

Primjena metoda umjetne inteligencije u naprednim oksidacijskim procesima: fokus na fotokatalitičku razgradnju organskih mikrozagađivala

Irena Žmak¹, Lidija Ćurković¹, Paola Grobensi¹

¹Sveučilište u Zagrebu Fakultet strojarstva i brodogradnje, Ulica Ivana Lučića 5, 10000 Zagreb

Sažetak: Primjena metoda umjetne inteligencije, osobito umjetnih neuronskih mreža, u fotokatalitičkoj razgradnji organskih mikrozagađivala (OMZ) danas predstavlja jedno od najdinamičnijih područja inženjerstva okoliša. Ovaj rad daje pregled aktualnih pristupa optimizaciji i predviđanju učinkovitosti fotokatalitičkih procesa primjenom različitih algoritama strojnog učenja. Posebna pozornost posvećena je hibridnim modelima, metodama odzivne površine te fizikalno-informiranim neuronskim mrežama kao perspektivnim alatima za industrijsku primjenu. Rezultati pokazuju da neuronske mreže dosljedno postižu visoku prediktivnu točnost, s koeficijentima determinacije iznad 0,95, čime se potvrđuje njihov potencijal kao pouzdanih inženjerskih alata u zaštiti okoliša.

Ključne riječi: umjetna inteligencija, umjetne neuronske mreže, strojno učenje, fotokataliza, organska mikrozagađivala

1. Uvod

Umjetna inteligencija (engl. *artificial intelligence*, AI) danas je jedna od najčešće spominjanih tema u znanosti i industriji. Pojmovi poput strojnog učenja (engl. *machine learning*), umjetnih neuronskih mreža (skraćeno ANN, prema engl. *artificial neural networks*) i velikih jezičnih modela (skraćeno LLM, prema engl. *large language models*) ušli su u svakodnevni rječnik, a rijetko koja struka propušta naglasiti da svoje procese transformira uz pomoć AI alata. Povijesni razvoj započinje šezdesetih godina prošlog stoljeća s idejom o algoritmima sposobnima za učenje iz podataka. Takvi sustavi, modelirani prema biološkim neuronskim mrežama, omogućuju rješavanje problema bez eksplicitnih uputa ili kruto postavljenih matematičkih okvira. Umjetna inteligencija u širem smislu obuhvaća raznolike metode, od neuronskih mreža i

strojnog učenja, preko genetičkih algoritama i neizrazite (engl. *fuzzy*) logike, do ekspertnih sustava i dubokog učenja, kojima računalni sustavi prepoznaju uzorke, uče iz podataka i podupiru donošenje odluka u složenim sustavima.

Krajem devedesetih godina 20. stoljeća umjetne neuronske mreže izazvale su značajan napredak u znanosti o materijalima i inženjerstvu, potaknute popularnošću algoritma povratnoga rasprostiranja pogreške. U tom razdoblju znanstvenici su počeli koristiti te modele za rješavanje različitih izazova, poput uspostavljanja složenih veza između strukture i svojstava materijala, optimizacije proizvodnih procesa i analize spektroskopskih podataka. Mogućnosti umjetnih neuronskih mreža danas obuhvaćaju širok spektar primjena, čime su postale nezaobilazan okvir za modeliranje nelinearnih odnosa i unaprjeđenje industrijske proizvodnje [1]. Na primjer, rane primjene pokazale su sposobnost upotrebe u strojnoj obradi materijala, gdje su neuronske mreže korištene za predviđanje sila rezanja pri tokarenju "pamćenjem" složene mehanike obrade metala, koja se klasičnim analitičkim modelima vrlo teško opisuju [2].

Model umjetnih neuronskih mreža našao je široku primjenu i u zaštiti okoliša, gdje su nelinearne mreže razvijene za postrojenja za pročišćavanje otpadnih voda s ciljem predviđanja dotoka otpadne vode i kvalitete vode tijekom složenih kišnih događaja [3]. Uvedene su metode nenadgledanog učenja, poput Kohonenovih samoorganizirajućih karata značajki, koje se koriste za klasifikaciju opsežnih skupova operativnih podataka. Te metode pomažu u vizualnoj identifikaciji procesnih varijabli, koje su odgovorne za visoke koncentracije fekalne koliformne bakterije i biokemijsku potrošnju kisika [4]. Prediktivne sposobnosti neuronskih mreža uspješno su primijenjene i na problematiku teških metala, primjerice u preciznom modeliranju učinkovitosti adsorpcije olova iz vodenih otopina na otpadne materijale poput ljuski pistacija [5]. Usporediva točnost ostvarena je i u specijaliziranim tehnologijama obrade, gdje višeslojne mreže prate nelinearno ponašanje u uklanjanju olova elektrodijalizom [6]. Složenost naprednih oksidacijskih procesa rješava se mrežama s povratnim rasprostiranjem pogreške za simulaciju i predviđanje uklanjanja kemijske potrošnje kisika tijekom razgradnje opasnih antibiotika Fentonovim procesom [7].

Primjena umjetnih neuronskih mreža u kemiji i inženjerstvu nije bila ograničena isključivo na vodeće međunarodne institucije. Hrvatska znanstvena zajednica aktivno prati ovaj razvoj od samih početaka, dajući svoj doprinos još od ranih devedesetih godina 20. stoljeća. Metoda konformacijskih preferencijskih funkcija primijenjena je za predviđanje sekundarne strukture membranskih proteina s točnošću od 84 %, nadmašujući tadašnje neuronske mreže [8, 9]. Genetički algoritmi primijenjeni su u radu iz 1995. godine i za automatsku prilagodbu arhitekture neuronskih mreža, s posebnim osvrtom na problem tzv. deceptije koji uzrokuje nekonvergentnost optimizacije [10], gdje je deceptija mogućnost da dobrota (engl. *fitness*) nekog niza nije u korelaciji s dobrotom njegovih sastavnih podnizova. Neuronske mreže temeljene na analizi glavnih komponenti pokazale su se učinkovitima 1998. godine za modeliranje i adaptivno upravljanje industrijskom proizvodnjom pekarskog kvasca, uz prosječnu relativnu pogrešku od 1 do 10 % [11].

