

文章编号: 1003-1480 (2022) 06-0060-05

喷雾干燥制备含能材料平均粒径的神经网络模拟

柴凡, 李伟伟, 史晓澜, 张彦奇

(中北大学化学工程与技术学院, 山西太原, 030051)

摘要: 为了提高喷雾干燥制备含能材料的实验效率, 采用前馈反向传播神经网络 (FFBPNN)、串级正反向传播神经网络 (CFBPNN)、埃尔曼正反向传播神经网络 (EFBPNN)、递归神经网络 (LR) 和非线性自回归神经网络 (NARX) 5 种类型的神经网络对含能材料平均粒径进行预测, 结果表明 LR 预测性能最优; 并采用 Levenberg-Marquardt (L-M) 算法、动量梯度下降和自适应学习率算法 (GDX)、遗传算法 (GA) 和粒子群算法 (PSO) 4 种算法对 LR 进行优化, 结果表明 GA-LR 的计算精度最高, 更适用于对喷雾干燥制备含能材料的平均粒径的预测。

关键词: 神经网络; 喷雾干燥; 含能材料; 平均粒径

中图分类号: TJ450.2 文献标识码: A DOI: 10.3969/j.issn.1003-1480.2022.06.013

Artificial Neural Network Simulation of Average Particle Size for Preparing Energetic Materials in Spray Drying

CHAI Fan, LI Wei-wei, SHI Xiao-lan, ZHANG Yan-qi

(College of Chemical Engineering and Technology, North University of China, Taiyuan, 030051)

Abstract: In order to improve the experimental efficiency of preparing energetic materials in spray drying, different types of artificial neural networks were used to predict the average particle size, such as Feed-forward back propagation neural network (FFBPNN), Cascade-forward back propagation neural network (CFBPNN), Elman-forward back propagation neural network (EFBPNN), Layers Recurrent neural network (LR) and Nonlinear autoregressive neural network (NARX), of which LR has the best performance. Levenberg-Marquardt (L-M) algorithm, Momentum gradient descent and adaptive learning rate algorithm (GDX), Genetic algorithm (GA) and Particle swarm optimization (PSO) were used to optimize LR. The results show that GA-LR has the highest calculation accuracy and is more suitable for predicting the average particle size of energetic materials prepared by spray drying.

Key words: Artificial neural network; Spray drying; Energetic materials; Average particle size

含能材料的粒径是影响其感度的重要因素。许多学者采用喷雾干燥法制备出颗粒粒径为 1~10 μm 的含能材料^[1-5], 有效降低了其感度。尽管喷雾干燥取得了较好成果, 但其实验过程繁琐且具有一定危险性, 而通过数学模拟可以筛选出较优的实验条件, 进而提高实验效率。人工神经网络 (Artificial Neural Network, ANN) 具有良好的非线性映射能力、泛化能力和容错

能力, 可用于含能材料性能的预测。肖伟星等^[6]以进风温度、压力和粘度作为输入, 以平均粒径作为输出, 验证了 Back Propagation (BP) 神经网络预测喷雾干燥的可行性。赵俊^[7]为了研究炸药分子特征量与感度之间的关系, 引入 BP 神经网络对 36 种硝基炸药和 33 种硝铵炸药进行预测, 得到最佳的 BP 神经网络结构为 5-2-1 型。冯雪艳^[8]选用 BP 神经网络对多硝基芳

