

- 中文核心期刊
- 中国科技核心期刊
- RCCSE中国核心学术期刊

ISSN 1671-6833
CN 41-1339/T
CODEN ZDXGAN

郑州大学学报

工 学 版

JOURNAL OF ZHENGZHOU UNIVERSITY
ENGINEERING SCIENCE



2019.2

第40卷 第2期
Vo1.40 No.2
2019年3月出版

ISSN 1671-6833



03>

9 771671 683199



郑州大学学报

工 学 版

JOURNAL OF ZHENGZHOU UNIVERSITY
ENGINEERING SCIENCE

编 委 会

特邀编委:

申长雨(中国科学院院士)

何季麟(中国工程院院士)

张孟杰(新西兰惠灵顿维多利亚大学)

刘炯天(中国工程院院士)

金耀初(英国萨里大学)

Kay Chen Tan (香港城市大学)

编委会主任:

邵国胜(郑州大学)

编委(按姓氏笔画为序):

王 凌(清华大学)

王忠勇(郑州大学)

公茂果(西安电子科技大学)

叶国田(郑州大学)

刘国际(郑州大学)

刘春太(郑州大学)

许 群(郑州大学)

李 杰(同济大学)

吴泽宁(郑州大学)

张 涛(北京航空航天大学)

陈伟能(华南理工大学)

陈德良(郑州大学)

单崇新(郑州大学)

贾 瑜(郑州大学)

郭院成(郑州大学)

梁 静(郑州大学)

董 林(郑州大学)

臧双全(郑州大学)

王亚明(郑州大学)

王宗敏(中原工学院)

左其亭(郑州大学)

刘 波(中国科学院数学与系统科学研究院)

刘金盾(郑州大学)

关绍康(郑州大学)

麦立强(武汉理工大学)

李勇平(上海应用物理所)

张 冰(郑州大学)

张少军(郑州大学)

陈静波(郑州大学)

庞新厂(郑州大学)

赵明皞(郑州大学)

高丹盈(河南工程学院)

唐 珂(南方科技大学)

梁长浩(合肥物质科学院)

韩一帆(郑州大学)

潘复生(重庆大学)

目 次

智能计算

- 基于优化极限学习机的 CVD 预测模型研究 逯 鹏, 李奇航, 尚莉伽, 李新建, 张 微(1)
- 基于 ATP-EMTP 的某变电站雷击事故仿真研究 李景丽, 栗超超, 冯 鹏(6)
- 支持 IPv6 试验和部署的新型数据平面结构研究 黄万伟, 杜春锋, 张建伟, 段 通(12)
- 基于卷积神经网络的道路拥堵识别研究 罗荣辉, 袁 航, 钟发海, 聂上上(18)
- 基于成功历史自适应的混合克隆选择算法
..... 张伟伟, 高 奎, 张卫正, 孟颖辉, 王 华, 张秋闻(23)
- 基于学习理论的改进粒子群优化算法 徐 霜, 万 强, 余 珣(29)
- 永磁同步电机全速范围内无位置传感器控制 张 震, 沈学珂, 程 欣(35)
- 线性扩张状态观测滤波器的分析与应用 檀盼龙, 李益敏, 赵相宾, 邵 欣(41)
- 融合社交信息的跨域时序兴趣预测方法 郝志峰, 申 策, 蔡瑞初, 温 雯(48)
- 自助三维导诊系统的研究与实现 黄云辉, 刘笑寒, 姚俊峰, 吕奕清, 陈进春(55)

环境材料及其他

- 聚乙烯亚胺负载四氧化三铁对刚果红的吸附性能 ... 韩润平, 房丽燕, 李小钰, 韩旻媛, 张 征(59)
- 响应面法优化纤维素基载体固定糖化酶的研究
..... 陈俊英, 周航宇, 唐焕妍, 白 净, 赵富强, 李清亮(66)
- 石墨烯/TPU/PDMS 导电复合材料的拉伸敏感性能研究
..... 代 坤, 孔威威, 展鹏飞, 宗继友, 翟 威, 刘春太(72)
- PAN 基弱碱性离子交换纤维对钒的吸附性能研究 ... 马楠楠, 职红涛, 段建榜, 冯 修, 张 翔(77)
- 熔盐法制备钽酸钠超细粉体及其光催化性能研究 贾全利, 闫 帅, 汪 涤, 刘新红(82)
- 基于 LSDV 估计法的中国主要品种能源消费影响碳排放强度效应分析 魏 冉(87)
- 环境湿度对 FAIMS 检测性能的影响
..... 杜 正, 王学峰, 左国民, 朱迎男, 高 适, 张立功, 张永谦, 刘海鹏(92)

CONTENTS

【Computational Intelligence】

A CVD Prediction Model Based on Optimized Extreme Learning Machine	
..... LU Peng, LI Qihang, SHANG Lijia, LI Xinjian, ZHANG Wei (1)	
Simulation Study on Lightning Accident of a Substation Based on ATP-EMTP	
..... LI Jingli, LI Chaochao, FENG Peng (6)	
Research on New Data Plane Structure Supporting IPv6 Test and Deployment	
..... HUANG Wanwei, DU Chunfeng, ZHANG Jianwei, DUAN Tong (12)	
Traffic Jam Detection Based on Convolutional Neural Network	
..... LUO Ronghui, YUAN Hang, ZHONG Fahai, NIE Shangshang (18)	
A Hybrid Clonal Selection Algorithm Based on Success-History Adaptation	
..... ZHANG Weiwei, GAO Kui, ZHANG Weizheng, MENG Yinghui, WANG Hua, ZHANG Qiuwen (23)	
An Improved Particle Swarm Optimization Algorithm Based on Learning Theory ...	XU Shuang, WAN Qiang, YU Li (29)
Sensorless Control of Permanent Magnet Synchronous Motor in Full Speed Range	
..... ZHANG Zhen, SHEN Xueke, CHENG Xin (35)	
Analysis and Application of Linear Extended State Observer Filter	
..... TAN Panlong, LI Yimin, ZHAO Xiangbin, SHAO Xin (41)	
A Cross-domain Temporal Interest Prediction Method by Integrating Social Information	
..... HAO Zhifeng, SHEN Ce, CAI Ruichu, WEN Wen (48)	
Research and Implementation of Self-Help 3D Consultation System	
..... HUANG Yunhui, LIU Xiaohan, YAO Junfeng, LÜ Yiqing, CHEN Jinchun (55)	

【Environmental, Material & Others】

Removal of Congo Red by PEI@Fe ₃ O ₄ Magnetic Composites in Batch Mode	
..... HAN Runping, FANG Liyan, LI Xiaoyu, HAN Minyuan, ZHANG Zheng (59)	
Optimization for Cellulose Carrier Immobilized Glucoamylase by Response Surface Methodology	
..... CHEN Junying, ZHOU Hangyu, TANG Huanyan, BAI Jing, ZHAO Fuqiang, LI Qingliang (66)	
A Study on Tensile Sensitive Behaviors of Graphene/Thermoplastic Polyurethane/ Polydimethylsiloxane Conductive Polymer Composites	
..... DAI Kun, KONG Weiwei, ZHAN Pengfei, ZONG Jiyou, ZHAI Wei, LIU Chuntai (72)	
Adsorption Performance of Weak Alkaline Ion Exchange Fiber for Vanadium	
..... MA Nannan, ZHI Hongtao, DUAN Jianbang, FENG Xiu, ZHANG Xiang (77)	
The Preparation and Photocatalytic Properties of NaTaO ₃ Ultrafine Powders Via a Molten Salt Mediated Method	
..... JIA Quanli, YAN Shuai, WANG Di, LIU Xinhong (82)	
The Impact Evaluation of the Consumption of Main Types of Energy in China on Carbon Emission Intensity Based on LSDV Estimation	
..... WEI Ran (87)	
The Effect of Humidity on FAIMS Detection Performance	
..... DU Zheng, WANG Xuefeng, ZUO Guomin, ZHU Yingnan, GAO Shi, ZHANG Ligong, ZHANG Yongqian, LIU Haipeng (92)	

文章编号: 1671-6833(2019)02-0001-05

基于优化极限学习机的 CVD 预测模型研究

逯 鹏^{1,2}, 李奇航^{1,2}, 尚莉伽³, 李新建¹, 张 微¹

(1. 郑州大学 电气工程学院, 河南 郑州 450001; 2. 互联网医疗与健康服务河南省协同创新中心, 河南 郑州 450001; 3. 北京市东城区中小学卫生保健所, 北京 100007)

摘 要: 利用机器学习算法, 改变传统心血管疾病(CVD)预测模型的严格数理化公式, 以增加危险因素的纳入、降低数据格式的要求. 首先提出利用基于单隐层前馈神经网络(SLFNs)的极限学习机(ELM)算法建立 CVD 预测模型; 进一步通过五阶段连续变异方式建立增强领导粒子的粒子群算法(ELPSO), 以粒子群(PSO)算法的优化策略, 对 SLFNs 的隐层单元参数进行优化. 通过对 UCI 数据库 Statlog (heart) 数据集和 heart disease database 分析结果显示, 所提 ELPSO-ELM 模型测试正确率分别达到 85.71%、84.00%, AUC(ROC 曲线下面积)分别达到 0.902 4、0.842 3, 高于传统 CVD 预测模型, 同时放松了数据线性化约束, 能纳入更多的复杂危险因素.

关键词: 心血管疾病; 风险预测; 极限学习机; 粒子群

中图分类号: TP2

文献标志码: A

doi: 10.13705/j.issn.1671-6833.2018.05.005

0 引言

CVD 已成为致死率第一的慢性病^[1]. 定量预测发病风险, 能有效降低 CVD 的发病率^[2].

经典的 Framingham、SCORE、WHO 等模型^[3]在 10 年发病风险预测中已取得较好的预测效果, 主要建模方法有: 基于疾病流行过程和特征做出趋势性推理的预测法^[4]; 基于疾病危险因素、发病情况的随访队列横断面数据的数理预测法^[5]. 以上方法的核心是 Logistic 回归和 Cox 比例风险回归^[6]. 回归分析方法无法解决多分类因素的拟合问题^[7], 此外, 概率型策略对自变量数据要求较高, 在缺乏大型横断面研究资料时应用困难.

机器学习具有较强的自学习、自适应能力, 能够有效处理医疗信息中模糊、非线性数据^[8], 为解决此类问题提供了新思路. 笔者以构建网络预测模型为切入点, 改变传统公式化预测模型, 建立机器学习模型, 从而拓展模型预测因素, 提高预测能力. 首先建立 ELM^[9]模型; 然后引入 ELPSO 优化算法^[10], 构建 ELPSO-ELM 模型; 最后利用文献[14]、[15]数据集验证模型性能. 实验表明, 所设计算法

的 AUC 值均高于传统模型的 AUC 值(0.76 ~ 0.80), 可见笔者算法能较好地实现 CVD 预测.

1 传统模型问题分析

以 Logistic 回归方法为例.

给定 n 组包含 k 个危险因素的观测样本($x_{i1}, x_{i2}, \dots, x_{ik}; y_i$) ($i = 1, 2, \dots, n$), $y_i = 0$ 表示未得病, $y_i = 1$ 表示得病, 二元 Logistic 回归方程式为:

$$p_i = \frac{\exp(z)}{1 + \exp(z)} \\ = \frac{\exp(\alpha + \beta_1 x_{i1} + \beta_2 x_{i2} + \dots + \beta_k x_{ik})}{1 + \exp(\alpha + \beta_1 x_{i1} + \beta_2 x_{i2} + \dots + \beta_k x_{ik})}. \quad (1)$$

对式(1)取 Logistic 变换, 得 Logistic 回归预测模型:

$$\text{Logit}(p_i) = \ln\left(\frac{p_i}{1 - p_i}\right) \\ = \alpha + \beta_1 x_{i1} + \beta_2 x_{i2} + \dots + \beta_k x_{ik}, \quad (2)$$

式中: α 为回归截距; β_i 为自变量的回归系数. 用最大似然函数法求各参数值.

在回归问题中, 当危险因素必须以多分类定性变量才能完全表述时, 一般顺序赋值为 1、

收稿日期: 2018-05-13; 修订日期: 2018-09-11

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(60841004、60971110、61172152); 郑州市科技攻关资助项目(112PPTGY219-8); 河南省青年骨干教师资助计划(2012GGJS-005)

作者简介: 逯 鹏(1974—), 男, 河南郑州人, 郑州大学副教授, 博士, 主要从事复杂视觉图像信息处理、脑-机接口和医疗大数据方面的研究, E-mail: lupeng@zzu.edu.cn.

2、...、 n , 此时带来的问题包括: ①无序多分类变量被视作连续变量; ②有序多分类变量, 强行规定无法准确衡量类别间差距的变量为等距. 上述问题丢失了数据的真实信息, 模型误差较大. Logistic 回归中, 上述问题可通过人为地设置哑变量^[11] (记作 Dv-Logistic 的方法) 将多分类转换成二分类解决. 但对于包含较多复杂因素的医疗数据, 该方法建模困难且易出错, 无法自动建立预测模型.

2 基于极限学习机和粒子群算法的预测模型

2.1 极限学习机(ELM)

极限学习机(extreme learning machine, ELM)是基于单隐层前馈神经网络^[12]的机器学习算法.

$$\mathbf{H} = \begin{bmatrix} g(w_1 \cdot x_1 + b_1) & g(w_2 \cdot x_1 + b_2) & \cdots & g(w_k \cdot x_1 + b_k) \\ g(w_1 \cdot x_2 + b_1) & g(w_2 \cdot x_2 + b_2) & \cdots & g(w_k \cdot x_2 + b_k) \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ g(w_1 \cdot x_n + b_1) & g(w_2 \cdot x_n + b_2) & \cdots & g(w_k \cdot x_n + b_k) \end{bmatrix}_{n \times k};$$

$$\boldsymbol{\beta} = [\boldsymbol{\beta}_1^T \cdots \boldsymbol{\beta}_k^T]^T_{k \times m}; \mathbf{Y} = [y_1^T \cdots y_n^T]^T_{n \times m}$$

式(5)的最小范式最小二乘解为:

$$\hat{\boldsymbol{\beta}} = \mathbf{H}^+ \mathbf{Y}, \quad (6)$$

式中: \mathbf{H}^+ 为隐层输出矩阵 \mathbf{H} 的 Moore-Penrose 广义逆.

2.2 ELM 模型稳定性改进

2.2.1 问题分析

ELM 随机初始化隐单元参数, 由式(3)知, 随机化过程中可能出现影响较小或无效单元^[9], 需要设置大量的隐单元才能达到理想效果. 而 ELM 测试复杂度为 $O(Nlk^2m)$, N (测试样本数)、 l (输入特征维数)、 m (输出标签维数) 均确定, 为降低复杂度则要求在误差允许范围内 k 尽可能小.

另外, 样本可能存在复共线性问题, 每次 ELM 求解的 Moore-Penrose 广义逆 \mathbf{H}^+ 可能不同, 导致求出的隐层输出权重不同, 使得 ELM 模型泛化能力和预测稳定性不足.

2.2.2 粒子群(PSO)优化算法

针对 ELM 随机初始化隐单元参数导致的问题, 采用基于群体演化的 PSO 算法进行优化.

设 D 维搜索空间有 N 个粒子, 第 i 个粒子位置和速度分别为 $\mathbf{X}_i = (x_{i1}, \cdots, x_{id}, \cdots, x_{iD})$ 和 $\mathbf{V}_i = (v_{i1}, \cdots, v_{id}, \cdots, v_{iD})$, 每个粒子能记忆粒子自身历史最优位置 $\mathbf{P}_i = (p_{i1}, \cdots, p_{id}, \cdots, p_{iD})$ 、个体极值

给定 n 组训练样本 $(\mathbf{x}_i, \mathbf{y}_i)$, $\mathbf{x}_i = (x_{i1}, x_{i2}, \cdots, x_{il})^T$, $\mathbf{y}_i = (y_{i1}, y_{i2}, \cdots, y_{im})^T$ 分别为 l 维输入和 m 维输出, 设定隐单元个数为 k , 则网络模型为:

$$\bar{\mathbf{y}}_j = \sum_{i=1}^k g(\mathbf{x}) \boldsymbol{\beta}_i (\mathbf{w}_i \cdot \mathbf{x}_j + b_i), \quad (3)$$

式中: $g(\mathbf{x})$ 为激活函数; $\boldsymbol{\beta}_i$ 为第 i 个隐单元的输出质重; \mathbf{w}_i 为第 i 个隐单元的输入权重; b_i 为第 i 个隐单元的阈值.

极限学习机能够使输出值 $\bar{\mathbf{y}}_j$ 以零误差逼近真实值 \mathbf{y}_j , 即存在 $\boldsymbol{\beta}_i$ 、 \mathbf{w}_i 和 b_i , 使得

$$\mathbf{y}_j = \sum_{i=1}^k g(\mathbf{x}) \boldsymbol{\beta}_i (\mathbf{w}_i \cdot \mathbf{x}_j + b_i). \quad (4)$$

表示为矩阵形式, 为:

$$\mathbf{H}\boldsymbol{\beta} = \mathbf{Y}, \quad (5)$$

式中: \mathbf{H} 为隐层输出矩阵; \mathbf{Y} 为模型输出矩阵.

p_{best} 、群体历史最优位置 $\mathbf{P}_g = (p_{g1}, \cdots, p_{gd}, \cdots, p_{gD})$ 和全局极值 g_{best} , 每次迭代过程中, 粒子速度和位置分别通过方程(7)、(8)更新,

$$v_{id}(t+1) = \omega v_{id}(t) + c_1 r_1 (p_{id} - x_{id}) + c_2 r_2 (p_{gd} - x_{id}); \quad (7)$$

$$x_{id}(t+1) = x_{id}(t) + v_{id}(t+1), \quad (8)$$

式中: ω 为惯性权重; c_1 、 c_2 为学习因子; r_1 、 r_2 为 $[0, 1]$ 上相互独立的随机数.

针对 PSO 易过早收敛陷入局部最优且无法自动跳进的问题, 采用增强领导粒子的 PSO 算法(enhanced leader PSO, ELPSO), 通过提高群体领导粒子的质量, 增强 PSO 的搜索性能.

2.3 ELPSO-ELM 混合智能算法

以 ELM 的输入权重矩阵 \mathbf{w}_i 和隐单元阈值 b_i 为 ELPSO 的粒子, 设计 ELPSO-ELM 算法模型.

算法 1 ELPSO-ELM 算法

输入: 数据集实例 $(\mathbf{x}_i, \mathbf{y}_i)$

输出: 概率矩阵 \mathbf{Y}

Step1: 初始化算法参数. 粒子群规模 N 为 40, 迭代次数 $t_{\text{max}} = 30$, 惯性权重 $\omega_{\text{max}} = 0.9$ 、 $\omega_{\text{min}} = 0.4$, $c_1 = c_2 = 2$, r_1 、 r_2 为 $[0, 1]$ 上随机数; ELM 隐单元个数 k 设定为 20. PSO 维数计算公式为 $D = k(n+1)$, n 为每个粒子的维数. 第 i 个粒子

表示为: $\theta^i = [\omega_{11}^i, \dots, \omega_{1k}^i \dots \omega_{n1}^i, \dots, \omega_{nk}^i, b_1^i, \dots, b_k^i]$, ω^i, b^i 取值范围分别为 $[-1, 1]$ 、 $[0, 1]$ 。

Step2: 选择 sigmoid 函数为 ELM 算法的激活函数, 根据式 (3) ~ (5) 计算输出权重矩阵, 反推得到输出矩阵 Y' , 计算 Y' 与训练数据真实值 Y 的均方根误差 (RMSE), 以 RMSE 为粒子的适应度值, 以具有较小适应度值的粒子为更优粒子^[13]。

Step3: 根据式 (7)、(8) 更新粒子。ELPSO 算法中, 每次迭代过程中对领导粒子 P_g 依次进行五阶段连续变异, 分别为 Gaussian 变异、Cauchy 变异、 P_g 各维 opposition-based 变异、 P_g 整体 opposition-based 变异和 DE-based 变异, 每次变异选取适应度值最小的粒子为种群领导粒子。

Step4: 判断是否达到最大迭代数。若达到, 则输出全局最优粒子; 若未达到, 先利用式 $\omega = \omega_{\max} - (\omega_{\max} - \omega_{\min}) \times t/t_{\max}$ 更新惯性权重, 再返回 Step2 继续执行。

Step5: 最终 ELPSO 输出的粒子即为 w_i 和 b_i 的最佳取值, 再用 ELM 建立预测模型, 导入测试数据进行回归计算, 得到真实数据集的预测结果。

3 实验分析

3.1 数据集

以 UCI 机器学习库的 Statlog (Heart)^[14] 数据集和 Heart Disease Database^[15] 验证模型, 两数据集分别包含 270 和 820 组实例, 每组实例包含 13 个属性和 1 个分类标签值。数据的属性如表 1。

表 1 数据集共同的特征属性

Tab. 1 The same attributes in two datasets

编号	属性名	类型	编号	属性名	类型
1	Age	连续	8	Thslach	连续
2	Sex	二分类	9	Exang	二分类
3	Cp	四分类	10	Oldpeak	连续
4	Trestbps	连续	11	Slope	有序三分类
5	Chol	连续	12	Ca	连续
6	Fbs	二分类	13	Thal	三分类
7	Restecg	三分类	14	标签值	1 - 不得病 2 - 得病

3.2 实验设计

实验一: 利用二元 Logistic 回归分析训练数据, 求得参数 $(\alpha, \beta_1, \dots, \beta_{11})$ 值, 根据式 (1) 建立 Logistic 预测方程, 代入测试数据的属性值, 对比所得预测值与真实标签值计算出预测正确率。

实验二: 对多分类属性设置哑变量, 然后对数

据利用实验一方法进行 Logistic 回归分析。

实验三: 利用 ELPSO-ELM 对原始数据进行实验, 算法参数初始化如 Step1。因 ELPSO 每次寻优参数不同, 导致模型预测结果有所波动, 因此选择 30 次预测结果的均值作为最终值。

实验四: 为保证在同一计算代价下验证算法, 组建 ELM 随机搜索组合算法 (ELMs)。ELPSO-ELM 单次运行适应度值的评价次数为 $(40 + 5) \times 30$; 组合 PSO-ELM 算法作对比, 其粒子规模设置为 30、迭代 45 次; ELMs 算法中每次 ELM 运行次数为 45×30 次, 选择其中训练误差最优的测试结果作为 ELMs 算法的输出。

3.3 实验结果

(1) 统计 Logistic、Dv-Logistic、ELM、ELMs、PSO-ELM、ELPSO-ELM 模型各 30 组预测结果的真阳性 (TP)、假阳性 (FP)、真阴性 (TN)、假阴性 (FN), 利用均值计算灵敏度、特异性及正确率, 结果见表 2。

(2) ROC 曲线。利用受试者工作特征曲线 (ROC)^[16] 评定预测模型性能, 以 AUC 大小表示 ROC 曲线结果的好坏。AUC 值在 0.5 ~ 0.7 时具有较低的准确性, 在 0.7 ~ 0.9 时具有一定的准确性, 在 0.9 以上时具有较高的准确性。各模型 ROC 曲线如图 1。

3.4 ELPSO-ELM 模型性能参数分析

3.4.1 ELPSO 参数分析

(1) 惯性权重 ω 。 ω 一般取值在 $[0, 1]$, 稍大的 ω 利于扩大群体搜索范围, 稍小的 ω 利于收敛到最优位置。据此, 使 ω 值随迭代次数线性变小, 以保证 ELPSO 具有最优的效果。

(2) 学习因子 c_1, c_2 。由式 (7) 知, c_1 过大则粒子较多地在局部范围搜索, c_2 过大则粒子过早收敛, 结合大量实验, 最终选定 $c_1 = c_2 = 2$ 。

(3) 粒子群规模。一般优化问题在 $[20, 50]$ 取值, 粒子数量设置过小, 对结果偏差影响较大。综合考虑 ELPSO 的优化维度, 平衡模型稳定性、正确率和快速性, 将粒子数设置为 40。

3.4.2 ELM 参数及结果影响

由于 ELM 随机初始化隐单元参数, 预测模型稳定性较低。在各模型最佳隐单元个数下做 30 次重复实验, 预测结果以方差表示, 如表 2。

对比各模型方差可知, ELM 结果波动较大, 且正确率不高; ELMs 因选择多次运行中的最优值, 结果变动不大, 但正确率不高; ELPSO-ELM 在保证模型稳定性的同时较大地提高了正确率。

表 2 各模型预测结果对比

Tab. 2 Results contrast of each prediction model

数据集	算法	隐单元数	TP	FP	TN	FN	灵敏度 / %	特异性 / %	正确率 / %	AUC	预测结果方差 / %
Statlog (Heart)	Logistic	—	20	3	28	19	51.28	90.32	68.57	0.763 4	—
	Dv-Logistic	—	28	1	30	11	71.80	96.77	82.86	0.878 4	—
	ELM	130	21	4	27	18	53.85	87.10	70.00	0.784 1	64.299
	ELMs	130	26	3	28	13	66.67	90.32	77.14	0.832 1	5.736
	PSO-ELM	50	27	6	25	12	69.23	80.65	74.28	0.795 7	31.162
	ELPSO-ELM	20	30	1	30	9	76.92	96.77	85.71	0.902 4	12.032
Heart Disease Database	Logistic	—	60	31	107	52	53.57	77.55	66.80	0.670 0	—
	Dv-Logistic	—	81	19	119	31	72.32	86.23	80.00	0.799 9	—
	ELM	150	59	35	103	53	51.79	74.64	64.80	0.642 3	59.670
	ELMs	150	76	28	110	36	67.85	79.71	74.40	0.720 1	3.446
	PSO-ELM	60	73	18	120	39	65.18	86.96	77.20	0.736 7	28.327
	ELPSO-ELM	20	87	15	123	25	77.68	89.13	84.00	0.842 3	7.051

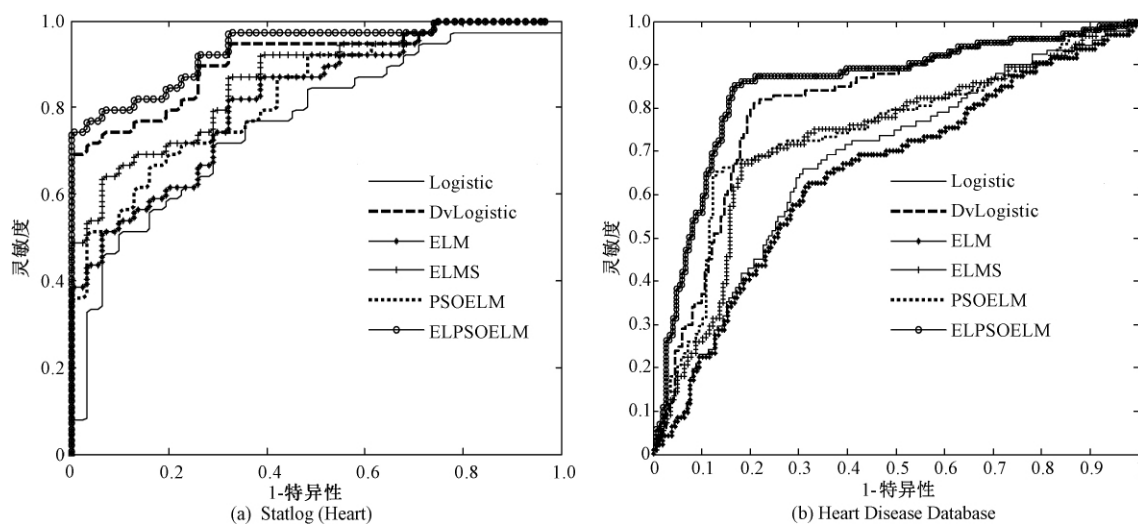


图 1 ROC 曲线图对比

Fig.1 Comparison of ROC curves

以 Statlog (Heart) 数据集为例. 在相同的计算代价下, ELM 隐单元个数对模型的影响如表 3.

