پیش‌بینی شرایط ترمودینامیکی تشکیل هیدرات‌های شبه‌کلاتریت برای سیستم‌های (متان/ کربن‌دی‌اکسید/ نیتروژن) + TBAC + آب با استفاده از شبکه‌های عصبی مصنوعی

ابوالفضل محمدی*[۱]، زینب عرب اسدی[۲]، علیرضا جهانگیری[۳] و علی‌اصغر یاری‌فرد[۱]

۱- دانشکده فنی و مهندسی، دانشگاه بجنورد، ایران

۲- دانشکده علوم پایه، دانشگاه بجنورد، ایران

۳- دانشکده فنی و مهندسی، دانشگاه شهرکرد، ایران

تاریخ دریافت: ۹۴/۲/۲۶ تاریخ پذیرش: ۹۴/۷/۱۲

چکیده

شبه‌کلاتریت‌ها ساختارهایی جدید از هیدرات‌های گازی هستند که شرایط ترمودینامیکی تشکیل هیدرات گازی در آنها از هیدرات‌های کلاتریت بسیار راحت‌تر است. مدل‌های ارایه‌شده برای پیش‌بینی شرایط ترمودینامیکی شبه‌کلاتریت‌ها انگشت‌شماراند. در کار حاضر از ابزار شبکه عصبی مصنوعی با ساختار پرسپترون چندلایه برای پیش‌بینی شرایط ترمودینامیکی تشکیل هیدرات شبه‌کلاتریت برای سیستم‌های آب + تترا ان- بوتیل آمونیوم کلراید(TBAC) + متان/ کربن‌دی‌اکسید/ نیتروژن استفاده شده است. محدوده‌ای وسیع از داده‌های ترمودینامیکی موجود در مقالات، شامل ۱۹۵ داده آزمایشگاهی، برای توسعه این مدل ترمودینامیکی و از TBAC با غلظت‌های ۰ تا ۳۶/۱۸٪ وزنی برای آموزش شبکه استفاده شد. ۸۵٪ از داده‌های آزمایشگاهی استفاده‌شده در این مقاله برای آموزش شبکه عصبی مصنوعی توسعه‌داده‌شده به کار گرفته شد. برای آزمودن شبکه توسعه‌داده‌شده، تعدادی داده آزمایشگاهی مستقل که در آموزش شبکه از آنها استفاده نشده است به کار رفت. نتایج پیش‌بینی‌های شبکه عصبی توسعه‌داده‌شده نشان دادند که این پیش‌بینی‌ها و داده‌های آزمایشگاهی تطابقی خوب دارند.

کلمات کلیدی: شبه‌کلاتریت‌ها، TBAC، شبکه عصبی، هوش مصنوعی، هیدرات‌های گازی.

مقدمه

هیدرات‌های گازی(هیدرات‌های کلاتریت) ترکیبات کریستالی جامد و غیراستوکیومتری هستند که از به دام افتادن مولکول‌های میهمان(با اندازه مناسب) در حفرات ناشی از پیوند هیدروژنی آب تشکیل می‌شوند[۱]. هیدرات‌های گازی قابلیت زیادی برای استفاده در صنایع مختلف دارند. ذخیره‌سازی و جداسازی گازها[۲-۴]، حذف کربن‌دی‌اکسید[۵-۱۰]، شیرین‌سازی آب[۱۱]، تبرید و تهویه مطبوع[۱۲-۱۶]، جداسازی ترکیبات با نقطه جوش نزدیک به هم

*مسؤول مکاتبات
آدرس الکترونیکی mohammadi.a@ub.ac.ir

[۱۷-۲۰] و ... از مهم‌ترین کاربردهای هیدرات‌های گازی هستند. سینتیک کند و ترمودینامیک سخت تشکیل هیدرات‌های گازی از جمله مهم‌ترین عواملی هستند که مانع استفاده صنعتی از آنها شده‌اند. برای بهبود سینتیک تشکیل هیدرات می‌توان از تسهیل‌کننده‌های سینتیکی مثل مواد فعال سطحی استفاده کرد[۲۱-۲۳].

در سال‌های اخیر تحقیقات زیادی در زمینه تسهیل‌کننده‌های ترمودینامیکی تشکیل هیدرات انجام شده‌اند[۲۴-۲۷]. فولر و همکارانش در سال ۱۹۴۰ ساختاری جدید از هیدرات‌ها را با ماهیتی متفاوت با هیدرات‌های کلاتریت کشف کردند[۲۸]. در این نوع هیدرات‌ها که به آنها هیدرات‌های شبه‌کلاتریت نیز گفته می‌شود، بخشی از مولکول میهمان درون حفرات هیدرات قرار می‌گیرد و بخشی از آن در ساختار شبکه هیدرات شرکت می‌کند[۲۸ و ۲۹]. یکی از مهم‌ترین ویژگی‌های هیدرات‌های شبه‌کلاتریت تسهیل قابل‌ملاحظه شرایط تشکیل هیدرات است[۲۹-۳۳].

تترا ان- بوتیل آمونیوم کلراید(TBAC)[1] یکی از نمک‌های تشکیل‌دهنده هیدرات‌های شبه‌کلاتریت است که می‌تواند شرایط تشکیل هیدرات را به‌شدت تسهیل کند[۳۲]. محمدی و همکارانش اثر TBAC را بر شرایط تعادلی تشکیل هیدرات گازهای متان، کربن‌دی‌اکسید و نیتروژن بررسی کردند[۳۲] و نشان دادند که این نمک، ضمن این که نمودار فشار- دما را برای هیدرات‌های گازی متان، کربن‌دی‌اکسید و نیتروژن بسیار به شرایط محیطی نزدیک می‌کند[۳۲]، مشکلاتی مثل فرّار بودن و سمی بودن دیگر تسهیل‌کننده‌های ترمودینامیکی را ندارد. خلاصه‌ای از داده‌های تجربی تشکیل هیدرات‌های شبه‌کلاتریت موجود در مقالات برای سیستم‌های آب+ TBAC + متان، آب+ TBAC+ کربن‌دی‌اکسید و آب+ TBAC + نیتروژن جمع‌آوری و در جدول ۱ آورده شده است.

