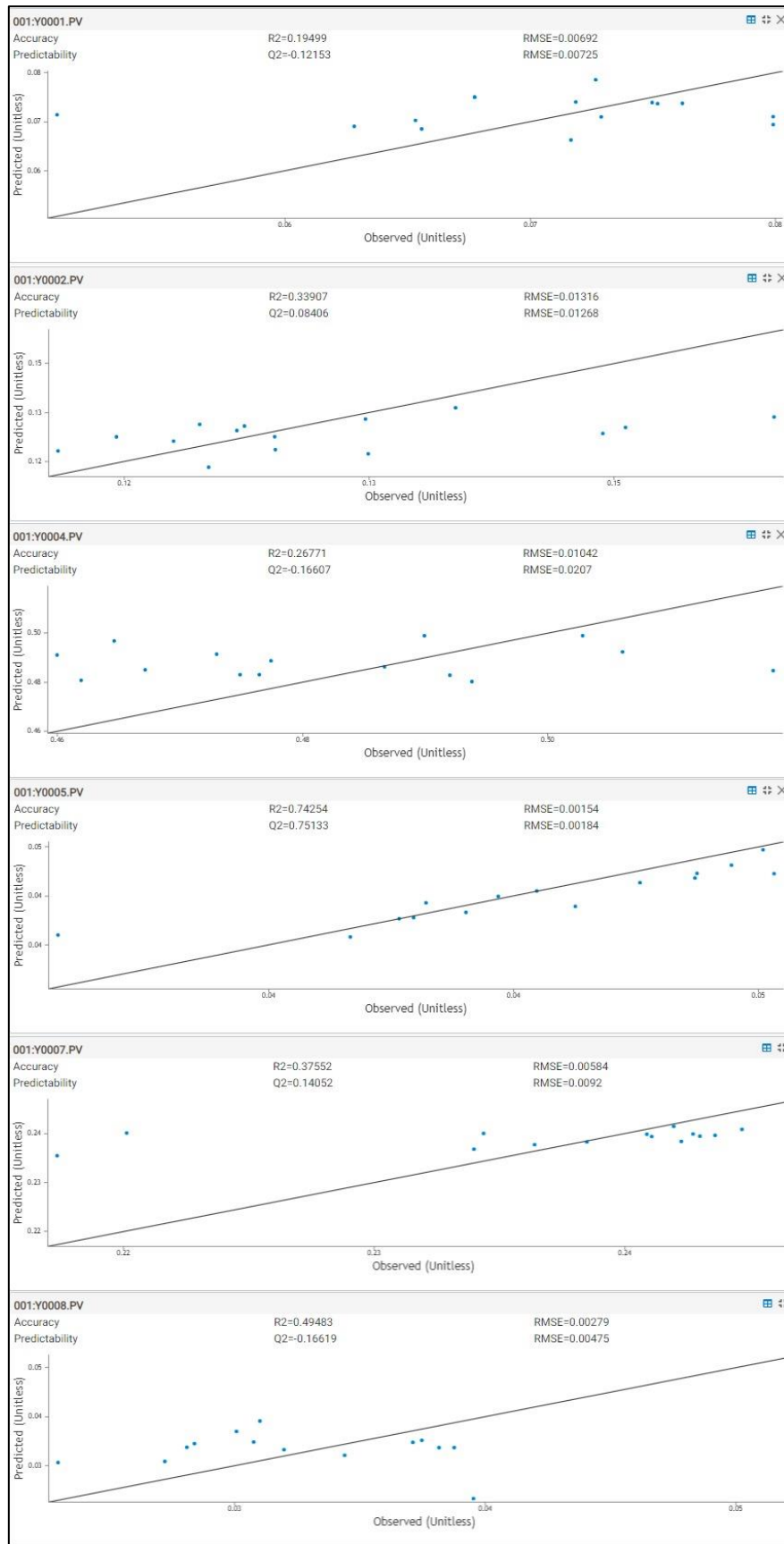


Εικόνα 5.5: Διαγράμματα παλινδρόμησης του πολυμεταβλητού γραμμικού μοντέλου (Version 1.0). Από πάνω προς τα κάτω: Slurry, LCO, Naptha, Coke, LPG, Sour Gas





Εικόνα 5.6: Διαγράμματα παλινδρόμησης του πολυμεταβλητού γραμμικού μοντέλου (Version 1.1). Από πάνω προς τα κάτω: Slurry, LCO, Nartha, Coke, LPG, Sour Gas



Εικόνα 5.7: Διαγράμματα παλινδρόμησης του πολυμεταβλητού γραμμικού μοντέλου (Version 1.2). Από πάνω προς τα κάτω: Slurry, LCO, Naptha, Coke, LPG, Sour Gas

### 5.3 Μοντέλα ενσωμάτωσης δεδομένων

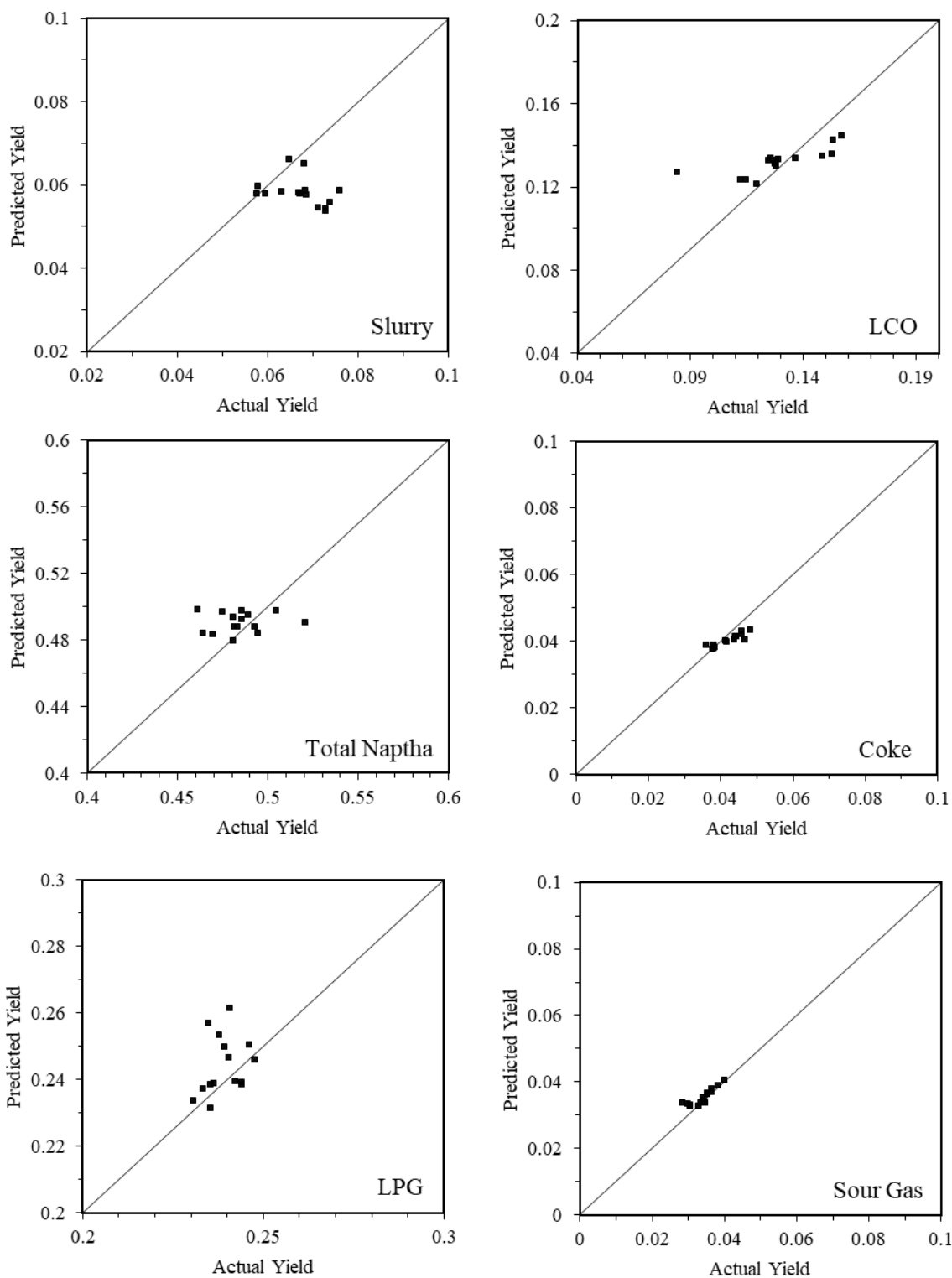
Στα πλαίσια της παρούσας έρευνας εξετάστηκε η ενδεχόμενη επίδραση των λειτουργικών δεδομένων μιας πραγματικής μονάδας FCC στην ακρίβεια των προβλέψεων ενός μηχανιστικού μοντέλου (βελτίωση/επιδείνωση). Για να εξεταστεί η υπόθεση αυτή, «πακέτα» λειτουργικών δεδομένων από μια μονάδα FCC, τυχαία επιλεγμένα από το σετ δεδομένων  $ds_2$ , τοποθετήθηκαν εμβόλιμα στη διαδικασία εκπαίδευσης ενός νευρωνικού δικτύου το οποίο ως αρχική βάση εκπαίδευσης είχε ένα διευρυμένο σετ curated δεδομένων,  $ds_1$ , το οποίο προέκυψε από επαναληπτική χρήση του μηχανιστικού μοντέλου σε μεγάλο εύρος λειτουργικών συνθηκών.

Εν τοις πράγμασι, το νευρωνικό δίκτυο που αναπτύχθηκε δεν λειτουργεί ως μοντέλο πρόβλεψης των εξόδων της μονάδας FCC, αλλά ως διορθωτικός μηχανισμός πάνω στις προβλέψεις που παράγει το μηχανιστικό μοντέλο του HYSYS που προπορεύεται αυτού και παρέχει τα δεδομένα που πραγματοποιούν την εκπαίδευσή του. Δηλαδή, το HYSYS παράγει μια πρόβλεψη ( $X \rightarrow Y$ ), την οποία το νευρωνικό δίκτυο διορθώνει ( $Y \rightarrow Y_{rev}$ ), ωθούμενο από λειτουργικά δεδομένα τα οποία έως τώρα είχαν κρατηθεί κρυφά. Ισοδύναμα, μπορούμε να πούμε ότι με χρήση του νευρωνικού δικτύου πετυχαίνουμε μία de facto μείωση τάξης του μοντέλου του HYSYS, η οποία όμως αξιολογείται με δεδομένα ανεξάρτητα αυτών που χρησιμοποιήθηκαν για τους σκοπούς της ανάπτυξης του συνδυαστικού μοντέλου. Κατ' αυτόν τον τρόπο, έχει τη φαινομενικά παράδοξη δυνατότητα να παράγει προβλέψεις καλύτερες του μοντέλου από το οποίο προήλθε («ο μαθητής γίνεται καλύτερος από τον δάσκαλο»).

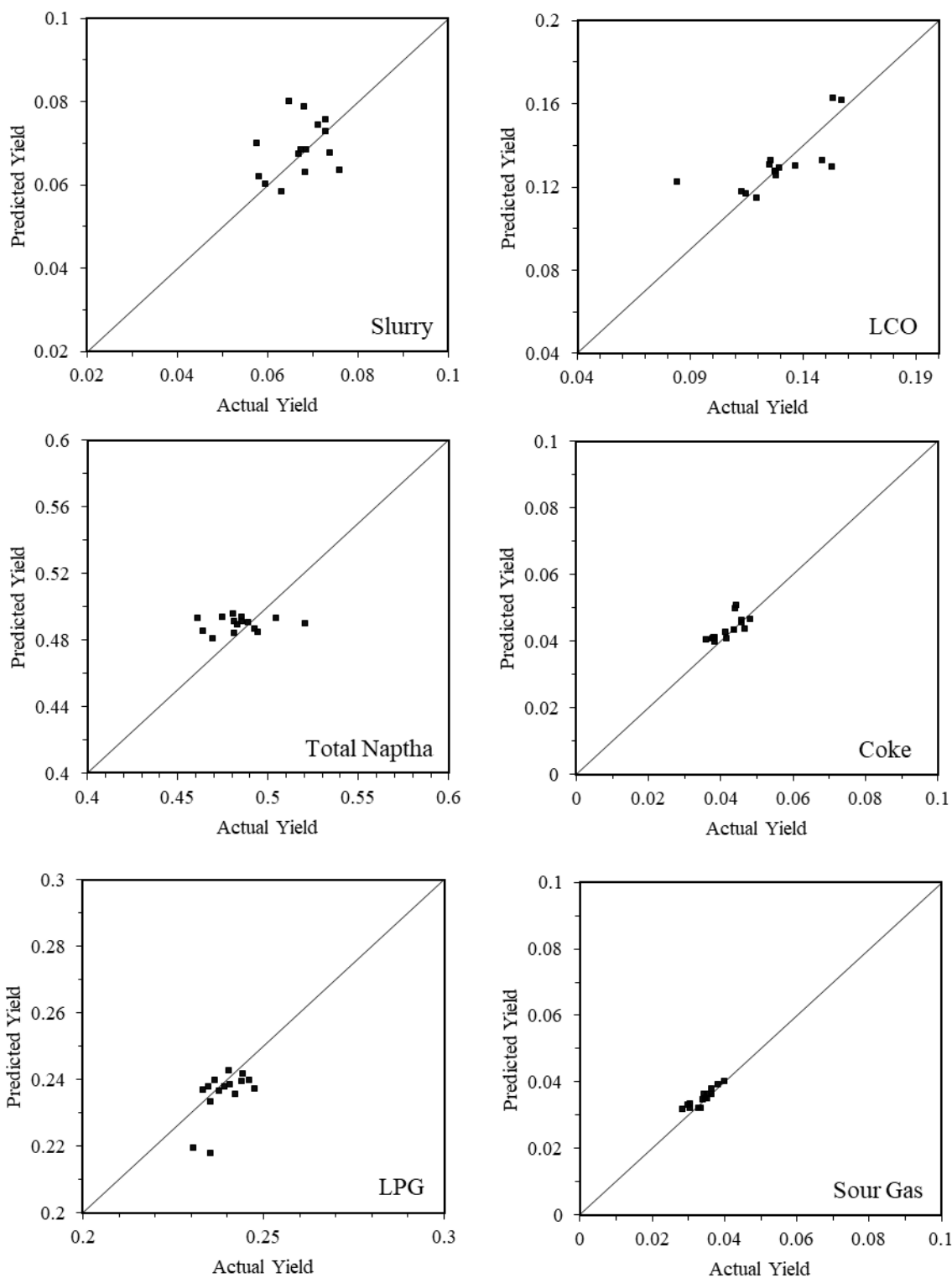
Εξετάστηκαν συστηματικά όλες οι πτυχές της συνδυαστικής δομής μηχανιστικού μοντέλου/νευρωνικού δικτύου και τα αποτελέσματα της έρευνας παρουσιάζονται στην παρούσα ενότητα. Αρχικά, το συνδυαστικό μοντέλο εξετάστηκε ευθέως ως προς την ικανότητα της πρόβλεψης, με ανεξάρτητη μεταβλητή το ποσοστό ενσωμάτωσης των λειτουργικών δεδομένων στη διαδικασία εκπαίδευσης του νευρωνικού δικτύου. Δοκιμάσαμε τα ποσοστά (0,10,20,30,40,50,100%). Τα αποτελέσματα της μελέτης καταγράφονται στον Πίνακα 5.3 και τις εικόνες 5.8-5.14. Τα μακροσκοπικά αποτελέσματα για το συνολικό μοντέλο και τις επιμέρους μεταβλητές καταγράφονται στις εικόνες 5.15-5.18. Στη συνέχεια, αποκρύψαμε ορισμένες ενδιαφέρουσες περιοχές των συνόλων δεδομένων εκπαίδευσης για να αξιολογήσουμε την ικανότητα του μοντέλου να παράγει «τυφλές» προβλέψεις σε περιοχές του δειγματικού χώρου που δεν αποτυπώνονται στα δεδομένα των ΕΛΠΕ, αλλά μπορούν να απεικονιστούν προσεγγιστικά μέσω του HYSYS. Σε όλες τις κατηγορίες προϊόντων, η συνδυαστική χρήση πραγματικών και διαλεγμένων δεδομένων για την εκπαίδευση του μοντέλου υπερτερεί της χρήσης κάθε μιας κατηγορίας δεδομένων ξεχωριστά, όταν τα μοντέλα εξετάζονται στο ίδιο σετ δεδομένων εκπαίδευσης. Τα αναλυτικά διαγράμματα των προβλέψεων με χρήση ενσωμάτωσης δεδομένων περιέχονται στο Παράρτημα Β.

Πίνακας 5.3: Συγκεντρωτικά αποτελέσματα παλινδρόμησης συνδυαστικού μοντέλου Aspen/Neural network. Αναγράφονται οι τιμές των  $RMSE$ ,  $R_2$  και  $Q_2$  ανά κατηγορία προϊόντος με παράμετρο τον βαθμό ενσωμάτωσης των λειτουργικών δεδομένων της μονάδας στη διαδικασία εκπαίδευσης.

