

神经网络在共混物改性中的应用

幸松林[#], 肖力强[#], 官 蕾^{*}

(大连大学 环境与化学工程学院, 大连 116622)

摘要:采用神经网络研究了 PP/POE 共混物的冲击性能,通过温度、配比与冲击强度的正交试验设计得出的数据来验证神经网络的效果。将 10℃、20℃ 和 30℃ 的实验数据用于学习训练,将 0℃ 的实验数据用于预测。同时通过调节不同的参数得出三种不同结构神经网络模型分别进行预测。通过测试表明,神经网络对于共混改性的预测具有较好的效果。将神经网络方法用于聚合物共混改性的数据分析,能明显减少实验次数,提高实验效率,快速完成共混材料的产品配方设计,并得出了该网络类型下的模型参数调控的大致方向,表明对于小样本数据,较少的隐藏层与神经单元数量能取得更好的预测效果。

关键词:POE; PP; 共混改性; 神经网络

共混改性是目前聚合物材料领域的重要材料设计方法,共混改性能综合各材料之间的性能。但是,共混改性后的材料性能的预测目前仍然是较为困难的。缘于材料之间的分散状况、结晶形态和界面作用,材料性能的非线性变化通常会需要大量的试验来验证。这种试验工作量是巨大而枯燥的,且其不可控因素较多,如果共混的材料涉及到三种或以上,且其研究的性能涉及两种或以上时,会产生试验次数爆炸的问题。这给聚合物的共混改性研究带来诸多困难^[1]。

传统做法是通过对试验数据的二维或三维可视化分析,来得出共混物变量因子与性能之间的大致规律,这种规律是定性而非定量的,且这种变化的非线性往往导致预测并不准确。我们针对近年来数据分析领域的快速发展,提出了采用神经网络来对聚合物共混物材料配方与性能进行定量预测。

神经网络无需事先确定输入输出之间映射关系的数学方程,仅通过自身的训练,学习某种规则,在给定输入值时,得到最接近期望输出值的结果^[1,2]。神经网络是一种按误差反向传播(简称误差反传)训练的多层前馈网络,它的基本思想是梯度下降法,利用梯度搜索技术,以期使网络的实际输出值和期望输出值的误差均方差为最小^[3,4]。

神经网络的计算过程由正向计算过程和反向计算过程组成。正向传播过程,输入模式从输入层经隐单元层逐层处理,并转向输出层,每一层神经元的状态只影响下一层神经元的状态。如果在输出层不能得到期望的输出,则转入反向传播,将误差信号沿原来的连接通路返回,通过修改各神经元的权值,使得误差信号最小。

本文采用神经网络技术分析 PP/POE 共混物配比、温度与冲击强度之间的定量关系。

1 实验部分

1.1 原料

聚丙烯(PP):燕山石化生产,牌号为 T30S;聚烯烃弹性体(POE):燕山石化生产,牌号为 LD100。

1.2 复合材料制备

将未共混的纯 PP 粒料和含不同质量分数的 PP 共混物准备好,共 6 组样品,PP 共混物中 POE 的含

10.14028/j.cnki.1003-3726.2020.04.007

收稿:2019-07-09;修回:2020-01-01;

基金项目:大连市科技之星基金(2017RQ039);

[#] 共同第一作者:由于幸松林与肖力强两位作者对本文修改所作出的共同努力,都设为第一作者;

^{*} 通讯联系人:官蕾(1985-),女,讲师,博士,研究方向为聚合物复合材料高性能化、功能化、环境友好化。E-mail:leigong0429@163.com

量分别为 5%、10%、15%、20%和 30%。将 6 组物料充分混合,经双螺杆挤出机熔融共混挤出,挤出试样用水冷却后,用切粒机造粒。分别将 6 组所得粒料置于烘箱中,在 80℃恒温条件下干燥 2h 后,通过注射成型得到标准冲击样条。

1.3 性能测试与表征

PP/POE 共混物的冲击性能的表征是在室温条件下按 GB/T 1843-1996 标准所要求,采用 XC-22D 系列电子式悬臂梁冲击试验机进行冲击性能测试。

2 结果与讨论

2.1 POE 含量对 PP/POE 冲击性能的影响

从图 1 中可以看出,PP/POE 的冲击强度曲线图的变化情况。当温度的值在不变的情况下,PP/POE 的冲击强度仍然是在 10%附近发生了转变。这种曲线变化趋势仍然是在 10%前后出现了方向上的反转,即是在 10%前是小幅较低,之后是快速增加;在含量大于 15%之后,则是发生了增长。