收稿日期: 2022-05-03

作者简介: 柴凡 (1998-), 男, 硕士, 从事含能材料的数值模拟研究。

通讯作者: 李伟伟 (1986-), 男, 博士, 副教授, 从事化工多相流的模拟研究。

基金项目: 山西省高等学校科技创新项目 (No.2020L0327); 中北大学自然科学基金 (No.XJJ201923)。

香族化合物的爆速与其分子结构之间的关系进行研究,预测误差小于6%。Li等^[9]建立径向基神经网络、广义回归神经网络、串级正反向传播神经网络、前馈反向传播神经网络和埃尔曼正反向传播神经网络,对喷雾干燥制备含能材料的工艺进行优化,发现径向基神经网络的预测结果最好,均方误差 E^2 为0.000288,相关系数 R^2 为0.9966。然而,单一的神经网络结构优化并不能解决其收敛速度慢且容易陷入局部极值的缺点,因而算法改进尤为重要。陈蓓^[10]建立遗传算法优化的神经网络对炸药质量进行预测,平均误差为14%。袁俊明^[11]建立了粒子群优化的神经网络,预测RDX基混合炸药冲击波感度的最大隔板厚度值,以炸药实际密度、空隙率、RDX和附加物含量为输入,相对误差在10%以内。Zhu等^[12]使用粒子群算法优化的神经网络预测炸药爆炸引起的地面震动,预测结果与实验值的相关系数 R^2 为0.997。

目前对喷雾干燥制备含能材料平均粒径的神经网络模拟研究较少,且对其算法的优化未见报道。本文以操作条件(气体流量、液体流量、入口温度和溶质质量分数)和物性参数(溶剂粘度和溶质相对分子质量)为输入,以平均粒径为输出,建立了喷雾干燥制备含能材料平均粒径的神经网络模型,并考察了不同神经网络类型和算法对预测结果的影响。

1 实验与模拟

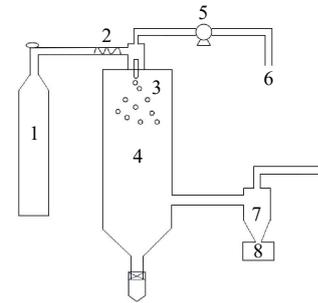
1.1 实验过程

将含能材料原料(CL-20、RDX和HMX)溶于其对应的溶剂(丙酮和乙酸乙酯等)中,制备前驱体

溶液,然后通过蠕动泵经喷嘴将其送入喷雾干燥塔,与热氮气充分接触,溶剂迅速蒸发,含能材料颗粒随氮气进入旋风分离器,由于离心沉降的作用,含能材料颗粒落入收集瓶中,尾气排出。含能材料对应的溶剂见表1,实验流程图如图1所示。

表1 含能材料对应的溶剂
Tab.1 Solvent corresponding to the energetic materials

含能材料	溶剂
CL-20	丙酮、乙酸乙酯
RDX	丙酮、丁酮、乙腈、乙酸甲酯、丙酮和环戊酮、丙酮和乙腈、丙酮和乙酸甲酯
HMX	丙酮



注: 1为氮气瓶; 2为电加热器; 3为喷嘴; 4为喷雾干燥塔; 5为蠕动泵; 6为溶液入口; 7为旋风分离器; 8为收集瓶。

图1 喷雾干燥制备含能材料流程图

Fig.1 Flow chart of preparation of energetic materials in spray drying

1.2 神经网络模拟

1.2.1 实验样本

样本的数量和准确度对神经网络模型的适用性和准确性有直接影响。通过图像分析法选取了106组近年来喷雾干燥制备含能材料(CL-20、RDX和HMX)实验过程的操作条件(气体流量 G 、液体流量 L 、入口温度 T 、溶质质量分数 ω 、溶剂粘度 μ 和溶质相对分子质量 M)及平均粒径 D_p 作为样本数据,如表2所示。

表2 喷雾干燥制备含能材料的操作条件

Tab.2 Operating conditions of preparation of energetic materials in spray-drying

含能材料	$G/(L \cdot h^{-1})$	$L/(L \cdot h^{-1})$	T/K	$\omega/\%$	$\mu/(mPa \cdot s)$	$M/(g \cdot mol^{-1})$	$D_p/\mu m$
CL-20	280~430	0.09~0.45	293~373	1.9	0.316~0.449	438	2.010~3.571
RDX	246~473	0.09~0.45	333	1.9~5.7	0.316~0.933	222	1.334~2.242
HMX	357~660	0.09~0.45	328~358	2	0.316	296	0.970~2.814

