

Uporaba nevronske mreže in statističnih metod pri razvoju premaznih sredstev

Surface Coating Formulation Using Neural Networks and Statistical Methods

N. Leskovšek, *COLOR, Medvode*

L. Tušar, M. Tušar, *SRC d.o.o., Ljubljana*

J. Zupan, *Kemijski inštitut, Ljubljana*

Z metodo statističnega načrtovanja eksperimentov in modeliranja s polinomi in z nevronske mreže smo razvili metodo za avtomatično določanje receptur za pečnosušeče premaze. Celotno delo je potekalo v naslednjih fazah: definicija problema, izbira načrta eksperimentov, modeliranje, statistična analiza in grafična predstavitev rezultatov. Nevronske mreže v fazi modeliranja predstavljajo vpeljavo nove metode.

Ključne besede: pečnosušeči premaz, načrtovanje eksperimentov, modeliranje, nevronske mreže, statistična analiza, grafična analiza.

Formulations of high solid clearcoat cured at high temperatures were examined by the statistical experimental design and modelling by analytical function and neural network. The procedure can be summed up in the following phases: problem definition, experimental design selection, performing the experiments, modelling, statistical analysis, and graphical representation of results. The new contribution in the present work is the use of neural networks in the modelling phase.

Key words: clearcoat, experimental design, modelling, neural networks, statistic analysis, graphical analysis.

1 Uvod

Pojem, ki bo nedvomno zaznamoval devetdeseta leta našega stoletja v svetovnem gospodarstvu, je kakovost. Pri tem pa ne mislimo samo na kakovost izdelkov, marveč tudi na kakovost celotnega proizvodnega procesa. Statistično načrtovanje poskusov in modeliranje sta pomembnejši fazi v procesu zagotavljanja kakovosti. Omogočata nam, da že v fazi razvoja izdelka ali procesa zagotovimo obvladovanje kakovosti in ekonomičnost proizvodov^{1,2}.

Vsak izdelek, npr. premazno sredstvo, ki ga sestavlja več deset komponent, zahteva sistematičen pristop k optimizaciji recepture, saj različne vsebnosti posameznih komponent pogojujejo lastnosti premaza^{3,4}. Dandanes se še vse preveč uporablja metoda poskusa in napake ("trial and error"), ki zahteva veliko število poskusov in nepredvidljiv čas razvoja novega izdelka. Pri tej metodi niti ne vemo, ali je določen lokalni ali globalni optimum recepture. V veliki večini primerov lahko določimo le lokalno izboljšanje. Zato smo se v COLOR-ju odločili za metode strogo kontroliranega statističnega načrtovanja poskusov, ki omogočajo planiran razvoj izdelkov in uspešno modeliranje.

Na podlagi metod statističnega načrtovanja poskusov smo naredili modele in optimizirali recepturo pečnosušečega brezbarvnega premaza z višjo vsebnostjo suhe snovi, to pomeni z manjšo emisijo organskih topil v ozračje.

Kot novost smo v fazi modeliranja uporabili nevronske mreže in dobljeni model primerjali z modelom, ki smo ga dobili z matematičnimi metodami.

2 Metode

Postopek razvoja novega premaza je bil sestavljen iz sledečih faz:

1. Izbira sistema (definicija problema)
 - določitev dejavnikov, ki vplivajo na lastnosti izdelka
 - opredelitev vseh lastnosti izdelka in določitev načina merjenja le-teh, ter določitev območij znotraj katerih želimo posamezne dejavnike spreminjati in optimizirati
2. Izbira vrste eksperimentalnega načrta
3. Izvedba eksperimentov

4. Modeliranje z več metodami

5. Statistična analiza rezultatov dobljenih z različnimi modeli (grafične predstavitve rezultatov)

6. Izbira optimalne recepture.

1. Definicije problema in izbira dejavnikov ter lastnosti

Določiti moramo vse dejavnike, (faktorji, neodvisne spremenljivke, parametri) za katere domnevamo, da vplivajo na kakovost oziroma lastnosti izbranega izdelka. Za vsak dejavnik posebej moramo določiti območje, znotraj katerega dejavnik lahko spreminjamo. To so spodnje in zgornje meje imenujemo nivoje. Izbire vrednosti dejavnikov znotraj teh meja imenujemo nivoje. Izbira nivojev je odvisna od prehodnega poznavanja sistema. Pri tem moramo paziti, da ne izberemo preozkega območja, v katerem ni globalnega maksimuma.