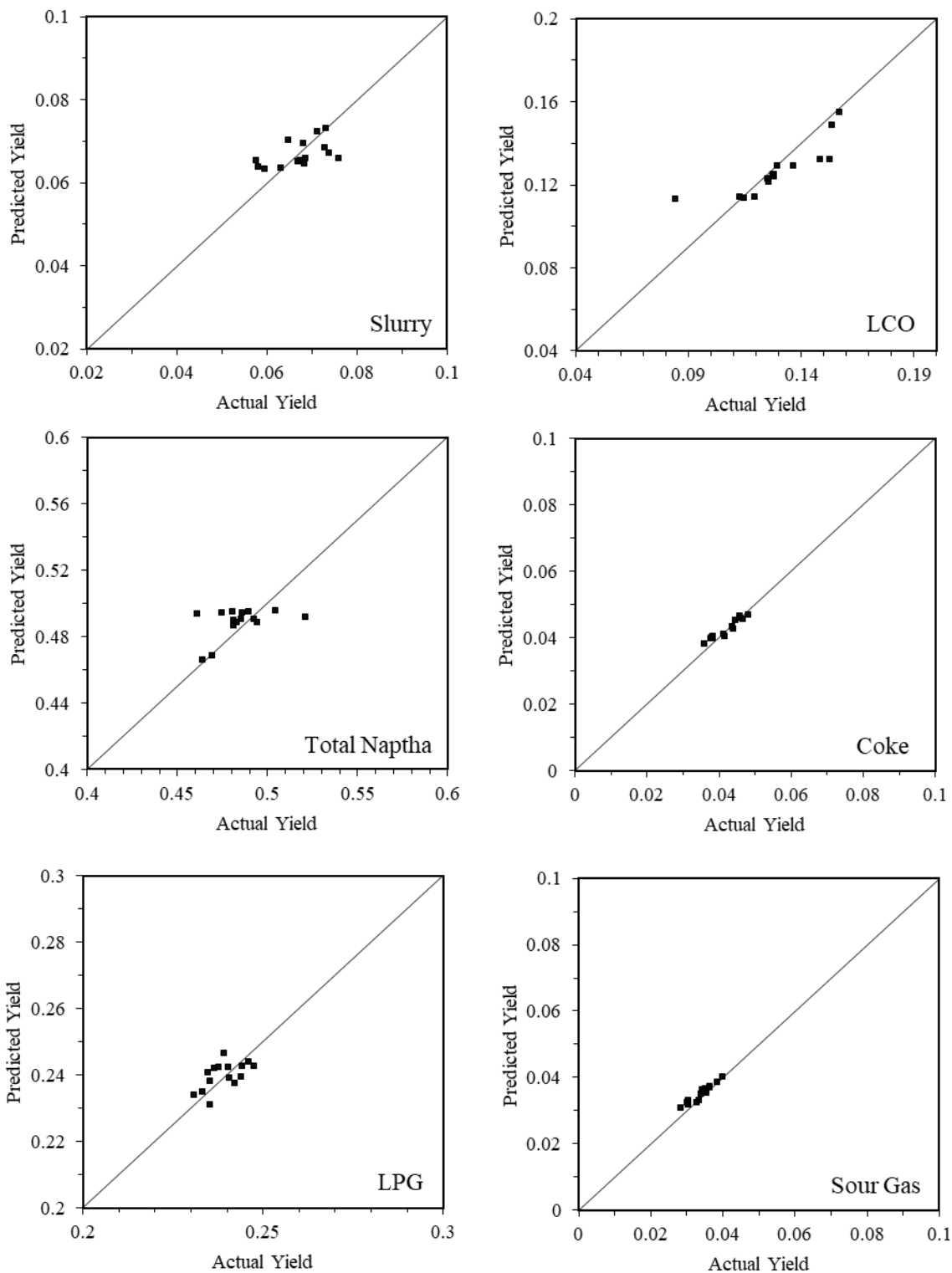
Βαθμός Ενσωμάτωσης		$R_2$	$RMSE$	$Q_2$	$MAPE$	$RMSE$
0%	Slurry	0.999979	3.95E-05	-2.26584	0.134228	0.012158
	LCO	0.99977	0.000267	0.429075	0.087778	0.01462
	Naptha	0.995949	0.000969	-0.20307	0.026915	0.01689
	Coke	0.999733	6.53E-05	0.443934	0.057664	0.003172
	LPG	0.996405	0.000702	-1.02887	0.030479	0.01007
	Sour Gas	0.999912	4.25E-05	0.62201	0.044022	0.001995
	<b>Overall</b>	<b>0.998625</b>	<b>0.000348</b>	<b>-0.33379</b>	<b>0.063515</b>	<b>0.009817</b>
10%	Slurry	0.865957	0.003008	-0.22089	0.079401	0.007434
	LCO	0.991581	0.001532	0.516556	0.071838	0.013453
	Naptha	0.992518	0.00125	-0.10161	0.026086	0.016162
	Coke	0.992431	0.00033	0.465282	0.057002	0.00311
	LPG	0.991117	0.001047	-0.0292	0.021953	0.007172
	Sour Gas	0.995262	0.000295	0.725988	0.040233	0.001698
	<b>Overall</b>	<b>0.971478</b>	<b>0.001243</b>	<b>0.226021</b>	<b>0.049419</b>	<b>0.008172</b>
20%	Slurry	0.882423	0.002666	0.465245	0.057391	0.00492
	LCO	0.960866	0.003125	0.674179	0.058884	0.011044
	Naptha	0.950231	0.00305	0.135623	0.021202	0.014316
	Coke	0.992539	0.00031	0.886423	0.029522	0.001433
	LPG	0.998662	0.000384	0.629231	0.015762	0.004305
	Sour Gas	0.99568	0.000267	0.794054	0.035507	0.001472
	<b>Overall</b>	<b>0.9634</b>	<b>0.001634</b>	<b>0.597459</b>	<b>0.036378</b>	<b>0.006249</b>
30%	Slurry	0.89903	0.002319	0.393296	0.056994	0.00524
	LCO	0.986549	0.00172	0.721142	0.052233	0.010218
	Naptha	0.893388	0.004192	0.10299	0.023155	0.014584
	Coke	0.992531	0.000291	0.827092	0.034618	0.001769
	LPG	0.966543	0.001805	0.681455	0.013862	0.00399
	Sour Gas	0.994631	0.000279	0.633127	0.047222	0.001965
	<b>Overall</b>	<b>0.955445</b>	<b>0.001768</b>	<b>0.55985</b>	<b>0.038014</b>	<b>0.006294</b>
40%	Slurry	0.83057	0.002761	0.359512	0.066154	0.005384
	LCO	0.91232	0.004036	0.616085	0.070519	0.011989
	Naptha	0.670025	0.006777	0.211198	0.021604	0.013676
	Coke	0.982344	0.000411	0.719388	0.040609	0.002253
	LPG	0.770308	0.004346	0.727162	0.013324	0.003693
	Sour Gas	0.951725	0.000769	0.5678	0.046563	0.002133
	<b>Overall</b>	<b>0.852882</b>	<b>0.003183</b>	<b>0.533524</b>	<b>0.043129</b>	<b>0.006521</b>
50%	Slurry	0.371924	0.00483	-0.54825	0.102027	0.008371
	LCO	0.69048	0.00689	0.662862	0.068589	0.011235
	Naptha	0.461304	0.007868	0.369781	0.020189	0.012224
	Coke	0.897485	0.000901	0.802768	0.038287	0.001889
	LPG	0.676034	0.004689	0.495915	0.017444	0.005019
	Sour Gas	0.816167	0.001364	0.464783	0.056902	0.002374
	<b>Overall</b>	<b>0.652232</b>	<b>0.004424</b>	<b>0.374643</b>	<b>0.050573</b>	<b>0.006852</b>
100%	Slurry	0.882423	0.002666	-0.36338	0.102027	0.008371
	LCO	0.960866	0.003125	0.443476	0.068589	0.011235
	TN	0.950231	0.00305	0.090666	0.020189	0.012224
	Coke	0.992539	0.00031	0.713325	0.038287	0.001889
	LPG	0.998662	0.000384	-1.92342	0.017444	0.005019
	Sour Gas	0.99568	0.000267	0.242533	0.056902	0.002374
	<b>Overall</b>	<b>0.9634</b>	<b>0.001634</b>	<b>-0.1328</b>	<b>0.050573</b>	<b>0.006852</b>



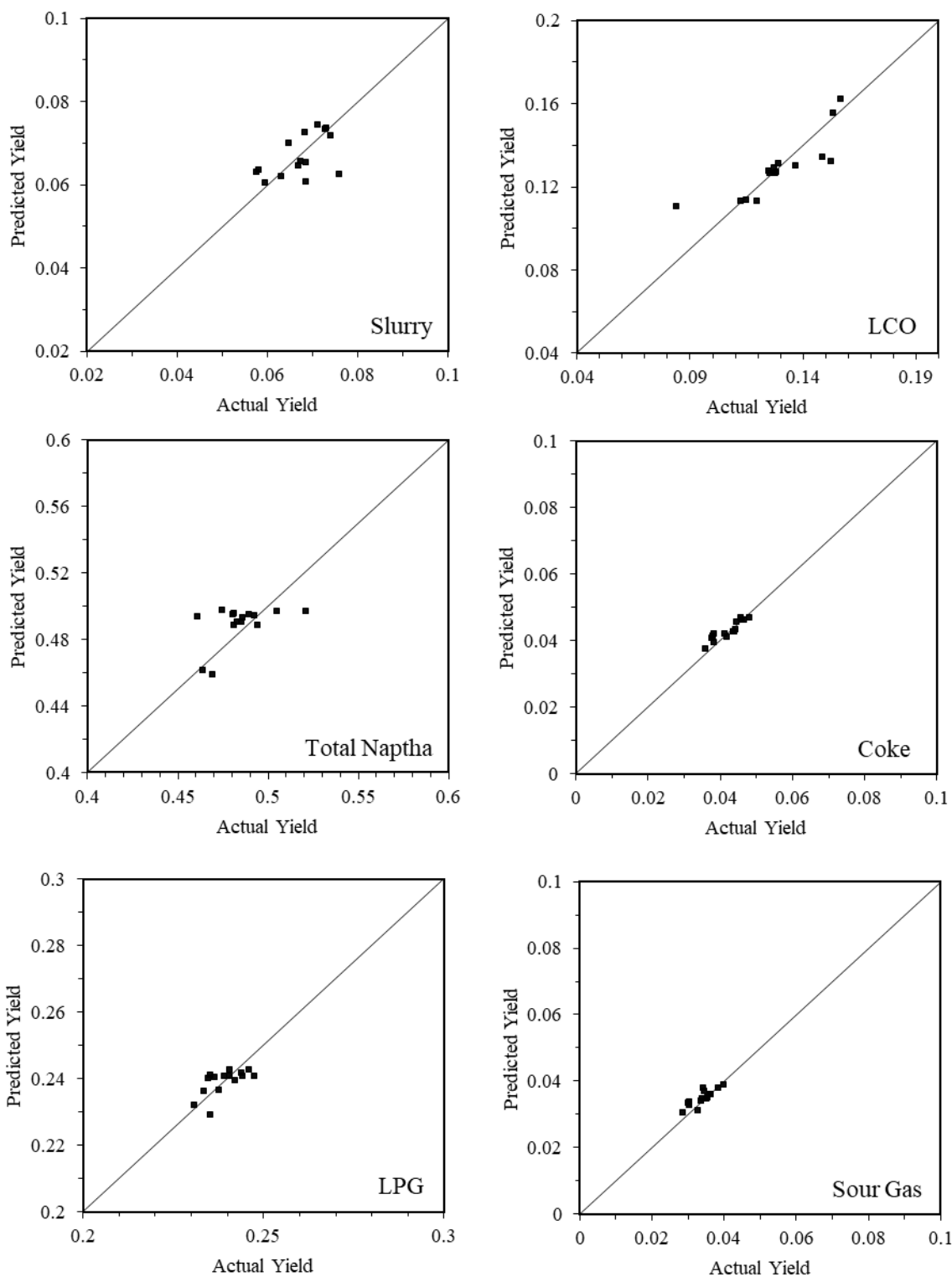
Εικόνα 5.8: Διαγράμματα προσαρμογής (fit) του μοντέλου στα πραγματικά δεδομένα ελέγχου. Οι τιμές της προβλεφθείσας (x) και πραγματικής (y) τιμής αφορούν την επιτυγχανόμενη μετατροπή στα επιμέρους προϊόντα. 0% δεδομένα μονάδας.



Εικόνα 5.9: Διαγράμματα προσαρμογής (fit) του μοντέλου στα πραγματικά δεδομένα ελέγχου. Οι τιμές της προβλεφθείσας (x) και πραγματικής (y) τιμής αφορούν την επιτυγχανόμενη μετατροπή στα επιμέρους προϊόντα. 10% δεδομένα μονάδας.

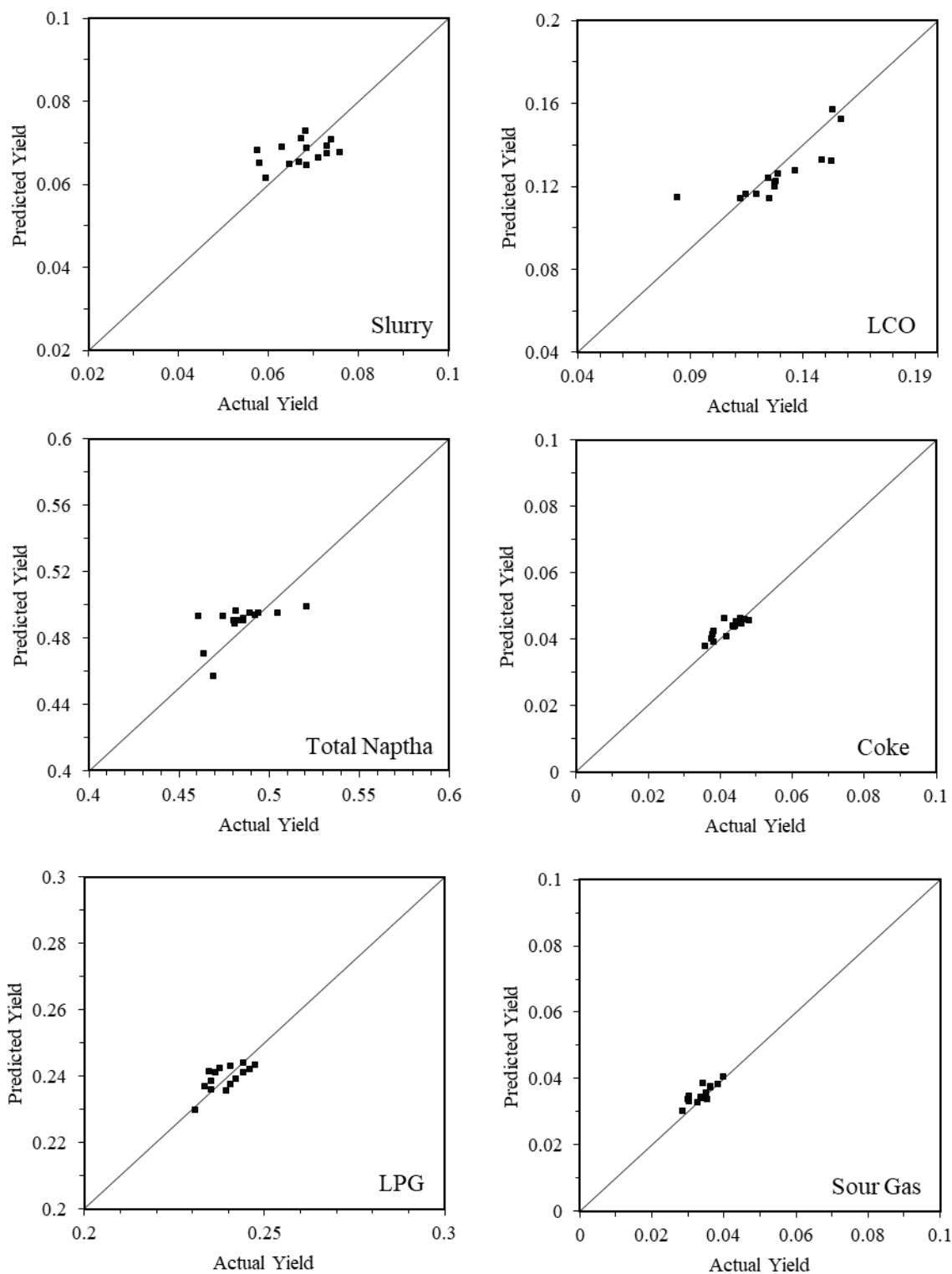


Εικόνα 5.10: Διαγράμματα προσαρμογής (fit) του μοντέλου στα πραγματικά δεδομένα ελέγχου. Οι τιμές της προβλεφθείσας ( $x$ ) και πραγματικής ( $y$ ) τιμής αφορούν την επιτυγχανόμενη μετατροπή στα επιμέρους προϊόντα. 20% δεδομένα μονάδας.

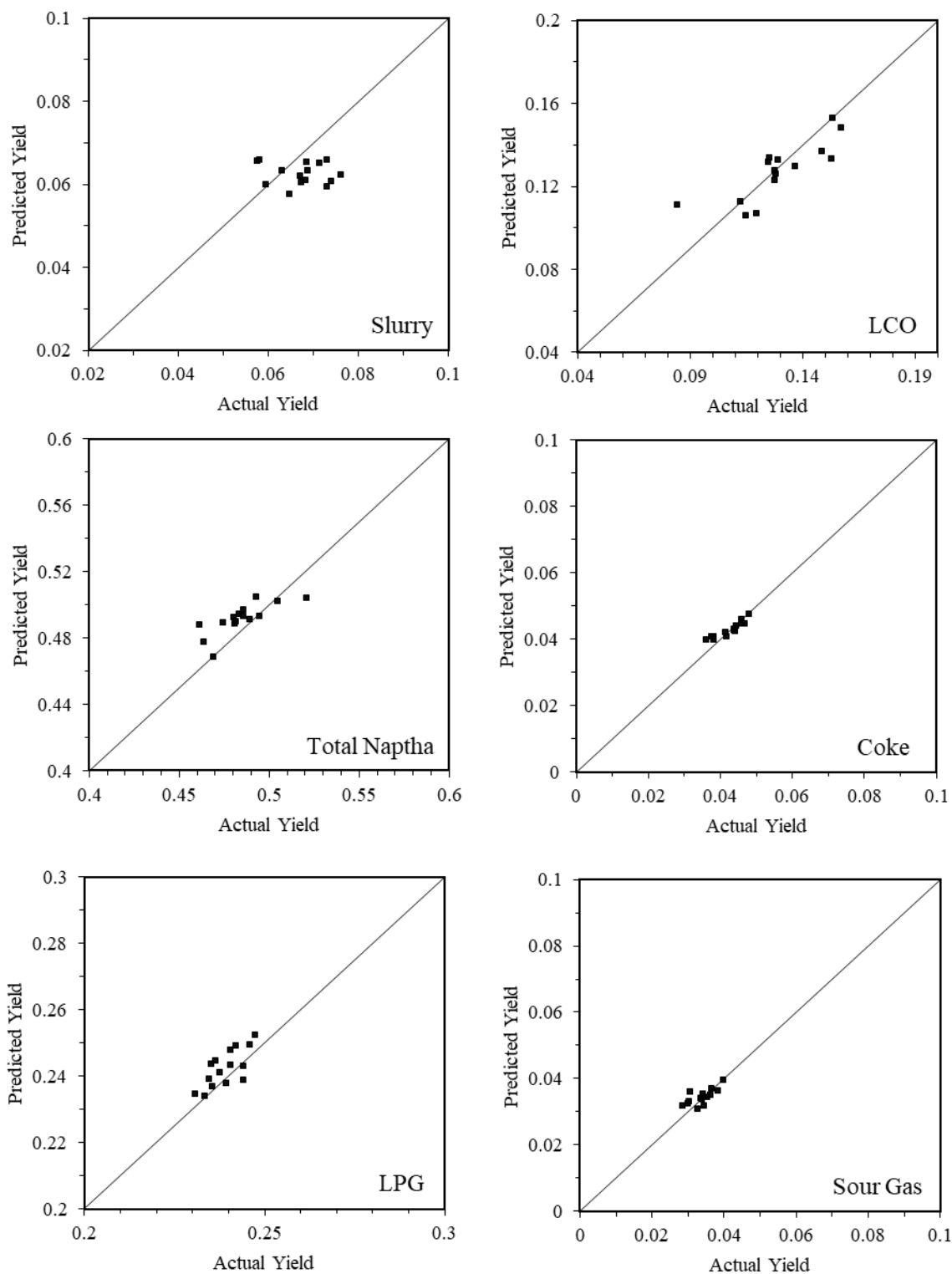


Εικόνα 5.11: Διαγράμματα προσαρμογής (fit) του μοντέλου στα πραγματικά δεδομένα ελέγχου. Οι τιμές της προβλεφθείσας (x) και πραγματικής (y) τιμής αφορούν την επιτυγχανόμενη μετατροπή στα επιμέρους προϊόντα. 30% δεδομένα μονάδας.

