



## Mathematical and Artificial Neural Network Simulation of NO<sub>x</sub> Selective Catalytic Reduction in a Monolithic Reactor

A. Farzi\*, P. Khalati

Faculty of Chemical and Petroleum Engineering, University of Tabriz, Tabriz, Iran

### Review History:

Received: 28 Nov. 2018

Revised: 23 Mar. 2019

Accepted: 16 Jun. 2019

Available Online: 30 Jun. 2019

### Keywords:

Selective catalytic reduction of NO<sub>x</sub>

Honey-comb monolithic reactor

Mathematical modeling

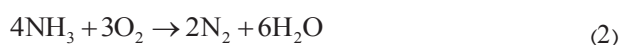
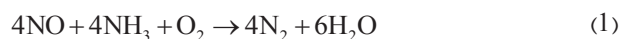
Process simulation

Artificial neural network.

**ABSTRACT:** Worldwide development of industries and increase of energy consumption, have resulted fast increase in the emission of nitrogen oxides pollutants. Therefore, removal of nitrogen oxides is a very important issue. In this study, modeling and simulation of selective catalytic reduction of nitrogen oxides in a monolithic catalytic reactor at both steady-state and dynamic-state was performed. Steady-state results showed that because of intense effect of temperature on nitrogen oxides conversion and competition of the main reaction with ammonia oxidation reaction, conversion of nitrogen oxides requires a catalytic filter in the range 300-350°C. Results showed that nitrogen oxide conversion increases with decreasing gas hourly space velocity and increasing inlet nitrogen oxide concentration. At dynamic-state, the effect of changes in some parameters including gas hourly space velocity, inlet nitrogen oxide concentration, and ammonia /nitrogen oxide ratio were investigated. Also, steady-state simulation of the process was performed using an artificial neural network and conversions of nitrogen oxides and ammonia were estimated as a function of gas hourly space velocity, reactor temperature, and nitrogen oxide concentration. 96 networks with different neurons and two different activation functions in hidden layer were trained. The resulted optimum network showed maximum mean square error of about 0.01 compared to mathematical modeling results indicating high performance of neural network for prediction of process performance.

### 1. Introduction

Removal of Nitrogen Oxides (NO<sub>x</sub>) pollutants from high-temperature gases is necessary for thermal power plants, waste incinerators, and internal combustion engines. They are usually removed by catalytic NO<sub>x</sub> processes in electrostatic precipitators or in the filters. In some systems, NO<sub>x</sub> is reduced selectively using ammonia which is usually performed at low pressure [1]. In gas treatment, catalytic filters are manufactured for exhaust-emission pollutants, either for fossil-fuel power plants [2, 3], or for biomasses and combustion wastes [4]. When ceramic filter materials combine with intermediates, they exhibit high yields for the separation of particulate pollutants. They also have high catalytic activity to remove NO<sub>x</sub>, CO, and CH<sub>x</sub>. The filter must remove dust and soot from the exhaust and at the same time must have an active catalyst for the process of converting gaseous pollutants passing through the internal filter structure [5]. The reduction of NO<sub>x</sub> occurs according to the general reaction (Eq. (1)), and simultaneously reaction (Eq. (2)) occurs as a result of oxidation of Ammonia (NH<sub>3</sub>) with oxygen [1].



NO<sub>2</sub> formation is largely prevented because of the presence of water in the exhaust gas [6].

Tronconi [7], investigated experimentally interaction between chemical reaction kinetics and transport phenomena within monolithic reactors. The reaction of NO<sub>x</sub> was selected as benchmark and Rideal-type rate equations were assessed and their parameters were obtained. Also different geometries of honey-comb catalysts were studied. Lei et al. [8] performed modeling and simulation of Selective Catalytic Reduction (SCR) of NO in a honey-comb monolithic reactor using Computational Fluid Dynamics (CFD) method. They also used Rideal-type reaction rate equations for developing mathematical models. Their results showed that low inlet gas rate, high inlet gas temperature and high NH<sub>3</sub>/NO mole ratio increase NO conversion. Sharifian et al. [9] presented a One Dimensional (1D) dynamic model for simulation of NO<sub>x</sub> SCR on iron/zeolite catalyst within a channel equivalent to a diesel motor.

Faghihi and Shamekhi [10], developed a feed-forward Artificial Neural Network (ANN) model for simulation of

\*Corresponding author's email: a-farzi@tabrizu.ac.ir



NO<sub>x</sub> SCR process in order to optimize the ammonia inlet flow rate. They considered three input variables of temperature, and inlet Nitrogen Oxide (NO) and ammonia concentrations. Network outputs included NO conversion and NH<sub>3</sub> outlet. They used 18 steady-state data series for training ANN, but did not find the optimum number of neurons in hidden layer and also didn't investigate the effect of Gas Hourly Space Velocity (GHSV) on NO conversion. Izadkhah and Farzi [11], studied mathematical and ANN simulation of ethanol pyrolysis in a tubular reactor at steady-state. An optimal network with 10 neurons in hidden layer was obtained, which had very small error with respect to the data of the mathematical simulation. In this study, mathematical modeling and simulation of the selective catalytic reduction of NO<sub>x</sub> using ammonia is carried out in a tubular and monolithic plug-flow reactor in both steady-state and dynamic-state. For this purpose, component mass balance equations were written for both conditions. To validate the model, the empirical results of the work of Schaub et al. [1] were used. Dynamic modeling of process is a novelty of this research which has seldom been found in previous works. The ANN trained and used in the present work has an additional input of GHSV investigated by Faghihi and Shamekhi [10].

## 2. Methodology

For modeling of NO<sub>x</sub> SCR, a monolithic reactor containing honey-comb vanadia/titania filter catalyst was considered. Specifications of the catalytic filter are presented in Ref. [1]. A pseudo-homogeneous isothermal model was obtained at steady-state using component mass balance equations. Modeling assumptions include steady-state, isothermal plug-flow reactor, one-dimensional concentration changes, and ideal gas law. The resulting ordinary differential equations were solved numerically using Runge-Kutta method. The effect of different parameters including GHSV and NO inlet concentration at fixed NH<sub>3</sub>/NO mole ratio was assessed and their optimal values were determined.

At the next step, dynamic modeling of the process was performed and Partial Differential Equations (PDEs) were obtained for concentration changes of NO and NH<sub>3</sub> assuming 1D isothermal plug-flow reactor. Steady-state results were used as initial conditions. The method of lines [12] was used for the numerical solution of PDEs. The effects of disturbances on different parameters such as GHSV, NO inlet concentration, and NH<sub>3</sub>/NO mole ratio on NO conversion were investigated. Finally, simulation of the process was done by training and then using a feed-forward ANN [11], based on the results of steady-state simulation with the mathematical model. In this work, NO and NH<sub>3</sub> conversion were estimated by the network as a function of GHSV, inlet temperature, and NO inlet concentration. Modeling data were divided into three sets of training (60%), validation (15%), and test (15%) and the ANN was trained using Levenberg-Marquardt back-propagation algorithm. Different topologies of ANN were examined and the optimum activation functions in hidden and output layers and also optimum number of neurons in hidden layer were obtained.

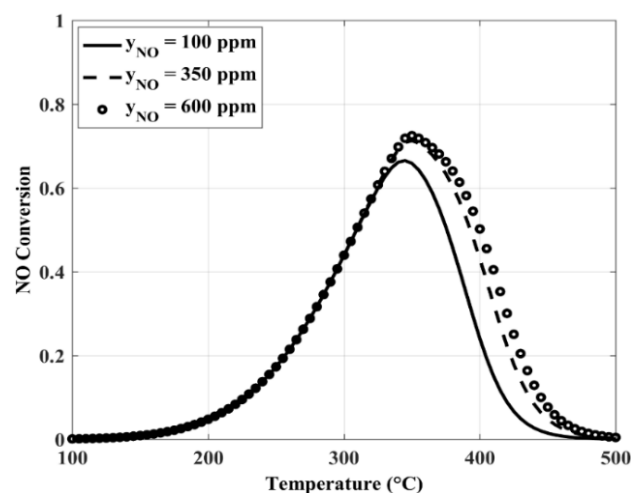


Fig. 1. Profiles of NO conversion at different temperatures and NO inlet concentrations, GHSV=12000 h<sup>-1</sup>,  $y_{NO} = y_{NH_3}$

## 3. Results and Discussion

For validation of the mathematical model, simulations were performed at steady-state for GHSV of 11000 h<sup>-1</sup>, NO inlet concentration of 350 ppm and NH<sub>3</sub>/NO mole ratio of 1 [1]. Maximum error was about 8% which is acceptable considering assumptions made for process modeling.

The effect of NO inlet concentration and temperature at fixed GHSV of 12000 h<sup>-1</sup> and NH<sub>3</sub>/NO mole ratio of 1 on the conversion of NO is shown in Fig. 1. As can be seen, it increases with increase of NO inlet concentration. It is concluded that the optimum temperature for maximum NO conversion is 330°C for different NO concentrations.

For the assessment of the effect of GHSV on the transient response of the catalytic reactor, it was changed from 16000 to 8000 h<sup>-1</sup> at a constant temperature of 330°C. Inlet gas contained 7.6% O<sub>2</sub>, and 350 ppm NO and NH<sub>3</sub>. As it is evident from Fig. 2, NO and NH<sub>3</sub> conversions are increased and reached new steady-state values after 0.2s which is due to

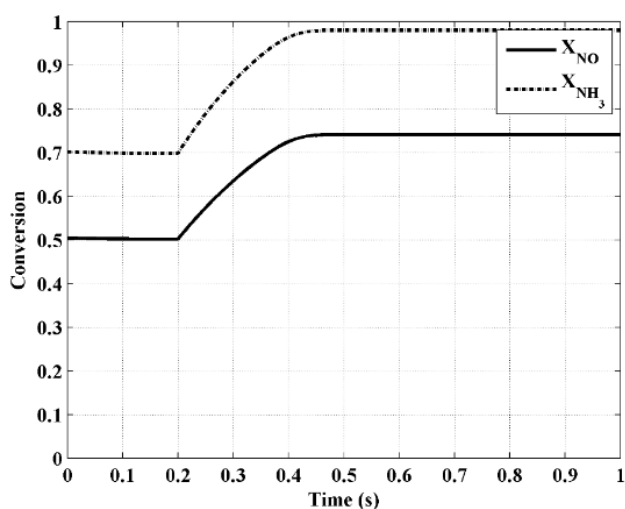
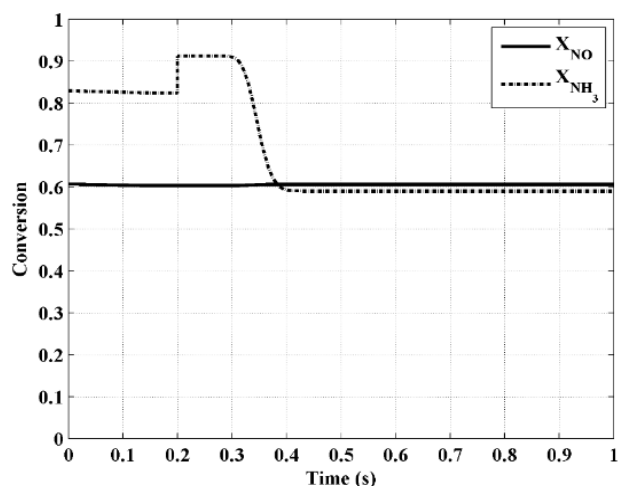


Fig. 2. Response of NO and ammonia conversion to a step-change on GHSV from 16000 to 8000 h<sup>-1</sup>,  $y_{O_2} = 7.6\%$ ,  $y_{NO} = y_{NH_3} = 350$  ppm and T=330 °C

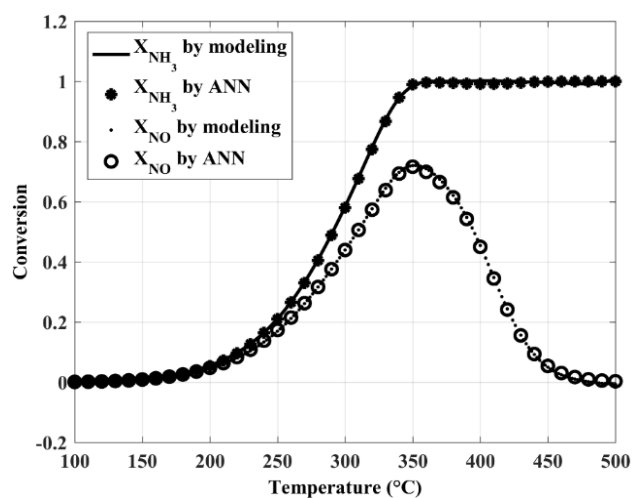


**Fig. 3. The response of NO and ammonia conversion to a step-change on NH<sub>3</sub>/NO mole ratio from 1 to 2, GHSV=12000 h<sup>-1</sup>,  $y_{NO} = y_{NH_3} = 350$  ppm,  $y_{O_2} = 7.6\%$ ,  $T=330$  °C**

the increasing the residence time of the reactants.