Pri opredelitvi lastnosti (odgovori, odvisne spremenljivke) izdelka si lahko v veliki meri pomagamo z zahtevami po kakovosti, ki jih postavljajo kupci izdelkov ali standardi za posamezne izdelke. Če so lastnosti določene s standardi, so ponavadi določene tudi metode za njihovo merjenje, sicer moramo opredeliti tudi metode merjenja.

Obravnavani sistem smo določili s tremi dejavniki, od tega sta dva sestavni del recepture (koncentracija polimera in koncentracija katalizatorja), tretji pa je temperatura zamreževanja premaza. Slednji je pomemben zato, ker imajo uporabniki različne možnosti zamreževanja premazov. Vse dejavnike smo spreminjali na treh nivojih (+1, 0, -1).

Merili smo 6 lastnosti: trdoto, elastičnost, odpornost na udar in proti udar, odpornost na MIBK in oprijem premaza na podlago. Debelina premaza ter čas zamreževanja premaza sta bila pri vseh poskusih neizpremenjena.

2. Izbira vrste eksperimentalnega načrta

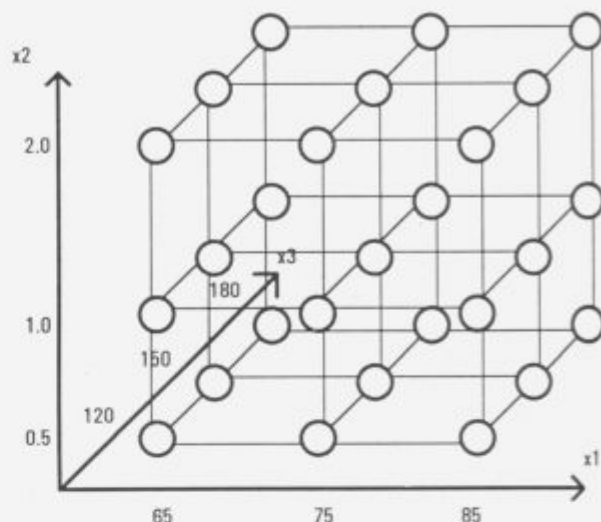
Število eksperimentov v načrtu je odvisno od števila izbranih dejavnikov in števila nivojev posameznega dejavnika^{1,2}. Večje je število dejavnikov in nivojev, več eksperimentov vsebuje potreben načrt. Število eksperimentov pogosto omejuje tudi njihova cena.

Izbrati moramo načrt eksperimentov, ki nam da dober opis spreminjanja lastnosti sistema v odvisnosti od dejavnikov.

Uporabili smo popolni načrt za tri dejavnike na treh nivojih s 27 poskusi (Slika 1).

3. Izvedba eksperimentov

Vse vzorce smo pripravili po eksperimentalnem načrtu in izvedli potrebne meritve za vseh 6 lastnosti pri vsakem vzorcu. Naredili smo 27 poskusov, ki jih določa eksperimentalni načrt in 15 poskusov za validacijo modela in preizkus optimalne točke. Pri izvedbi eksperimentov moramo paziti na dve stvari:



Slika 1: Tronivni načrt za tri dejavnike, ki ga sestavlja 27 eksperimentov.

Figure 1: Three level experimental design for three factors with 27 experimental points.

- ponovljivost eksperimentov,
- vrstni red izvajanja eksperimentov po načrtu (vrstni red izvajanja naj bo naključen).

4. Modeliranje

Modeliranje bi lahko na kratko definirali kot prilagajanje odzivnih površin (response surfaces) eksperimentalnim podatkom. Včasih so modeliranje izvajali predvsem z analitičnimi funkcijami (največ polinomi). Novost v tej fazi postopka in veliko prednost predstavlja modeliranje z nevronske mreže^{5,6}. Nevronske mreže so preprosta računalniška simulacija delovanja nevronske celice (učenja, pomnenja in odločanja). Pri modeliranju z nevronske mreže in s polinomi so vhodni podatki isti. V primeru polinomov je potrebno za vsako lastnost narediti poseben model. Model za vse lastnosti skupaj lahko naredimo šele, ko izvedemo primerno transformacijo merjenih lastnosti (linearna kombinacija vseh lastnosti). Pri nevronske mreže pa lahko modeliramo vse lastnosti z eno samo mrežo.

Obstaja več razlik med polinomskimi in nevronske modeli^{6,7,8}:

Polinomski model:

- za vsako merjeno lastnost potrebujemo poseben model - eksplicitno podano funkcijo,
- funkcija predstavlja neko naravno zakonitost, ki je ovrednotena s kvaliteto parametrov,
- za napovedovanje integralne lastnosti je potrebno narediti še model, ki je v splošnem popolnoma drugačen, kot so ostali modeli posameznih lastnosti

Nevronska mreža:

- za vse posamezne in za integralno lastnost imamo le en model - nevronska mrežo,
- posamezen nevron na izhodnem nivoju podaja vrednosti točno določene lastnosti,
- učenje nevronske mreže poteka istočasno za vse lastnosti.