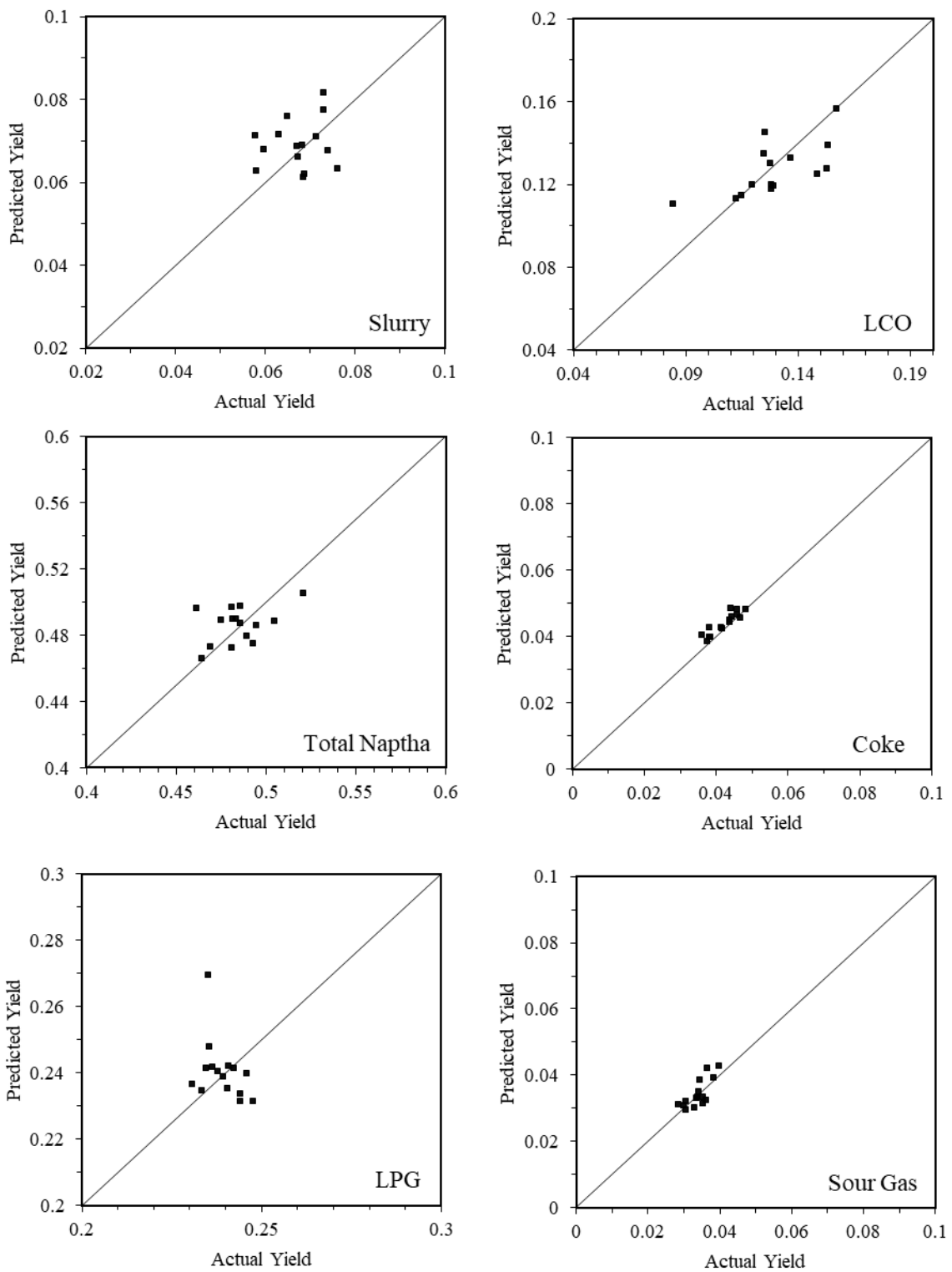




Εικόνα 5.12: Διαγράμματα προσαρμογής (fit) του μοντέλου στα πραγματικά δεδομένα ελέγχου. Οι τιμές της προβλεφθείσας (x) και πραγματικής (y) τιμής αφορούν την επιτυγχανόμενη μετατροπή στα επιμέρους προϊόντα. 40% δεδομένα μονάδας.



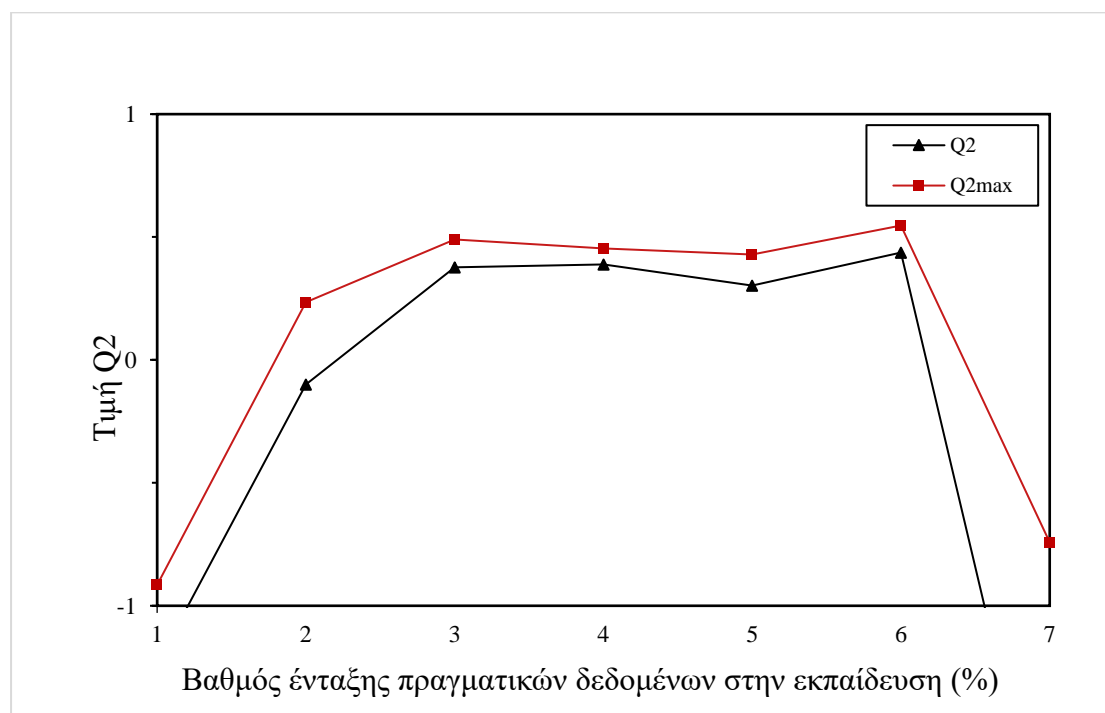
Εικόνα 5.13: Διαγράμματα προσαρμογής (fit) του μοντέλου στα πραγματικά δεδομένα ελέγχου. Οι τιμές της προβλεφθείσας (x) και πραγματικής (y) τιμής αφορούν την επιτυγχανόμενη μετατροπή στα επιμέρους προϊόντα. 50% δεδομένα μονάδας.



Εικόνα 5.14: Διαγράμματα προσαρμογής (fit) του μοντέλου στα πραγματικά δεδομένα ελέγχου. Οι τιμές της προβλεφθείσας (x) και πραγματικής (y) τιμής αφορούν την επιτυγχανόμενη μετατροπή στα επιμέρους προϊόντα. 100% δεδομένα μονάδας.

#### 5.4 Επίδραση ενσωμάτωσης δεδομένων στην ακρίβεια της πρόβλεψης

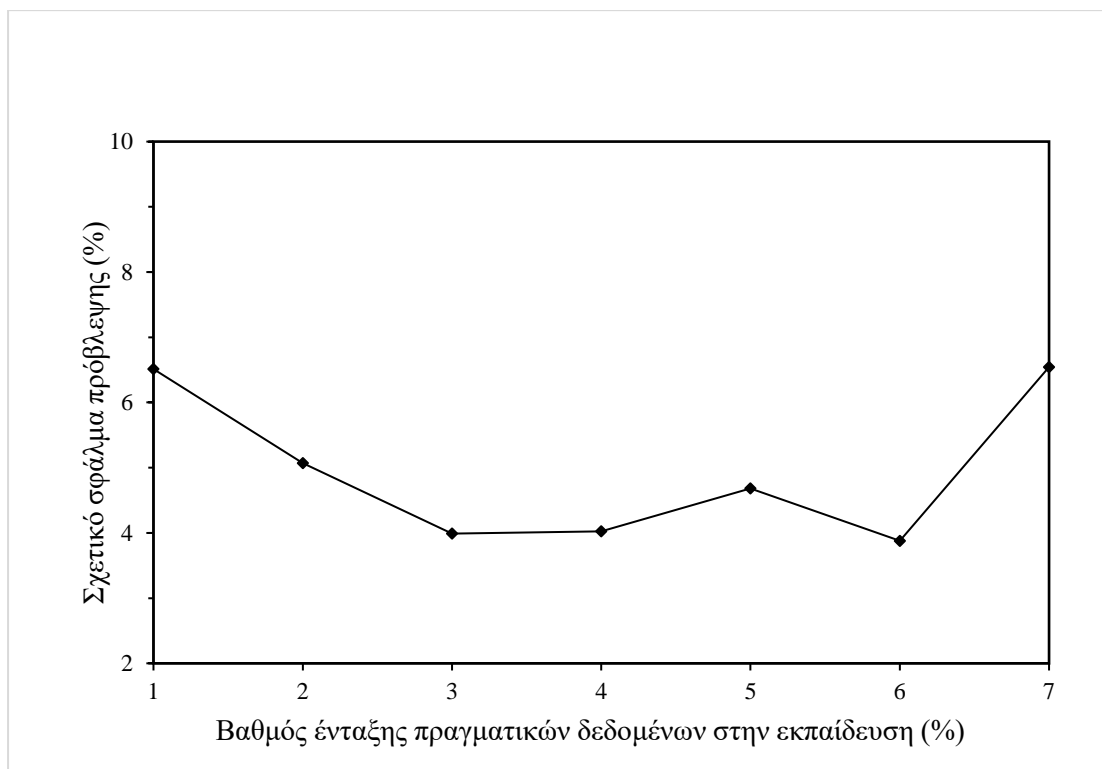
Η ενσωμάτωση λειτουργικών δεδομένων επιδρά θετικά στην ακρίβεια των προβλέψεων τόσο για το συνολικό μοντέλο, όσο και για τις επιμέρους μεταβλητές. Στις Εικόνες 5.8-5.14 φαίνεται η βελτιωτική επίδραση της ενσωμάτωσης δεδομένων στην επιτυγχάνομενη προσαρμογή (fit) των επιμέρους μεταβλητών στα δεδομένα. Για το συνολικό μοντέλο, στο τέλος της κάθε διαδικασίας εκπαίδευσης καταγράφηκαν η μέση τιμή  $Q_2$  που επιτεύχθηκε σε 100 κύκλους εκπαίδευσης, καθώς και η μέγιστη τιμή (Εικόνα 5.15). Τα  $Q_{2,max}$  αντιστοιχούν στα καλύτερα μοντέλα που προέκυψαν από τους 100 κύκλους εκπαίδευσης σε κάθε βαθμίδα ενσωμάτωσης (Πίνακας 5.3). Το μέσο  $Q_2$  αυξήθηκε σε κάθε βήμα ενσωμάτωσης, μέχρι μέγιστης τιμής 0.44, που καταγράφηκε σε ποσοστό ενσωμάτωσης 50%, καταγράφοντας απόλυτη συνολική αύξηση 167%. Παρόμοια τάση εμφανίζει η μέγιστη τιμή  $Q_2$  που καταγράφηκε κατά τη διαδικασία εκπαίδευσης, η οποία σημείωσε τοπικά μέγιστα σε ποσοστά ενσωμάτωσης 20 και 50% και συνολική αύξηση 144% με τελική τιμή 0.54. Η ισχύς της συνδυαστικής χρήσης δεδομένων φαίνεται αν συγκρίνουμε τις ακραίες περιπτώσεις της μελέτης μας: Σε ενσωμάτωση 0% και 100% τα επίπεδα ακρίβειας, μετρούμενα είτε με το  $Q_2$  είτε με το σχετικό σφάλμα είναι συγκρίσιμα και πολύ κατώτερα από αυτά που καταγράφονται σε οποιοδήποτε επίπεδο ενσωμάτωσης.



Εικόνα 5.15: Εξέλιξη του  $Q_2$  των προβλέψεων του μοντέλου ενσωμάτωσης σε διαφορετικούς βαθμούς ένταξης δεδομένων λειτουργίας στη διαδικασία εκπαίδευσης (0,10,20,30,40,50,100%).

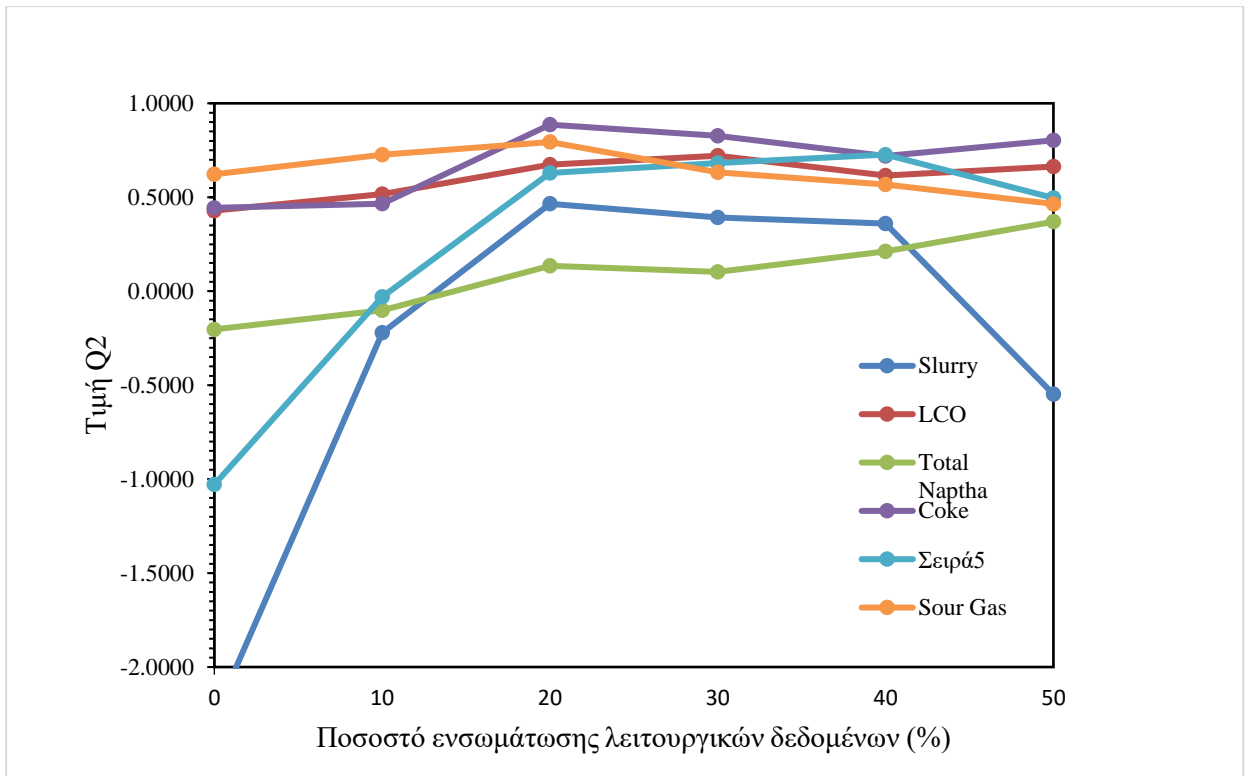
Παρόμοια συμπεριφορά παρουσίασαν τα σχετικά σφάλματα που καταγράφηκαν σε κάθε βαθμίδα ενσωμάτωσης. Στο τέλος της διαδικασίας ενσωμάτωσης, το μέσο σχετικό σφάλμα μειώθηκε κατά 25%, ενώ το ελάχιστο σφάλμα που καταγράφηκε στα μοντέλα που σχηματίστηκαν μειώθηκε κατά 38% (Εικόνα 5.16). Το ποσοστό 20% φαίνεται να

είναι κρίσιμο για τη βελτιωτική δράση της ενσωμάτωσης, καθώς στο ποσοστό αυτό σημειώνεται το 90-95% της σωρευτικής βελτίωσης για τα  $Q_2$ , MAPE, MAPE<sub>min</sub>. Πέραν του ποσοστού αυτού, δεν σημειώνονται αξιόλογες βελτιώσεις. Σε ορισμένες περιπτώσεις (Slurry, LPG), οι προβλέψεις γίνονται κατά μέσο όρο χειρότερες. Μπορούμε να συμπεράνουμε ότι το ποσοστό αυτό είναι ένα «σκληρό» όριο της ακρίβειας της πρόβλεψης και ότι ενσωμάτωση πέραν του βαθμού αυτού ουσιαστικά οδηγεί το δίκτυο σε ταλαντώσεις γύρω από το βέλτιστο σημείο.



Εικόνα 5.16: Εξέλιξη του μέσου σχετικού σφάλματος των προβλέψεων του μοντέλου ενσωμάτωσης σε διαφορετικούς βαθμούς ένταξης δεδομένων λειτουργίας στη διαδικασία εκπαίδευσης (0, 10, 20, 30, 40, 50, 100%).

Εστιάζοντας στις επιμέρους μεταβλητές παρατηρούμε όμοια συμπεριφορά (Εικόνα 5.17). Τα μόνα προϊόντα για τα οποία δεν καταγράφηκε αξιοσημείωτη βελτίωση της πρόβλεψης είναι το Slurry και η ολική νάφθα. Το LPG σημείωσε τη μεγαλύτερη βελτίωση στις προβλέψεις, σε ποσοστό 200%. Το μοντέλο μας πέτυχε αξιοσημείωτα ακριβή πρόβλεψη της παραγωγής κοκ, ο σχηματισμός του οποίου είναι σημαντική παράμετρος που αξιολογείται τακτικά από τους μηχανικούς. Ωστόσο, δεν επετεύχθη ικανοποιητική πρόβλεψη της παραγόμενης νάφθας, η οποία όπως αναφέρθηκε είναι και το προϊόν με την μεγαλύτερη οικονομική αξία για το διυλιστήριο. Ικανοποιητικές προβλέψεις σημειώθηκαν για το LPG, το δεύτερο πιο πολύτιμο προϊόν.