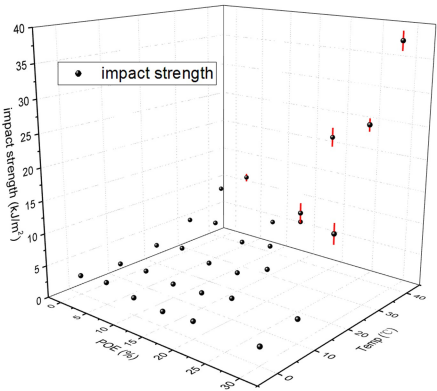


图 1 不同配比 PP/POE 共混物在不同温度下冲击强度

Figure 1 The impact strength of the PP/POE blends with varying composition under different temperature

在不同的温度下,PP/POE 冲击强度的变化幅度呈现不同的速率,且变化的速率随着温度的增高而加快。这种变化越加明显,但是 PP/POE 的值在 5%附近出现了一个高点。这样一种变化可能原因是 POE 的加入对 PP 的晶区未有太大的影响,只是影响了其非晶区的比例或者增加了非晶区的活动能力,使整个材料表现出一定的冲击韧性增加,但是这种影响并不太大,从而只是导致冲击强度的小幅增加。

这种变化趋势,其原因是随着 POE 的加入,单位体积内的增韧粒子数增加导致分散相粒子间距减小到达临界值,PP/POE 共混物由脆性转变为韧性。随着 POE 的逐渐加入,温度的升高,脆韧转变点也不断提升,表现出低温脆性和高温较好的耐冲击性。而当温度上升时,PP/POE 的耐冲击性变得更好。

2.2 神经网络对 PP/POE 冲击性能的预测

本实验是在 Python3.6 环境下,采用 keras 深度学习框架下的 sequential 顺序模型对 PP/POE 共混物的冲击强度进行预测的。搭建了三个网络层,分别为输入层、隐藏层和输出层,如图 2 所示。

第 h 个隐藏神经元的输入如下式,式中 ν_i 为该隐藏神经元的权重, x_i 为其输入层对它的输入:

$$\alpha^{(h)} = \sum_{i=1}^d \nu_i^{(h)} x_i^{(h)} \tag{1}$$

第 j 个输出神经元的输入如下式,式中 ω_i 为该输出神经元的权重, b_i 为其输入层对它的输入:

$$\beta^{(j)} = \sum_{i=1}^l \omega_i^{(j)} b_i^{(j)} \tag{2}$$

第 j 个输出神经元的输出如下式, f 为激活函数, γ 为偏置项。

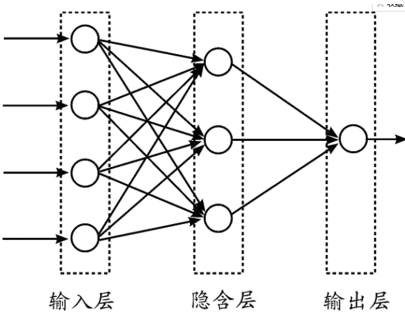


图 2 神经网络构造示意图

Figure 2 Schematic diagram of neural network construction

$$\hat{y}^{(j)} = f(\beta^{(j)} + \gamma) \tag{3}$$

本实验中的激活函数选择了线性整流函数(Rectified Linear Unit, ReLU),ReLU 激活函数具有更高效率的梯度下降以及反向传播,同时避免了梯度爆炸和梯度消失问题,还能简化计算过程,没有其他复杂激活函数中诸如指数函数的影响,并且活跃度的分散性使得神经网络整体计算成本下降。其公式如下:

$$f(x) = \max(0, x) \tag{4}$$

优化器选择了 RMSProp 算法,该算法优化了损失函数在更新中存在摆动幅度过大的问题,RMSProp 算法对权重 W 和偏置 b 的梯度使用了微分平方加权平均数。公式如下:

$$\begin{aligned} s_{dw} &= \beta s_{dw} + (1 - \beta) dW^2 \\ s_{db} &= \beta s_{db} + (1 - \beta) db^2 \\ W &= W - \alpha \frac{dW}{\sqrt{s_{dw}} + \epsilon} \\ b &= b - \alpha \frac{db}{\sqrt{s_{db}} + \epsilon} \end{aligned} \tag{5}$$