Also, NH<sub>3</sub>/NO mole ratio was changed from 1 to 2 with GHSV=12000 h<sup>-1</sup>, 350 ppm NO and 7.6% O<sub>2</sub>, and reactor temperature of 330°C whose response is shown in Fig. 3. As shown, NO conversion has increased slightly, but the conversion of NH<sub>3</sub> firstly increased and then decreased significantly. It is due to the lower concentration of NH<sub>3</sub> compared to NO when its concentration increased which is then decreased because of increasing reaction rates. Thus, the optimum value for this parameter is 1 which is also confirmed by Lei et al. [8].

For modeling with ANN, 2087 data series generated by steady-state mathematical simulation of the process were utilized for training, validation, and test of ANN as described before. It was found that the network with tangent hyperbolic



**Fig. 4. Comparison of NO and ammonia conversion values resulted from the mathematical model with outputs of the optimal ANN using the same inputs, GHSV=11000 h<sup>-1</sup>,  $y_{NO} = y_{NH_3} = 350$  ppm,  $y_{O_2} = 7.6\%$**

and linear activation functions for hidden and output layers, respectively, generated results with minimum deviation from mathematical modeling (Fig. 4). Also, the optimum number of neurons in the hidden layer was obtained as 16. The advantage of using trained ANN instead of mathematical model is that it does not need numerical solutions of differential equations and so generates outputs more rapidly.

#### 4. Conclusion

Based on the mathematical modeling and simulation at steady-state, it can be concluded that selective catalytic reduction of NO with NH<sub>3</sub> in a catalytic filter must be performed in the temperature range of 300-350°C. Also, the simultaneous increase of NO and NH<sub>3</sub> inlet concentrations or reduction of GHSV results in increasing of NO conversion. At dynamic-state, response of NO conversion to a step change on GHSV showed the second-order trajectory and thus a proportional-integral controller could be used for process control. Response to a step change on simultaneous change of NO and NH<sub>3</sub> inlet concentrations was auto-tuning which is due to the constant value of NH<sub>3</sub>/NO mole ratio. Finally, modeling of the system with a feed-forward ANN showed that the optimum trained network predicted outputs of mathematical simulation with maximum error of less than 0.02 which shows high potential of ANNs for prediction of theoretical or empirical results and can be used instead of mathematical model.

#### References

- [1] G. Schaub, D. Unruh, J. Wang, T. Turek, Kinetic analysis of selective catalytic NO<sub>x</sub> reduction (SCR) in a catalytic filter, *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, 42(5) (2003) 365-371.
- [2] G. Saracco, V. Specchia, Simultaneous removal of nitrogen oxides and fly-ash from coal-based power-plant flue gases, *Applied Thermal Engineering*, 18(11) (1998) 1025-1035.
- [3] S.R. Ness, G.E. Dunham, G.F. Weber, D.K. Ludlow, SCR catalyst-coated fabric filters for simultaneous NO<sub>x</sub> and high-temperature particulate control, *Environmental Progress*, 14(1) (1995) 69-74.
- [4] G. Saracco, V. Specchia, Catalytic filters for the abatement of volatile organic compounds, *Chemical Engineering Science*, 55(5) (2000) 897-908.
- [5] B. Guan, R. Zhan, H. Lin, Z. Huang, Review of state of the art technologies of selective catalytic reduction of NO<sub>x</sub> from diesel engine exhaust, *Applied Thermal Engineering*, 66(1) (2014) 395-414.
- [6] C. Winkler, P. Flörchinger, M.D. Patil, J. Gieshoff, P. Spurk, M. Pfeifer, Modeling of SCR DeNO<sub>x</sub> Catalyst - Looking at the Impact of Substrate Attributes, *SAE Transactions*, 112 (2003) 691-699.
- [7] E. Tronconi, Interaction between chemical kinetics and transport phenomena in monolithic catalysts, *Catalysis Today*, 34(3) (1997) 421-427.
- [8] Z. Lei, X. Liu, M. Jia, Modeling of selective catalytic

- reduction (SCR) for NO removal using monolithic honeycomb catalyst, *Energy & Fuels*, 23(12) (2009) 6146-6151.
- [9] L. Sharifian, Y.M. Wright, K. Boulouchos, M. Elsener, O. Kröcher, Calibration of a model for selective catalytic reduction with ammonia, including NO oxidation, and simulation of NO<sub>x</sub> reduction over an Fe-zeolite catalyst under highly transient conditions, *International Journal of Engine Research*, 14(2) (2012) 107-121.
- [10] E. Majd Faghihi, A.H. Shamekhi, Development of a neural network model for selective catalytic reduction (SCR) catalytic converter and ammonia dosing optimization using multi objective genetic algorithm, *Chemical Engineering Journal*, 165 (2010) 508-516.
- [11] M.-S. Izadkhah, A. Farzi, Mathematical and artificial neural network modeling of production of ethylene from ethane pyrolysis in a tubular reactor, *Petroleum Science and Technology*, 36(11) (2018) 732-738.
- [12] M. Aliramezani, C.R. Koch, R.E. Hayes, Estimating tailpipe NO<sub>x</sub> concentration using a dynamic NO<sub>x</sub>/ammonia cross sensitivity model coupled to a three state control oriented SCR model, *IFAC-PapersOnLine*, 49(11) (2016) 8-13.



## شبیه‌سازی ریاضی و شبکه عصبی مصنوعی کاهش کاتالیستی انتخابی ناکس در یک راکتور مونولیتی

علی فرضی<sup>\*</sup>، پروانه خلعتی

دانشکده مهندسی شیمی و نفت، دانشگاه تبریز، تبریز، ایران

### تاریخچه داوری:

دریافت: ۱۳۹۷/۰۹/۰۷  
بازنگری: ۱۳۹۸/۰۱/۰۳  
پذیرش: ۱۳۹۸/۰۳/۲۶  
ارائه آنلاین: ۱۳۹۸/۰۴/۰۹

### کلمات کلیدی:

کاهش کاتالیستی انتخابی ناکس  
راکتور مونولیتی لانه زنبوری  
مدل‌سازی ریاضی  
شبیه‌سازی فرایند  
شبکه عصبی مصنوعی

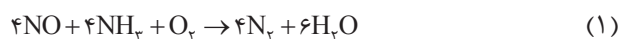
**خلاصه:** گسترش صنایع و افزایش مصرف انرژی در جهان، سبب افزایش انتشار آلاینده اکسیدهای نیتروژن، ناکس، شده است. بنابراین حذف ناکس از اهمیت بسیاری برخوردار است. در این مطالعه، مدل‌سازی و شبیه‌سازی کاهش کاتالیستی انتخابی ناکس توسط آمونیاک در یک راکتور کاتالیستی مونولیتی در دو حالت پایا و دینامیک انجام گردید. نتایج حالت پایا نشان داد که به دلیل اثر شدید دما بر تبدیل ناکس و رقابت واکنش اصلی با اکسیداسیون آمونیاک، تبدیل ناکس نیاز به فیلتر کاتالیستی در محدوده ۳۰۰ تا ۳۵۰ درجه سانتی‌گراد دارد. نتایج نشان داد که تبدیل اکسید نیتروژن با کاهش سرعت فضایی گاز و افزایش غلظت اکسید نیتروژن ورودی افزایش می‌یابد. در حالت دینامیک اثر تغییرات پارامترهای مؤثر شامل سرعت فضایی گاز، غلظت اکسید نیتروژن و نسبت مولی آمونیاک به اکسید نیتروژن ورودی مورد بررسی قرار گرفت. همچنین شبیه‌سازی حالت پایای فرایند با شبکه عصبی مصنوعی انجام گرفت و مقادیر تبدیل اکسید نیتروژن و آمونیاک به عنوان تابعی از سرعت فضایی گاز، دمای راکتور و غلظت اکسید نیتروژن تخمین زده شدند. ۹۶ شبکه با تعداد نرون‌های مختلف و دو تابع فعال‌سازی مختلف در لایه مخفی آموزش داده شدند. شبکه بهینه بیشینه خطای مربعی حدود ۰/۰۱ نسبت به نتایج مدل‌سازی ریاضی نشان داد که حاکی از کارایی بالای شبکه عصبی در پیش‌بینی عملکرد فرایند می‌باشد.

### ۱- مقدمه

حذف آلاینده‌های ناکس<sup>۱</sup> از گازهای با دمای بالا اغلب در نیروگاه‌های حرارتی، زباله‌سوزها و موتورهای درون‌سوز ضروری است. این آلاینده‌ها معمولاً توسط فرایندهای ناکس کاتالیستی در رسوب‌گیرهای الکترواستاتیک و یا فیلتردار حذف می‌شوند. در بعضی از این سیستم‌ها، ناکس به صورت گزینشی توسط آمونیاک با واکنش‌های کاتالیستی کاهش می‌یابد که به طور معمول در فشار کم انجام می‌شود [۱]. همچنین معمولاً از موادی مانند اوره، آمونیوم کربامات و آمونیوم کربنات به عنوان منابع جامد برای تأمین آمونیاک مورد نیاز واکنش کاهش ناکس در موتورهای دیزلی استفاده می‌شود [۲].

در تصفیه گازها، فیلترهای کاتالیستی برای گازهای آلاینده خروجی یا برای نیروگاه‌های سوخت فسیلی [۳ و ۴] و یا برای زیست‌توده و ضایعات حاصل از سوزاندن [۵] ساخته شده‌اند. هنگامی که مواد فیلتر سرامیکی با ترکیبات فلزات واسطه ترکیب می‌شوند، بازده بالایی برای

جداسازی ذرات آلاینده نشان می‌دهند. همچنین این مواد، فعالیت کاتالیستی بالایی برای حذف ناکس، کربن مونواکسید و CH<sub>x</sub> دارند. فیلتر باید گرد و غبار و دوده خروجی از آگروز را حذف کند و همزمان دارای یک کاتالیست مناسب فعال برای فرایند تبدیل آلاینده‌های گازی عبوری از ساختار داخلی فیلتر باشد [۲]. کاهش ناکس طبق واکنش کلی رابطه (۱) رخ می‌دهد و به طور هم‌زمان واکنش رابطه (۲) نیز اتفاق می‌افتد که حاصل واکنش اکسیداسیون آمونیاک با اکسیژن است [۱].



از تشکیل گاز نیتروژن دی‌اکسید<sup>۲</sup> به دلیل وجود آب در گاز خروجی تا حد زیادی جلوگیری می‌شود [۶]. بنابراین نیازی به در نظر گرفتن این آلاینده در ترکیب خروجی و اثر آن بر سینتیک

2 NO<sub>2</sub>

1 NO<sub>x</sub>

<sup>\*</sup> نویسنده عهده‌دار مکاتبات: a-farzi@tabrizu.ac.ir





واکنش‌ها نیست.

ترونکونی [۷] برهم‌کنش بین سینتیک واکنش‌های شیمیایی و پدیده‌های انتقال را در راکتورهای مونولیتی به صورت آزمایشگاهی بررسی کرد. واکنش کاهش ناکس توسط آمونیاک به عنوان فرایند نمونه در نظر گرفته شد و سینتیک واکنش به فرم ریدل بررسی و پارامترهای سینتیکی به دست آمدند. انواع هندسه کاتالیست‌های لانه‌زنبوری شامل هندسه مربعی، مثلثی و استوانه‌ای مورد مطالعه قرار گرفتند و رابطه بین هندسه کاتالیست مونولیتی و پدیده‌های انتقال بررسی شد.

