

• 研究论文 •

基于回归分析模型与随机过程模型的 硅橡胶泡沫应力松弛预测对比

韦承莎, 王丽君, 王维欣, 宫正*

(中国工程物理研究院化工材料研究所, 绵阳 621999)

摘要: 本文针对硅橡胶泡沫的应力松弛实验数据, 基于二阶 Prony 级数, 采用非线性回归分析方法(曲线拟合法)、基于 Wiener 过程的贝叶斯方法、基于 Gamma 过程的贝叶斯方法进行参数估计从而分别建立预测模型, 通过对比三种建模方法的预测值与实验值的偏差, 比较了三种建模方法的效果。结果发现, 采用曲线拟合的方法进行参数估计, 其预测偏差要大于基于 Wiener、Gamma 随机过程的贝叶斯方法, 表明由于考虑了性能退化过程存在的不可避免的随机性, 随机过程模型可以更好地预测硅橡胶泡沫的应力松弛趋势, 同时由于应力松弛过程是单调增加的, 基于非负的 Gamma 过程的随机过程模型的预测偏差要小于基于 Wiener 过程的模型。本文工作可为基于高分子材料性能退化数据的退化预测模型的建模提供一种较好的参数估计方法, 有助于提高预测结果的准确性。

关键词: 硅橡胶泡沫; 应力松弛; 回归分析模型; 随机过程模型

Comparison of Stress Relaxation Prediction of Silicone Rubber Foam Based on Regression Analysis Model and Stochastic Process Models

WEI Cheng-sha, WANG Li-jun, WANG Wei-xin, GONG Zheng*

(Institute of Chemical Materials, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621999, China)

Abstract: In this study, we tried to deal with the experimental data of stress relaxation of silicone rubber foam. Based on the second-order Prony series, the nonliner regression analysis method (curve fitting method), the Bayesian method based on the Wiener process and the Bayesian method based on the Gamma process were used to estimate the parameters, and the prediction models are established respectively. By comparing the deviation between the predicted values and experimental values of the three modeling methods, the effects of the three modeling methods are compared. The results showed that the prediction deviation of the model based on the regression analysis was larger than the ones established by the Bayesian method based on the Wiener and Gamma processes, which may indicate that the stochastic process models could better predict the stress relaxation tendency of silicone rubber. The non-negative Gamma process, suitable for the nature of monotone increasing of a stress relaxation process, may contribute to its less deviation than the Wiener process. Our work provided a better way for the parameters estimation of degradation model based on the performance degradation data of polymer materials, contributing to better prediction.

Keywords: Silicone rubber foam; Stress relaxation; Regression analysis model; Stochastic process model

收稿: 2022-04-06; 修回: 2022-05-26

基金项目: 国家自然科学基金青年基金项目(22005282), 国家自然科学基金联合基金重点项目(U2030203)

作者简介: 韦承莎(1987-), 男, 助理研究员, 主要从事含能材料和高分子材料老化研究。E-mail: weichengsha@caep.cn

* 通讯联系人: 宫正(1990-), 男, 助理研究员, 主要从事含能材料和高分子材料老化研究。E-mail: gzheng55@caep.cn

doi:10.14028/j.cnki.1003-3726.2023.01.010

硅橡胶泡沫材料是一种低密度多孔粘弹性高分子材料,由于兼具硅橡胶的优良性能以及泡沫材料的可压缩特性,广泛应用于精密部件的吸能、元器件间相对位置的保持以及温度变化引起的材料热膨胀差异的补偿等领域^[1]。硅橡胶泡沫的应力松弛对其功能(如维持元器件间的相对位置等)的保持影响很大,国内外科研工作者对硅橡胶泡沫的应力松弛行为等进行了广泛的研究^[1~3]。