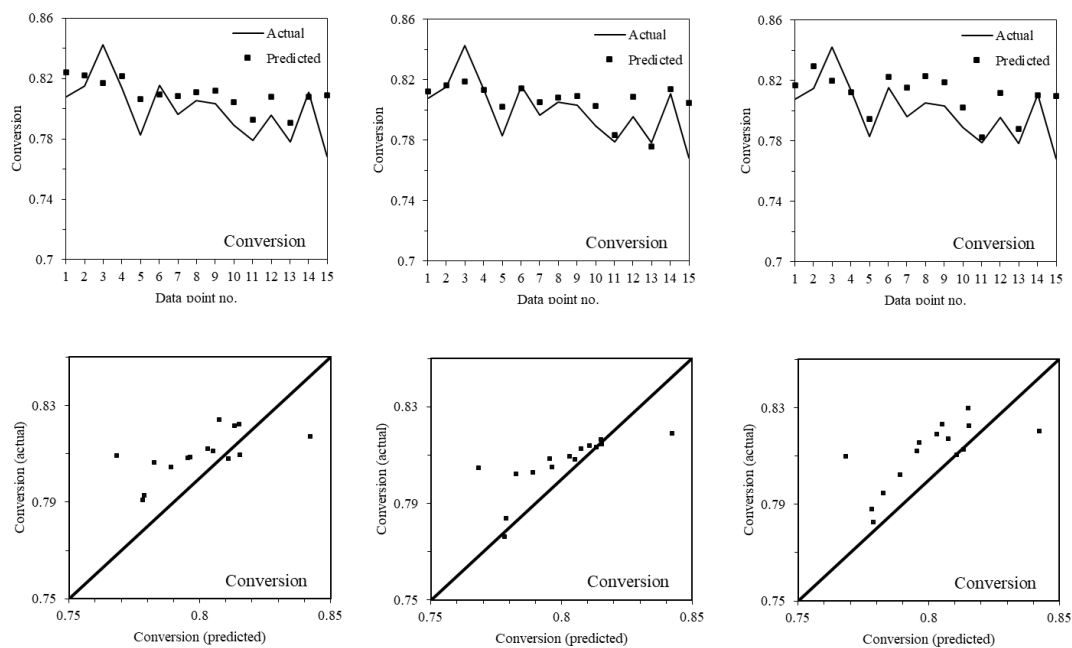


Εικόνα 5.17: Εξέλιξη της επιτυγχανόμενης ακρίβειας πρόβλεψης για τις έξι εξεταζόμενες κατηγορίες προϊόντων, σε αυξανόμενο ποσοστό ενσωμάτωσης δεδομένων στη διαδικασία εκπαίδευσης του μοντέλου.

Συμψηφίζοντας τις τέσσερις μεταβλητές των ελαφρών προϊόντων (Naptha, LPG, Coke, Sour Gas), μπορούμε να πραγματοποιήσουμε προβλέψεις για την επιτυγχανόμενη μετατροπή, ή οποία ορίζεται σύμφωνα με την παρακάτω εξίσωση.

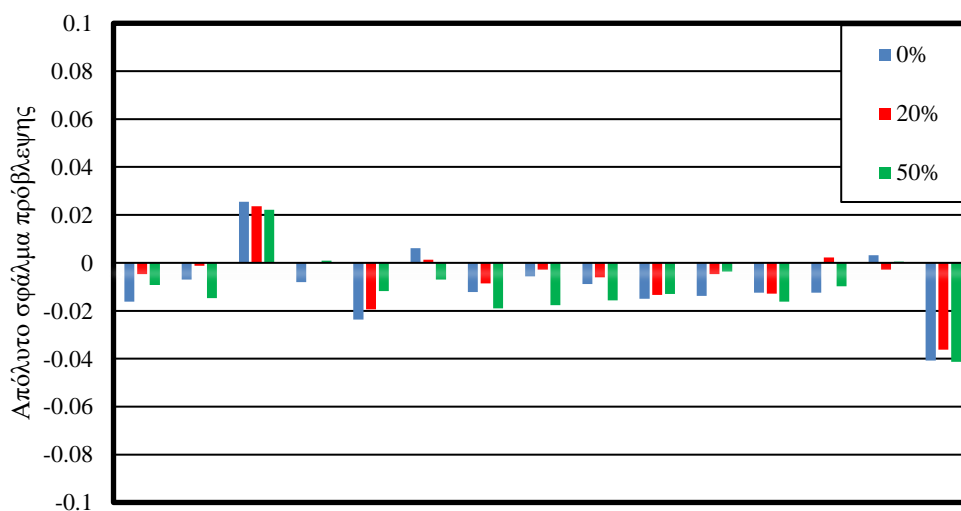
$$\text{Μετατροπή (X)} = \frac{\text{Naptha} + \text{Coke} + \text{LPG} + \text{Sour Gas}}{\text{Feed}}$$

Στα διαγράμματα της μετατροπής διακρίνεται πιο καθαρά η βελτιωτική επίδραση των λειτουργικών δεδομένων στη διαδικασία εκπαίδευσης. Σχεδόν σε όλα τα σημεία του σετ δεδομένων ελέγχου πετυχαίνουμε λιγότερα απόλυτα σφάλματα πρόβλεψης με εισαγωγή μεγαλύτερου αριθμού λειτουργικών δεδομένων στη διαδικασία εκπαίδευσης.



Εικόνα 5.18: Διαγράμματα προσαρμογής της μετατροπής, όπως αυτή μετρήθηκε σε ποσοστά ενσωμάτωσης 0,20,50% (αρ.-δεξ.).

Στην εικόνα 5.19 απεικονίζονται τα απόλυτα σφάλματα της πρόβλεψης της μετατροπής για τα τρία εξεταζόμενα ποσοστά, σε όλα τα σημεία του σετ δεδομένων ελέγχου. Το data embedded μοντέλο σε 20% βαθμό ενσωμάτωσης πετυχαίνει καλύτερα αποτελέσματα απ' ότι το απλό μοντέλο. Μεταξύ 20% και 50% δεν εμφανίζονται αξιοσημείωτες βελτιώσεις. Σε ορισμένα σημεία η ακρίβεια είναι χαμηλότερη στο 50%. Αυτό οφείλεται στην επιδείνωση που παρουσίασαν ορισμένες μεταβλητές που συμμετέχουν στη μετατροπή (LPG, Sour Gas) με χρήση ενσωμάτωσης πέραν του 20%.



Εικόνα 5.19: Απόλυτα σφάλματα πρόβλεψης μετατροπής σε ποσοστά ενσωμάτωσης 0, 20 και 50%.

## 5.5 Συγκριτική αξιολόγηση μοντέλων

Η συνδυαστική χρήση των δεδομένων, αλλά και η χρήση του νευρωνικού δικτύου οδήγησε σε ουσιαστική αύξηση της ακρίβειας των προβλέψεων. Αυτό οδηγεί σε ορισμένα κρίσιμα συμπεράσματα. Στην περίπτωση του μοντέλου μηχανικής μάθησης, η εφαρμογή της διασταυρούμενης επαλήθευσης έδωσε χειρότερα αποτελέσματα απ' ό,τι η αποφυγή της. Αυτό ενδέχεται να προκαλείται από το μικρό μέγεθος του συνόλου δεδομένων εκπαίδευσης. Τα μοντέλα μας σημείωσαν ικανοποιητική ακρίβεια συγκριτικά με μοντέλα που καταγράφονται στη βιβλιογραφία. Στον Πίνακα 5.4, παρουσιάζονται συγκεντρωτικά τα αποτελέσματα της σύγκρισης των μοντέλων μας με την υφιστάμενη βιβλιογραφία. Αξίζει να σημειωθεί ότι ορισμένα από αυτά τα μοντέλα εκπαιδεύθηκαν με σύνολα δεδομένων μίας τάξης μεγέθους μεγαλύτερα από τα δικά μας. Η επίτευξη συγκρίσιμων αποτελεσμάτων από πολύ λιγότερα δεδομένα είναι ευνοϊκή, καθώς μειώνει τις απαιτήσεις για συλλογή δεδομένων εκπαίδευσης, επιβεβαιώνει την καταλληλότητα της δομής για τη μοντελοποίηση της διεργασίας και προσφέρει την προοπτική περαιτέρω βελτίωσης με χρήση μεγαλύτερων σετ δεδομένων.

*Πίνακας 5.4: Σύγκριση των μοντέλων που αναπτύχθηκαν στην παρούσα ΔΕ με αντίστοιχα μοντέλα της βιβλιογραφίας ως προς τα μέσα σφάλματα. Αναγράφεται η πηγή, η χρονολογία και το είδος του μοντέλου (LK, ML, hybrid). Ως DE αναφέρεται η ενσωμάτωση δεδομένων και παρατίθεται το αντίστοιχο ποσοστό.*

	Fang, LK-8	Fang, hybrid	Bollas, 2007 LK-5	Lopes,2010 LK-10	Blitas, DE,0%	Blitas, DE,20%
	MAPE	MAPE	MAPE	MAPE	MAPE	MAPE
Slurry	-	-	-	-	<b>0.1342</b>	<b>0.0573</b>
LCO	0.0615	0.0324	-	-	<b>0.0878</b>	<b>0.0588</b>
Naptha	0.0321	0.0146	0.0217	0.024	<b>0.0269</b>	<b>0.0212</b>
Coke	-	-	0.0551	0.34	<b>0.0577</b>	<b>0.0295</b>
LPG	-	-	0.0438	0.23	<b>0.0305</b>	<b>0.0157</b>
Sour Gas	-	-	0.0945	0.23	<b>0.0440</b>	<b>0.0355</b>

Παρατηρείται ότι όλα τα μοντέλα μας εμφανίζουν συγκρίσιμη, αν όχι ανώτερη ακρίβεια σε σχέση με τα περισσότερα μοντέλα της βιβλιογραφίας, ακόμα και τα πιο σύγχρονα. Υπερτερούν σε σχέση με τα μηχανιστικά μοντέλα, ανεξαρτήτως του αριθμού των lumps που χρησιμοποιούν (5,8,10). Την καλύτερη επίδοση εμφανίζει το μοντέλο ενσωμάτωσης (DE-ML), ιδιαίτερος στις κατηγορίες Sour Gas και LPG. Οι προβλέψεις της νάφθας και του LCO που επιτυγχάνονται κυμαίνονται στα όρια της βιβλιογραφίας. Παρόμοια σύγκριση πραγματοποιήθηκε και με το Aspen HYSYS ώστε να τεκμηριωθεί το επίπεδο της βελτίωσης που επιτυγχάνεται πάνω στα αποτελέσματα πρόβλεψης με χρήση ενσωμάτωσης δεδομένων. Η σύγκριση έγινε πάνω στα αποτελέσματα πρόβλεψης που πραγματοποίησε το Aspen και τα μοντέλα μας για τη νάφθα και το LCO, τα δύο κύρια προϊόντα της καταλυτικής πυρόλυσης. Σε κάθε βήμα ενσωμάτωσης (0-100) καταγράφηκαν τα σχετικά σφάλματα (MAPE) που



χαρακτηρίζουν τις προβλέψεις των μοντέλων μας και συγκρίθηκαν με αυτά του HYSYS.

*Πίνακας 5.5: Σχετικά σφάλματα πρόβλεψης όπως καταγράφηκαν για το HYSYS και τα μοντέλα μας σε διαφορετικά στάδια ενσωμάτωσης δεδομένων (0-100%) για τα 15 σημεία του σετ δεδομένων ελέγχου. Καταγράφονται τα μέσα σχετικά σφάλματα και η βελτίωση που πετυχαίνουμε σε σχέση με το HYSYS. Ο πίνακας αυτός αφορά τις προβλέψεις για το LCO.*

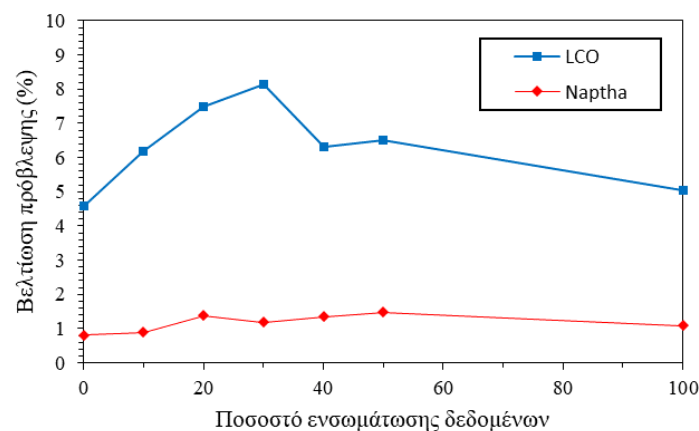
Σημείο δεδομένων	HYSYS	0	20	30	40	50	100
1	0.1122	0.0157	0.0456	0.0555	0.0281	0.1082	0.0001
2	0.0401	0.0983	0.0139	0.0048	0.0149	0.0008	0.0038
3	0.3247	0.5094	0.3426	0.3134	0.3618	0.3162	0.3134
4	0.0583	0.0751	0.0090	0.0095	0.0133	0.0794	0.0000
5	0.1949	0.0933	0.1111	0.0951	0.1058	0.0808	0.1607
6	0.0602	0.0633	0.0150	0.0226	0.0083	0.0530	0.0796
7	0.1292	0.0229	0.0569	0.0501	0.0681	0.0510	0.0295
8	0.0873	0.0290	0.0189	0.0134	0.0626	0.0366	0.0182
9	0.1023	0.0144	0.0336	0.0080	0.0432	0.0188	0.0656
10	0.2151	0.1116	0.1354	0.1351	0.1354	0.1287	0.1671
11	0.2171	0.0700	0.0304	0.0114	0.0224	0.0034	0.0946
12	0.0908	0.0368	0.0244	0.0108	0.0480	0.0043	0.0818
13	0.2264	0.0799	0.0134	0.0318	0.0314	0.0555	0.0035
14	0.0637	0.0651	0.0329	0.0068	0.0893	0.0661	0.1577
15	0.0828	0.0320	0.0003	0.0151	0.0251	0.0261	0.0756
<b>Μέσο σχ. σφάλμα</b>	<b>0.1337</b>	<b>0.0878</b>	<b>0.0589</b>	<b>0.0522</b>	<b>0.0705</b>	<b>0.0686</b>	<b>0.0834</b>
<b>Βελτίωση (%)</b>	<b>-</b>	<b>4.59%</b>	<b>7.48%</b>	<b>8.15%</b>	<b>6.32%</b>	<b>6.51%</b>	<b>5.03%</b>

Παρατηρούμε ότι τα μοντέλα μας βελτιώνουν σε αξιοσημείωτο βαθμό τις προβλέψεις του HYSYS. Η βελτίωση αυξάνεται με αύξηση του ποσοστού ενσωμάτωσης έως βέλτιστης τιμής στο 30%. Πέραν του ποσοστού αυτού, η βελτίωση είναι μικρότερη, αλλά σε κάθε περίπτωση επιτυγχάνεται βελτίωση σε σχέση με το Aspen όχι μόνον κατά μέσο όρο, αλλά και σε κάθε πειραματικό σημείο ξεχωριστά. Ομοίως, παρατηρήθηκε βελτίωση των προβλέψεων της νάφθας, αλλά σε μικρότερο βαθμό (Πίνακα 5.6).

Πίνακας 5.6: Σχετικά σφάλματα πρόβλεψης όπως καταγράφηκαν για το HYSYS και τα μοντέλα μας σε διαφορετικά στάδια ενσωμάτωσης δεδομένων (0-100%) για τα 15 σημεία του σετ δεδομένων ελέγχου. Καταγράφονται τα μέσα σχετικά σφάλματα και η βελτίωση που πετυχαίνουμε σε σχέση με το HYSYS. Ο πίνακας αυτός αφορά τις προβλέψεις για τη νάφθα.

Σημείο δεδομένων	HYSYS	0	20	30	40	50	100
1	0.0045	0.0040	0.0115	0.0146	0.0155	0.0151	0.0190
2	0.0035	0.0103	0.0051	0.0032	0.0019	0.0234	0.0368
3	0.0517	0.0592	0.0562	0.0466	0.0428	0.0333	0.0299
4	0.0171	0.0212	0.0129	0.0117	0.0013	0.0032	0.0172
5	0.0566	0.0465	0.0413	0.0473	0.0383	0.0307	0.0299
6	0.0056	0.0149	0.0184	0.0160	0.0192	0.0052	0.0324
7	0.0331	0.0232	0.0175	0.0145	0.0116	0.0147	0.0240
8	0.0219	0.0131	0.0099	0.0101	0.0090	0.0225	0.0024
9	0.0163	0.0088	0.0108	0.0142	0.0142	0.0226	0.0131
10	0.0375	0.0267	0.0292	0.0294	0.0197	0.0237	0.0337
11	0.0631	0.0299	0.0028	0.0234	0.0275	0.0015	0.0069
12	0.0240	0.0124	0.0176	0.0295	0.0305	0.0175	0.0167
13	0.0776	0.0429	0.0044	0.0058	0.0129	0.0285	0.0041
14	0.0214	0.0109	0.0107	0.0107	0.0108	0.0028	0.0208
15	0.0911	0.0797	0.0700	0.0705	0.0688	0.0580	0.0751
Μέσο σχ. σφάλμα	0.0350	0.0269	0.0212	0.0232	0.0216	0.0202	0.0241
Βελτίωση (%)	-	0.81%	1.38%	1.18%	1.34%	1.48%	1.09%

Στην Εικόνα 5.20 καταγράφεται η βελτίωση που επιτεύχθηκε με την ενσωμάτωση δεδομένων σε κάθε εξεταζόμενο ποσοστό. Αύξηση του ποσοστού ενσωμάτωσης κατά 10% επιφέρει μείωση του σχετικού σφάλματος πρόβλεψης σε ποσοστό 1.14% κατά μέσο όρο στο LCO (έως ποσοστού 30%) και 0.15% στη νάφθα (έως ποσοστού 50%).

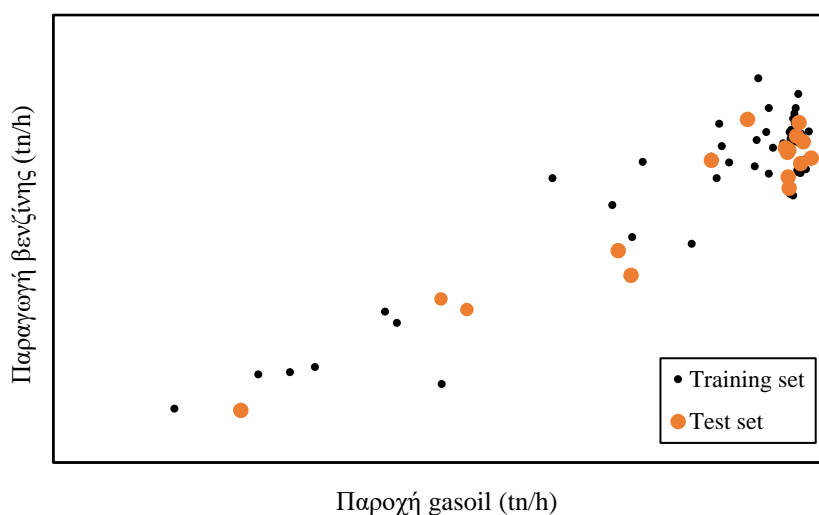


Εικόνα 5:20: Βελτίωση σχετικών σφαλμάτων πρόβλεψης ως προς το ποσοστό ενσωμάτωσης.