本实验配比、温度与冲击强度数据如表 1 所示。

表 1 配比、温度与冲击强度数据

Table 1 Composition, temperature and impact strength data

序号	POE 含量	温度	冲击强度	序号	POE 含量	温度	冲击强度
1	0.00	0	2.95	16	0.15	20	2.98
2	0.05	0	3.44	17	0.20	20	5.06
3	0.10	0	2.72	18	0.30	20	13.31
4	0.15	0	2.35	19	0.00	30	5.34
5	0.20	0	2.67	20	0.05	30	6.13
6	0.30	0	2.76	21	0.10	30	4.19
7	0.00	10	2.36	22	0.15	30	4.9
8	0.05	10	2.7	23	0.20	30	11.66
9	0.10	10	2.17	24	0.30	30	27.06
10	0.15	10	2.41	25	0.00	40	8.95
11	0.20	10	3.23	26	0.05	40	12.11
12	0.30	10	3.61	27	0.10	40	5.44
13	0.00	20	3.11	28	0.15	40	6.79
14	0.05	20	4.05	29	0.20	40	21.89
15	0.10	20	3.03	30	0.30	40	37.84

本实验以配比即 POE 含量和温度作为分析因素,以冲击强度作为分析结果。采用第 7 至 30 行的数据作为训练数据,采用第 1 至 6 行的数据作为预测数据,通过对神经网络的训练批次和训练次数进行多次调整后,预测结果与实际数据对比如表 2。

表 2 神经网络预测结果与实际数据对比
Table 2 Comparison between neural network prediction results and actual data

序号	实际冲击强度	预测冲击强度	相对误差
1	2.95	2.86	0.03%
2	3.44	3.72	0.08%
3	2.72	2.47	0.09%
4	2.35	2.45	0.04%
5	2.67	2.87	0.07%
6	2.76	2.66	0.04%

表 2 数据表明神经网络预测取得较好的效果,相对误差的平均值为 0.06%。

为分析神经网络结构对预测结果准确性的影响,本文给出了三种不同构造的深度学习神经网络结构,将其命名为 SN1、SN2、SN3。这三种网络结构的构造内容如表 3 所示,其中 SN1 与 SN3 为四层网络结构,含有两个隐藏层,而 SN2 为三层网络,含有单个隐藏层。SN1 与 SN2 训练次数为 1000 次,SN3 训练次数为 500 次。本网络选择的损失函数为均方误差(MSE),即参数估计值与参数真值之差的平方的期望值。评价指标为 MAE 平均绝对误差,即绝对误差的平均值。

表 3 三种神经网络构造类型
Table 3 Three types of neural network construction

类型	输入层数量	隐藏层 1	隐藏层 2	输出层数量	训练次数	损失值	均值误差
SN1	128	256	512	1	1000	0.7923	0.4776
SN2	64	128		1	1000	0.0590	0.1768
SN3	64	128	128	1	500	0.1401	0.2610

表 4 给出了三种网络预测值及预测值与期望值的残差与残差比率。表 5 给出了三种网络预测结果的描述性统计参数。可以看出,SN2 的残差均值为 0,是三种网络构造中最小的。标准差是描述数据与均值偏离程度的参数,可以看出 SN2 网络的标准差也为最小。

表 4 三种神经网络的预测结果分析
Table 4 Analysis of prediction results of three kinds of neural networks

期望值	SN1 预测值	残差 1	残差比率	SN2 预测值	残差 2	残差比率	SN3 预测值	残差 3	残差比率
2.95	2.98	0.03	1.02%	3.01	0.06	2.03%	2.84	-0.11	-3.73%
3.44	3.12	-0.32	-9.30%	3.51	0.07	2.03%	3.37	-0.07	-2.03%
2.72	2.45	-0.27	-9.93%	2.64	-0.08	-2.94%	2.97	0.25	9.19%
2.35	2.41	0.06	2.55%	2.25	-0.1	-4.26%	2.54	0.19	8.09%
2.67	2.87	0.2	7.49%	2.71	0.04	1.50%	2.84	0.17	6.37%

