

文章编号: 1000-324X(2002)04-0845-07

## 人工神经网络在优化 BaTiO<sub>3</sub> 陶瓷配方研究中的应用

郭 栋<sup>1</sup>, 王永力<sup>1</sup>, 夏军涛<sup>2</sup>, 李龙土<sup>1</sup>, 桂治轮<sup>1</sup>

(1. 清华大学材料系新型陶瓷与精细工艺国家重点实验室, 北京 100084; 2. 北京理工大学化工与材料学院, 北京 100081)

**摘 要:** 首次将人工神经网络技术用于介电陶瓷的配方性能分析. 以 BaTiO<sub>3</sub> 为研究对象选取了几种掺杂剂, 在均匀实验设计的基础上, 用 BP 人工神经网络对所得实验结果进行了分析, 建立了相应配方的数学模型并将其与多重非线性回归模型的结果进行了比较. 通过对人工神经网络配方数学模型的二次分析, 得到了比多重非线性回归模型更加丰富的配方信息和内在规律, 并且用图形化方式直观地表达了出来. 在进一步对配方结果的优化和验证的基础上发现实验结果能够较好地符合理论预测, 说明人工神经网络对于获得多性能指标要求介电陶瓷的最优化配方具有较好的指导作用.

**关 键 词:** 钛酸钡; 介电性能; 人工神经网络; BP 算法

**中图分类号:** TP 18 **文献标识码:** A

### 1 引言

在钛酸钡陶瓷的生产过程中, 掺杂改性一直是制备高性能介质材料的有效手段, 但因陶瓷材料的介电性能对配方中各变量极为敏感, 且掺杂剂之间有时存在复杂的交互作用, 因此了解各种掺杂剂的作用规律及其相互之间的影响一直是本领域研究的一个难点. 有效可行的实验设计方案是高性能钛酸钡陶瓷配方研究中的重要环节. 完全实验中大量信息是冗余和重复的, 且实验次数根本无法实现. 正交设计的实验次数必须至少是水平数的平方, 这在水平数较大时实验次数往往令人无法忍受. 均匀实验设计不考虑正交设计中的“整齐可比”性, 使实验点均衡地分布于实验范围内, 从而具有充分代表性, 且实验次数大大减少, 适于多因素多水平实验设计, 但均匀实验难于直观地分析实验结果. 人工神经网络 (Artificial Neural Network, ANN) 巨量并行、存储分布、结构可变、高度非线性、自学习性和自组织性等特点使其在众多领域得到了广泛应用. 特别是 80 年以来, 以 Hopfield<sup>[1]</sup> 等人的联想记忆网络模型, Rumelhart 等人<sup>[2]</sup> 的多层反向误差传播算法 (Back-Propagation Algorithm, BP 算法) 为代表的一批优秀工作的出现掀起了此领域研究的热潮. ANN 高度的非线性能力和并行性使其在分类及预测的成功率等方面都远远超过线性方法<sup>[3]</sup>, 这在探讨介电陶瓷这种多组份多指标的最优配方中大有用武之地, 尤其是配方中各组份与所测参数之间呈非线性关系且其作用机理尚不清楚时. 本文在均匀实验设计结果的基础上首次将 ANN 技术用于介电陶瓷配方的研究, 借助 ANN 技术建立的配方数学模型与多重线性回归 (MNL) 模型的

收稿日期: 2001-06-29, 收到修改稿日期: 2001-07-25

作者简介: 郭 栋 (1974-), 男, 博士研究生. E-mail: guodong99 @ mails. tsinghua. edu. cn

比较,发现 ANN 模型比其能更完好地符合实验结果. 经对体系配方进行优化计算和实验验证,发现理论值和实际值较为符合,说明该 ANN 模型对于优化配方具有重要的指导作用.

## 2 人工神经网络模型的建立

ANN 是由大量的简单处理单元(人工神经元)所构成的非线性动力学系统. 其基本思路是基于人脑细胞的工作原理来模拟人脑思维方式,通过人为设计的数学抽象意义上的神经网络中神经元相互间的数值输入与输出,以建立分布式存储的网络模型来分析与预测. 其内部传输的是一个非线性的 Sigmoid 数学处理函数. 1989 年 Robert Hecht-Nielson<sup>[4]</sup> 从数学上证明了任何一个闭区间上的连续函数都可以用一个三层前向误差反传网络(BP 网络)来逼近. BP 算法是目前人工神经网络中应用最多最成功的算法之一.

