

شبکه عصبی برای جداسازی کربن دی‌اکسید از مخلوط‌های گازی گوناگون با استفاده از هیدرات‌های نیمه گازی در حضور بهبوددهنده‌ها

جواد صیاد امین*⁺، سعید رفیعی

گروه مهندسی شیمی، دانشگاه گیلان، رشت، ایران

علیرضا بهادری

دانشکده محیط زیست، دانشگاه علوم و مهندسی سادرن کراس جنوبی، لیزمور، استرالیا

چکیده: انتشار بیش از حد کربن دی‌اکسید از سامانه‌های گوناگون مانند زیست‌گاز (CH_4+CO_2)، سوخت گازی (H_2+CO_2) و گازدودکش (N_2+CO_2)، یکی از دلایل‌های اصلی گرمایش زمین و مشکل‌های زیست‌محیطی می‌باشد. در سال‌های اخیر، فرایند جداسازی بر مبنای هیدرات‌های گازی توجه‌های ویژه‌ای را به خود اختصاص داده است. در این کار تلاش شده است یک مدل جامع هوشمند شبکه عصبی، برای پیش‌بینی شرایط تشکیل هیدرات از سامانه‌های گوناگون و در حضور بهبوددهنده‌های متفاوت از خانواده نمک‌های چهار جزئی آمونیوم و فسفینم به منظور جداسازی CO_2 از سامانه‌های گوناگون ارایه شود. سرانجام داده‌های آزمایشگاهی با داده‌های پیش‌بینی شده مقایسه شدند، و مدل شبکه عصبی توانایی پیش‌بینی شرایط تشکیل هیدرات را با دقت قابل‌پذیرشی ($R^2 \sim 0.98$) دارد. سایر نتیجه‌های آنالیز خطا برای داده‌های آزمون شبکه ($MSE = 0.24$ و $MEAE \% = 7.19$) نیز نشان‌دهنده عملکرد قابل‌پذیرش مدل ارایه شده می‌باشد.

واژه‌های کلیدی: کربن دی‌اکسید؛ جداسازی بر مبنای هیدرات؛ بهبود دهنده؛ شبکه عصبی.

KEYWORDS: Carbon dioxide; Hydrate-based separation; Promoter; Neural network.

مقدمه

کاهش چشمگیر مشکل‌های زیست‌محیطی ناشی از نشر بیش از حد کربن دی‌اکسید می‌شود. افزون بر این، جداسازی این گاز از سامانه‌های سوخت گازی و زیست‌گاز به ترتیب باعث بالا رفتن درجه خلوص هیدروژن و متان می‌شود که به‌عنوان گازهای تمیز به شمار می‌روند و در نتیجه بازده سوخت بالا می‌رود [۱-۳]. از این رو پژوهش‌گران همواره به دنبال یافتن روش‌هایی به منظور جداسازی این گاز گلخانه‌ای بوده‌اند. روش‌های مرسوم در جداسازی کربن دی‌اکسید مانند جذب، جذب سطحی و جداسازی غشایی

امروزه با پیشرفت چشمگیر صنایع، ضررهای انتشار گازهای گلخانه‌ای بر کسی پوشیده نیست. انتشار بیش از حد این گازها تأثیرهای بسیار مخربی بر محیط زیست می‌گذارد. کربن دی‌اکسید (CO_2) به‌عنوان گازی گلخانه‌ای، یکی از اصلی‌ترین عامل‌های گرمایش زمین و مشکل‌های زیست‌محیطی می‌باشد. مخلوط‌های گازی زیست‌گاز (CH_4+CO_2)، سوخت گازی (H_2+CO_2) و گازدودکش (N_2+CO_2)، از عمده سامانه‌های نشر دی‌اکسید کربن به‌شمار می‌روند. جداسازی این گاز از سامانه‌های ذکر شده منجر به

*E-mail: sayyadamin@guilan.ac.ir ; sayyadamin@gmail.com

*عقد دار مکاتبات

ارایه شده است. در این راستا، حسینی‌نسب و همکاران [۷] با استفاده از نرم‌افزار آنالیز آماری یک رابطه جدید برای پیش‌بینی دمای تشکیل هیدرات را توسعه دادند. در تلاشی دیگر، بابایی و همکاران [۸] یک مدل ترمودینامیکی برای پیش‌بینی شرایط تجزیه هیدرات برای سامانه آب + TBAB + آرگون ارائه دادند. در یک مطالعه دیگر، بهادری و همکاران [۹] یک رابطه تجربی جدید برای تخمین سریع شرایط تشکیل هیدرات گاز طبیعی شیرین ارائه دادند. صیادامین و همکاران [۱۰] دو رابطه تجربی نوین را برای پیش‌بینی دمای تشکیل هیدرات گازی به عنوان تابعی از فشار و جرم ویژه توسعه دادند. همچنین، محمادی و همکاران [۱۱] از شبکه عصبی مصنوعی برای پیش‌بینی شرایط ترمودینامیکی تشکیل هیدرات شبه‌گازی برای چند سامانه گوناگون استفاده کردند. نبود یک مدل جامع، که بتواند شرایط تشکیل هیدرات را پیش‌بینی کند در سال‌های اخیر بسیار مورد توجه قرار گرفته شده است. در نتیجه صیادامین و همکاران [۱۲]، یک مدل شبکه‌ی عصبی پیشرو برای پیش‌بینی شرایط تشکیل هیدرات سوخت گازی ارائه دادند. مدل ارائه شده با میزان ضریب تعیین $R^2 = 0.9806$ برای آموزش شبکه، عملکرد بسیار خوبی برای پیش‌بینی شرایط تشکیل هیدرات دارد. در گام بعد، صیادامین و همکاران [۱۳] شرایط تشکیل هیدرات برای جداسازی کربن دی‌اکسید از سامانه‌های گوناگون مانند سوخت گازی، زیست‌گاز و گاز دودکش را در حضور بهبود دهنده‌های گوناگون مدل‌سازی کردند. در مدل ارائه شده از ماتریس وندرمونده به عنوان مبنای مدل‌سازی استفاده شد که رابطه‌ی ارائه شده توسط ژنتیک الگوریتم بهینه شد. این مدل، با میزان ضریب تعیین $R^2 = 0.9381$ ، اولین مدل جامع ریاضی در پیش‌بینی شرایط تشکیل هیدرات سامانه‌های گوناگون برای جداسازی کربن دی‌اکسید به شمار می‌رود. همچنین صیادامین و همکاران [۱۵] با ارائه‌ی یک مدل ریاضی جامع دیگر بر مبنای رابطه‌ی غیائی [۱۴]، توانستند میزان ضریب تعیین را بهبود دهند ($R^2 = 0.9479$). با توجه به دقت بالاتر مدل شبکه عصبی و این‌که مدل شبکه عصبی توسعه داده شده توسط پژوهشگران تنها برای سامانه سوخت گازی بوده است، می‌توان مدلی جامع بر مبنای شبکه عصبی ارائه کرد که در مقایسه با سایر مدل‌ها دقت بالاتری در پیش‌بینی شرایط تشکیل هیدرات سامانه‌های گوناگون برای جداسازی کربن دی‌اکسید داشته باشد.