表 3 隐单元个数对模型性能影响

Tab.3 Influence of models performance by the number of hidden neurons

隐单元个数	准确率 / %			运行时间 / s		
	ELMs	PSO-ELM	ELPSO-ELM	ELMs	PSO-ELM	ELPSO-ELM
10	70.00	70.00	82.86	36.71	29.37	35.69
20	72.86	70.00	85.71	37.79	31.05	40.18
40	71.43	71.43	84.28	38.69	35.82	42.89
50	72.86	74.28	84.28	39.82	37.47	49.12
130	77.14	70.00	81.42	47.27	48.60	79.34
150	74.28	68.57	78.57	50.88	52.09	85.08

4 结论

(1) 对多分类变量设置哑变量能较大地提高 Logistic 回归模型的正确率.

(2) 提出的 ELPSO-ELM 模型, 在避免设置哑变量出现人为误差和较大工作量的同时, 提高了模型预测正确率, AUC 值大于或接近 0.9, 准确率较高.

(3) 利用 ELPSO 优化 ELM, 相对于 ELM 方法和标准 PSO 优化方法, 减少了隐层单元数目, 提高了正确率, 进一步证明所提方法的有效性.

(4) 实验中, 粒子群优化的计算维度达到 240 维, 提高了数据处理复杂性, 且 ELPSO 五阶段连续变异策略需进行大量迭代搜索, 在提高模型稳定性和预测正确率的同时一定程度上降低了 ELM 的速度.

参考文献:

- [1] 陈伟伟,高润霖,刘力生,等. 中国心血管病报告 2013 概要 [J]. 中国循环杂志, 2014, 29(7): 487 – 491.
- [2] COHNJ N. Prevention of cardiovascular disease [J]. Trends in cardiovascular medicine, 2015, 25(5): 436 – 442.
- [3] ZHAO D, LIU J, XIE W X, et al. Cardiovascular risk assessment: a global perspective [J]. Nature reviews cardiology, 2015, 12(5): 301 – 311.
- [4] HERVAS R, FONTECHA J, AUSIN D, et al. Mobile monitoring and reasoning methods to prevent cardiovascular diseases [J]. Sensors, 2013, 13(5): 6524 – 6541.
- [5] GAMMON K. Mathematical modelling: forecasting cancer [J]. Nature, 2012, 491(7425): S66 – 67.
- [6] KLEBER M E, DELGADO G, GRAMMER T B, et al. Uric acid and cardiovascular events: a mendelian randomization study [J]. Journal of the American society of nephrology, 2015, 26(11): 2831 – 2838.
- [7] ALEXANDRE C M, FARDN. Binary logistic regression and PHM analysis for reliability data [J]. International journal of reliability, quality and safety engineering, 2014, 21(5): 1 – 30.
- [8] DEO R C. Machine learning in medicine [J]. Circulation, 2015, 132(20): 1920 – 1930.
- [9] HUANG G B, ZHOU H, DING X J, et al. Extreme learning machine for regression and multiclass classification [J]. IEEE transactions on systems, man and cybernetics, Part 6, 2012, 42(2): 513 – 529.
- [10] JORDEHI A R. Enhanced leader PSO (ELPSO): a new PSO variant for solving global optimization problems [J]. Applied soft computing, 2015, 26: 401 – 417.
- [11] TSOUAC M, CHIS P, HUANG D Y. Edlrte: Entropy-based dummy variables logistic regression tree [J]. Intelligent data analysis, 2010, 14(6): 683 – 700.
- [12] MAN Z H, KEVIN L, WANG D H, et al. A new robust training algorithm for a class of single-hidden layer feed-forward neural networks [J]. Neurocomputing, 2011, 74(16): 2491 – 2501.
- [13] 王杰, 裴群康, 彭金柱. 极限学习机优化及其拟合性分析 [J]. 郑州大学学报(工学版), 2016, 37(2): 20 – 24.
- [14] Statlog (Heart) Data Set [B/OL]. (2004) [2016-05-20]. [http://archive.ics.uci.edu/ml/datasets/Statlog + Heart](http://archive.ics.uci.edu/ml/datasets/Statlog+Heart).
- [15] Heart Disease Data Set [B/OL]. (1988-7) [2016-05-20]. [http://archive.ics.uci.edu/ml/datasets/Heart + Disease](http://archive.ics.uci.edu/ml/datasets/Heart+Disease).
- [16] KHREICH W, GRANGER E, MIRI A, et al. Adaptive ROC-based ensembles of HMMs applied to anomaly detection [J]. Pattern recognition, 2012, 45(1): 208 – 230.

A CVD Prediction Model Based on Optimized Extreme Learning Machine

LU Peng^{1,2}, LI Qihang^{1,2}, SHANG Lijia³, LI Xinjian¹, ZHANG Wei¹

(1. School of Electrical Engineering, Zhengzhou University, Zhengzhou 450001, China;

2. Collaborative Innovation Center of Internet Medical and Healthcare in Henan, Zhengzhou 450001, China;

3. Primary and Secondary School Health Care in Beijing Dongcheng District, Beijing 100007, China)

Abstract: In order to increase the risk factors that could be accepted and reduce the data format requirements in cardiovascular disease (CVD) prediction models, machine learning algorithms were used to change the strict mathematical formulas of traditional CVD prediction models. Firstly, a CVD prediction model by extreme learning machine (ELM) algorithm based on single hidden layer feed-forward neural network (SLFNs) was proposed. Further more, an enhanced leader particle swarm optimization (ELPSO) through a five-staged successive mutation method was used, and the optimized strategy of PSO was also used to optimize the SLFNs hidden layer units parameters. The analysis results on Statlog (Heart) dataset and Heart Disease Dataset of UCI database indicated that the test accuracy of proposed ELPSO-ELM model could reach 85. 71% and 84. 00% respectively, the AUC (The area under the ROC curve) could reach 0. 902 4 and 0. 842 3 respectively. They were higher than conventional CVD prediction models. The proposed model relaxed the linear constraints of data format and more complex risk factors could be accepted.

Key words: cardiovascular disease; risk assessment; extreme learning machine; particle swarm optimization

文章编号: 1671-6833(2019)02-0006-06

基于 ATP-EMTP 的某变电站雷击事故仿真研究

李景丽¹, 栗超超^{1,2}, 冯 鹏^{1,2}

(1. 郑州大学 电气工程学院, 河南 郑州 450001; 2. 郑州大学 产业技术研究院, 河南 郑州 450001)

摘 要: 由于输电线路地处旷野, 落雷频繁, 雷电波沿线路侵入变电站从而损坏站内电气设备的事故频发. 本文以某变电站的雷击事故为例, 使用 ATP-EMTP 电磁暂态软件建立包含进线段和变电站的整体模型, 仿真计算出主变及其他电气设备的雷电过电压及波形, 分析该站遭受雷击事故的主要原因, 并研究雷击点、杆塔接地电阻对站内设备过电压的影响, 最后提出相应的防护措施. 结果表明, 事故的发生与雷电电流侵入波幅值过大、避雷器的安装位置距变压器较远有关, 在变压器前加装避雷器可有效避免此类事故.

关键词: 雷电侵入波; 事故分析; 变电站; 避雷器安装位置; ATP-EMTP

中图分类号: TM 863

文献标志码: A

doi: 10.13705/j.issn.1671-6833.2019.02.002

0 引言

我国某些地理位置特殊的地方雷电活动频繁, 处于此区域的变电站易发生雷击事故. 变电站作为输电网络的枢纽, 有汇集和分配电能的重要作用, 若其发生雷击事故将造成大面积停电, 不利于电网稳定运行. 经研究分析, 有两个原因引起变电站雷击事故: 一是雷电直击变电站的主要设备引起绝缘击穿; 二是雷击避雷线或杆塔塔顶, 雷电电流沿输电线路侵入变电站, 其中后者是造成变电站雷击事故的主要方式^[1], 因此需对雷电侵入波引起的变电站雷击事故进行仿真研究, 并根据结果提出相应的防范措施.

目前关于变电站雷电过电压的研究方法集中在现场试验、补偿法和数字仿真软件计算这三方面. 文献[2]研制出防雷分析仪进行现场模拟试验, 在距离变电站 2 km 处施加直角波, 幅值为绝缘子 50% 的闪络电压, 再用相关仪器测量站内设备的过电压波形. 由于雷电电流作用时间短至数十微秒, 所以对仪器的精度要求极高, 且成本高难以重复试验. 文献[3]应用戴维南定理把除避雷器的其他电气设备等效为有源二端网络, 构成一个有电压源和阻抗的等值电路, 之后避雷器的放电电流用迭代法求解出具体数值, 最后在叠加原理

的基础上, 计算避雷器支路网络的真解. 文献[4-8]应用电磁暂态计算程序 EMTP, 建立含有输电线路、杆塔、绝缘子、避雷器、等效站内设备电容的整体模型, 通过仿真计算得出作用在设备上的过电压波形, 该方法求解速度快、可满足工程上对精度的要求.

笔者结合变电站电气主接线图及现场设备的实际情况, 通过 ATP-EMTP 仿真软件构建包含进线段及站内设备的模型, 观察变压器上的过电压峰值及波形, 得出事故与雷电电流侵入波的幅值过大、避雷器的安装位置距变压器较远有关, 再详细分析雷击点、杆塔接地电阻等因素对主要电气设备上过电压的影响, 最后提出防护措施.

1 变电站电气主接线

图 1 是变电站电气主接线简图. 发电机组经过一、二号主变向 66 kV 母线供电, 母线上有两路出线, 分别为甲、乙两线, 母线上安装有无间隙氧化锌避雷器, 与发生事故的变压器电气距离为 40 m. 主变与母线之间及每回出线都装有断路器 (DB) 和隔离开关 (DS). 事故发生时, 乙线处于热备用状态, 此时的运行方式为雷击情况下最危险的单相单母线式.

收稿日期: 2018-04-26; 修订日期: 2018-09-19

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (51307152)

作者简介: 李景丽 (1983—), 女, 河南周口人, 郑州大学副教授, 博士, 研究领域为电磁场数值计算方法、电力系统过电压及接地技术、高电压及绝缘技术, E-mail: lijingli1022@zzu.edu.cn.

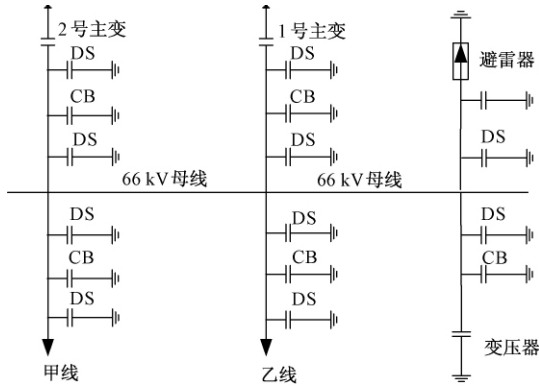


图1 电气主接线图

Fig. 1 Electrical main wiring diagram

2 建立模型与选择参数

笔者针对该站雷击事故,采用 ATP-EMTP 软件建立雷电波侵入变电站的仿真模型.此模型分为进线段模块和站内设备模块,进线段模块含有雷电流模型、杆塔及绝缘子模型、输电线路模型;站内设备模块包含变压器及主要电气设备模型、导线模型、避雷器模型.

2.1 雷电流模型

在防雷计算中,常用的模拟雷电流波形有双指数波、斜角波和半余弦波.笔者选用能较精确模拟实际雷电流的双指数波,其数学表达式为:

$$i_L(t) = AI_L(e^{-\alpha t} - e^{-\beta t}), \quad (1)$$

式中: I_L 为雷电流幅值; A 为常数; α 和 β 分别为波头、波尾衰减系数.

雷电流波形取为 $2.6/50 \mu s$,雷电通道的波阻抗取 300Ω .雷电流模型、参数设置如图2所示.

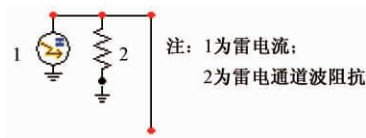


图2 雷电流仿真模型

Fig. 2 Lightning current simulation module

2.2 杆塔模型

杆塔的仿真模型分为以下3种:集中电感模型、单波阻抗模型及多波阻抗模型.其中多波阻抗模型综合考虑杆塔几何结构、海拔高度等因素,能更准确地模拟雷电波在杆塔上的传播特性,因此笔者采用多波阻抗模型^[9].此杆塔模型用无损线路来模拟雷电波的衰减过程;用 $R-L$ 并联电路来实现不同频域时衰减能力迥异的特性,具体推导公式如下:

$$R_i = \frac{-2Z_{i1} \ln \sqrt{\gamma}}{h_1 + h_2 + h_3} h_i, \quad i = 1, 2, 3; \quad (2)$$

$$R_4 = -2Z_{i4} \ln \sqrt{\gamma}; \quad (3)$$

$$L_i = \frac{2(h_1 + h_2 + h_3 + h_4) \alpha R_i}{v_i}, \quad i = 1, 2, 3, 4; \quad (4)$$

$$Z_{Tk} = 60 \left(\ln \frac{2\sqrt{2}h_k}{r_{ek}} - 2 \right), \quad k = 1, 2, 3, 4, \quad (5)$$

式中: h_1 、 h_2 、 h_3 、 h_4 分别为塔顶到上横担、上横担到中横担、中横担到下横担和下横担到地面的距离; R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 为对应的阻尼电阻; γ 为衰减系数; α 为阻尼系数; v 为传播速度; r_{ek} 为每一部分的等效半径,可由下式计算,

$$r_{ek} = 2^{1/3} (r_{Tk}^{1/3} r_B^{2/3})^{1/4} (R_{Tk}^{1/3} R_B^{2/3})^{3/4}. \quad (6)$$

该站进线段杆塔为单根避雷线同塔双回铁塔.该电压等级的杆塔呼称高为 12 m ;绝缘子串的闪络电压 $U_{50\%}$ 为 520 kV ;杆塔的冲击接地电阻一般为 $7 \sim 15 \Omega$ ^[10-14].根据杆塔各部分海拔高度,将杆塔分成4部分并计算各部分的等效值,如表1所示.

表1 杆塔模型等效计算参数

Tab. 1 Tower model equivalent calculation parameters

项目	1	2	3	4
波阻抗 Z_{ii}/Ω	220	220	220	110
阻尼电阻 R_i/Ω	26.2	26.2	26.2	53.5
阻尼电感 $L_i/(\times 10^{-8} \text{ H})$	157.2	157.2	157.2	321

2.3 输电线路模型

ATP-EMTP 软件中输电线路的模型含有连续换位、不换位线路、贝杰龙等值电路模型及随频率变化的 JMarit、NODA 线路模型,其中 JMarit 模型应用于求解频变参数线路,且考虑地线与导线间的耦合系数,提高了计算精度,因此选择 JMarit 模型来模拟输电线路.输电导线及避雷线的具体参数如表2所示.土壤电阻率为 $100 \Omega \cdot \text{m}$,系统频率 50 Hz ,进线段2#~5#号杆塔档距为 400 m ,1#杆塔到变电站距离为 100 m .

表2 输电线路及避雷线的具体参数

Tab. 2 Specific parameters of transmission lines and lightning conductors

物理参数	输电导线	避雷线
型号	LGJ-240/30	GJ-50
分裂数	1	1
20 °C 直流电阻/($\Omega \cdot \text{m}$)	0.118 1	0.578 6
弧垂/m	5.3	2.8

2.4 避雷器模型

该变电站内与母线相连的避雷器型号为 Y10W1-90/232. 表 3 是该无间隙金属氧化锌避雷器的伏安特性. 从表 3 可知避雷器动作电压为 104 kV, 5 000 kA 雷电流下避雷器的残压为 232 kV.

表 3 避雷器的伏安特性

Tab.3 Arrester volt-ampere characteristics				
电流/A	0.001	1 000	5 000	10 000
电压/kV	104	180	232	235

2.5 站内电气设备模型

雷电冲击波具有传播速度快且频率高的特性, 变压器绕组的振荡过程在数微秒的雷电侵入波下未及时发展, 因此仿真计算中变压器及其他电气设备通常采取入口电容等效. 各类设备等效入口电容^[10]如表 4 所示. 站内母线和设备间的连接线采用单相无损分布参数线路来模拟, 波阻抗值均取为 300 Ω , 波速取 300 m/ μ s.

表 4 各类电气设备的入口电容及绝缘水平

Tab.4 Ingress capacitance and insulation level of various types of electrical equipment		
电气设备	等效入口电容/pF	雷电冲击耐受电压/kV
变压器	2 000	350
CVT	400	
电磁式 TV	100	
断路器	300	
隔离开关	100	
电流互感器	50	

3 仿真结果及分析

依据该站的实际情况建立模型后, 进而研究雷击杆塔塔顶反击形成的雷电侵入波对变电站内设备过电压的影响.

3.1 雷击事故原因分析

根据现场工况搭建模型, 设定雷击点在 1#杆塔, 杆塔冲击接地电阻为 10 Ω . 计算幅值为 58 ~ 200 kA 的雷电流作用下变压器过电压情况, 如表 5 所示.

由表 5 可知, 幅值低于 60 kA 的雷电流未引起杆塔绝缘子串闪络, 故不会有反击后的雷电流侵入站内变压器, 但变压器的过电压峰值仍有 116 kV. 原因是雷电流在避雷线上传播时, 对未闪络线路引起的感应过电压. 雷电流幅值增至 60 kA 时, 杆塔绝缘子串被击穿以致雷电流侵入

表 5 雷电流幅值对变压器过电压的影响

Tab.5 Influence of lightning current amplitude on transformer overvoltage

雷电流幅值/kA	大于等于雷电流概率/%	变压器过电压峰值/kV	额定冲击耐受电压峰值/kV	绝缘裕度/%
58	21.92	116	350	未闪络
59	21.36	116		未闪络
60	20.81	279		8.33
62	19.74	280		8.00
64	18.74	282		7.34
66	17.78	286		6.03
68	16.88	290	350	4.71
70	16.02	295		3.07
75	14.05	306		-0.55
80	12.33	317		-4.16
100	7.31	352		-15.66
200	0.53	476		-56.40

注: 绝缘裕度 $K_p(\%) = (U_p - U_M) / U_p \times 100\%$;
 $U_p = U_{BIL} / K$; $K = 1.15$.

到变电站内, 变压器上过电压峰值达到 279 kV, 设备绝缘裕度仅为 8.33%. 雷电流幅值为 75 kA 时, 设备绝缘裕度为 -0.55%, 已不符合设备绝缘保护要求. 随着雷电流幅值增大, 绝缘裕度负值最大为 56.40%.

图 3 为变压器过电压在不同雷电流幅值下的波形. 图 3(a) 中由于雷电流未侵入到变电站内, 变压器上过电压峰值较小、衰减快, 未对变压器的绝缘造成影响. 图 3(b) ~ (c) 中随着雷电流幅值的增大, 变压器上过电压峰值持续增加, 过电压波形振荡加剧、衰减速度慢, 易造成变压器绝缘击穿. 说明幅值较大的雷电流侵入到变电站时, 母线避雷器虽然正常动作, 但仍易引起雷击事故.

动作后的避雷器仍不能保护变压器, 笔者继续对避雷器的保护距离做仿真分析, 由 DL/T 620—1997《交流电气装置的过电压绝缘配合》规程知, 该站进线路为两路时, 避雷器的最大电气保护距离为 65 m, 进线路数只有一路时, 避雷器最大电气保护距离为 45 m. 但避雷器最大保护距离与侵入波陡度及波速、避雷器残压、设备电容等参数有关, 且需考虑避雷器已运行较长时间、设备老化等因素. 由于避雷器保护距离并不一定适用于一个通用的规定, 所以需要借助仿真软件, 确定准确的防护距离.

事故发生时, 变压器处于单线单母线的运行方式, 母线避雷器与变压器相距 40 m. 设定雷击

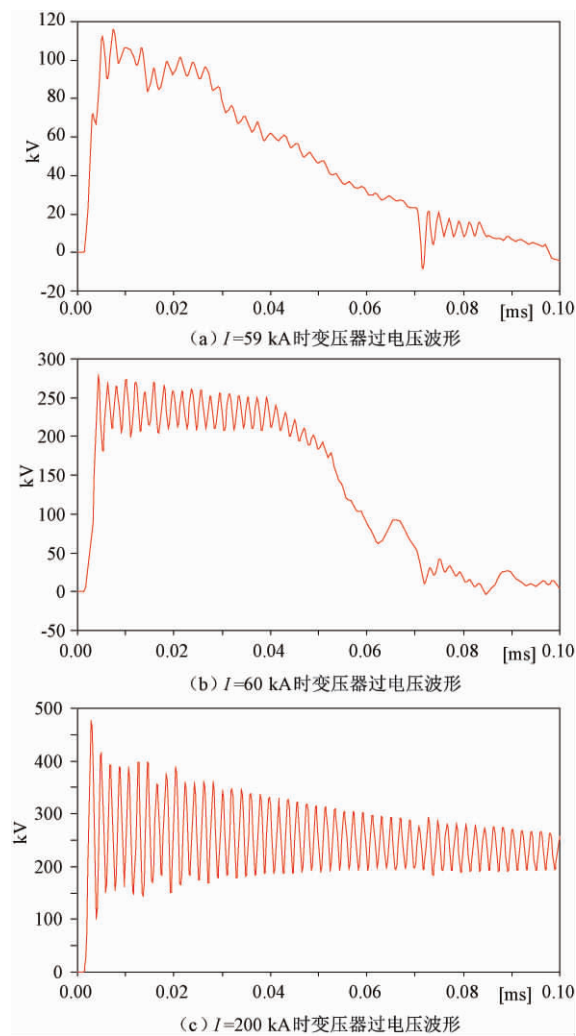


图 3 雷电流幅值对变压器过电压波形的影响

Fig.3 Influence of lightning current amplitude on overvoltage waveform of transformer

1#杆塔,杆塔的冲击接地电阻取 $10\ \Omega$,为确保绝缘子串闪络,反击雷电流幅值取 75 kA . 避雷器安装位置对变压器保护性能的影响如表 6 所示.

表 6 母线避雷安装位置对变压器过电压的影响

Tab.6 Influence of installation position of busbar lightning on overvoltage of transformer

避雷器及与变压器的 相对位置 /m	变压器	绝缘裕度 /%
10	258	15. 23
20	276	9. 31
30	287	5. 70
40	306	击穿
50	321	击穿
60	340	击穿

由表 6 所知,当雷电流为 75 kA 时,变压器与避雷器相距 40 m 便会被击穿,引起雷电入侵波损坏变压器事故. 当避雷器与变压器相距 30 m 时,变压器上的绝缘裕度也仅为 5.7% ,随着避雷

器与变压器距离增大,变压器上的过电压逐渐增大,保护裕度逐渐减小,避雷器的保护性能亦越弱. 表明当避雷器安装位置距变压器较远时,避雷器对变压器的保护性能较低,因此安装避雷器时要尽量靠近变压器侧,以增强避雷器对变压器的保护性能.

综上所述,雷电流侵入变电站内使变压器发生击穿,与雷电流侵入波的幅值过大,超出母线避雷器的保护能力有关,另一方面,该站母线避雷器保护距离小于 40 m (避雷器与变压器的实际距离),使得避雷器不能对变压器进行有效的过电压保护,导致事故发生.

3.2 雷击点对站内设备过电压的影响

雷击点选为进线段的 1#~5#杆塔,通过对不同雷击点的仿真计算得到变电站内主要设备的侵入波过电压幅值. 该变电站进线段耐雷水平为 60 kA ,为确保绝缘子闪络,反击雷电流幅值取 75 kA ,杆塔冲击接地电阻取 $10\ \Omega$,避雷器与变压器相距 40 m . 雷击点对变电站内设备的过电压影响如表 7 所示.

表 7 雷击点对变电站内主要设备过电压的影响

Tab.7 Influence of lightning strike point on overvoltage of main equipment in substation

雷击点	主要设备上的过电压 /kV		
	断路器	隔离开关	变压器
1#杆塔	303	301	305
2#杆塔	239	234	242
3#杆塔	229	224	232
4#杆塔	225	223	227
5#杆塔	226	225	228

由表 7 知,雷击点与变电站的距离会对站内设备上的过电压产生影响. 雷击 1#杆塔造成的反击过电压最大,变压器上过电压能达到 305 kV ; 雷击 2#~5#杆塔产生的过电压逐渐减小,相比 1#杆塔最大降幅为 25.2% . 断路器、隔离开关等主要设备上的过电压降幅亦有 25.4% 、 25.2% . 其原因是反击产生的雷电波在输电线路传播的过程中发生了衰减和畸变.

3.3 杆塔接地电阻对站内设备过电压的影响

降低输电线路杆塔的冲击接地电阻是提高输电线路耐雷水平、确保输电系统安全运行的一个重要措施. 在确定雷击点为 1#杆塔时雷电侵入波对变电站内设备造成的危害最严重的情况下,改变 1#杆塔接地电阻的大小,得到变电站内主要设备的过电压变化情况,总结分析接地电阻变化对

雷电侵入波的影响. 输电线路的杆塔接地电阻一般要求在 $7 \sim 20 \Omega$ 之间, 反击雷电流幅值取 75 kA , 避雷器与变压器相距 40 m , 仿真结果如表 8 所示.

表 8 杆塔接地电阻对站内设备过电压的影响

Tab. 8 Influence of tower ground resistance on overvoltage of main equipment in substation

接地电阻 / Ω	主要设备上的过电压 / kV			变压器上过电压绝缘裕度 / %
	断路器	隔离开关	变压器	
7	107	109	110	未闪络
8	274	270	277	9.0
9	287	284	290	4.7
10	303	301	305	击穿
11	317	315	319	击穿
13	342	340	345	击穿
15	363	359	366	击穿
20	404	399	406	击穿

从表 8 知, 当杆塔冲击接地电阻为 7Ω 时, 绝缘子串未闪络, 雷电流未侵入变电站内. 杆塔接地电阻为 8Ω 时, 变压器上产生的过电压幅值 277 kV , 绝缘裕度为 9.0% , 站内设备上的过电压幅值随着杆塔接地电阻的增大而逐渐升高, 变压器上的过电压最高达到 406 kV , 相比未击穿时的过电压增加了约 3 倍. 是因雷击塔顶时, 雷电流沿着杆塔直接注入大地的分量随杆塔冲击接地电阻的减小而增大, 从而流进站内的雷电侵入波幅值逐渐降低. 因此冲击接地电阻是影响雷电侵入波的一个重要因素, 降低杆塔的接地电阻是提高输电线路耐雷水平以及降低雷击跳闸率的有效措施, 能减轻雷电侵入波对变电站的危害.