لی و همکاران [۸] مدل‌سازی و شبیه‌سازی فرایند کاهش کاتالیستی انتخابی برای حذف اکسید نیتروژن<sup>۱</sup> در یک راکتور مونولیتی لانه‌زنبوری را به روش دینامیک سیالات محاسباتی انجام دادند. آن‌ها از معادله سرعت واکنش فرم ریدل برای به دست آوردن مدل ریاضی استفاده کردند. نتایج آن‌ها نشان داد که سرعت گاز ورودی پایین، دمای گاز ورودی بالا و نسبت بالاتر اکسید نیتروژن/آمونیاک در خوراک، سبب افزایش میزان تبدیل اکسید نیتروژن می‌شود. کاتالیست استفاده شده در کار آن‌ها از نوع کاتالیست صنعتی فرایند کاهش کاتالیستی انتخابی بود.

خوآ و همکاران [۹] یک مدل ریاضی دینامیکی و یک‌بعدی برای مبدل کاتالیستی شامل مدل انرژی، مدل واکنش کاهش کاتالیستی انتخابی و مدل تانک ذخیره آمونیاک برای شبیه‌سازی واکنش کاهش کاتالیستی انتخابی توسط اوره ارائه دادند. بر پایه مدل ارائه شده، آن‌ها اثرات دما و سرعت فضایی گاز<sup>۲</sup> را بر میزان تبدیل ناکس بررسی کردند. نتایج حاصل تطابق خوبی با نتایج آزمایشگاهی نشان داد.

شریفیان و همکاران [۱۰] یک مدل دینامیکی یک‌بعدی برای شبیه‌سازی کاهش کاتالیستی ناکس بر روی کاتالیست آهن-زئولیت در یک کانال که معادل با عملکرد موتور دیزل بود، ارائه دادند. پارامترهای مؤثر بر عملکرد سیستم بررسی گردیدند تا فرایند به طور کامل کالیبره گردد. نتایج حاصل تطابق بسیار خوبی با نتایج آزمایشگاهی نشان داد.

یون و کیم [۱۱] یک شبیه‌سازی عددی برای پیش‌بینی میزان تبدیل ناکس بر روی کاتالیست پایه وانادیا با استفاده از آمونیاک به عنوان کاهنده برای کاربرد در موتورهای دیزل سنگین انجام دادند.

1 NO

2 Gas Hourly Space Velocity (GHSV)

پس از تعریف سینتیک واکنش‌های حاکم بر فرایند و مدل‌سازی آن، اثر پارامترهای مختلف همچون سرعت‌های فضایی و غلظت ترکیبات مختلف همچون اکسیژن، آب، نیتروژن دی‌اکسید و آمونیاک بر روی میزان تبدیل ناکس بررسی گردید. نتایج آن‌ها نشان داد که میزان تبدیل با کاهش سرعت فضایی، غلظت آب و نسبت آمونیاک/ناکس و با افزایش غلظت اکسیژن و نسبت نیتروژن دی‌اکسید/ناکس افزایش می‌یابد.

در چند دهه گذشته، شبکه‌های عصبی مصنوعی<sup>۳</sup> توجه دانشمندان و مهندسان بسیاری را به سوی خود جلب کرده‌اند. این شبکه‌ها می‌توانند توانایی مغز انسان را شبیه‌سازی کنند و فرایند یادگیری را انجام دهند. همچنین می‌توانند تصمیم‌گیری کرده و زمانی که در معرض اطلاعات ناقص قرار می‌گیرند، نتیجه‌گیری مناسبی انجام دهند. علاوه بر این، شبکه‌های عصبی می‌توانند روندهای خلاقیت مغز انسان را برای تطبیق با شرایط جدید، در بعضی از سطوح اولیه تقلید کنند. شبکه‌های عصبی مصنوعی از ابزارهای قوی برای شبیه‌سازی انواع سیستم‌های غیرخطی هستند و در بسیاری از مسائل عددی با پیچیدگی زیاد همچون مهندسی، تشخیص بیماری و تحقیقات دارویی از آن‌ها استفاده می‌شود [۱۵-۱۲].

از شبکه‌های عصبی به طور گسترده در مدل‌سازی فرایندهای فیزیکی و شیمیایی همچون فرایندهای خشک کردن [۱۶ و ۱۷]، فرایندهای واکنش شیمیایی [۲۲-۱۸]، فرایندهای جداسازی [۲۵-۲۳] و غیره استفاده می‌شود. از شبکه‌های عصبی مصنوعی تنها برای پیش‌بینی انتشار ناکس در موتورهای دیزلی [۲۸-۲۶] استفاده شده است.

مجد فقیهی و شامخی [۲۹] یک مدل شبکه عصبی مصنوعی پیش‌خور برای کاهش کاتالیستی انتخابی ناکس توسعه دادند تا میزان ورودی آمونیاک را بهینه کنند. آن‌ها سه ورودی دما، غلظت اکسید نیتروژن و غلظت آمونیاک ورودی را برای شبکه در نظر گرفتند. خروجی‌های شبکه میزان تبدیل اکسید نیتروژن و خروجی آمونیاک بودند. با وجود ارائه یک مدل ریاضی دینامیکی، تنها نتایج حالت پایا در کار آن‌ها ارائه شده است. آن‌ها ۱۸ سری داده حاصل از نتایج حالت پایا را برای آموزش شبکه استفاده کردند. آن‌ها تعداد بهینه نرون‌های شبکه را به دست نیاوردند و همچنین اثر پارامتر سرعت فضایی گاز را

3 Artificial Neural Networks (ANN)

معادلات سرعت واکنش‌های (۱) و (۲) به صورت زیر و ضرایب سینتیکی مورد نیاز در روابط (۳) تا (۶) در جدول ۲ ارائه شده‌اند [۱].

$$r_1 = k_1 C_{NO} \frac{a C_{NH_3}}{1 + a C_{NH_3}} \quad (3)$$

$$r_2 = k_2 C_{NH_3} \quad (4)$$

$$k_j = k_{j0} \exp\left(-\frac{E_j}{RT}\right) \quad (5)$$

$$a = a_0 \exp\left(-\frac{A}{RT}\right) \quad (6)$$

جدول ۲. مقادیر پارامترهای سینتیکی سیستم واکنش کاهش انتخابی اکسید نیتروژن توسط آمونیاک استفاده شده در این مطالعه [۱]

Table 2. Kinetic parameters of the NOx SCR with ammonia reaction system used in this study [1]

واحد	مقدار	پارامتر
s <sup>-1</sup>	1 × 10 <sup>6</sup>	k <sub>1</sub>
s <sup>-1</sup>	6/8 × 10 <sup>7</sup>	k <sub>2</sub>
kJ/mol	۶۰	E <sub>1</sub>
kJ/mol	۸۵	E <sub>2</sub>
kJ.m <sup>3</sup> /mol	۲/۶۸ × 10 <sup>-17</sup>	a
kJ/mol	-۲۴۳	A

## ۲-۱- مدل‌سازی حالت پایا

در این حالت، مدل شبه‌همگن هم‌دما در حالت پایا و بر اساس معادلات موازنه جرم جزئی نوشته شد و معادلات دیفرانسیل عادی (۷) تا (۹) حاصل گردیدند. فرضیات مدل‌سازی شامل حالت پایا،

بر روی درصد تبدیل اکسید نیتروژن بررسی نکردند.

ایزدخواه و فرضی [۲۲] مدل‌سازی و شبیه‌سازی ریاضی و شبکه عصبی فرایند پیرولیز اتیلن به اتانول در یک راکتور لوله‌ای را در حالت پایا مطالعه کردند. شبکه عصبی استفاده شده از نوع پیش‌خور بود و شبکه بهینه با ۱۰ نرون در لایه مخفی به دست آمد، به نحوی که خطای بسیار کمی نسبت به نتایج شبیه‌سازی ریاضی داشت.

در این مطالعه، مدل‌سازی ریاضی و شبیه‌سازی فرایند کاهش کاتالیستی انتخابی ناکس توسط آمونیاک در یک راکتور لوله‌ای مونولیت با جریان قالبی، در دو حالت پایا و دینامیک انجام شده است. برای این منظور معادلات موازنه جرم جزئی در هر دو حالت نوشته شده‌اند. برای تأیید مدل، از نتایج تجربی موجود در حالت پایا [۱] استفاده شده است. مدل‌سازی دینامیک فرایند یکی از نوآوری‌های این تحقیق است که در کارهای قبل کمتر انجام شده است. شبکه عصبی استفاده شده در کار حاضر دارای ورودی اضافی سرعت فضایی گاز است که در کار مجد فقیهی و شامخی [۲۹] بررسی نشده است. به دلیل استفاده از تعداد زیاد داده برای آموزش و موارد دیگر، شبکه به خوبی قادر به پیش‌بینی نتایج مدل‌سازی ریاضی و نتایج تجربی است.

## ۲-روش تحقیق

برای مدل‌سازی فرایند کاهش ناکس، یک راکتور مونولیتی دارای فیلتر لانه‌زنبوری با کاتالیست وانادیا بر پایه تیتانیا در نظر گرفته شد. ویژگی‌ها و مشخصات فنی فیلتر کاتالیستی مورد استفاده برای مدل‌سازی در جدول ۱ نشان داده شده‌اند [۱].

جدول ۱. اطلاعات فنی فیلتر کاتالیستی استفاده شده برای مدل‌سازی و شبیه‌سازی ریاضی در این کار [۱]

Table 1. Technical data of the catalytic filter used in this study for the mathematical modeling and simulation [1]

واحد	مقدار	پارامتر
m	۰/۰۶	قطر خارجی
m	۰/۰۲۴	قطر داخلی
m	۰/۹۸۵	طول المان
kg/m <sup>۲</sup>	۱/۶	جرم به سطح
kg	۰/۳	جرم المان
m	۰/۰۰۹	ضخامت فیلتر
kg/m <sup>۲</sup>	۱۸۰	چگالی متوسط
min/dm <sup>۲</sup>	۱۲۰۰۰	تراوایی هوا
%	۹۵	تخلخل
m <sup>۲</sup>	۰/۱۹	مساحت سطح المان

برای حل عددی معادلات دیفرانسیل پاره‌ای به دست آمده، از روش خطوط [۳۱] استفاده شد. در این روش مشتقات در طول راکتور با استفاده از روش تفاضلات محدود گسسته‌سازی می‌شوند، اما مشتقات در جهت زمان بدون تغییر باقی می‌مانند و معادلات دیفرانسیل فوق به مجموعه‌ای از معادلات دیفرانسیل عادی تبدیل می‌شوند. تعداد معادلات دیفرانسیل عادی حاصل بستگی به تعداد نقاط انتخاب شده در طول راکتور برای گسسته‌سازی دارد [۳۲].

برای نشان دادن تأثیر اغتشاشات در رفتار دینامیکی راکتور کاتالیستی و تغییر میزان تبدیل اکسید نیتروژن و آمونیاک خروجی از راکتور با زمان، اثر تغییرات پارامترهای سرعت فضایی گاز، غلظت اکسید نیتروژن ورودی و نسبت مولی اکسید نیتروژن/آمونیاک مورد بررسی قرار گرفت.

### ۲-۳- مدل‌سازی به کمک شبکه عصبی مصنوعی

شبکه‌های عصبی مصنوعی شامل مجموعه‌ای از نرون‌های به هم متصل می‌باشند که به هر مجموعه از نرون‌ها با ورودی‌های یکسان یک لایه گفته می‌شود [۳۳]. شکل ۱ نمونه ساده‌ای از یک شبکه عصبی مصنوعی پیش‌خور را نشان می‌دهد. شبکه عصبی پیش‌خور پرکاربردترین نوع شبکه عصبی برای سیستم‌ها و فرایندهای حالت پایا است. این نوع شبکه به دلیل استفاده از توابع فعال سازی غیرخطی در لایه مخفی می‌تواند تنها با یک لایه مخفی هر نوع فرایند حالت پایا با متغیرهای پیوسته را شبیه‌سازی کند.