مشکل‌هایی مانند خوردگی بالا، مصرف انرژی زیاد، هزینه زیاد و ظرفیت پایین دارند [۴]. بنابراین یافتن روش‌های مؤثر و نوین می‌تواند بسیار راه‌گشا باشد. در سال‌های اخیر، جداسازی بر مبنای هیدرات گازی به عنوان روشی برای جداسازی گازهای گلخانه‌ای و به دست آوردن منابع انرژی پاک، توجه ویژه‌ای را به خود اختصاص داده است.

هیدرات گازی یک روش مؤثر و نوین برای به دام انداختن و جداسازی گازهایی مانند دی‌اکسید کربن می‌باشد. هیدرات گازی مواد کریستالی جامد هستند که از پیوند هیدروژن مولکول آب به عنوان مولکول میزبان و گازهای دیگر به عنوان مولکول مهمان تشکیل شده است [۵]. مبنای جداسازی خاصیت انتخاب‌پذیری ناحیه‌ای کربن دی‌اکسید بین فاز هیدرات و فاز گازی است [۱]. فرایند جداسازی بر مبنای هیدرات با محیط‌زیست سازگار است و در مقایسه با سایر روش‌های مرسوم به میزان انرژی کم‌تری نیاز دارد [۶].

شرایط مناسب برای تشکیل هیدرات دمای پایین و فشار بالا می‌باشد که خود این موضوع یک محدودیت برای عملیات جداسازی به شمار می‌رود. راه حل غلبه بر این مشکل استفاده از بهبود دهنده است که منجر به ساده شدن شرایط تشکیل هیدرات می‌شود. نمک‌های چهارجزیی آمونیوم و فسفینیم مانند تترانرمال بوتیل آمونیوم برمید (TBAB)، تترانرمال بوتیل - آمونیوم کلرید (TBAC)، تترانرمال بوتیل آمونیوم فلورید (TBAF)، تترانرمال بوتیل آمونیوم نیترات ($TBANO_3$) و تترانرمال بوتیل - فسفینیم برمید (TBPB) در میان بهبوددهنده‌های متنوع مورد استفاده سهم به سزایی را در مطالعه‌های صورت گرفته بازی می‌کنند.

در طول سالیان گذشته، پژوهش‌های زیادی در زمینه هیدرات برای یافتن شرایط تشکیل هیدرات در سامانه‌های گوناگون بدون حضور افزودنی و یا در حضور افزودنی‌های متفاوت توسط پژوهشگران انجام شده است، زیرا به منظور طراحی فرایند جداسازی از طریق جداسازی بر مبنای هیدرات به داده‌های تعادلی تشکیل فاز هیدرات نیاز است. روش‌های آزمایشگاهی همواره با محدودیت‌هایی از جمله وقت‌گیر بودن و صرف هزینه‌های زیاد روبه‌رو بوده است. بنابراین یک مدل ریاضی که بتواند جایگزین انجام آزمایش شود می‌تواند منجر به صرفه‌جویی در زمان و هزینه شود و همچنین بین نقاط آزمایشگاهی درون‌یابی انجام دهد. از این رو، تا کنون مدل‌های زیادی برای پیش‌بینی شرایط تشکیل هیدرات

این الگوریتم روشی برای محاسبه است که بر پایه اتصال پیوسته چندین واحد آموزشی ساخته می‌شود. شبکه از تعداد دلخواهی سلول به نام نرون ساخته می‌شود که مجموعه ورودی را به خروجی ربط می‌دهد [۱۶]. شبکه عصبی مصنوعی برگرفته از سامانه یادگیری طبیعی مغز انسان است که در آن یک مجموعه پیچیده از نرون‌های به هم متصل در کار یادگیری دخیل هستند. بنابراین، می‌توان توسط مفاهیم ریاضی یک نرون مصنوعی را مدل کرد. وزن‌های W_{ij} تا W_{nj} مقدارهای اتصال‌های سیناپسی ورودی‌های نرون می‌باشد. حاصل ضرب سیگنال‌های ورودی x_i تا x_n در وزن‌های مربوطه ورودی خالص نرون را تشکیل می‌دهد. سپس تابع انتقال، بر روی ورودی‌های خالص به نرون عمل می‌کند تا سرانجام خروجی واقعی نرون به دست آید. می‌توان عملیات فوق را توسط معادله‌ی زیر بیان کرد:

$$S_{j,i} = \sum_{i=1}^n W_{j,i} x_i + b_j \quad (1)$$

با مقایسه خروجی به دست آمده از شبکه عصبی با مقدار دلخواه خروجی، بردار خطا محاسبه می‌شود و سپس از این بردار خطا و به کمک الگوریتم آموزشی، مقدار وزن‌های شبکه عصبی طوری تصحیح می‌شوند که در تکرارهای بعدی میزان خطای شبکه عصبی کاهش یابد. تابع‌های انتقال گوناگونی از جمله سیگموئید اکسپوننشالی، سیگموئید تانژانت، سیگموئید لگاریتمی و تابع‌های خطی وجود دارد. در این مطالعه از تابع انتقال سیگموئید لگاریتمی (logsig) استفاده شده است:

$$O_{j,i} = f \left(\sum_{i=1}^n W_{j,i} x_i + b_j \right) \quad (2)$$

داده‌های مورد استفاده در این مطالعه از آزمایش‌های گوناگون صورت گرفته در زمینه تشکیل هیدرات به منظور جداسازی CO_2 توسط پژوهشگران جمع‌آوری شده است [۳۰-۱۷ و ۴]. این داده‌ها شامل داده‌های سه نوع سامانه زیست‌گاز، سوخت گازی و گاز دودکش و در حضور بهبوددهنده‌های TBNO_3 ، TBPB ، TBAB ، TBAC ، TBAF در محدوده‌های دمایی و فشاری و فشاری گوناگون می‌باشد. داده‌های جمع‌آوری شده از این سه سامانه شامل ۵۲۱ دسته داده (هر دسته شامل داده‌های فشار، دما، غلظت و جرم مولکولی اجزای سامانه و بهبوددهنده‌ها) بوده است. مدل شبکه عصبی توسعه‌یافته در این مطالعه دارای یک لایه پنهان است. به منظور توسعه الگوریتم، دسته داده‌ها به دو قسمت

برتری این روش نسبت به روش‌های ترمودینامیکی این است که در مدل‌های ترمودینامیکی و معادله حالت باید یک رابطه ریاضی ارائه شود که برخی از این رابطه‌ها بعضاً پیچیده می‌شوند. با فرضیه‌های بسیاری که برای ساده سازی این نوع معادله‌ها در نظر گرفته می‌شود، سرانجام معادله‌هایی به دست می‌آیند که خطای آن‌ها در برخی موردها گاهی زیاد می‌باشد. نکته مهم دیگر، جامع بودن روش ارائه شده در این پژوهش می‌باشد که برای حجم گسترده‌ای از داده‌های تشکیل هیدرات در حضور بهبود دهنده‌های گوناگون قابل استفاده می‌باشد. این بهبود دهنده‌ها بیش‌ترین اهمیت در جداسازی کربن دی‌اکسید توسط هیدرات را دارند؛ درحالی که معادله‌های ترمودینامیکی ارائه شده توسط پژوهشگران تنها برای تشکیل هیدرات در حضور یک بهبود دهنده خاص از بین خانواده نمک‌های چهار جزئی آمونیوم و فسفنیوم قابل استفاده می‌باشد و در صورت تغییر بهبود دهنده، مدل ترمودینامیکی نیز کارایی خود را از دست خواهد داد.

در این پژوهش از یک شبکه عصبی پیش‌خور استفاده شده است که بر اساس شیوه با ناظر مورد آموزش قرار گرفته است، یعنی هر سیگنال از یک نرون به نرون بعدی به صورت مسیر مستقیم فرستاده می‌شود. ساختار یک شبکه پیش‌خور با یک لایه میانی، شامل یک لایه ورودی برای وارد کردن داده‌ها، لایه یا لایه‌های مخفی برای پردازش داده‌ها و یک لایه خروجی است. یکی از الگوریتم‌های آموزش شبکه عصبی، روش پس انتشار خطا می‌باشد که در آن با تنظیم توابع وزنی میزان خطا را کمینه کند و از این الگوریتم استفاده شده است. با توجه به اینکه در شبکه عصبی، دیگر نیازی به ارائه مدل‌های سخت و پیچیده ترمودینامیکی نمی‌باشد و همچنین به دلیل سرعت همگرایی بالا و خطای پایین، شبکه‌های عصبی انتخاب مناسبی برای پیشبرد هدف این پژوهش به نظر می‌رسند. جامع بودن شبکه ارائه شده در این پژوهش مهم‌ترین برتری آن نسبت به مدل‌های ارائه شده می‌باشد. تاکنون شبکه‌ای ارائه نشده است که قادر به پیش بینی شرایط تشکیل هیدرات در بین مجموعه‌ای از بهبود دهنده‌های خانواده نمک‌های چهار جزئی آمونیوم و فسفنیوم باشد که در این پژوهش شبکه ارائه شده به این مهم دست یافته است.

مدل‌سازی

مدل شبکه عصبی

شبکه عصبی مصنوعی، روشی عملی برای یادگیری توابع گوناگون مانند تابع‌های با مقدارهای حقیقی، گسسته و برداری می‌باشد.

نتیجه‌ها و بحث

برای رسیدن به نتیجه‌های قابل پذیرش از شبکه عصبی، انتخاب داده‌های مناسب و مورد اطمینان نیاز می‌باشد. داده‌های ورودی به شبکه باید متضمن شرایط فیزیکی حاکم بر پدیده‌ی مورد بررسی باشند. در تشکیل هیدرات، نوع سامانه مورد بررسی و بهبوددهنده‌ی استفاده شده به طور مستقیم نقش دارند. نقش نوع سامانه از آن جهت اهمیت دارد که کربن دی‌اکسید در سامانه زیست‌گاز با متان، در سامانه سوخت گازی با هیدروژن و در سامانه گاز دودکش با نیتروژن در ترکیب است که شرایط تشکیل هیدرات در این سه سامانه متفاوت است. حضور بهبوددهنده‌های گوناگون نیز شامل TBAB, TBAC, TBAF, TBANO₃, TBPB نیز شرایط متفاوتی در تشکیل هیدرات پدید می‌آورند. بنابراین ورودی‌های شبکه عصبی به این قرار هستند: دمای تشکیل هیدرات، غلظت و جرم مولکولی CO₂, CH₄, H₂, N₂, TBAB, TBAC, TBAF, TBANO₃, TBPB. جرم مولکولی اجزا به دلیل نشان دادن تأثیر غلظت به عنوان ورودی انتخاب شد. به‌عنوان نمونه، در یک غلظت مشخص از دی‌اکسیدکربن در دو سامانه متفاوت شرایط تشکیل هیدرات نیز متفاوت خواهد بود در نتیجه از جرم مولکولی برای تمایز بین سامانه‌ها و بهبوددهنده‌ها در غلظت‌های همانند استفاده شد.