3.4 防范措施

该变电站是整个区域输配电稳定运行的关键, 需加强其防雷保护建设.

(1) 加强对进线段杆塔的防雷保护, 避免雷击点落在变电站附近杆塔, 亦可向靠近变电站处的杆塔加装避雷器, 以防严重的雷电侵入波事故.

(2) 尽可能降低杆塔的接地电阻, 可通过优化杆塔接地装置、减小杆塔附近土壤电阻率来实现.

(3) 变压器前加装避雷器, 有效降低侵入波的幅值.

综合考虑周围土壤环境、地形地貌特点、经济适用性及操作难度等因素, 宜采取在变压器侧安装避雷器, 防止变压器绝缘击穿.

笔者对该防护措施进行仿真研究, 改变加装

避雷器与变压器的位置, 观察变压器高压侧安装避雷器的保护效果. 设定雷击 1#杆塔, 杆塔接地电阻取 10Ω , 雷电流取 75 kA .

表 9 是在变压器高压侧安装避雷器后, 变压器过电压的变化情况. 因受避雷器残压的钳位作用, 当避雷器安装位置距变压器较近时, 变压器、断路器、隔离开关的过电压幅值基本没有变化. 对比表 6 和表 9, 变压器高压侧加装避雷器前的过电压为 306 kV , 加装后过电压最大值为 260 kV , 减少约 15.03% . 随着与避雷器距离的增大, 变压器过电压幅值逐渐增大, 但即使相距 70 m 时, 绝缘裕度仍能达到 14.57% , 表明变压器侧安装避雷器可有效提升变压器的防雷保护能力.

表 9 变压器侧安装避雷器对变电站内设备过电压的影响

Tab. 9 Influence of the effect of transformer-side arresters on overvoltage in substation equipment

加装避雷器与变压器的相对位置 / m	主要设备上的过电压 / kV			变压器上过电压绝缘裕度 / %
	断路器	隔离开关	变压器	
5	232	232	232	23.77
10	232	232	233	23.44
20	234	235	235	22.79
30	234	234	235	22.79
40	240	241	240	21.14
50	245	244	246	19.17
60	253	253	253	16.87
70	258	260	260	14.57

4 结论

根据该站电气主接线图及现场实际情况, 使用 ATP-EMTP 建立包括进线段及站内设备的整体模型, 通过分析站内主要设备上过电压的变化情况得出以下结论.

(1) 此次雷电侵入波事故与侵入波的幅值过大, 超出母线避雷器的保护能力有关, 另一方面是由于母线避雷器的最大保护距离小于现场实际距离 40 m , 使得避雷器不能对变压器进行有效的过电压保护, 导致事故发生.

(2) 雷击点和杆塔接地电阻对站内设备过电压有明显影响, 当雷击点越近和杆塔接地电阻越小时, 设备的过电压越小.

(3) 变压器侧加装避雷器可有效加强变压器的防雷保护能力. 即使两者相距 70 m 时, 变压器上过电压绝缘裕度为 14.57% , 达到保护要求.

参考文献:

[1] 周泽存. 高电压技术[M]. 3 版. 北京: 中国电力出

- 版社, 2007.
- [2] 解广润. 防雷分析仪的设计与制造 [J]. 电力技术通讯, 1956(8): 34 - 42.
- [3] 王静. 基于 PSCAD/EMTDC 的泸州 500 kV 变电站雷击过电压分析 [D]. 成都: 四川大学电气工程学院, 2006.
- [4] 舒海莲, 杨秀, 臧海洋. 基于 EMTP 的同塔并架多回路防雷计算 [J]. 电网与清洁能源, 2010, 26(12): 12 - 16.
- [5] 林韶文, 黄群古, 曾益民. 多雷区输电线路及变电站防雷保护 [J]. 高电压技术, 2003, 29(5): 17 - 18.
- [6] 常文平, 齐山成, 曹丽璐, 等. 110 kV 变电站防雷保护故障及分析 [J]. 电力系统保护与控制, 2009, 37(17): 113 - 115.
- [7] 徐鹏, 梁少华. 可调间隙防雷装置在 35 kV 变电站防雷中的应用研究 [J]. 高压电器, 2012, 48(9): 7 - 15.
- [8] 徐刚, 周栋, 王磊, 等. 乌溪江梯级水电站水库调度自动化系统研究与应用 [J]. 水利水电技术, 2018, 49(2): 124 - 131.
- [9] RIZK F A M. Modeling of transmission line exposure to direct lightning strokes [J]. IEEE transactions on power delivery, 1990, 5(4): 1983 - 1997.
- [10] 江日红. 发、变电站防雷保护及应用实例 [M]. 北京: 中国电力出版社, 2005.
- [11] 电力工业部电力科学研究院高压研究所. 交流电气装置的过电压绝缘配合: DL/T 620—1997 [S]. 北京: 中国电力出版社, 1997.
- [12] 陈智, 万军彪. 特高压直流架空输电线路雷击仿真研究 [J]. 江西电力, 2008, 32(1): 1 - 4.
- [13] 向军, 周羽生, 郑剑武, 等. 1000kV 交流紧凑型输电变电站雷击侵入波分析 [J]. 电瓷避雷器, 2012(3): 67 - 70.
- [14] 刘源, 王鹏, 毛志平. 基于 ATP/EMTP 的变电站 35kV 进线段可调保护间隙组合防雷措施仿真研究分析 [J]. 电气时代, 2016(12): 78 - 82.

Simulation Study on Lightning Accident of a Substation Based on ATP-EMTP

LI Jingli¹, LI Chaochao^{1,2}, FENG Peng^{1,2}

(1. School of Electrical Engineering, Zhengzhou University, Zhengzhou 450001, China; 2. Institute of Industrial Technology, Zhengzhou University, Zhengzhou, Henan 450001, China)

Abstract: As the transmission lines are located in the wilderness where the thunder is continual, lightning waves intrude into substations along the lines, causing frequent damage to the electrical equipment inside the station. In this paper, taking the lightning accident of a substation as an example, the ATP-EMTP electromagnetic transient software builds the whole model containing the line section and the substation. Then it calculates the lightning overvoltage and waveform of the main transformer and other electrical equipment. We analyze the main causes of the lightning accident and study how the lightning strike point and the grounding resistance of the pole and tower influence the station. Finally, we propose some corresponding protective measures. The results show that the accidents are related to the overshoot of lightning current invading wave and the long distance between lightning arrester and transformer, and installing lightning arrester in front of the transformer may avoid such accidents.

Key words: lightning invasion wave; accident analysis; substation; installation position of arrester; ATP-EMTP

文章编号: 1671-6833(2019)02-0012-06

支持 IPv6 试验和部署的新型数据平面结构研究

黄万伟¹, 杜春锋², 张建伟¹, 段 通³

(1. 郑州轻工业学院 软件学院, 河南 郑州 450002; 2. 郑州轻工业学院 计算机与通信工程学院, 河南 郑州 450002; 3. 国家数字交换系统工程技术研究中心, 河南 郑州 450002)

摘 要: 为了解决 IPv4 网络体系结构和设备难以满足 IPv6 网络在数据包解析、匹配、动作执行等方面的问题, 提出了一种支持 IPv6 试验和部署的新型数据平面结构. 该结构包含一种同时支持策略和功能的数据平面抽象机制以及一种应用于 IPv6 下一代互联网的数据平面硬件结构, 支持多种创新网络体系结构在同一网络中共存, 实现对新型协议的试验和验证, 支持可定制的协议解析、灵活可编程的分组处理以及内部资源的动态组合, 以支撑未来网络功能的试验、部署和评估. 通过系统试验和分析, 验证了该结构在可接受资源开销的情况下具有较高的转发性能.

关键词: 规模部署; 数据平面; 抽象机制; 硬件结构; 可编程

中图分类号: TP393.2 **文献标志码:** A **doi:** 10.13705/j.issn.1671-6833.2019.02.021

0 引言

随着信息化和网络化的不断发展, 互联网已成为人们日常工作、学习和生活必不可少的基础设施. 传统互联网基于 IPv4 协议构建, 由于 IP 地址匮乏和服务质量难以保证等问题, 已严重制约互联网的进一步应用和发展. IPv6 协议以其海量的地址空间、完善的服务质量保证机制和巨大的创新空间, 成为公认的构建下一代互联网的解决方案. 前期, 我国在 IPv6 试验和应用方面做了大量的工作, 取得了一些重要成果, 已具备大规模部署的条件^[1].

IPv6 的部署和应用必将重塑网络体系结构, 对网络信息技术、产业、应用的创新及变革产生深刻影响. IPv6 丰富的地址空间和头部字段对网络节点在数据包解析、查找匹配以及动作执行等方面的处理能力提出了更高的要求^[2]. 传统基于 IPv4 的网络体系和设备难以适应 IPv6 的规模部署和应用. 如果未来网络设备的数据平面能够支持用户定制, 那么试验和部署新型网络协议和网络功能将变得十分便利, 未来网络也将变得十分开放.

新型网络协议(如 IPv6 协议)和创新网络功能的试验和验证, 需要网络设备能够实现可定制可编程的数据包解析, 以便能够按照新协议格式提取匹配域. 为实现用户可编程可定制的匹配域提取方式, 文献[3]和文献[4]分别提出了 CAFE 和 SwitchBlade, 通过在数据包头部解析模块中设计任意比特抽取器, CAFE 和 SwitchBlade 实现了数据包头部任意比特自由组合, 但数据包解析性能十分受限. 为实现高性能和高灵活性之间的折中, Kangaroo 结构^[5]利用可编程协议树在实现多种数据包解析的同时, 达到了 40 Gbps 的线速解析能力.

网络设备数据平面的处理包含解析、查找、匹配和执行等一系列动作, 以上研究工作属于数据包解析方面的研究成果, 其他方面的研究工作也取得了一定的进展. 软件定义网络(software defined networking, SDN)^[6]实现了控制与转发的分离, 可以支持用户定制网络功能, 但目前 SDN 仅开放了控制平面, 数据平面只能支持 MPLS 和 TCP/IP 协议, 对 IPv6 等新型的网络协议数据包并不支持. 未来网络创新功能和协议需要数据平面的开放能力, 为实现数据平面可编程, 以支持对

收稿日期: 2018-05-17; 修订日期: 2018-08-11

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(61672471); 赛尔网络资助项目(NGH20160103); 郑州轻工业院校博士基金(2016BSJJ041)

作者简介: 黄万伟(1979—), 男, 江苏盐城人, 郑州轻工业学院讲师, 博士, 主要研究领域为人机智能交互系统、宽带信息网和硬件系统开发, E-mail: huangww79@163.com.

新型协议的适配, Nick McKeown 提出了 P4 (programming protocol-independent packet processors)^[6]. P4 是一种对底层设备数据处理行为进行编程的高级语言, 用户可以直接使用 P4 语言编写网络应用, 之后经编译对底层设备进行配置进而完成用户的需求. 与此类似的还有华为提出的 POF^[7] (protocol oblivious forwarding), 这两种实现方式虽然提高了底层转发设备的可编程性, 但需要专门的编译系统或解释系统, 实现比较复杂. 为降低实现复杂度, 提出基于通用 FPGA 的可编程多级流表架构^[8], 可编程流表架构为各级流表分配匹配、查找和动作等资源, 各级流表之间可动态组合, 灵活度较高, 但实现难度较大. 针对现有 SDN 转发平面的不足, 国防科大提出了一种普适的 SDN 转发平面抽象 LabelCast^[9], 能够对新型网络协议的转发行为进行抽象, 因为是依赖软件实现故转发性能有待进一步提高. 文献 [10] 基于 FPGA 提出了一种支持网络功能演进的新型数据平面结构, 该结构通过可编程的数据包解析和数据包处理达到内部逻辑可重构^[11], 从而实现了用户功能的可定制, 对数据平面的设计和发展具有一定的参考意义.

为了支持 IPv6 和不断涌现的新兴网络协议和功能的试验和部署, 结合以上分析, 笔者提出了一种支持 IPv6 试验和部署的新型网络数据平面结构, 该结构包含一种同时支持策略和功能的数据平面抽象机制和应用于 IPv6 下一代互联网的数据平面硬件实现结构, 支持多种创新网络体系结构在同一网络中共存, 实现对新型协议的试验和验证, 支持可定制的协议解析、灵活可编程的分组处理以及内部资源的动态组合, 以支撑未来网络功能的试验、部署和评估.

1 新型数据平面虚拟化抽象机制及实现结构

1.1 数据平面虚拟化抽象机制

网络数据平面是承载和实现网络功能和协议的重要载体, 灵活支持各种新型的网络功能和协议是未来网络对数据平面属性的基本要求^[12]. 设计灵活可编程的网络数据平面, 需要对网络功能和协议进行建模. 当前针对网络功能和协议建模主要有两种模型: ①逻辑功能元素模型, 典型的功能模型如 OpenFlow 定义的流表、防火墙的 ACL 模型; ②策略驱动处理模型, 典型的策略模型如 ForCES 中定义的 FE 模型、SNMP

中定义的 MIB 模型. 逻辑功能模型从内部功能进行描述, 目标功能从粗到细进行分解, 便于功能实现; 策略驱动处理模型则从外部功能进行描述, 目标功能通过外部策略条件驱动内部功能执行, 便于外部控制.

从以上网络功能和协议的抽象模型可以看出, 不同的网络功能和协议适用于不同的抽象模型. 为了支持现有多种传输模式与复杂化的网络功能, 笔者提出一种同时支持策略和功能的数据平面虚拟化抽象机制. 基于策略与功能驱动的数据平面虚拟化框架如图 1 所示, 该框架基于统一的硬件抽象层, 给网络应用提供标准的可编程接口, 在同一网络中通过虚拟化技术支持多种网络体系共存, 可以方便地试验新型协议和网络功能.

数据平面虚拟化抽象机制的设计核心可分为位于接口交换部件的策略映射表和位于数据处理部件的功能映射表. 策略映射表的设计目标是易于可编程硬件或者可配置的硬件实现. 为支持多种网络体系共存, 可设计网络内容与定长策略的映射, 以实现对报文转发层的统一抽象, 进而实现对不同体系结构类型、不同网络业务类型报文基于策略的高速转发. 为简化硬件层设计, 笔者在硬件层没有定义除了转发之外的操作, 例如丢弃、存储、服务等, 若要对报文深层次处理, 则需要上送至数据处理部件进行进一步处理. 在实现模型中, 功能映射表和数据平面抽象的控制部分位于后端的数据处理部件, 统一采用软件实现. 控制部分通过标准协议配置策略映射表和功能映射表, 并对表项进行修改、增加、删除、读取等操作.

基于上述模块, 可设计出相应的网络应用接口, 以实现初始化、模块报文处理启动、模块卸载、虚拟节点注册处理、虚拟节点注销处理、策略请求、策略通知、策略作废等功能. 用户不需要关心底层实现细节就可以通过调用这些接口函数, 将新的网络协议嵌入到控制层中.

基于上述机制, 还可以实现数据平面的虚拟化. 数据平面虚拟化主要是转发引擎的虚拟化, 对控制平面来说, 数据平面的虚拟化不需要操作系统级的支持, 只需要将属于每个虚拟节点的任务封装入进程容器, 并在这些容器之间流量隔离, 从而实现数据平面的资源虚拟化隔离.

图 1 为数据平面虚拟处框架. 在图 1 中, 每个逻辑转发引擎对应系统中的一个进程实例, 通过操作系统的亲核机制映射到不同的处理器核心上. 基于内存为每个虚拟节点容器初始化若干

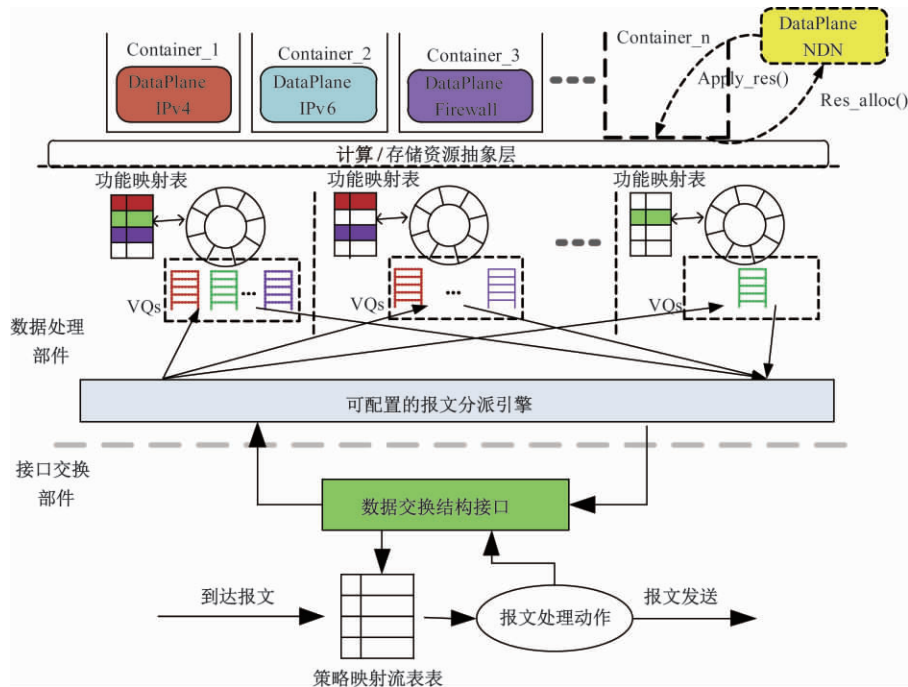


图 1 基于策略与功能驱动的数据平面虚拟化框架

Fig. 1 Based on policy and feature-driven data plane virtualization framework

条虚拟队列,将收到报文的描述符送到对应的虚拟队列(virtual queues, VQs)中,所有逻辑转发引擎通过虚拟队列的消息队列收发报文。

数据处理部件的物理接口由可配置报文分派引擎统一接管。报文分派引擎利用抽象机制中的功能映射表确定报文所属的虚拟节点,将其送入目标虚拟节点所对应的虚拟队列。虚拟节点完成对报文的处理之后,通过虚拟队列区发回报文描述符,等待报文分派引擎发送。通过调整分派引擎的交付速率可以控制每个虚拟节点所能享受的处理器资源和带宽资源,从而实现调度和隔离。

1.2 数据平面硬件实现结构

上节给出了一种支持 IPv6 试验和部署的新型数据平面抽象机制,能够很好地支持多种网络体系共存,但随着网络高速化、宽带化,部分创新的网络功能和协议迫切需要高性能的网络创新试验平台进行部署和试验。为此,必须设计一种应用于下一代 IPv6 互联网的数据平面硬件结构,以支持未来网络功能的试验、部署和评估。

针对下一代 IPv6 互联网的需求,新型数据平面硬件结构应具有 3 个特征。一是支持协议解析的可定制性。网络数据包头部一般包含类型域和匹配域,类型域表示数据包协议类型,匹配域包含匹配字段。类型域和匹配域的提取是数据包解析和处理的前提,不同数据包可能具有不同的协议

类型和匹配域,在进行数据包头部字段提取时可采用多叉树表示,每个类型域是一个树节点。这样就能采用解析树精确提取数据包的类型域与匹配域,实现对任意类型协议数据包的处理。二是支持分组处理灵活可编程,分组处理过程可抽象为匹配、查找、动作 3 个步骤,其中匹配查找是实现分组处理灵活可编程的关键。类似于数据包头部的提取过程,可以采用多叉树来表示匹配查找过程,每一个匹配域都是一个树节点,子树可以用来表示网络功能,网络功能的匹配域可以用树的匹配域节点代替,操作类型则可以用树的叶子节点表示,这样就能将分组处理过程对应到匹配树上,也就为数据处理的灵活可编程可定制找到了一种有效的解决方案。三是支持动态组合内部资源。网络资源的高效利用是未来新型数据平面的基本要求,如何基于有限的资源来满足各种各样的创新网络功能,是必须要克服的难题。网络资源灵活组合是解决上述难题的关键。网络数据以分组表示,任何协议和网络的处理过程都可看作分组的匹配、查找和动作执行过程,因此,如果能够将网络资源抽象为匹配、查找和动作等细粒度模块,那么通过灵活组合这些模块就能支持各种创新网络功能。

基于以上思想,笔者提出了一种支持 IPv6 试验和部署的新型网络数据平面硬件实现结构。该结构主要包括包头解析器和元处理单元,包头解

析器用来判断数据包协议类型和提取匹配域,将匹配域输送至后续元处理单元.元处理单元是数据包“匹配+查找+动作”操作的实现,是该结构中最基本也是数量最多的数据包处理单元.元处理单元之间的灵活组合可实现复杂的网络功能,元处理单元之间的信息传递采用元数据.这样通过可配置的包头解析器和可灵活组合的元处理单元就可以实现数据平面内部逻辑的可扩展,从而支持用户对新型网络协议和创新功能进行试验和验证.数据平面硬件结构如图2所示.



图2 数据平面硬件实现结构

Fig.2 Data plane hardware implementation structure

在图2所示的结构中,解析器负责对数据包进行解析、提取和组合,首先根据用户配置信息识别数据包的类型域,并提取该类型域,送入匹配查找模块进行匹配查找操作,根据匹配查找结果读取匹配域偏移量,并送到匹配域提取模块,匹配域提取模块根据偏移量提取匹配域字段,并将匹配域字段组合成完整的包头域送到处理单元进行处理.

在图2所示的硬件结构中,将数据包处理单元细分为元处理单元,每个元处理单元都是最基本的数据包处理单元,由匹配域选择器、匹配查找、动作执行等组成,元处理单元之间可以进行组合,以完成复杂的网络处理功能.当数据包包头域到达元处理单元时,匹配域选择器会根据用户配置的匹配域选择信息提取相应的匹配域字段,送到流表匹配查找模块,根据查找结果选择相应的执行动作.

在笔者所提数据平面硬件实现结构中,包头解析器是实现IPV6等新型协议支持的关键模块.它根据用户的配置识别数据包的类型域,同时根据类型域提取相应匹配域并将其组合得到包头域向后级元处理单元输出.

包头解析器如图3所示,包头解析器结构包含类型域提取模块、匹配查找模块、匹配域提取模块和匹配域组合模块.其中类型域提取模块用于识别数据包头并提取类型域,首先,类型域提取模

块根据RAM1中的初始类型域偏移量将第一层协议包头的类型域提取出来,通过TCAM+RAM2匹配查找得到下一层协议包头的类型和所需匹配域的偏移量;当接收到从匹配查找模块输出的下一状态时类型域提取模块将当前状态更新至下一状态.匹配查找模块包含一个TCAM单元和一个RAM2存储单元,其中TCAM中存放状态信息和用户定制的类型域信息,RAM2中存放类型域所对应的该协议包头所需的匹配域的偏移量信息.匹配查找模块利用TCAM匹配类型域和状态,根据匹配结果在RAM2中读取到下一状态和对应匹配域的偏移量,并分别向类型域提取模块和匹配域提取模块输出.匹配域提取模块根据匹配域的偏移量将所需匹配域提取出来.最后,匹配域组合模块将提取到的匹配域组合成包头域并送往后续元处理单元处理.

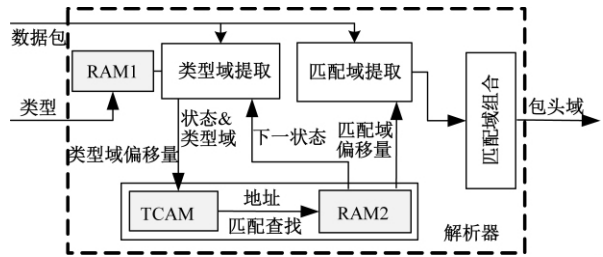


图3 包头解析器结构

Fig.3 Packet header parser structure

2 性能仿真与分析

笔者基于x86多核服务器和NetFPGA-10G^[13]板卡构建了一个支持IPv6试验和部署的新型数据平面原型系统,并验证了数据平面的性能.数据平面原型系统由配置单元、收发单元和处理单元组成,配置单元主要用于接收用户配置信息并将配置表项送到处理单元;4个10 Gbps的物理端口和1个虚拟端口组成收发单元,虚拟端口通过DMA与服务器虚拟网卡相连,物理端口作为收发包端口与外部网络相连;处理单元是新型数据平面的核心,由数据包头部解析器和4个元处理单元组成.

本节从资源开销和转发性能两个方面对新型数据平面结构进行性能仿真和分析.首先对包头解析器和动作处理器占用的资源开销和性能进行分析;然后,从整体上对新型数据平面结构的转发性能进行验证和分析.

2.1 资源开销与性能分析

相比于传统的数据平面结构和其他可编程数

据平面结构,笔者提出的新型数据平面结构主要在包头解析器部分增加了资源开销.本节利用FPGA仿真工具对包头解析器的资源开销和性能进行了仿真分析,假设布局布线时钟为178.6 MHz(理论转发速率可达182.8 Gbps),数据总线位宽为1 024 bits,与EPC和Kangaroo的资源开销和性能作了比较如表1所示.

表1 包头解析器资源与性能对比

Tab.1 Header parser resource and performance comparison

属性	Slice 资源	BRAM 资源	转发速率/Gbps
笔者	3 098	21	183
Kangaroo	2 500	51	40
EPC	4 013	29	203

从表1可以看出,与Kangaroo相比,虽然笔者提出的新型数据平面结构Slice资源开销提高了24%,但转发速率提高了4倍左右,同时BRAM资源降低了约58%;与EPC相比,资源开销降低了约24%.综合来看,笔者所提新型数据平面结构性价比最优.

2.2 转发性能分析

对整体转发性能进行了实验验证,并与LabelCast线程数进行对比分析.由于NetFPGA资源有限,因此,本节在实现笔者所提数据平面结构时,数据总线位宽和元处理单元的处理域宽度都设定为64 bits,布局布线时钟分别设置为:172.6 MHz[使用1级元处理单元(记作RHS1)]和163.8 MHz[使用4级元处理单元(记作RHS4)].整体转发性能对比如图4所示.

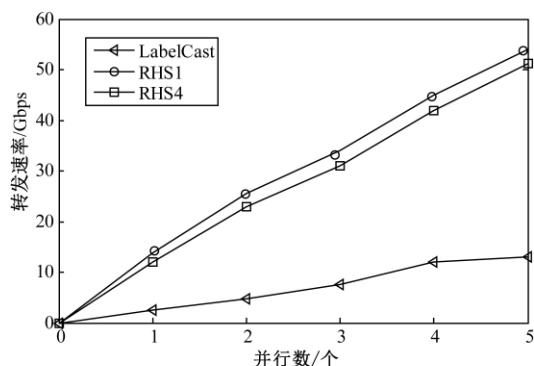


图4 整体转发性能对比

Fig.4 Overall forwarding performance comparison

图4为LabelCast和笔者所提数据平面结构的转发速率对比情况.从图4中可以看出,相比于Labelcast,不论采用几级的元处理单元,笔者所提新型数据平面结构的转发速率都提升了4倍左

右;同时,随着并行数增加,笔者所提数据平面结构转发速率能够接近线性增长,而Labelcast则增长缓慢.需要说明的是,元处理单元增多资源开销也会增大,因此,RHS4的转发速率相比RHS1有所下降.