طبق شکل زیر خروجی هر نرون در لایه مخفی همچون  $z$  که از ورودی‌ها به آن به دست می‌آید از معادله زیر پیروی می‌کند:

جریان قالبی، نداشتن پراکندگی محوری، ثابت بودن دما در طول فیلتر کاتالیستی و فرض گاز ایده‌آل هستند [۳۰].

$$\dot{C}_i = -u_{eff} \frac{dC_i}{dz} + \sum_j y_{ij} r_{ij} \quad (7)$$

$$\dot{C}_{NO} = u_{eff} \frac{dC_{NO}}{dz} + r_1 \quad (8)$$

$$\dot{C}_{NH_3} = u_{eff} \frac{dC_{NH_3}}{dz} + r_1 + r_2 \quad (9)$$

معادلات پیوستگی برای آمونیاک و اکسید نیتروژن (معادلات (۸) و (۹)) به طور همزمان و به روش رانگ-کاتا حل شدند. اثر پارامترهای مؤثر بر فرایند همچون سرعت فضایی گاز و غلظت اکسید نیتروژن ورودی در نسبت مولی ثابت اکسید نیتروژن/آمونیاک مورد بررسی قرار گرفت و مقادیر بهینه این پارامترها مشخص گردید.

### ۲-۲- حالت دینامیکی

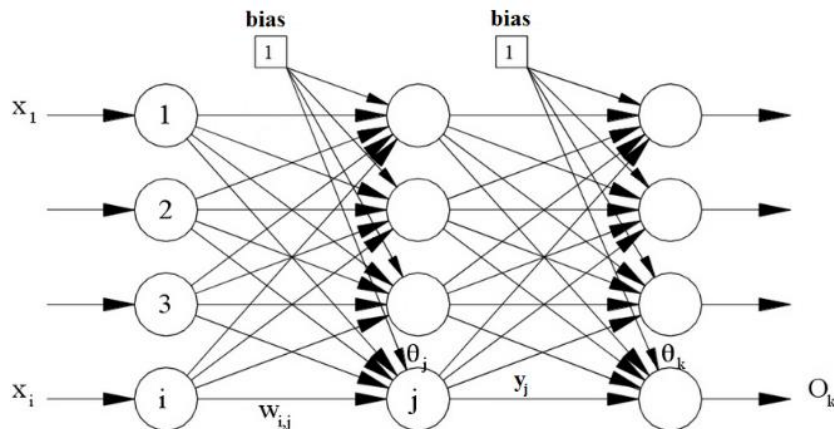
معادلات موازنه جرم جزئی در حالت دینامیک با در نظر گرفتن تجمع به صورت معادلات (۱۰) تا (۱۲) به دست می‌آیند:

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = -u_{eff} \frac{\partial C_i}{\partial z} + \sum_j y_{ij} r_{ij} \quad (10)$$

$$\frac{\partial C_{NO}}{\partial t} = -u_{eff} \frac{\partial C_{NO}}{\partial z} - r_1 \quad (11)$$

$$\frac{\partial C_{NH_3}}{\partial t} = -u_{eff} \frac{\partial C_{NH_3}}{\partial z} - r_1 - r_2 \quad (12)$$

شرایط اولیه برای حل معادلات فوق برابر با نتایج حالت پایا در شرایط بهینه شامل غلظت‌های حالت پایای اجزاء در نظر گرفته شدند.



شکل ۱. شماتیک یک شبکه عصبی مصنوعی پیش‌خور

Fig. 1. Schematic of a feed-forward artificial neural network



که با الگوریتم پس انتشار خطای لونبرگ-مارکواریت<sup>۱</sup> آموزش داده شد. وزن‌های شبکه عصبی مصنوعی باید به نحوی تنظیم شوند که پارامتر کارایی شبکه<sup>۲</sup> که در واقع متوسط مجموع مربعات خطای<sup>۳</sup> بین خروجی فرایند و خروجی شبکه عصبی است، مینیمم شود. این پارامتر به صورت رابطه (۱۸) تعریف می‌شود:

$$MSE = \frac{\sum_{p=1}^P \sum_{o=1}^{No} (d_{o,p} - y_{o,p})^2}{P} \quad (18)$$

چندین معماری شبکه برای انتخاب دقیق‌ترین طرح، مورد آزمایش قرار گرفتند. برای انتخاب بهترین تابع فعال‌سازی در لایه مخفی، انواع توابع فعال‌سازی امتحان شدند. از آنجا که اطلاعات دقیقی در مورد تعداد بهینه نرون‌ها در لایه مخفی وجود نداشت، تعداد بهینه آن‌ها با آزمون و خطا و بر اساس مینیمم‌سازی پارامتر کارایی با حدس و خطا به دست آمد [۳۴].

### ۳- نتایج و بحث

#### ۳-۱- نتایج حالت پایا

اثر سرعت فضایی گاز و دما در غلظت ورودی ثابت گازها بر روی میزان تبدیل اکسید نیتروژن و آمونیاک با استفاده از مدل‌سازی ریاضی به ترتیب در شکل‌های ۲ و ۳ نشان داده شده است. پارامتر سرعت فضایی گاز عبارت است از دبی حجمی گاز در شرایط نرمال نسبت به حجم راکتور:

$$GHSV = \frac{Q}{V} \quad (19)$$

در مقادیر کمتر سرعت فضایی گاز می‌توان به مقادیر بالای تبدیل دست یافت. تغییرات در سرعت فضایی گاز نشان‌دهنده تغییرات در ضخامت لایه کاتالیستی داخل راکتور یا تغییرات در دبی حجمی گاز و یا سرعت گاز است که سبب تغییر زمان ماند واکنشگرها در راکتور می‌شود. همچنین میزان تبدیل اکسید نیتروژن حداکثر تا دمای ۳۵۰ درجه سانتی‌گراد افزایش و پس از آن کاهش می‌یابد. در دماهای پایین‌تر از ۳۵۰ سانتی‌گراد، اکسید نیتروژن توسط آمونیاک کاهش می‌یابد، ولی با افزایش دما سرعت واکنش دوم بیشتر شده و بیشتر

$$s_j = \sum_i^n w_{ij} y_i + \theta_j \quad (13)$$

که در این معادله  $s_j$  خروجی از نرون  $j$  قبل از اعمال تابع فعال‌سازی،  $w_{ij}$  وزن اتصال نرون  $i$  به نرون  $j$ ،  $y_i$  خروجی از نرون  $i$  از لایه قبل و  $\theta_j$  بایاس نرون  $j$  است. خروجی نهایی نرون  $j$  با استفاده از تابع فعال‌سازی به صورت زیر محاسبه می‌شود.

$$y_j = F(s_j) \quad (14)$$

که در آن  $y_j$  خروجی نهایی از نرون  $j$  در لایه مخفی و  $F$  تابع فعال‌سازی است. در شکل فوق توابع فعال‌سازی برای خلاصه‌سازی نشان داده نشده‌اند. توابع فعال‌سازی متداول برای استفاده توسط شبکه عصبی شامل توابع سیگموئید، تانژانت هایپربولیک و خطی هستند که به ترتیب توسط معادلات (۱۵) تا (۱۷) بیان می‌شوند [۳۳].

$$y_j = \frac{1}{1 + e^{-s_j}} \quad (15)$$

$$y_j = \frac{e^{s_j} - e^{-s_j}}{e^{s_j} + e^{-s_j}} \quad (16)$$

$$y_j = s_j \quad (17)$$

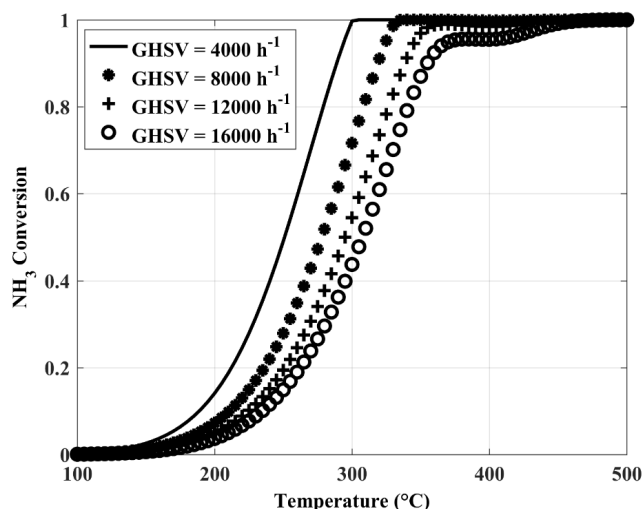
نخستین گام در مدل‌سازی توسط شبکه عصبی، ایجاد بانک داده است که برای آموزش و تست شبکه ضروری است. برای بررسی سیستم راکتور مورد مطالعه، ۲۰۸۷ سری داده توسط اجرای مدل ریاضی تولید و استفاده شدند. در این کار میزان تبدیل اکسید نیتروژن و آمونیاک به صورت تابعی از سرعت فضایی گاز، دمای راکتور و غلظت اکسید نیتروژن ورودی توسط شبکه عصبی تخمین زده شد. نسبت مولی اکسید نیتروژن/آمونیاک ثابت و برابر ۱ فرض گردید. برای آموزش شبکه ۷۰ درصد، برای اعتبارسنجی ۱۵ درصد و برای تست شبکه عصبی ۱۵ درصد داده‌ها به کار رفتند. به دلیل وجود تعداد کافی داده، این نوع تقسیم‌بندی مناسب است. همچنین پس از آموزش با کل داده‌های فوق، در نهایت شبکه عصبی با مجموعه داده‌های دیگری غیر از داده‌های آموزش دوباره تست شد که در بخش نتایج قابل مشاهده است.

شبکه عصبی انتخاب شده، شبکه پیش‌خور مشابه شکل ۱ بود

1 Levenberg-Marquardt Back-Propagation Algorithm

2 Network Performance Parameter

3 Mean Squared Error (MSE)



شکل ۳. تغییرات میزان تبدیل آمونیاک در دما و سرعت‌های حجمی متفاوت،

$$y_{NO} = y_{NH_3} = 350 \text{ ppm}$$

Fig. 3. NH<sub>3</sub> conversion at different temperatures and GHSV

$$y_{NO} = y_{NH_3} = 350 \text{ ppm}$$

دلیل خطا در خواندن داده‌ها از روی نمودارها در مراجع است.

مطالعه دوم، اثر تغییرات غلظت اکسید نیتروژن در جریان گاز ورودی را بر روی تبدیل اکسید نیتروژن در سرعت فضایی برابر  $h^{-1}$  ۱۲۰۰۰ نشان می‌دهد.

نسبت اکسید نیتروژن به آمونیاک در خوراک ثابت و برابر ۱ در نظر گرفته شده است. همان‌طور که در شکل ۴ مشاهده می‌شود، با افزایش غلظت اکسید نیتروژن تبدیل آن در خروجی افزایش یافته است، ولی اختلاف میزان تبدیل در غلظت‌های اکسید نیتروژن برابر ۳۵۰ و ۶۰۰ ppm در دماهای کمتر از  $330^\circ C$  و بالاتر از  $440^\circ C$  بسیار کم و در بین این دو در حد ۶ تا ۸ درصد است. بنابراین فرایند باید در دمای حدود  $330^\circ C$  کار کند تا غلظت اکسید نیتروژن خروجی بالاتر از حد مجاز نشود.