本文采用 Rumelhart 提出的三层反向 BP 算法作为信息获取的基础,学习算法采用改进的 BP 算法. 以配方组成作为 BP 网络的输入而所需指标作为输出. 输入层和输出层各有一个偏置神经元,三层神经元之间都是由连续权值相连(见图 1). 应用 BP 算法对配方模型的 BP 网络进行训练时,输入信息首先向前传到隐层神经元,经非线性函数处理后,成为隐层神经元的输出信息,这些信息再向前传播到输出神经元,经非线性计算后得到输出结果. BP 算法的学习由正反向传播两个过程组成,正向传播过程中输入信息从输入层经隐层神经元逐层处理并传向输出层,每一层神经元的状态只能影响下一层神经元的状态. 若输出层得不到期望的输出,则转入误差反向传播过程,将误差信号沿原路径返回,并通过修改各层神经元之间的连接权值,使得误差信号满足给定的要求. 改进的 BP 算法概述如下:

(1) 将经标准化和归一处理的输入数据  $x_i$  付给输入神经元. 其中  $w_{ij}$  是神经元  $i$  和  $j$  之间的连接权值,  $\theta$  是神经元  $j$  的偏置值或域值(非零值),  $H_j$  是神经元  $j$  的输出值,  $\alpha$  决定非线性处理函数的非线性程度.

(2) 按公式 (1) 和 (2) 计算隐层神经元的输出.

$$y_j = \sum w_{ij}x_i + \theta \quad (1)$$

$$H_j = 1/[1 + \exp(-\alpha y_j)] \quad (2)$$

(3) 按类似于 (1) 和 (2) 的公式计算输出层神经元的输出  $O_k$ .

(4) 按公式 (3) 并根据  $O_k$  和目标输出  $t_k$  的误差计算连接输出层神经元的权值修正因子  $\delta_k$ .

$$\delta_k = (t_k - O_k)O_k(1 - O_k) \quad (3)$$

(5) 按公式 (4) 和 (5) 修正连接输出层神经元的权值. 其中  $\Delta w_{jk}$  表示隐层神经元  $j$  和输出层神经元  $k$  之间的权值修正量,  $p$  和  $p-1$  分别表示当前和上一轮的权值修正量.  $\eta$  为学习速率,  $\mu$  为动量因子

$$w_{jk}^{\text{new}} = w_{jk}^{\text{old}} + \Delta w_{jk}(p) \quad (4)$$

$$\Delta w_{jk}(p) = \eta \delta_k H_j + \mu \Delta w_{jk}(p-1) \quad (5)$$

(6) 按公式 (6) 计算连接隐层神经元的权值修正因子  $\delta_j$ .

$$\delta_j = H_j(1 - H_j) \sum \delta_k w_{jk} \quad (6)$$

(7) 按公式 (7) 和 (8) 修正连接隐层神经元的权值.

$$w_{ij}^{\text{new}} = w_{ij}^{\text{old}} + \Delta w_{ij}(p) \quad (7)$$

$$\Delta w_{ij}(p) = \eta \delta_j H_i + \mu \Delta w_{ij}(p-1) \quad (8)$$

(8) 返回第 (1) 步输入下一个学习样本数据, 重复 (1) 至 (8). 重复以上过程直至输出值和目标差值满足预先设定的误差标准.

### 3 实验部分

#### 3.1 样品准备及均匀试验设计

李琦等人<sup>[5]</sup>通过往钛酸钡中添加 Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Co<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 等五种掺杂剂,

表 1 试剂用量范围、规格及来源

Table 1 Reagents used in the experiment and their content and source

Reagent	BaTiO <sub>3</sub>	Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Sm <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Co <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Li <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>
Content/wt%	1	0.6~1.4%	0.4~0.8%	0.2~0.5%	0.8~1.2%	0.8~2%
Purity	99%	99.95%	98%	99.9%	99%	99%
Source	Xingtai	Shanghai	Beijing	Shanghai	Beijing	Beijing Xinhua
	electronic	chemical	chemical	chemical	chemical	chemical
	ceramic	reagent	engineering	reagent corp	engineering	reagent plant
	plant	packing plant	plant		plant	