جدول ۱ فهرست داده‌های تجربی استفاده‌شده برای آموزش و آزمودن شبکه عصبی توسعه‌داده‌شده برای سیستم‌های متان/ کربن‌دی‌اکسید/ نیتروژن + TBAC + آب.

مرجع	سیستم	جزء جرمی TBAC در محلول آبی	دما/ کلوین	تعداد داده‌های آزمایشگاهی
[۳۲]	متان+ TBAC + آب	۰، ۰/۰۵، ۰/۱۵ و ۰/۲۲	۲۹۲/۱ – ۲۷۶/۰	۱۵
[۳۷]	متان+ TBAC + آب	۰	۲۸۶/۴ – ۲۷۳/۴	۱۱
[۳۸]	متان+ TBAC + آب	۰/۰۵، ۰/۳۴	۲۸۸/۰ – ۲۸۱/۴	۲۱
[۳۹]	متان+ TBAC + آب	۰/۰۵، ۰/۱ و ۰/۳	۲۹۲/۱ – ۲۸۴/۸	۱۰
[۴۰]	متان+ TBAC + آب	۰/۱، ۰/۲ و ۰/۳	۲۹۲/۹ – ۲۸۴/۱	۲۶
[۳۲]	کربن‌دی‌اکسید+ TBAC + آب	۰، ۰/۰۵، ۰/۱۵ و ۰/۲۲	۲۹۰/۰ – ۲۷۵/۱	۱۵
[۴۱]	کربن‌دی‌اکسید+ TBAC + آب	۰/۰۴۳۴ و ۰/۰۸۷۴	۲۸۹/۲ – ۲۸۰/۱	۱۵
[۳۸]	کربن‌دی‌اکسید+ TBAC + آب	۰/۳۴	۲۹۳/۳ – ۲۸۹/۳	۹
[۴۲]	کربن‌دی‌اکسید+ TBAC + آب	۰/۳۶۱۸	۲۹۱/۷ – ۲۸۹/۳	۵
[۴۳]	نیتروژن+ TBAC + آب	۰	۲۷۲/۰ – ۲۹۱/۰	۳۸
[۳۲]	نیتروژن+ TBAC + آب	۰/۰۵، ۰/۱۵ و ۰/۲۲	۲۸۹/۰ – ۲۷۸/۹	۱۸
[۳۸]	نیتروژن + TBAC + آب	۰/۳۴	۲۸۹/۷ – ۲۸۸/۵	۱۲

1. Tetra n-butylammonium chloride

در سال‌های اخیر مدل‌های ترمودینامیکی بسیار زیاد و قابل‌اعتمادی برای پیش‌بینی شرایط تعادلی تشکیل هیدرات‌های کلاتریت ارایه شده‌اند[۳۴-۳۶]؛ اما با توجه به این که به هیدرات‌های گازی شبه‌کلاتریت در سال‌های اخیر توجه شده، مدل‌سازی این نوع هیدرات یکی از چالش‌های پژوهشگران است و توسعه ابزاری برای پیش‌بینی شرایط ترمودینامیکی تشکیل هیدرات‌های شبه‌کلاتریت برای کاهش هزینه‌های آزمایشگاهی ضروری است. در کار حاضر از ابزار شبکه عصبی مصنوعی برای پیش‌بینی شرایط تعادلی تشکیل هیدرات‌های شبه‌کلاتریت برای سیستم‌های آب+ TBAC+ متان/ کربن‌دی‌اکسید/ نیتروژن استفاده می‌شود. شبکه‌های عصبی مصنوعی الگویی برای پردازش اطلاعات‌اند که با تقلید از شبکه عصبی بیولوژیکی مثل مغز انسان ساخته شده‌اند. عنصر کلیدی این الگو ساختار جدید سیستم پردازش اطلاعات آن است که از تعداد زیادی عنصر(نرون) با ارتباطات قوی داخلی، که برای حل مسائل مخصوص هماهنگ با هم کار می‌کنند، تشکیل شده است[۴۴]. به‌طور کلی می‌توان گفت که شبکه عصبی مصنوعی مدل‌سازی مغز انسان با حدود ۱۰۱۳ نرون و ۱۰۱۵ سیناپس(اتصال) است که مهم‌ترین ویژگی آن قدرت یادگیری است و از مجموعه‌ای از المان‌های ساده و پرتعداد، که به آن نرون گفته می‌شود و به‌شکلی پیچیده به هم متصل شده‌اند، تشکیل شده است[۴۵]. نرون‌های مصنوعی تقریبا شبیه نرون‌های زیستی کار می‌کنند: دریافت ورودی‌های زیاد با وزن‌های مختلف و تولید یک خروجی که به ورودی وابسته است[۴۵].

شبکه عصبی مصنوعی

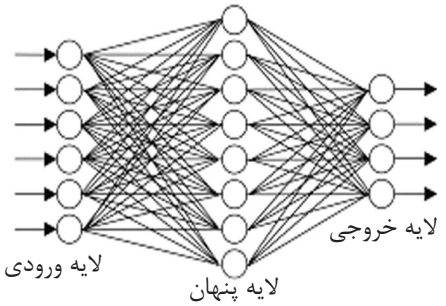
ساختار شبکه عصبی مصنوعی

یک شبکه عصبی مصنوعی شامل متغیرهای ورودی، متغیرهای خروجی و وزن‌هاست. رفتار شبکه به ارتباط متغیرهای ورودی و خروجی وابسته است. در حالت کلی در شبکه‌های عصبی سه نوع لایه نرونی وجود دارند[۴۵ و ۴۶](شکل ۱):

الف) لایه ورودی[1]: دریافت اطلاعات خام که به شبکه وارد شده‌اند؛

ب) لایه‌های پنهان[2]: انجام محاسبات در آنها؛

ج) لایه خروجی[3]: وابسته بودن عمل‌کرد آن به فعالیت لایه پنهان و وزن بین واحد پنهان و خروجی[۴۵ و ۴۶].



شکل ۱ ساختار کلی شبکه عصبی مصنوعی.