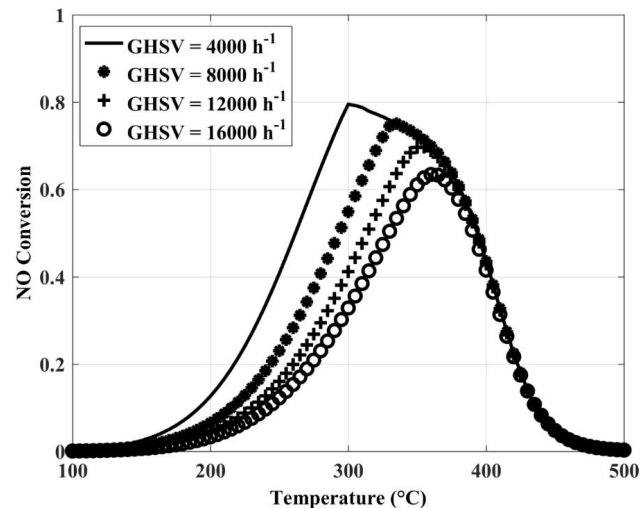
جدول ۳. مقایسه نتایج مدل‌سازی ریاضی در این کار با نتایج آزمایشگاهی هونبر و همکاران [۳۵] و نتایج مدل‌سازی شوب و همکاران [۱]،  $GHSV = 11000 h^{-1}$

$$y_{NO} = y_{NH_3} = 350 \text{ ppm}$$

Table 3. Comparison of the results of mathematical modeling with empirical results[35] and modeling results of Schaub et al.[1]

$$y_{NO} = y_{NH_3} = 350 \text{ ppm}, GHSV=11000 h^{-1}$$

قدرمطلق خطای نسبی نسبت به مرجع نسبی [۱] (%)	میزان تبدیل اکسید نیتروژن (مرجع [۱])	قدرمطلق خطای نسبی نسبت به مرجع [۳۵] (%)	میزان تبدیل اکسید نیتروژن (مرجع [۳۵])	میزان تبدیل اکسید نیتروژن (کار حاضر)	دما (°C)
۶/۴۸	۰/۲۹۷	۸/۸۲	۰/۲۹۱	۰/۳۱۷	۲۸۰
۷/۲۳	۰/۴۱۰	۱/۹۵	۰/۴۳۱	۰/۴۳۹	۳۰۰
۷/۵۸	۰/۵۳۳	۶/۳۱	۰/۵۳۹	۰/۵۷۳	۳۲۰
۷/۸۸	۰/۶۴۱	۷/۸۸	۰/۶۴۱	۰/۶۹۲	۳۴۰
۳/۹۰	۰/۶۶۹	۵/۲۴	۰/۶۶۰	۰/۶۹۵	۳۶۰
۳/۴۳	۰/۵۸۴	۰/۹۰	۰/۶۰۹	۰/۶۰۴	۳۸۰
۱/۰۴	۰/۴۲۷	۱۵/۳۸	۰/۵۱۰	۰/۴۳۱	۴۰۰



شکل ۲. تغییرات میزان تبدیل اکسید نیتروژن در دما و سرعت‌های حجمی متفاوت،

$$y_{NO} = y_{NH_3} = 350 \text{ ppm}$$

Fig. 2. NO conversion at different temperatures and GHSV

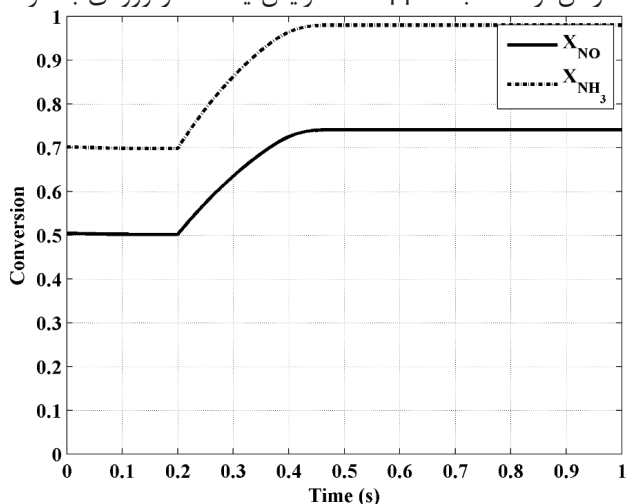
$$y_{NO} = y_{NH_3} = 350 \text{ ppm}$$

آمونیاک توسط اکسیژن اکسید می‌شود. با کم شدن میزان آمونیاک در دسترس، میزان تبدیل اکسید نیتروژن نیز کاهش می‌یابد. افزایش میزان تبدیل آمونیاک با دما در شکل ۳ مشخص است و از دمای  $350^\circ C$  سانتی‌گراد به بعد اثر واکنش دوم نیز کاملاً مشهود است.

همچنین برای تأیید نتایج مدل‌سازی، فرایند در حالت پایا با سرعت فضایی  $11000 h^{-1}$ ، غلظت اکسید نیتروژن ورودی برابر ppm ۳۵۰ و نسبت اکسید نیتروژن/آمونیاک برابر یک شبیه‌سازی شد. جدول ۳، مقایسه نتایج حاصل از مدل‌سازی و شبیه‌سازی در این کار با نتایج آزمایشگاهی هونبر و همکاران [۳۵] و نتایج مدل‌سازی شوب و همکاران [۱] را نشان می‌دهد. همان‌طور که از خطاهای محاسبه شده قابل مشاهده است، نتایج این کار تطابق خوبی با کارهای ذکر شده دارند که بیانگر درستی مدل ارائه شده است. بخشی از خطا به

برای بررسی پاسخ گذرای میزان تبدیل اکسید نیتروژن و آمونیاک نسبت به تغییر سرعت فضایی گاز، مقدار آن در حالت پایا از ۱۶۰۰۰ به  $8000 \text{ h}^{-1}$  تغییر یافت. گاز ورودی حاوی ۷/۶ درصد  $\text{O}_2$  و  $350 \text{ ppm}$  NO و آمونیاک بود. شکل ۶ پاسخ تبدیل اکسید نیتروژن و آمونیاک را به این تغییر در خروجی راکتور نشان می‌دهد. مشاهده می‌شود که تبدیل بعد از حدود ۰/۲ ثانیه پس از اعمال تغییر به حالت پایای جدید رسیده و افزایش یافته است که به دلیل افزایش زمان ماند واکنشگرها و در نتیجه مصرف بیشتر آن‌ها است. با مقایسه نتایج اولیه و نهایی در شکل ۶ با نتایج حالت پایا در شکل ۲، کاملاً مشخص است که نتایج حالت پایا در دو شکل در سرعت‌های حجمی ۱۶۰۰۰ و ۸۰۰۰ باهم مطابقت کامل دارند. همچنین بر اساس معادلات (۱۱) و (۱۲) تغییرات غلظت خروجی اکسید نیتروژن و آمونیاک با زمان، معادل دو سیستم مرتبه اول با تأثیر متقابل هستند و در نتیجه سیستم کلی، یک سیستم مرتبه ۲ و پرمیرا<sup>۱</sup> است. نتایج حالت دینامیک در شکل ۶ نیز کاملاً گویای این مطلب است. با این‌که ظاهر تغییرات غلظت اجزاء مرتبه اول به نظر می‌رسد، اما با بررسی شروع تغییرات در لحظه ۰/۲ ثانیه، یعنی زمان اعمال تغییر پله‌ای، چون شیب تغییرات صفر است، سیستم می‌تواند مرتبه ۲ و بالاتر باشد.

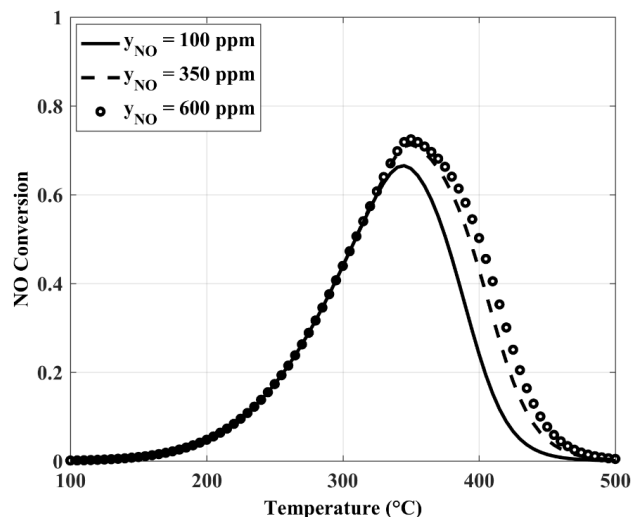
برای بررسی اثر غلظت اکسید نیتروژن در جریان گاز ورودی، مقدار آن از ۳۵۰ به ۶۰۰ ppm افزایش یافت. گاز ورودی با سرعت



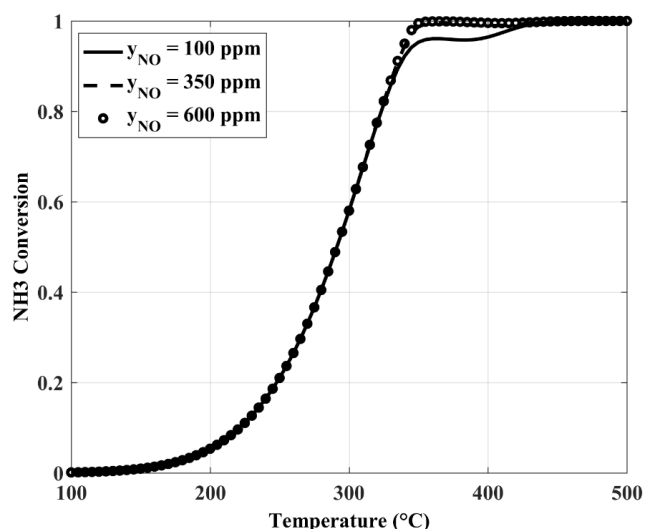
شکل ۶. پاسخ تبدیل اکسید نیتروژن و آمونیاک به یک تغییر پله‌ای در سرعت فضایی گاز از ۱۶۰۰۰ به  $8000 \text{ h}^{-1}$ ،  $y_{\text{NO}} = y_{\text{NH}_3} = 350 \text{ ppm}$ ،  $y_{\text{O}_2} = 7.6\%$ ،  $T = 330^\circ\text{C}$

Fig. 6. Response of NO and  $\text{NH}_3$  ammonia conversion to a step-change on GHSV from 16000 to 8000  $\text{h}^{-1}$ ,  $y_{\text{NO}} = y_{\text{NH}_3} = 350 \text{ ppm}$ ,  $y_{\text{O}_2} = 7.6\%$  and  $T = 330^\circ\text{C}$

1 Over-Damped



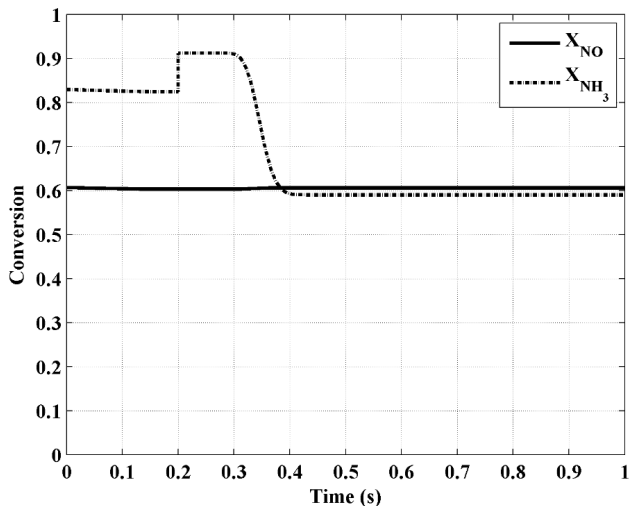
شکل ۴. تغییرات میزان تبدیل اکسید نیتروژن بر حسب دما و غلظت‌های مختلف اکسید نیتروژن ورودی،  $GHSV = 12000 \text{ h}^{-1}$  و  $y_{\text{NO}} = y_{\text{NH}_3}$   
Fig. 4. NO conversion at different temperatures and NO inlet concentrations,  $GHSV = 12000 \text{ h}^{-1}$ ,  $y_{\text{NO}} = y_{\text{NH}_3}$



شکل ۵. تغییرات میزان تبدیل آمونیاک بر حسب دما و غلظت‌های مختلف اکسید نیتروژن ورودی،  $GHSV = 12000 \text{ h}^{-1}$  و  $y_{\text{NO}} = y_{\text{NH}_3}$   
Fig. 5.  $\text{NH}_3$  conversion at different temperatures and NO inlet concentrations,  $GHSV = 12000 \text{ h}^{-1}$ ,  $y_{\text{NO}} = y_{\text{NH}_3}$

### ۳-۲-نتایج حالت دینامیک

برای بررسی تأثیر اغتشاشات در رفتار دینامیکی راکتور کاتالیستی، اثر سرعت فضایی گاز، غلظت اکسید نیتروژن ورودی در نسبت مولی ثابت اکسید نیتروژن/آمونیاک و نیز نسبت مولی اکسید نیتروژن/آمونیاک مورد بررسی قرار گرفت. دمای سیستم واکنش ثابت و برابر  $330^\circ\text{C}$  در نظر گرفته شد.