表 2 均匀试验配方及实验结果

Table 2 Experimental results of 21 formulations

Sample	1	2	3	4	5	6	7
tgδ	0.01515	0.01117	0.02013	0.01176	0.01058	0.00680	0.01290
ε	1999	2235	2200	2470	2044	2294	2123
K <sub>min</sub>	-48	-46	-51	-51	-38	-50	-41
K <sub>max</sub>	238	155	171	99	114	120	103
Sample	8	9	10	11	12	13	14
tgδ	0.00690	0.01042	0.00951	0.01240	0.01527	0.02069	0.01754
ε	2537	2475	3142	2200	3005	2338	3736
K <sub>min</sub>	-54	-47	-48	-45	-51	-35	-55
K <sub>max</sub>	115	48	28	102	31	57	29
Sample	15	16	17	18	19	20	21
tgδ	0.01708	0.01425	0.01481	0.01754	0.02655	0.01060	0.12600
ε	3155	3195	3036	2802	3207	5995	5997
K <sub>min</sub>	-43	-55	-42	-44	-46	-73	-78
K <sub>max</sub>	17	21	16	33	8	3	8

获得了性能优良的 X7R 陶瓷材料, 但是配方添加剂种类繁多, 几乎无法弄清每种掺杂剂对材料性能的影响及其相互作用. 本文以此体系为研究对象, 希望通过人工神经网络技术探索此体系中不同掺杂剂对钛酸钡陶瓷介电性能的影响及其相互作用, 并验证 ANN 在陶瓷材

料配方研究中的指导作用. 实验所用试剂来源、用量范围及规格如表 1 所示.

经设定掺杂剂的用量范围后, 利用均匀实验设计表给出实验次数为 21 次的实验配方. 将五种掺杂剂与  $\text{BaTiO}_3$  粉料按配比称量, 球磨混料后干压成型, 获得尺寸为  $\Phi 10\text{mm} \times 1.5\text{mm}$  的圆片, 然后于  $1280^\circ\text{C}$  烧结 4h. 得到的样品双面镀银电极, 以 HP4192A 测量其介温特性, 升温速率  $2^\circ\text{C}/\text{min}$ . 以室温损耗  $\tan\delta$ 、室温 ( $25^\circ\text{C}$ ) 介电常数  $\epsilon$ 、介电常数在  $-55 \sim 125^\circ\text{C}$  温度范围内相对于室温的最大偏差  $K_{\max}$  和最小偏差  $K_{\min}$  作为模型的训练数据序列, 测试结果见表 2.

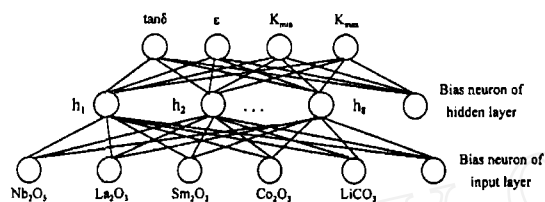


图 1  $\text{BaTiO}_3$  配方 BP 神经网络的结构示意图

Fig. 1 Schematic view of the BP network for  $\text{BaTiO}_3$  formulation model

### 3.2 配方的知识获取

#### 3.2.1 ANN结构及学习参数

根据以上情况所设计的 ANN 模型的输入层有五个神经元, 输入层有四个神经元. 隐层神经元的个数也对所建网络模型的优劣有重要影响. 从 5 到 10 个的结果来看, 8 个隐层神经元可获得最小平均偏差. BP 神经网络结构如图 1 所示, 其拓扑结构和学习参数见表 3.

表 3 BP神经网络的拓扑结构和学习参数

Table 3 Topological structure and learning parameters of BP networks of the formulation

Number of neurons in input/hidden/Output	Neuron function	Learning rate	Momentum factor	Range of initial weights	Maximum iterations	Convergence error
5/8/4	Sigmoid function	0.15	0.075	-0.3~0.3	5000	0.01

#### 3.2.2 训练前的数据处理

为了消除系统误差, 加速 BP 网络训练, 输入数据采用标准化和归一化处理. 输出数据归一化到 0.05~0.95 之间. 处理公式如下:

$$X'_i = (X_i - \bar{X}_i) / \sigma \quad (9)$$

其中,  $\bar{X}_i = \sum_{i=1}^p X_i / p$ ,  $\sigma = \sqrt{\frac{(X_i - \bar{X}_i)^2}{p}}$ ,  $X_i$  为原始输入数据,  $p$  为输入样本个数.

$$Y'_i = 0.05 + 0.90 \times \frac{Y_i - Y_{\min}}{Y_{\max} - Y_{\min}} \quad (10)$$

其中  $Y_i$  为原始输出数据,  $Y_{\max}$  和  $Y_{\min}$  分别是输出数据的最大与最小值.