شبکه عصبی مصنوعی با ساختار پرسپترون چندلایه

شبکه عصبی مصنوعی با ساختار پرسپترون چندلایه به‌طور کلی از سه لایه و هر لایه از تعدادی واحد پردازش به نام نرون(سلول، واحد و یا گره) تشکیل شده است. اولین لایه هر شبکه را لایه ورودی می‌گویند که در آن بردارهای داده‌های ورودی نگاشت در نظر گرفته می‌شوند. لایه آخر هر شبکه به لایه خروجی معروف است که در آن بردارهای خروجی نگاشت استقرار می‌یابند. هم‌چنین هر پرسپترون از تعدادی لایه میانی، که لایه‌های پنهان نامیده می‌شوند، تشکیل شده است. تعداد این لایه‌ها و نیز نرون‌ها در هر لایه را طراح با فرآیند آزمون و خطا پیدا می‌کند. شبکه‌های عصبی عموماً قدرت برون‌یابی خوبی ندارند، بنابراین در انتخاب داده‌های آموزشی باید این نکته را در نظر گرفت. به همین دلیل قبل از شروع کار با شبکه عصبی، داده‌ها به دو سری آموزشی[4] و آزمایشی[5] تقسیم می‌شوند.

1. Input Layer
2. Hidden Layer
3. Output Layer
4. Train
5. Test

داده‌های آموزشی باید تا حد امکان کل فضای داده‌ها را پوشش دهند. بدیهی است که تعداد بیش‌تر داده‌های آموزشی قابلیت تعمیم شبکه را بالا می‌برد. آموزش فرآیندی با زمان طولانی است، ولی پس از تعمیم، به‌سرعت می‌تواند، به ازای هر ورودی، خروجی متناظر با آن را ارایه کند. روش‌های زیادی برای آموزش شبکه و اصلاح وزن‌ها برای رسیدن به یک خطای معنادار وجود دارند که یکی از مشهورترین آنها الگوریتم پس‌انتشار خطا[1] است[۴۷]. در کار حاضر از این الگوریتم در شبکه عصبی مصنوعی با ساختار پرسپترون چندلایه و از تابع نمایی سیگموید[۴۸-۵۰] برای انتقال داده‌ها به لایه خروجی استفاده شده است. فرم ریاضی تابع سیگموید برای انتقال داده‌ها به لایه خروجی به‌صورت زیر است[۴۸-۵۰]:

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

برای ارزیابی نتایج حاصل از مدل‌های مختلف شبکه عصبی مصنوعی و مقایسه نتایج نهایی با مقادیر مشاهده‌شده از پارامترهای آماری زیر استفاده شد:

$$R^2=\frac{\sum\{(x_{est}-\bar{x}_{est})\times(x_{obs}-\bar{x}_{obs})\}}{\sqrt{\sum(x_{est}-\bar{x}_{est})^2\times\sum(x_{obs}-\bar{x}_{obs})^2}} \quad (2)$$

$$RMSE=\sqrt{\frac{\sum(x_{obs}-x_{est})^2}{n}} \quad (3)$$

x_{obs}، مقادیر تجربی؛ x_{est}، مقادیر برآوردی حاصل از شبکه عصبی؛ $\bar{x}_{obs}$، میانگین مقادیر تجربی؛ $\bar{x}_{est}$، میانگین مقادیر برآوردی حاصل از شبکه عصبی و n، تعداد نمونه‌هاست و R^2 هم‌بستگی داده‌ها را نشان می‌دهد که هر چه مقدار آن بیش‌تر و به یک نزدیک‌تر باشد، یعنی بین داده‌های تجربی و برآوردی هم‌بستگی بیش‌تری وجود دارد. RMSE نشان می‌دهد که مقادیر برآوردی چه قدر از مقادیر تجربی انحراف دارند و هر چه مقدار آن کم‌تر باشد، انحراف بین داده‌ها کم‌تر است و نتایج دقیق‌ترند.

نتایج و بحث

۸۵٪ از داده‌های تجربی گزارش‌شده در جدول ۱ برای آموزش شبکه عصبی مصنوعی توسعه‌داده‌شده استفاده شد. برای آموزش داده‌ها ساختارهای مختلف شبکه‌های عصبی مصنوعی آزموده شدند. جدول‌های ۲ تا ۴ تعدادی از این ساختارها را که در آنها از تابع سیگموید با یک لایه پنهان استفاده شده نشان می‌دهد. برای هر آموزش از ۱۰۰۰ تکرار استفاده شد و برای هر ساختار مقدار هم‌بستگی بین داده‌ها(R^2) و مقدار انحراف مقادیر پیش‌بینی‌شده از مقادیر تجربی(RMSE) محاسبه شد. مقادیر R^2 و RMSE برای ساختارهای آزموده‌شده و برای سه سیستم متان + TBAC+ آب، کربن‌دی‌اکسید + TBAC+ آب و نیتروژن+ TBAC + آب به‌ترتیب در جداول ۲ تا ۴ آورده شده‌اند. مقادیر R^2 و RSME برای ساختارهای منتخب شبکه عصبی مصنوعی برای این سیستم‌ها در جدول ۵ آمده‌اند.

جدول ۲ هم‌بستگی بین داده‌ها(R^2) و انحراف مقادیر پیش‌بینی‌شده از مقادیر تجربی(RMSE) در هفت ساختار آزمایش‌شده برای آموزش شبکه در سیستم متان + TBAC+ آب.

ساختار	تعداد نرون‌های لایه پنهان	R^2	RMSE
۱	۴	۰/۷۸۷۴۱	۰/۰۸۷۸۸
۲	۵	۰/۹۷۰۸۴	۰/۰۶۷۰۴
۳	۶	۰/۹۸۱۲۴	۰/۰۱۱۸۰
۴	۸	۰/۹۶۵۸۳	۰/۰۰۳۸۶
۵	۹	۰/۹۸۳۲۰	۰/۰۰۱۰۷
۶	۱۰	۰/۹۹۷۳۷	۰/۰۰۱۰۵۲
۷	۱۲	۰/۹۴۰۰۸	۰/۱۱۲۹۰

1. Error back propagation algorithm

جدول ۳ هم‌بستگی بین داده‌ها(R^2) و انحراف مقادیر پیش‌بینی‌شده از مقادیر تجربی(RMSE) در پنج ساختار آزمایش‌شده برای آموزش شبکه در سیستم کربن‌دی‌اکسید + TBAC + آب.