شکل ۸. پاسخ تبدیل اکسید نیتروژن و آمونیاک به یک تغییر پله‌ای در نسبت مولی اکسید نیتروژن/آمونیاک از ۱ به ۲،  $y_{O_2} = 7.6\%$  و  $T = 330^\circ C$

$$y_{NO} = 350 \text{ ppm}, GHSV = 12000 \text{ h}^{-1}$$

Fig. 8. Response of NO and NH<sub>3</sub> conversion to a step-change on NH<sub>3</sub>/NO mole ratio from 1 to 2, GHSV=12000 h<sup>-1</sup>,

$$y_{O_2} = 7.6\%, y_{NO} = 350 \text{ ppm}, \text{ and } T=330^\circ C$$

محسوسی یافته است. دلیل این افزایش، همانند حالت قبل مربوط به وجود مقدار کمتر آمونیاک در خروجی در زمان افزایش آن در ورودی است که پس از خروج تمام مواد مربوط به قبل از اعمال تغییر، کاهش تبدیل آمونیاک مشاهده می‌شود. کاهش میزان تبدیل به دلیل سرعت محدود واکنش‌های شیمیایی در دمای راکتور و سرعت فضایی گاز است که با افزایش غلظت آمونیاک تأثیر قابل ملاحظه‌ای در واکنش اول نداشته و واکنش دوم هم سرعت بسیار کمتری نسبت به واکنش اول دارد

بنابراین به نظر می‌رسد افزایش نسبت مولی اکسید نیتروژن/آمونیاک نمی‌تواند تأثیر قابل ملاحظه‌ای در تبدیل بیشتر اکسید نیتروژن داشته باشد و نسبت مساوی آن‌ها مقدار بهینه است. از طرفی افزایش این نسبت سبب کاهش تبدیل آمونیاک و در نتیجه افزایش غلظت این گاز در خروجی می‌گردد که سبب آلودگی محیط زیست خواهد شد.

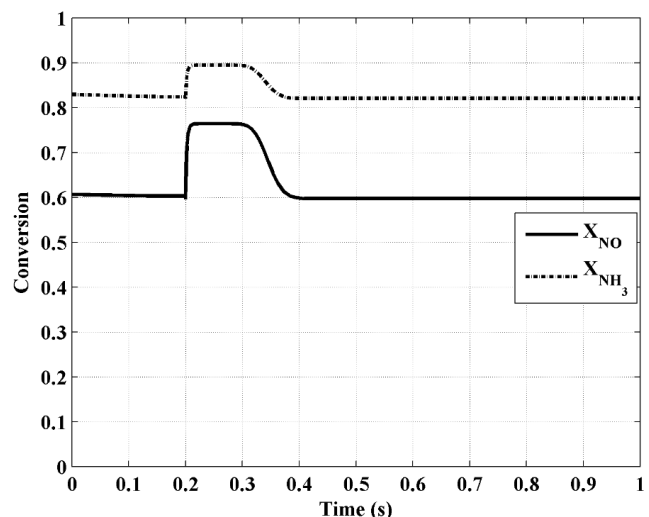
با بررسی نتایج کار لی و همکاران [۸] در خصوص نسبت اکسید نیتروژن/آمونیاک مشخص می‌شود که آن‌ها نیز بهترین نسبت مولی را برابر یک به دست آورده‌اند.

### ۳-۳- مدل‌سازی به کمک شبکه عصبی

از یک شبکه عصبی مصنوعی پیش‌خور برای شبیه‌سازی فرایند در حالت پایا با استفاده از داده‌های حاصل از مدل‌سازی فرایند استفاده

فضایی گاز برابر  $12000 \text{ h}^{-1}$  حاوی ۷/۶ درصد  $O_2$ ، نسبت مولی اکسید نیتروژن/آمونیاک برابر یک و دمای راکتور  $330^\circ C$  بود. شکل ۷ پاسخ تبدیل اکسید نیتروژن و آمونیاک به این تغییر را در خروجی راکتور بر حسب زمان نشان می‌دهد. در بازه زمانی ۰/۲ تا ۰/۳ ثانیه افزایش تبدیل مشاهده می‌شود، ولی پس از آن میزان تبدیل کاهش می‌یابد. در لحظه افزایش غلظت ورودی، به دلیل کم بودن غلظت اکسید نیتروژن و آمونیاک در طول لوله، میزان تبدیل آن‌ها نسبت به ورودی لوله با توجه به رابطه درصد تبدیل، افزایش ظاهری نشان می‌دهد، ولی بعد از مدتی با افزایش غلظت این دو در راکتور، تبدیل در خروجی کاهش می‌یابد. این مدت زمان برابر با زمان ماند اجزاء درون راکتور است. طبق شکل ۴، در هر دو غلظت ۳۵۰ و ۶۰۰ ppm و میزان تبدیل اکسید نیتروژن در دمای  $330^\circ C$  تقریباً باهم برابر است که این حالت در شکل ۷ نیز مشاهده و تأیید دارد.

برای بررسی اثر نسبت مولی اکسید نیتروژن/آمونیاک در جریان گاز ورودی، مقدار آن از ۱ به ۲ افزایش یافت. گاز ورودی با سرعت فضایی گاز برابر  $12000 \text{ h}^{-1}$ ، حاوی ۳۵۰ ppm اکسید نیتروژن و ۷/۶ درصد  $O_2$  بود و دمای راکتور در  $330^\circ C$  تنظیم گردید. شکل ۸ پاسخ تبدیل اکسید نیتروژن و آمونیاک را به این تغییر در خروجی راکتور نشان می‌دهد. طبق شکل، میزان تبدیل اکسید نیتروژن بسیار ناچیز افزایش یافته، ولی میزان تبدیل آمونیاک در ابتدا افزایش و سپس کاهش



شکل ۷. پاسخ تبدیل اکسید نیتروژن و آمونیاک به یک تغییر پله‌ای در غلظت اکسید نیتروژن ورودی از ۳۵۰ به ۶۰۰ ppm،  $GHSV = 12000 \text{ h}^{-1}$ ،  $y_{NO} = y_{NH_3}$ ،

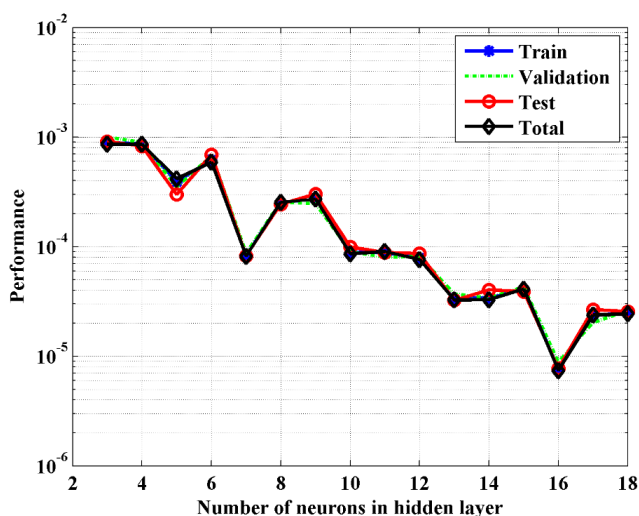
$$y_{O_2} = 7.6\%, T = 330^\circ C$$

Fig. 7. Response of NO and NH<sub>3</sub> ammonia conversion to a step-change on NO concentration from 350 to 600 ppm, GHSV=12000 h<sup>-1</sup>,  $y_{NO} = y_{NH_3}$ ,  $y_{O_2} = 7.6\%$ , and  $T=330^\circ C$

جدول ۴. پارامترهای مربوط به شبکه عصبی مصنوعی استفاده شده برای شبیه‌سازی فرایند کاهش کاتالیستی انتخابی ناکس توسط آمونیاک  
Table 4. Parameters of the utilized ANN for the simulation of NO<sub>x</sub> SCR using NH<sub>3</sub>

مقدار	پارامتر
پیش‌خور	نوع شبکه
پس‌انتشار خطا	الگوریتم آموزش
لونبرگ-مارکوارت	روش آموزش
سیگموئید و تانژانت هایپربولیک	تابع فعال‌سازی لایه مخفی
خطی	تابع فعال‌سازی لایه خروجی

هر سه حالت آموزش، اعتبارسنجی و تست، خطای بسیار کمی ایجاد شده است.



شکل ۹. تغییرات پارامتر کارایی شبکه بر حسب تعداد نرون در لایه مخفی با تابع فعال‌سازی تانژانت هایپربولیک

Fig. 9. Profiles of ANN performance with respect to number of neurons in hidden layer with tangent hyperbolic activation function

جدول ۵ پارامتر کارایی شبکه را بر حسب تعداد نرون در لایه مخفی با تابع فعال‌سازی تانژانت هایپربولیک در لایه مخفی نشان می‌دهد. این جدول در واقع همان داده‌های رسم شده در شکل فوق است که برای بررسی بهتر به صورت کمی آورده شده است.

جدول ۶ و ۷ به ترتیب مقادیر وزن‌های بین لایه ورودی به لایه مخفی، لایه مخفی به لایه خروجی و مقادیر بایاس‌ها را برای شبکه عصبی بهینه با ۳ ورودی، ۱۶ نرون در لایه مخفی و ۲ نرون در لایه خروجی نشان می‌دهند. به کمک این مقادیر می‌توان شبکه عصبی

جدول ۵. مقادیر پارامتر کارایی شبکه بر حسب تعداد نرون در لایه مخفی و تابع فعال‌سازی تانژانت هایپربولیک در لایه مخفی. شبکه بهینه با رنگ متمایز مشخص شده است  
Table 5. Values of the ANN performance parameter (MSE) with respect to the number of neurons and tansig activation function in hidden layer. The optimal network is highlighted

تعداد نرون کارایی $\times 10^{-5}$	۳	۴	۵	۶	۷	۸	۹	۱۰	۱۱	۱۲	۱۳	۱۴	۱۵	۱۶	۱۷	۱۸
۸۶/۳	۸۶/۱	۴۱/۷	۵۹/۱	۸/۲	۲۵/۳	۲۷/۲	۸/۶۴	۹/۰۶	۷/۶۴	۳/۲۵	۳/۲۹	۴/۱۱	۰/۷۴۲	۲/۳۷	۲/۴۴	

- Logsig
- Tansig

شد. سه ورودی شامل سرعت فضایی گاز، دما و غلظت ورودی اکسید نیتروژن برای شبکه عصبی در نظر گرفته شدند و نسبت مولی اکسید نیتروژن/آمونیاک ثابت و برابر یک فرض گردید. خروجی‌های شبکه شامل میزان تبدیل ناکس و آمونیاک در خروجی راکتور بودند. جدول ۴ پارامترهای شبکه عصبی مصنوعی استفاده شده برای آموزش و شبیه‌سازی فرایند کاهش ناکس توسط آمونیاک را نشان می‌دهد.