## 5.6 Διερεύνηση ικανότητας γενίκευσης του νευρωνικού δικτύου

Στην ενότητα 3.4 αναφέρθηκε ότι είναι στόχος της παρούσας ΔΕ να αξιολογηθεί η επίδραση της ενσωμάτωσης λειτουργικών δεδομένων στην ικανότητα γενίκευσης (generalization) του μοντέλου νευρωνικού δικτύου, δηλαδή στην ικανότητα του δικτύου να πραγματοποιεί προβλέψεις σε περιοχές του δειγματικού χώρου τις οποίες δεν έχει εξερευνήσει κατά τη διάρκεια της εκπαίδευσής του. Ο διαχωρισμός των δεδομένων σε δεδομένα εκπαίδευσης και δεδομένα ελέγχου εξυπηρετεί ακριβώς αυτόν τον σκοπό.

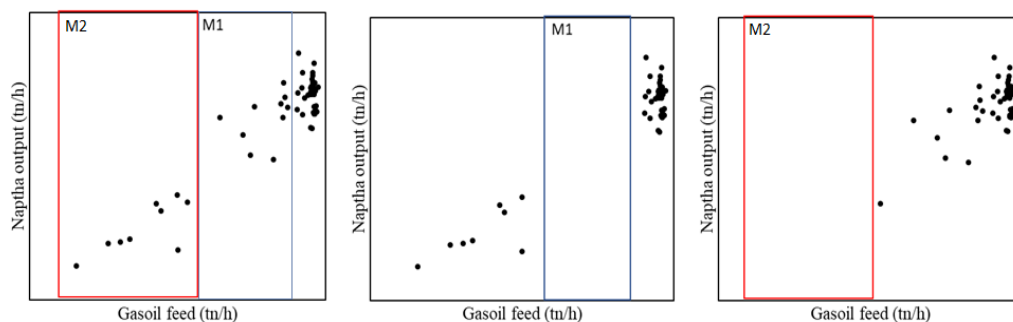
Παρότι η εξέλιξη της ποιότητας των προβλέψεων του νευρωνικού δικτύου που απεικονίζεται στις Εικόνες και τους Πίνακες αποτελεί μια ένδειξη ισχύος της υπόθεσης που διατυπώσαμε στην ενότητα 3.4, ουσιαστικά αποδεικνύει μια «ασθενή» εκδοχή της υπόθεσης αυτής. Τα δεδομένα που διαλέξαμε με τυχαία διαδικασία για να δημιουργήσουμε το σετ ελέγχου 15 σημείων που χρησιμοποιείται για τον έλεγχο των μοντέλων μας βρίσκονται «κοντά» στα δεδομένα που χρησιμοποιήθηκαν για την εκπαίδευση των ίδιων μοντέλων (Εικόνα 5.21):



Εικόνα 5.21: Στοιχεία για την παραγωγή βενζίνης ως προς την ογκομετρική ροή gasoil στην πραγματική μονάδα. Με πορτοκαλί απεικονίζονται τα σημεία που χρησιμοποιήσαμε ως σημεία ελέγχου των μοντέλων. Τα δεδομένα έχουν υποστεί scrambling και δεν απεικονίζονται αριθμητικές τιμές προς διασφάλιση της εμπιστευτικότητας των δεδομένων.

Για να προσφέρουμε μια «ισχυρή» απόδειξη της βελτίωσης της ικανότητας γενίκευσης του δικτύου που παρέχεται από την ενσωμάτωση δεδομένων, αποκόψαμε ορισμένες ενδιαφέρουσες περιοχές από τον δειγματικό χώρο που απεικονίζεται στην Εικόνα, εκπαιδεύσαμε το νευρωνικό δίκτυο με τις υπόλοιπες και χρησιμοποιήσαμε τις αποκομμένες τιμές ως νέα σετ δεδομένων ελέγχου. Με την πλήρη αποκοπή των περιοχών αυτών, μπορούμε να μελετήσουμε τη συμπεριφορά του δικτύου μας σε ατυπικούς χώρους δεδομένων λειτουργίας. Διεξάγαμε δύο μελέτες περιπτώσεων, εκ

των οποίων μία ήταν μελέτη παρεμβολής (εφεξής «M1») και η άλλη μελέτη προεκβολής (εφεξής «M2»). Για να διεξάγουμε τις μελέτες M1 και M2, αποκόψαμε τα αντίστοιχα σημεία δεδομένων στο μέσον και αριστερά του χώρου των δεδομένων:

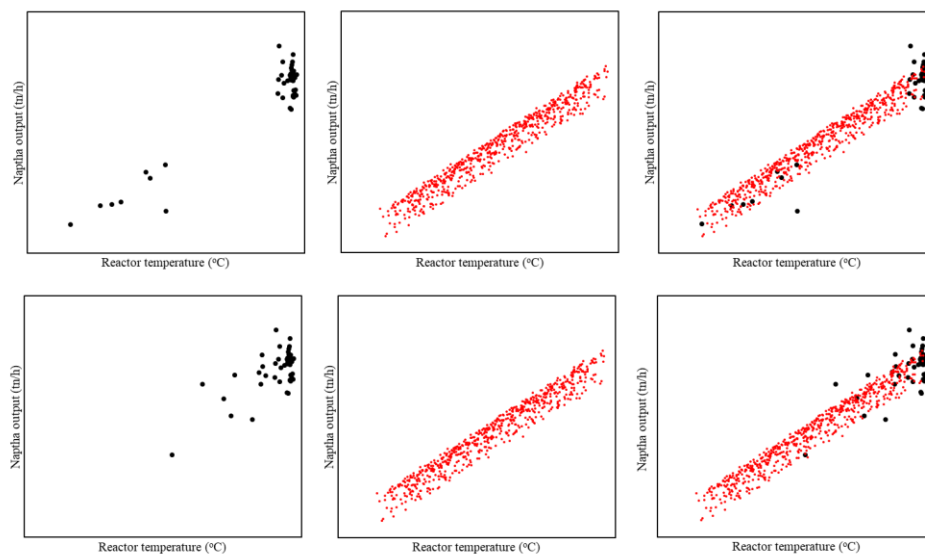


Εικόνα 5.22: Προετοιμασία του αρχικού συνόλου δεδομένων για διεξαγωγή μελέτης παρεμβολής (M1) και προεκβολής (M2), με απόκρυψη των αντίστοιχων περιοχών του χώρου.

Οι περιοχές είναι ενδιαφέρουσες διότι βρίσκονται μακριά από τα συσσωρευμένα δεδομένα λειτουργίας στις υψηλότερες τιμές της παροχής. Ένα νευρωνικό δίκτυο δεν «βλέπει» τις περιοχές αυτές πολλές φορές κατά τη διάρκεια της εκπαίδευσής του και συνεπώς οι προβλέψεις στα σημεία αυτά στερούνται ακρίβειας. Στις δύο μελέτες περιπτώσεων, εξετάσαμε τρεις εναλλακτικές ως προς την εκπαίδευση των δικτύων:

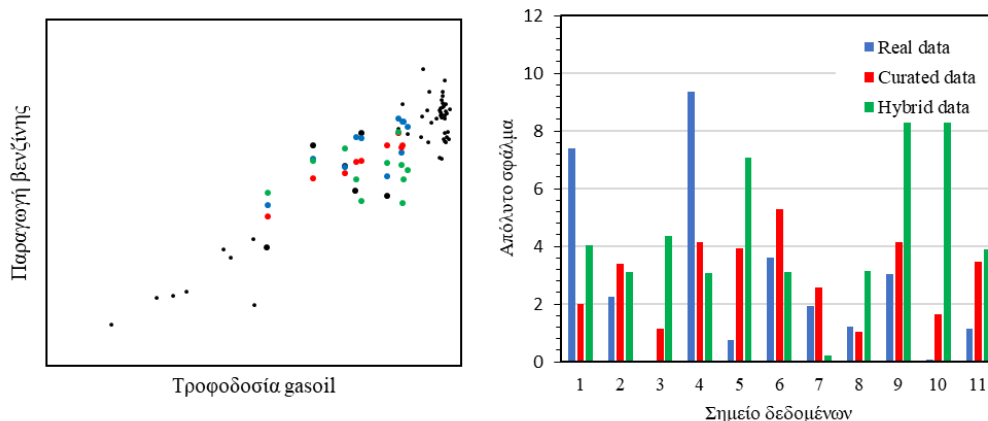
- I. Εκπαίδευση μόνον με τα υπόλοιπα σημεία πλην των αποκομμένων
- II. Εκπαίδευση μόνον με τα curated σημεία του συνόλου  $ds_1$
- III. Εκπαίδευση με συνδυασμό των δύο ανωτέρω συνόλων

Ο δειγματικός χώρος που εξερευνά σε κάθε περίπτωση το δίκτυο απεικονίζεται στα διαγράμματα της Εικόνας 5.23:



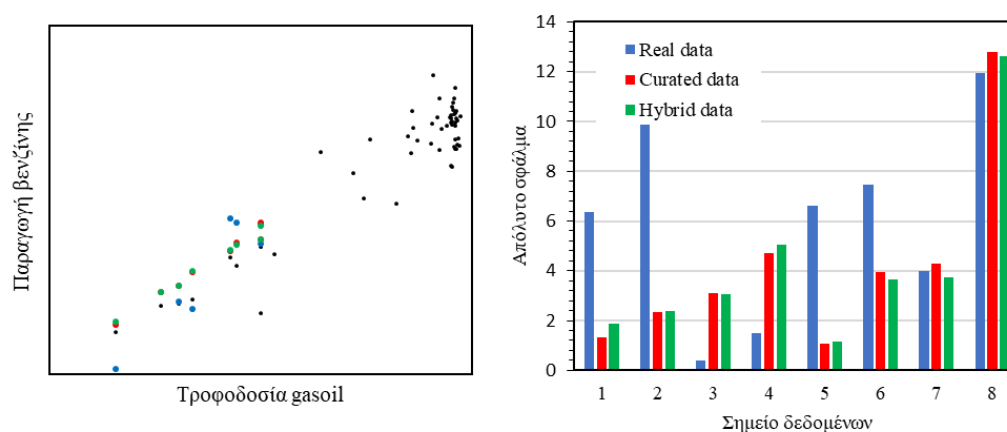
Εικόνα 5.23: Δειγματικός χώρος μελέτης M1 (άνω), M2 (κάτω). Από αριστερά προς τα δεξιά απεικονίζονται οι περιπτώσεις I, II, III.

Η μελέτη παρεμβολής (M1) δεν έδειξε σημαντική επίδραση της ενσωμάτωσης δεδομένων στα αποτελέσματα πρόβλεψης των μοντέλων. Και στις τρεις περιπτώσεις που διερευνήθηκαν, τα σφάλματα της πρόβλεψης ήταν όμοια και παρέμειναν σε υψηλά επίπεδα σε όλα τα πειραματικά σημεία. Η εκπαίδευση μόνον με δεδομένα προσομοίωσης έδωσε ελαφρώς καλύτερα αποτελέσματα από τις υπόλοιπες κατηγορίες, αλλά όχι σε βαθμό που μπορεί να αξιολογηθεί ως βελτίωση.



Εικόνα 5.24: Αποτελέσματα μελέτης παρεμβολής (M1). Καταγράφονται τα απόλυτα σφάλματα σε κάθε πειραματικό σημείο.

Η μελέτη προεκβολής (M2) έδωσε παρόμοια αποτελέσματα. Στα μισά πειραματικά σημεία, η συνδυαστική χρήση διαλεγμένων/πραγματικών δεδομένων έδωσε τα μικρότερα σφάλματα πρόβλεψης. Σε ισάριθμα σημεία, η χρήση μόνον πραγματικών δεδομένων έδωσε μικρότερα σφάλματα από την συνδυαστική χρήση δεδομένων ή τη χρήση μόνον δεδομένων προσομοίωσης. Τα σφάλματα είναι μικρότερα σε σχέση με τη μελέτη παρεμβολής. Ενδελεχέστερη ανάλυση των αποτελεσμάτων δεν είναι εφικτή στην παρούσα φάση. Προτείνεται διεύρυνση των βάσεων δεδομένων και επανάληψη των πειραμάτων, ώστε να μελετηθούν αναδυόμενες τάσεις ως προς την κατανομή των σφαλμάτων της πρόβλεψης.



Εικόνα 5.25: Αποτελέσματα μελέτης προεκβολής (M2). Καταγράφονται τα απόλυτα σφάλματα σε κάθε πειραματικό σημείο.

## 5.7 Παρατηρήσεις για τον υπολογιστικό χρόνο

Κατά τη διάρκεια των πειραμάτων, πραγματοποιήθηκαν χρονομετρήσεις για να εκτιμηθεί η ταχύτητα της απόκρισης των συστημάτων μας από τη στιγμή που δέχονται τα δεδομένα εισόδου, δηλαδή το χρονικό διάστημα μεταξύ εισόδου-εξόδου. Η παράμετρος του χρόνου είναι σημαντική όταν αξιολογούμε την επίδοση ενός μοντέλου. Ο χρόνος που απαιτείται για την πραγματοποίηση πρόβλεψης σε ένα μόνον σημείο μπορεί να είναι ασήμαντος, αλλά σε ενδεχόμενη κλιμακοποιημένη χρήση του μοντέλου (π.χ. ως βάση για την κατασκευή πιο σύνθετων μοντέλων, μηχανιστικών ή οδηγούμενων από τα δεδομένα) για την πραγματοποίηση προβλέψεων σε εκατοντάδες ή χιλιάδες σημεία, μπορεί να περιορίσει την ευχρηστία ενός μοντέλου. Πραγματοποιήθηκε συγκριτική αξιολόγηση των συνδυαστικών μοντέλων μας σε σχέση με το Aspen HYSYS, ως προς τον απαιτούμενο χρόνο για την πραγματοποίηση μιας πρόβλεψης, σε 15 σημεία του δειγματικού χώρου. Τα αποτελέσματα της σύγκρισης παρουσιάζονται στον Πίνακα 5.7:

*Πίνακας 5.7: Μετρήσεις απαιτούμενου χρόνου για την πραγματοποίηση προβλέψεων από το HYSYS και το μοντέλο ενσωμάτωσης δεδομένων. Οι χρόνοι είναι σε δευτερόλεπτα (s).*

<i>Σημείο δεδομένων</i>	<i>HYSYS</i>	<i>Data Embedded model</i>
1	1.91	0.041
2	0.97	0.038
3	1.95	0.036
4	1	0.038
5	0.9	0.036
6	0.91	0.046
7	0.95	0.038
8	0.97	0.039
9	0.71	0.040
10	1.18	0.035
11	0.88	0.040
12	0.75	0.037
13	0.68	0.036
14	0.75	0.038
15	0.58	0.039
<b><i>Μέση τιμή</i></b>	<b><i>1.006</i></b>	<b><i>0.038</i></b>

Τα μοντέλα μας είναι σε θέση να πραγματοποιήσουν προβλέψεις σε χρόνους πολύ μικρότερους από ότι το Aspen. Συγκεκριμένα, χρησιμοποιώντας και στις δύο περιπτώσεις τις ίδιες εισόδους, κατά μέσο όρο, το δίκτυο που αναπτύξαμε πραγματοποιεί προβλέψεις στο 4% του χρόνου που χρειάζεται το Aspen για να πραγματοποιήσει την ίδια πρόβλεψη.

## 6. Συμπεράσματα – Προτάσεις

### 6.1 Συμπεράσματα

Στα πλαίσια της συγκεκριμένης εργασίας κατασκευάστηκαν πολλά μοντέλα που προσομοιώνουν την καταλυτική πυρόλυση, μια διεργασία κρίσιμης σημασίας για ένα διυλιστήριο. Σε ορισμένα από τα μοντέλα αυτά εντάχθηκε η νέα τεχνική της ενσωμάτωσης δεδομένων, για να εξακριβωθεί αν και κατά πόσο επιδρά στη βελτίωση της ακρίβειας των προβλέψεων. Στα μοντέλα που αναπτύχθηκαν χρησιμοποιήθηκαν νέες τεχνικές και υπολογιστικά εργαλεία, ώστε να αξιολογηθεί η χρησιμότητά τους έναντι των παλαιότερων. Όλα τα μοντέλα συγκρίθηκαν βάσει των εσωτερικών χαρακτηριστικών και του είδους των εξωτερικών επιβολών που δέχονται. Προέκυψαν χρήσιμα συμπεράσματα σχετικά με τον ρόλο των δεδομένων διαφορετικής προέλευσης στη διαδικασία της εκπαίδευσης και την ορθή σειρά βημάτων ανάπτυξης ενός νευρωνικού δικτύου. Τα βασικά ευρήματα της έρευνας παρουσιάζονται παρακάτω:

- Η ακρίβεια των προβλέψεων παρουσιάζει εξαιρετική ευαισθησία ως προς τα υπολογιστικά εργαλεία που χρησιμοποιούνται στα νευρωνικά δίκτυα. Τα εργαλεία που χρησιμοποιούνται μπορούν να αναδείξουν ή να καταστείλουν την ποιότητα των δεδομένων που χρησιμοποιούνται. Η χρήση μη γραμμικών συναρτήσεων ενεργοποίησης προστατεύει γενικώς ενάντια στην υπερπροσαρμογή. Η επίτευξη αφύσικα υψηλών τιμών  $R_2$  σε πρώιμα στάδια της εκπαίδευσης είναι ένδειξη υπερπροσαρμογής και πρέπει να αντιμετωπίζεται με εναλλαγή συνάρτησης ενεργοποίησης. Γενικώς, είναι καλό η συνάρτηση ενεργοποίησης να είναι η πρώτη παράμετρος εκπαίδευσης που επιλέγεται, αφού καθορίζει στον μεγαλύτερο βαθμό των επιτυγχανόμενο βαθμό ακρίβειας, πέραν από την ποιότητα των ίδιων των δεδομένων. Είναι επίσης απαραίτητο να εξακριβώνεται σε κάθε διαδικασία εκπαίδευσης να εξαντλούνται όλες οι φάσεις της καμπύλης που περιγράφηκε στην Εικόνα 5.3, ώστε να επιτυγχάνεται το ελάχιστο σφάλμα γενίκευσης.
- Η ενσωμάτωση των λειτουργικών δεδομένων της μονάδας στη διαδικασία εκπαίδευσης κρίνεται σε πρώτο βαθμό επιτυχής, αλλά μόνον σε ορισμένες περιπτώσεις και μέχρι ενός σημείου. Όταν η συνδυαστική χρήση εξετάστηκε ευθέως, σε σημεία του χώρου με υψηλή πυκνότητα δεδομένων, πετύχαμε καλύτερη ακρίβεια σε σχέση με τη χρήση μόνον διαλεγμένων δεδομένων ή μόνο δεδομένων λειτουργίας. Είναι προφανές ότι τα curated δεδομένα, με πληθυσμό δύο τάξεων μεγέθους μεγαλύτερο απ' ότι το σετ λειτουργικών δεδομένων πληρώνουν τα κενά του δεύτερου σετ, καθοδηγώντας το δίκτυο σε καλύτερες προβλέψεις. Ωστόσο, η βελτιωτική τους επίδραση σταματά πέραν κάποιου ποσοστού ενσωμάτωσης (20%), συμπέρασμα παράδοξο δεδομένου ότι τα επιπλέον δεδομένα που προστίθενται σε κάθε βήμα θεωρητικά δρουν προσθετικά, παρά αφαιρετικά στα ήδη υπάρχοντα δεδομένα. Μία πιθανή εξήγηση είναι ότι μετά το 20% ενσωμάτωσης η εκπαίδευση έχει ήδη φτάσει στο σκληρό όριο που επιβάλλουν τα ίδια τα δεδομένα και τα αποτελέσματα σε 30,40,50% αποτελούν ταλαντώσεις γύρω από τη βέλτιστη τιμή, που οφείλονται

σε διαφορετικές αρχικές συνθήκες εκπαίδευσης (η κατάβαση βαθμίδας βρίσκει κάθε φορά διαφορετικό τοπικό ελάχιστο). Γενικώς δεν είναι δυνατόν να απομονώσουμε την τυχαιότητα της αρχικής εκκίνησης της διαδικασίας εκπαίδευσης και ως αποτέλεσμα οι μεταβολές στην ακρίβεια κατανέμονται τυχαία στα πειραματικά σημεία, χωρίς να προκύπτει κάποια στατιστικά σημαντική τάση. Αναδιαλογές των δεδομένων δεν βελτίωσαν ουσιαστικά τις προβλέψεις. Προτείνεται επανάληψη της διαδικασίας βαθμονόμησης/γένεσης των διαλεγμένων δεδομένων και επανάληψη της εκπαίδευσης.