图 2 描述了期望值与预测值的直观对比,从图中可以看出 SN2 的结果与期望值更接近,符合性更好,其残差相对来说也更小。如图 3 所示,SN2 的残差最小值与最大值分别为-0.04 和 0.02。

表 5 三种网络预测结果残差描述性统计表

Table 5 Descriptive statistical table of residual of three network prediction results

项目	SN1 结果	SN2 结果	SN3 结果
残差均值	−0.02	0.00	0.04
残差最小值	−0.10	−0.04	−0.04
残差最大值	0.07	0.02	0.09
绝对平均值	0.06	0.03	0.05
标准差	0.08	0.03	0.06

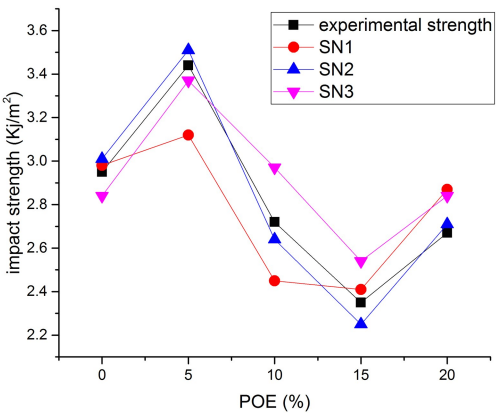


图 2 三种网络预测曲线图

Figure 2 Curve of three network prediction results

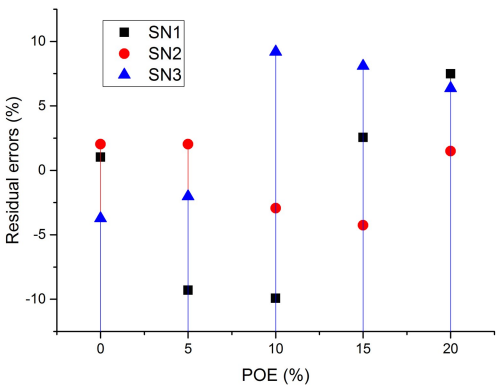


图 3 三种网络的残差散点图

Figure 3 Vertical drop line of three network residual errors

3 结论

本实验采用神经网络模型对 PP/POE 共混物多组配比、温度下的冲击强度数据进行学习训练,较为准确的预测出了 0℃下共混物的冲击强度,进一步研究了层次、隐藏层神经元数量以及训练次数等因素对预测结果的影响。建立了三种不同神经网络模型进行预测,并对其预测过程与结果进行对比分析。结果表明,三种神经网络模型中 SN2 模型的结果与期望值更接近,符合性更好,其残差相对来说也更小。过少或过多的神经元数量或训练次数均可能导致较低的预测精度。本研究在合理的参数调整下,取得了

较理想的预测结果,对类似的研究及材料的快速设计提供了一定的理论依据。

致谢 感谢大连市科技之星基金项目(2017RQ039)的支持。

参考文献:

- [1] 陈楠,耿立艳,支景鹏. 塑料工业,2018,12:46~56.
- [2] 刘银超. 基于 BP 神经网络和随机森林的 air 污染物浓度预测研究. 秦皇岛: 燕山大学,2017.
- [3] Lee JA, Almond DP, Harris B: Compos: Part A, 1999, 30: 1159~1169.
- [4] Diaconescu, Rodica-Mariana, Barbuta, et al. Mater Sci Eng: B, 2013,178(12): 1259~1267.

Application of Neural Network in Copolymer Modification

XING Song-lin[#], XIAO Li-qiang[#], GONG Lei^{*}

(College of Environment and Chemical Engineering, Dalian University, Dalian 116622, China)

Abstract: The properties of PP/POE blends were studied by neural network. The effect of neural network was verified by the data of orthogonal test design of temperature, proportion and impact strength. The experimental data of 10℃, 20℃ and 30℃ are used for learning and training, and the experimental data of 0℃ are used for testing. At the same time, three kinds of neural network models with different structures are obtained by adjusting different parameters. The results show that neural network has a good effect on the prediction of blending modification. Using neural network method to analyze the data of polymer blending modification can reduce the times of experiments, improve the efficiency of experiments, and quickly complete the product formulation design of blends. The general direction of model parameter adjustment under the network type is obtained, which shows that under the condition of less sample data, less number of hidden layers and neural units can achieve better prediction effect.

Key words: POE; PP; Blend modification; Neural network