Osnovna jedinica sustava koji oponaša rad ljudskog mozga je umjetni neuron, matematički operator koji prima otežane ulazne signale, zbraja ih i kroz aktivacijsku funkciju generira odziv. Međusobnim povezivanjem velikog broja takvih neurona u ulazni sloj, jedan ili više skrivenih slojeva i izlazni sloj nastaje umjetna neuronska mreža sposobna prepoznati skrivene uzročno-posljedične veze unutar eksperimentalnih podataka. Za razliku od tradicionalne linearne regresije, ANN uspješno modeliraju interakcije velikog broja varijabli, što je ključno u inženjerstvu materijala, gdje kemijski sastav, parametri toplinske obrade i mikrostruktura tvore složenu mrežu često nepoznatih međuzavisnosti [12]. Predviđanje mikrostrukture i mehaničkih svojstava središnja je domena primjene neuronskih mreža, budući da su ta svojstva izravna, ali često nelinearna posljedica prethodnih postupaka dobivanja, prerade ili toplinske obrade materijala. ANN su primijenjene za predviđanje parametara mikrostrukture nodularnog lijeva, kao što su nodularnost grafita, broj nodula po jedinici površine te udio ferita i perlita, pri čemu su ulazni podatci karakteristične točke krivulje hlađenja dobivene toplinskom analizom. Kao jedna od metoda u istraživanju dentalnih materijala, neuronske mreže su uspješno primijenjene za predviđanje vrijednosti količine eluiranih iona iz dentalne keramike nakon izlaganja klorovodičnoj kiselini [13]. Za modeliranje mehaničkih svojstava koriste se napredni algoritmi poput Levenberg-Marquardta, koji osigurava brzu konvergenciju prema globalnoj minimalnoj pogrešci i visoku točnost predviđanja za nove kemijske sastave, bez potrebe za dugotrajnim ljevaoničkim pokusima i laboratorijskim ispitivanjima.

Optimizacija tehnoloških parametara toplinske obrade i lijevanja još je jedno područje gdje AI daje mjerljive rezultate. Neuronske mreže koriste se za određivanje optimalnog trajanja nitriranja u plazmi, predviđanje ugljikovog potencijala kod pougljičavanja čelika ili procjenu dubine boridnog sloja [14]. Osim toga, u inženjerstvu materijala koriste se za predviđanje prokaljivosti čelika na temelju kemijskog sastava, toplinske vodljivosti čelika na povišenim temperaturama, što je svojstvo vrlo važno kod simulacija ohlađivanja pri kaljenju, tvrdoće konvencionalno nitriranih čelika i drugih [15]. U ljevačkoj industriji, računalno potpomognuti alati omogućuju kontrolu stanja taline i analizu procesa skrućivanja u stvarnom vremenu, identificirajući potrebu za korekcijom taline prije ulijevanja u kalup. Genetički algoritmi (GA) pritom služe kao dodatni sloj optimizacije, jer oni biraju optimalnu arhitekturu i algoritam učenja neuronske mreže, smanjuju rizik od preučenosti ili pretreniranosti (engl. *overfitting*) i osiguravaju dobru generalizaciju modela [16].

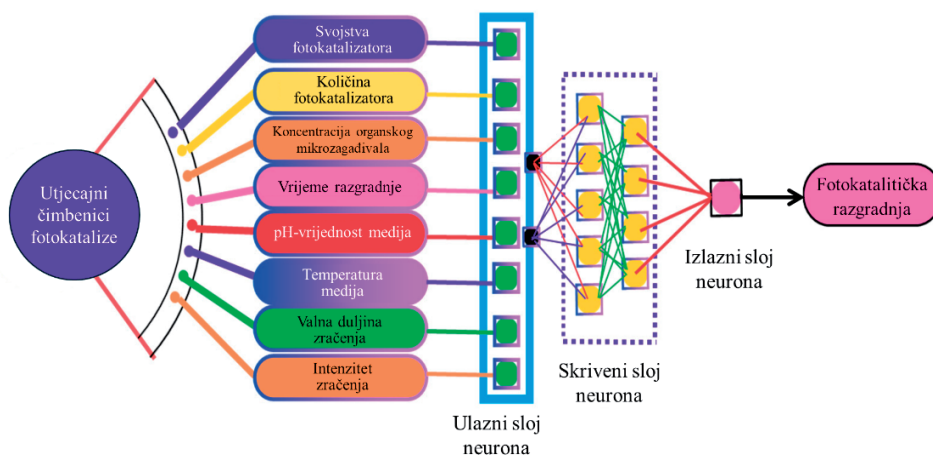
Primjena umjetne inteligencije u inženjerstvu materijala nije samo trenutni tehnološki trend. Riječ je o pristupima koji omogućuju rješavanje izrazito složenih, nelinearnih problema koje klasične matematičke i statističke metode ne mogu obuhvatiti. Jedna od već dobro uspostavljenih primjena je optimizacija izbora materijala u složenim radnim uvjetima, gdje je potrebno istovremeno zadovoljiti kriterije funkcionalnosti, trajnosti, otpornosti na trošenje i koroziju, tehnologičnosti, recikličnosti i ekologičnosti [17]. Klasični ekspertni sustavi, temeljeni na fiksnim pravilima tipa “ako-tada”, nailaze na granice kada broj varijabli i njihovih interakcija postane pre-

velik za eksplicitno programiranje. Rješenje leži u hibridnim sustavima koji integri- raju neuronske mreže i neizrazitu (*fuzzy*) logiku, omogućujući asocijativnu procjenu prikladnosti materijala čak i pri nepotpunim informacijama. Takvi sustavi integriraju mehanizme zaključivanja prema naprijed i unatrag, omogućujući istraživanje scena- rija putem modula “što ako?” i objašnjenje logike putem modula “zašto?”. Primjena neizrazite logike omogućuje kvantifikaciju nepreciznih inženjerskih pojmova, poput “niske temperature” ili “visoke agresivnosti medija”, pretvarajući ih u lingvističke varijable s funkcijama pripadnosti. Posebno su vrijedni tzv. *neuro-fuzzy* modeli koji kombiniraju sposobnost učenja neuronskih mreža s interpretabilnošću neizrazite lo- gike. Na taj način inteligentni sustavi ne samo da predlažu rješenja, već povećavaju pouzdanost odlučivanja u kritičnim inženjerskim primjenama.