- Οι μελέτες παρεμβολής και προεκβολής δεν μπόρεσαν να δώσουν ενδείξεις σχετικά με την ικανότητα των συνδυαστικών δικτύων να πραγματοποιούν καλύτερες προβλέψεις σε περιοχές φτωχές από άποψη διαθέσιμων δεδομένων. Ως κύρια αιτία διαφαίνεται η υπερπροσαρμογή των μοντέλων, αφού τα σετ ελέγχου στις περιοχές αυτές ήταν μικρότερα απ' ό,τι στην περιοχή που εξετάστηκε κατά τη μελέτη ενσωμάτωσης. Ως διορθωτική ενέργεια προκρίνουμε διαφορετική διεξαγωγή της γένεσης δεδομένων. Αντί να παράγουμε δεδομένα που καλύπτουν όλο το εύρος λειτουργικών συνθηκών, ενδεχομένως θα ωφελούσε να εστιάσουμε το Multi-Case στις προβληματικές περιοχές, δημιουργώντας batches διαλεγμένων δεδομένων μεγαλύτερης πυκνότητας γύρω από αυτές. Καλύτερα αποτελέσματα θα επιτυγχάνονταν με χρήση σετ λειτουργικών δεδομένων που περιγράφουν με μεγαλύτερη ευκρίνεια της περιοχές αυτές, αλλά όπως έχουμε ήδη πει, αυτά συνήθως δεν είναι διαθέσιμα.
- Ως γενικό συμπέρασμα μπορούμε να αναφέρουμε ότι ενδείκνυται η χρήση δεδομένων που προέρχονται από μηχανιστικά μοντέλα για ενίσχυση της εκπαίδευσης των ήδη υπαρχόντων νευρωνικών δικτύων σε περιοχές δεδομένων με μεγάλη πυκνότητα. Αυτό φυσικά προϋποθέτει ότι τα μηχανιστικά μοντέλα αυτά έχουν φτάσει στο όριο της ακρίβειας που μπορούν να πετύχουν. Είναι λοιπόν σημαντικό να εξασφαλίζεται ότι η βαθμονόμησή τους έχει γίνει σωστά, προτού χρησιμοποιηθούν ενισχυτικά των μοντέλων μηχανικής μάθησης. Αν αυτό δεν εξασφαλίζεται, μπορεί να προκαλέσουν το ακριβώς αντίθετο αποτέλεσμα, δηλαδή μείωση της ακρίβειας της πρόβλεψης. Δεν μπορούμε να αποφανθούμε σχετικά με τη χρήση τους σε προβληματικές περιοχές του σετ δεδομένων.



## 6.2 Προτάσεις για μελλοντική έρευνα

### 6.2.1 Επέκταση της βάσης δεδομένων

Στην ενότητα 3 αναγνωρίστηκε ότι το σετ δεδομένων της μονάδας FCC των ΕΛΠΕ δεν ήταν επαρκώς εκτενές ώστε να εκπαιδεύσει αποτελεσματικά ένα νευρωνικό δίκτυο. Τα νευρωνικά δίκτυα τυπικά απαιτούν χιλιάδες ζεύγη δεδομένων εισόδου-εξόδου για να εξασφαλιστεί ότι έχουν εκπαιδευθεί επαρκώς για όλες τις πιθανές καταστάσεις λειτουργίας εντός του μελετώμενου εύρους συνθηκών. Ένα τέτοιο σετ είναι τουλάχιστον δύο τάξεις μεγέθους μεγαλύτερο από αυτό που χρησιμοποιήθηκε στα πλαίσια της παρούσας ΔΕ. Το πρώτο και ευκολότερο βήμα για βελτίωση της ακρίβειας των προβλέψεων του μοντέλου είναι η απόκτηση δεδομένων τα οποία καταγράφονται με μεγαλύτερη συχνότητα. Τέτοια ποσότητα δεδομένων μπορεί να παρέχει το σύστημα ρύθμισης της μονάδας, το οποίο καταγράφει όλες τις μεταβλητές εισόδου και εξόδου που χρησιμοποιήθηκαν στο μοντέλο με ελάχιστη συχνότητα λήψης δείγματος την 1 ώρα.

Με χρήση δεδομένων από το σύστημα ελέγχου/ρύθμισης αντί των ημερήσιων αναφορών, αυτομάτως δημιουργούμε ένα σετ με πληθυσμό άνω των 15000 για την ίδια χρονική περίοδο (Ιούνιος 2020-Ιούνιος 2022). Επιπλέον, παίρνουμε δεδομένα με μικρότερα σφάλματα και περισσότερο αντιπροσωπευτικά της λειτουργίας της μονάδας (άλλωστε όπως αναφέρθηκε οι ημερήσιες αναφορές αποτελούν μέσες τιμές των μεταβλητών κατά την ημέρα λειτουργίας, παρά στιγμιότυπα της μονάδας). Ένα τέτοιο σύνολο δεδομένων θα επιτρέψει τη μελέτη της διεργασίας σε μεγαλύτερο βάθος, με προϋπόθεση την καλή διαλογή των δεδομένων και την αντίστοιχη προσαρμογή των μηχανιστικών μας μοντέλων σε αυτά.

Παράλληλα, πρέπει να αναπτυχθεί ένα τυποποιημένο και αυτοματοποιημένο σύστημα διαχείρισης των δεδομένων, καθώς ένας χειριστής δεν μπορεί να χειριστεί αποτελεσματικά και χωρίς λάθη τόσο μεγάλους όγκους δεδομένων. Το σύστημα αυτό πρέπει να καταγράφει και να επεξεργάζεται τα «ακάθαρτα» δεδομένα της μονάδας βάσει των προτύπων εισόδου του αλγορίθμου, αλλά και να δημιουργεί αυτόματα πίνακες αποτελεσμάτων και διαγράμματα χωρίς να εμπλέκει τον χειριστή. Θα λειτουργεί δηλαδή υποστηρικτικά του αλγορίθμου, πριν την είσοδο και μετά την έξοδο αυτού. Ένα τέτοιο σύστημα μπορεί να υλοποιηθεί σε κώδικα ή ενδεχομένως και στο Excel, με απευθείας σύνδεση του Excel με το υπολογιστικό περιβάλλον του PyCharm.

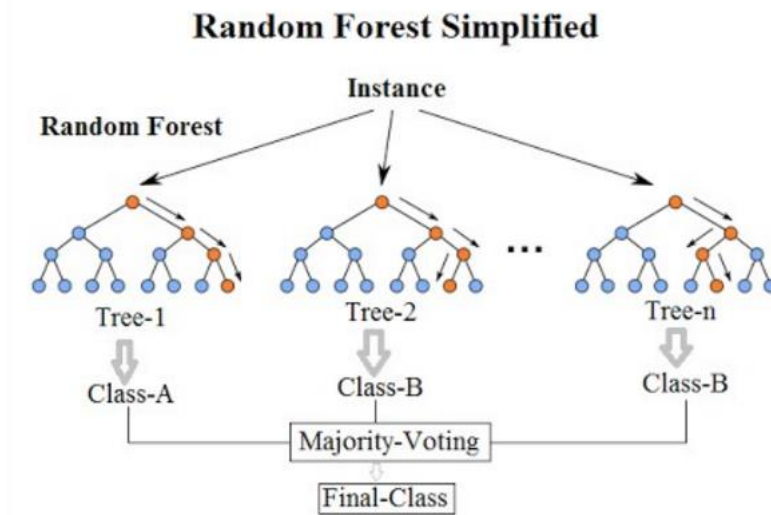
### **6.2.2 Ανάστροφη λειτουργία του μοντέλου**

Ενδιαφέρον παρουσιάζει επίσης η προοπτική αναστροφής του μοντέλου, ώστε να δέχεται ως εισόδο τις επιθυμητές εξόδους και να «προτείνει» τις απαιτούμενες εισόδους για να επιτευχθούν. Ένα τέτοιο μοντέλο θα είχε χρηστική αξία για τους μηχανικούς, καθώς θα διευκόλυνε τον μεσοπρόθεσμο και μακροπρόθεσμο προγραμματισμό λειτουργίας της μονάδας. Αυτό μπορεί να πραγματοποιηθεί σε πρώτο βαθμό με απευθείας εναλλαγή εισόδων και εξόδων στον υφιστάμενο αλγόριθμο. Τα πρώτα αποτελέσματα μπορούν να δώσουν ενδείξεις για την αξία του εγχειρήματος και να αποτελέσουν βάση σύγκρισης για περισσότερο προχωρημένες μεθόδους.

Επιπλέον, ενδιαφέρον παρουσιάζει η προοπτική εφαρμογής του μοντέλου ή μιας τροποποίησης αυτού για την επίλυση προβλημάτων ρύθμισης ή αριστοποίησης. Εισάγοντας τη μεταβλητή του χρόνου στο μοντέλο μπορούμε να κατασκευάσουμε μελλοντικές χρονοσειρές λειτουργίας της μονάδας, να αναγνωρίσουμε διαδρομές αριστοποίησης ή ακόμα και καταστάσεις προβληματικής ή επικίνδυνης λειτουργίας της μονάδας, ή πρόδρομες καταστάσεις κινδύνου, ώστε η διορθωτική δράση να λαμβάνεται εγκαίρως.

### 6.2.3 Εναλλακτικές αρχιτεκτονικές δικτύου

Τα νευρωνικά δίκτυα εφαρμόστηκαν για πρώτη φορά το 2002 για την μοντελοποίηση της καταλυτικής πυρόλυσης, με αξιοσημείωτη επιτυχία. Έκτοτε, τα νευρωνικά δίκτυα είναι το μοναδικό εργαλείο μηχανικής μάθησης που έχει διερευνηθεί διεξοδικά στην σχετική βιβλιογραφία. Ωστόσο, η ραγδαία επέκταση των εφαρμογών της μηχανικής μάθησης τα τελευταία 20 χρόνια έχει οδηγήσει στην ανάπτυξη πολύ ισχυρότερων αλγορίθμων, οι οποίοι τείνουν να αντικαταστήσουν τα νευρωνικά δίκτυα στις περισσότερες εφαρμογές. Σε αντίθεση με την απλή επέκταση του συνόλου των δεδομένων, η εφαρμογή άλλου αλγορίθμου που πραγματοποιεί την πρόβλεψη δεν μπορεί να γίνει με απλή εναλλαγή κώδικα, καθώς προϋποθέτει άλλη προεπεξεργασία των δεδομένων, ώστε να πληρούν τα πρότυπα εισόδου του κάθε αλγορίθμου. Ορισμένα εναλλακτικά σχήματα/αλγόριθμοι μηχανικής μάθησης παρουσιάζονται εν συντομία στις επόμενες παραγράφους, μαζί με τα προτερήματα και τα μειονεκτήματά τους.



Εικόνα 6.1: Τυπική δομή αλγορίθμου random forest. Απεικονίζεται η παράλληλη δομή των δέντρων αποφάσεων, η τελική ψηφοφορία και η τελική ταξινόμηση της πληροφορίας. Σε προβλήματα παλινδρόμησης η δομή είναι παρόμοια.

Ο αλγόριθμος Random Forest χρησιμοποιεί δέντρα επιλογών (decision trees) αντί για δίκτυα για να παράγει μοντέλα παλινδρόμησης ή ταξινόμησης μέσω εκπαίδευσης με πραγματικά δεδομένα. Τα δέντρα επιλογών αρχίζουν από έναν «νευρώνα» (ρίζα) και διακλαδίζονται ανά δύο χρησιμοποιώντας απλές μαθηματικές εκφράσεις (ανισότητες ή ισότητες) για να διαχωρίσουν το αρχικό σύνολο δεδομένων σε υποσύνολα που απεικονίζουν διαφορετικές καταστάσεις λειτουργίας (τελικό στρώμα). Ο αλγόριθμος αυτός χρησιμοποιεί παράλληλα δέντρα επιλογών και δίνει τον μέσο όρο των εξόδων όλων των δέντρων ως έξοδο του μοντέλου.

Σε σχέση με τα νευρωνικά δίκτυα υπερτερούν ως προς την ευκολία σχεδιασμού και κωδικοποίησης, ενώ η εσωτερική τους λειτουργία είναι περισσότερο διαυγής

(διευκολύνοντας την τροποποίησή τους). Αν και θεωρούνται λιγότερο «ισχυρά» σχήματα μοντελοποίησης σε σχέση με τα νευρωνικά δίκτυα, συχνά προσφέρουν καλύτερες προβλέψεις στα δεδομένα ελέγχου, με κόστος την χειρότερη προσαρμογή στα δεδομένα εκπαίδευσης.

Ο αλγόριθμος XGBoost (eXtreme Gradient Boosting) αποτελεί μια πιο ισχυρή τροποποίηση των αλγορίθμων με βάση τα δέντρα επιλογών. Είναι μια επαναληπτική μέθοδος ανανέωσης των «βαρών» ενός μοντέλου, η οποία συνδυάζει υποαλγόριθμους προσαρμογής απλούστερων εργαλείων (π.χ. δέντρα επιλογών) σε δεδομένα εισόδου με αριθμητικές μεθόδους που επιταχύνουν τη διαδικασία εκπαίδευσης. Περιλαμβάνει επίσης εργαλεία που διευκολύνουν την αναγνώριση σημαντικών μεταβλητών του μοντέλου, γεγονός που επιτρέπει να κατασκευάσουμε πιο «στεγανά» μοντέλα χαμηλότερης τάξης, τα οποία δεν βασίζονται σε υφιστάμενη γνώση ή περίπλοκους μαθηματικούς υπολογισμούς, αλλά πηγάζουν από τα δεδομένα καθαυτά.

Όλες οι προτεινόμενες βελτιώσεις μπορούν να εφαρμοστούν ανεξάρτητα και συνδυαστικά. Απώτερος στόχος και κριτήριο επιτυχίας κάθε διαδικασίας μάθησης παραμένει η καλή προσαρμογή στα δεδομένα ελέγχου, τα οποία δεν αποτελούν μέρος του συνόλου δεδομένων εκπαίδευσης.

## 7. Βιβλιογραφία

- [1],[2], [6] Τριανταφυλλίδης, Κ., Καταλυτική πυρόλυση βαρέων κλασμάτων πετρελαίου για την παραγωγή καυσίμων, *Στοιχεία Χημικών Διεργασιών (συλλογικό)*, Κεφ. 12 , pp. 194-200. Accessed from: [bit.ly/3XxSTjj](http://bit.ly/3XxSTjj)
- [3] BusinessWire, Worldwide industry for refinery fluid catalytic cracking units to 2024 - by Refinery and country. Accessed from: [bit.ly/3xaTIZU](http://bit.ly/3xaTIZU)
- [4] Fletcher, R. P. The History of Fluidized Catalytic Cracking: A History of Innovation: 1942-2008. *Innovations in Industrial and Engineering Chemistry*, 2008, pp. 189–249
- [5], [37], [38] Vogt, E. T. C.; Weckhuysen, B. M. Fluid catalytic cracking: Recent developments on the grand old lady of zeolite catalysis. 2018
- [7], [11],[12], [14]-[16], [24], [29], [41] Sadeghbeigi, R. *Fluid catalytic cracking handbook: An expert guide to the practical operation, design, and optimization of FCC units*; Butterworth-Heinemann: Amsterdam, 2020
- [8] Bayraktar, O., Coke content of spent commercial fluid catalytic cracking (FCC) catalysts. *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry* 71, 2003, pp. 870–871
- [9] Al Qubeissi, Mansour & Sazhin, Sergei & De Sercey, Guillaume & Crua, Cyril., Multi-dimensional quasi-discrete model for the investigation of heating and evaporation of Diesel fuel droplets, 2014
- [10], [17], [23] Καρώνης Δ, Λόης Ε., Ζαννίκος Φ., *Τεχνολογία πετρελαίου και φυσικού αερίου*, ΕΜΠ, pp. 143-166
- [13] Petroleum - Nonhydrocarbon content, *Encycl. Britannica*, Accessed from: <http://bit.ly/40BTLGh>
- [18] Selalame, T. W.; Patel, R.; Mujtaba, I. M.; John, Y. M. A Review of Modelling of the FCC Unit—Part I: The Riser, *Energies*, 2022, 15 (1), pp.7-8
- [19] McMurry, J. "*Organic Chemistry 4th Edition*. New York, Brooks." (1996).
- [20] P. Hagelberg, V. Alopaeus, K. Lipiäinen, J. Aittamaa, A.O.I. Krause, Mass and heat transfer effects in the kinetic modelling of catalytic cracking, *Studies in Surface Science and Catalysis*, Elsevier, Volume 133, 2001, pp. 165-171
- [21] Benton, S., FCC catalyst increases isobutylene yield at European refinery, *Oil and Gas Journal* 93.18, 1995
- [22] Sanchez-Castillo MA, Madon RJ, Dumesic JA. Role of rare earth cations in Y zeolite for hydrocarbon cracking, *J Phys Chem B*, 109(6), pp. 2164-75, 2005
- [25] Farshi A., Abri H.R., The Addition of ZSM-5 to a Fluid Catalytic Cracking Catalyst for Increasing Olefins in Fluid Catalytic Cracking Light Gas, *Gas. Petroleum Science and Technology*. 30. 1285–95, 2012

- [26] McKinsey Energy Insights, Refinery Reference Desk, Fluid catalytic cracking, <http://bit.ly/3RL6F0p>
- [27] John, Y. M., Patel, R., & Mujtaba, I. M. Modelling and Simulation of an Industrial Riser in Fluid Catalytic Cracking Process. *Computer Aided Chemical Engineering* (pp. 889–894), 2016
- [28] Demand outlook for selected oil products worldwide from 2020 to 2045, Statista Research Department, 2021. Accessed from: <http://bit.ly/3xbIPTk>
- [30] Sharafutdinov, I. et al., Dependence of Cetane Index on Aromatic Content in Diesel Fuels, *Oil Gas European Magazine*. 38. 148-152, 2012
- [31] Wang, F. & Zhang, Y. & Long, X. & Gao, X.. Study on cetane number improvement of LCO by hydrotreating, *Petroleum Processing and Petrochemicals*. 44. 27-31, 2013
- [32] Avidan, Amos A. "Fluid catalytic cracking." *Circulating fluidized beds* (1997): 466-488.
- [33] Su, Jianping, et al. "Determining the amount of 'green' coke generated when co-processing lipids commercially by fluid catalytic cracking." *Biofuels, Bioproducts and Biorefining* 16.2 (2022): 325-334.
- [34] Cerqueira, H. S., et al. "Deactivation of FCC catalysts." *Journal of molecular catalysis A: Chemical* 292.1-2 (2008): 1-13.
- [36] Fluid catalytic cracking is an important step in producing gasoline, US Energy Information Administration, 2012, Accessed from: <http://bit.ly/3YoeoEf>
- [39] Tonetto, G., J. Atias, and H. J. A. C. A. G. De Lasa. "FCC catalysts with different zeolite crystallite sizes: acidity, structural properties and reactivity." *Applied Catalysis A: General* 270.1-2 (2004): 9-25.
- [40] Li, Shenhui, et al. "Brønsted/Lewis acid synergy in dealuminated HY zeolite: a combined solid-state NMR and theoretical calculation study." *Journal of the American Chemical Society* 129.36 (2007): 11161-11171.
- [42], [43] P. O'Connor, A.C. Pouwels, FCC Catalyst Deactivation: A Review and Directions for further Research, *Studies in Surface Science and Catalysis*, Volume 88, Elsevier, 1994, pp. 129-144
- [44] Machine Learning and Higher Education. Accessed from: <http://bit.ly/3jOVYO2>
- [45] Mitchell, Tom M., and Tom M. Mitchell. *Machine learning*. Vol. 1. No. 9. New York: McGraw-hill, 1997.
- [46] What is the difference between regression and classification? Accessed from: <http://bit.ly/3XhwFBX>
- [47] Herculano-Houzel, Suzana. "The human brain in numbers: a linearly scaled-up primate brain." *Frontiers in human neuroscience* (2009): 31.