通过实验认识材料的性能退化规律,由此建立预测模型,进而预测材料的性能变化,一直是研究材料性能的常用有效方法。基于性能退化的预测模型大致可以分为两类:一类是基于退化轨迹的回归模型,其将性能退化量看成是一个与时间相关的函数,进而对产品的性能退化过程进行建模;另一类是基于随机过程的退化模型,可以用来描述产品的性能退化^[4]。

Prony 级数是较为常用的高分子材料应力松弛模型,基于 Prony 级数,较为常用的方法是通过曲线拟合法(即回归分析的方法)获得参数的估计值,从而建立预测模型,预测后期的性能变化^[5,6],但是受很多外界可知、未知因素的影响,性能退化存在不可避免的随机性,因此,很多学者逐渐倾向于用随机过程模型去描述性能的退化。产品性能的退化可以理解成是由每次微小创伤逐渐累积形成的,因而随机过程中常用的两种具有可加性的 Wiener 过程与 Gamma 过程一直以来是学者研究的重点^[7,8]。通过贝叶斯方法对 Wiener、Gamma 随机过程进行参数估计是可靠性领域较为常用的方法^[9],贝叶斯方法的基本思想是基于经验和历史资料等获得未知参数的先验信息,然后通过样本信息对先验信息进行修正,获得后验信息,再根据后验信息去推断未知参数。

本文基于二阶 Prony 级数,分别采用非线性回归分析法、基于 Wiener 过程的贝叶斯方法、基于 Gamma 过程的贝叶斯方法进行参数估计,并通过三种方法的预测值与实验值的比较,评估了三种建模方法的效果。结果发现,采用直接拟合的方法进行参数估计,其偏差要大于基于 Wiener 过程、Gamma 过程的贝叶斯方法,由于应力松弛过程是单调递增的,采用基于非负的 Gamma 过程的贝叶斯方法进行参数估计,其预测误差要小于可正可负的 Wiener 过程。

1 原理与模型

1.1 Prony 级数

高分子材料的应力松弛过程可用 Prony 级数^[5,6]表示

$$\sigma(t) = \sigma_{\infty} + \sum_{n=1}^N a_n e^{-\frac{t}{\tau_n}} \quad (\sigma_{\infty}, a_n, \tau_n > 0) \quad (1)$$

式中, $\sigma(t)$ 是 t 时刻的应力值, σ_{∞} 是松弛极限应力值, a_n 是第 n 个松弛单元的表观松弛强度, τ_n 是第 n 个松弛单元的弛豫时间。 t 时刻的应力松弛率 $R(t)$ 可表示为

$$R(t) = \frac{\sigma(0) - \sigma(t)}{\sigma(0)} = \frac{\sigma(0) - \sigma_{\infty}}{\sigma(0)} + \sum_{n=1}^N \frac{-a_n}{\sigma(0)} e^{-\frac{t}{\tau_n}} \quad (2)$$

其中, $\sigma(0)$ 是初始应力值。

令

$$\frac{\sigma(0) - \sigma_{\infty}}{\sigma(0)} = b_0, \quad \frac{-a_n}{\sigma(0)} = b_{n1}, \quad -\tau_n = b_{n2} \quad (3)$$

则有

$$R(t) = b_0 + \sum_{n=1}^N b_{n1} e^{\frac{t}{b_{n2}}} \quad (b_0 > 0, b_{n1}, b_{n2} < 0) \quad (4)$$

式中, b_0 是极限应力松弛率。

1.2 性能预测模型

1.2.1 回归分析模型

回归分析法,是指利用数据统计原理,对大量统计数据进行数学处理,并确定因变量与某些自变量的相关关系,建立一个相关性较好的回归方程(函数表达式),并加以外推,用于预测今后的因变量的变化的分析方法。基于最小二乘法的一元回归分析也就是通常所说的一元曲线拟合方法,曲线拟合方法是十分常用的用于获得自变量与因变量间数学表达式的方法,广泛地用于研究变量之间的密切程度、结构状态以及模型预测^[10]。