注: 20℃的溶剂粘度

1.2.2 神经网络模型的建立

喷雾干燥制备含能材料的神经网络模型主要包括输入层、输出层和隐含层,如图2所示,以气体流量、液体流量、入口温度、质量分数、溶剂粘度和溶

质相对分子质量为输入,以喷雾干燥制备含能材料的平均粒径为输出。其中,隐含层神经元的个数为:

$$l = \sqrt{n + m} + a \quad (1)$$

式(1)中: l 、 n 、 m 分别为隐含层、输入层、输

出层神经元个数; a 为 1~10 的随机数。其中, $n=6$, $m=1$, 由式 (1) 求得 l 为 3~13 个。隐含节点的激励函数采用双曲正切 S 型函数 (tansig), 即:

$$f(x) = \frac{1 - e^{-x}}{1 + e^{-x}} \quad (2)$$

计算时, 网络最大循环次数 epochs 设置为 1 000 次, 误差的最小值 goal 设置为 0.001, 网络训练算法设置为梯度下降法 traingd, 网络传递函数为双曲正切 S 型 tansig。

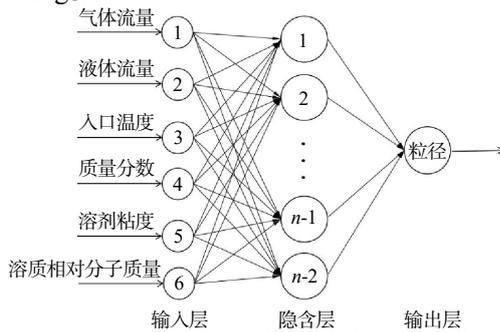


图2 喷雾干燥制备含能材料的神经网络模型

Fig.2 Artificial neural network model for preparing energetic materials in spray drying

1.2.3 神经网络的优化

分别考察了 5 种神经网络类型和 4 种算法对预测结果的影响。5 种神经网络类型分别为前馈反向传播神经网络 (FFBPNN)、串级正反向传播神经网络 (CFBPNN)、埃尔曼正反向传播神经网络 (EFBPNN)、递归神经网络 (LR) 和非线性自回归神经网络 (NARX), 其优缺点如表 3 所示。4 种算法分别为 Levenberg-Marquardt 算法 (L-M)、动量梯度下降和自适应学习率算法 (GDX)、遗传算法 (GA) 和粒子群算法 (PSO), 其优缺点如表 4 所示。

表 3 不同神经网络类型的优缺点

Tab.3 Advantages and disadvantages of different types of artificial neural network

神经网络类型	优点	缺点
FFBPNN	计算简单易行且计算量小	后续信息来源单一, 容易陷入局部极值
CFBPNN	可以根据之前的输入及时调整权重	收敛速度慢
EFBPNN	具有很强的信息存储能力	可能出现梯度消失和梯度爆炸
LR	将隐含层神经元输出反馈回来作为下一时刻的输入	间隔越长, 记忆强度越小, 导致更早期的信息影响变小
NARX	带有外部输入的非线性自回归网络	反馈仅来源于输出层, 而不接受来自隐含层的反馈

1.2.4 模型的验证

为了验证模型的可行性, 采用相关系数 R^2 和均方误差 E^2 (MSE) 对模型进行评价。 R^2 越大、 E^2 越小, 则模型的预测性能越好。其计算式分别为:

$$R^2 = \frac{\sum_{i=1}^N (x_i - \bar{x})^2 - \sum_{i=1}^N (x_i - x_c)^2}{\sum_{i=1}^N (x_i - \bar{x})^2} \quad (3)$$

$$MSE = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (x_i - x_c)^2 \quad (4)$$