ساختار	تعداد نرون‌های لایه پنهان	R^2	RMSE
۱	۳	۰/۹۷۲۹۸	۰/۴۳۶۳۷
۲	۴	۰/۹۷۷۳۳	۰/۱۹۷۷۸
۳	۶	۰/۹۵۸۵۸	۰/۲۰۱۵۳
۴	۷	۰/۹۸۷۳۸	۰/۰۳۳۹
۵	۹	۰/۹۸۵۰۸	۰/۲۴۳۷۶

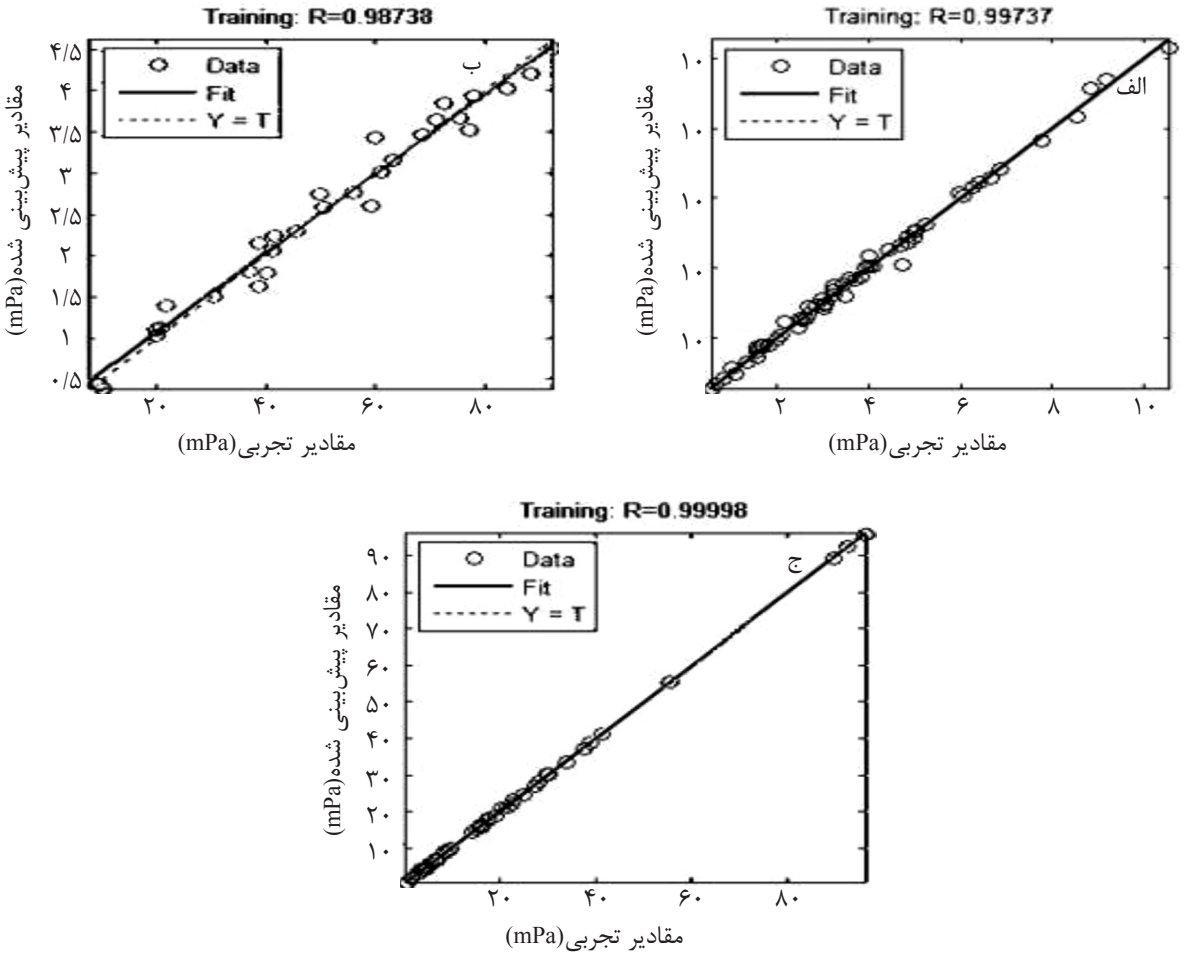
جدول ۴ هم‌بستگی بین داده‌ها(R^2) و انحراف مقادیر پیش‌بینی‌شده از مقادیر تجربی(RMSE) در پنج ساختار آزمایش‌شده برای آموزش شبکه در سیستم نیتروژن+ TBAC+ آب.

ساختار	تعداد نرون‌های لایه پنهان	R^2	RMSE
۱	۳	۰/۹۴۸۹۵	۰/۳۸۱۵۳
۲	۵	۰/۹۵۸۷۴	۰/۱۰۲۵۴
۳	۸	۰/۹۹۹۹۸	۰/۰۷۳۵۹
۴	۹	۰/۹۶۳۵۲	۰/۳۲۵۴۱
۵	۱۰	۰/۹۳۶۸۵	۰/۳۶۵۲۵

جدول ۵ هم‌بستگی بین داده‌ها(R^2) و مقدار انحراف مقادیر پیش‌بینی‌شده از مقادیر تجربی(RMSE) برای ساختارهای منتخب شبکه عصبی مصنوعی برای سیستم‌های متان + TBAC+ آب، کربن‌دی‌اکسید + TBAC + آب و نیتروژن + TBAC + آب.