تعداد ۲۰۸۷ سری داده برای آموزش شبکه استفاده شد. تمامی این داده‌ها با اجرای مدل ریاضی حاصل در این کار به دست آمدند و هیچ یک از سری داده‌ها از کار دیگری استخراج نشده است. پارامترهای قابل تنظیم شامل وزن‌ها و بایاس‌ها و تعداد نرون‌ها در لایه مخفی هستند. آموزش شبکه‌های عصبی با نرون‌های متفاوت در لایه مخفی و حدس‌های اولیه متفاوت برای وزن‌ها و بایاس‌ها سه بار انجام گردید تا در نهایت بهترین آموزش انجام یافته با تعداد نرون بهینه در لایه مخفی از لحاظ کمترین تعداد و مینیمم‌سازی پارامتر کارایی (معادله ۱۸) حاصل شود. همچنین دو نوع تابع فعال‌سازی غیرخطی در لایه مخفی شامل سیگموئید<sup>۱</sup> و تانژانت هایپربولیک<sup>۲</sup> برای آموزش استفاده شدند. در مجموع تعداد ۹۶ شبکه عصبی با تعداد نرون‌های متفاوت و توابع فعال‌سازی متفاوت در لایه مخفی و سه بار تکرار، آموزش داده شدند. در نهایت تابع فعال‌سازی تانژانت هایپربولیک با ۱۶ نرون در لایه مخفی بهترین نتایج را حاصل نمود. شکل ۹ پارامتر کارایی را بر حسب تغییر تعداد نرون‌ها در لایه مخفی نشان می‌دهد. همان‌گونه که مشخص است، تعداد بهینه نرون در لایه مخفی برابر ۱۶ است و شبکه بهینه به خوبی نتایج مدل ریاضی را پیش‌بینی کرده و برای



جدول ۷. مقادیر وزن‌های بین نرون‌های لایه مخفی و لایه خروجی و مقادیر بایاس‌های شبکه عصبی بهینه. نرون‌های ۱۷ و ۱۸ مربوط به لایه خروجی هستند  
Table 7. Values of calculated weights between hidden and output layers, and values of biases for optimal network. Neurons 17 and 18 are for output layer

شماره نرون	خروجی ۱	خروجی ۲	بایاس
۱	-۳/۱۱۴۴	-۲/۹۰۲۵	۰/۰۸۳۷۲۸
۲	۰/۸۶۵۹	۱/۹۷۷۲	۱/۹۳۶۲
۳	-۲/۱۵۸۹	-۱/۵۴۸۷	-۷/۶۳۵۹
۴	۱/۶۰۴۴	-۰/۰۴۹۹۴۵	۳/۱۵۱۳
۵	-۳/۱۱۵۴	-۲/۹۰۱۸	۰/۹۹۴۲۷
۶	-۰/۳۶۷۹۳	-۲/۲۴۰۳	-۱/۰۲۸۴
۷	۵/۴۹۳۹	۴/۹۲۱۶	۰/۷۶۸۴۶
۸	۲/۸۰۷۵	۲/۶۷۲۲	-۰/۳۸۳۰۳
۹	۵/۸۰۶۱	۵/۷۶۸۲	-۰/۸۱۵۱۹
۱۰	۰/۷۳۹۶۱	۰/۶۷۰۶۱	۱/۰۹۸۵
۱۱	-۲/۱۶۲	-۱/۵۵۷۵	۸/۲۹۲۶
۱۲	-۰/۷۹۴۸	۰/۰۲۴۲۳۶	-۲/۵۳۲۶
۱۳	۰/۸۶۳۱۶	۱/۹۷۴۱	-۰/۴۹۴۶۱
۱۴	-۰/۲۴۹۹۳	۰/۰۳۴۹۶۳	۶/۵۹۷۶
۱۵	-۱/۰۸۵۸	-۰/۱۳۷۰۶	-۷/۳۸۱۸
۱۶	۰/۳۹۵۲۱	۰/۳۵۷۴۶	-۵/۲۶۵۶
۱۷	-	-	-۲/۱۱۵۶
۱۸	-	-	-۰/۱۷۵۳۴

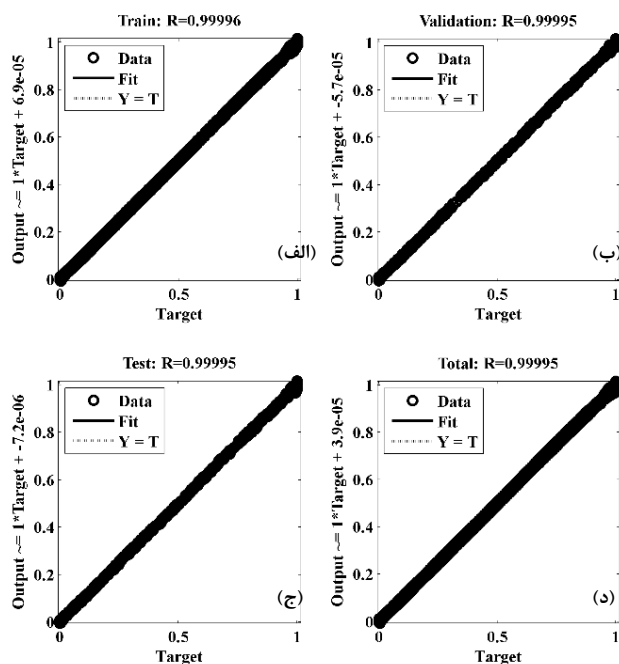
جدول ۶. مقادیر وزن‌های محاسبه شده بین لایه ورودی و لایه پنهان شبکه عصبی بهینه  
Table 6. Values of calculated weights between input and hidden layers of the optimal network

ورودی	دما	سرعت فضایی گاز	غلظت اکسید نیتروژن	نرون
۱	-۳/۱۷۷۹	-۲۱/۶۳۹۸	-۷/۳۴۱۳	۱
۲	۳/۳۳۲۷	۱۴/۲۹۵۵	۳/۴۰۰۱	۲
۳	-۳/۰۵۵۶	۱۴/۲۹۵۶	-۶/۷۳۸	۳
۴	-۴/۳۴۵۷	۰/۱۵۰۸۴	-۲/۳۲۰۶	۴
۵	۳/۱۰۶۹	۱۹/۷۶۰۲	۵/۶۶۵۷	۵
۶	۴/۹۰۹۳	-۰/۲۵۸۸۳	۰/۰۹۷۰۹۳	۶
۷	-۵/۳۸۲۱	۰/۵۰۰۱۶	۰/۲۲۵۲۴	۷
۸	۲/۶۹۶۸	-۰/۴۱۹۵۸	۰/۰۲۱۶۰۸	۸
۹	۵/۳۷۶۵	-۰/۳۵۵۶۸	-۰/۱۷۳۴۲	۹
۱۰	-۲/۸۷۹۸	۰/۴۶۶۸۶	۰/۰۵۹۱۵۵	۱۰
۱۱	۲/۹۹۴	-۱۷/۴۳۷۳	۹/۱۴۹۵	۱۱
۱۲	۶/۳۳۸۸	-۰/۰۳۳۹۸۹	-۰/۹۱۸۱۹	۱۲
۱۳	-۳/۱۱۰۸	-۱/۱۶۵۲	-۴/۳۸۱	۱۳
۱۴	۳/۳۲۳۴	۳/۰۱۷۵	-۲/۵۱۴۱	۱۴
۱۵	۵/۵۳۶۷	۲/۴۸۴۲	-۴/۴۷۵۴	۱۵
۱۶	۸/۵۸۵۵	-۱/۵۲۵۸	۴/۰۹۳۹	۱۶

بهینه به دست آمده در این کار را بازسازی کرده و مورد استفاده قرار داد.

همبستگی بسیار خوبی را با نتایج حاصل از مدل‌سازی ریاضی نشان می‌دهند. به دلیل تطابق بسیار خوب خروجی شبکه عصبی با خروجی

در شکل ۱۰ مقایسه نتایج مدل ریاضی حالت پایا با داده‌های پیش‌بینی شده توسط شبکه عصبی نشان داده است. نتایج حاصل

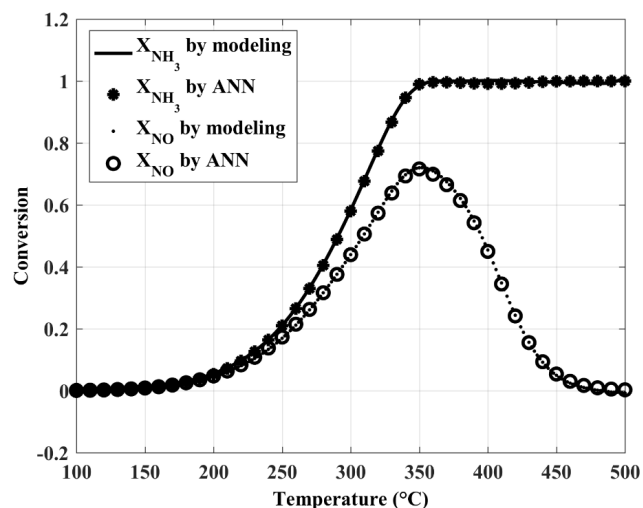


شکل ۱۰. مقایسه نتایج مدل‌سازی ریاضی با نتایج حاصل از شبکه عصبی، (الف) داده‌های آموزش، (ب) داده‌های معتبرسازی، (ج) داده‌های آزمون، (د) کل داده‌ها  
Fig. 10. Comparison of the results of mathematical modeling with results obtained by ANN, (a) training data, (b) validation data, (c) test data, (d) all data

شبیه‌سازی ریاضی هر یک از نقاط موجود بر روی شکل زیر در یک رایانه ۷ هسته‌ای، با پردازشگر ۲ گیگاهرتزی و ۶ گیگابایت حافظه، به طور متوسط ۶/۴ میلی‌ثانیه زمان لازم است، در حالی که متوسط زمان اجرا برای شبیه‌سازی شبکه عصبی ۰/۴ میلی‌ثانیه است. بنابراین شبیه‌سازی ریاضی ۱۶ برابر زمان بیشتری نسبت به شبکه عصبی برای اجرا نیاز دارد. این مقایسه، مزیت عمده استفاده از شبکه‌های عصبی به جای مدل ریاضی را برای شبیه‌سازی فرایندها نشان می‌دهد.

#### ۴- نتیجه‌گیری

با توجه به نتایج به دست آمده از مدل‌سازی ریاضی می‌توان به این نتیجه رسید که در حالت پایا، تبدیل ناکس با توجه به اثر دما و با توجه به رقابت واکنش مورد نظر و اکسیداسیون آمونیاک با اکسیژن، به طور معمول به یک بستر کاتالیستی در محدوده دمای ۳۰۰ تا ۳۵۰ درجه سانتی‌گراد نیاز دارد. بر اساس نتایج حاصل از مدل‌سازی ریاضی در حالت پایا، افزایش دما تا یک میزان باعث افزایش تبدیل اکسید نیتروژن و پس از آن باعث کاهش تبدیل اکسید نیتروژن می‌شود. افزایش همزمان غلظت اکسید نیتروژن و آمونیاک یا کاهش سرعت فضایی گاز سبب افزایش میزان تبدیل اکسید نیتروژن می‌شود. در حالت دینامیک پاسخ سیستم به تغییر پله‌ای در سرعت فضایی گاز به صورت نمایی و از مرتبه اول است که برای کنترل آن می‌توان از یک کنترل‌کننده تناسبی یا تناسبی-انتگرالی استفاده کرد. پاسخ سیستم به تغییر پله‌ای همزمان در غلظت اکسید نیتروژن و آمونیاک مشابه یک سیستم خود تنظیم‌شونده<sup>۱</sup> است که به دلیل ثابت بودن نسبت مولی اکسید نیتروژن/آمونیاک می‌باشد. با افزایش نسبت مولی اکسید نیتروژن/آمونیاک تبدیل اکسید نیتروژن در ابتدا کمی افزایش و سپس کاهش می‌یابد که به دلیل وجود مقادیر کمتر آمونیاک در طول راکتور در ابتدای تغییر پله‌ای و سپس افزایش آن است. در نهایت مدل‌سازی و شبیه‌سازی فرایند در حالت پایا به کمک شبکه عصبی پیش‌خور انجام گرفت و پس از آموزش ۹۶ شبکه عصبی با توپولوژی‌های مختلف و وزن‌های اولیه متفاوت، بهترین توپولوژی شبکه با کمترین خطا دارای ۱۶ نرون و تابع فعال‌سازی تانژانت هائپربولیک در لایه مخفی به دست آمد. نتایج نشان داد که قدرمطلق خطای ماکزیمم بین خروجی شبکه عصبی و نتایج مدل‌سازی ریاضی حدود ۰/۰۱



شکل ۱۱. مقایسه مقادیر درصد تبدیل اکسید نیتروژن و آمونیاک به دست آمده از مدل ریاضی با خروجی‌های شبکه عصبی بهینه به ازای ورودی‌های یکسان،

$$GHSV = 11000 \text{ h}^{-1}, y_{O_2} = 7.6\%, y_{NO} = y_{NH_3} = 250 \text{ ppm}$$

Fig. 11. Comparison of NO and NH<sub>3</sub> conversion obtained by mathematical model with optimal ANN for the same inputs, GHSV=11000 h<sup>-1</sup>, y<sub>NO</sub> = y<sub>NH<sub>3</sub></sub> = 250 ppm, y<sub>O<sub>2</sub></sub> = 7.6%

مدل ریاضی و همچنین تعداد زیاد داده‌ها، نتایج کاملاً باهم همپوشانی دارند. هر چه داده‌ها حول نیمساز نمودارها پراکندگی کمتری داشته باشند، بیانگر خطای کمتر است.