2. Primjena umjetne inteligencije u fotokatalitičkoj razgradnji organskih mikrozagađivala

Ubrzani rast svjetske populacije, urbanizacija i klimatske promjene doveli su do sve izraženije globalne vodne krize, uz istodobno pogoršanje kvalitete dostupnih vodnih resursa [16-18]. Uz kvantitativna ograničenja, poseban problem predstavlja prisut- nost tzv. novih onečišćivala (engl. *emerging contaminants*), odnosno organskih mi- krozagađivala (OMZ), koja uključuju pesticide, farmaceutike, proizvode za osobnu higijenu, hormone, endokrine modulatore, razne industrijske spojeve te njihove tran- sformacijske produkte [17]. Te spojeve karakterizira visoka kemijska postojanost, sklonost bioakumulaciji te potencijalno štetan utjecaj na vodene ekosustave i ljudsko zdravlje. Iako su često prisutni u vrlo niskim koncentracijama, njihovi kumulativni učinci predstavljaju značajan ekološki i zdravstveni rizik. Dodatni izazov proizlazi iz činjenice da konvencionalni sustavi obrade voda nisu projektirani za njihovo učin- kovito uklanjanje, što omogućuje njihovo širenje u površinske i podzemne vodne sustave te uključivanje u prehrambeni lanac [22]. U takvim uvjetima raste potreba za razvojem naprednih tehnologija obrade vode koje omogućuju učinkovito uklanja- nje organskih mikrozagađivala. Napredni oksidacijski procesi (skraćeno AOP, prema engl. *advanced oxidation processes*) ubrajaju se među najperspektivnije pristupe jer se temelje na generiranju visoko reaktivnih oksidacijskih vrsta sposobnih za razgrad- nju složenih organskih molekula. Unutar te skupine, heterogena fotokataliza poseb- no se ističe zbog svoje učinkovitosti i mogućnosti primjene u različitim sustavima obrade voda [18]. Međutim, učinkovitost fotokatalitičkih procesa ovisi o složenom međudjelovanju brojnih parametara: pH-vrijednosti medija, količini katalizatora, in- tenzitetu i valnoj duljini zračenja, početnoj koncentraciji organskih mikrozagađivala i svojstvima samog fotokatalitičkog materijala (Slika 1), što otežava njihovo mo- deliranje i optimizaciju primjenom klasičnih pristupa. Klasični pristup optimizaciji temeljen na jednofaktorskim eksperimentima ne može u potpunosti obuhvatiti te in- terakcije, a sveobuhvatno eksperimentalno istraživanje svih kombinacija parametara bilo bi vremenski i financijski neizvedivo. Upravo tu nastupa umjetna inteligencija:

integracijom naprednih algoritama strojnog učenja s dizajnom eksperimenata moguće je izgraditi pouzdane prediktivne modele koji iz relativno malog broja mjerenja izvlače maksimum informacija, ubrzavaju optimizaciju i otvaraju put prema industrijskoj primjeni razvijenih rješenja. Korištenje AI alata ne samo da optimizira postojeće procese, već također služi kao vodič za dizajniranje novih fotokatalitičkih materijala s boljom apsorpcijom vidljive svjetlosti.



Slika 1: Shematski prikaz modela umjetne inteligencije za predviđanje učinkovitosti fotokatalitičke razgradnje na temelju podataka o utjecajnim čimbenicima [19]

2.1 Modeli strojnog učenja za optimizaciju fotokatalitičkih procesa

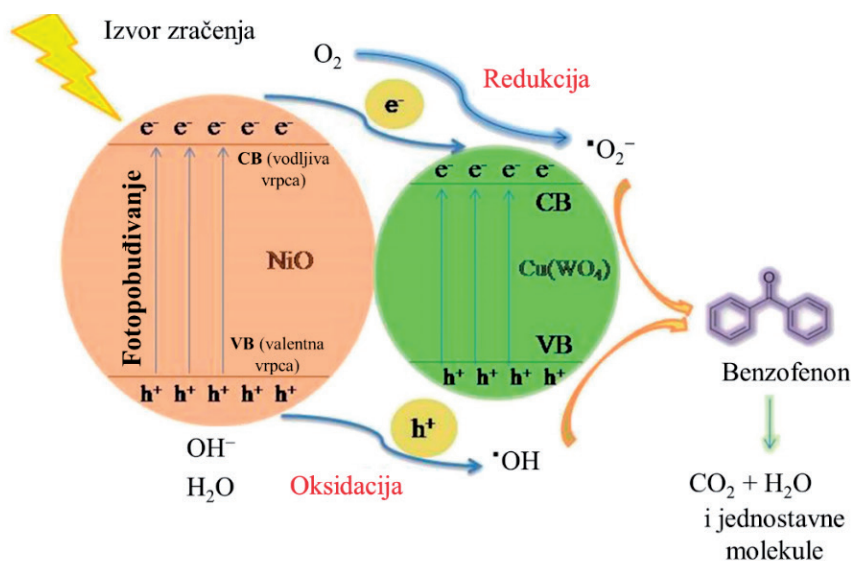
Sustavnim pregledima literature i eksperimentalnih studija ocjenjuje se učinkovitost različitih fotokatalizatora (TiO_2 , ZnO ili CdS) u kombinaciji s modelima umjetnih neuronskih mreža, metodom potpornih vektora i metodom odzivnih površina (engl. *response surface methodology*, RSM) [19]. Glavni cilj je utvrditi kako navedeni modeli mogu precizno predvidjeti razinu razgradnje organskih mikrozagađivala i optimizirati procesne uvjete bez potrebe za brojnim, skupim i dugotrajnim laboratorijskim testovima [20].

Metodološki gledano, primjenjuju se različite arhitekture neuronskih mreža, kao što su višeslojni perceptron, radijalne bazne funkcije i rekurentne mreže, za čije se učenje primjenjuju algoritmi poput Levenberg-Marquardtova algoritma. Ključni ulazni parametri su količina katalizatora, pH-vrijednost otopine, početna koncentracija organskih mikrozagađivala, vrijeme razgradnje i intenzitet zračenja, koji se procesiraju kroz skrivene slojeve s otežanim neuronima u cilju generiranja predviđenog izlaza [21]. U usporedbi s modelima RSM, bilo da su sa središnjim kompozitnim planom pokusa ili s Box-Behnkenovim, neuronske mreže pokazuju prednost u upravljanju izrazito nelinearnim interakcijama i nesigurnim parametrima okoliša. Točnost predviđanja dosljedno je visoka, s koeficijentima determinacije iznad 0,95, što potvrđuje pouzdanost tih modela kao praktičnih inženjerskih alata. Pokazalo se da su pH-vrijednost i količina katali-

zatora ključni faktori: primjerice, kod razgradnje norfloksacina pH-vrijednost bliska neutralnoj često osigurava optimalnu adsorpciju na površinu katalizatora, dok prevelika doza fotokatalizatora može smanjiti učinkovitost zbog efekta zasjenjenja i aglomeracije čestica. Napredni oksidacijski proces za uklanjanje norfloksacina uz pomoć plazme iz otpadnih voda modeliran je pomoću strojnog učenja i uspoređen je s više klasičnih algoritama u predviđanju učinkovitosti uklanjanja i energetske potrošnje. Model umjetne neuronske mreže, optimiziran algoritmom optimizacije balegara, pokazao se najboljim, postigavši koeficijent determinacije od 0,9981 i srednji korijen kvadratne pogreške 0,017435, uz eksperimentalno potvrđenu učinkovitost uklanjanja norfloksacina od 94,35 % pri potrošnji energije od 1,766 kWh/g [22].