- [48] ,[49] Hayou, Soufiane, Arnaud Doucet, and Judith Rousseau. "On the impact of the activation function on deep neural networks training." *International conference on machine learning*. PMLR, 2019.
- [50], [55] Yadav, P. K., and Rajeev Kumar Garg. "Modeling and Simulation of Fluidized Catalytic Cracking Riser Reactor Using Pseudo Reaction Kinetics: A Review." *International Journal of Engineering and Technology* 9 (2017): 1667-81.
- [51] Weekman Jr, Vern W., and Donald M. Nace. "Kinetics of catalytic cracking selectivity in fixed, moving, and fluid bed reactors." *AIChE Journal* 16.3 (1970): 397-404.
- [52] Hasanudin, Hasanudin, Wan Ryan Asri, and Karna Wijaya. "Lump Kinetic Method in Solving Kinetic Problems and Cracking Reaction Mechanism: A Review." *Iranian Journal of Catalysis* 12.2 (2022): 115-125.
- [53] Lee, Liang-Sun, et al. "Four-lump kinetic model for fluid catalytic cracking process." *The Canadian Journal of Chemical Engineering* 67.4 (1989): 615-619.
- [54] Cristina, Popa. "Four-lump kinetic model vs. three-lump kinetic model for the fluid catalytic cracking riser reactor." *Procedia Engineering* 100 (2015): 602-608.
- [56] Quann, Richard J., and Stephen B. Jaffe. "Structure-oriented lumping: describing the chemistry of complex hydrocarbon mixtures." *Industrial & engineering chemistry research* 31.11 (1992): 2483-2497.
- [57] Chen, Chen, et al. "Adaptive modeling strategy integrating feature selection and random forest for fluid catalytic cracking processes." *Industrial & Engineering Chemistry Research* 59.24 (2020): 11265-11274.
- [60] Michalopoulos, J., et al. "Modelling of an industrial fluid catalytic cracking unit using neural networks." *Chemical Engineering Research and Design* 79.2 (2001): 137-142.
- [61] Taira, Gustavo R., et al. "Fault Detection in a Fluid Catalytic Cracking Process using Bayesian Recurrent Neural Network." *IFAC-PapersOnLine* 55.7 (2022): 715-720.
- [62] Chen, Zhengyu, et al. "Molecular-level kinetic modeling of heavy oil fluid catalytic cracking process based on hybrid structural unit and bond-electron matrix." *AIChE Journal* 67.1 (2021): e17027.
- [63] Yang, Fan, et al. "A hybrid deep learning and mechanistic kinetics model for the prediction of fluid catalytic cracking performance." *Chemical Engineering Research and Design* 155 (2020): 202-210.
- [64], [65] Pirdashti, Mohsen, et al. "Artificial neural networks: applications in chemical engineering." *Reviews in Chemical Engineering* 29.4 (2013): 205-239.
- [66] Pinheiro, Carla IC, et al. "Fluid catalytic cracking (FCC) process modeling, simulation, and control." *Industrial & engineering chemistry research* 51.1 (2012): 1-29.

## ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ Α - Κώδικας

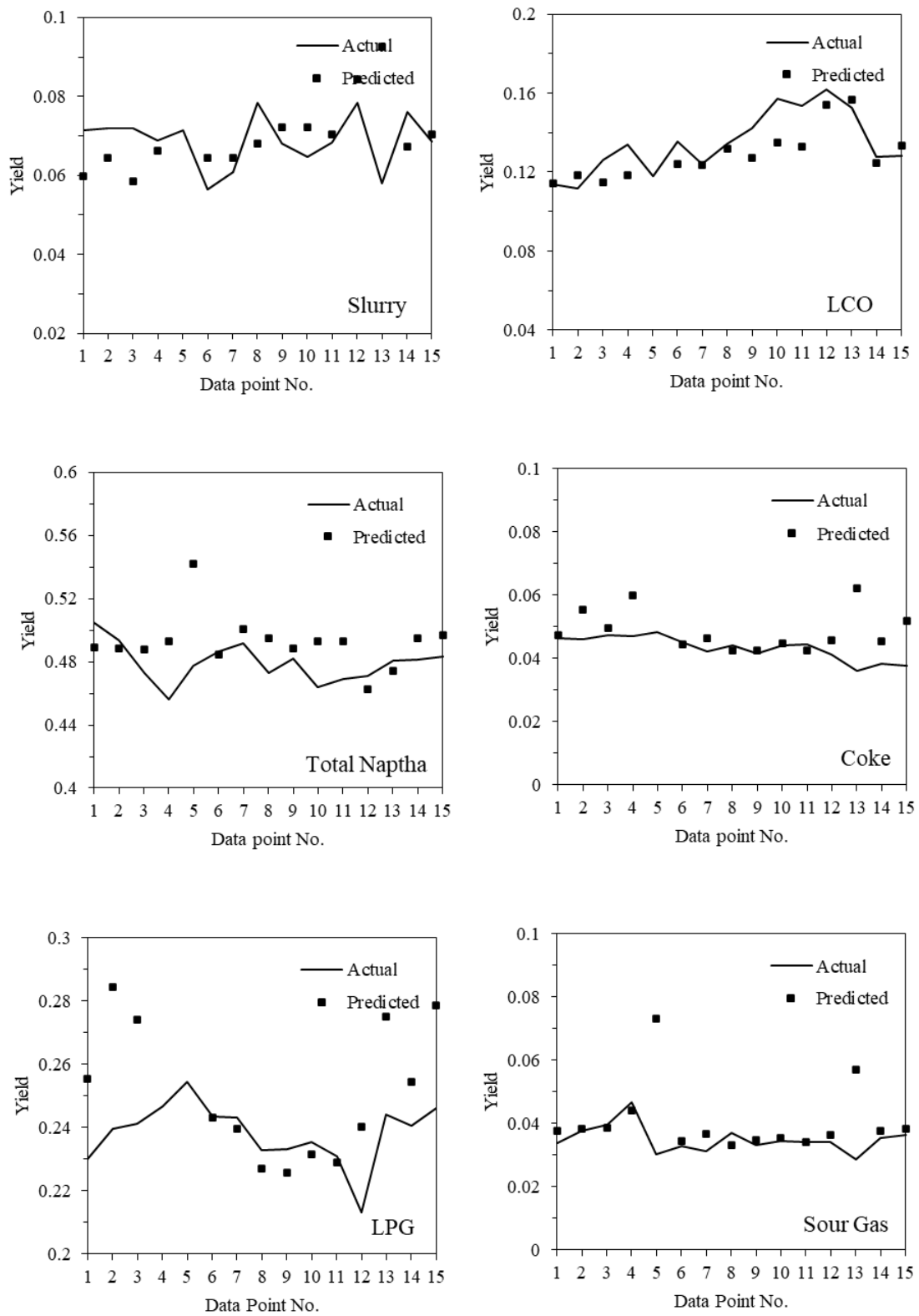
```
first neural network with keras tutorial
import numpy as np
import time
import sklearn.metrics
from sklearn.metrics import r2_score
from numpy import loadtxt
from tensorflow.keras.models import Sequential
from tensorflow.keras.layers import Dense
def MAPE(Y_actual,Y_Predicted):
    mape = np.mean(np.abs((Y_actual - Y_Predicted)/Y_actual))*100
    return mape

#load the dataset
dataset = loadtxt('10_DEE_TRAIN.csv', delimiter=',')
trainset = loadtxt('10_DEE_TEST.csv', delimiter=',')
# split into input (X) and output (y) variables
X = dataset[:,0:5]
y = dataset[:,5:11]
#print(X)
#print(y)
x_test = trainset[:,0:5]
y_test = trainset[:,5:11]
# define the keras model
model = Sequential()
model.add(Dense(50, input_shape=(5,), activation='SeLU'))
model.add(Dense(50, activation='SeLU'))
model.add(Dense(50, activation='SeLU'))
model.add(Dense(50, activation='SeLU'))
model.add(Dense(50, activation='SeLU'))
#odel.add(Dense(50, activation='SeLU'))
#odel.add(Dense(50, activation='SeLU'))
#odel.add(Dense(50, activation='SeLU'))
#odel.add(Dense(50, activation='SeLU'))
#odel.add(Dense(50, activation='SeLU'))
#odel.add(Dense(50, activation='SeLU'))
model.add(Dense(6, activation='sigmoid'))
# compile the keras model
model.compile(loss='MAPE', optimizer='adadelta')
# fit the keras model on the dataset
for i in range (0,100):
    print(i)
    model.fit(X, y, epochs=1000,batch_size=32,verbose=0)
# evaluate the keras model
model.evaluate(X,y)
tic=time.time()
regression = model.predict(X)
prediction = model.predict(x_test)
toc=time.time()
#print (regression)
#print (prediction)
#print("Time for prediction is ", toc-tic, "s")
tic = time.time()
#regression = model.predict(X)
prediction = model.predict(x_test)
toc = time.time()
#print(regression)
print(prediction)
print("Time for prediction is ", toc - tic, "s")
r2 = r2_score(y, regression)
```

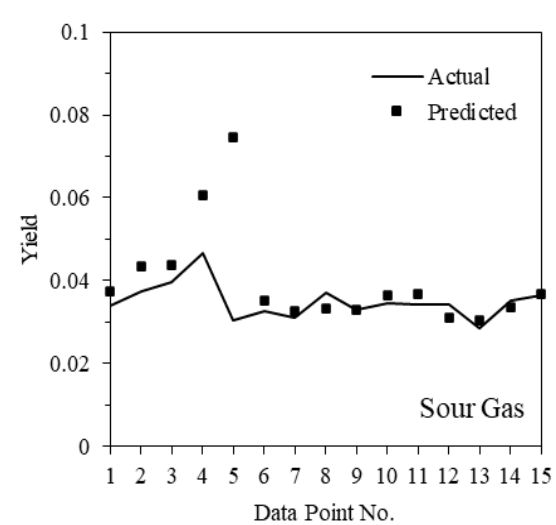
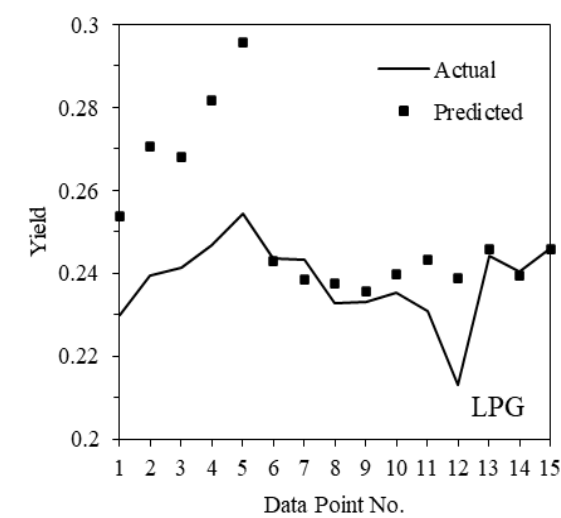
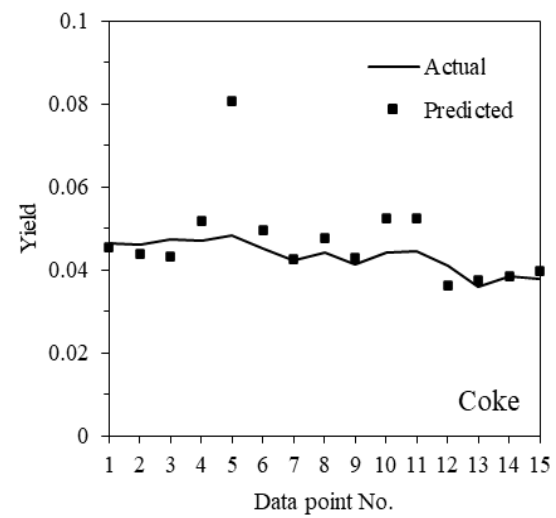
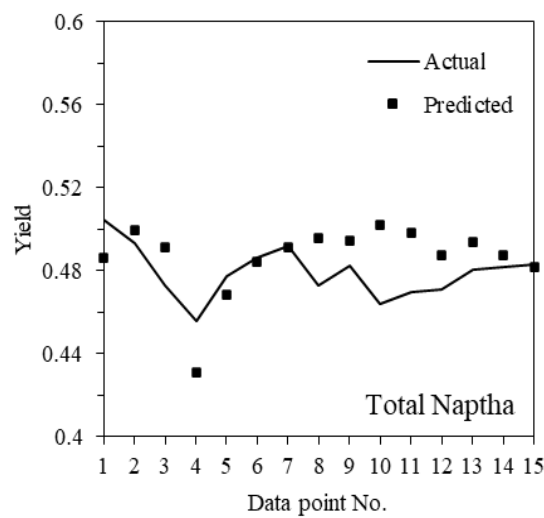
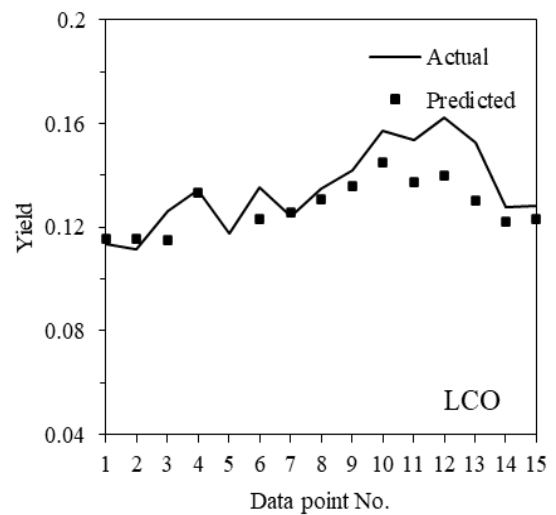
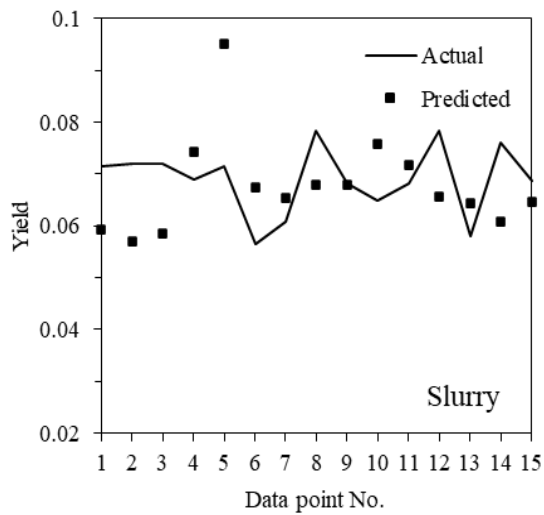


```
q2 = r2_score(y_test, prediction)
arr[i] = r2_score(y, regression)
arr_q2[i] = r2_score(y_test, prediction)
arr_time[i] = toc - tic
arr_MAPE[i] = MAPE(y_test, prediction)
print("R2 score is: ", r2)
print("Q2 score is: ", q2)
print(MAPE(y_test, prediction))
print (arr)
print (arr_q2)
print (arr_MAPE)
print (arr_time)
```