با توجه به این‌که محدوده‌ی فشار و دمای تشکیل هیدرات برای جداسازی دی‌اکسیدکربن با حضور بهبوددهنده‌های گوناگون متفاوت می‌باشد، در این پژوهش تلاش شده است شبکه‌ای جامع ارایه شود که بتواند همه حالت‌ها را پیش‌بینی کند. بدین منظور محدوده فشاری در نظر گرفته شده برای شبکه از ۱۹۰۷ - ۰ مگاپاسکال و محدوده دمایی ۲۷۵/۱۵ - ۳۰۲/۳۳۹ کلوین می‌باشد که به خوبی تمام حالت‌های تشکیل هیدرات برای همه سامانه‌ها برای جداسازی دی‌اکسیدکربن را پوشش می‌دهد.

به منظور توسعه مدل ارایه شده، داده‌های آزمایشگاهی مطالعه‌های گوناگون جمع‌آوری شده است [۳۰-۱۷ و ۴]. همان‌گونه که اشاره شد، برای توسعه مدل شبکه عصبی، از شبکه‌ای با یک لایه پنهان و دارای ۱۶ نرون استفاده شد. شکل ۲ نشان‌دهنده دلیل استفاده ۱۶ نرون در لایه پنهان می‌باشد. همان‌گونه که در این شکل پیداست، شبکه با ۱۶ نرون در لایه پنهان بهترین عملکرد را از خود نشان می‌دهد.

تک‌تک پارامترهای پیکربندی مدل شبکه عصبی ارایه شده با سعی و خطا به دست آمده است و عملکرد این شبکه‌ها با

آموزش و آزمون تقسیم شد که ۸۲٪ داده‌ها برای آموزش شبکه و ۱۸٪ دیگر فقط برای آزمون شبکه آموزش داده شده مورد استفاده قرار گرفته است و عملکرد شبکه را مورد ارزیابی قرار داده است. سرانجام، یک شبکه با لایه ورودی شامل ۱۹ نرون (دمای تشکیل هیدرات، غلظت و جرم مولکولی اجزای سامانه و بهبوددهنده‌ها)، یک لایه پنهان شامل ۱۶ نرون و یک لایه خروجی با یک نرون (فشار تشکیل هیدرات) به منظور پیش‌بینی شرایط تشکیل هیدرات طراحی شد. معماری شبکه آموزش داده شده در شکل ۱ نشان داده شده است.

آنالیز خطا

برای نشان دادن عملکرد مدل‌های ارایه شده و نمایش انحراف خروجی مدل از مقدارهای هدف، از پارامترهای ضریب خطا استفاده می‌شود. بدین منظور از ضریب تعیین (R²)، متوسط مربع خطا (MSE)، متوسط مطلق خطا (MEAE%) در این مطالعه استفاده شده است، که به قرار زیر هستند:

$$R^2 = \frac{A - B}{A} \quad (3)$$

$$MSE = \frac{C}{n} \quad (4)$$

$$MEAE\% = \frac{1}{n} D \times 100 \quad (5)$$

که:

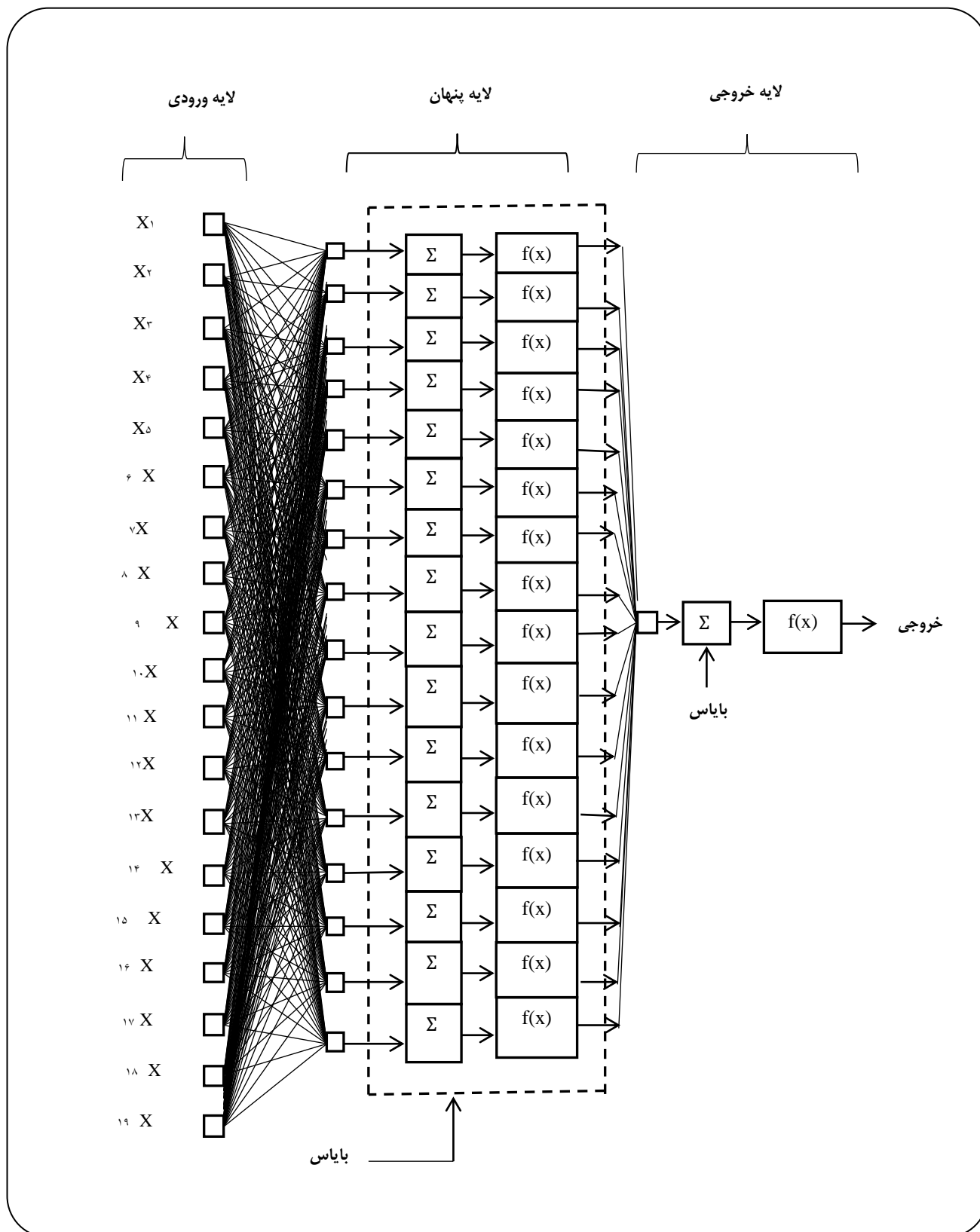
$$A = \sum_{i=1}^n (\text{actual value} - \text{mean value})^2 \quad (6)$$