2.2 Metoda odzivne površine u optimizaciji procesnih parametara

U potrazi za učinkovitijim rješenjima, istraživačka pozornost usmjerena je na razvoj i testiranje specifičnih nanokompozitnih fotokatalizatora za razgradnju benzofenona (UV-filtar), karbamazepina (antiepileptik) i amoksicilina (antibiotik). Pritom je ključnu ulogu odigrala primjena naprednih matematičkih modela za precizno određivanje optimalnih uvjeta procesa razgradnje, čime se znatno smanjuje potreba za dugotrajnim laboratorijskim pokusima metodom pokušaja i pogreške [23]. Cilj takvih istraživanja je sintetizirati inovativne nanokompozitne fotokatalizatore, poput CuWO_4/NiO (Slika 2), aktivni ugljen dobiven iz ljuski argana/ TiO_2 i grafen oksid/ TiO_2 , kako bi se postigla visoka učinkovitost razgradnje pod vidljivom svjetlošću uz minimalan utjecaj na okoliš.



Slika 2: Grafički prikaz fotokatalitičke razgradnje benzofenona nanokompozitom CuWO_4/NiO [23]

Metodološki, istraživanja se u velikoj mjeri oslanjaju na metodu odzivne površine i središnji kompozitni plan pokusa kao ključne alate za modeliranje i optimizaciju procesa uz minimalan broj pokusa. Dok rad na benzofenonu koristi programska podrška JMP Pro za analizu interakcija faktora, studija o amoksicilinu ide korak dalje uspoređujući RSM s umjetnim neuronskim mrežama i adaptivnim neuro-neizrazitim sustavima zaključivanja, tzv. modelima ANFIS (engl. *adaptive neuro-fuzzy inference system*), koji predstavljaju hibridne sustave gdje se kombiniraju prednosti umjetnih neuronskih mreža i neizrazite logike [23, 24]. Utvrđeno je da metoda odzivne površine i ANN pružaju izvrsnu prediktivnu sposobnost s koeficijentima determinacije koji često dosegnu 0,99, dok se ANFIS pokazao nešto manje točnim u predviđanju nelinearnih odnosa u fotokatalizi [25]. Rezultati potvrđuju da opisani pristup nije tek metodološki napredak, već da on donosi i mjerljive, visoke učinkovitosti u praksi. Učinkovitost razgradnje u idealnim uvjetima iznosi oko 91,93 % za benzofenon te 91,01 % za amoksicilin. Ključni čimbenici koji utječu na proces su pH-vrijednost medija, količina katalizatora i vrijeme razgradnje. Alkalni uvjeti (pH 11) pogoduju razgradnji benzofenona, dok je za amoksicilin najučinkovitiji pH-raspon od 2,7 do 6,5 zbog elektrostatskog privlačenja. Studija o karbamazepinu dodatno naglašava ulogu otopljenog kisika i temperature, pokazujući da zasićenje kisikom značajno poboljšava učinkovitost fotokatalize, smanjujući rekombinaciju parova elektron-šupljina.

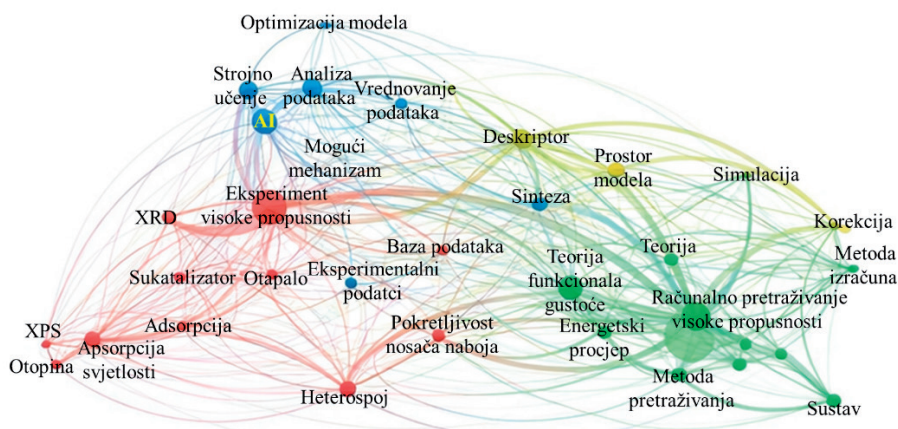
Sve to odražava pomak u fotokatalizi prema preciznijoj inženjerskoj disciplini, što je posebno izraženo uvođenjem koncepta kvalitete ugrađene u dizajn (engl. *quality by design*, QbD) i koncepta dizajna u prostoru (engl. *design space*, DS) [25]. QbD je sustavni, znanstveno utemeljen pristup razvoju procesa koji se usredotočuje na razumijevanje svih varijabli koje utječu na konačni rezultat, dok se DS definira kao višedimenzionalna kombinacija i interakcija ulaznih varijabli (npr. temperature i pH), unutar koje je dokazano da će proces zadržati traženu kvalitetu. Ti okviri omogućuju definiranje robusnih uvjeta rada unutar kojih sustav zadržava visoku učinkovitost unatoč manjim varijacijama parametara, što je presudan preduvjet za buduće industrijsko skaliranje. Tomu u prilog ide i dokazana stabilnost i mogućnost višekratne uporabe katalizatora kroz više radnih ciklusa, što potvrđuje ekonomsku održivost tih tehnologija kao realnih alata zaštite okoliša.

2.3 Arhitektura i algoritmi učenja umjetnih neuronskih mreža

Budući da na učinkovitost fotokatalizatora utječe velik broj međusobno povezanih čimbenika (Slika 3), precizno određivanje težinskih faktora pojedinih ulaznih parametara tijekom oblikovanja AI-modela predstavlja značajan izazov, zbog čega dizajn modela fotokatalizatora često nalikuje “crnoj kutiji” [26]. Ovaj se izraz u literaturi koristi kao metafora za sustave čiji su unutarnji mehanizmi toliko složeni ili netransparentni da ih je teško izravno razumjeti ili predvidjeti. Zato bi strategija visokoučinkovitog računalnog probira trebala biti što je moguće više usklađena s ek-

sperimentalnim podacima. Stalna prilagodba strategije računalnog probira, temeljena na eksperimentalnim rezultatima, omogućuje dublji uvid u složene fotokatalitičke procese, u kojima brojni parametri, poput intenziteta zračenja, pH-vrijednosti i koncentracije katalizatora, ostvaruju međudjelovanja koja je teško egzaktno modelirati. Primjena strojnog učenja i računalnog probira, koji se neprestano revidiraju na temelju laboratorijskih rezultata, stoga predstavlja učinkovitiji put prema razjašnjavanju tih složenih i nedovoljno istraženih mehanizama te prema pouzdanijem oblikovanju prediktivnih modela fotokatalizatora.