شکل ۱۱ نتایج حاصل از شبیه‌سازی فرایند به روش‌های مدل‌سازی ریاضی و استفاده از شبکه عصبی مصنوعی آموزش دیده را به ازای مقادیر یکسان ورودی شامل سرعت فضایی گاز برابر h<sup>-1</sup> ۱۱۰۰۰، غلظت اکسید نیتروژن و آمونیاک ورودی برابر ۴۰۰ ppm و غلظت اکسیژن ورودی برابر ۷/۶ درصد را در دماهای مختلف واکنش نشان می‌دهد. همان‌گونه که مشخص است، شبکه عصبی به خوبی توانسته خروجی حاصل از مدل ریاضی را پیش‌بینی کند و حداکثر خطای مطلق ۰/۰۱۱ می‌باشد. این در حالی است که مقادیر سرعت فضایی گاز و غلظت اکسید نیتروژن ورودی در این حالت جزو داده‌های استفاده شده برای آموزش شبکه نبودند و شبکه به خوبی توانسته نتایج مورد نظر را حاصل کند. بنابراین شبکه عصبی مصنوعی آموزش دیده می‌تواند در محدوده متغیرهای ورودی به جای مدل ریاضی استفاده شود.

مزیت استفاده از شبکه عصبی نسبت به مدل ریاضی سرعت بالاتر آن است، زیرا نیازی به حل معادلات دیفرانسیل ندارد. زمان مورد نیاز برای شبیه‌سازی با شبکه عصبی بسیار کمتر از زمان مورد نیاز برای شبیه‌سازی به کمک مدل ریاضی است. برای مثال برای

ریاضی بررسی و تأیید گردید. نتایج حاصل نشان‌دهنده پتانسیل بالای شبکه‌های عصبی در پیش‌بینی نتایج تئوری یا تجربی است و می‌توان از آن به جای مدل‌سازی ریاضی و حل معادلات دیفرانسیل استفاده کرد.

### فهرست علائم

علائم تکلیسی	
$\mu$	پارامتر در معادله سرعت $\mu$ $m^2/mel$
$\mu_0$	پارامتر ثابت $m^2/mel$
$C_p$	ظرفیت جزء گازی $mel/m^3$
$\rho_0$	خروجی مطلوب شماره $\rho$ برای سری $\rho$ نام داده برای آموزش شبکه عصبی
$E_a$	انرژی فعال‌سازی واکنش $kJ/mol$
$GHSP$	سرعت فضایی گاز $hr^{-1}$
$\rho_0$	ثابت سرعت واکنش $s^{-1}$
$\rho_0$	پارامتر ثابت در معادله $\rho_0$ $s^{-1}$
$NO$	تعداد خروجی‌ها از شبکه عصبی
$F$	تعداد کل سری دلفم‌های موجود برای آموزش
$Q$	دبی جرمی گاز خروجی در شرایط عمل $70^\circ C$ و قطر $1 mm$ $m^3/h$
$R$	ثابت جهانی گاز $8.314 J/mol.K$
$\rho$	سرعت واکنش $m^3/mel$
$T$	دما برابنده $K$
$u_{eff}$	سرعت مؤثر گاز خروجی $m/s$
$V$	حجم واکنش $m^3$
$X_p$	میزان تبدیل جزء $\rho$
$\rho_0$	کسر مولی جزء $\rho$ در نظر گاز
$\rho_0$	خروجی شبکه عصبی شماره $\rho$ برای سری $\rho$ نام داده
$x$	پارامتر مشخصه طول واکنش $m$
$z$	زمان $s$
علائم یونانی	
$\gamma_p$	ضریب استوکیومتری جزء $\rho$ در واکنش $\rho$
آبجکتیوس	
$i$	جزء نام
$j$	واکنش نام
$\sigma$	شماره خروجی
$\rho$	شماره سری داده یا گاز

### مراجع

[1] G. Schaub, D. Unruh, J. Wang, T. Turek, Kinetic analysis of selective catalytic NOx reduction (SCR) in a catalytic filter, Chemical Engineering and Processing: Process Intensification, 42(5) (2003) 365-371.

[2] B. Guan, R. Zhan, H. Lin, Z. Huang, Review of state of the art technologies of selective catalytic reduction of NOx from diesel engine

exhaust, Applied Thermal Engineering, 66(1) (2014) 395-414.

[3] G. Saracco, V. Specchia, Simultaneous removal of nitrogen oxides and fly-ash from coal-based power-plant flue gases, Applied Thermal Engineering, 18(11) (1998) 1025-1035.

[4] S.R. Ness, G.E. Dunham, G.F. Weber, D.K. Ludlow, SCR catalyst-coated fabric filters for simultaneous NOx and high-temperature particulate control, Environmental Progress, 14(1) (1995) 69-74.

[5] G. Saracco, V. Specchia, Catalytic filters for the abatement of volatile organic compounds, Chemical Engineering Science, 55(5) (2000) 897-908.

[6] C. Winkler, P. Flörchinger, M.D. Patil, J. Gieshoff, P. Spurk, M. Pfeifer, Modeling of SCR DeNOx Catalyst - Looking at the Impact of Substrate Attributes, SAE Transactions, 112 (2003) 691-699.

[7] E. Tronconi, Interaction between chemical kinetics and transport phenomena in monolithic catalysts, Catalysis Today, 34(3) (1997) 421-427.

[8] Z. Lei, X. Liu, M. Jia, Modeling of selective catalytic reduction (SCR) for NO removal using monolithic honeycomb catalyst, Energy & Fuels, 23(12) (2009) 6146-6151.

[9] H. Xua, F. Tub, Z. Hec, J. Mad, Q. Wange, Modelling of the selective catalytic NOx reduction for diesel engine, Applied Mechanics and Materials, 71-78(2098-2102) (2011) 2098.

[10] L. Sharifian, Y.M. Wright, K. Boulouchos, M. Elsener, O. Kröcher, Calibration of a model for selective catalytic reduction with ammonia, including NO oxidation, and simulation of NOx reduction over an Fe-zeolite catalyst under highly transient conditions, International Journal of Engine Research, 14(2) (2012) 107-121.

[11] B.K. Yun, M.Y. Kim, Modeling the selective

- Nascimento, Application of artificial neural network for modeling of phenol mineralization by photo-Fenton process using a multi-lamp reactor, *Water Science & Technology*, 69(4) (2014) 768-774.
- [21] F. Calivá, F.S. De Ribeiro, A. Mylonakis, C. Demazi'ere, P. Vinai, G. Leontidis, S. Kollias, A Deep Learning Approach to Anomaly Detection in Nuclear Reactors, in: 2018 International Joint Conference on Neural Networks (IJCNN), IEEE, Rio de Janeiro, Brazil, 2018.
- [22] M.-S. Izadkhah, A. Farzi, Mathematical and artificial neural network modeling of production of ethylene from ethane pyrolysis in a tubular reactor, *Petroleum Science and Technology*, 36(11) (2018) 732-738.
- [23] C.W. Baxter, S.J. Stanley, Q. Zhang, D.W. Smith, Developing artificial neural network models of water treatment processes: a guide for utilities, *Journal of Environmental Engineering and Science*, 1 (2002) 201-211.
- [24] S.S. Madaeni, G. Zahedi, M. Aminnejad, Artificial neural network modeling of O<sub>2</sub> separation from air in a hollow fiber membrane module, *Asia-Pacific Journal of Chemical Engineering*, 3(4) (2008) 357-363.
- [25] K.C. Lai, S.K. Lim, P.C. Teh, K.H. Yeap, Modeling Electrostatic Separation Process Using Artificial Neural Network (ANN), *Procedia Computer Science*, 91 (2016) 372-381.
- [26] J. Mohammadhassani, S. Khalilarya, M. Solimanpur, A. Dadvand, Prediction of NO<sub>x</sub> emissions from a direct injection diesel engine using artificial neural network, *Modelling and Simulation in Engineering*, 2012 (2012) 1-8.
- [27] M. Fischer, Transient NO<sub>x</sub> estimation using artificial neural networks, *IFAC Proceedings Volumes*, 46(21) (2013) 101-106.
- [28] J.D. Martínez-Morales, E.R. Palacios-catalytic reduction of NO<sub>x</sub> by ammonia over a Vanadia-based catalyst from heavy duty diesel exhaust gases, *Applied Thermal Engineering*, 50(1) (2013) 152-158.
- [12] M. Aghbashlo, S. Hosseinpour, A.S. Mujumdar, Application of artificial neural networks (ANNs) in drying technology: A comprehensive review, *Drying Technology*, 33(12) (2015) 1397-1462.
- [13] M. Mohanraj, S. Jayaraj, C. Muraleedharan, Applications of artificial neural networks for thermal analysis of heat exchangers – A review, *International Journal of Thermal Sciences*, 90 (2015) 150-172.
- [14] H. Li, Z. Zhang, Z. Liu, Application of artificial neural networks for catalysis: A review, *Catalysis*, 7(10) (2017) 306-324.
- [15] W.G. Baxt, Application of artificial neural networks to clinical medicine, *Lancet*, 346 (1995) 1135-1138.
- [16] G. Jinescu, V. Iavric, The artificial neural networks and the drying process modeling, *Drying Technology*, 13(5-7) (1995) 1579-1586.
- [17] E. Assidjo, B. Yao, K. Kisselmina, D. Amané, Modeling of an industrial drying process by artificial neural networks, *Brazilian Journal of Chemical Engineering*, 25 (2008) 515-522.
- [18] C. Oliveira, P. Georgieva, F. Rocha, S. Feyo de Azevedo, Artificial neural networks for modeling in reaction process systems, *Neural Computing and Applications*, 18(1) (2009) 15-24.
- [19] S. Nandi, P. Mukherjee, S.S. Tambe, R. Kumar, B.D. Kulkarni, Reaction Modeling and Optimization Using Neural Networks and Genetic Algorithms: Case Study Involving TS-1-Catalyzed Hydroxylation of Benzene, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 41(9) (2002) 2159-2169.
- [20] A.L.N. Mota, O. Chiavone-Filho, S.S. da SilvaSyllos, E.L. Foletto, J.E.F. Moraes, C.A.O.

- [32] M. Aliramezani, C.R. Koch, R.E. Hayes, Estimating tailpipe NOx concentration using a dynamic NOx/ammonia cross sensitivity model coupled to a three state control oriented SCR model, *IFAC-PapersOnLine*, 49(11) (2016) 8-13.
- [33] B. Krose, P. van der Smagt, *An introduction to neural networks*, 8 ed., The University of Amsterdam, Amsterdam, Netherlands, 1996.
- [34] S.A. Hejazi, K.R. Jackson, Efficient valuation of SCR via a neural network approach, *Journal of Computational and Applied Mathematics*, 313 (2017) 427-439.
- [35] K. Hubner, A. Pape, E.A. Weber, Simultaneous removal of gaseous and particulate components from gases by catalytically activated ceramic filters, in: *High Temperature Gas Cleaning*, 1996, pp. 267-277.
- Hernández, G.A. Velázquez-Carrillo, Modeling engine fuel consumption and NOx with RBF neural network and MOPSO algorithm, *International Journal of Automotive Technology*, 16(6) (2015) 1041-1049.
- [29] E. Majd Faghihi, A.H. Shamekhi, Development of a neural network model for selective catalytic reduction (SCR) catalytic converter and ammonia dosing optimization using multi objective genetic algorithm, *Chemical Engineering Journal*, 165 (2010) 508-516.
- [30] R. Serra, M.J. Vecchiotti, E. Miró, A. Boix, In, Fe-zeolites: Active and stable catalysts for the SCR of NOx—Kinetics, characterization and deactivation studies, *Catalysis Today*, 133-135 (2008) 480-486.
- [31] W.E. Schiesser, *The numerical method of lines*, Academic Press, San Diego, CA, 1991.