式 (3) ~ (4) 中: x_i 为实验值; x_c 为预测值。

表 4 不同算法优缺点

Tab.4 Advantages and disadvantages of different algorithms

优化算法	优点	缺点
L-M	具有梯度法和牛顿法的优点, 可以通过调节参数优化计算过程	处理网络权值数目较多的复杂问题时需要很大的内存
GDX	改变学习率并加入动量项避免陷入局部极值	收敛速度慢, 存储空间也相对较小
GA	根据生物遗传规律得到最优的权值阈值	编码不规范及表示不准确, 不能全面表示优化问题的约束
PSO	计算简便; 较强的全局搜索能力和较快的收敛速度	较弱的局部搜索能力, 较低的搜索精度

2 结果与分析

2.1 神经网络类型

当隐含层神经元个数为 3~13 时, 5 种类型神经网络的相关系数和均方误差分别如图 3~4 所示。

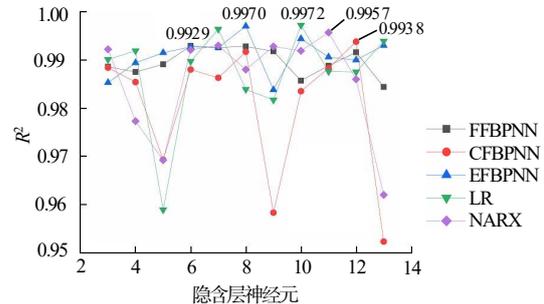


图 3 不同类型神经网络在不同个数隐含层神经元下的相关系数

Fig.3 Correlation coefficients of different hidden neurons numbers at different types of ANN

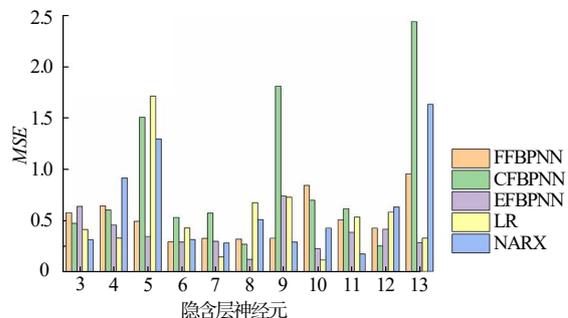


图 4 不同类型神经网络在不同个数隐含层神经元下的均方误差

Fig.4 Mean square error of different hidden neurons numbers at different types of ANN

由图 3~4 可知, 不同神经网络类型的 R^2 均在 0.95 以上。以 R^2 越大、 E^2 越小为预测性能好坏的判据, 5

种类型神经网络的预测性能优劣依次为LR、EFBPNN、NARX、CFBPNN和FFBPNN，对应的最佳隐含层神经元个数分别为10个 ($R^2=0.9972$, $E^2=0.1155$)、8个 ($R^2=0.9970$, $E^2=0.1226$)、11个 ($R^2=0.9957$, $E^2=0.1759$)、12个 ($R^2=0.9938$, $E^2=0.2530$)和6个 ($R^2=0.9929$, $E^2=0.2931$)。这是因为FFBPNN单向传播的特点限制其后续权重修正的信息来源；而CFBPNN在结构上加入了第1层输入对权重的影响，因此精度略有提高；EFBPNN作为一个递归网络考虑了前后数据的相关性，将上一时刻的隐含层输出作为下一时刻的隐含层输入，因此精度明显提高；而LR在EFBPNN的基础上又在每一层都加入了一个时间延时，使其精度进一步提高；NARX与LR相比，反馈只来源于输出层，与隐含层的信息无关。因此，预测喷雾干燥制备含能材料平均粒径的最佳神经网络为LR，最佳结构为6-10-1 ($n=6$, $l=10$, $m=1$)。最佳结构下LR模型预测值与实验值的对比如图5所示。由图5可知，数据集中在对角线周围，实验值与预测值相关性较高。

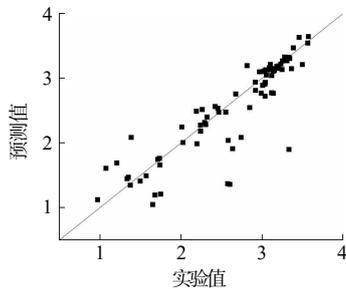


图5 LR模型预测值与实验值对比
Fig.5 Comparison of LR model predicted value and the experimental value