Pri modeliranju z analitičnimi funkcijami smo uporabili polinome drugega reda.

$$Y_i = A_i x_1 + B_i x_2 + C_i x_3 + D_i x_1 x_1 + E_i x_2 x_2 + F_i x_3 x_3 + G_i x_1 x_2 + H_i x_1 x_3 + I_i x_2 x_3 + J_i$$

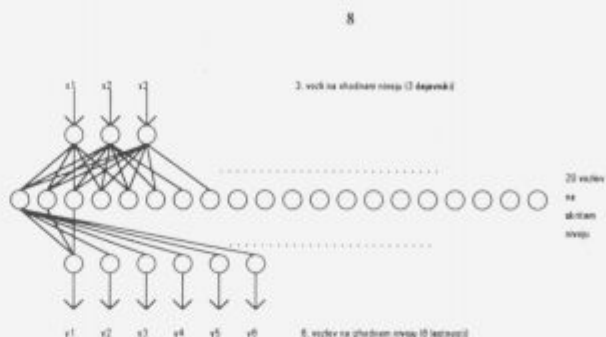
i = lastnosti: trdota, elastičnost, MIBK, udar, kontra udar, oprijem, integralna lastnost.

$A_i, B_i, C_i, D_i, E_i, F_i, G_i, H_i, I_i, J_i$ = izračunani parametri so za vsako posamezno lastnost i različni.

Pri tem smo za vsako lastnost premaza določili drug model. Integralno lastnost premaza, ki je funkcija vseh lastnosti skupaj, smo dobili z uporabo optimizacijskega kriterija. Zanj smo izbrali linearno kombinacijo posameznih lastnosti premaza. Pri tem smo predpostavili, da vse lastnosti enakovredno prispevajo h končni lastnosti premaza. V primeru, da je za določenega kupca ena od lastnosti premaza pomembnejša, damo tej lastnosti večji pomen tako, da ji določimo večjo utež.

Pri modeliranju z nevronske mreže smo uporabili 'back-propagation' algoritem⁵, ki sodi v skupino algoritmov z nadzorovanim učenjem. To pomeni, da mrežo učimo s tem, da spreminjamo njene uteži glede na primerjavo med izračunanimi in eksperimentalnimi vrednostmi. Z nevronske mreže modeliramo tako, da najprej mrežo prilagodimo (učenje mreže) eksperimentalnim podatkom. Nato jo testiramo na podatkih, ki niso bili uporabljeni pri učenju in šele po testu lahko prilagojeno nevronska mrežo (naučena mreža) uporabljamo kot model.

Pred začetkom učenja nevronske mreže izberemo njeno arhitekturo (Slika 2). Vhodni podatki so 3 vhodni nevрони (temperatura, koncentracija katalizatorja in koncentracija polimera), izhodni podatki (6 nevronov) pa so lastnosti premaza (trdota, elastičnost, MIBK test, udar, kontra udar, oprijem). Bolj problematična je določitev števila skritih nivojev in števila nevronov na njih. V našem primeru smo izbrali samo en skriti nivo, ki ga sestavlja 20 nevronov. Na sliki 2 so prikazane samo nekatere povezave med nevroni. Dejansko je vsak nevron vhodnega nivoja povezan z vsakim nevronom skritega nivoja in vsak nevron skritega nivoja je naprej povezan z vsakim vozlom izhodnega nivoja. Arhitekturo nevronske mreže lahko določimo na podlagi izkušenj. Na koncu določimo še vrstni red podajanja vektorjev za treniranje in število iteracij učenja, ki je pogojeno z redom velikosti napak meritev.



Slika 2: Arhitektura nevronske mreže. Krogi predstavljajo nevrone. Narisane so samo nekatere povezave med nevroni, ostale so označene s pikami.

Figure 2: The architecture of the neural network. Neurons are marked with circles. Only some connections between neurons are drawn, the rest of them are marked with dots.

5 Statistična analiza podatkov in grafične predstavitev rezultatov.

Statistična analiza, ki nam odgovori na vprašanji ali je model primeren in kakšna je ponovljivost eksperimentov, je analiza variance¹. Rezultat, ki smo ga dobili, so bili modeli, ki so nam za vsako razmerje dejavnikov napovedali lastnosti premaza. Tako smo lahko na osnovi modela, za vsako točko znotraj preiskovanega prostora, določili recepturo, kot tudi lastnosti premaza.