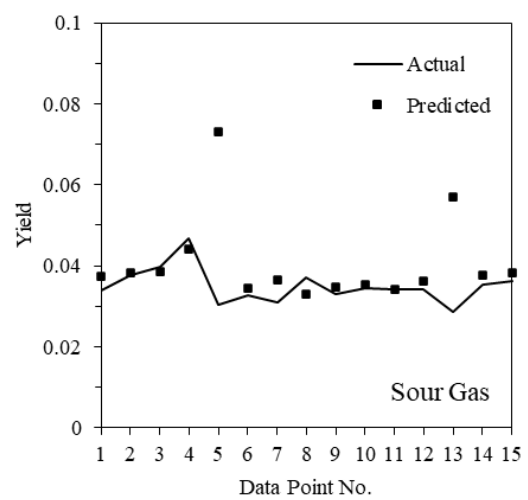
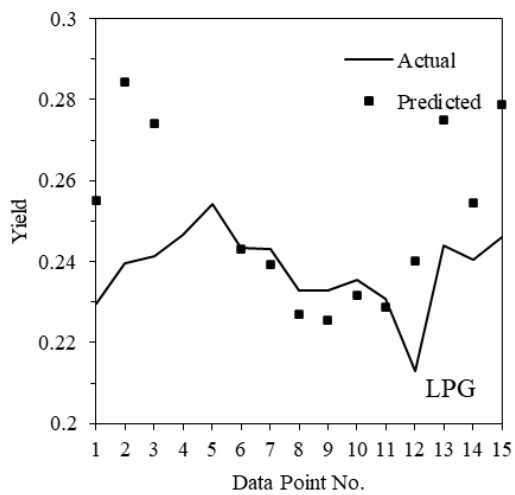
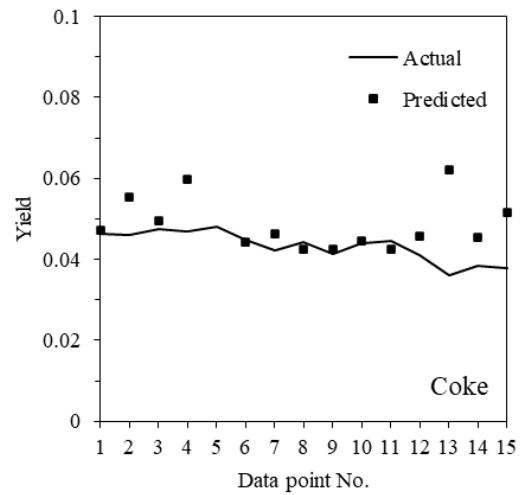
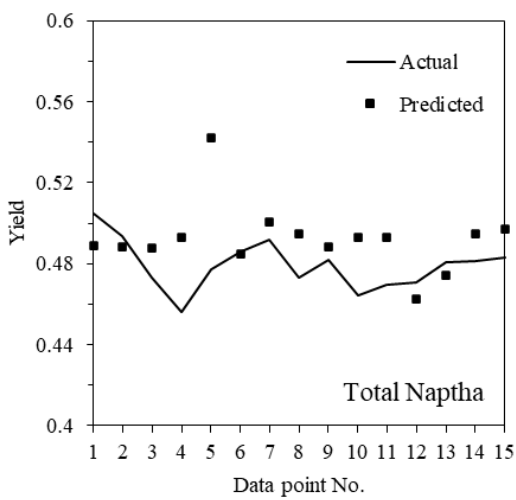
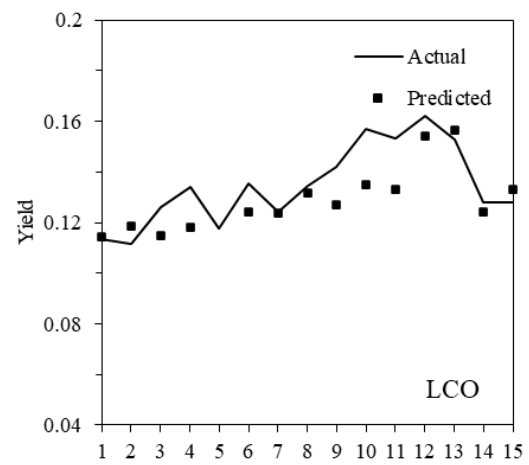
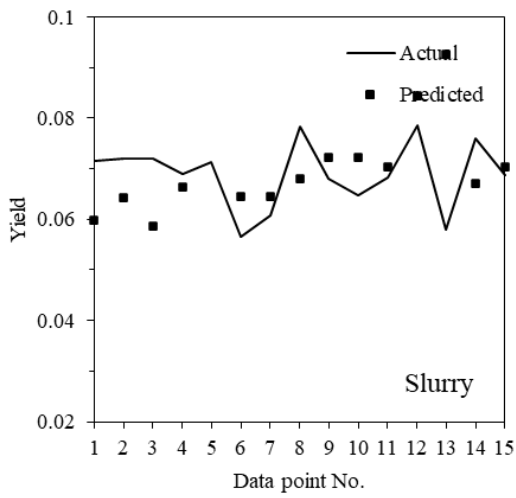
## ΠΑΡΑΡΤΗΜΑ Β – Διαγράμματα προβλέψεων



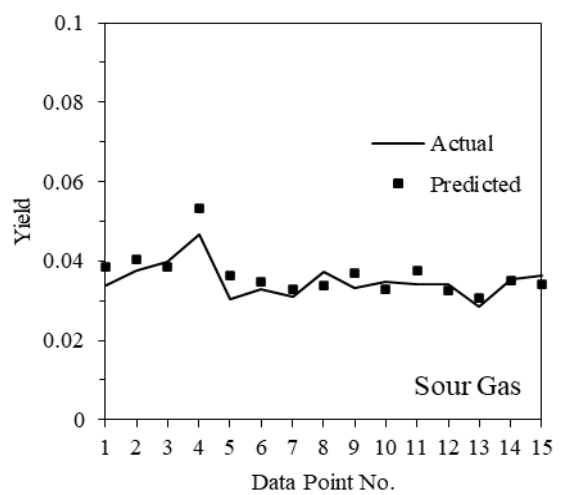
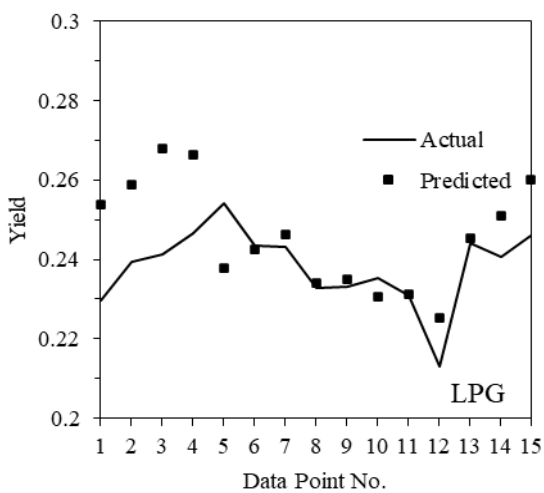
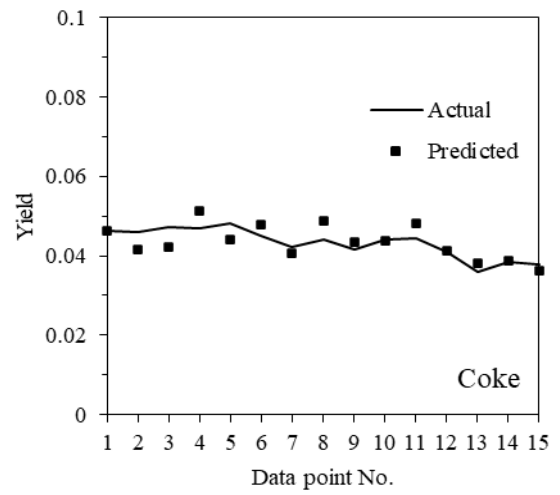
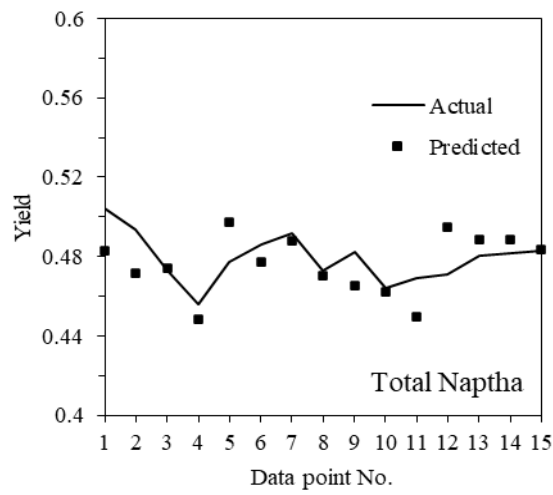
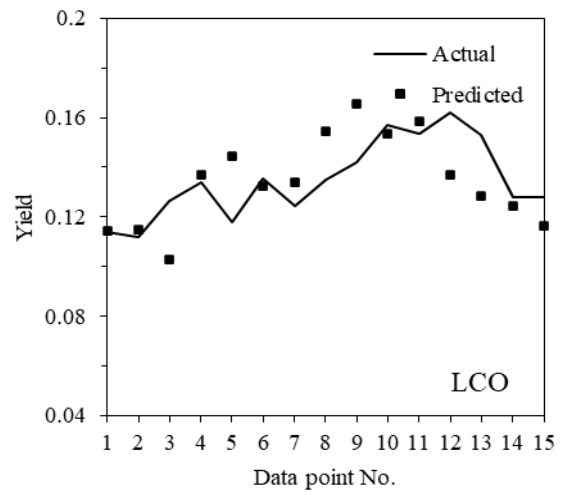
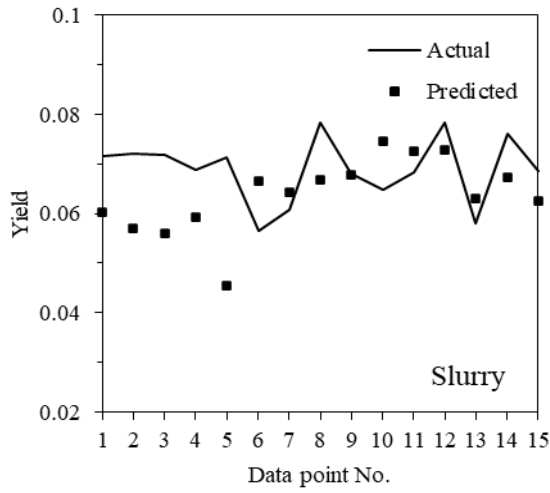
Εικόνα Π.1: Πραγματική και προβλεφθείσα εκλεκτικότητα μετατροπής ως προς τα επιμέρους προϊόντα της καταλυτικής πυρόλυσης. Ποσοστό ενσωμάτωσης 0%.



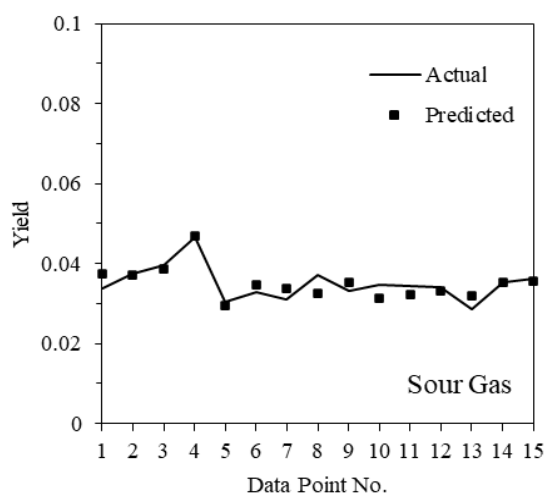
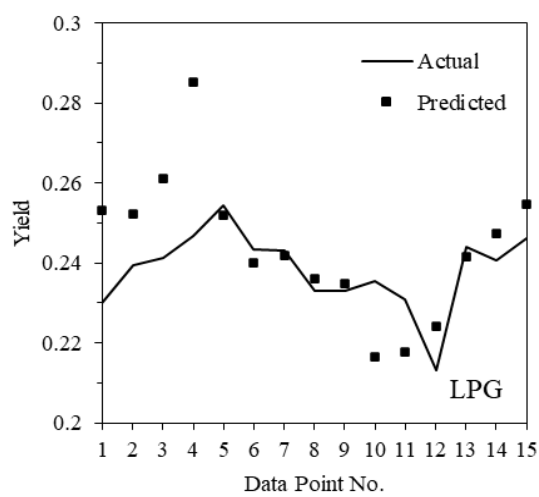
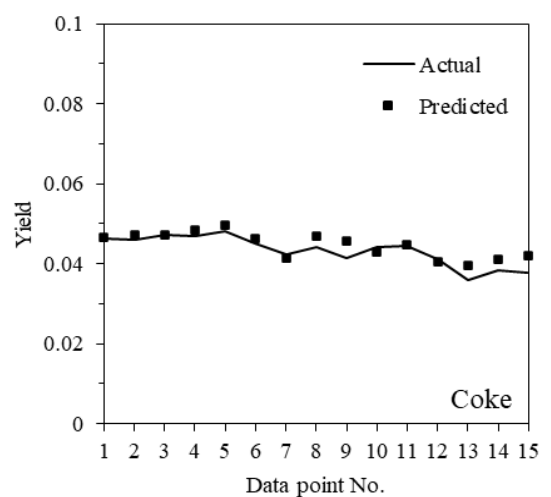
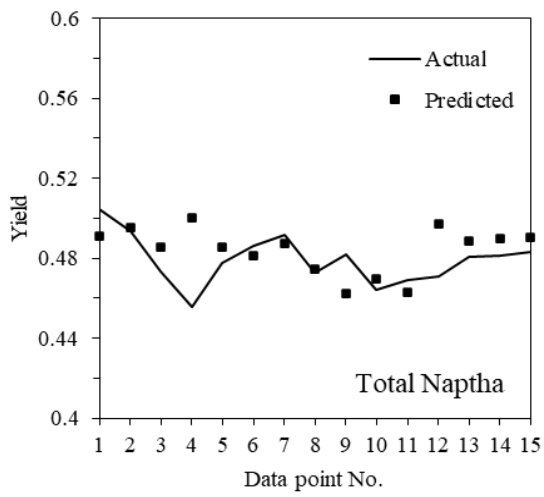
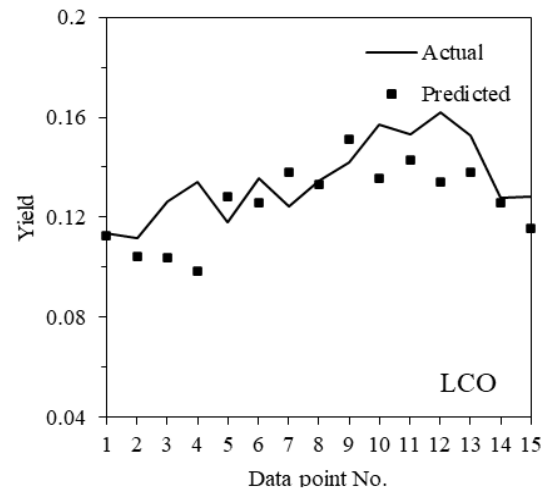
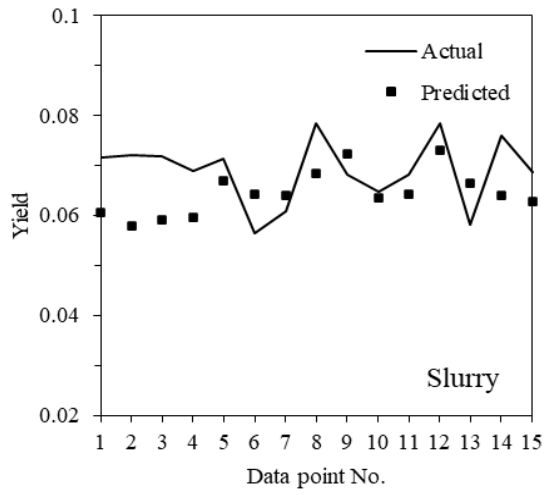
Εικόνα Π.2: Πραγματική και προβλεφθείσα εκλεκτικότητα μετατροπής ως προς τα επιμέρους προϊόντα της καταλυτικής πυρόλυσης. Ποσοστό ενσωμάτωσης 10%.



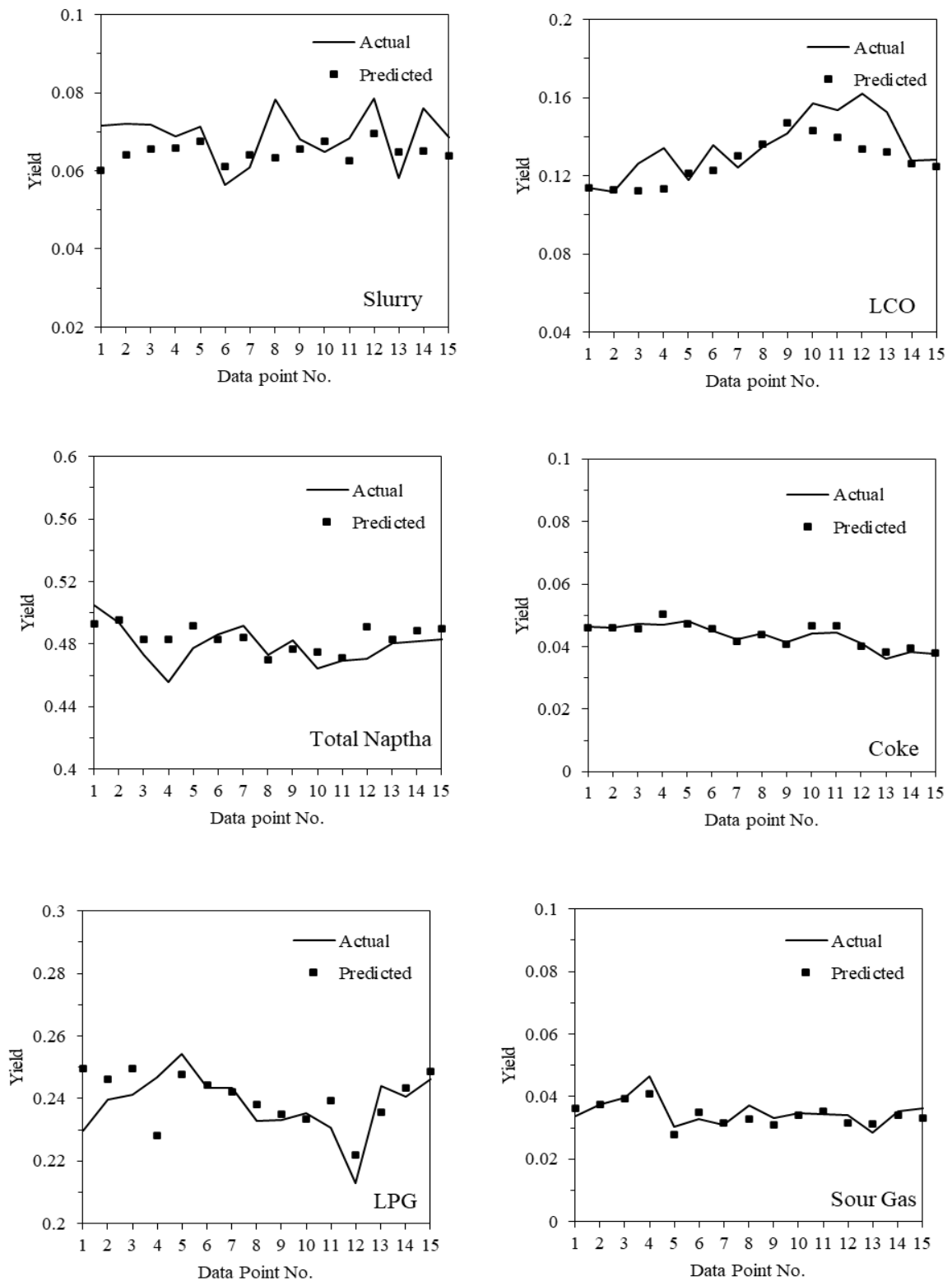
Εικόνα Π.3: Πραγματική και προβλεφθείσα εκλεκτικότητα μετατροπής ως προς τα επιμέρους προϊόντα της καταλυτικής πυρόλυσης. Ποσοστό ενσωμάτωσης 20%.



Εικόνα Π.4: Πραγματική και προβλεφθείσα εκλεκτικότητα μετατροπής ως προς τα επιμέρους προϊόντα της καταλυτικής πυρόλυσης. Ποσοστό ενσωμάτωσης 30%.



Εικόνα Π.5: Πραγματική και προβλεφθείσα εκλεκτικότητα μετατροπής ως προς τα επιμέρους προϊόντα της καταλυτικής πυρόλυσης. Ποσοστό ενσωμάτωσης 40%.



Εικόνα Π.6: Πραγματική και προβλεφθείσα εκλεκτικότητα μετατροπής ως προς τα επιμέρους προϊόντα της καταλυτικής πυρόλυσης. Ποσοστό ενσωμάτωσης 50%.