Usporedna analiza četiriju modela strojnog učenja za predviđanje, umjetnih neuronskih mreža (ANN), metode potpornih vektora (engl. *support vector machines*, SVM), slučajnih šuma (engl. *random forests*, RF) i k-najbližih susjeda (engl. *k-nearest-neighbours*, KNN), pokazala je da model ANN postiže najveću točnost predviđanja [22]. Model ANN, u usporedbi s modelima SVM, RF i KNN, ima značajnu prednost u predviđanju složenog nelinearnog ponašanja procesa zahvaljujući svojoj fleksibilnoj građi. Takvi rezultati dodatno potvrđuju da arhitektura neuronske mreže nije jedini čimbenik koji određuje učinkovitost modela, već je jednako važan i odabir optimizacijskog algoritma kojim se mreža uči. U tom smjeru razvijeni su hibridni pristupi koji nadograđuju klasičnu ANN arhitekturu suvremenim metaheurističkim algoritmima optimizacije. Jedan od njih je DBO-ANN, napredni hibridni model strojnog učenja koji kombinira umjetnu neuronsku mrežu (ANN) s algoritmom optimizacije balegara (engl. *dung beetle optimization*, DBO). Algoritam je razvijen po uzoru na ponašanje balegara, uključujući kotrljanje kuglice, orijentaciju u prostoru, potragu za hranom, krađu od drugih jedinki i reprodukciju. U tom hibridnom modelu, algoritam DBO optimizira težine i pragove (engl. *thresholds*) unutar neuronske mreže kako bi se poboljšala njezina struktura. U navedenom istraživanju uklanjanja norfloksacina, dobiveni model DBO-ANN pokazao je dodatno poboljšanje točnosti i učinkovitosti neuronske mreže, ponajprije kroz smanjenje pogrešaka u predviđanju.



Slika 3: Strategija računalnog pretraživanja visoke propusnosti temeljena na strojnom učenju [26]

Većina fotokatalitičkih studija o razgradnji organskih mikrozaagađivala temelji se na optimizaciji jednog parametra, što rezultira nelinearnim odnosom između ukupnih parametara i učinkovitosti fotokatalitičke razgradnje [27]. Optimalni rezultati za postizanje visoke učinkovitosti razgradnje potvrđeni su eksperimentalnim studijama i ocijenjeni kao vrlo prihvatljivi. Levenberg-Marquardtov algoritam korišten je za učenje umjetne neuronske mreže s povratnim rasprostiranjem pogreške, varirajući broj neurona u skrivenom sloju od 4 do 15, kako bi se dobila optimalna struktura neuronske mreže [28]. Ravnoteža između točnosti predviđanja i složenosti modela, izbjegavajući pritom problem preučenosti, utvrđena je za građu od 12 skrivenih neurona. Osim toga, utvrđeno je da koncentracija bojila, količina katalizatora i vrijeme razgradnje imaju najvišu razinu važnosti za fotokatalitičku razgradnju organskih onečišćivala.

Neuronskim mrežama i strojnim učenjem uspješno je ostvaren cilj predviđanja učinkovitosti uklanjanja bojila i Gibbsove slobodne energije u procesu adsorpcije. Model ANN u tom je kontekstu postigao iznimno visoku razinu točnosti s koeficijentom determinacije od 0,999455 [29]. Među različitim ispitivanim algoritmima, model *Histogram-based Gradient Boosting* (HGB), tj. model gradijentnog pojačavanja temeljenog na histogramima, pokazao je vrlo dobro uravnotežene rezultate predviđanja na skupu za testiranje [30]. HGB je napredni model strojnog učenja temeljen na stablima odlučivanja (engl. *tree-based model*), koji je dio biblioteke Scikit-learn u programskom jeziku Python. Taj model spada u skupinu ansambl metoda (engl. *ensemble methods*) i gradijentnih algoritama koji su razvijeni kako bi se ubrzalo učenje i poboljšala sposobnost predviđanja modela temeljenih na stablima. Izvrсни rezultati koje je model postigao na skupu za testiranje ukazuju na njegovu izvrsnu sposobnost generalizacije na nove, prethodno neviđene podatke. Modeliranje razgradnje bojila metilenskog modrila, koje je u svom izvornom obliku izrazito toksično i karcinogeno, sa specifičnom topologijom uspješno je potvrdilo podudaranje teorijskih i eksperimentalnih podataka [31]. Konačno, analiza toksičnosti potvrdila je da se obradom onečišćene vode naprednim oksidacijskim procesima stvaraju znatno manje toksični metaboliti kroz niz kemijskih reakcija: deaminaciju, aminaciju, metilaciju, oksidaciju/redukciju te, ključno, cijepanje aromatskih prstenova. Da bi se potvrdilo da su novi degradacijski produkti doista manje opasni za žive organizme, proveden je antibakterijski test na bakterijama *Escherichia coli* i *Bacillus subtilis*, koji je pokazao da je zona inhibicije (područja gdje bakterije nisu mogle rasti) znatno manja kod obrađene otpadne vode nego kod izvorne vodene otopine bojila.

3. Izazovi i perspektive primjene umjetne inteligencije u fotokatalizi

Unatoč izvrsnim postignućima u primjeni umjetne inteligencije i umjetnih neuronskih mreža u inženjerstvu materijala i okoliša, nekoliko ključnih izazova ostaje otvoreno. Razvoj većih i standardiziranih baza podataka s područja fotokatalitičke razgradnje, zajedno s primjenom metoda prijenosa znanja (engl. *transfer learning*), mogao bi

značajno poboljšati sposobnost modela za generalizaciju i omogućiti njihovu primjenu na sustave s ograničenim brojem eksperimentalnih podataka. U tom kontekstu, najnovija istraživanja pokazuju da pohrana kalibracijskog znanja unutar strukture ANN-a omogućuje rekalkulaciju modela nakon promjene uvjeta, uz smanjenje računalnog vremena od oko 60 % i broja potrebnih iteracija sa 160 na 40 generacija [32].