1.2.2 基于贝叶斯方法的随机过程模型

基于随机过程的模型是性能数据建模分析中的主流模型,其中研究和应用较多的模型是基于 Wiener 过程的模型和基于 Gamma 过程的模型^[11]。

(1) Wiener 过程退化模型

令 $\{Y(t), t \geq 0\}$ 为某一性能指标的退化过程,当其服从 Wiener 过程时可描述为:

$$Y(t) = \Lambda(t) + \sigma B(\Lambda(t)) \quad (5)$$

式中, $\Lambda(t)$ 为描述性能演变轨迹非线性特性的单调递增函数或称为时间尺度变换函数(Time Scale

Function), σ 为描述性能演变过程时间波动性的参数 (Volatility Parameter), $B(\cdot)$ 为标准的布朗运动过程。式(5)所示的性能退化过程 $Y(t)$ 具有以下性质:

1) $Y(0)=0$ 且 $Y(t)$ 具有独立增量 $\Delta Y(t) = Y(t+\Delta t) - Y(t)$, 即增量 $Y(t_2) - Y(t_1)$ 和增量 $Y(t_4) - Y(t_3)$ 在满足 $\forall t_4 > t_3 \geq t_2 > t_1$ 的时间区间上相互独立。

2) 增量 $\Delta Y(t)$ 服从正态分布, 即有 $\Delta Y(t) \sim N(\Delta\Lambda(t), \sigma^2 \Delta\Lambda(t))$, 其中 $\Delta\Lambda(t) = \Lambda(t+\Delta t) - \Lambda(t)$ 。

(2) Gamma 过程退化模型

当某一性能演变过程 $\{Y(t), t \geq 0\}$ 服从形状函数为 $\mu\Lambda(t)$ 、速率参数为 μ 的 Gamma 过程时, 其具有以下性质:

1) $Y(0)=0$ 且 $Y(t)$ 具有独立增量 $\Delta Y(t) = Y(t+\Delta t) - Y(t)$ 。

2) 增量 $\Delta Y(t)$ 服从 Gamma 分布, 即有 $\Delta Y(t) \sim \text{Gamma}(\mu\Delta\Lambda(t), \mu)$, 其中 $\Lambda(t)$ 为 $A(0)=0$ 的单调增函数且 $\Delta\Lambda(t) = \Lambda(t+\Delta t) - \Lambda(t)$ 。

(3) 贝叶斯方法

对于样本量为 n 的性能退化数据集 Y , 令 t_{ij} , $i=1, \dots, n, j=1, \dots, m_i$, 为第 i 个样本的第 j 个观测时间点, $y_{ij} = Y(t_{ij}) - Y(t_{ij-1})$ 为对应的退化增量。根据 Wiener 过程、Gamma 过程的定义可知, $y_{ij} \sim N(\Delta\Lambda(t_{ij}), \sigma^2 \Delta\Lambda(t_{ij}))$ 或 $y_{ij} \sim \text{Gamma}(\mu\Delta\Lambda(t_{ij}), \mu)$, 其中 $\mu, \sigma > 0, \Delta\Lambda(t_{ij}) = \Lambda(t_{ij}) - \Lambda(t_{ij-1})$ 。在本文中, 取二级 Prony 级数为性能演变轨迹函数 $\Lambda(t)$, 则有

$$\Delta\Lambda(t_{ij}) = \sum_{n=1}^2 b_{in1} (e^{\frac{t_{ij}}{b_{in2}}} - e^{\frac{t_{ij-1}}{b_{in2}}}) \quad (6)$$

采用均匀分布作为模型参数的先验分布:

$\sigma \sim \text{Uniform}(a_\sigma, b_\sigma)$ 或 $\mu \sim \text{Uniform}(a_\mu, b_\mu)$, $b_{11} \sim \text{Uniform}(a_{11}, b_{11}), b_{12} \sim \text{Uniform}(a_{12}, b_{12}), b_{21} \sim \text{Uniform}(a_{21}, b_{21}), b_{22} \sim \text{Uniform}(a_{22}, b_{22})$ 联合后验分布为:

$$p(\sigma, b_{11}, b_{12}, b_{21}, b_{22} | Y) = \pi(\sigma)\pi(b_{11})\pi(b_{12})\pi(b_{21})\pi(b_{22}) \cdot L(Y | \sigma, b_{11}, b_{12}, b_{21}, b_{22}) \quad (7)$$

其中, $L(Y | \sigma, b_{11}, b_{12}, b_{21}, b_{22})$ 为似然函数。采用马尔科夫蒙特卡洛方法 (Markov Chain Monte Carlo, MCMC) 对联合后验分布进行抽样, 获得模型参数的后验分布, 具体 MCMC 的实施可以通过

OpenBUGS 实现。

2 算例

2.1 性能退化数据

以某一应力松弛数据作为分析对象, 样品的压缩率为 40%, 在 30 °C 下进行老化, 并在 22 ± 2 °C 下测试残余应力, 通过计算残余应力与初始应力的比值获得应力松弛率, 共有 3 个平行样, 应力松弛数据如表 1 所示。以“前 6 个时间点”的应力松弛数据为基础, 在限定相同参数取值范围的前提下采用 3 种方法建立预测模型, 然后以“后 3 个时间点”的数据对模型的预测结果进行对比评估, 以比较不同性能预测模型建模方法的建模效果。

表 1 应力松弛数据

Table 1 Stress relaxation data

老化时间/天	应力松弛率(%)		
	样品 1	样品 2	样品 3
0	0	0	0
84	15.7	12.4	17.3
175	18	12.6	19.6
274	20.9	15.4	20.5
425	22	17.9	23.1
1084	24.9	22.4	28.7
1292	28.6	25.5	32.3
1596	31.6	28.6	34.4
1931	33.1	30.8	37.2

2.2 回归分析模型

以式(4)为预测模型, 采用 origin 软件进行非线性回归分析(曲线拟合), 参数值范围如下:

$$0 < b_0 < 100, -100 < b_{11} < 0, -200 < b_{12} < 0, -100 < b_{21} < 0, -20000 < b_{22} < 0$$

所得拟合结果如表 2 和图 1 所示, 基于所得拟合参数值预测的后 3 个时间点的应力松弛预测结果也列于表 2。

2.3 随机过程模型

(1) Wiener 过程退化模型

假定退化增量 $y_{ij} = Y(t_{ij}) - Y(t_{ij-1})$ 相互独立, 并且服从 Wiener 过程, 则有 $y_{ij} \sim N(\Delta\Lambda(t_{ij}), \sigma^2 \Delta\Lambda(t_{ij}))$, 其中, $\Delta\Lambda(t_{ij})$ 的表达式如式(6)所示。采用如下均匀分布作为参数的先验分布:

$$\sigma \sim \text{Uniform}(0, 100), b_{11} \sim \text{Uniform}(-100, 0), b_{12} \sim \text{Uniform}(-200, 0), b_{21} \sim \text{Uniform}(-100,$$