$$B = \sum_{i=1}^n (\text{Predicted value} - \text{actual value})^2 \quad (7)$$

$$C = \sum_{i=1}^n (\text{actual value} - \text{predicted value})^2 \quad (8)$$

$$D = \sum_{i=1}^n \frac{|\text{predicted value} - \text{actual value}|}{\text{actual value}} \quad (9)$$

که در آن، actual value مقدار خروجی هدف، predicted value خروجی پیش‌بینی شده توسط مدل، mean value متوسط داده‌ها و n تعداد داده‌ها می‌باشد.



شکل ۱- ساختار عصبی شبکه.

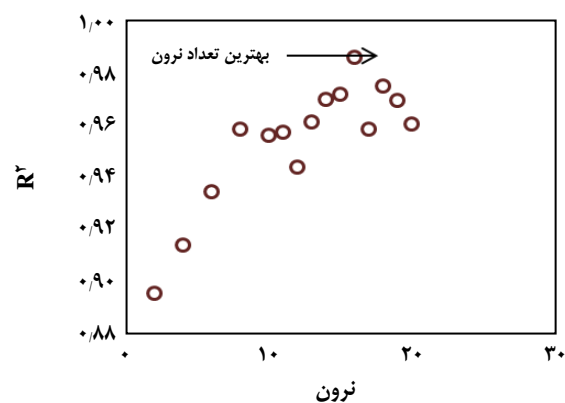
جدول ۱- پیکربندی شبکه عصبی مدل سازی شده.

مشخصات	پیکربندی
نوع شبکه	Feed forward
تعداد نرون‌ها	۱ و ۱۶
تابع انتقال لایه خروجی	Purelin
تابع فعال سازی	Logsig
نرخ آموزش	۰/۰۹
الگوریتم آموزش	لونیگم - مارکوارت

به ترتیب در شکل‌های ۳، ۴ و ۵ آورده شده است. در این شکل‌ها مقادارهای پیش‌بینی شده توسط مدل با مقادارهای آزمایشگاهی مقایسه شده است، بدین صورت که محور عمودی نمایش‌دهنده مقادارهای پیش‌بینی شده توسط مدل و محور افقی نمایش‌دهنده مقادارهای آزمایشگاهی متناظر است.

ضریب تعیین، متوسط مربع خطا، متوسط مطلق خطا، بیشینه مطلق خطا و کمینه مطلق خطا برای نمایش صحت مدل شبکه عصبی ارایه شده محاسبه شده و در جدول ۲ آورده شده‌اند. مقدار ضریب تعیین نشانگر عملکرد مناسب شبکه عصبی آموزش داده شده می‌باشد. که با استناد به این مقدار و مقادارهای سایر خطاها هم در قسمت آموزش و هم در قسمت آزمون شبکه به روشنی می‌توان دریافت که این شبکه برای سامانه زیست‌گاز، سوخت گازی و گاز دودکش از دقت بسیار بالایی برخوردار است.

نتیجه‌های به دست آمده آنالیز خطا برای مدل ارایه شده در آموزش و آزمون سامانه‌های گوناگون و مجموع سامانه‌ها نشان‌دهنده عملکرد قابل قبول مدل شبکه عصبی توسعه یافته می‌باشد. همان‌گونه که پیش‌تر گفته شد، هدف از این مطالعه در ابتدا ارایه‌ی یک مدل جامع می‌باشد که بتواند شرایط تشکیل هیدرات برای جداسازی کربن دی‌اکسید از سامانه‌های گوناگون نشر این گاز شامل زیست‌گاز، سوخت گازی و گاز دودکش در حضور بهبوددهنده‌های گوناگون را پیش‌بینی کند. با توجه به شکل‌های ۳ تا ۵ و همچنین جدول ۲ می‌توان به این نتیجه رسید که مدل شبکه عصبی توسعه داده شده به خوبی توانا به پیش‌بینی شرایط تشکیل هیدرات در سامانه‌های یاد شده می‌باشد.



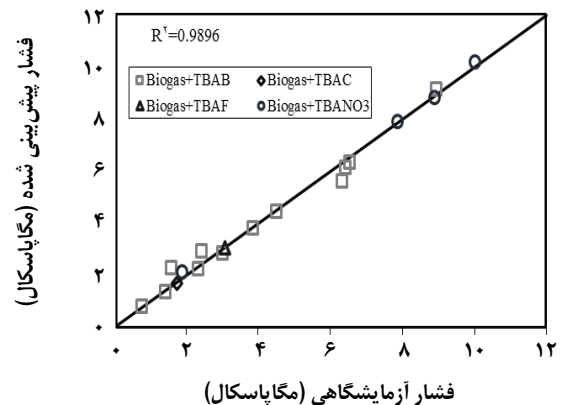
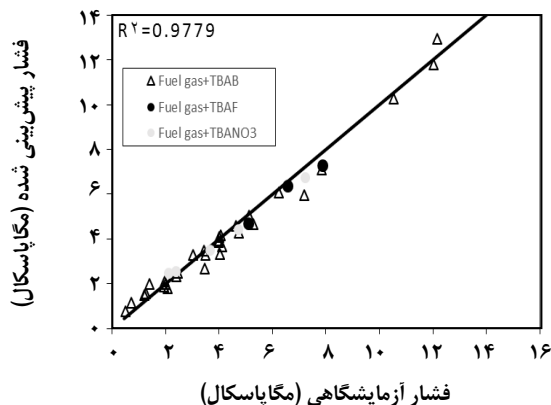
شکل ۲- تأثیر تعداد نرون لایه مخفی بر عملکرد پیش‌بینی شبکه.