V tabeli 1 so predstavljene primerjave rezultatov analize variance za polinomske modele in nevronske mreže. Rezultati so podani za posamezne in integralno lastnost.

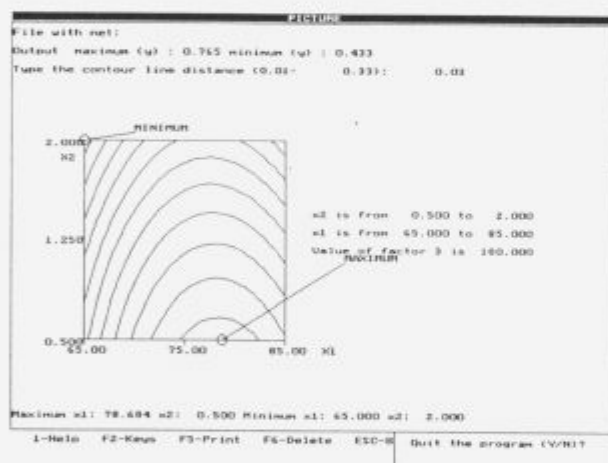
Iz vrednosti v tabeli 1 vidimo, da nevronske mreže predstavljajo boljši model za napovedovanje lastnosti premaznega sredstva. Na osnovi primerjave med F_{lof} in F_{knt} so skoraj vsi modeli, razen kvadratnega in nevronskega modela za oprijem in kvadratnega modela za MIBK, primerni. Primernost izbranih dejavnikov za opis izbranih lastnosti glede na C_3 in C_4 je najboljša v primeru MIBK testa in nato si sledijo vrednosti za oprijem, elastičnost, trdoto, integralno lastnost, kontra udar in udar.

Globalni optimum integralne lastnosti izračunamo pri kvadratnem modelu z odvajanjem, pri nevronske mreže pa na osnovi genetskega algoritma⁹. Predstavitev modela v trodimenzionalnem prostoru je omejena na predstavitev dveh dejavnikov in ene lastnosti istočasno in sicer v obliki kontur (Slika 3) ali trodimenzionalnih grafov. Področje optimalnih lastnosti je področje maksimuma. Vse recepture, katerih točke padejo v to območje, zagotavljajo izdelke podobnih t. j. optimalnih lastnosti. Graf tudi napove, kako

Tabela 1: Rezultati analize variance za polinomske kvadratne modele (Model: kv.p.) in nevronske mreže (Model: n.m.) za modele sledečih lastnosti: trdota, elastičnost, MIBK test, udar, kontra udar, oprijem in integralne lastnosti. C_1 je kvadratni koren povprečja kvadratov napak, C_2 je koeficient variacije, C_3 je korelacijski koeficient, C_4 je določiteni koeficient in C_5 je standardna deviacija.

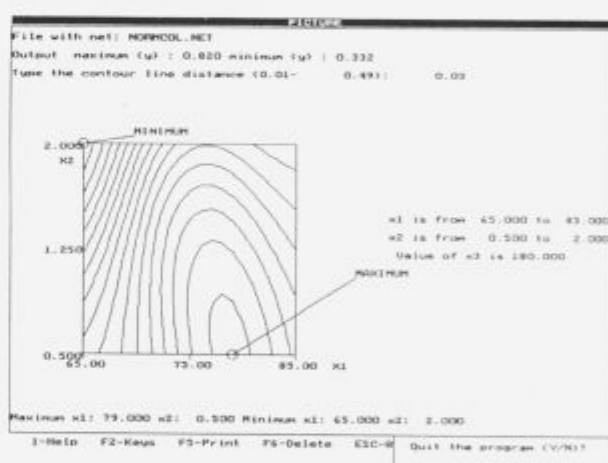
Table 1: Results of analysis of variance for quadratic polynoms (Model: kv.p.) and neural network (Model: n.m.) models for hardness, elasticity, MIBK test, direct impact, reverse impact, adhesion and common property. C_1 is square root of error mean square, C_2 is coefficient of variation, C_3 is correlation coefficient, C_4 is determination coefficient and C_5 is standard deviation.