## 4 结果和讨论

### 4.1 ANN结果及与多重非线性回归模型的比较

根据表 2 中结果, 表 4 和 5 列出了 ANN 模型中输入和隐藏层之间及隐藏层和输出层之间的连接权值. 同时对表 2 中数据建立了多重非线性回归 (MNL) 模型, 图 2 和 3 描述了该非线性回归模型和 ANN 模型预测能力的比较结果. 可以看出 ANN 模型的预测误差明显小于 MNL 模型结果.

表 4 输入层和隐藏层的连接权值  
Table 4 Connection weights between the input and hidden layers

	Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Sm <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Co <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Li <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	Input bias
$h_1$	0.499	-1.191	-0.118	0.454	-1.912	0.708
$h_2$	2.020	0.236	-2.335	-0.235	-2.177	3.007
$h_3$	-1.718	-1.394	-0.869	2.376	-1.214	2.457
$h_4$	-1.817	0.021	-1.002	0.315	0.649	-1.417
$h_5$	1.842	-2.327	1.176	1.012	-0.618	0.327
$h_6$	0.390	-2.013	0.112	3.035	-1.570	-1.295
$h_7$	-1.869	-2.072	0.231	-2.615	-1.468	1.679
$h_8$	0.191	-0.075	0.761	0.390	0.606	-0.170

表 5 隐藏层和输出层的连接权值  
Table 5 Connection weights between the hidden and output layers

	$h_1$	$h_2$	$h_3$	$h_4$	$h_5$	$h_6$	$h_7$	$h_8$	Hidden bias
$\text{tg}\delta$	-2.245	-2.860	0.082	-1.327	0.954	0.111	0.225	2.118	0.610
$\varepsilon$	0.193	-0.034	-2.671	0.179	2.137	-1.928	-1.812	0.530	1.244
$K_{\min}$	-0.0267	1.273	1.991	-1.532	-2.016	2.198	1.092	-0.869	-1.593
$K_{\max}$	0.905	-2.914	0.647	1.859	-1.603	1.303	1.295	-0.222	-0.583

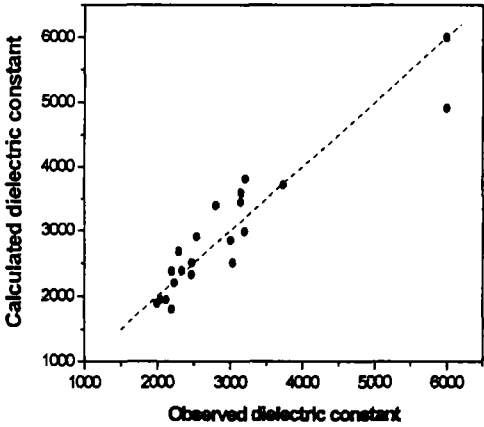


图 2 MNLR 模型  $\varepsilon$  计算值与实测值的比较  
Fig. 2 Correlation between calculated and observed  $\varepsilon$  by MNLR model

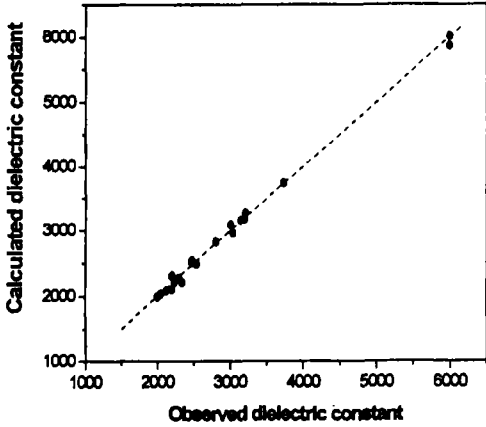


图 3 ANN 模型  $\varepsilon$  计算值与实测值的比较  
Fig. 3 Correlation between calculated and observed  $\varepsilon$  by ANN model

4.2 性能与配方组成关系的图形分析

有效的图形分析是 ANN 模型的一个优点. 根据李琦等人的研究结果, Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 和 Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 的质量比例大约为 3:2:1 时掺杂的 BaTiO<sub>3</sub> 有较好介电性能. 下面固定此三种掺杂剂分别为 1.4wt%、0.8wt% 和 0.4wt%, 以 Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 和 Co<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 为例, 通过调用作为权值存储