3 结论

针对IPv6大规模试验和部署对数据平面带来的挑战和问题,笔者基于多核服务器和NetFPGA平台提出并实现了一种支持IPv6试验和部署的新型数据平面结构,该结构包含一种同时支持策略和功能的数据平面抽象机制和一种应用于IPv6下一代互联网的数据平面硬件结构.与其他方案相比,笔者所提方案具有更低的资源开销和更高的转发速率,对IPv6下一代互联网数据平面的设计具有一定的参考意义.

参考文献:

- [1] 中共中央办公厅.推进互联网协议第六版(IPv6)规模部署行动计划[EB/OL]. [2018-06-11]. http://www.gov.cn/zhengce/2017-11/26/content_5242389.htm.
- [2] 马芳,吉星.一种优化分层式移动IPv6路由算法研究[J].郑州大学学报(工学版),2015,36(3):125-128.
- [3] LU G, SHI Y, GUO C, et al. CAFE: a configurable packet forwarding engine for data center networks[C]//Proceedings of the 2nd ACM SIGCOMM Workshop on Programmable Routers for Extensible Services of Tomorrow (PRESTO), 2009: 25-30.
- [4] ANWER M B, MOTIWALA M, TARIQ M B, et al. Switchblade: a platform for rapid deployment of network protocols on programmable hardware[J]. ACM SIGCOMM computer communication review, 2010, 40(4): 183-194.
- [5] KOZANITIS C, HUBER J, SINGH S, et al. Leaping multiple headers in a single bound: wire-speed parsing using the Kangaroo system[C]//Proceedings of INFOCOM san Diego: IEEE, 2010: 1-9.
- [6] MCKEOWN N. Keynote talk: software-defined networking[C]//Proceedings of the IEEE INFOCOM, 2009: 1-11.
- [7] BOSSHART P, GIBB G, KIM H S, et al. Forwarding metamorphosis: fast programmable match-action processing in hardware for SDN[C]//Proceedings of the ACM SIGCOMM'13 Conference, 2013: 99-110.
- [8] LV G F, SUN Z G, LI T. LabelCast: A general abstraction for the forwarding plane of SDN [J]. Chinese journal of computers, 2012, 35(10):

- 2037 – 2047.
- [9] 吕高峰, 孙志刚, 李韬, 等. LabelCast: 一种普适的 SDN 转发平面抽象 [J]. 计算机学报, 2012, 35 (10): 2037 – 2047.
- [10] DUAN T, LAN J L, HU Y X, et al. A reconfigurable dataplane enabling network function evolution [J]. Chinese ACTA electronica sinica, 2016, 44 (7): 1721 – 1727.
- [11] 马丁, 庄雷, 兰巨龙, 等. 可重构网络中的一种新型端到端服务供应模型 [J]. 郑州大学学报 (工学版), 2017, 38 (6): 11 – 16.
- [12] ZHANG Y, LAN J L, HU Y X, et al. A polymorphic routing system providing flexible customization for service [J]. Chinese ACTA electronica sinica, 2016, 44 (4): 988 – 994.
- [13] ADALL Hunt. Howe-Net FPGA 10G [EB/OL]. <https://github.com/NetFPGA/NetFPGA-public/wiki>, 2014. [2018.07.01]

Research on New Data Plane Structure Supporting IPv6 Test and Deployment

HUANG Wanwei¹, DU Chunfeng², ZHANG Jianwei¹, DUAN Tong³

(1. Software Engineering College, Zhengzhou University of Light Industry, Zhengzhou 450002, China; 2. School of Computer and Communication Engineering, Zhengzhou University of Light Industry, Zhengzhou 450002, China; 3. National Digital Switching System Engineering Technology Research Center, Zhengzhou, Henan 450002, China)

Abstract: In order to solve the problem that the IPv4 network structure and equipment are difficult to meet the IPv6 network in terms of packet parsing, matching, and action execution, a new data plane structure supporting IPv6 experiment and deployment was proposed. The structure included a data plane abstraction mechanism that could support both policies and functions, and a data plane hardware structure that applied to the IPv6 Next Generation Internet. It could support the coexistence of multiple innovative network architectures in the same network, enabling the testing and verification of new protocols. Simultaneously it supports customizable protocol resolution, flexible and programmable packet processing, and dynamic combination of internal resources, so as to support the testing, deployment and evolution of future network functions. Through system experiments and analysis, it was verified that the structure had high forwarding performance under the condition of acceptable resource overhead.

Key words: scale deployment; data plane; abstract mechanism; hardware structure; programmable

基于卷积神经网络的道路拥堵识别研究

罗荣辉, 袁航, 钟发海, 聂上上

(郑州大学 物理工程学院, 河南 郑州 450001)

摘要: 为解决城市道路日益严峻的拥堵问题, 结合深度学习和图像处理技术, 提出了一种基于卷积神经网络的道路拥堵检测方法. 此方法相对于传统机器视觉方法, 无需前期提取道路背景, 不受光照亮度和实际环境的影响, 具有识别速度快、占用计算资源少、泛化性好等特点. 现已在实际项目中得以应用, 并取得了较好的效果.

关键词: 卷积神经网络; 深度学习; 图像识别; 拥堵检测; 智慧城市

中图分类号: TU528.1

文献标志码: A

doi: 10.13705/j.issn.1671-6833.2019.02.008

0 引言

随着经济的快速进步和人均汽车保有量的提高, 城市道路拥堵已成为阻碍城市现代化发展首要问题. 国情所致, 我国的一些城市发展过快, 城市道路建设远远跟不上经济发展的脚步, 使得道路拥堵问题更为严峻. 拥堵问题已成为智慧城市建设道路上不可避免的障碍. 而解决拥堵问题的首要条件便是实现城市道路拥堵的快速检测.

目前, 道路拥堵的检测手段较多, 在机器视觉方向主要有基于图像特征的传统检测手段^[1]和基于深度学习技术的新型手段^[2-3]. 目前尚有欠缺的是使用深度学习技术针对城市复杂路况的研究. 笔者采用卷积神经网络对环境千差万别的城市道路进行拥堵检测. 此方法相对于传统检测手段, 计算量小、鲁棒性好、泛化性强, 具有良好的应用前景.

1 卷积神经网络

卷积神经网络(convolutional neural network, CNN)的概念出自科学家在研究动物视觉皮层细胞时提出的感受野(receptive field)^[4]. 后由日本科学家提出的认知机(neocognitron)概念, 可算作CNN最初的实现原型^[5]. 此后便诞生了大量著名的卷积神经网络模型, 如LeCun的LeNet5^[6]、Alex

Krizhevsky的AlexNet^[7]、牛津大学计算机视觉组(visual geometry group)的VGGNet^[8]、Google的InceptionNet^[9]以及微软研究院的ResNet^[10]等.

卷积神经网络是一种基于特征的学习算法, 它区别于常规的特征提取算法, 不需要人工的提取特征, 只需要大范围学习标注好的数据便可自我完成特征提取工作^[11]. 解决了因某些数据特征人工理解不准确、不到位或特征提取不足造成预测准确率较低的问题, 如今已不仅仅在图像领域, 更在视频^[12]、音频^[13]和自然语言处理^[14]等领域得到了广泛的应用, 并取得了优秀的成绩.

图1为一个经典的卷积神经网络结构. 它由1个输入层、2个卷积层、2个池化层、2个全连接层和1个输出层组成. 输入层将已预处理好的 32×32 格式的图片数据加载至神经网络结构中, 第一个卷积层C1使用含6个卷积通道的 5×5 卷积核, 以步长为1对输入的数据进行卷积操作, 最终得到一个 $28 \times 28 \times 6$ 的张量. 之后是一个 2×2 的平均池化层S2对C1中产生的张量进行降采样得到 $14 \times 14 \times 6$ 的张量. 后面卷积层和池化层与前面原理类似, 最终经过S4后得到一个 $5 \times 5 \times 16$ 的张量, 然后使用120个与之前尺寸一样的 5×5 的卷积核将数据转换为 1×120 的张量, 因此构成全连接, 也可以称作全连接层. 最后经过下一个全连接层和输出层最终得到分类结果.

收稿日期: 2018-04-27; 修订日期: 2018-08-22

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(61601322); 河南省科技攻关计划(高新领域)项目(162102210018)

作者简介: 罗荣辉(1965—), 男, 河南信阳人, 郑州大学副教授, 主要从事模式识别研究, E-mail: luoji666@zzu.edu.cn.

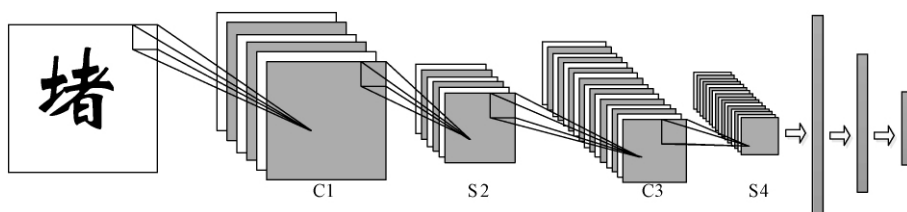


图1 经典卷积神经网络结构

Fig.1 Structure of classic convolutional neural network

与传统的深度神经网络结构相比,卷积神经网络具有局部连接、权值共享和池化层降采样的特点.这些特点使得卷积神经网络结构参数量少、训练复杂度低、过拟合风险小并赋予了模型对平移和形变的容忍性,提高了模型的泛化能力.

2 模型介绍

2.1 模型设计与选择

卷积神经网络的构造对最终的实验结果有着重大的影响.考虑训练数据、模型参数,硬件环境和应用场景.最终在保证高准确率的情况下,笔者选择基于 AlexNet 的模型来构造本文网络.

AlexNet 模型与其他模型的区别主要是:①使用 Relu 作为卷积神经网络的激活函数,解决了在网络较深时的梯度弥散问题;②训练时使用 dropout 随机忽略掉部分神经元,防止过拟合;③使用重叠的最大池化,避免平均池化的模糊化效果;④提出了 LRN 层,使响应较大的神经元变得更大并忽略反馈较小的神经元^[15].

由于显存不足问题,AlexNet 原形在训练时使用了两块 GPU,将模型拆作两个部分.笔者将 AlexNet 模型整合至一个 GPU 上训练,并根据数据实际情况,调整了输入图片的大小,并修改了部分卷积核尺寸,最终产生的模型如图2所示.

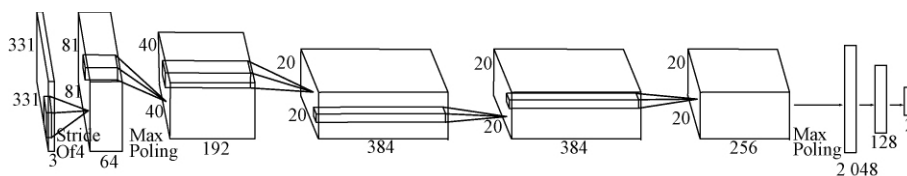


图2 笔者卷积神经网络结构图

Fig.2 The convolutional neural network structure of this paper

如图2所示,模型的输入图片尺寸为 $331 \times 331 \times 3$. 第一个卷积层使用 11×11 尺寸的较大卷积核,步长为4,共有64个卷积通道,使用 Relu 激励函数,后接 LRN 层.第二个卷积层使用 5×5 尺寸的卷积核,步长为1,共用192个卷积通道,使用 Relu 激励函数,后接 LRN 层和 3×3 步长为2的最大池化层.之后的3个卷积层结构与前面类似,卷积核尺寸均为 3×3 ,使用的卷积通道数量分别为384个、384个和256个,与前面不同的是这3个卷积层不再使用 LRN 层和 Max_pool 层.在所有卷积完成后连接一个 2×2 的最大池化层且步长为2,最终得到一个尺寸为 $10 \times 10 \times 256$ 的数据.后面使用3个包含 dropout 的全连接层进行全连接,最终输出预测值.

2.2 数据增强

本文中的数据集来自互联网数据,从数据分布来看,样本数据极不均衡,使用此数据训练出的模型泛化性较差,识别准确率较低.为解决这一问题,笔者对样本数较少的非堵车数据使用了过采

样技术^[16].为防止因过采样而造成测试集数据与训练集重复使得测试准确率虚高,笔者仅对训练集中的非堵车数据使用了随机过采样技术,使其达到与堵车图片相近的数量.

所用数据集除分布不均衡以外,还存在样本总数偏少、相似度较高的问题.针对此问题,笔者使用如下数据增强手段.

(1) 根据应用场景,对数据进行左右镜面对称,使数据集数量翻倍.

(2) 根据此数据集的实际情况,图片的边缘地带包含的信息较少,于是采用从原始图像中截取部分主要区域,增加数据量.下式为可增加的数据量.

$$C = (m - i) \times (n - j), \quad (1)$$

式中: C 为数据可增加的倍数; m, n 为原始图像的尺寸; i, j 为从中截取的图像尺寸.

(3) 随机改变部分图片的亮度和对比度,提高模型处理来自不同光照条件图像的泛化性能^[17].

2.3 基于虚警及漏警的损失权重

对于拥堵与非拥堵的二分类问题,可根据真实类别与模型预测类别的组合划分为真正例(true positive)、假正例(false positive)、真反例(true negative)和假反例(false negative),如表1所示。

表1 预测情况表
Tab.1 Table of forecast result

真实情况	预测结果	
	正例	反例
正例	TP(真正例)	FN(假反例)
反例	FP(假正例)	TN(真反例)

根据实际情况,该模型应用面向智慧交通,其判断结果将直接影响到城市交通资源的调度,所以在考察模型时不仅仅要考虑模型的准确率(accuracy),漏警率(missing alarm)和虚警率(false alarm)也十分重要^[18]。

$$A = \frac{TP + TN}{TP + FP + FN + TN}, \quad (2)$$

$$MA = \frac{FN}{TP + FN}, \quad (3)$$

$$FA = \frac{FP}{TP + FP}, \quad (4)$$

式中: A 为准确率; MA 为漏警率; FA 为虚警率。

在此模型中,漏警情况对应道路发生拥堵而模型判断为非拥堵,虚警情况对应道路未发生拥堵而模型判断为拥堵的情况。上文已经提到,该模型将直接影响到城市交通资源的调整情况,相对于漏警率,若虚警率较高将会造成大量的交通资源浪费。因此在模型的训练过程中,人为地调高虚警情况在损失计算中所占的权重,使模型在反向传播时更关注虚警情况,从而降低虚警率。

3 实验与对比

该实验硬件环境使用 Intel Xeon E5-2650 v4 CPU, NVIDIA 1080TI GPU, 内存 128 GB。操作系统使用 Centos 6.5, 框架采用 TensorFlow, 并将数据生成为 TFrecord 格式, 方便后续调用。实验数据来自互联网, 其中拥堵图片 811 张, 非拥堵照片 464 张, 共 1 275 张。其中 80% 作为训练集, 20% 作为测试集。经对训练集进行数据增强后, 训练集数据 10 200 条, 测试集数据 255 条。图 3 为该数据集中实例图像, 上面三张为拥堵图像, 下面三张为非拥堵图像。



图3 数据集内部分图片

Fig.3 Part of images in data set

3.1 对比常规神经网络

此实验将使用经过数据增强的数据与包含 3 个隐藏层的全连接网络、LeNet5 作为对比, 结果如表 2 所示。

表2 与常规神经网络对比结果

Tab.2 The result of comparison between the method in this paper and conventional methods

算法模型	准确率/%	参数数量/个	1 万次迭代耗时 (纯 CPU 计算) /s
全连接网络	65.7	约 25 亿	3 773
LeNet5	83.2	约 1 300 万	624
笔者网络结构	94.6	约 2 亿	1 156

由表 2 可以看出, 与全连接网络相比, 卷积神经网络参数较少、计算量小、特征提取能力强, 相对于全连接网络模型在图像识别领域有明显的优势。另外通过基于笔者网络结构与 LeNet5 对比, 可以看出在避免梯度弥散的前提下, 使用更加深层的网络结构, 对提高准确率有明显作用。

3.2 对比数据增强前后

此实验分别使用原始训练数据集、过采样均衡分布训练数据集和经过了所有数据增强步骤的训练数据集, 在图 2 网络结构模型上进行对比实验, 实验结果正确率如图 4 所示。

从最终结果可以看出在经过数据平衡和数据增强后, 准确率分别上升到 88.6% 和 94.3%。由此说明在小样本、非均衡数据集的深度学习问题中, 数据增强手段对提高模型判断准确率和模型泛化性能有重要作用。

3.3 对比提高虚警损失权重前后

为降低最终模型判断的虚警率, 此实验通过 TensorFlow 内部的自定义损失函数, 人为地将出现虚警情况的损失值提高为原来的 5 倍, 但不改变漏警情况的损失权重, 实验结果如表 3 所示。

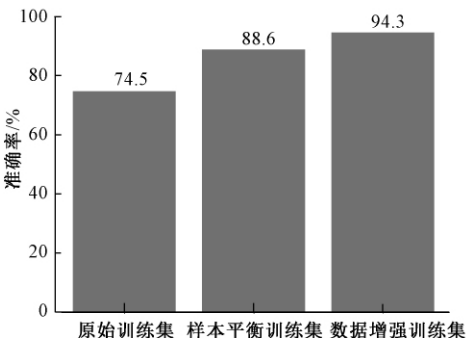


图 4 数据增强结果

Fig. 4 The result of data enhancement

表 3 提高权重后结果

Tab. 3 The result of weight enhancement

项目	模型准确 率/%	模型漏警 率/%	模型虚警 率/%
正常训练	94. 30	3. 30	2. 80
提高虚警损失权重训练	92. 70	5. 90	1. 94

从表 3 可以看出,提高虚警损失权重后,在模型整体判断错误率略微上升的情况下,虚警率下降,整体虚警数量下降.说明提高虚警损失权重对降低虚警率有明显作用,可明显降低模型将通畅判别为拥堵的情况,从而降低系统后续响应动作的成本.

3. 4 对比传统拥堵检测方式

为凸显笔者方法相对于传统机器视觉检测方法的时间优势,采用基于均值法的拥堵检测模型^[19]与笔者模型进行对比.其中,基于均值法的拥堵检测模型相对于其他传统方式在检测耗时相似的情况下,背景建模耗时更少.其工作流程为,先对同一地点拍摄到的多张图片直接求平均来得到此地点的近似背景图,再使用此地点的后续图片与背景图对比,根据差异性判断是否发生拥堵.

此实验采用 100 张同一地点的照片进行检测.这些图片首先用传统的方法建模,然后分别使用两种方法进行检测,检测时间对比如表 4 所示.

表 4 检测时间对比表

Tab. 4 The result of test time

方法	背景计算 耗时/s	单次拥堵检测 平均耗时/s
传统检测方法	0. 856	0. 011
笔者检测方法	0	0. 012

由实验结果可以看出,在单次拥堵检测耗时几乎相同的情况下,传统的基于机器视觉的道路拥堵检测手段,在检测拥堵之前要先计算路面背景,耗时较长,且若发生光照、雨雪等环境因素改变,需重新计算背景,无法实时分析,计算量较大.而基于深度学习的拥堵检测方法,不受外界环境影响,检测速度快,实用性好,符合一些需要快速检测且计算资源较少的场景.

4 模型应用

目前笔者的道路拥堵检测方法已应用于城市道路可移动隔离桩系统原型机的开发,该系统由可移动隔离桩和管控系统组成.可移动隔离桩摆放在四车道以上道路的中央黄线上,每个隔离桩间隔 3 m 使用电缆连接,每 10 个隔离桩组成一个单元并配备摄像头模块.若系统连续检测到某个隔离桩单元一侧发生拥堵,且拥堵时间超过设定阈值时,便会认为道路发生拥堵.此时,若该隔离桩单元附近的另一侧车道未发生拥堵,管控系统便会控制拥堵段附近的隔离桩单元向非拥堵一侧移动,增加拥堵侧的车道数量来缓解拥堵,当拥堵结束后隔离桩会自动复原至道路中央.具体如图 5 所示.

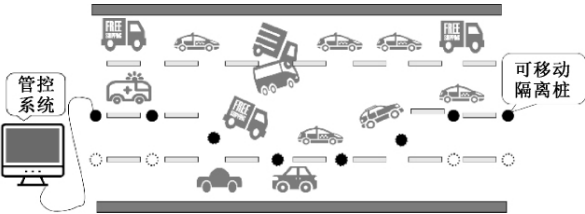


图 5 可移动隔离桩系统结构示意图

Fig. 5 Model of mobile partition piles system on urban roads

5 结论

基于卷积神经网络设计实现了一种城市道路拥堵检测模型,并结合实际情况使用数据增强和修改虚警率权重等方式对模型实施了进一步优化.与传统基于机器视觉的城市道路拥堵检测方法相比,该方法不受环境因素的影响,可对城市道路实现实时检测,具有计算量小、泛化性好等特点.目前,测试准确率达到 92.7%,虚警率仅为 1.94%.但由于数据集来自互联网,样本较少且质量不高,使得模型总体正确性率并未达到理想水平.优化数据集,继续提高模型判断正确率,是下一步需要进行的工作.

参考文献:

- [1] 付熊. 基于机器视觉的交通拥堵及运动目标检测 [D]. 广州: 华南理工大学自动化科学与工程学院, 2016.
- [2] 崔华, 纪宇, 李盼依. 基于卷积神经网络(CNN)的高速路交通图片拥堵识别 [J]. 科技创新与应用, 2018(5): 18-19.
- [3] 崔华, 刘云飞, 宋鑫鑫, 等. 基于 CNN 深度学习模型的交通图像拥堵识别 [J]. 科技创新与应用, 2018, 224(4): 19-20+22.
- [4] SHERRINGTON C S. Observations on the scratch-reflex in the spinal dog [J]. Journal of physiology, 1906, 34(1/2): 1.
- [5] FUKUSHIMA K. neocognitron: A self-organizing neural network model for a mechanism of pattern recognition unaffected by shift in position [J]. Biological cybernetics, 1980, 36(4): 193-202.
- [6] LECUN Y, BOTTOU L, BENGIO Y, et al. Gradient-based learning applied to document recognition [J]. Proceedings of the IEEE, 1998, 86(11): 2278-2324.
- [7] KRIZHEVSKY A, SUTSKEVER I, HINTON G E. ImageNet classification with deep convolutional neural networks [C] // International Conference on Neural Information Processing Systems. Curran Associates Inc, 2012: 1097-1105.
- [8] SIMONYAN K, ZISSERMAN A. Very deep convolutional networks for large-scale image recognition [C] // International Conference on Learning Representations (ICLR). San Diego: arXiv: 109. 1556v6 [cs. V], 2015.
- [9] SZEGEDY C, LIU W, JIA Y, et al. Going deeper with convolutions [C] // IEEE Conference on Computer Vision and Pattern Recognition. IEEE Computer Society, 2015: 1-9.
- [10] HE K M, ZHANG X Y, REN S Q, et al. Deep residual learning for image recognition [C] // IEEE Conference on Computer Vision and Pattern Recognition. IEEE Computer Society, 2016: 770-778.
- [11] 杨文柱, 刘晴, 王思乐, 等. 基于深度卷积神经网络的羽绒图像识别 [J]. 郑州大学学报(工学版), 2018, 39(2): 11-17.
- [12] WANG D L. Deep learning reinvents the hearing aid [J]. IEEE spectrum, 2017, 54(3): 32-37.
- [13] LANE N D, GEORGIEY P, QENDRO L. Deep ear: robust smartphone audio sensing in unconstrained acoustic environments using deep learning [C] // UBI-COMP '15 ACM International Joint Conference on Pervasive and Ubiquitous Computing - September. ACM, 2015: 283-294.
- [14] GE M, LIU Y, JIANG L, et al. Genome-wide analysis of maize NLP transcription factor family revealed the roles in nitrogen response [J]. Plant growth regulation, 2018, 84(1): 95-105.
- [15] KRIZHEVSKY A, SUTSKEVER I, HINTON G E. ImageNet classification with deep convolutional neural networks [C] // International Conference on Neural Information Processing Systems. Curran Associates Inc, 2012: 1097-1105.
- [16] CHAWLA N V, BOWYER K W, HALL L O, et al. SMOTE: synthetic minority over-sampling technique [J]. Journal of artificial intelligence research, 2002, 16(1): 321-357.
- [17] 黄双萍, 孙超, 齐龙, 等. 基于深度卷积神经网络的水稻穗瘟病检测方法 [J]. 农业工程学报, 2017, 33(20): 169-176.
- [18] 周志华. 机器学习 [M]. 北京: 清华大学出版社, 2016.
- [19] 韩超, 邓甲昊, 邹金慧, 等. 基于差分均值背景提取和矩阵分区目标检测算法的研究 [J]. 北京理工大学学报, 2012, 32(12): 1247-1251.

Traffic Jam Detection Based on Convolutional Neural Network

LUO Ronghui, YUAN Hang, ZHONG Fahai, NIE Shangshang

(School of Physics Engineering, Zhengzhou University, Zhengzhou 450001, China)

Abstract: In order to solve the increasingly serious congestion problem of urban roads, a road congestion detection method based on convolutional neural network was proposed in this paper. This method was based on the application value of road congestion rapid detection technology to alleviate the traffic jam problem. Besides, it combined deep learning with image processing technology. Compared with traditional methods, this method did not need to extract the road background in the early stage, and was not affected by the illumination brightness and the actual environment. It had the characteristics of fast recognition speed, less occupied computing resources and good generalization. It has been applied in practical projects and achieved good results.

Key words: convolutional neural network; deep learning; image recognition; congestion detection; smart city

基于成功历史自适应的混合克隆选择算法

张伟伟, 高奎, 张卫正, 孟颖辉, 王华, 张秋闻

(郑州轻工业学院 计算机与通信工程学院, 河南 郑州 450002)

摘要: 传统克隆选择算法在求解复杂最优化问题时常常会遇到早熟收敛和易陷入局部最优的问题. 针对这些问题, 提出了基于成功历史自适应的混合克隆选择算法. 该算法引入改进的基因重组策略来加强算法的全局搜索能力, 并将成功历史自适应变异算子与超变异算子相结合提出了成功历史自适应超变异算子来提升算法的性能. 在 25 个测试函数上进行了测试, 试验结果表明, 所提出的算法能够有效提升传统克隆选择算法的性能, 对比其他的算法具备很强的竞争力.