不同类型神经网络在最佳结构下的计算误差如图6所示。由图6可知，FFBPNN大部分数据的误差在-0.8~0.8之间，但是有部分数据点的误差达到了-1.19~2.22之间；CFBPNN大部分数据的误差在-0.4~0.8，但有部分点的误差达到了-1.67~1.37；EFBPNN大部分数据的误差在-0.3~0.3，但0~25和80~106的数据误差达到了-0.86~0.97；LR前75个数据的误差较小，稳定在-0.2~0.3之间，但80~95的数据误差达到了-1.15~1.43；NARX大部分数据点稳定在-0.4~0.3之间，但在0~30和80~90区间的

部分数据误差达到了-1.29~1.09。对比发现LR整体误差较小，预测结果更加准确。但是每种类型神经网络都有部分点的误差较大，这可能是由于计算过程陷入局部极小，造成网络收敛至局部优解，因此需要进一步进行算法优化。

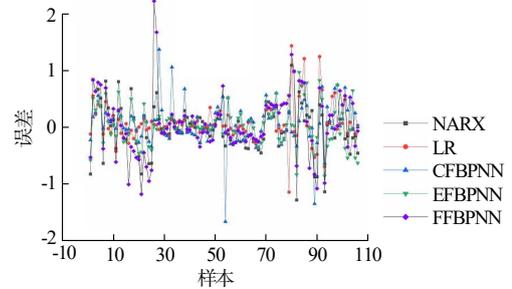


图6 不同类型神经网络预测值与实验值误差对比
Fig.6 Comparison of error between the predicted value and the experimental value for different types of ANN

2.2 算法优化

为了避免神经网络计算过程中陷入局部极小值，从而加快收敛进度、提高精度，对LR的最佳结构进行算法优化。4种算法优化的LR预测性能对比如图7所示，预测误差分布箱型图如图8所示。

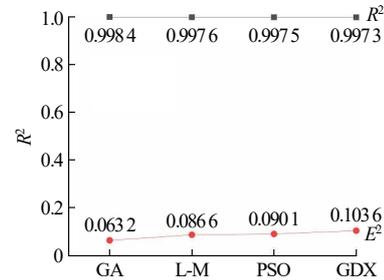


图7 不同算法预测性能对比
Fig.7 Comparison of prediction performance of different algorithms

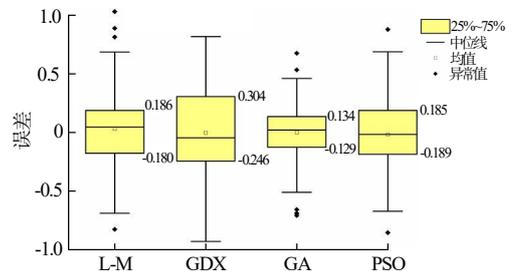


图8 不同算法优化的误差分布
Fig.8 Error distribution of different algorithms

由图7可知，4种算法优化的LR预测性能优劣顺序依次为GA、L-M、PSO和GDG。由图8可知，GA、L-M、PSO、GDG优化的预测误差分别集中在

-0.129 ~ 0.134、-0.180 ~ 0.186、-0.189 ~ 0.185、-0.246 ~ 0.304 之间。对比发现 GA-LR 性能更好, GDX-LR 效果并不显著。这是由于虽然 GDX 通过附加动量项和改变学习速率, 有效避免了计算结果陷入局部极值, 但对精度提升并不显著; PSO 虽然加强了全局搜索能力, 但其局部搜索能力并未优化, 因此其精度提高有限; L-M 在处理结构简单的网络时有明显优势, 收敛速度和精度都有很大提升, 但与 GA 相比仍有不足; GA 以编码形式处理数据, 通过选择、交叉和变异操作后, 使得权值和阈值的分配更加合理, 并且遗传算法并行运算的优势可以有效避免陷入局部极值的问题, 使其精度明显优于其它 3 种算法。