Osobito su obećavajući hibridni, fizikalno-informirani modeli umjetnih neuronskih mreža (engl. *physics-informed neural networks*, PINN). Za razliku od klasičnih neuronskih mreža koje uče isključivo iz podataka, PINN-ovi u matematički okvir učenja (funkciju gubitka) ugrađuju poznate zakone kemijske kinetike izražene diferencijalnim jednadžbama, čime modeli nužno poštuju temeljna načela očuvanja tvari i energije [33]. Novi znanstveni radovi pokazuju da PINN, temeljen na X-TFC metodi (engl. *extreme theory of functional connections*), uspješno modelira krutu kemijsku kinetiku i predviđa koncentracije vrsta koje nisu bile uključene u skup za učenje. To je posebno relevantno za fotokatalitičke sustave, u kojima analitičke metode ne omogućuju mjerenje svih prisutnih intermedijera. Autori navode trajanje učenja od svega nekoliko sekundi do nekoliko minuta, što takve modele čini potencijalno primjenjivima u sustavima za praćenje kvalitete vode u stvarnom vremenu.

Napredak u ovom području ostvaren je uvođenjem hijerarhijske fizikalno-informirane neuronske mreže (engl. *hierarchical physics-informed neural network*, HPINN). U ovom pristupu globalni model uči na prosječnim parametrima sustava, a stečeno znanje potom prenosi na modele specifične za pojedinačne cjevovode. Učinkovitost takve arhitekture potvrđena je na primjeru predviđanja rezidualnog klora pri dezinfekciji vode, gdje je postignuta pogreška predviđanja (MAPE) ispod 0,31 %, uz visoku točnost čak i u uvjetima gubitka 90 % podataka na pojedinim senzorima [34]. Za usporedbu, standardni ANN model s povratnim rasprostranjem pogreške imao je znatno veći MAPE od 1,27 %. Robusnost modela koji koristi prethodno stečeno znanje o sustavu posebno je relevantna za fotokatalizu, gdje se jednom naučene zakonitosti kinetike razgradnje mogu primijeniti na nova organska mikrozaagađivala ili izmijenjene reakcijske uvjete bez potrebe za ponovnim učenjem procesa iz početka.

Proširenje navedenog koncepta uvedeno je razvojem nove prostorno-vremenske grafovske fizikalno-informirane neuronske mreže (engl. *spatio-temporal graph physics-informed neural network*, ST-GPINN), koja integrira fizikalna ograničenja s grafovskim neuronskim mrežama, čime se istovremeno modeliraju prostorne zavisnosti između čvorova mreže i vremenski razvoj, npr. kvalitete vode [35]. U objavljenom istraživanju, primjerice, postignut je koeficijent determinacije od 98,91 % na stvarnoj vodoopskrbnoj mreži s više od 900 čvorova i 1000 cijevi. Analogna primjena u fotokatalizi podrazumijevala bi ugradnju kinetičkih jednadžbi razgradnje organskog mikrozaagađivala, primjerice Langmuir-Hinshelwoodovog modela, kao fizikalnog ograničenja u PINN strukturu, čime bi se smanjila ovisnost o opsežnim eksperimentalnim skupovima podataka. Hibridizacija kinetičkih modela s pristupima umjetne inteligencije već je pokazala potencijal za preciznije predviđanje u složenim realnim uvjetima fotokatalize [36].

Komplementaran pristup u modelima umjetne inteligencije (između ostalih, npr. u umjetne neuronske mreže, metodu k-najbližih susjeda, regresijska stabla i druge) uvodi bezdimenzijske fizikalne veličine, poput Péceletovog i Damköhlerovog broja, kao informirane ulazne varijable, čime se poboljšava sposobnost generalizacije modela na sustave izvan domene učenja [37]. To istraživanje naglašava da čak i bez potpunog ugrađivanja diferencijalnih jednadžbi, selektivno korištenje fizikalnih spoznaja može značajno povećati primjenjivost modela u različitim eksperimentalnim konfiguracijama.

Integracija poznatih metoda umjetne inteligencije s platformama za optimizaciju procesa u stvarnom vremenu otvara put prema adaptivnim fotokatalitičkim sustavima sposobnima autonomno prilagođavati uvjete rada ovisno o trenutnom sastavu otpadnih voda, što predstavlja ključni korak prema industrijskoj primjeni tih tehnologija.

4. Zaključak

Pregled dosadašnjih istraživanja jasno potvrđuje da je primjena metoda umjetne inteligencije u fotokatalitičkoj razgradnji organskih mikrozagađivala prešla razinu puke metodološke inovacije i postala nezaobilazan alat suvremenog inženjerstva okoliša. Integracijom algoritama strojnog učenja, ponajprije umjetnih neuronskih mreža, s klasičnim eksperimentalnim pristupima postiže se značajno poboljšanje u predviđanju i optimizaciji procesa razgradnje složenih organskih mikrozagađivala poput antibiotika, industrijskih bojila i farmaceutika, uz znatno manji broj potrebnih laboratorijskih pokusa.

Usporedna analiza primijenjenih modela pokazuje da pojedine arhitekture neuronskih mreža, osobito hibridni modeli, dosljedno nadmašuju klasičnije pristupe poput metode odzivne površine, metode potpornih vektora i k-najbližih susjeda, osobito u uvjetima izražene nelinearnosti i višestruke međuzavisnosti procesnih parametara. Pri tome su pH-vrijednost medija, količina katalizatora, početna koncentracija organskog mikrozagađivala, vrijeme razgradnje i intenzitet zračenja prepoznati kao ključni ulazni parametri koji najviše određuju učinkovitost procesa. Koeficijenti determinacije, koji redovito premašuju 0,95, a u pojedinim slučajevima dosežu i 0,999, potvrđuju pouzdanost tih modela kao praktičnih inženjerskih alata.

Budući razvoj upućuje na sve veću ulogu fizikalno-informiranih neuronskih mreža, koje zakone kemijske kinetike integriraju izravno u strukturu modela, čime se smanjuje ovisnost o opsežnim eksperimentalnim skupovima podataka i povećava sposobnost generalizacije na nove sustave. Razvoj prostorno-vremenskih i hijerarhijskih fizikalno-informiranih neuronskih mreža, uz primjenu metoda prijenosa znanja i bezdimenzijskih fizikalnih veličina kao ulaznih parametara, otvara put prema adaptivnim fotokatalitičkim sustavima sposobnima za autonomnu prilagodbu uvjetima rada u stvarnom vremenu.