关键词: 克隆选择; 最优化; 生物免疫

中图分类号: TP301.6

文献标志码: A

doi: 10.13705/j.issn.1671-6833.2018.05.018

0 引言

最优化问题与人们的生产生活密切相关. 一个最优化问题可以描述为:

$$\text{Min/Max } f(X) \text{ s. t. } X \in \Omega, \quad (1)$$

其中, $X = [x_1, x_2, \dots, x_D]$ 是可行域 Ω 中的 D 维决策变量; $f(X)$ 是目标函数. 优化问题可以是最大化问题或是最小化问题. 随着现实中最优化问题复杂度的增加, 传统的借助微分学、变分法等数学工具进行逻辑推理分析获得解析解的方式不再适用, 而自然启发式算法异军突起, 逐渐成为求解最优化问题的核心力量^[1-2]. 其中, 人工免疫算法受生物免疫系统免疫机制启发, 在学术界和工业界受到关注并得到广泛应用^[3].

克隆选择算法是人工免疫算法在最优化领域应用最为广泛的代表性算法之一. 它来源于对 B 细胞自适应免疫反应的原理抽象, 主要包括克隆、超变异和选择 3 个算子.

虽然克隆选择算法被广泛应用到实践中, 但随着优化问题复杂度的增加, 比如多峰、旋转、复合以及高维等, 克隆选择算法往往会遭遇早熟收敛和易陷入局部最优的缺点. 针对这些

缺点, 国内外学者对克隆选择算法做出了各种改进, 并在各自领域取得了很好的应用成果. 高斯和柯西变异策略被引入到克隆选择算法中构造了一个快速克隆算法^[4]. 焦李成等^[5]把量子学的思想与免疫机制相结合, 提出了量子启发式重组算子和量子变异算子, 并提出了受量子启发的免疫克隆算法, 应用在最优化问题上. 公茂果等^[6]把拉马克学说应用在克隆选择算法上构造了相应的基因重组和变异算子, 并提出了拉马克克隆选择算法. 文献^[7]提出了适应性 Lévy 变异算子, 并通过实验证明了该变异算子在解决多峰函数时比高斯和柯西变异效果好. 文献^[8]将免疫克隆算法和粒子群算法结合以加强算法的性能, 正交实验被引入到克隆选择中解决函数优化问题^[9], 实验证明该算法能够有效保持种群多样性, 避免算法不成熟收敛. 针对传统算法全局搜索效率降低的问题, 文献^[10]提出了模糊非基因信息记忆的双克隆选择算法提高全局搜索速度和精度. 文献^[11]引入了粗糙集中的核值概念, 提出了一种基于粗糙集核值的克隆选择算法以提升算法的收敛速度、抗体多样性和避免早熟. 通过文献检索发现, 混合免

收稿日期: 2017-12-01; 修订日期: 2018-02-19

基金项目: 国家自然科学基金青年科学基金项目(61403349、61501405、41601418); 河南省教育厅科学技术研究重点项目基础研究计划项目(15A520033、14B520066); 2018 年度河南省高等学校重点科研项目资助计划(18A210025); 郑州轻工业学院博士基金项目; 郑州轻工业学院校级青年骨干教师培养对象资助计划; 郑州轻工业学院研究生科技创新基金资助项目; 郑州轻工业学院大学生科技活动项目

作者简介: 张伟伟(1986—), 女, 河南驻马店人, 郑州轻工业学院讲师, 博士, 主要从事进化计算等方面研究, E-mail: anqikeli@163.com.

疫克隆选择算法通过引入新的策略和克隆选择算法改进自身算子成为现阶段研究和应用的重要方向。

笔者提出了一种混合的免疫克隆选择算法,该算法通过引入免疫重组算子来提升种群的多样性,并提出了成功历史自适应免疫超变异算子来促进算法收敛能力。通过全局搜索与局部搜索的平衡,达到寻求全局最优的目的。

1 克隆选择算法

根据克隆选择学说^[12],文献[13]最早提出了克隆选择算法 CLONALG,并应用到字母识别、多模函数优化、组合优化等问题上,奠定了免疫克隆选择算法的基础。基本的克隆选择算法主要包含 3 个算子,分别是克隆、超变异和选择。根据克隆选择学说,其克隆产生的子代数量与父代的适应度值成正比,而变异率与父代的适应度值成反比。在克隆选择算法的具体实施过程中,高斯变异是最常用的变异方法,但是研究表明,其搜索过程具有一定的盲目性,且收敛精度不高。另外,克隆选择算法依靠克隆大量的子代提供候选解,往往需要消耗很多的计算资源,限制了实际应用。

2 笔者提出的算法

2.1 基因重组策略

除克隆选择以外,基因重组在 B 细胞的免疫反应中也充当了重要的角色。免疫 B 细胞分化过程中,通过基因库中基因片段在 DNA 级别上组合生成不同的 B 细胞实现了抗体基因的多样化。文献[14]研究了 B 细胞的 Y 型抗体结构,提出了基因重组策略,其子代产生的方式为:

$$\begin{cases} X_{A_{p_1}}^{V_{p_1}} = \alpha X_{p_1}^{V_{p_1}} + (1 - \alpha) X_{p_2}^{V_{p_2}} \\ X_{p_2}^{V_{p_2}} = \alpha X_{p_2}^{V_{p_2}} + (1 - \alpha) X_{p_1}^{V_{p_1}} \end{cases}, \quad (1)$$

式中: X_{p_1} 和 X_{p_2} 是随机选择的父代; V_{p_1} 和 V_{p_2} 是随机选择的 m 维, $m \in [1, D]$; $\alpha \in (0, 1)$ 是服从均匀分布的随机数。在实施过程中,考虑到随着种群的收敛,种群中个体的相似度越来越高,这时种群内部的信息融合已不能满足多样性的需求,所以笔者将生成的子代中表现不好的个体存储在集合 Archive 中,在实施基因重组时, X_{p_1} 取自当前种群,而 X_{p_2} 则从当前种群和集合 Archive 的并集中随机选取。通过这种改进,可以缓解种群收敛对多样性缺失造成的影响,提高算法的寻优能力。

2.2 成功历史自适应克隆选择

文献[15]提出了基于成功历史的自适应差分进化算法解决全局优化问题。笔者将成功历史自适应策略与克隆选择算法相结合,提出了成功历史自适应克隆选择算法。

(1) 克隆: 每个父代个体 X_i 产生 N_c 个子代 $\{X_i^1, X_i^2, \dots, X_i^{N_c}\}$;

(2) 成功历史自适应超变异: 每个克隆个体有 M 维发生变异^[16]:

$$M = \lfloor (\alpha \times n) + 1 \rfloor; \quad (2)$$

$$\alpha = \exp(-\rho f^*(X_i)), \quad (3)$$

其中, $f^*(X_i) \in [0, 1]$ 是归一化的适应度值; ρ 是衰变常数,这里采用的变异策略隐式服从克隆变异的变异率与适应度成反比的规则。每个个体经历如下的变异操作

$$X_i^j = \begin{cases} X_i^j + F_i \times (X_{p_{best}}^j - X_i^j) + F_i \times (X_{r1}^j - X_{r2}^j), & j \in \text{rand } M(n) \\ X_i^j, & \text{otherwise} \end{cases}, \quad (4)$$

式中: X_i^j 是第 i 个个体的第 j 维; $X_{p_{best}}^j$ 是从种群的最优 100p% , $p \in (0, 1]$ 的个体中随机选择的个体; $\text{rand } M(n) \in \{1, 2, \dots, n\}$ 是无重复随机选择的 M 维索引向量; $r1$ 和 $r2$ 是 $[1, Np]$ 中的随机数,且 $r1 \neq r2 \neq i$; F_i 是控制变异幅度的参数,服从历史最优自适应更新策略^[15]: 设定一个大小为 H 的集合 M_F 来存储 F_i 的值,其初始值被设定为 0.5。在每一次迭代中

$$F_i = \text{randc}(M_F^{ri}, 0.1), \quad (5)$$

其中, M_F^{ri} 是随机从 M_F 中选取的 $ri \in [1, H]$; $\text{randc}(\mu, \sigma^2)$ 是服从均值为 μ , 方差为 σ^2 的柯西分布的随机数。在每一代,如果采用当前的 F_i 生成的子代个体的适应度值优于父代,则该 F_i 被存储在集合 S_F 中,在每一次迭代结束,即所有个体更新完成后,按式(6)逐次循环更新 M_F 中的值

$$M_F^k = \begin{cases} \text{mean}_{WL}(S_F), & S_F \neq \phi \\ M_F^k, & \text{otherwise} \end{cases}; \quad (6)$$

$$\text{mean}_{WL}(S_F) = \frac{\sum_{k=1}^{|S_F|} \omega_k \times (S_F^k)^2}{\sum_{k=1}^{|S_F|} \omega_k \times S_F^k}; \quad (7)$$

$$\omega_k = \frac{\Delta f_k}{\sum_{k=1}^{|S_F|} \Delta f_k}; \quad (8)$$

$$\Delta f_k = |f(X_k') - f(X_k)|, \quad (9)$$

其中, $k \in [1, H]$ 初始值为 1, 然后递增并循环在 $[1, H]$ 中取值。如果在本代中没有产生更优的子

代,即 $S_F = \phi$,则 M_F^k 不更新.

(3) 选择: 选择子代中最优的个体取代父代个体.

2.3 算法流程

综合以上基因重组策略和成功历史自适应克隆选择算法,笔者提出了新的克隆选择优化算法,该算法的步骤描述如下.

Step 1 初始化: 随机产生规模为 N_p 的抗体种群 $\{X_1, X_2, \dots, X_{N_p}\}$.

Step 2 评价每一个个体的适应度值.

Step 3 基因重组: 对每一个抗体 X_i , 实施基因重组, 若产生的子代个体比当前抗体优, 则取代当前抗体 X_i , 否则不更新 X_i , 较差子代存入集合 Archive.

Step 4 成功历史自适应克隆选择: 对每一个抗体 X_i 进行克隆, 成功历史自适应超变异和选择操作进行更新.

Step 5 判断是否满足终止条件, 若满足, 则输出最优值并结束, 否则退回 Step 3.

3 算法仿真分析

采用 25 个测试函数^[16]进行试验仿真, 对所提算法进行分析比较. 这些测试函数涵盖了 5 个单峰和 20 个多峰函数, 并进行了旋转、平移和复合等操作, 决策变量维数从 10 维到 50 维, 为问题的求解提出了很大的挑战.

3.1 参数设定

算法中所涉及的参数设定如下: 种群个体数 N_p 为 $10 \times D$, 其中 D 是问题的维度, 基因重组率为 0.7, 克隆个体数 N_c 为 1, 变异中的衰变常数 ρ 设置为 5, 优秀个体的百分比 p 为 0.2.

测试函数的最大评估次数 mFES 设置为 $10\,000 \times D$. 为了确保对比公平, 文中涉及的试验除特别说明外, 选取的参数都是相同的, 结果引用自算法提出的原文献.

3.2 基因重组和变异的策略对比分析

算法一共引入了两种策略, 分别是基因重组和成功历史自适应克隆选择, 为了验证这两种策略的有效性, 下面在 10 维的测试函数上进行了仿真试验, 并对其结果进行了对比. 首先为了避免其它操作对算法的影响, 选择只有克隆、超变异和选择 3 种基本操作的克隆选择算法(记为 CSA), 在 CSA 上分别添加基因重组策略(记为 RCSA)和成功历史自适应克隆选择策略(记为 HCSA), 最后合并基因重组策略和成功历史自适应克隆选

择策略(记为 RHCSA). 在 CSA 和 RCSA 中采用的是高斯变异的随机数进行超变异, 其余的参数保持一致. 实验结果如表 1 所示, 受篇幅限制, 截取了前 10 个函数的误差(均值 \pm 方差)的对比结果. 从表 1 中可以看出基本的克隆、超变异和选择的操作在函数求解时表现较差, 通过加入基因重组, 一定程度上提升了算法的搜索能力, 在除 f5 和 f8 以外的函数上都使误差减少了一个数量级. 基因重组主要的功能是提高种群的多样性, 避免陷入局部最优, 但仅依靠基因重组策略算法的局部搜索能力还差强人意. 成功历史自适应克隆选择策略可以大大提升算法的搜索能力, 其搜索结果在 f1 ~ f6 上都找到了最优值, 除 f7 和 f8 外都达到了很好的效果, 甚至比两种策略相结合的效果还要好, 但是在 f7 陷入了局部最优值, 搜索结果比较差. 两种策略相结合后的 RHCSA 在函数 f1 ~ f6 上都定位到了全局最优值; 虽然在函数 f9 ~ f10 上稍差, 但基本可以接受; 而在 f7 上的结果也比较让人满意. 经过对比分析可以看出, 基因重组策略和成功历史自适应克隆选择策略的引入能够有效提升算法的寻优能力和提升算法的稳定性.

3.3 与其他先进算法的对比分析

为了进一步测试所提算法的性能, 将算法应用在 25 个测试函数在 50 维时进行仿真试验, 并与其他先进的算法(CoDE^[17]、EPSDE^[18]、SaDE^[19]、jDE^[20]、JADE^[21])进行对比分析, 其误差结果(均值 \pm 方差)如表 2 所示. 25 个测试函数中前 5 个是单峰函数, 笔者提出的算法在函数 f1、f2、f4 上均找到了全局最优值, 在 f3 和 f5 上未能成功寻找到全局最优值, 但比其他 5 个算法的效果好. 可见所提算法 RHCSA 在单峰函数的寻优效果是值得肯定的.

f6 ~ f12 是基本多峰函数, 主要考察算法在面对多峰函数时跳出局部最优的能力. RHCSA 在 f7 找到了全局最优值. 在 f6、f9 和 f10 上表现不够让人满意, 在其余的函数上表现与其他算法相当. 可以看出, 在问题维度较高且存在多个局部最优的情况下, 对算法提出的挑战更大, 算法在求解时极易陷入局部最优值, 从而影响最后的寻优效果. 总体来看, RHCSA 在求解基本多峰函数时表现尚可.

f13 和 f14 是扩展的多峰函数, RHCSA 未能成功寻找到全局最优值, 但对比其他算法, 表现尚可. f15 ~ f25 是混合复合函数, 将基础的单峰

表 1 10 维测试函数上基本 CSA 和添加了基因重组和变异的策略对比

Tab.1 Comparison of Basic CSA, CSA with recombination and RHCSA on 10D benchmark functions

函数	CSA	RCSA	HCSA	RHCSA
f1	1.54E+04 ± 2.61E+03	5.91E+03 ± 1.69E+02	0.00E+00 ± 0.00E+00	0.00E+00 ± 0.00E+00
f2	1.28E+04 ± 5.01E+03	7.42E+03 ± 6.02E+02	0.00E+00 ± 0.00E+00	0.00E+00 ± 0.00E+00
f3	1.78E+08 ± 8.10E+07	2.13E+07 ± 9.3E+06	0.00E+00 ± 0.00E+00	0.00E+00 ± 0.00E+00
f4	1.79E+04 ± 4.02E+03	5.29E+03 ± 1.91E+03	0.00E+00 ± 0.00E+00	0.00E+00 ± 0.00E+00
f5	1.79E+04 ± 1.83E+03	1.48E+04 ± 2.1E+03	0.00E+00 ± 0.00E+00	0.00E+00 ± 0.00E+00
f6	2.95E+09 ± 2.3E+09	8.03E+08 ± 1.0E+08	0.00E+00 ± 0.00E+00	0.00E+00 ± 0.00E+00
f7	2.43E+03 ± 2.29E+02	1.36E+02 ± 2.11E+01	1.27E+03 ± 1.74E-13	1.27E-03 ± 1.12E-03
f8	2.04E+01 ± 8.01E-02	2.04E+01 ± 8.00E-02	2.04E+01 ± 5.62E-02	2.02E+01 ± 7.12E-02
f9	9.71E+01 ± 1.53E+01	4.75E+00 ± 5.0E+01	2.66E+00 ± 8.42E-01	4.84E+00 ± 1.32E+00
f10	1.20E+02 ± 1.51E+01	7.7E+01 ± 8.1E+01	3.02E+00 ± 1.06E+00	4.86E+00 ± 8.80E-01

表 2 笔者所提算法与先进算法在求解 25 个测试函数在 50 维时的结果对比

Tab.2 Comparison of RHCSA with other algorithms on 25 benchmark functions with 50D

函数		算法					
		CoDE	EPSDE	SaDE	jDE	JADE	RHCSA
单峰函数	f1	1.65E-28	1.57E-29	1.51E-29	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00
		$\pm 1.92\text{E}-28$	$\pm 5.02\text{E}-29$	$\pm 5.16\text{E}-29$	$\pm 0.00\text{E}+00$	$\pm 0.00\text{E}+00$	$\pm 0.00\text{E}+00$
	f2	7.08E-09	3.15E+02	3.15E+02	1.44E-02	3.68E-27	0.00E+00
		$\pm 7.14\text{E}-09$	$\pm 1.73\text{E}+03$	$\pm 1.73\text{E}+03$	$\pm 2.10\text{E}-02$	$\pm 3.14\text{E}-27$	$\pm 0.00\text{E}+00$
	f3	3.15E+05	1.32E+07	1.32E+07	4.62E+05	2.77E+04	1.17E-01
		$\pm 1.14\text{E}+05$	$\pm 3.35\text{E}+07$	$\pm 3.35\text{E}+07$	$\pm 1.84\text{E}+05$	$\pm 8.60\text{E}+04$	$\pm 6.43\text{E}-01$
	f4	9.32E+02	5.12E+03	5.12E+03	4.03E+02	3.30E-01	0.00E+00
		$\pm 9.83\text{E}+02$	$\pm 8.61\text{E}+03$	$\pm 8.61\text{E}+03$	$\pm 1.02\text{E}+01$	$\pm 8.12\text{E}+01$	$\pm 0.00\text{E}+00$
	f5	4.43E+03	4.55E+04	4.55E+04	2.96E+03	1.59E+03	2.48E+02
		$\pm 8.04\text{E}+02$	$\pm 1.20\text{E}+03$	$\pm 1.20\text{E}+03$	$\pm 6.44\text{E}+02$	$\pm 4.80\text{E}+02$	$\pm 1.71\text{E}+02$
$- / + / \approx$		0/5/0	0/5/0	0/5/0	0/4/1	0/4/1	
基本多峰函数	f6	4.39E+01	6.07E-01	1.21E+02	4.97E+01	1.33E+00	3.35E+01
		$\pm 3.42\text{E}+01$	$\pm 1.71\text{E}+00$	$\pm 9.94\text{E}+01$	$\pm 3.12\text{E}+01$	$\pm 1.91\text{E}+00$	$\pm 2.24\text{E}+01$
	f7	8.10E-03	7.13E-03	8.19E-03	3.52E-03	2.14E-03	0.00E+00
		$\pm 1.31\text{E}-02$	$\pm 1.08\text{E}-02$	$\pm 1.44\text{E}-02$	$\pm 8.96\text{E}-03$	$\pm 4.69\text{E}-03$	$\pm 0.00\text{E}+00$
	f8	2.05E+01	2.11E+01	2.11E+01	2.11E+01	2.11E+01	2.10E+01
		$\pm 3.45\text{E}-01$	$\pm 3.12\text{E}-02$	$\pm 3.09\text{E}-02$	$\pm 2.56\text{E}-02$	$\pm 2.91\text{E}-01$	$\pm 4.47\text{E}-02$
	f9	6.63E-02	1.33E-01	1.89E+00	0.00E+00	0.00E+00	2.31E+02
		$\pm 2.25\text{E}-01$	$\pm 7.27\text{E}-01$	$\pm 1.89\text{E}+00$	$\pm 0.00\text{E}+00$	$\pm 0.00\text{E}+00$	$\pm 1.29\text{E}+01$
	f10	8.95E+01	1.01E+02	1.27E+02	1.02E+02	4.90E+01	2.38E+02
		$\pm 2.09\text{E}+01$	$\pm 2.18\text{E}+01$	$\pm 2.39\text{E}+01$	$\pm 1.50\text{E}+01$	$\pm 7.71\text{E}+00$	$\pm 1.45\text{E}+01$
	f11	3.84E+01	7.01E+01	3.85E+01	5.50E+01	5.14E+01	6.52E+01
		$\pm 5.89\text{E}+00$	$\pm 4.20\text{E}+00$	$\pm 3.83\text{E}+00$	$\pm 2.96\text{E}+00$	$\pm 2.38\text{E}+01$	$\pm 1.50\text{E}+00$
	f12	2.16E+04	3.11E+05	2.08E+04	1.57E+04	9.87E+04	7.09E+03
		$\pm 2.45\text{E}+04$	$\pm 4.38\text{E}+04$	$\pm 9.09\text{E}+03$	$\pm 1.61\text{E}+04$	$\pm 1.05\text{E}+04$	$\pm 8.26\text{E}+03$
$- / + / \approx$		4/3/0	3/4/0	3/4/0	3/4/0	4/3/0	
扩展多峰函数	f13	3.37E+00	6.15E+00	8.63E+00	3.00E+00	2.79E+00	2.33E+01
		$\pm 5.92\text{E}-01$	$\pm 4.36\text{E}-01$	$\pm 1.58\text{E}+00$	$\pm 2.24\text{E}-01$	$\pm 1.31\text{E}-01$	$\pm 1.75\text{E}+00$
	f14	2.14E+01	2.34E+01	2.23E+01	2.27E+01	2.18E+01	2.28E+01
		$\pm 7.51\text{E}-01$	$\pm 3.37\text{E}-01$	$\pm 2.38\text{E}-01$	$\pm 2.70\text{E}-01$	$\pm 4.01\text{E}-01$	$\pm 1.41\text{E}-01$
$- / + / \approx$		1/1/0	1/1/0	2/0/0	2/0/0	2/0/0	

续表 2

函数	算法					
	CoDE	EPSDE	SaDE	jDE	JADE	RHCSA
f15	3.63E+02	2.65E+02	3.73E+02	3.20E+02	3.27E+02	8.34E+02
	$\pm 8.51E+01$	$\pm 6.87E+01$	$\pm 6.49E+01$	$\pm 9.61E+02$	$\pm 9.44E+01$	$\pm 1.10E+01$
f16	9.15E+01	1.43E+02	1.23E+02	8.76E+01	9.86E+01	1.79E+02
	$\pm 6.68E+01$	$\pm 6.01E+01$	$\pm 1.13E+02$	$\pm 1.89E+01$	$\pm 1.22E+02$	$\pm 9.02E+00$
f17	9.34E+01	2.03E+02	1.06E+02	1.81E+02	1.47E+02	2.19E+02
	$\pm 6.88E+01$	$\pm 6.21E+01$	$\pm 8.82E+01$	$\pm 2.95E+01$	$\pm 1.09E+02$	$\pm 1.07E+01$
f18	9.25E+02	8.47E+02	9.86E+02	9.21E+02	9.23E+02	8.36E+02
	$\pm 2.42E+02$	$\pm 3.70E+00$	$\pm 1.49E+01$	$\pm 3.29E+00$	$\pm 6.26E+00$	$\pm 2.23E-02$
f19	9.31E+02	8.46E+02	9.85E+02	9.21E+02	9.23E+02	8.36E+02
	$\pm 5.88E+00$	$\pm 3.50E+00$	$\pm 1.49E+01$	$\pm 3.21E+00$	$\pm 4.23E+00$	$\pm 1.75E-02$
混合复合函数 f20	9.32E+02	8.45E+02	9.85E+02	9.20E+02	9.21E+02	8.36E+02
	$\pm 6.51E+00$	$\pm 3.01E+00$	$\pm 1.01E+01$	$\pm 3.14E+00$	$\pm 3.39E+00$	$\pm 2.52E-02$
f21	5.69E+02	7.30E+02	7.75E+02	7.69E+02	5.60E+02	7.16E+02
	$\pm 1.78E+02$	$\pm 3.37E+00$	$\pm 3.44E+02$	$\pm 2.56E+02$	$\pm 1.60E+02$	$\pm 1.90E+00$
f22	9.17E+02	5.00E+02	9.82E+02	8.99E+02	9.07E+02	5.00E+02
	$\pm 1.99E+01$	$\pm 1.92E-01$	$\pm 1.13E+01$	$\pm 7.33E+00$	$\pm 2.56E+01$	$\pm 2.61E-06$
f23	6.51E+02	7.33E+02	6.70E+02	7.60E+02	5.71E+02	7.21E+02
	$\pm 2.06E+02$	$\pm 3.14E+00$	$\pm 2.66E+02$	$\pm 2.40E+02$	$\pm 1.20E+02$	$\pm 1.19E+00$
f24	2.08E+02	2.36E+02	4.27E+02	2.00E+02	2.00E+02	2.13E+02
	$\pm 4.19E+01$	$\pm 1.96E+01$	$\pm 4.18E+02$	$\pm 1.56E-12$	$\pm 1.52E-12$	$\pm 2.49E-01$
f25	2.20E+02	2.73E+02	2.22E+02	2.16E+02	2.18E+02	2.12E+02
	$\pm 1.89E+00$	$\pm 1.67E+02$	$\pm 2.86E+00$	$\pm 1.55E+00$	$\pm 1.99E+00$	$\pm 2.14E-01$
- / + / \approx	6/5/0	3/7/1	4/7/0	4/7/0	6/5/0	

注“-”、“+”、“ \approx ”分别代表笔者提出的算法获得的结果“优于”,“差于”以及“等于”相比较的算法。

和多峰函数经过各种变换复合构造而成,这些函数大多拥有大量的局部最优值,且各种特性不可分割,部分函数还引入了旋转、噪声等,并人工设置了一些极易陷入的局部最优,为算法的求解提出了极大的挑战。

RHCSA 在混合复合函数上均未能找到全局最优值,但是其在 f18 ~ f20、f22 和 f25 上的表现是算法中最好的,在 f15、f16 和 f17 上表现稍差,其余函数上的表现与其他算法不相上下。总体看来,新提出的 RHCSA 在混合复合函数上的表现还是比较突出的。

从 25 个测试函数的整体比较来看, RHCSA 在单峰函数上的处理效果较好,多峰函数上的求解能力一般,对于更复杂的混合复合函数的表现较突出,所以笔者提出的 RHCSA 是非常有竞争力的。

4 结论

针对传统克隆选择算法易早熟收敛和陷入局部最优的缺点,提出了基于成功历史自适应的混合克隆选择算法。该算法引入改进的基因重组策

略来加强算法的全局搜索能力,并将成功历史自适应变异算子与超变异算子相结合提出了成功历史自适应超变异算子来提升算法的性能。仿真试验选取了 25 个包含单峰、多峰、混合复合的函数测试算法的性能,通过仿真结果可以看到,所提算法比传统的克隆选择算法具有更好的全局寻优和局部定位能力,与其他算法比较也显示了其竞争力。算法相关代码将整理发布在 <https://github.com/haoyouqiezi/HCSA> 上。后续将继续深入研究免疫系统的原理和功能,提取和改进免疫算子,提高算法在处理优化问题上的性能。

参考文献:

- [1] YANG X S, HE X. Nature-inspired optimization algorithms in engineering: overview and applications [M]. Nature-inspired computation in engineering. Springer international publishing, 2016.
- [2] 肖俊明,周谦,瞿博阳,等. 多目标进化算法及其在电力环境经济调度中的应用综述 [J]. 郑州大学学报(工学版), 2016,37(2):1-9.
- [3] VLADICESCU F P, ALBEANU G. Recent advances in artificial immune systems [M]. Recent develop-

- ments in intelligent nature-inspired computing, 2017.
- [4] KHLIWANI N, PRAKASH A, SHANKAR R, et al. Fast clonal algorithm [J]. Engineering applications of artificial intelligence, 2008, 21(1): 106–128.
- [5] JIAO L C, LI Y, GONG M G, et al. Quantum-inspired immune clonal algorithm for global optimization [J]. IEEE transactions on systems man & cybernetics part b cybernetics a publication of the IEEE systems man & cybernetics society, 2008, 38(5): 1234–1253.
- [6] GONG M G, JIAO L C, YANG J, et al. Lamarckian learning in clonal selection algorithm for numerical optimization [J]. International journal of artificial intelligence tools, 2010, 19(1): 19–37.
- [7] MEGALA T, KASHYAP M, VIVEKANANDAN K. Clonal selection algorithm with adaptive lévy mutation operator [C] // International conference on informatics and analytics. ACM, 2016: 127.
- [8] LI R, ZHAN W, HAO Z. Artificial immune particle swarm optimization algorithm based on clonal selection [J]. Boletin tecnico/technical bulletin, 2017, 55(1): 158–164.
- [9] 余航, 焦李成, 公茂果, 等. 基于正交试验设计的克隆选择函数优化 [J]. 软件学报, 2010, 21(5): 950–967.
- [10] 宋丹, 樊晓平, 文中华, 等. 模糊非基因信息记忆的双克隆选择算法 [J]. 电子与信息学报, 2017, 39(2): 255–262.
- [11] 谢新林, 续欣莹, 谢珺, 等. 一种基于粗糙集核值的克隆选择算法 [J]. 小型微型计算机系统, 2016, 37(5): 992–996.
- [12] BURNET M. The clonal selection theory of acquired immunity [M]. New York: Cambridge University Press, 1959.
- [13] DE CASTRO L N, VON ZUBEN F J. Learning and optimization using the clonal selection principle [J]. IEEE transactions on evolutionary computation, 2002, 6(3): 239–251.
- [14] 张伟伟, 林静静, 景红蕾, 等. 基于基因重组的新颖克隆选择算法 [J]. 南京大学学报(自然科学版), 2016, 52(4): 647–655.
- [15] TANABE R, FUKUNAGA A. Success-history based parameter adaptation for differential evolution [C] // Evolutionary Computation. IEEE, 2013: 71–78.
- [16] SUGANTHAN P N, HANSEN N, LIANG J J, et al. Problem definitions and evaluation criteria for the CEC2005 special session on real-parameter optimization.
- [17] WANG Y, CAI Z, ZHANG Q. Differential evolution with composite trial vector generation strategies and control parameters [J]. IEEE transactions on evolutionary computation, 2011, 15(1): 55–66.
- [18] MALLIPEDDI R, SUGANTHAN P N, PAN Q K, et al. Differential evolution algorithm with ensemble of parameters and mutation strategies [J]. Applied soft computing, 2011, 11(2): 1679–1696.
- [19] QIN A K, HUANG V L, SUGANTHAN P N. Differential evolution algorithm with strategy adaptation for global numerical optimization [J]. IEEE transactions on evolutionary computation, 2009, 13(2): 398–417.
- [20] BREST J, GREINER S, BOSKOVIC B, et al. Self-adapting control parameters in differential evolution: a comparative study on numerical benchmark problems [J]. IEEE transactions on evolutionary computation, 2006, 10(6): 646–657.
- [21] ZHANG J, SANDERSON A C. JADE: adaptive differential evolution with optional external archive [J]. IEEE transactions on evolutionary computation, 2009, 13(5): 945–958.