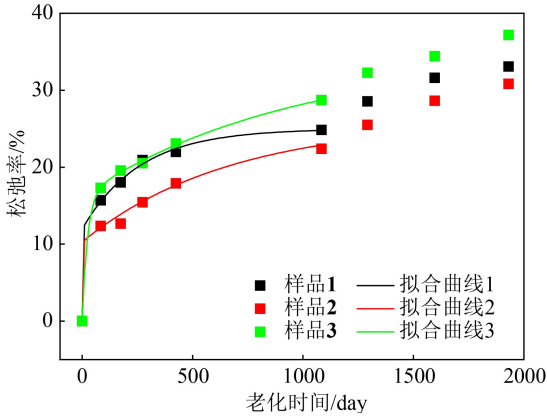


图 1 试验数据及回归分析结果

Figure 1 Experiment data and regression analysis results

0), $b_{22} \sim \text{Uniform}(-20000, 0)$ 通过 OpenBUGS 软件,采用 MCMC 抽样方法,获得模型参数的后

验分布。模型参数估计的平均值结果以及基于参数估计值预测的后 3 个时间点的应力松弛预测结果如表 3 所示。

(2) Gamma 过程退化模型

假定退化增量 $y_{ij} = Y(t_{ij}) - Y(t_{ij-1})$ 相互独立,并且服从 Gamma 过程,则有 $y_{ij} \sim \text{Gamma}(\mu \Delta \Delta(t_{ij}), \mu)$, 其中, $\Delta \Delta(t_{ij})$ 的表达式如式(6)所示。采用如下均匀分布作为参数的先验分布: $\mu \sim \text{Uniform}(0, 100)$, $b_{11} \sim \text{Uniform}(-100, 0)$, $b_{12} \sim \text{Uniform}(-200, 0)$, $b_{21} \sim \text{Uniform}(-100, 0)$, $b_{22} \sim \text{Uniform}(-20000, 0)$

通过 OpenBUGS 软件,采用 MCMC 抽样方法,获得模型参数的后验分布。模型参数估计的平均值结果以及基于参数估计值预测的后 3 个时间点的应力松弛预测结果如表 4 所示。

表 2 回归分析结果及预测值

Table 2 Regression analysis results and predictions

	参数拟合值					预测结果		
	b_0	b_{11}	b_{12}	b_{21}	b_{22}	1292 d	1596 d	1931 d
样品 1	24.99	-11.93	-1.83	-13.03	-261.48	24.89	24.96	24.98
样品 2	25.98	-10.29	-2.25	-15.70	-667.48	23.71	24.54	25.11
样品 3	34.57	-16.29	-24.43	-18.27	-949.37	29.88	31.16	32.18

表 3 基于 Wiener 过程的随机过程模型结果及预测值

Table 3 Results and predictions of stochastic process models based on Wiener process

	参数估计值					预测结果		
	b_0	b_{11}	b_{12}	b_{21}	b_{22}	1292 d	1596 d	1931 d
样品 1	-	-21.64	-70.62	-46.76	-11850	25.59	26.65	27.79
样品 2	-	-17.82	-72.54	-51.98	-10940	23.28	24.55	25.90
样品 3	-	-20.66	-42.29	-59.45	-9032	29.92	31.62	33.44

表 4 基于 Gamma 过程的随机过程模型结果及预测值

Table 4 Results and predictions of stochastic process models based on Gamma process

	参数估计值					预测结果		
	b_0	b_{11}	b_{12}	b_{21}	b_{22}	1292 d	1596 d	1931 d
样品 1	-	-20.15	-75.56	-55.44	-11070	25.78	27.12	28.55
样品 2	-	-13.52	-42.75	-63.59	-7776	23.86	25.92	28.10
样品 3	-	-17.91	-33.3	-61.89	-5915	30.50	32.99	35.59