2.3 各输入节点对输出的影响

通过对 GA-LR 各节点的权值进行求绝对值求和, 得出输入参数对输出的影响值占比, 如图 9 所示。由图 9 可知, 气体流量对含能材料平均粒径的影响最大, 其次是粘度、液体流量、温度、相对分子质量和质量分数。且 6 个输入参数对输出的影响占比均在 13.82% ~ 20.07% 之间, 表明每个输入参数对输出的影响都不可或缺。

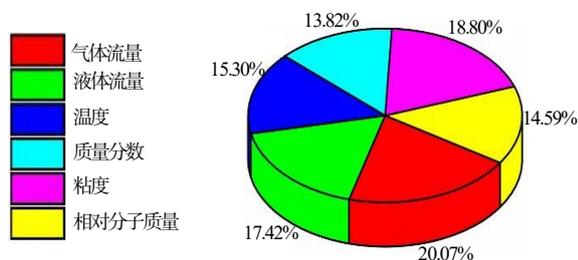


图 9 输入参数影响值占比

Fig.9 Proportion of influence values of input parameters

3 结论

(1) 采用 FFBPNN、CFBPNN、EFBPNN、LR 和 NARX 5 种神经网络对喷雾干燥制备含能材料的平均粒径进行预测, LR 的预测性能最佳, $R^2=0.9972$, $E^2=0.1155$, 最佳结构为 6-10-1 ($n=6$, $l=10$, $m=1$)。

(2) 利用 LM、GDX、GA 和 PSO 算法对 LR 进行优化, 得到 GA-LR 预测精度最高。

(3) GA-LR 粒径预测模型中, 气体流量对含能材料平均粒径的影响最大, 其次是粘度、液体流量、温度、相对分子质量和质量分数, 每个输入参数对输出的影响都不可或缺。

参考文献:

- [1] 徐文峥,黄浩,王晶禹,等. 喷雾干燥过程条件对 HNS 微粉化形貌的影响[J].火炸药学报,2008(05): 5-8.
- [2] 王江,刘英,李小东,等. 喷雾干燥法制备球形 RDX 的工艺优化[J].火炸药学报,2015, 38(1): 16-21.
- [3] 宋原.降感 CL-20 制备工艺技术研究[D].太原:中北大学,2016.
- [4] Qiu H, Stepanov V, Chou T, et al. Single-step production and formulation of HMX nanocrystals[J]. Powder Technology, 2012(226): 235-238.
- [5] An C, Li H, Geng X, et al. Preparation and properties of 2, 6 - diamino-3, 5-dinitropyrazine-1-oxide based nanocomposites [J].Propellants,Explosives, Pyrotechnics, 2013, 38(2): 172-175.
- [6] 肖伟星,郭连喜,于功志,等.基于 BP 算法的喷雾干燥神经网络模型的建立[J].农机化研究,2006(8): 153-155,159.
- [7] 赵俊.炸药撞击感度与分子特征量关联度的 BP 神经网络方法研究[D].成都:四川大学,2007.
- [8] 冯雪艳.分子结构与性能参数的构效关系研究[D].西安:西北大学,2016.
- [9] Li X, Yang Y, Li W. ANN model of preparation of energetic materials by spray drying[J].Propellants, Explosives, Pyrotechnics, 2021, 46(9): 1405-1414.
- [10] 陈蓓.粉状炸药配料预测控制系统研究[D].长沙:中南大学,2008.
- [11] 袁俊明,刘玉存,王建华,等.基于粒子群神经网络的黑索今基混合炸药大隔板试验冲击波感度预测[J].兵工学报,2014, 35(2): 188-193.
- [12] Zhu W, Rad H N, Hasanipah M. A chaos recurrent ANFIS optimized by PSO to predict ground vibration generated in rock blasting[J]. Applied Soft Computing, 2021(108):107434.