A Hybrid Clonal Selection Algorithm Based on Success-History Adaptation

ZHANG Weiwei, GAO Kui, ZHANG Weizheng, MENG Yinghui, WANG Hua, ZHANG Qiuwen

(School of Computer and Communication Engineering, Zhengzhou University of Light Industry, Zhengzhou 450002, China)

Abstract: Traditional clonal selection algorithm always suffered from the premature convergence and was easy to fall into local optima when dealing with complicated optimization problems. To overcome these shortcomings, a hybrid clonal selection algorithm was proposed in this paper. An improved combinatorial recombination strategy was introduced to strengthen the global search ability, and success-history adaptive mutation is combined with hypermutation operator to further improve the performance of the algorithm. The proposed algorithm was tested on the 25 test functions. The experiment results showed that the proposed algorithm could effectively improve the performance of the traditional clonal selection algorithm, and was competitive compared with other algorithms.

Key words: clonal selection; optimization; biological immunity

基于学习理论的改进粒子群优化算法

徐霜¹, 万强², 余琍²

(1. 武汉大学 高新技术产业发展部, 湖北 武汉 430072; 2. 武汉大学 计算机学院, 湖北 武汉 430072)

摘要: 论文针对粒子群算法容易陷入局部最优的问题, 提出基于学习理论的粒子群算法(L-PSO)。该算法通过为粒子群全局最优粒子设定最大周期限制, 使达到最大周期的全局最优粒子可以被取代, 同时利用聚类的思想对粒子群进行分组, 通过随机选择两个组中心, 以一定概率进行交叉变异, 生成竞争粒子并替换达到最大周期的全局最优粒子, 能够较好地避免算法陷入局部最优, 提高算法的收敛速度。在基准测试函数集上的测试结果表明该算法有效。

关键词: 粒子群算法; 最优化; 有效性; 测试函数

中图分类号: TP311

文献标志码: A

doi: 10.13705/j.issn.1671-6833.2019.02.007

0 引言

最优化问题分为传统优化方法和启发式优化方法。传统优化方法大多利用目标函数的梯度(或导数)信息实现单可行解的循序、确定性搜索; 启发式优化方法以仿生算法为主, 通过启发式搜索策略实现多可行解的并行、随机优化。启发式搜索算法不要求目标函数连续、可微等信息, 具备较好的全局寻优能力, 因而成为最优化领域的一个研究热点^[1-2]。

多启发式算法众多, 有基于蚂蚁觅食提出的蚁群算法(ant colony optimization, ACO)^[3], 基于蜜蜂采蜜提出的人工蜂群算法(artificial bee colony, ABC)^[4], 基于细菌捕食提出的细菌捕食算法(bacterial foraging optimization, BFO)^[5], 差分进化算法(differential evolution, DE)^[6], 头脑风暴算法(brain storm optimization, BSO)^[7-8]等。作为一种经典的启发式算法——粒子群优化算法(particle swarm optimization algorithm, PSO)是对鸟群捕食行为的模拟^[9-10]。PSO概念简单, 易于实现, 目前已广泛运用于函数优化、神经网络训练、模糊系统控制以及其他的科学和工程应用领域^[11-15]。

原始的粒子群算法易陷入局部最优。为解决原始粒子群算法早熟的缺点, 笔者根据人类社会中领袖任期机制提出一种周期性最优机制, 同时

引入周期性的学习策略, 提出聚类分组变异方法来改进粒子群从而提高种群的多样性, 避免陷入局部最优, 同时保障种群的收敛速度。

1 标准粒子群算法

在PSO中, 每个解被称为“粒子”(particle), 所有的粒子都有一个适应度值(fitness value), 每个粒子还有一个速度向量决定他们的运动方向, 粒子通过不断更新运动方向搜索解空间。算法的数学描述为: 在 Q 维空间中有 n 个粒子在进行搜索, 粒子的位置表示为 $X_i = (x_{i1}, x_{i2}, \dots, x_{iQ})$, 粒子对应的速度可以表示为 $V_i = (v_{i1}, v_{i2}, \dots, v_{iQ})$, 粒子在搜索时要考虑两个因素: ①单个粒子搜索到的个体历史最优值 P_{bi} , $P_{bi} = (p_{bi1}, p_{bi2}, \dots, p_{biQ})$, $i = 1, 2, 3, \dots, n$; ②全部粒子搜索到的全局历史最优值 P_{gb} , $P_{gb} = (p_{gb1}, p_{gb2}, \dots, p_{gbQ})$, $i = 1, 2, 3, \dots, n$ 。

各粒子的速度和位置按如下公式进行更新:

$$V_{id}(t+1) = \omega V_{id}(t) + c_1 r_1 (P_{bid}(t) - X_{id}(t)) + c_2 r_2 (P_{gbd}(t) - X_{id}(t)); \quad (1)$$

$$X_{id}(t+1) = X_{id}(t) + V_{id}(t+1), \quad (2)$$

式中: d 为粒子的维度; ω 是保持原来速度的系数, 即惯性权重; c_1, c_2 是粒子跟踪自己和群体历史最优值的权重系数; r_1, r_2 是 $[0, 1]$ 均匀分布的随机数。

收稿日期: 2018-04-11; 修订日期: 2018-06-21

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(161773296)

作者简介: 徐霜(1975—), 男, 武汉大学高级工程师, 博士, 主要从事智能计算、数据挖掘等研究, E-mail: xushuang@whu.edu.cn.

通信作者: 余琍(1977—), 女, 博士, 主要研究方向为智能计算、数据管理及安全, E-mail: yul@whu.edu.cn.

2 基于学习理论的改进粒子群优化算法

为避免早熟,提高种群的多样性,笔者引入了周期性学习策略,分别提出周期性最优机制、聚类分组变异机制以及分类预测评估机制。周期性最优机制通过为全局最优粒子设定数据,全局最优粒子陷入局部更新,避免整个种群陷入局部最优。聚类分组变异机制通过聚类划分种群,再选取不同类的粒子产生竞争粒子。分类预测评估机制通过依照以往若干代竞争粒子与全局最优粒子的进化结果构建分类器,预测竞争粒子是否能够替换全局最优粒子,确保全局最优粒子的优越性。

2.1 周期性最优机制

在自然界中,每个群居生物种群都有对应的领袖带领种群前行,无论是动物还是人类都是如此。Kubota 等^[16-17]将这个概念运用到遗传算法设计。在包含老年化机制的遗传算法中,每个个体都被分配一个年龄。当它的年龄达到一个预定义的寿命时,该个体会被移除。Chen 等^[18]同样引入衰老机制到粒子群算法中,以此提高粒子群的多样性。

笔者借鉴这种思想,针对粒子群算法中全局最优粒子提出一种限制条件——周期性,即周期性地改变粒子群中的全局最优粒子,从而避免种群在全局最优粒子陷入局部最优而导致整个群体也陷入局部最优。

2.2 聚类分组变异机制

为了周期性地生成新的全局最优粒子,笔者首先生成一个竞争粒子来尝试替换这个全局最优粒子。

聚类可以用于寻找数据内在的分布结构,因此研究者提出将聚类分析应用到多目标演化计算中^[19-21]。笔者提出一种聚类分组变异机制,借助聚类的思想对粒子群依照其个体分布情况进行分组^[22]。当全局最优粒子存在的时间超过周期限制时,对粒子群采用 K-means。依据粒子间的欧氏距离进行分组,最后随机选择 2 个组依照公式(3)进行变异产生竞争粒子,

$competitor_i =$

$$\begin{cases} P_{gbi} + R * (X_{k1,i} - X_{k2,i}) & \text{if rand} < r \\ P_{gbi}, & \text{otherwise} \end{cases} \quad (3)$$

笔者提出的改进粒子群算法流程如图 1 所示。

3 参数设置

笔者提出的 L-PSO 算法引入了 3 个主要参数。包括聚类的分组个数 SET 、产生竞争粒子时的

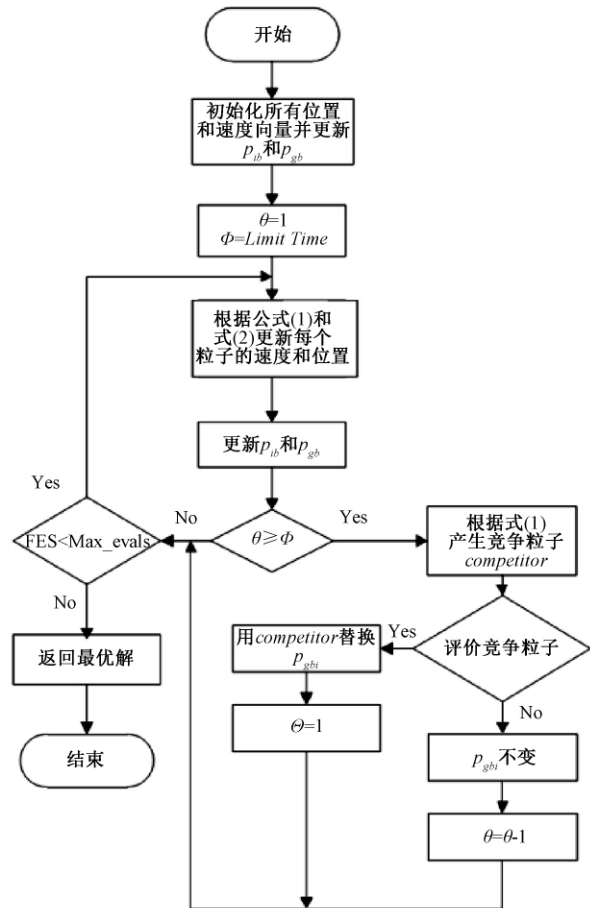


图 1 L-PSO 算法流程框图

Fig. 1 Flowchart of L-PSO

变异概率 r 以及 P_{gb} 的周期限制 $tenure$ 。

聚类分组中较大的 SET 将加重算法的时间复杂度;反之,聚类分组后无法从个体在决策空间的分布上看出个体间的差异,因此,为平衡时间复杂度和方法的有效性,我们在文中将 SET 设置为 3。

产生竞争粒子时的变异概率为 r 。因为当前的 P_{gb} 粒子仍然是已知的最优粒子,因此 P_{gb} 的解在不同维度上的值是具有参考价值的。因此, r 值设置为 $1/n$, n 是解的维度大小。这样,生成的竞争粒子在极大程度上保持 P_{gb} 解结构的同时,在每一个维度上都有相同的产生变异的机率。这样,即保证了生成的竞争粒子质量,也有很大机会生成有较好进化潜能的新粒子。

此外,为了衡量 $tenure$ 值的变化对算法性能的影响,我们从所选择的 22 个测试函数如表 1 所示。选择了单峰函数 f1,从 CEC2013 中选择一个多峰函数(在本文编号为 f22)做参数测试,统计结果如图 2。可以看出,当 $tenure$ 设置为 10 时, L-PSO 在解决单峰和多峰函数时能显示出较好的性能,因此,在实验中我们将 $tenure$ 的值取为 10。

表 1 标准测试函数
Tab. 1 Basic test functions

编号	测试函数	N	搜索范围	最优值
f1	Sphere	30	$[-100, 100]$	0
f2	Schwefel's P2. 22	30	$[-10, 10]$	0
f3	Quadric	30	$[-100, 100]$	0
f4	Rosenbrock's	30	$[-10, 10]$	0
f5	Step	30	$[-100, 100]$	0
f6	Schwefels	30	$[-500, 500]$	-12 569. 5
f7	Rastrigin	30	$[-5. 12, 5. 12]$	0
f8	Noncontinuous Rastrigin	30	$[-5. 12, 5. 12]$	0
f9	Ackley	30	$[-32, 32]$	0
f10	Griewank	30	$[-600, 600]$	0
f11	Penalized 1	30	$[-50, 50]$	0
f12	Penalized 2	30	$[-50, 150]$	0

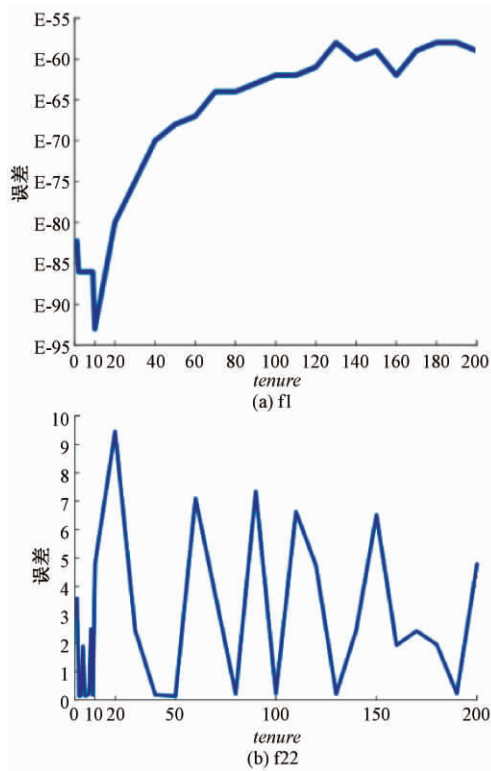


图 2 f1 和 f22 上不同 tenure 值 L-PSO 的算法性能
Fig. 2 Performance of the L-PSO under different tenure values on f1 and f22

4 对比实验

4.1 测试函数和对比算法

为了验证本文所提策略的有效性,笔者选择了 22 个测试函数来评估 L-PSO 的性能. 前 12 个为表 1 所示的基本函数,其余函数为 CEC2013 中的前十个测试函数,在本文中编号为 f13 ~ f22.

为了比较算法性能,笔者选择了 4 个有代表性的改进的 PSO 算法作为对比算法,包括 ALC-PSO、DMS-PSO、GPSO 和线性权重递减版本的 GPSO. 所有算法的参数设置与原文献中相同,具体设置如表 2 所示. 此外, L-PSO 中公式 (3) 的 R 值为生成竞争粒子的控制参数,设置为 0.5. 为保

证实验结果准确,每一个算法都在各个测试函数上独立地运行 20 次并求取平均值. 每个测试函数的维度 N 设置为 30,算法种群大小设置为 20,算法迭代的停止条件为最大函数评估次数 $\text{Max_evals} = 200\ 000$.

表 2 对比算法及参数设置

Tab. 2 Parameters settings for algorithms

算法名称	参数设置
ALC-PSO	$c_1 = 2, c_2 = 2, \omega = 0.4, T = 2, \omega = 60$
DMS-PSO	$\chi = 0.729\ 8, c_1 = c_2 = 1.494\ 45, M = 4, R = 10$
GPSO	$c_1 = 2, c_2 = 2, \omega = 0.4$
线性权重递减的 GPSO	$c_1 = 2, c_2 = 2, \omega \in [0.4, 0.9]$
L-PSO	$c_1 = 2, c_2 = 2, \omega = 0.4, SET = 3, \text{tenure} = 10, r = 1/n$

4.2 数值结果对比

各个算法 20 次独立运行后的平均误差值 $MEAM$ 以及标准差 SD 的统计结果如表 3 所示. 最好的结果用粗体表示,次优的结果用下划线表示.

从表 3 中可以看出 L-PSO 算法在 22 个测试函数中的 f5、f7、f9、f10、f11、f12、f13、f15、f19、f20 和 f22 上取得了最好的结果. 在 f6、f8、f14、f16、f18 和 f21 上取得了次优的结果. 此外, L-PSO 在解决多峰函数时,展现出了优越的性能,在 f6 ~ f12, f18 ~ f22 这 12 个多峰函数的试验中, L-PSO 在其中的 8 个函数上取得了最优解,综合所有函数最后的结果可以看出,基于学习理论的改进粒子群算法在性能上具有一定的优越性.

4.3 算法收敛比较

图 3 为 L-PSO 算法与其他算法的比较结果. 其中横坐标为函数评估次数,纵坐标为误差值. 由于篇幅限制,只展示部分有代表性的结果. 从收敛曲线可以看出, L-PSO 保持了较好的收敛性可

表 3 对比实验结果
Tab.3 Results comparison on all test functions

		L-PSO	GPSO	GPSO 0.9-0.4	ALC-PSO	DMS-PSO
f1	MEAN	6.49E-94	3.42E-165	4.65E-53	<u>4.32E-165</u>	4.95E-24
	SD	2.02E-93	0.00E+00	7.97E-53	<u>0.00E+00</u>	1.37E-23
f2	MEAN	3.89E-69	3.70E-93	3.06E-34	<u>1.53E-87</u>	1.53E-12
	SD	7.88E-69	7.11E-93	5.91E-34	<u>4.83E-87</u>	3.36E-12
f3	MEAN	4.61E-05	8.40E-11	8.33E-02	<u>1.18E-10</u>	1.68E+01
	SD	7.49E-05	1.11E-10	6.34E-02	<u>1.31E-10</u>	1.40E+01
f4	MEAN	2.10E+01	<u>1.22E+01</u>	2.51E+01	4.96E+00	2.34E+01
	SD	<u>4.81E-01</u>	4.48E+00	2.88E+01	6.70E+00	2.25E-01
f5	MEAN	0.00E+00	3.63E+01	0.00E+00	<u>0.00E+00</u>	0.00E+00
	SD	0.00E+00	1.14E+02	0.00E+00	<u>0.00E+00</u>	0.00E+00
f6	MEAN	<u>2.37E+03</u>	4.42E+03	2.67E+03	1.99E+03	4.24E+03
	SD	7.69E+02	1.07E+03	7.42E+02	2.78E+02	<u>5.63E+02</u>
f7	MEAN	0.00E+00	5.37E+01	3.54E+01	<u>6.00E-14</u>	2.14E+01
	SD	0.00E+00	2.06E+01	1.37E+01	<u>3.55E-14</u>	8.34E+00
f8	MEAN	<u>9.20E-11</u>	3.00E+00	3.00E-01	0.00E+00	1.81E+00
	SD	<u>2.91E-10</u>	1.70E+00	4.83E-01	0.00E+00	2.80E+00
f9	MEAN	8.88E-17	1.20E+00	<u>9.50E-15</u>	1.09E-14	3.79E-14
	SD	1.12E-15	9.18E-01	<u>3.67E-15</u>	4.97E-15	3.85E-14
f10	MEAN	0.00E+00	1.63E-02	2.29E-02	3.10E-02	<u>2.22E-03</u>
	SD	0.00E+00	2.04E-02	1.98E-02	5.12E-02	<u>4.99E-03</u>
f11	MEAN	1.82E-32	8.29E-02	3.11E-02	<u>2.04E-32</u>	5.46E-28
	SD	2.68E-33	1.94E-01	5.01E-02	<u>1.47E-32</u>	1.58E-27
f12	MEAN	6.30E-32	3.75E-01	3.30E-03	<u>1.03E-31</u>	2.20E-03
	SD	7.63E-32	7.05E-01	5.31E-03	<u>2.82E-31</u>	4.63E-03
f13	MEAN	2.27E-13	1.59E+03	3.33E+03	1.32E-12	<u>3.41E-13</u>
	SD	0.00E+00	1.86E+03	1.20E+03	1.86E-12	<u>1.20E-13</u>
f14	MEAN	<u>4.22E+06</u>	6.01E+06	2.25E+07	3.92E+06	6.06E+06
	SD	2.08E+06	8.95E+06	2.13E+07	4.18E+06	<u>3.89E+06</u>
f15	MEAN	2.67E+07	1.71E+10	7.30E+10	1.06E+10	<u>4.69E+08</u>
	SD	2.39E+07	1.46E+10	8.61E+10	1.31E+10	<u>1.26E+09</u>
f16	MEAN	<u>1.43E+03</u>	2.92E+03	9.95E+03	3.09E+03	8.58E+02
	SD	<u>3.74E+02</u>	1.88E+03	9.56E+03	5.73E+02	1.56E+02
f17	MEAN	8.21E+00	1.04E+03	2.34E+03	1.93E-13	<u>5.46E-13</u>
	SD	1.80E+01	9.35E+02	1.09E+03	5.49E-14	<u>3.16E-13</u>
f18	MEAN	<u>5.11E+01</u>	1.35E+02	2.63E+02	4.57E+01	5.33E+01
	SD	<u>2.18E+01</u>	1.03E+02	1.62E+02	2.30E+01	1.43E+01
f19	MEAN	2.83E+01	1.39E+02	1.76E+02	1.29E+02	<u>4.10E+01</u>
	SD	1.47E+01	4.97E+01	6.81E+01	8.60E+01	<u>2.26E+01</u>
f20	MEAN	2.09E+01	2.09E+01	2.10E+01	<u>2.09E+01</u>	2.11E+01
	SD	6.50E-02	5.66E-02	4.46E-02	6.11E-02	<u>5.30E-02</u>
f21	MEAN	<u>1.84E+01</u>	2.74E+01	2.13E+01	2.49E+01	1.74E+01
	SD	3.69E+00	5.01E+00	3.74E+00	<u>3.52E+00</u>	3.18E+00
f22	MEAN	1.89E+00	2.31E+02	8.42E+02	1.19E+02	<u>2.05E+01</u>
	SD	5.56E+00	2.10E+02	3.85E+02	1.06E+02	<u>4.30E+01</u>

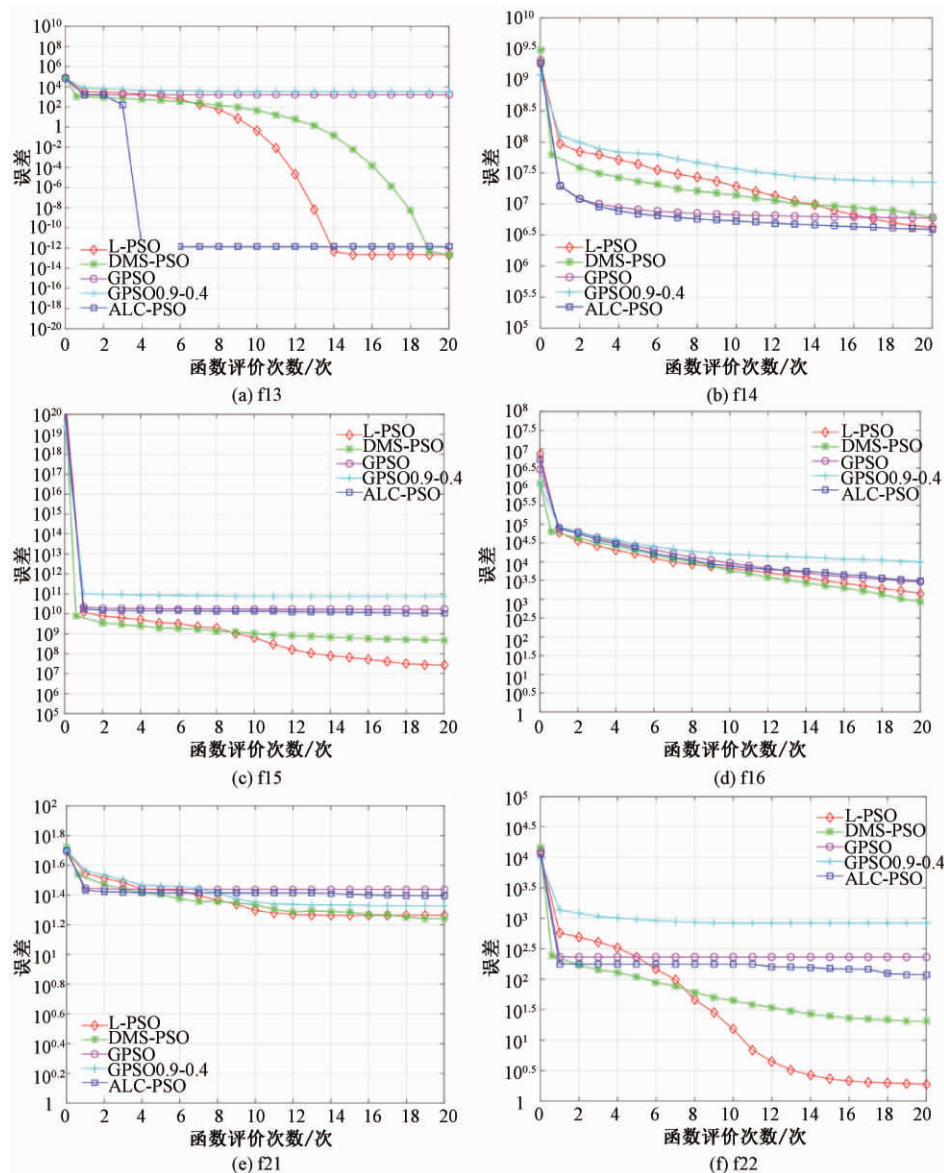


图3 收敛过程对比图

Fig.3 Comparrson of convergencemap

见 L-PSO 在解决本文中的测试函数时显现出了较好的性能。

5 结论

引入周期性学习策略,提出了周期性最优机制以及聚类分组变异机制对标准粒子群进行改进,提出基于学习理论的改进粒子群算法。该算法有效克服了标准粒子群优化及一些经典演化算法的缺陷,能够快速寻优,避免陷入局部最优,在单峰和多峰函数上都能较好地求解。下一步将尝试应用该算法到大规模的实际应用问题上进行优化求解。