سیستم	تعداد نرون‌های لایه پنهان	R^2	RMSE
متان + TBAC+ آب	۱۰	۰/۹۹۷۳۷	۰/۰۰۱۰۵۲
کربن‌دی‌اکسید + TBAC+ آب	۷	۰/۹۸۷۳۸	۰/۰۳۳۹
نیتروژن + TBAC+ آب	۸	۰/۹۹۹۹۸	۰/۰۷۳۵۹

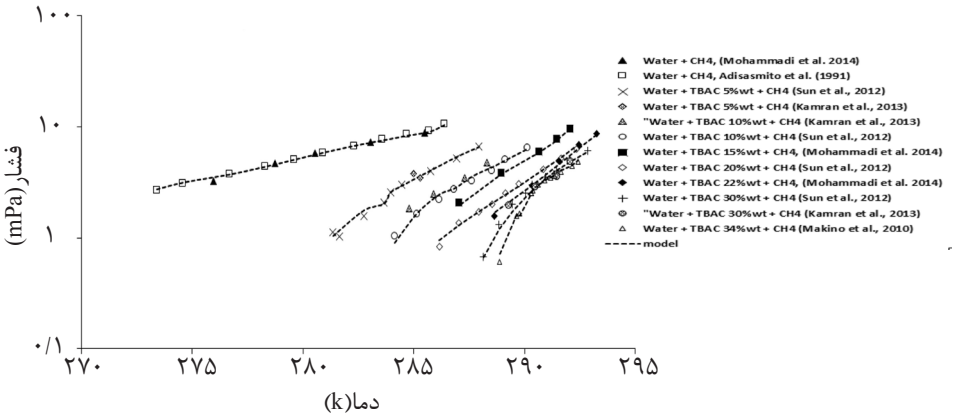
جدول ۲ نشان می‌دهد که برای سیستم متان + TBAC+ آب، ساختار شبکه عصبی مصنوعی شماره ۶، که در آن از ۱۰ نرون در لایه پنهان استفاده شده، بهترین برازش را داشته است. مقدار R^2 این ساختار ۰/۹۹۷۳۷ و مقدار RMSE آن ۰/۰۰۱۰۵۲ است که آموزش بسیار خوب داده‌ها را به‌کمک شبکه عصبی مصنوعی با این ساختار نشان می‌دهد. برای سیستم کربن‌دی‌اکسید + TBAC+ آب(جدول ۳)، ساختار شبکه عصبی مصنوعی شماره ۴، که در آن از ۷ نرون در لایه پنهان استفاده شده، بهترین نتیجه را داشته است. مقدار R^2 ساختار ۴ برای این سیستم ۰/۹۸۷۳۸ و مقدار RMSE آن ۰/۰۳۳۹ است که نشان می‌دهد شرایط ترمودینامیکی سیستم کربن‌دی‌اکسید + TBAC+ آب را نیز می‌توان با شبکه عصبی مصنوعی به‌خوبی پیش‌بینی کرد. جدول ۴ نشان می‌دهد برای سیستم نیتروژن + TBAC+ آب ساختار شبکه عصبی مصنوعی شماره ۳، که در آن از ۸ نرون در لایه پنهان استفاده شده، بهترین مقادیر R^2 و RMSE را نتیجه داده است. مقدار R^2 این ساختار برای سیستم نیتروژن + TBAC+ آب ۰/۹۹۹۹۸ و مقدار RMSE آن ۰/۰۷۳۵۹ بوده است. این مقادیر آموزش بسیار خوب داده‌های آزمایشگاهی با شبکه عصبی مصنوعی را نشان می‌دهند. آنالیز رگراسیون داده‌های تجربی و داده‌های پیش‌بینی‌شده با ساختارهای منتخب شبکه عصبی مصنوعی برای سه سیستم متان + TBAC+ آب، کربن‌دی‌اکسید + TBAC+ آب و نیتروژن+ TBAC+ آب در شکل ۲ رسم شده است.



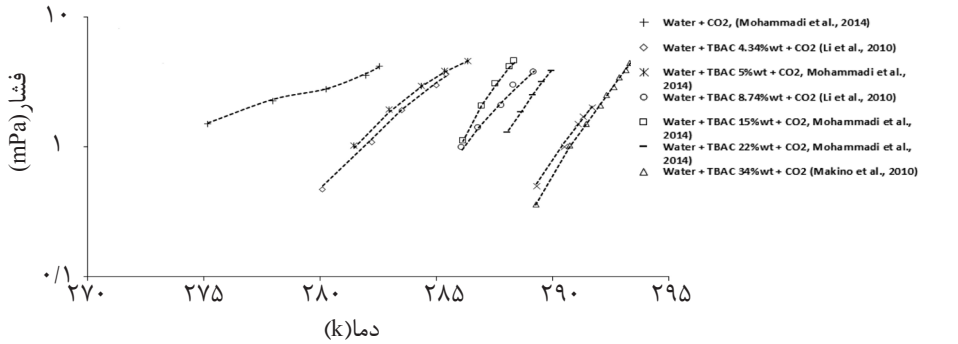
شکل ۲ آنالیز رگراسیون داده‌های تجربی و داده‌های پیش‌بینی‌شده با ساختارهای منتخب شبکه عصبی مصنوعی: الف) سیستم متان+ TBAC + آب؛ ب) سیستم کربن‌دی‌اکسید+ TBAC+ آب و ج) سیستم نیتروژن + TBAC+ آب.

در شکل ۲ می‌توان دید که نمودار مقادیر پیش‌بینی شده(Y) برحسب مقادیر تجربی(T) برای هر سه سیستم مطالعه‌شده تطابقی بسیار خوب روی نمودار Y = T دارد که نشان می‌دهد ساختارهای در نظر گرفته‌شده برای شبکه عصبی مصنوعی می‌توانند به‌خوبی مقادیر تجربی را پیش‌بینی کنند.