پارامترهای خطا و ضریب تعیین مورد ارزیابی قرار گرفته است. یعنی شبکه‌ای که کمترین میزان انحراف را از مقادارهای هدف هم برای داده‌های آموزش و هم برای داده‌های آزمون شبکه دارا است، به عنوان مدل ارایه شده است. به عنوان مثال در شکل ۲ با امتحان شبکه‌های گوناگون که دارای تعداد نرون‌های لایه مخفی متفاوتی بودند، شبکه‌ای با ۱۶ نرون در لایه مخفی که کمترین میزان انحراف از مقادارهای هدف را داشت به عنوان شبکه مطلوب انتخاب شد. اطلاعات شبکه آموزش داده شده در جدول ۱ آورده شده است.

برای آزمون قابلیت پیش‌بینی مدل شبکه عصبی آموزش داده شده، ۱۸٪ از کل داده‌های آزمایشگاهی که در مرحله آموزش شبکه مورد استفاده قرار نرفته‌اند را توسط شبکه با معماری ارایه شده در جدول ۱ مورد ارزیابی قرار می‌دهد. نتیجه‌های به دست آمده برای هر سه سامانه زیست‌گاز، سوخت گازی و گاز دودکش

جدول ۲- نتیجه‌های آنالیز خطا برای آموزش و آزمون شبکه مدل ارایه شده در سامانه‌های گوناگون و مجموع سامانه‌ها.

MEAE%	MSE	R ²	نوع سامانه
۴,۳۲۳۲	۰,۱۶۲۱	۰,۹۹۰۵	بیوگاز آموزش
۷,۶۸۲۲	۰,۰۴۶۲	۰,۹۸۹۶	بیوگاز آزمون
۸,۳۸۷۳	۰,۰۵۶۱۵	۰,۹۸۴۷	سوخت گازی آموزش
۱۲,۸۴۱۹	۰,۲۰۰۹	۰,۹۷۷۹	سوخت گازی آزمون
۳,۶۵۱۴	۰,۰۴۸۸۷	۰,۹۸۷۹	گاز دودکش آموزش
۴,۴۱۷	۰,۱۴۵۹	۰,۹۸۶۴	گاز دودکش آزمون
۵,۵۷۱۱	۰,۱۲۱۲	۰,۹۸۷۴	مجموع آموزش
۷,۱۹۰۴	۰,۲۴۰۱	۰,۹۸۳۸	مجموع آزمون



شکل ۴- مقایسه مقدارهای آزمایشگاهی فشار تشکیل هیدرات و مقادیر پیش‌بینی شده حاصل از مدل ANN برای نمونه سامانه سوخت گازی در حضور بهبوددهنده‌های گوناگون در آزمون شبکه.

شکل ۳- مقایسه مقدارهای آزمایشگاهی فشار تشکیل هیدرات و مقدارهای پیش‌بینی شده حاصل از مدل ANN برای نمونه سامانه زیست‌گاز در حضور بهبوددهنده‌های گوناگون در آزمون شبکه.

نتیجه‌گیری

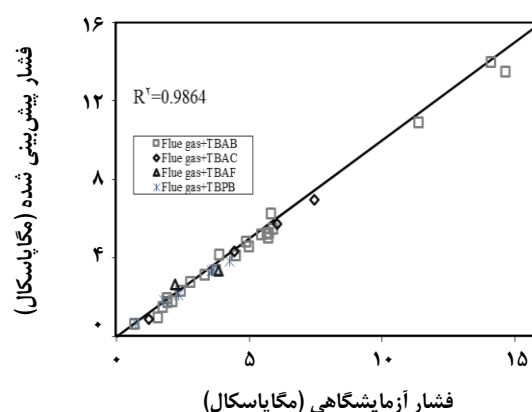
تعیین شرایط تشکیل هیدرات برای جداسازی کربن دی‌اکسید از سه سامانه عمده‌ی نثر این گاز شامل زیست‌گاز (CH₄+CO₂)، سوخت گازی (H₂+CO₂) و گاز دودکش (N₂+CO₂) با استفاده از تکنولوژی جداسازی بر مبنای هیدرات در حضور بهبوددهنده‌های ترمودینامیکی تشکیل هیدرات شامل TBAB, TBAC, TBAF, TBANO₃, TBPB مورد ارزیابی قرار گرفته شده است. با توجه به

در گام بعد تلاش شد مدل ارایه شده دقت بالاتری نسبت به مدل‌های جامع ارایه شده توسط پژوهشگران داشته باشد [۱۵، ۱۳]. با بررسی خروجی به‌دست آمده از مدل شبکه عصبی ارایه شده در این مطالعه، می‌توان به روشنی دریافت که این مدل از دقت بالاتری نسبت به مدل‌های جامع پیشین برخوردار است. نتیجه‌های مقایسه بین مدل ارایه شده در این مطالعه و مدل‌های جامع پیشین در جدول ۳ آورده شده است.

جدول ۳- مقایسه نتیجه‌های آنالیز خطا برای مدل شبکه عصبی توسعه داده شده در این پژوهش با مدل‌های جامع ارایه شده توسط پژوهشگران.