参考文献:

- [1] XUE B, ZHANG M, BROWNE W N, et al. A survey on evolutionary computation approaches to feature selection [J]. IEEE transactions on evolutionary computation, 2016, 20(4): 606–626.
- [2] 梁静, 刘睿, 瞿博阳, 等. 进化算法在大规模优化问题中的应用综述 [J]. 郑州大学学报(工学版), 2018, 39(3): 15–21.
- [3] DORIGO M, MANIEZZO V, COLONI A. Ant system: optimization by a colony of cooperating agents [J]. IEEE transactions on systems, man, and cybernetics, part B: cybernetics, 1996, 26(1): 29–41.
- [4] KARABOGA D. An idea based on honey bee swarm for numerical optimization [R]. Technical report-tr06, Erciyes university, engineering faculty, computer engineering department, 2005.
- [5] PASSINO K M. Biomimicry of bacterial foraging for distributed optimization and control [J]. Control systems, IEEE, 2002, 22(3): 52–67.
- [6] STORN R, PRICE K. Differential evolution — a

- simple and efficient heuristic for global optimization over continuous spaces[J]. *Journal of global optimization*, 1997, 11(4): 341–359.
- [7] SHI Y. Brain storm optimization algorithm [M] // *Advances in Swarm Intelligence*. Springer Berlin Heidelberg, 2011: 303–309.
- [8] 程适, 陈俊风, 孙奕菲, 等. 数据驱动的发展式头脑风暴优化算法综述[J]. *郑州大学学报(工学版)*, 2018, 39(3): 22–28.
- [9] KENNEDY J. Particle swarm optimization [M] // *Encyclopedia of Machine Learning*. Springer US, 2010: 760–766.
- [10] SHI Y, EBERHART R. A modified particle swarm optimizer [C] // *Evolutionary Computation Proceedings*, 1998. *IEEE World Congress on Computational Intelligence*, The 1998 *IEEE International Conference on*. IEEE, 1998: 69–73.
- [11] 严晶晶, 阎新芳, 冯岩. WSN 中基于梯度和粒子群优化算法的分集簇算法[J]. *郑州大学学报(工学版)*, 2016, 37(2): 33–36.
- [12] SHANG R, DAI K, JIAO L, et al. Improved memetic algorithm based on route distance grouping for multiobjective large scale capacitated arc routing problems [J]. *IEEE transactions on cybernetics*, 2017, 46(4): 1000–1013.
- [13] LIANG J J, QIN A K, SUGGANTHAN P N, et al. Comprehensive learning particle swarm optimizer for global optimization of multimodal functions [J]. *IEEE transactions on evolutionary computation*, 2006, 10(3): 281–295.
- [14] 赵新超, 刘国莅, 刘虎球, 等. 基于非均匀变异和多阶段扰动的粒子群优化算法[J]. *计算机学报*, 2014, 37(9): 2058–2070.
- [15] YE W, FENG W, FAN S. A novel multi-swarm particle swarm optimization with dynamic learning strategy [J]. *Applied soft computing*, 2017(61): 832–843.
- [16] KUBOTA N, FUKUDA T. Genetic algorithms with age structure [J]. *Soft computing*, 1997, 1(4): 155–161.
- [17] GHOSH A, TSUTSUI S, TANAKA H. Individual aging in genetic algorithms [C] // *Intelligent Information Systems*, 1996. Australian and New Zealand Conference on. IEEE, 1996: 276–279.
- [18] CHEN W N, ZHANG J, LIN Y, et al. Particle swarm optimization with an aging leader and challengers [J]. *IEEE transactions on evolutionary computation*, 2013, 17(2): 241–258.
- [19] KOTINIS M. Improving a multi-objective differential evolution optimizer using fuzzy adaptation and K-medoids clustering [J]. *Soft computing*, 2014, 18(4): 757–771.
- [20] ZHANG H, ZHOU A, SONG S, et al. A self-organizing multiobjective evolutionary algorithm [J]. *IEEE transactions on evolutionary computation*, 2016, 20(5): 792–806.
- [21] AES F G G, WANNER E F, TAKAHASHI R H C. A quality metric for multi-objective optimization based on hierarchical clustering techniques [C] // *Evolutionary Computation*, 2009. CEC09. *IEEE Congress on*. IEEE, 2009: 3292–3299.
- [22] LU X F, TANG K. Classification-and regression-assisted differential evolution for computationally expensive problems [J]. *Journal of computer science and technology*, 2012, 27(5): 1024–1034.

An Improved Particle Swarm Optimization Algorithm Based on Learning Theory

XU Shuang¹, WAN Qiang², YU Li²

(1. The Department of Hi-tech Industry, Wuhan University, Wuhan 430072, China; 2. School of Computer Science, Wuhan University, Wuhan 430072, China)

Abstract: Since PSO algorithm was easy to get trapped into local optimum, in this paper, based on the learning theory a new PSO algorithm named as L-PSO was proposed. In L-PSO, an integer value was set as the maximum cycle limitation for the global best particles, and propose a clustering grouping mutation mechanism which could divide the particles into some sub-swarms and generates the competitive particle by crossover and mutation of the two centers selected randomly from sub-swarms. Then the competitive particle was used to replace the global optimum particle which could help jump out of the local optimum and improve the convergence speed. Experimental results on several benchmark test functions showed that L-PSO was very effective.

Key words: PSO; optimization; efficiency; test functions

永磁同步电机全速范围内无位置传感器控制

张震, 沈学珂, 程欣

(郑州大学 产业技术研究院, 河南 郑州 450001)

摘要: 传统的扩展卡尔曼滤波算法已被广泛应用于永磁同步电机无位置传感器控制系统中, 该方法具有良好的动态性能, 但在电机启动和低速运行时, 对转子速度和位置的估计精度较低. 为了解决这一问题, 本文设计一种将扩展卡尔曼滤波算法与高频信号注入法相结合的复合检测方法, 中高速时采用卡尔曼滤波法, 零速和低速时采用高频信号注入法, 而过渡区设计特殊的算法, 将两种方法进行融合, 实现全速域内无位置传感器高精度控制. 仿真结果证明, 基于该复合式检测算法的永磁同步电机无位置传感器矢量控制系统具有动态调节速度快, 鲁棒性好等优点.

关键词: 永磁同步电机; 扩展卡尔曼滤波; 无位置传感器控制; 高频信号注入

中图分类号: TM341

文献标志码: A

doi: 10.13705/j.issn.1671-6833.2019.02.019

0 引言

永磁同步电机(permanent magnet synchronous motor, PMSM)以其电流平稳、噪声小、转矩脉动小、转矩/惯量比大、效率高等优势成为高性能调速系统的首选.

传统的PMSM转速和位置检测是通过机械式传感器获取^[1], 如光电编码器或旋转变压器. 此方法动态响应快、稳态无静差、调速范围宽、控制性强, 但当工作环境发生恶劣变化(如高温、低温、空气污浊等)或者存在机械震动时, 检测结果将无法保证且成本高. 当前的PMSM控制系统正往高效率、高性能、低成本的方向发展. 因此, 无位置传感器^[2]的应用成为PMSM伺服系统研究的新方向. 现有的PMSM无位置传感器控制方法归为两种: ①基于电机反电动势的方法^[3-4]. 比如基于模型参考自适应法、滑模观测器法和扩展卡尔曼滤波法, 均利用电机产生的反电动势估计电机转子位置和转速, 但此方法只适用于中高速的场合; ②基于高频信号注入^[5]. 即将不同类型的额外高频信号叠加在电机的基频激励上, 通过检测电机对高频信号的响应得到电机转子位置和转速信息. 此方法利用电机内在的凸极特性检测电机静止时和运动时的速

度和位置. 这种凸极跟踪算法不依赖于任何电机参数和运行情况, 在零速或低速的条件下系统也能够获得稳定的控制性能, 但是高频注入法会引起推力波动^[6-7], 产生附加的损耗和瞬态干扰, 因而这类方法多用于低速段.

在研究扩展卡尔曼滤波法的基础上, 通过对扩展卡尔曼滤波算法和高频信号注入法的分析, 将两种不同算法进行有机复合, 以提高系统的性能. 仿真结果表明, 复合后的方法增强了系统的动态性能, 弥补了两种控制方式各自存在的不足, 降低了估计误差, 提高了系统的鲁棒性.

1 扩展卡尔曼滤波估计法

扩展卡尔曼滤波(extended kalman filtering, EKF)又称最小方差线性递推滤波, 是建立在线性卡尔曼滤波基础上的一种非线性参数估计方法, 且参数和方差阵的估计不依赖于它们的初值, 通过递推算法实现无偏最优估计^[8-9].

笔者采用表面贴式永磁同步电机, 在 $d-q$ 轴坐标系下建立数学模型, 为了对非线性系统进行线性化处理, 假设电阻变化率为 $dR/dt=0$; 假设非线性方程一定有解, 并且该向量与实际向量之间的关系可以描述成线性的微分方程, 同时, 该解可真实地反映系统特性.

收稿日期: 2018-06-09; 修订日期: 2018-09-11

基金项目: 河南省科技攻关项目(152102210032); 省林业信息化十三五规划项目(23210001)

作者简介: 张震(1966—), 男, 汉, 河南郑州人, 郑州大学教授, 硕导, 主要研究领域为数字信号处理、图像处理与模式识别, E-mail: zhangzhen66@126.com.

PMSM 定子电压方程:

$$\begin{cases} u_d = R_s i_d + p\psi_d - \omega_e \psi_q \\ u_q = R_s i_q + p\psi_q + \omega_e \psi_d \end{cases} \quad (1)$$

式中: R_s 为定子电阻; i_d 、 i_q 分别为定子 d 轴、 q 轴的电流分量; u_d 、 u_q 分别为定子 d 轴、 q 轴的电压分量; p 为微分因子。

PMSM 定子磁链方程式

$$\begin{cases} \psi_d = L_d i_d + \psi_f \\ \psi_q = L_q i_q \end{cases} \quad (2)$$

式中: ψ_d 和 ψ_q 分别为定子 d 轴、 q 轴等效磁链; ψ_f 为转子磁链; L_d 和 L_q 为定子 d 轴、 q 轴等效的电枢电感, 且 $L_d = L_q = L$ 。

PMSM 电磁转矩方程式:

$$T_e = \frac{3}{2} P_n (\psi_d i_q - \psi_q i_d) = \frac{3}{2} P_n (\psi_f i_q + (L_d - L_q) i_d i_q) \quad (3)$$

$$T_e = T_L + B\omega_e + Jp\omega_e \quad (4)$$

式中: T_e 为电磁转矩; B 为运动阻尼系数; J 为转动惯量; T_L 为负载转矩; P_n 为电机极对数; ω_e 为转子电角速度。

综上, 可得 PMSM 的状态方程式为:

$$\begin{cases} \frac{di_d}{dt} = -\frac{R_s}{L_s} i_d + \omega_e i_q + \frac{u_d}{L_s} \\ \frac{di_q}{dt} = -\omega_e i_d - \frac{R_s}{L_s} i_q - \frac{\psi_f}{L_s} \omega_e + \frac{u_q}{L_s} \\ \frac{d\omega_e}{dt} = \frac{3}{2J} P_n^2 \psi_f i_q - \frac{1}{J} P_n T_L \\ \frac{d\theta_e}{dt} = \omega_e \\ \frac{dL}{dt} = 0 \end{cases} \quad (5)$$

则 PMSM 的状态方程可以表示为:

$$\begin{cases} \dot{\mathbf{x}} = \mathbf{A}\mathbf{x} + \mathbf{C}\mathbf{u} \\ \mathbf{y} = \mathbf{H}\mathbf{x} \end{cases} \quad (6)$$

式中: \mathbf{x} 为状态变量, 且 $\mathbf{x} = [i_d i_q \omega_e \theta L]^T$; \mathbf{y} 为状态输出向量, 且 $\mathbf{y} = [i_d i_q]^T$; \mathbf{u} 为输入向量, 且 $\mathbf{u} = [u_d u_q]^T$; \mathbf{A} 为系数矩阵, 且

$$\mathbf{A} = \begin{bmatrix} -\frac{R_s}{L} & \omega_r & 0 & 0 & 0 \\ -\omega_r & -\frac{R_s}{L} & -\frac{\psi_f}{L} & 0 & 0 \\ 0 & \frac{3}{2J} P_n^2 \psi_f & 0 & 0 & -\frac{P_n}{J} \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

\mathbf{H} 为系统观测矩阵, 且

$$\mathbf{H} = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

\mathbf{C} 为系数矩阵, 且:

$$\mathbf{C} = \begin{bmatrix} \frac{1}{L} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \frac{1}{L} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}^T$$

考虑系统噪声和测量噪声的影响, 且采样时间 T 足够短时, 构建的 PMSM 非线性离散时间状态方程为:

$$\begin{cases} \dot{\mathbf{x}}_{(k+1)} = \mathbf{A}_{(k)} \mathbf{x}_{(k)} + \mathbf{C}_{(k)} \mathbf{u}_{(k)} + \mathbf{w}_{(k)} \\ \mathbf{y}_{(k)} = \mathbf{H} \cdot \mathbf{x}_{(k)} + \mathbf{v}_{(k)} \end{cases} \quad (7)$$

式中: \mathbf{w} 为系统噪声; \mathbf{Q} 为系统噪声协方差矩阵; \mathbf{v} 为测量噪声; \mathbf{R} 为测量噪声协方差矩阵; \mathbf{w} 和 \mathbf{v} 均具有零均值高斯白噪声的特性。设 T 为采样时间, 且 $T = t_k - t_{k-1}$, \mathbf{I} 为单位矩阵; 则

$$\mathbf{A}_k = \mathbf{I} + \mathbf{A}T =$$

$$\begin{bmatrix} 1 - T\frac{R_s}{L} & T\omega_e & 0 & 0 & 0 \\ -T\omega_e & 1 - T\frac{R_s}{L} & -T\frac{\psi_f}{L} & 0 & 0 \\ 0 & \frac{3}{2J}TP_n^2\psi_f & 1 & 0 & -T\frac{P_n}{J} \\ 0 & 0 & T & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix},$$

$$\mathbf{C}_k = \mathbf{C} \cdot T = \begin{bmatrix} \frac{T}{L} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \frac{T}{L} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}^T$$

根据文献[8], 改进的 EKF 法对速度和位置的估计算法步骤如下。

a) 状态向量、方差矩阵的初始化。设状态初值 $\hat{\mathbf{x}}_0 = [0 \ 0 \ 0 \ 0 \ L]^T$; 经过反复调试, 设

$$\mathbf{Q} = \begin{bmatrix} 0.1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0.1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 10 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0.01 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0.1 \end{bmatrix};$$

$$\mathbf{R} = \begin{bmatrix} 0.5 & 0 \\ 0 & 0.5 \end{bmatrix}.$$

$\mathbf{P}_{(0)}$ 为五阶非负正定对角矩阵, 且设

$$\mathbf{P}_{(0)} = \begin{bmatrix} 0.01 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0.01 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0.1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0.01 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0.001 \end{bmatrix}.$$

b) 状态估计.

$$\hat{\mathbf{x}}_{k/k-1} = \mathbf{A}_{k-1} \hat{\mathbf{x}}_{k/k-1} + \mathbf{C}_k \mathbf{u}_{k-1}, \quad (8)$$

$$\mathbf{P}_{k/k-1} = \mathbf{A}_{k-1} \mathbf{P}_{k-1/k-1} \mathbf{A}_{k-1}^T. \quad (9)$$

c) 计算增益矩阵 \mathbf{K}_k .

$$\mathbf{K}_k = \mathbf{P}_{k,k-1} \mathbf{H}^T (\mathbf{H} \mathbf{P}_{k,k-1} \mathbf{H}^T + \mathbf{R})^{-1}. \quad (10)$$

d) 状态更新.

$$\mathbf{x}_{k,k} = \mathbf{x}_{k,k-1} + \mathbf{K}_k (\mathbf{y}_k - \mathbf{H} \mathbf{x}_{k,k-1}), \quad (11)$$

$$\mathbf{P}_{k,k} = (\mathbf{I} - \mathbf{K}_k \mathbf{H}) \mathbf{P}_{k,k-1}. \quad (12)$$

2 高频脉振电流注入法

在高频脉振电压注入法^[10-11]的基础上,笔者选择高频脉振电流注入法,进行转子位置和转速的检测. PMSM 在 d - q 轴的数学模型如式(1)、(2)所示. 由于低速和零速时,交叉耦合项和反电动势项数值较小,且 ω_e 远远小于注入的高频电压频率 ω_h ,可近似为 0. 因此,简化后的 d - q 轴电压方程为:

$$\begin{aligned} \begin{bmatrix} \mathbf{u}_{db} \\ \mathbf{u}_{qb} \end{bmatrix} &= \begin{bmatrix} R_s + L_d p & 0 \\ 0 & R_s + L_q p \end{bmatrix} \begin{bmatrix} i_{db} \\ i_{qb} \end{bmatrix} \\ &= \begin{bmatrix} Z_d & 0 \\ 0 & Z_q \end{bmatrix} \begin{bmatrix} i_d \\ i_q \end{bmatrix}, \end{aligned} \quad (13)$$

式中: \mathbf{u}_{db} 、 \mathbf{u}_{qb} 为 d 、 q 轴注入的高频电压; i_{db} 、 i_{qb} 为 d 、 q 轴注入的高频电流; Z_d 、 Z_q 为 d 、 q 轴的阻抗. 图 1 为定义的 3 个坐标系的关系图,其中 d - q 为实际的同步旋转坐标系; \hat{d} - \hat{q} 是估计的同步旋转坐标系; α - β 为实际的两相静止坐标系,并定义

$$\Delta\theta = \theta - \hat{\theta}. \quad (14)$$

由图 1 可以得到以下关系

$$\begin{bmatrix} i_d \\ i_q \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \cos \Delta\theta & \sin \Delta\theta \\ -\sin \Delta\theta & \cos \Delta\theta \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \hat{i}_d \\ \hat{i}_q \end{bmatrix}; \quad (15)$$

$$\begin{bmatrix} \mathbf{u}_d \\ \mathbf{u}_q \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \cos \Delta\theta & \sin \Delta\theta \\ -\sin \Delta\theta & \cos \Delta\theta \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \hat{\mathbf{u}}_d \\ \hat{\mathbf{u}}_q \end{bmatrix}, \quad (16)$$

式中: $\Delta\theta$ 为估计位置误差; θ 为转子实际位置; $\hat{\theta}$ 为转子位置估计值; $\hat{\mathbf{u}}_d$ 、 $\hat{\mathbf{u}}_q$ 为 \hat{d} - \hat{q} 坐标系下的电压估计值; \hat{i}_d 、 \hat{i}_q 为 \hat{d} - \hat{q} 坐标系下的电流估计值.

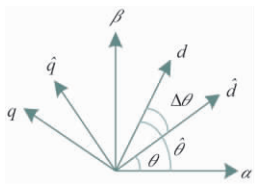


图 1 参考坐标系关系图

Fig. 1 Reference coordinate system diagram

由公式(13)~(16)可以得到如下关系式:

$$\begin{aligned} \begin{bmatrix} \hat{\mathbf{u}}_d \\ \hat{\mathbf{u}}_q \end{bmatrix} &= \begin{bmatrix} \hat{i}_d \\ \hat{i}_q \end{bmatrix} \cdot \\ &\begin{bmatrix} Z_d \cos^2 \Delta\theta + Z_q \sin^2 \Delta\theta & (Z_d - Z_q) \sin \Delta\theta \cos \Delta\theta \\ (Z_d - Z_q) \sin \Delta\theta \cos \Delta\theta & Z_d \sin^2 \Delta\theta + Z_q \cos^2 \Delta\theta \end{bmatrix}. \end{aligned} \quad (17)$$

令 $\mathbf{Z} = (\mathbf{Z}_d + \mathbf{Z}_q) / 2$, $\Delta\mathbf{Z} = (\mathbf{Z}_d - \mathbf{Z}_q) / 2$, 则可以得到 $\mathbf{Z}_d = \mathbf{Z} + \Delta\mathbf{Z}$, $\mathbf{Z}_q = \mathbf{Z} - \Delta\mathbf{Z}$. 将其带入式(17)可以得到

$$\begin{bmatrix} \hat{\mathbf{u}}_d \\ \hat{\mathbf{u}}_q \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \mathbf{Z} + \Delta\mathbf{Z} \cos 2\Delta\theta & \Delta\mathbf{Z} \sin 2\Delta\theta \\ \Delta\mathbf{Z} \sin 2\Delta\theta & \mathbf{Z} - \Delta\mathbf{Z} \cos 2\Delta\theta \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \hat{i}_d \\ \hat{i}_q \end{bmatrix}. \quad (18)$$

由式(16)可以看出,在 $\hat{\mathbf{u}}_d$ 、 $\hat{\mathbf{u}}_q$ 中均含有与 $\Delta\theta$ 有关的量. 为了准确获取转子位置,通过高频注入法,在 \hat{d} - \hat{q} 轴系中注入如下形式电流信号:

$$\begin{bmatrix} \hat{i}_{dh} \\ \hat{i}_{qh} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} I_m \sin \omega_h t \\ 0 \end{bmatrix}, \quad (19)$$

式中: I_m 为在直轴注入的高频电流信号幅值; ω_h 为注入信号的角频率. 注入高频电流后,在输出侧得到的高频电压响应的表示形式为:

$$\begin{bmatrix} \hat{\mathbf{u}}_{dh} \\ \hat{\mathbf{u}}_{qh} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} (\mathbf{Z} + \Delta\mathbf{Z} \cos 2\Delta\theta) I_m \sin \omega_h t \\ \Delta\mathbf{Z} \sin 2\Delta\theta \cdot I_m \sin \omega_h t \end{bmatrix}. \quad (20)$$

令 $L = (L_d + L_q) / 2$, $\Delta L = (L_d - L_q) / 2$, 带入式(20)得

$$\begin{aligned} \begin{bmatrix} \hat{\mathbf{u}}_{dh} \\ \hat{\mathbf{u}}_{qh} \end{bmatrix} &= \begin{bmatrix} (\mathbf{Z} + \Delta\mathbf{Z} \cos 2\Delta\theta) I_m \sin \omega_h t \\ j\omega_h \Delta L \sin 2\Delta\theta I_m \sin \omega_h t \end{bmatrix} \\ &= \begin{bmatrix} (\mathbf{Z} + \Delta\mathbf{Z} \cos 2\Delta\theta) I_m \sin \omega_h t \\ \omega_h I_m \Delta L \sin 2\Delta\theta \angle (\pi/2) \sin \omega_h t \end{bmatrix} \\ &= \begin{bmatrix} (\mathbf{Z} + \Delta\mathbf{Z} \cos 2\Delta\theta) I_m \sin \omega_h t \\ \omega_h I_m \Delta L \sin 2\Delta\theta \cos \omega_h t \end{bmatrix}. \end{aligned} \quad (21)$$

对式(21)进行分析可得:当 $\Delta\theta = 0$ 时, \hat{d} - \hat{q} 坐标系和 d - q 坐标系一致,因为高频脉振电流仅在 \hat{d} 轴注入,所以, $i_{qh} = \hat{i}_{qh} = 0$,这就保证了注入的高频电流不会引起转矩脉动,保证了该方法的良好控制性能.

由式(21)可得, \hat{q} 轴上的 $\hat{\mathbf{u}}_{qh}$ 为

$$\hat{\mathbf{u}}_{qh} = -\omega_h \Delta L I_m \sin(2\Delta\theta) \cos(\omega_h t). \quad (22)$$

对式(1)和式(22)进行分析可得,如果可以将 $\hat{\mathbf{u}}_{qh}$ 的幅值调节为零,那么就可以保证 $\Delta\theta$ 恒为零. 所以,可将 $\hat{\mathbf{u}}_{qh}$ 首先经过乘法器 ($\cos \omega_h t$), 再经过低通滤波器 (LPF) 得到如下形式信号:

$$\begin{aligned} f_l(\Delta\theta) &= \text{LPF}(\hat{\mathbf{u}}_{qh} \times \cos(\omega_h t) \times 2) \\ &= -\omega_h \Delta L I_m \sin 2\Delta\theta, \end{aligned} \quad (23)$$

其中,根据等价无穷小定理,当 $\Delta\theta$ 很小时, $\sin 2\Delta\theta \approx 2\Delta\theta$,即式(23)可重写为:

$$f_l(\Delta\theta) \approx -\omega_h \Delta L I_m \Delta\theta. \quad (24)$$

简化后的系统调节结构如图(2)所示,图2中, k_m 为积分系数.

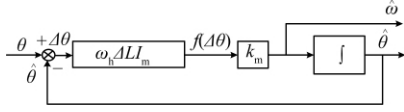


图2 系统调节结构图

Fig.2 System adjustment structure diagram

3 改进 EKF 与高频注入复合法

笔者将两种方法进行复合,即在低速或零速时采用高频脉振电流注入法,高速时采用改进的 EKF 法,在低速和高速过渡区采用复合算法.复合算法的关键是全速范围内实现转速的平滑切换^[12].较常用的切换方法是滞环切换法^[13],滞环切换法虽然简单,却存在较大的切换抖动和输出扰动的缺陷,为了改善此弊端,笔者在滞环切换的基础上,采用加权复合方式实现两种算法的复合.

根据两种算法的速度适应范围和运行特性确定过渡区域的速度下限 ω_{r1} 和上限 ω_{r2} .为了使低速、高速域内都能有较好的位置估算精度, ω_{r1} 和 ω_{r2} 的选取需做如下规定:①过渡区域的速度下限 ω_{r1} 要高于能使 EKF 精确工作的最低速度;②过渡区域的速度上限要低于高频注入法精确工作的最高速度,并且能够满足电机自启动要求.