2.4 结果与讨论

三种方法预测的样品 1、样品 2、样品 3 后 3 个时间点的松弛率结果、实验结果的对比如图 2 所示。可见,在绝大多数情况下,采用非线性回归分

析法建立的预测模型,其后 3 个时间点的预测偏差要大于基于 Wiener 过程、Gamma 过程的贝叶斯方法建立的预测模型。

Ye 和 Xie 等指出,样本自身固有的随机性(如

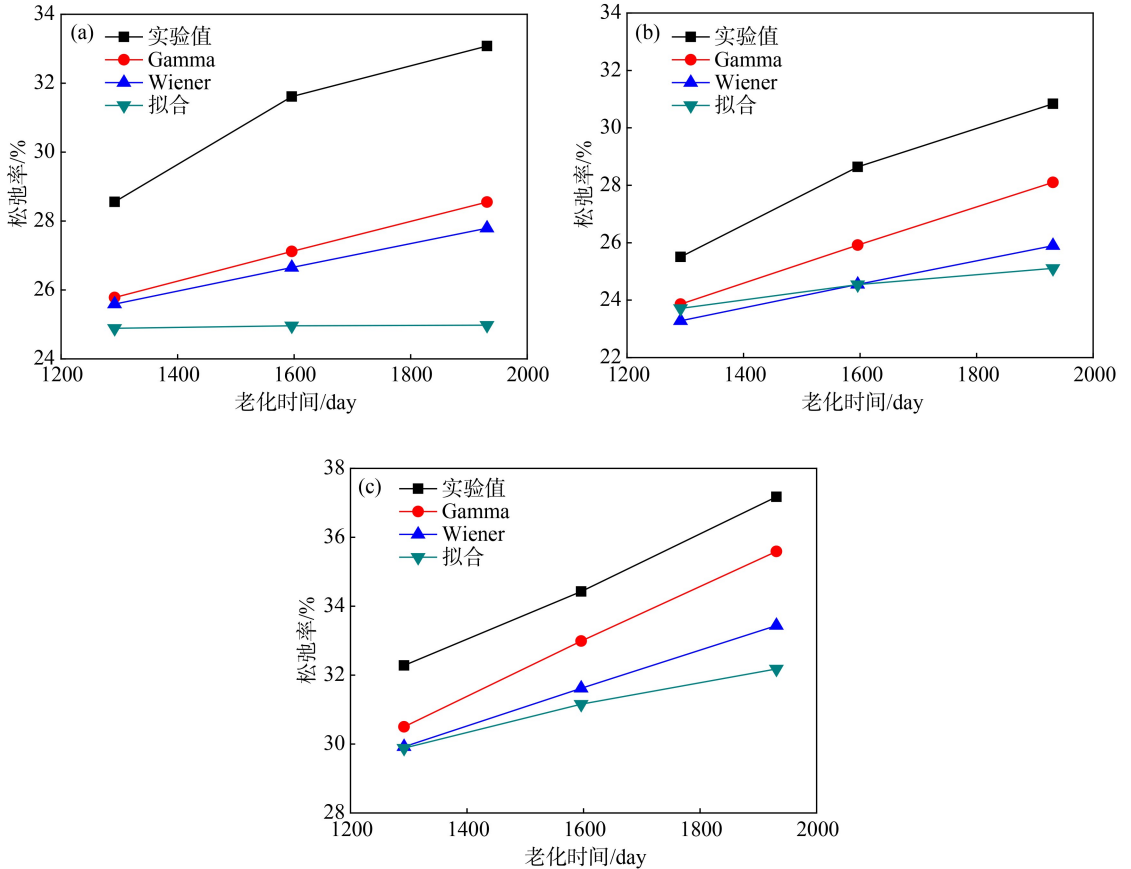


图 2 松弛率试验值、Gamma 模型预测值、Wiener 模型预测值、曲线拟合预测值对比：(a) 样品 1, (b) 样品 2, (c) 样品 3
Figure 2 Comparison of relaxation rate of experiment with predictions of Gamma model, Wiener model and regression analysis; (a) sample 1, (b) sample 2, (c) sample 3

制造工艺的不确定性), 退化数据的测量误差, 环境的随机性(如振动、温度、湿度等)等造成了性能退化数据的不可避免的随机性, 而主要通过经验回归曲线拟合获得的退化轨迹模型在处理这些随机性问题的時候, 可能会存在过于简化的问题, 在描述和解决退化数据的随机性方面表现出不足^[12]。与基于化学性质测试的退化过程不同, 力学性能测试过程的随机性要大得多, 在长期应力松弛实验过程中, 样品自身的差异、测试设备、人员的差异、测试时需在室温恒温导致老化进程中断、力学测试自身的随机性等, 都会在性能退化数据中引入随机性, 因此, 采用回归分析方法(曲线拟合法)建立的预测模型, 不能十分准确地预测实验时间之外的退化性能的变化趋势, 而采用随机过程模型, 则可以更好地预测实验时间之外的性能退化趋势, 同时, 由于应力松弛过程是退化增量非负的退化过程, 基于非负的 Gamma 过程的随机退化模型的预测结果具有更好的准确性。