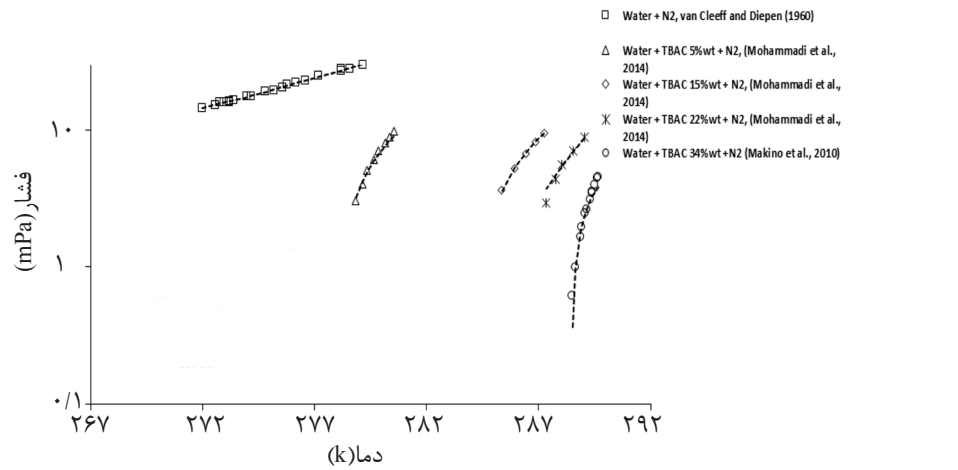
داده‌های تجربی استخراج‌شده از مراجع موجود در جدول ۱ و مقادیر پیش‌بینی‌شده با شبکه عصبی مصنوعی توسعه‌داده‌شده در این کار در شکل‌های ۳ تا ۵ رسم شده‌اند. داده‌های تجربی و داده‌های پیش‌بینی‌شده برای سیستم متان + TBAC+ آب در شکل ۳ رسم شده‌اند. این شکل نشان می‌دهد که مدل توسعه‌داده‌شده در این کار توانسته است تمام داده‌ها را در محدوده‌ای وسیع از غلظت‌های TBAC (غلظت‌های ۰- ۳۴ ٪ وزنی) به‌خوبی پیش‌بینی کند. شکل ۴ نشان‌دهنده مقادیر تجربی و مقادیر تخمین‌زده‌شده با شبکه عصبی مصنوعی توسعه‌یافته برای سیستم کربن‌دی‌اکسید + TBAC + آب در دو مقیاس نرمال و نیمه‌لگاریتمی و این موضوع است که شبکه عصبی توسعه‌یافته در این کار، همانند سیستم قبلی، به‌خوبی داده‌های آزمایشگاهی را حتی برای غلظت‌های بالاتر از غلظت استوکیومتری TBAC پیش‌بینی کرده است. در شکل ۵ داده‌های تجربی و مقادیر تخمین‌زده‌شده با شبکه عصبی مصنوعی برای سیستم نیتروژن+ TBAC+ آب مقایسه شده‌اند. این شکل نیز تطابق بسیار خوب مقادیر تخمین‌زده‌شده و مقادیر تجربی را در محدوده‌ای وسیع از غلظت TBAC نشان می‌دهد.



شکل ۳ مقایسه داده‌های تجربی(نشان‌گرها) و مقادیر تخمین‌زده‌شده با شبکه عصبی مصنوعی توسعه‌یافته در این کار برای سیستم متان + TBAC+ آب



شکل ۴ مقایسه داده‌های تجربی(نشان‌گرها) و مقادیر تخمین‌زده‌شده با شبکه عصبی مصنوعی توسعه‌یافته در این کار برای سیستم کربن‌دی‌اکسید + TBAC+ آب



شکل ۵ مقایسه داده‌های تجربی(نشان‌گرها) و مقادیر تخمین‌زده‌شده با شبکه عصبی مصنوعی توسعه‌یافته در این کار برای سیستم نیتروژن + TBAC+ آب

نتیجه‌گیری

در کار حاضر از ابزار شبکه عصبی مصنوعی با ساختار پرسپترون چندلایه برای پیش‌بینی فشار تعادلی تشکیل هیدرات‌های شبه‌کلاتریت در سیستم‌های متان + TBAC+ آب، کربن‌دی‌اکسید+ TBAC+ آب و نیتروژن+ TBAC+ آب استفاده شد. داده‌های تجربی بسیار زیادی(۱۹۵ نقطه ترمودینامیکی) از مقالات گردآوری شدند و برای آموزش شبکه عصبی مصنوعی به کار رفتند. شبکه عصبی توسعه‌یافته در این تحقیق شامل یک لایه پنهان به‌همراه به‌ترتیب ۱۰، ۷ و ۸ نرون برای سیستم‌های سیستم متان + TBAC+ آب، کربن‌دی‌اکسید + TBAC+ آب و نیتروژن+ TBAC+ آب بود که فشارهای تعادلی تشکیل هیدرات‌های شبه‌کلاتریت را در محدوده‌ای وسیع از غلظت‌های TBAC، حتی بالاتر از غلظت استوکیومتری، به‌خوبی پیش‌بینی کرد.

مراجع

[1]. Sloan J. E. D. and K. A. Koh., *"Clathrate hydrates of natural gases,"* CRC Press, Taylor & Francis Group, 2008.

[2]. Lasich M., Mohammadi A. H., Bolton K., Vrabec J. and Ramjugernath D., *"On the application of binary correction factors in lattice distortion calculations for methane clathrate hydrates,"* Philosophical Magazine, 94: pp. 974-990, 19 Feb 2014.

[3]. Lasich M., Mohammadi A. H., Bolton K., Vrabec J. and Ramjugernath D ,*"Phase equilibria of methane clathrate hydrates from grand canonical monte carlo simulations,"* Fluid Phase Equilibria, Vol. 369, pp. 1-118, 15 May 2014.

[4]. Lasich M., Mohammadi A. H. , K. Bolton, Vrabec J. and Ramjugernath D., *"Influence of unlike dispersion interactions in modeling methane clathrate hydrates,"* Fluid Phase Equilibria, Vol. 381, pp. 108–115, 15 Nov. 2014.

[5]. Sfaxi, I. B. A., V. Belandria, A. H. Mohammadi, Lugoa R., Richon D., *"Phase equilibria of CO_2+ N_2 and CO_2+ CH_4 clathrate hydrates: experimental measurements and thermodynamic modelling,"* Chemical Engineering Science, Vol. 84, pp. 602-611, 24 Dec. 2012.

[6]. Eslamimanesh, A., S. Babaee, F. Gharagheizi, Javanmardid J., MohammadiA. H. and Richon D., *"Assessment of clathrate hydrate phase equilibrium data for CO_2+ CH_4/N_2+ water system,"* Fluid Phase Equilibria, Vol. 349, pp. 71-82, 15 July 2013.

[7]. Mohammadi A. H. and D. Richon., *"Clathrate hydrate dissociation conditions for the methane+ cycloheptane/ cyclooctane + water and carbon dioxide + cycloheptane/cyclooctane + Water Systems,"* Chemical Engineering Science, Vol. 65, pp. 3356-3361, 2010.

[8]. Mohammadi, A. H. and D. Richon., *"Equilibrium data of carbonyl sulfide and hydrogen sulfide clathrate hydrates,"* Journal of Chemical & Engineering Data, Vol. 54, pp. 2338-2340, 2009.