的模型文件, 来说明此 ANN 模型的图形分析能力. 几种指标的双组份变化趋势见图 4~7. 由图 4 可知, 在不同的  $\text{Co}_2\text{O}_3$  用量下  $\epsilon$  随  $\text{Li}_2\text{CO}_3$  的增加而增加. 由图 5 可知当  $\text{Li}_2\text{CO}_3$  用量减少到一定值后  $\epsilon$  随  $\text{Co}_2\text{O}_3$  的增加而减少. 图 6、7 为容温变化最大、最小偏差  $K_{\max}$  和  $K_{\min}$  随二组份的变化情况.  $\text{Co}_2\text{O}_3$  含量增加有助于降低材料的容温变化, 而  $\text{Li}_2\text{CO}_3$  增加会引起  $K_{\max}$  和  $K_{\min}$  的降低.

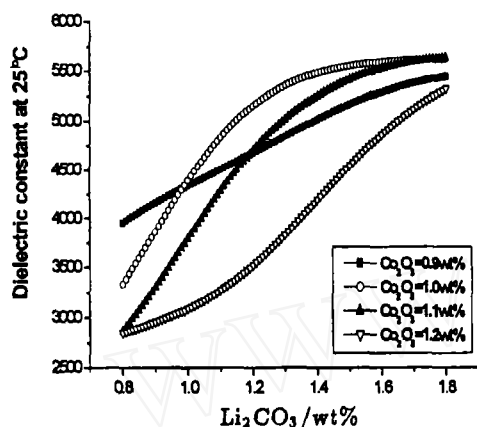


图 4 不同  $\text{Co}_2\text{O}_3$  用量下  $\epsilon$  随  $\text{Li}_2\text{CO}_3$  的变化图示

Fig. 4 Correlation between  $\epsilon$  and  $\text{Li}_2\text{CO}_3$

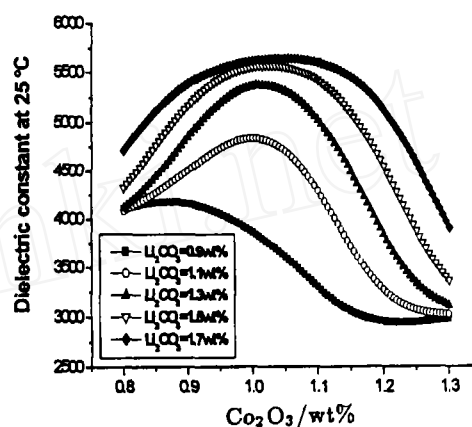


图 5 不同  $\text{Li}_2\text{CO}_3$  用量下  $\epsilon$  随  $\text{Co}_2\text{O}_3$  的变化图示

Fig. 5 Correlation between  $\epsilon$  and  $\text{Co}_2\text{O}_3$

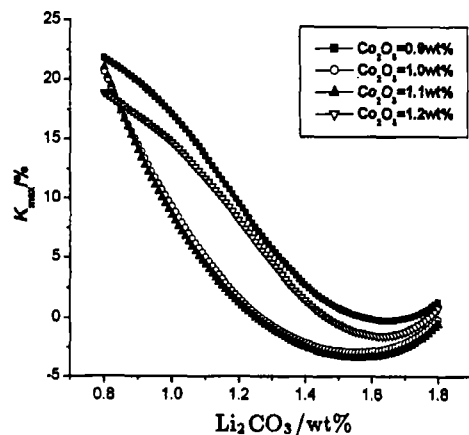


图 6 不同  $\text{Co}_2\text{O}_3$  用量下  $K_{\max}$  随  $\text{Li}_2\text{CO}_3$  的变化图示

Fig. 6 Correlation between  $K_{\max}$  and  $\text{Li}_2\text{CO}_3$

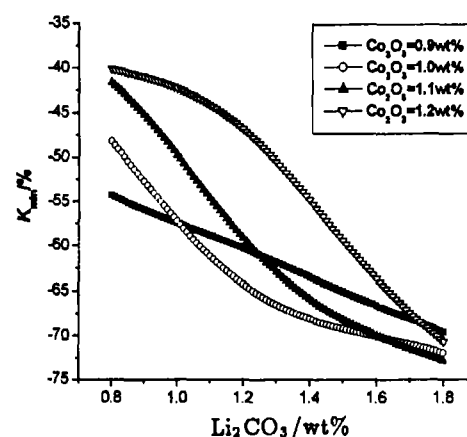


图 7 不同  $\text{Co}_2\text{O}_3$  用量下  $K_{\min}$  随  $\text{Li}_2\text{CO}_3$  的变化图示