Ipak, nekoliko važnih izazova i dalje ostaje otvoreno: standardizacija eksperimentalnih baza podataka, razumijevanje unutarnje logike algoritamskih modela te industrijsko skaliranje razvijenih rješenja. Budući napredak u ovom području zahtijevat će blisku suradnju između kemijskih inženjera, stručnjaka za materijale i znanstvenika u području računalne inteligencije, uz naglasak na razvoj robusnih, fizikalno utemeljenih i interpretabilnih modela koji će fotokatalizu pozicionirati kao pouzdanu tehnologiju zaštite okoliša.

Zahvala

Ovaj rad izrađen je uz financijsku potporu Hrvatske zaklade za znanost projektom HRZZ-IP-2022-10-4400 pod nazivom *Razvoj polimera s otiskom molekula za primjenu u analizi farmaceutika i tijekom naprednih postupaka obrade voda (MIPdePharma)*.

5. Literatura

- [1] Sumpter, B.G.; Noid, D.W.: On the Design, Analysis, and Characterization of Materials Using Computational Neural Networks, *Annual Review of Materials Science*, **26** (1996) 223-277
- [2] Tarng, Y.S.; Wang, T.C., Chen, W.N., Lee, B.Y.: The Use of Neural Networks in Predicting Turning Forces, *Journal of Materials Processing Technology*, **47** (1995) 3-4, 273-289, [https://doi.org/10.1016/0924-0136\(95\)85004-X](https://doi.org/10.1016/0924-0136(95)85004-X)
- [3] El-Din, A.G.; Smith, D.W., El-Din, M.G.: Application of Artificial Neural Networks in Wastewater Treatment, *Journal of Environmental Engineering and Science*, **3** (2004) Supplement 1, S81-S95, <https://doi.org/10.1139/s03-067>
- [4] Çinar, Ö.: New Tool for Evaluation of Performance of Wastewater Treatment Plant: Artificial Neural Network, *Process Biochemistry*, **40** (2005) 9, 2980-2984, <https://doi.org/10.1016/j.procbio.2005.01.012>
- [5] Yetilmezsoy, K.; Demirel, S.: Artificial Neural Network (ANN) Approach for Modeling of Pb(II) Adsorption from Aqueous Solution by Antep pistachio (*Pistacia vera* L.) Shells, *Journal of Hazardous Materials*, **153** (2008) 3, 1288-1300, <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2007.09.092>
- [6] Sadrzadeh, M.; Mohammadi, T., Ivakpour, J., Kasiri, N.: Neural Network Modeling of Pb²⁺ Removal from Wastewater Using Electrodialysis, *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, **48** (2009) 8, 1371-1381, <https://doi.org/10.1016/j.cep.2009.07.001>
- [7] Elmolla, E.S.; Chaudhuri, M., Eltoukhy, M.M.: The Use of Artificial Neural Network (ANN) for Modeling of COD Removal from Antibiotic Aqueous Solution by the Fenton Process, *Journal of Hazardous Materials*, **179** (2010) 1-3, 127-134, <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2010.02.068>
- [8] Juretić, D.; Lučić, B., Trinajstić, N.: Predicting Membrane-Protein Secondary Structure - Preference Functions Method for Finding Optimal Conformational Parameters, *Croatica Chemica Acta*, **66** (1993) 1, 201-208

- [9] Juretić, D.; Lee, B., Trinajstić, N., Williams, R.W.: Conformational Preference Functions for Predicting Helices in Membrane Proteins, *Biopolymers*, **33** (1993) 2, 255-273, <https://doi.org/10.1002/bip.360330208>
- [10] Ilakovac, T.: Adaptation of Neural Networks Using Genetic Algorithms, *Croatica Chemica Acta*, **68** (1995) 1, 29-38
- [11] Kurtanjek, Ž.: Principal Component ANN for Modelling and Control of Baker's Yeast Production, *Journal of Biotechnology*, **65** (1998) 1, 23-35, [https://doi.org/10.1016/S0168-1656\(98\)00119-9](https://doi.org/10.1016/S0168-1656(98)00119-9)
- [12] Žmak, I.: *Modeliranje strukture i svojstava nodularnog lijeva neuronskim mrežama*, disertacija, Fakultet strojarstva i brodogradnje, Zagreb, (2009).
- [13] Živko-Babić, J.; Lisjak, D., Ćurković, L., Jakovac, M.: Estimation of Chemical Resistance of Dental Ceramics by Neural Network, *Dental Materials*, **24** (2008) 1, 18-27, <https://doi.org/10.1016/j.dental.2007.01.008>
- [14] Novak, D.: *Definiranje parametara toplinske obrade metala genetičkim algoritmima*, magistrski rad, Fakultet strojarstva i brodogradnje, Zagreb, (2003).
- [15] Žmak, I.: *Predviđanje svojstava materijala neuronskim mrežama*, magistrski rad, Fakultet strojarstva i brodogradnje, Zagreb, (2003).
- [16] Filetin, T.; Žmak, I., Novak, D.: Nitriding Parameters Analyzed by Neural Network and Genetic Algorithm, *Journal de Physique IV*, **120** (2004) 355-362, <https://doi.org/10.1051/jp4:2004120040>
- [17] Lisjak, D.: *Primjena metoda umjetne inteligencije pri izboru materijala*, disertacija, Fakultet strojarstva i brodogradnje, Zagreb, (2004).
- [18] Švagelj, Z.; Mandić, V., Ćurković, L., Biošić, M., Žmak, I., Gaborardi, M.: Titania-Coated Alumina Foam Photocatalyst for Memantine Degradation Derived by Replica Method and Sol-Gel Reaction, *Materials*, **13** (2020) 1, 227, <https://doi.org/10.3390/ma13010227>
- [19] Rehman, A.; Iqbal, M.A., Haider, M.T., Majeed, A.: Artificial Intelligence-Guided Supervised Learning Models for Photocatalysis in Wastewater Treatment, *AI*, **6** (2025) 10, 258, <https://doi.org/10.3390/ai6100258>
- [20] Das, S.; Moon, S., Kaur, R., Sharma, G., Kumar, P., Lavrenčić Štangar, U.: Artificial Neural Network Modeling of Photocatalytic Degradation of Pollutants: A Review of Photocatalyst, Optimum Parameters and Model Topology, *Catalysis Reviews*, **67** (2025) 3, 544-578, <https://doi.org/10.1080/01614940.2024.2338131>
- [21] Mohammed, N.; Palaniandy, P., Shaik, F., Mewada, H., Balakrishnan, D.: Comparative Studies of RSM Box-Behnken and ANN-Anfis Fuzzy Statistical Analysis for Seawater Biodegradability Using TiO₂ Photocatalyst, *Chemosphere*, **314** (2023) 1-11, <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2022.137665>
- [22] Shen, Q.-X.; Bao, J., Liu, Y., Wang, X., Cui, L.: Machine Learning-Driven Prediction and Optimization of Norfloxacin Removal Efficiency and Energy Consumption in Plasma Process System, *Chemical Engineering Research and Design*, **224** (2025) 91-101, <https://doi.org/10.1016/j.cherd.2025.11.001>