[9]. Mohammadi A. H. and Richon D., *"Phase equilibria of clathrate hydrates of methyl cyclopentane, methyl Cyclohexane, Cyclopentane or Cyclohexane + Carbon Dioxide,"* Chemical Engineering Science, 64: 5319-5322, 2009.

[10]. Mohammadi A. H. and Richon D., *"Clathrate hydrates of isopentane + Carbon Dioxide and Isopentane + Methane: experimental measurements of dissociation conditions,"* Oil & Gas Science and Technology–Revue d'IFP Energies nouvelles, 65: 879-882, 2010.

[11]. Ngema P. T., Petticrew C., P. Naidoo, Mohammadi A. H., and Ramjugernath D., *"Experimental measurements and thermodynamic modeling of the dissociation conditions of clathrate hydrates for(refrigerant+ NaCl+ Water) Systems,"* Journal of Chemical & Engineering Data, 59: 466-475, 2014.

[12]. Ngema P. T., Petticrew C., Naidoo P., Mohammadi A. H. and Ramjugernath D., *"Experimental measurements and thermodynamic modeling of The dissociation conditions of clathrate hydrates for (refrigerant + NaCl + Water) Systems,"* Journal of Chemical & Engineering Data, 59, 466-475, 2014.

[13]. Hashemi H., Babaee S., Naidoo P., Mohammadi A. H. and Ramjugernath D., *"Experimental Measurements and Thermodynamic Modeling of Clathrate Hydrate Dissociation Conditions for Refrigerants R116, R23 and Their Mixture R508B,"* Journal of Chemical & Engineering Data, 59: 3907-3911, 2014.

[14]. Babaee S., Hashemi H., Mohammadi A. H., Naidooa P. and Ramjugernath D., *"Kinetic and thermodynamic behaviour of CF 4 clathrate hydrates,"* The Journal of Chemical Thermodynamics, Vol. 81, pp. 52-59, Feb. 2015.

[15]. Hashemi H., Babaee S., Mohammadi A. H., Naidooa P. and Ramjugernath D., *"Experimental study and modeling of the kinetics of refrigerant hydrate formation,"* The Journal of Chemical Thermodynamics, Vol. 82, pp. 47-52, March 2015.

[16]. Hashemi H., Babaee S., Mohammadi A. H., Naidooa P. and Ramjugernath D., *"Clathrate hydrate dissociation conditions of refrigerants R404A, R406A, R408A and R427A: experimental measurements and thermodynamic modeling,"* The Journal of Chemical Thermodynamics, Vol. 90, pp. 193-198, Nov. 2015,.

[17]. Tumba K., Hashemi H., Naidoo P., Mohammadi A. H., and Ramjugernath D., *"Dissociation data and thermodynamic modeling of clathrate hydrates of ethene, ethyne and propene,"* Journal of Chemical & Engineering Data, 58, pp. 3259-3264, Oct. 25 2013.

[18]. Tumba K., Naidoo P., Mohammadi A. H., RichonD. and Ramjugernath D., *"Phase equilibria of clathrate hydrates of Ethane + Ethene,"* Journal of Chemical & Engineering Data, 59: 896-901, 2013.

[19]. Tumba K., S. Babaee P. Naidoo, Mohammadi A. H. and Ramjugernath D., *"Phase equilibria of clathrate Hydrates of Ethyne + Propane,"* Journal of Chemical & Engineering Data, 59, pp. 2914-2919, Aug. 18, 2014.

[20]. Tumba, K., H. Hashemi, P. Naidoo, Mohammadi A. H. and Ramjugernath D., *"Phase equilibria of clathrate Hydrates of Ethyne + Propene,"* Journal of Chemical & Engineering Data, 60, pp. 217-221, March 7, 2014.

[21]. Ganji H., Manteghian M., Omidkhah M. and Mofrad H. R., *"Effect of Different Surfactants on Methane Hydrate Formation Rate, Stability and Storage Capacity,"* Fuel, Vol. 86, Issue 3, pp. 434-441, Febr. 2007.

[22]. Ganji H., Manteghian M. and Mofrad H. R., *"Effect of mixed compounds on methane hydrate formation and dissociation rates and storage capacity,"* Fuel Processing Technology, Vol. 88, pp. 891-895, 2007.

[23]. Mohammadi A., Manteghian M., Haghtalab A., Mohammadi A. H. and Rahmati-Abkenar M., *"Kinetic study of carbon dioxide hydrate formation in presence of silver nanoparticles and SDS,"* Chemical Engineering Journal, Vol. 237, pp. 387-395, Febr. 2014.

[24]. Delahaye A., L. Fournaison S. Marinhas and and Chatti I., *"Effect of THF on equilibrium pressure and dissociation enthalpy of CO_2 hydrates applied to secondary refrigeration,"* Industrial & Engineering Chemistry Research, 45, pp. 391-397, Nov. 8 2006.

[25]. Jager M., De Deugd R., Peters C., de Swaan Aronsa J. and Sloan E. D., *"Experimental determination and modeling of structure II hydrates in mixtures of Methane + Water + 1, 4-dioxane,"* Fluid Phase Equilibria, Vol. 165, Issue 2, pp. 209-223, 25 Nov. 1999.

[26]. Manteghian M., Safavi S. M. M. and Mohammadi A., *"The equilibrium conditions, hydrate formation and dissociation rate and storage capacity of Ethylene Hydrate in presence of 1, 4-dioxane,"* Chemical Engineering Journal, Vol. 217, pp. 379-384, 2013.

[27]. Seo Y. T., Kang S. P. and H. Lee, *"Experimental determination and thermodynamic modeling of Methane and Nitrogen Hydrates in the presence of THF, Propylene Oxide, 1, 4-dioxane and Acetone,"* Fluid Phase Equilibria, Vol. 189, pp. 99-110, 2001.

[28]. Fowler D., Loebenstein W., Pall D. and Kraus C. A., *"Some unusual hydrates of quaternary ammonium salts,"* Journal of the American Chemical Society, Vol. 62, pp. 1140-1142, 1940.

[29]. McMullan R., Bonamico M. and Jeffrey G., *"Polyhedral clathrate hydrates. V. structure of the tetra-n-butyl ammonium fluoride hydrate,"* The Journal of Chemical Physics, Vol. 39, pp. 3295-3310, 1963.