Fig. 7 Correlation between  $K_{\min}$  and  $\text{Li}_2\text{CO}_3$

表 6 BP神经网络预测结果与实测值的比较

Table 6 Comparison of predicted and measured  $\epsilon_{25}$  values

Optimization constrained conditions	$K_{\min}/\%$	(-45,0)	(-50,0)	(-55,0)
	$K_{\max}/\%$	(0,30)	(0,30)	(0,30)
Optimized $\epsilon$ values		3599	4151	4689
Measured $\epsilon$ values		3334	4391	4498

根据这种直观的图形, 可十分方便地分析各种掺杂剂对钛酸钡介电性能的影响及其相互作用规律. 由于所选组份的特点, 难于同时得到较小的容温变化和较高的介电常数. 在此基础上, 我们用带不等式约束的  $n$  维复合型优化法<sup>[6]</sup>, 以  $K_{\min}$  和  $K_{\max}$  为约束条件, 以  $\varepsilon$  为优化目标对体系配方进行了优化计算, 对得到的最优配方进行了测试, 其结果和实测值比较见表 6. 考虑到称量和测定中出现的误差及体系的复杂程度与较少的试验次数等因素, 理论值和实际值较为符合, 说明 ANN 方法完全可以用于陶瓷材料的实际配方研究中.

## 5 结论

用人工神经网络 (ANN) 对研究配方体系建立数学模型并不需要预先知道太多有关问题背景的知识, 适用于陶瓷配方研究中所遇某些配方复杂、机理尚未完全清楚、传统数学建模方法无法分析的情况. 将 ANN 技术引入了介电陶瓷配方的研究中, 在均匀实验设计的基础上用较为先进的 BP 人工神经网络对 BaTiO<sub>3</sub> 体系的研究结果表明, 建立数学模型可以帮助我们了解实际复杂陶瓷材料配方中各组份对所需指标的影响规律并进行优化计算, 且实测结果能够较好地符合理论值, 这对于获得介电陶瓷多性能指标的优化配方具有重要的指导作用.

## 参考文献

- [1] Hopfield J J. *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, 1984 **81**: 3088-3093.
- [2] Tumeihart D E, McClelland J L, *et al.* *Parallel Distributed Processing Explorations in the Microstructure of Cognition*. Cambridge M A: MIT press, 1986.
- [3] 刘信安, 罗彦凤, 王镛先, 等. *计算机与应用化学*, 1999, **16** (3): 175-180.
- [4] Nielsen H. *Proc. of International Joint Conference on Neural Networks*, 1989: 593-603.
- [5] Li Qi, Qi Jianquan, Wang Yongli, *et al.* *J. Euro. Ceram. Soc.*, 2001, **21** (12): 2217-2220.
- [6] Rao S S. *Optimization Theory and Applications*, 2nd ed., New York: Halsted Press, 1984.

## Application of Artificial Neural Network (ANN) Technique to the Formulation Design of BaTiO<sub>3</sub> Dielectric Ceramics

GUO Dong<sup>1</sup>, WANG Yong-Li<sup>1</sup>, XIA Jun-Tao<sup>2</sup>, LI Long-Tu<sup>1</sup>, GUI Zhi-Lun<sup>1</sup>

(1. Dept. Materials Science & Engineering, Tsinghua University, Beijing 100084, China; 2. School of Chemical Engineering and Materials Science, Beijing Institute of Technology, Beijing 100081, China)

**Abstract:** Application of the artificial neural network (ANN) to the formulation design of BaTiO<sub>3</sub> based dielectrics was carried through for the first time. Based on the homogenous experimental design, the experimental results of 21 samples were analyzed by a three-layered BP network model. The results were also expressed by intuitionistic graphics. In addition, optimized formulations were calculated and the optimized  $\varepsilon_{25}$  output values were in accordance with experiments. The three-layer BP network proved to be a very useful tool in dealing with problems with serious non-linearity encountered in the formulation design of dielectric ceramics.

**Key words** BaTiO<sub>3</sub>, dielectric constant, artificial neural network, BP algorithm