سیستم					
خطا	مدل ارائه شده	بیوگاز + بهبوددهنده [۱۷-۱۹]	سوخت گازی + بهبوددهنده [۲۴-۲۰، ۴]	گاز دودکش + بهبوددهنده [۲۵-۳۰]	مجموع سیستم‌ها + بهبوددهنده [۴، ۱۷-۳۰]
R ²	مدل شبکه عصبی	۰٫۹۸۹۶	۰٫۹۷۷۹	۰٫۹۸۶۴	۰٫۹۸۳۸
	مدل صیادامین و همکاران ۱ [۱۳]	۰٫۹۰۶۴	۰٫۹۴۵۲	۰٫۹۳۶۱	۰٫۹۳۸۱
	مدل صیادامین و همکاران ۲ [۱۵]	۰٫۹۳۲۳	۰٫۹۴۸۸	۰٫۹۵۳۱	۰٫۹۴۷۹
MSE	مدل شبکه عصبی	۰٫۰۴۶۲	۰٫۲۰۰۹	۰٫۱۴۵۹	۰٫۲۴۰۱
	مدل صیادامین و همکاران ۱ [۱۳]	۰٫۴۰۶۱	۰٫۱۴۰۱	۰٫۶۸۶۶	۰٫۳۹۰۵
	مدل صیادامین و همکاران ۲ [۱۵]	۰٫۳۲۲۵	۰٫۱۳۲۱	۰٫۵۰۴۲	۰٫۳۲۷۲
MEAE%	مدل شبکه عصبی	۷٫۶۸۲۲	۱۲٫۸۴۱۹	۴٫۴۱۷	۷٫۱۹۰۴
	مدل صیادامین و همکاران ۱ [۱۳]	۱۳٫۱۲۷۶	۸٫۹۴۹۹	۱۳٫۱۱۱۱	۱۱٫۰۸۲
	مدل صیادامین و همکاران ۲ [۱۳]	۱۲٫۵۳۲۷	۸٫۵۰۳۴	۱۲٫۵۹۳۳	۱۰٫۵۸۱

تنوع سامانه‌ها و بهبوددهنده‌های مورد استفاده یک مدل جامع بر مبنای شبکه عصبی پیشرو توسعه داده شد که با دقت قابل پذیرشی می‌تواند شرایط تشکیل هیدرات به منظور جداسازی گاز کربن دی‌اکسید پیش‌بینی کند. مدل ارایه شده دارای رابطه‌های ریاضی و فیزیکی نیست و می‌تواند به سادگی شرایط تشکیل هیدرات را تخمین بزند و جایگزین انجام آزمایش‌های وقت‌گیر و پرهزینه شود. از دیگر برتری‌های این مدل می‌توان به دقت بالاتر این مدل در مقایسه با سایر مدل‌های جامع پیشین اشاره کرد.



شکل ۵ - مقایسه مقادیرهای آزمایشگاهی فشار تشکیل هیدرات و مقادیرهای پیش‌بینی شده به دست آمده از مدل ANN برای نمونه سامانه گاز دودکش در حضور بهبوددهنده‌های گوناگون در آزمون شبکه.

تاریخ دریافت: ۱۳۹۶/۱۰/۴؛ تاریخ پذیرش: ۱۳۹۷/۲/۲۱

مراجع

- [1] Gholinezhad J., Chapoy A., Tohidi B., Separation and Capture of Carbon Dioxide from CO₂/H₂ Syngas Mixture Using Semi-Clathrate Hydrates, *Chemical Engineering Research and Design*, **89**: 1747-1754 (2011).

- [2] Belandria V., Mohammadi A. H., Richon D., [Compositional Analysis of the Gas Phase for the CO₂+ N₂+ Tetra-n-Butylammonium Bromide Aqueous Solution Systems under Hydrate Stability Conditions](#), *Chemical Engineering Science*, **84**: 40-47 (2012).
- [3] Xia Z. M., Li X. S, Chen Z. Y., Li G., Yan K. F., Xu C. G., Lv Q. N, and Cai J., [Hydrate-Based CO₂ Capture and CH₄ Purification from Simulated Biogas with Synergic Additives Based on Gas Solvent](#), *Applied Energy*, Inpress, (2015).
- [4] Park S., Lee S., Lee Y., Seo Y., [CO₂ Capture from Simulated Fuel Gas Mixtures Using Semiclathrate Hydrates Formed by Quaternary Ammonium Salts](#), *Environmental Science and Technology*, **47**: 7571-7577 (2013).
- [5] Karamoddin M. and Varaminian F., [Water Desalination Using R141b Gas Hydrate Formation](#), *Desalination and Water Treatment*, **52**: 2450-2456 (2014).
- [6] Babu P., Kumar R., Linga P., [Medium Pressure Hydrate Based Gas Separation \(HBGS\) Process for Pre-Combustion Capture of Carbon Dioxide Employing a Novel Fixed Bed Reactor](#), *International Journal of Greenhouse Gas Control*, **17**: 206-214 (2013).
- [7] Hoseini nasab S. M., Vafaei M., Mohamadi A., Izadpanah A. A., [Development of New Empirical Correlation for Predicting Hydrate Formation Conditions](#), "Proceedings of the 7th International Conference on Gas Hydrates", Edinburgh, Scotland, United Kingdom, 17-21, (2011).
- [8] Babaee S., Hashemi H., Mohammadi A. H., Naidoo P., Ramjugernath D., [Experimental Measurement and Thermodynamic Modeling of Hydrate Dissociation Conditions for the Argon + TBAB + Water System](#), *Journal of Chemical & Engineering Data*, **59**: 3900-3906 (2014).
- [9] Bahadori A., Vuthaluru H.B., [A Novel Correlation for Estimation of Hydrate Forming Condition of Natural Gases](#), *Journal of Natural Gas Chemistry*, **18**: 453-457 (2009).
- [10] Sayyad Amin J., Bahadori A., Mohamadi E., Hoseini Nia B., [Predicting Natural Gas Hydrate Formation Temperature Using Levenberg-Marquardt Algorithm](#), *Petroleum Science and Technology*, **33**: 1038-1044 (2015).
- [۱۱] محمدی ا، عرب اسدی ز، جهانگیری ع، یاری فرد ع.ا، [پیش‌بینی شرایط ترمودینامیکی تشکیل هیدرات‌های شبه کلتریت برای سیستم‌های \(متان/کربن‌دی‌اکسید/نیتروژن\)+TBAC+آب با استفاده از شبکه‌های عصبی مصنوعی، پژوهش نفت، \(۹۰\) ۲۶: ۱۵ تا ۲۵ \(۱۳۹۵\)](#)
- [12] Sayyad Amin J., Abbasi Souraki B., Bahadori A., Rafiee S., [Prediction of Hydrate Formation Conditions to Separate Carbon Dioxide from Fuel Gas Mixture in the Presence of Various Promoters](#), *Petroleum Science and Technology*, **34**: 153-161 (2016).
- [13] Sayyad Amin J., Bahadori M., Bahadori A., Abbasi Souraki B, Rafiee S., [Modelling of CO₂ Capture and Separation from Different Gas Mixtures Using Semi Clathrate Hydrates](#), *Petroleum Science and Technology*, **34**: 406-414 (2016).