[30]. Makino T., Yamamoto T., Nagata K., SakamotoH., Hashimoto Sh., SugaharaT. and OhgakiK., *"Thermodynamic stabilities of tetra-n-butyl ammonium chloride + H_2, N_2, CH_4, CO_2, or C_2H_6 semiclathrate hydrate systems,"* Journal of Chemical & Engineering Data, Vol. 55, pp. 839-841, July 15 2009.

[31]. Aladko E. Y., Larionov E., Rodionova T., Aladko L. S., Manakov A. Yu., *"Double clathrate hydrates of tetrabutylammonium Fluoride + Helium, Neon, Hhydrogen and Argon at high pressures,"* Journal of Inclusion Phenomena and Macrocyclic Chemistry, Vol. 68, pp. 381-386, 2010.

[32]. Mohammadi A., Manteghian M. and Mohammadi A. H., *"Phase equilibria of semiclathrate hydrates for Methane + Tetra N-butylammonium Chloride (TBAC), Carbon Dioxide + TBAC and Nitrogen + TBAC aqueous solution systems,"* Fluid Phase Equilibria, Vol 381, pp. 102-107, 2014.

[33]. Mohammadi A., Manteghian M. and Mohammadi A. H., *"Dissociation data of semiclathrate hydrates for the systems of Tetra-n-butylammonium Fluoride (TBAF) + Methane + Water, TBAF + Carbon Dioxide + Water and TBAF + Nitrogen + Water,"* Journal of Chemical & Engineering Data, Vol. 58, pp. 3545-3550, 2013.

[34]. Delavar H. and A. Haghtalab., *"Thermodynamic modeling of gas hydrate formation conditions in the presence of organic inhibitors, salts and their mixtures using UNIQUAC model,"* Fluid Phase Equilibria, Vol. 394, pp. 101-117, 2015.

[35]. Hashemi H., Babaee S., Mohammadi A. H., Naidoo P. and Ramjugernath D., "*Experimental measurements and thermodynamic modeling of refrigerant hydrates dissociation conditions*", The Journal of Chemical Thermodynamics, Vol. 80, pp. 30-40, Jan. 2015.

[36]. Mohammadi A, Manteghian M., Mohammadi A. H. and Kamran-Pirzaman A., *"Thermodynamic modeling of the dissociation conditions of hydrogen sulfide clathrate hydrate in the presence of aqueous solution of inhibitor (Alcohol, Salt or Ethylene Glycol),"* Chemical Engineering Research and Design, Vol. 92, pp. 2283-2293, 2014.

[37]. Adisasmito S., Frank R. J. and Sloan E. D., *"Hydrates of carbon dioxide and methane mixtures,"* Journal of Chemical & Engineering Data, Vol. 36, pp. 68-71, 1991.

[38]. Makino T., Yamamoto T., K. Nagata, Sakamoto H., HashimotoSh., SugaharaT. and OhgakiK., *"Thermodynamic stabilities of tetra-n-butyl ammonium chloride + H_2, N_2, CH_4, CO_2, or C_2H_6 semiclathrate hydrate systems,"* Journal of Chemical & Engineering Data, 55: 839-841, 2010.

[39]. Kamran-Pirzaman A., Pahlavanzadeh H. and Mohammadi A. H., *"Thermodynamic model for prediction of phase equilibria of clathrate hydrates in the presence of water-insoluble organic compounds,"* Chemical Engineering Communications, Published online: 07 Aug 2014.

[40]. Sun Z. G. and Liu C. G., *"Equilibrium conditions of methane in semiclathrate hydrates of tetra-n-butylammonium chloride,"* Journal of Chemical & Engineering Data, Vol. 57, pp. 978-981, 2012.

[41]. Li S., Fan S., Wang J., LangX. and Wang Y., *"Semiclathrate hydrate phase equilibria for CO_2 in the presence of tetra-n-butyl ammonium halide (Bromide, Chloride, or Fluoride),"* Journal of Chemical & Engineering Data, Vol. 55, pp. 3212-3215, Mar. 16 2010.

[42]. Mayoufi N., Dalmazzone D., Fürst W. DelahayeA. and Fournaison L., *"CO_2 enclathration in hydrates of peralkyl-(Ammonium/Phosphonium) salts: stability conditions and dissociation enthalpies,"* Journal of Chemical & Engineering Data, Vol. 55, pp. 1271-1275, 2010.

[43]. Van Cleeff A. and Diepen G. A. M., *"Gas hydrates of nitrogen and oxygen,"* Recueil des Travaux Chimiques des Pays-Bas, Vol. 79, pp. 582-586, 1960.

[44]. Braddock R. D., Kremmer M. L. and Sanzogni L., *"Feed-forward artificial neural network model for forecasting rainfall run-off,"* Environmetrics, Vol. 9, pp. 419-432, 1998.

[45]. Schalkoff R. J., Artificial Neural Networks, New York, McGraw-Hill Higher Education, 1997.

[46]. Aizenberg I. and Moraga C., *"Multilayer feedforward neural network based on multi-valued neurons (MLMVN) and A backpropagation learning algorithm,"* Soft Computing, Vol. 11, pp. 169-183, 2007.

[47]. Marquardt D. W., *"An algorithm for least-squares estimation of nonlinear parameters,"* Journal of the Society for Industrial & Applied Mathematics, Vol. 11, pp. 431-441, 1963.

[48]. Mohammadi A. H. and Richon D., *"Hydrate phase equilibria for Hydrogen + Water and Hydrogen + Tetrahydrofuran + Water Systems: Predictions of Dissociation Conditions Using an Artificial Neural Network Algorithm,"* Chemical Engineering Science, 65: 3352-3355, 2010.

[49]. Chapoy A., Mohammadi A. H. and Richon D., *"Predicting the hydrate stability zones of natural gases using Artificial Neural Networks,"* Oil & Gas Science and Technology-Revue de I›IFP, 62: 701-706, 2007.

[50]. Han J. and Moraga C., *"The influence of the sigmoid function parameters on the speed of backpropagation learning,"* In: From Natural to Artificial Neural Computation, London, Springer, pp. 195-201, 1995.