Lastnost	Model	Flof	Flof-krit.	Freg	C_1	C_2	C_3	C_4	C_5
trdota	kv.p.	1.6	2.317	6.8	29.0	20.9	0.83	0.87	36.11
	n.m.	0.7	2.317	11.9	28.98	20.9	0.83	0.87	24.15
elastičnost	kv.p.	1.8	2.317	12.9	0.4	4.5	0.89	0.92	0.53
	n.m.	1.2	2.317	18.7	0.42	4.5	0.89	0.92	0.39
MIBK test	kv.p.	16.8	5.143	28.7	5.8	6.1	0.99	0.99	22.42
	n.m.	3.1	3.339	145.1	5.82	6.1	0.99	0.99	9.3
udar	kv.p.	0.6	2.317	4.2	17.1	24.4	0.61	0.69	11.44
	n.m.	0.4	2.317	5.1	17.1	24.4	0.61	0.69	8.69
kontra udar	kv.p.	1.3	2.317	3.5	21.9	39.2	0.68	0.75	18.90
	n.m.	1.02	2.317	4.2	21.88	39.24	0.68	0.75	16.24
oprijem	kv.p.	47.2	5.143	3.0	0.1	38.2	0.98	0.99	0.98
	n.m.	25.5	5.143	8.52	0.1	38.2	0.98	0.99	0.65
skupna lastnost	kv.p.	3.2	3.339	1.8	0.1	10.6	0.82	0.86	0.09
	n.m.	0.9	2.317	11.6	0.1	10.6	0.82	0.86	0.05



Slika 3: Kvadratni model integralne lastnosti pri $T=180^{\circ}\text{C}$ v odvisnosti od % katalizatorja (os x_1) in % polimera (os x_2)

Figure 3: Quadric polynom model of common property at 180°C depending on % of catalyst (axis x_1) and % of polymer (axis x_2).



Slika 4: Nevronske mreže model integralne lastnosti pri $T=180^{\circ}\text{C}$ v odvisnosti od % katalizatorja (os x_1) in % polimera (os x_2)

Figure 4: Neural network model at 180°C depending on % of catalyst (axis x_1) and % of polymer (axis x_2).

se bo spreminjala neka lastnost, če spreminjamo dejavnike in obratno.

Na slikah 3 in 4 je prikazana odvisnost integralne lastnosti izdelka od koncentracije polimera in koncentracije katalizatorja pri temperaturi zamreževanja 180°C za polinomski (slika 3) in nevronske mreže model (slika 4). Kot vidimo, je območje optimalnih receptur pri obeh modelih skoraj identično. Vse recepture znotraj tega območja zagotavljajo izdelku (premažu) optimalne lastnosti. Izbiro recepture lahko znotraj določenega območja spreminjamo v odvisnosti od trenutnih pogojev (cene, zaloge) in zahtev tržišča.

Opisani postopek se je izkazal kot zelo uporaben tako za razvijanje popolnoma novih izdelkov, kjer sistemov ne poznamo dobro, kot tudi za izboljševanje že obstoječih izdelkov.

3 Zahvala

Avtorji se zahvaljujemo MZT, ki je delo sofinanciralo.

4 Literatura

1. R.D. Moen, T.W. Nolan, L.P. Provost: Improving Quality Through Planned Experimentation, McGraw-Hill, New York, 1991.
2. G. Taguchi: System of experimental design. Engineering methods to optimise quality and minimise costs, Don Clausing - Technical Editor for the English Edition, UNIPUB - Kraus International Publications White Plains, New York, 1988.
3. J. T. Guthrie, J. Lin, J. Mikac: The Design and Analy-

sis of experiments involving Mixtures: A Model Based on Spline Interpolation', JOCCA, 2 (1992), 66-76.

⁴ K. J. H. Kruithof, H. J. W. van den Haak: 'A Study of Structure-Properties Relationship in Automotive Clearcoat Binders by Statistically Designed Experiments', Journal of Coatings Technology, Vol. 62, No. 790 (1990), 47-52.

⁵ D. E. Rumelhart, N. L. McClelland: Parallel Distributed Processing Exploration in the Microstructure of Cognition, Vols. 1 and 2, MIT Press, Cambridge, MA, 1986.

⁶ J. Zupan, J. Gasteiger: Neural Networks for Chemists: An Introduction, VCH, Weinheim, 1993.

⁷ M. Tušar, J. Zupan, J. Gasteiger: Neural networks in modelling chemistry, J. Chim. Phys, 89 (1992), 1517-1529.

⁸ A. P. Weijer, I. Buydens, g. Kateman, H. M. Heuvel: Neural Network used as a soft modeling technique for quantitative description of relation between physical structure and mechanical properties of polyethylene terephthalene yarns, Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems, 16(1992), 77-86.

⁹ L. Davis: Handbook of genetic algorithms, Van Nostrand Reinhold, New York, 1991.