3 结论

在本文中, 我们采用非线性回归分析法、基于 Wiener 过程的贝叶斯方法、基于 Gamma 过程的贝叶斯方法三种参数估计方法, 基于二阶 Prony 级数, 针对硅橡胶泡沫的应力松弛退化过程数据分别建立了预测模型。通过三种建模方法的预测值与真实实验值的比较, 发现采用非线性回归分析法建立的预测模型, 其预测偏差要大于基于 Wiener 过程的贝叶斯方法, 并且两者的偏差均大于基于 Gamma 过程的贝叶斯方法, 这表明对真实的性能退化过程而言, 随机过程模型由于考虑了性能退化过程存在的不可避免的随机性, 比回归分析模型具有更好的预测效果, 同时由于应力松弛过程通常是单调递增的, 因此基于非负的 Gamma 过程的随机过程退化模型, 其预测偏差要小于基于 Wiener 过程的退化模型。本工作可为高分子材料性能退化预测模型的建模提供一种常用的回归分析方法之外的较好的参数估计方法, 该方法

由于考虑了性能退化过程的随机性,有助于提高预测结果的准确性。

参考文献:

- [1] 黄远红,张方晓,胡文军. 硅橡胶泡沫材料的应力松弛性能研究. *化工新型材料*, **2009**, 37(8), 85-87.
- [2] Labouriau, A.; Robison, T.; Meineke, L.; Wroblewski, D.; Taylor, D.; Gill, J. Aging mechanisms in RTV polysiloxane foams. *Polym. Degrad. Stabil.*, **2015**, 121, 60-68.
- [3] Itskov, M.; Knyazeva, A. A rubber elasticity and softening model based on chain length statistics. *Int. J. Solids Struct.*, **2016**, 80, 512-519.
- [4] 李秀秀. 基于退化随机过程的剩余寿命预测. 西安:西安电子科技大学, **2018**.
- [5] 赵龙,甘海啸,唐维,唐明峰,周红萍. 陈氏法在TATB基PBX蠕变特性研究中的适用性分析. *含能材料*, **2018**, 26(7), 608-613.
- [6] David, N. V.; Gao, X. L.; Zheng, J. Q. Stress relaxation of a twaron[®]/natural rubber composite. *J. Eng. Mater. Technol.*, **2011**, 133(1), 011001.
- [7] Wang, X. Wiener processes with random effects for degradation data. *J. Multivar. Anal.*, **2010**, 101(2), 340-351.
- [8] van Noortwijk, J. M. A survey of the application of gamma processes in maintenance. *Reliab. Eng. Syst. Safe.*, **2009**, 94(1), 2-21.
- [9] Wang, L. Z.; Pan, R.; Li, X. Y.; Jiang, T. M. A Bayesian reliability evaluation method with integrated accelerated degradation testing and field information. *Reliab. Eng. Syst. Saf.*, **2013**, 112, 38-47.
- [10] 张绍卫,夏旒,冯洪伟,齐明,杨磊. 基于回归分析的飞轮泄漏预测模型构建研究. *空间控制技术与应用*, **2015**, 41(4), 40-43.
- [11] 彭卫文. 重型数控机床可靠性建模与评估技术研究. 成都:电子科技大学, **2016**.
- [12] Ye, Z. S.; Xie, M. Stochastic modelling and analysis of degradation for highly reliable products. *Appl. Stoch. Model. Bus.*, **2015**, 31(1), 16-32.