- [14] Ghiasi M.M., [Initial Estimation of Hydrate Formation Temperature of Sweet Natural Gases Based on New Empirical Correlation](#), *Journal of Natural Gas Chemistry*, **21**: 508–512 (2012).
- [15] Sayyad Amin J., Bahadori A., Kashiwao T., Ahmad Z., Abbasi Souraki B., Rafiee S., [A New Empirical Correlation for Prediction of Carbon Dioxide Separation from Different Gas Mixtures](#), *Petroleum Science and Technology*, **34**:562-569 (2016).
- [16] Hagan M. T., Demuth H.B., Beale M., *“Neural Network Design”*, Orlando De Jes, (2002).
- [17] Acosta H. Y., Bishnoi P. R., Clarke M.A., [Experimental Measurements of the Thermodynamic Equilibrium Conditions of Tetra-n-butyl ammonium Bromide Semi clathrates Formed from Synthetic Landfill Gases](#), *Journal of Chemical & Engineering Data*, **56**: 69-73 (2011).
- [18] Fan S., Li Q., Nie J., Lang X., Wen Y., Wang Y., [Semi clathrate Hydrate Phase Equilibrium for CO₂/CH₄ Gas Mixtures in the Presence of Tetra Butyl Ammonium Halide \(Bromide, Chloride, or Fluoride\)](#), *Journal of Chemical & Engineering Data*, 58:3137-3141, (2013).
- [19] Mohammadi A. H., Eslamimanesh A., Richon D., [Semi-Clathrate Hydrate Phase Equilibrium Measurements for the CO₂+H₂/CH₄+tetra-n-Butylammoniumbromide Aqueous Solution System](#), *Chemical Engineering Science*, **94**:284-290 (2013).
- [20]. Li X. S, Xia Z. M, Chen Z. Y, Yan K. F., Li G., and Wu H. J., [Equilibrium Hydrates Formation Conditions for the Mixtures of CO₂+H₂+TBAB](#), *Journal of Chemical & Engineering Data*, **55**: 2180-2184 (2010).
- [21] Babu P., Yao M., Datta S., Kumar R., Linga P., [Thermodynamic and Kinetic Verification of TBANO₃ as a Promoter of the Clathrate Process Applicable for Pre Combustion CO₂ Capture](#), *Environmental Science & Technology*, **48**: 3550-3558 (2014).
- [22] Xu C.G., Zhang S.H., Cai J., Chen Z.Y., Li X.S., [CO₂ \(carbon dioxide\) Separation from CO₂-H₂ \(hydrogen\) Gas Mixtures by Gas Hydrates in TBAB \(tetra-n-butyl ammonium bromide\) Solution and Raman Spectroscopic Analysis](#), *Energy*, **59**: 719-725 (2013).
- [23] Kim S.M., Lee J.D., Lee H.J., Lee E.K., Kim Y., [Gas Hydrates Formation Method to Capture the Carbon Dioxide for Pre-Combustion Process in IGCC Plant](#), *International Journal of Hydrogen Energy*, **36**: 1115-1121 (2011).
- [24] Wang S., Danner M., Kuchling T., Clarke M.A., [Measurement of the Three-Phase \(vapor + liquid + solid\) Equilibrium Conditions of Semi-Clathrate Formed from Mixtures of CO₂, CO and H₂](#), *The Journal of Chemical Thermodynamics*, **56**: 149-152 (2013).
- [25] Mohammadi A.H., Eslamimanesh A., Belandria V., Richon D., [Phase Equilibrium Measurements for Semi-Clathrate Gydrates of the \(CO₂ + N₂ + tetra-n-butyl ammonium bromide\) Aqueous Solution System](#), *The Journal of Chemical Thermodynamics*, **46**: 57-61 (2012).
- [26] Ye N., Zhang P., [Phase Equilibrium Conditions and Carbon Dioxide Separation Efficiency of Tetra-n-butyl Phosphonium Bromide Hydrate](#), *Journal of Chemical & Engineering Data*, **59**: 2920-2926 (2014).

- [27] Sfaxi I.B.A., Durand I., Lugo R., Mohammadi A.H., Richon D., [Hydrate Phase Equilibria of CO₂+ N₂+ Aqueous Solution of THF, TBAB or TBAF System](#), *International Journal of Greenhouse Gas Control*, **26**: 185-192 (2014).
- [28] Belandria V., Mohammadi A.H., Eslamimanesh A., Richon D., Sánchez-Mora M.F., Galicia-Luna L.A., ["Phase Equilibrium Measurements for Semi-Clathrate Hydrates of the \(CO₂ + N₂ + tetra-n-butyl ammonium bromide\) Aqueous Solution Systems: Part 2](#), *Fluid Phase Equilibria*, **322-323**: 105-112 (2012).
- [29] Meysel P., Oellrich L., Bishnoi P. R., Clarke M.A., [Experimental Investigation of Incipient Equilibrium Conditions for the Formation of Semi-Clathrate Hydrates from Quaternary Mixtures of \(CO₂ + N₂ + TBAB + H₂O\)](#), *The Journal of Chemical Thermodynamics*, **43**: 1475-1479 (2011).
- [30] Sun S.C., Liu C.L., Meng Q.G., [Hydrate Phase Equilibrium of Binary Guest-Mixtures Containing CO₂ and N₂ in Various Systems](#), *The Journal of Chemical Thermodynamics*, **54**: 1-6 (2015).
- [31] Fulton W., and Harris J., ["Representation Theory: A First Course, Graduate Texts in Mathematics, and Readings in Mathematics"](#), Springer-Verlag, New York, (1991).
- [32] Bair E., Hastie T., Paul D., Tibshirani R., [Prediction by Supervised Principal Components](#), *Journal of the American Statistical Association*, **101**: 119-137 (2006).