- [23] Rajesh, C.; Rajashekar, R., Nagaraju, P.: Response Surface Methodology (RSM) Modelling for the Photocatalytic Optimization Study of Benzophenone Removal Using CuWO_4/NiO Nanocomposite, *Journal of Environmental Health Science and Engineering*, **21** (2023) 1, 187-199, <https://doi.org/10.1007/s40201-023-00852-3>
- [24] Rezvannasab, S.G.; Safari, N., Ghaedi, A.M.: Optimizing Amoxicillin Photodegradation with GO/TiO_2 Nanocomposites Via RSM, ANN, and ANFIS, *Carbon Trends*, **21** (2025) 100571, <https://doi.org/10.1016/j.cartre.2025.100571>
- [25] El Mouchtari, E.M.; Claeys-Bruno, M., Rafqah, S., Manzon, D., Anane, H., Lebarillier, S., Piram, A., Briche, S., Wong-Wah-Chung, P.: Optimisation of a Photocatalytic Water Treatment Using Response Surface Methodology and Quality by Design Approach, *International Journal of Environmental Analytical Chemistry*, **103** (2023) 20, 9466-9482, <https://doi.org/10.1080/03067319.2021.2012171>
- [26] Zhao, Y.; Gao, J., Bian, X., Tang, H., Zhang, T.: From the Perspective of Experimental Practice: High-Throughput Computational Screening in Photocatalysis, *Green Energy & Environment*, **9** (2024) 1, 1-6, <https://doi.org/10.1016/j.gee.2023.05.008>
- [27] Chandrika, K.C.; Prabhu, T.N., Kiran, R.R.S., Krishna, R.H.: Applications of Artificial Neural Network and Box-Behnken Design for Modelling Malachite Green Dye Degradation from Textile Effluents Using TiO_2 Photocatalyst, *Environmental Engineering Research*, **27** (2021) 1, 1-9, <https://doi.org/10.4491/eer.2020.553>
- [28] Ayodele, B.V.; Alsaffar, M.A., Mustapa, S.I., Vo, D.N.: Backpropagation Neural Networks Modelling of Photocatalytic Degradation of Organic Pollutants Using TiO_2 -Based Photocatalysts, *Journal of Chemical Technology & Biotechnology*, **95** (2020) 10, 2739-2749, <https://doi.org/10.1002/jctb.6407>
- [29] Zaferani, S.P.G.; Amiri, M.K., Amooey, A.A.: Computational AI to Predict and Optimize the Relationship Between Dye Removal Efficiency and Gibbs Free Energy in the Adsorption Process Utilizing $\text{TiO}_2/\text{Chitosan-Polyacrylamide}$ Composite, *International Journal of Biological Macromolecules*, **264** (2024) 1-15, <https://doi.org/10.1016/j.ijbiomac.2024.130738>
- [30] Ahmed, Y.; Dutta, K.R., Nepu, S.N.C., Prima, M., AlMohamadi, H., Akhtar, P.: Optimizing Photocatalytic Dye Degradation: A Machine Learning and Metaheuristic Approach for Predicting Methylene Blue in Contaminated Water, *Results in Engineering*, **25** (2025) 1-14, <https://doi.org/10.1016/j.rineng.2024.103538>
- [31] Rashtbari, S.; Dehghan, G., Marefat, A., Khataee, S., Khataee, A.: Proficient Sonophotocatalytic Degradation of Organic Pollutants Using $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{TiO}_2$ Nanocomposite Immobilized on Zeolite: Optimization, and Artificial Neural Network Modeling, *Ultrasonics Sonochemistry*, **102** (2024) 1-13, <https://doi.org/10.1016/j.ultsonch.2023.106740>
- [32] Gomez, C.; Solon, K., Haest, P.J., Morley, M., Nopens, I., Torfs, E.: Enhancing Accuracy and Efficiency in Calibration of Drinking Water Distribution Networks Through Evolutionary Artificial Neural Networks and Expert Systems, *Journal of Hydroinformatics*, **27** (2025) 10, 1554-1578, <https://doi.org/10.2166/hydro.2025.061>
- [33] Frankel, M.; De Florio, M., Schiassi, E., Katz, L.E., Kinney, K., Werth, C.J., Zigler, C., Sela, L.: Enhancing Drinking Water Quality Modeling: Leveraging Physics Informed Neural Networks for Learning with Imperfect Reaction Models and Partial Data, *Environmental Science: Water Research & Technology*, **11** (2025) 11, 2684-2697, <https://doi.org/10.1039/D5EW00682A>

- [34] Duan, F.; Mu, T., Zhou, B., Ning, B., Tan, H.: Hierarchical Physics-Informed Neural Networks for Water Contamination Prediction in Water Distribution Systems: Integrating Physics-Based Modeling and AI Transfer Learning, *Urban Water Journal*, (2026) 1-14, <https://doi.org/10.1080/1573062X.2026.2613113>
- [35] Mu, T.; Duan, F., Ning, B., Zhou, B., Liu, J., Huang, M.: ST-GPINN: A Spatio-Temporal Graph Physics-Informed Neural Network for Enhanced Water Quality Prediction in Water Distribution Systems, *npj Clean Water*, **8** (2025) 1, 74, <https://doi.org/10.1038/s41545-025-00499-7>
- [36] El Messaoudi, N.; Miyah, Y., Benjelloun, M., Georjin, J., Franco, D.S.P., Kaur, P., Lim, V., Knani, S.: The Role of Artificial Intelligence in Optimizing Photocatalytic Degradation Technologies of Dyes in Textile Wastewater: Recent Advances, Challenges, and Prospects, *Journal of Water Process Engineering*, **77** (2025) 108457, <https://doi.org/10.1016/j.jwpe.2025.108457>
- [37] Moeini, M.; Abokifa, A.A.: Physics-Informed Ensemble Machine Learning for Dynamic Water Quality Prediction in Water Distribution Systems, *Journal of Water Process Engineering*, **79** (2025) 108841, <https://doi.org/10.1016/j.jwpe.2025.108841>