利用式(25)和式(26)的线性方程实现两种方法的平滑过渡.如图3所示,加权系数 α 、 β 始终满足 $\alpha + \beta = 1$,保证了此切换算法的科学性.具体复合过程如图4所示.

$$\begin{cases} \dot{\omega} = \alpha \dot{\omega}_g + \beta \dot{\omega}_k \\ \dot{\theta} = \int \dot{\omega} dt \end{cases}, \quad (25)$$

$$\alpha = \begin{cases} 1, & \omega \leq \omega_{r1} \\ \frac{\omega_{r2} - \omega}{\omega_{r2} - \omega_{r1}}, & \omega_{r1} < \omega < \omega_{r2} \\ 0, & \omega \geq \omega_{r2} \end{cases}, \quad (26)$$

式中: ω_g 为高频注入法检测转速; ω_k 为改进 EKF 检测转速.

4 仿真分析

利用 Matlab/Simulink 搭建仿真模型进行仿真分析.仿真参数参考表面贴式永磁同步电机的

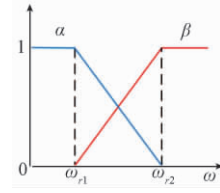


图3 加权系数关系图

Fig.3 Weighted coefficient relation diagram

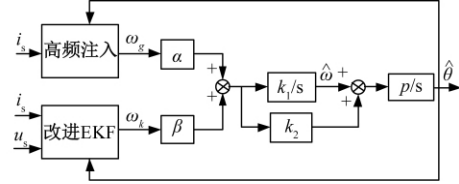


图4 复合算法转子位置估算原理图

Fig.4 The principle diagram of the estimation of the rotor position of the composite algorithm

实际参数,具体参数设置如下:定子电阻 $R_s = 2.875 \Omega$,极对数 $P_n = 4$,定子电感 $L_s = 8.5 \text{ mH}$,转动惯量 $J = 0.0008 \text{ kg} \cdot \text{m}^2$,黏滞摩擦系数 $B = 0.0001 \text{ N} \cdot \text{m} \cdot \text{s}$,永磁体磁链 $\psi_a = 0.175 \text{ Wb}$,PI 参数设为: $k_p = 20$; $k_i = 50$.仿真系统图如图5所示.

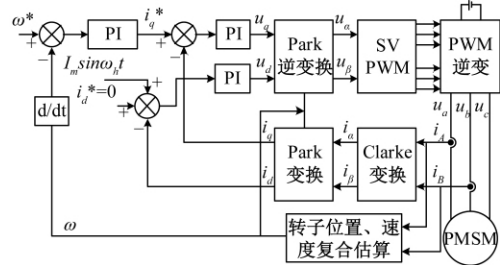


图5 PMSM 无传感器复合控制系统

Fig.5 PMSM sensorless composite control system

为了确定复合法的最佳切换区间,在 $0 \sim 1000 \text{ r/min}$ 选取不同的额定速度,分别采用两种方法,进行大量的仿真实验.笔者列出额定转速为 50 、 400 、 500 r/min 时,分别采用高频注入法和 EKF 法时的仿真结果,如图6、7、8所示.

图6中,当电机额定转速为 50 r/min 时,对比图6(a)和6(c),明显可以看出,EKF 法的观测噪声大,谐波含量高,而高频注入法却能较精确地估计转子位置的实际值,图6(b)和图6(d)更清晰地反映出高频注入法在低速时噪声小,估计精度高,而 EKF 法在低速时噪声大,估计精度低.

由图7和图8的仿真结果可以看出,当电机额定转速为 400 r/min 时,采用高频注入法的估计误差低于 EKF 法的估计误差.当额定转速为 500 r/min 时,与额定转速为 400 r/min 时相比,采用高频注入法的跟踪效果变差,噪声变大,估计误

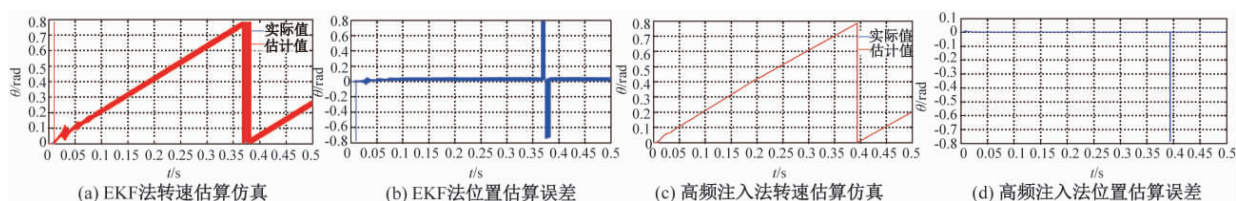


图6 额定转速为 50 r/min 时两种方法的仿真结果

Fig. 6 Simulation results of the two control method at rated speed of 50 r/min

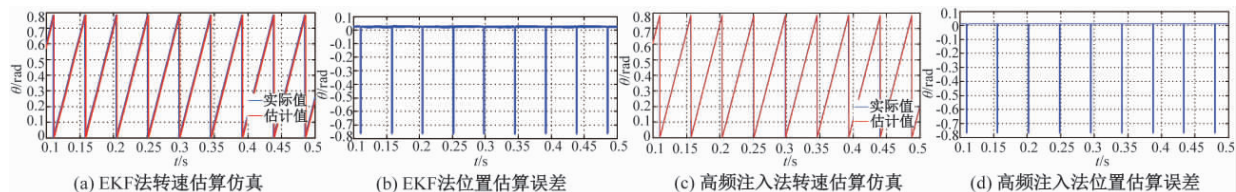


图7 额定转速为 400 r/min 时两种方法的仿真结果

Fig. 7 Simulation results of the two control method at rated speed of 400 r/min

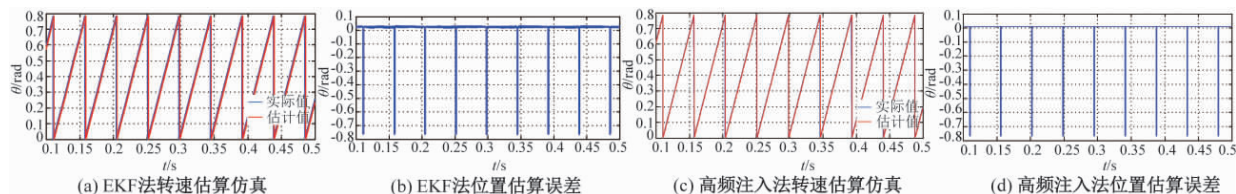


图8 额定转速为 500 r/min 时两种方法的仿真结果

Fig. 8 Simulation results of the two control method at rated speed of 500 r/min

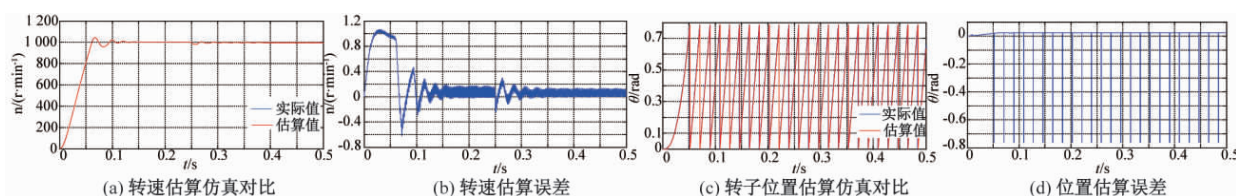


图9 复合控制系统仿真结果

Fig. 9 Composite Control System Simulation Results

差升高,而采用 EKF 法的观测精度变高,噪声变小,误差降低。因此,笔者以 400、500 r/min 为低速和中高速的分界点。

为了充分验证复合控制系统的动态性能,在电机额定转速为 1 000 r/min,速度切换域为 [400 r/min, 500 r/min],且 0.25 s 时负载转矩由 0 N·m 突增到 5 N·m 的情况下,进行仿真实验。仿真结果如图 9 所示。

如图 9(a)、(b) 所示,改进后的复合控制系统转速跟踪误差小,在进入切换区域后仍然可以稳定运行,并且当负载转矩突变后,能在较短时间内恢复平稳运行状态;图 9(c)、(d) 表明,改进型无传感器复合控制系统获取的转子位置信息几乎无相位延迟,保证系统在低速到高速段内都有较高的估算精度。

5 结论

首先分析了高频注入法和卡尔曼滤波算法在 PMSM 无传感器控制系统中的应用特点,根据两种算法在无传感器转子位置估计中的速度适用范围,将两种算法进行了复合统一。利用加权系数法实现了两种算法之间的平滑过渡,并在最后进行了仿真验证。结果表明,所设计的复合式转子位置检测方法结构简单,能够快速精确地检测出转子位置,在负载突变的情况下也能高效、快速跟踪速度的变化,大大提高了系统的动态响应性能,较好地实现了全速范围无位置传感器系统位置与转速的估计。

参考文献:

- [1] 张猛,肖曦,李永东. 基于扩展卡尔曼滤波器的永磁同步电机转速和磁链观测器[J]. 中国电机工程学

- 报, 2007, 27(36): 36-40.
- [2] 高越, 罗映红. 高频激励下永磁同步电机无传感器控制研究[J]. 郑州大学学报(工学版), 2013, 34(5): 80-84.
- [3] 陆华才, 江明, 陈其工. 永磁直线同步电机驱动系统速度和位置无传感器检测新方法[J]. 电工电能新技术, 2011, 30(2): 5-8.
- [4] ZHENG Z Q, ZHANG Y H, ZHANG J S. Application of Kalman Filter in DC Motor Speed Control System [J]. Applied mechanics and materials, 2012, 1605(150): 129-132.
- [5] ZHANG Y F, LI S J, ZHOU Y, et al. PMSM Control System Based on a Improved Sliding Mode Observer[J]. Applied mechanics and materials, 2013, 2324(307).
- [6] MORIMOTO S, SHIMMEI A, SANADA M, et al. Position and speed sensorless control system of permanent magnet synchronous motor with parameter identification [J]. Electrical engineering in Japan, 2007, 160(2): 68-76.
- [7] SHENG wen Y E, SHAN mao G U, GUANG c L I, et al. Sensorless Vector Control of Permanent Magnet Synchronous Motor Based on Method of High-frequency Injection Method [J]. Industry & mine automation, 2010.
- [8] QI X, ZHOU X M, WANG C S, et al. Sensorless control of permanent-magnet synchronous motor based on high-frequency signal injection and Kalman filter [C] // International Symposium on Systems and Control in Aerospace and Astronautics. IEEE, 2009: 1-5.
- [9] 究涛, 刘军, 杨明亮, 等. 基于高频注入法永磁同步电机控制研究[J]. 电气自动化, 2015, 37(3): 7-9.
- [10] BISHEIMER G, SONNAILLON M O, DE Angelo C H, et al. Full speed range permanent magnet synchronous motor control without mechanical sensors [J]. Electric Power Applications Iet, 2010, 4(1): 35-44.
- [11] LI H, XIE H, YI X, et al. Research on low speed control of permanent magnet synchronous motor based on state observer [C] // International Conference on Biomedical Engineering and Informatics. IEEE, 2011: 2018-2022.
- [12] ZHANG J, GUO X, HUANG X. Method research of permanent magnet synchronous motor position sensorless control over full speed range [C] // IEEE International Conference on Industrial Technology. IEEE, 2017.
- [13] 郑国良. 永磁同步电动机的全范围无传感器控制研究[D]. 郑州: 郑州大学电气工程学院, 2013.

Sensorless Control of Permanent Magnet Synchronous Motor in Full Speed Range

ZHANG Zhen, SHEN Xueke, CHENG Xin

(School of Electric Engineering, Zhengzhou University, Zhengzhou 450001, China)

Abstract: The traditional extended Kalman filter algorithm has been widely used in permanent magnet synchronous motor position sensorless control system. This method has good dynamic performance, but its estimation accuracy of rotor speed and position is low, when the motor starts and runs at low speed. In order to solve this problem, this paper designs a composite detection method that combines the extended Kalman filter algorithm with high-frequency signal injection method. The Kalman filter method is used in medium and high speed, and the high frequency signal injection method is applied to zero speed and low speed. The transition area is designed with a special algorithm that merges the two methods to achieve high-precision control in the full-speed domain. Finally, the simulation results show that the permanent magnet synchronous motor sensorless vector control system based on this hybrid detection algorithm has the advantages of fast dynamic adjustment, good robustness and so on.

Key words: permanent magnet synchronous motor; extended Kalman filter; position sensorless control; high frequency signal injection

文章编号: 1671-6833(2019)02-0041-07

线性扩张状态观测滤波器的分析与应用

檀盼龙, 李益敏, 赵相宾, 邵 欣

(天津中德应用技术大学 智能制造学院, 天津 300350)

摘 要: 针对控制系统的输出容易受到噪声干扰的问题, 提出了一种基于线性扩张状态观测器的滤波算法. 线性扩张状态观测滤波器基于扩张状态观测器对系统状态和扩张状态的精确观测能力, 不需要预先确定测量噪声的统计特征即可对采样频率未知或者采样频率变化的系统输出进行滤波, 而且结构简单, 便于实现和调试. 分析过程证明了扩张状态观测滤波器的收敛性, 并给出了对应的离散表达式. 仿真分析表明, 线性扩张状态观测滤波器与卡尔曼滤波器相比具有更快的计算速度和更高的滤波精度, 因而更加实用. 在动力翼伞系统风场辨识中的应用进一步说明了扩张状态观测滤波器的有效性.

关键词: 扩张状态观测器; 滤波器; 自抗扰控制; 动力翼伞; 风场辨识

中图分类号: TP391.9

文献标志码: A

doi: 10.13705/j.issn.1671-6833.2019.02.003

0 引言

在控制系统中, 测量噪声对系统的控制品质有着重要的影响. 在控制系统的数学模型和噪声统计特征已知的情况下, 可以利用卡尔曼滤波器对系统输出进行滤波, 降低测量噪声的干扰^[1]. 但在实际系统中很难得到精确的数学模型和噪声的统计特征, 控制系统的噪声特征完全未知或者部分未知, 错误的噪声统计特征可能降低卡尔曼滤波器的滤波精度, 甚至使滤波器发散从而导致滤波失败. 为了解决此问题, Sage 和 Husa 提出了一种在线计算系统噪声 Q 和测量噪声 R 的自适应卡尔曼滤波算法, 并在非线性和复杂系统的滤波处理中得到了应用. 然而, 由于每次滤波都需要对 Q 或者 R 进行在线估计, 滤波的复杂度增加, 在实际使用时无法保证滤波结果的实时性^[3].

韩京清提出的自抗扰控制技术具有较强的抗干扰能力和解决不确定性问题的能力^[4], 在不依赖控制系统数学模型的情况下依靠扩张状态观测器(extended state observer, ESO)降低测量噪声和系统扰动对控制系统的影响. 自抗扰控制技术已经在许多实验系统和实际工程中得到了检验^[5-7], 受到了研究人员的广泛重视.

自抗扰控制技术包括跟踪微分器(tracking

differentiator, TD)、ESO 和非线性 PID 3 部分^[8], 其中 ESO 是自抗扰控制技术的核心部分. 非线性 ESO 将系统的扰动扩张成系统的一阶新的状态, 根据“大误差小增益, 小误差大增益”的原则, 利用特定的非线性误差反馈对原系统进行状态观测. 适当地选择扩张状态观测器的参数可以得到包括系统总干扰信息在内的所有系统状态观测值. 进一步的研究表明, 根据经典控制论中的极点配置方法将扩张状态观测器的误差反馈线性化^[9], 设计出线性扩张状态观测器(linear ESO, LESO), 可以在保证观测能力的情况下减少参数个数, 降低参数调整的复杂度, 便于工程应用^[10].

宋金来等^[11]将带测量噪声的系统输出进行积分作为新的状态建立扩张状态观测器, 即积分型扩张状态观测器(integral ESO, IESO), 对系统进行滤波和状态估计. 但扩张的积分状态值随着时间的增长而增加, 可能出现存储溢出等问题. Bai 等^[12]通过设计扩张状态观测器的反馈增益矩阵增强扩张状态观测器对系统输出噪声的抑制能力, 取得了一定的效果.

LESO 对测量噪声具有一定的抑制性, 且不依赖于系统模型. 笔者根据 LESO 的特点, 设计了一种将观测带宽 ω_o 和调节参数 τ 作为调节参数

收稿日期: 2018-05-21; 修订日期: 2018-08-27

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(61273138); 天津市自然科学基金资助项目(17JCYBJC16800); 天津市教委科研计划项目(2017KJ044); 天津市科技计划项目技术创新引导专项科技特派员项目(17JCTPJC49300)

作者简介: 檀盼龙(1988—), 男, 河北邢台人, 天津中德应用技术大学讲师, 博士, 主要从事智能控制技术和柔性飞行器的建模与控制方面的研究.

的离散线性扩张状态观测滤波器,通过仿真和应用研究,对其滤波性能进行分析和验证.

1 扩张状态观测器(ESO)

扩张状态观测器是自抗扰控制技术中的核心部分,目的是利用观测器原理对控制系统状态及未建模部分和系统扰动进行观测,其中未建模部分和系统扰动作为一个扩张的系统状态对待.扩张状态观测器不依赖系统的精确数学模型,而仅利用系统的阶次进行扩张状态观测器设计^[6].

考虑一类单输入单输出的非线性时变系统,数学描述为^[6]:

$$\dot{y}^{(n)} = f(y^{(n-1)}, y^{(n-2)}, \dots, y, w) + bu, \quad (1)$$

其中, y 是系统的输出; u 为系统输入; w 为系统的外界干扰; b 为非零的输入增益; $f(y^{(n-1)}, y^{(n-2)}, \dots, y, w)$ 表示系统的非线性时变动态描述.

建立式(1)对应的状态方程:

$$\begin{cases} \dot{x}_1 = x_2 \\ \dot{x}_2 = x_3 \\ \vdots \\ \dot{x}_{n-1} = x_n \\ \dot{x}_n = f(\mathbf{X}_n, w) + bu \\ y = x_1 \end{cases}, \quad (2)$$

式中: $\mathbf{X}_n = [x_1, \dots, x_n]^T$; $f(\mathbf{X}_n, w)$ 表示系统动态和系统扰动的总和. 为了表示方便将 $f(\mathbf{X}_n, w)$ 用 f 表示,并假定 $\dot{f} = h$. 因此可以构建系统的扩张状态观测器,

$$\begin{cases} e_1 = z_1 - y \\ \dot{z}_1 = z_2 - \beta_{01}g_1(e_1) \\ \dot{z}_2 = z_3 - \beta_{02}g_2(e_1) \\ \vdots \\ \dot{z}_n = z_{n+1} + bu - \beta_n g_n(e_1) \\ \dot{z}_{n+1} = -\beta_{n+1}g_{n+1}(e_1) \end{cases}, \quad (3)$$

式中: z_i 是观测状态; e_1 表示观测误差; $g_i(e_1)$ 是关于 e_1 的非线性函数; 且 $e_1 \cdot g_i(e_1) \geq 0$. 如果取 $g_i(e_1) = e_1$ 的线性形式,则扩张状态观测器变为线性的,称为线性扩张状态观测器. 线性扩张状态观测器的估计能力在文献[13]中得到了证明.

以上扩张状态观测器的分析建立在系统只有扰动的基础上. 如果系统存在测量噪声,系统的状态方程表达为:

$$\begin{cases} \dot{x}_1 = x_2 \\ \dot{x}_2 = x_3 \\ \vdots \\ \dot{x}_{n-1} = x_n \\ \dot{x}_n = f(\mathbf{X}_n, w) + bu \\ y = x_1 + d_o \end{cases}, \quad (4)$$

式中: d_o 表示系统的测量噪声. 带测量噪声的扩张状态观测器误差表达式改为 $e_1 = z_1 - y = z_1 - x_1 - d_o$.

令 $\mathbf{Z} = [z_1, z_2, \dots, z_{n+1}]^T$; $\mathbf{X} = [x_1, x_2, \dots, x_{n+1}]^T$, 且

$$A = \begin{bmatrix} 0 & 1 & 0 & \cdots & 0 \\ 0 & 0 & 1 & \cdots & 0 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 0 & 0 & 0 & \cdots & 1 \\ 0 & 0 & 0 & \cdots & 0 \end{bmatrix}_{(n+1) \times (n+1)}; \quad (5)$$

$$B_1 = [0 \ 0 \ \cdots \ b \ 0]^T_{1 \times (n+1)}; \quad (6)$$

$$B_2 = [0 \ 0 \ \cdots \ 0 \ 1]^T_{1 \times (n+1)}; \quad (7)$$

$$L = [\beta_{01} \ \beta_{02} \ \cdots \ \beta_n \ \beta_{n+1}]^T_{1 \times (n+1)}. \quad (8)$$

则系统状态方程和线性扩张状态观测器方程表示为:

$$\dot{\mathbf{X}} = A\mathbf{X} + B_1 u + B_2 h; \quad \dot{\mathbf{Z}} = A\mathbf{Z} + B_1 u - L e_1. \quad (9)$$

记 $\tilde{e} = \mathbf{X} - \mathbf{Z}$; $A_1 = A - L$, 观测误差表达式为:

$$\dot{\tilde{e}} = A_1 \tilde{e} + B_2 h + L d_o. \quad (10)$$

可以得到如下结论.

定理 1: 假设总干扰的导数 $h(\mathbf{X}_n, w)$ 和 d_o 是有界的,即存在正数 M_1 使 $|h(\mathbf{X}_n, w)| \leq M_1$, 存在正数 M_2 使 $|d_o| \leq M_2$, 则总有线性扩张观测器对带测量噪声的系统的状态观测误差是有界的. 即存在正数 M_3 使 $|\tilde{e}| \leq M_3$.

证明: 取正数 $\lambda_i < \lambda_j$, ($i < j$; $i, j = 1, 2, \dots, n+1$), 使得

$$|\lambda I - A_1| = \prod_{i=1}^{n+1} (\lambda + \lambda_i), \quad (11)$$

此时存在可逆矩阵 T , 使得

$$A_1 = T \text{diag}(\lambda_1, \lambda_2, \dots, \lambda_{n+1}) T^{-1}, \quad (12)$$

则有

$$\exp(A_1 t) = T \text{diag}(\exp(-\lambda_1 t), \exp(-\lambda_2 t), \dots, \exp(-\lambda_{n+1} t)) T^{-1}, \quad (13)$$

当 $t > 0$ 时, 对式(13)取 m_∞ 范数, 可得,

$$\|\exp(A_1 t)\|_{m_\infty} \leq \alpha \exp(-\lambda_1 t), \quad t > 0, \quad (14)$$

其中, α 为常数. 由式(10)得到观测误差的解为

$$\tilde{e}(t) = \exp(A_1 t) \tilde{e}(0) + \int_0^t \exp(A_1(t-\tau)) B_2 h d\tau +$$

$$\int_0^t \exp(A_1(t-\tau)) L d_o d\tau. \quad (15)$$

综合可得

$$\begin{aligned} \|\tilde{e}(t)\| &\leq \|\exp(A_1 t) \tilde{e}(0)\| + \\ &\quad \left\| \int_0^t \exp(A_1(t-\tau)) B_2 h d\tau \right\| + \\ &\quad \left\| \int_0^t \exp(A_1(t-\tau)) L d_o d\tau \right\| \leq \\ &\quad \|\exp(A_1 t)\|_{m_\infty} \|\tilde{e}(0)\| + \\ &\quad \int_0^t \|\exp(A_1(t-\tau))\|_{m_\infty} \cdot \\ &\quad \|B_2\| \|h\| d\tau + \\ &\quad \int_0^t \|\exp(A_1(t-\tau))\|_{m_\infty} \cdot \\ &\quad \|L\| \|d_o\| d\tau \leq \\ &\quad \alpha \|\tilde{e}(0)\| \|\exp(-\lambda_1 t)\| + \\ &\quad \frac{M_1 \alpha}{\lambda_1} (1 - \exp(-\lambda_1 t)) + \\ &\quad \frac{M_2 \alpha}{\lambda_1} (1 - \exp(-\lambda_1 t)) \leq \\ &\quad \alpha \|\tilde{e}(0)\| + \frac{M_1 \alpha}{\lambda_1} + \frac{M_2 \alpha}{\lambda_1} = M_3. \quad (16) \end{aligned}$$

证毕.

2 线性扩张状态观测滤波器设计

根据定理1,线性扩张状态观测器在对带有测量噪声的被控系统进行观测时,选择适当的观测器参数可以得到理想的观测效果,因此,可以设计适当的扩张状态观测器作为滤波器使用.

2.1 线性扩张状态观测器离散化

对于数字控制系统,控制器对系统输出的采样和处理都是以离散的形式进行^[14].以二阶扩张状态观测器为例,对应的控制系统的扩张状态表达式为

$$\begin{cases} \dot{x}_1 = x_2 + bu \\ \dot{x}_2 = h \\ y = x_1 + d_o \end{cases}, \quad (17)$$

取

$$A = \begin{bmatrix} 0 & 1 \\ 0 & 0 \end{bmatrix}; B = \begin{bmatrix} b \\ 0 \end{bmatrix}; C = [1 \quad 0]; L_d = \begin{bmatrix} \beta_{01} \\ \beta_{02} \end{bmatrix}, \quad (18)$$

则式(17)对应的线性扩张状态观测器设计为

$$\dot{Z} = AZ + Bu - L_d e_1, \quad (19)$$

式中: $Z = [z_1, z_2]^T$; $e_1 = z_1 - y$. 线性扩张状态观测器离散化后得

$$Z(k+1) = \Phi Z(k) + \Gamma u(k) - L_d e_1(k). \quad (20)$$

设离散后的误差增益 $L_d = \Phi L_c$, 则有

$$Z(k+1) = (\Phi - \Phi L_c C) Z(k) + \Gamma u(k) + \Phi L_c x_1(k). \quad (21)$$

为了简化设计,通过设置 L_c 将系统极点配置到

$$\lambda(z) = |\lambda I - \Phi(I - L_c C)| = (\lambda - \beta)^2, \quad (22)$$

其中, $\beta = \exp(-\omega_o T_d)$, ω_o 和 T_d 分别表示线性扩张状态观测器的带宽调节系数和系统采样周期.

根据连续系统离散化理论,得到

$$\Phi = \begin{bmatrix} 1 & T_d \\ 0 & 1 \end{bmatrix}, \Gamma = \begin{bmatrix} b T_d \\ 0 \end{bmatrix}, L_c = \begin{bmatrix} 1 - \beta^2 \\ (1 - \beta)^2 \end{bmatrix}. \quad (23)$$

式(17)所示系统的离散形式为

$$\begin{cases} X(k+1) = \Phi X(k) + \Gamma u(k) \\ y(k) = x_1(k) \end{cases}, \quad (24)$$

式中: $X = [x_1, x_2]^T$. 式(24)所示的系统可以直接根据式(20)设计离散形式的线性扩张状态观测器.

2.2 线性扩张状态观测滤波器设计

对于任意带噪声系统输出信号序列 $y(k)$, 都可以写成如下形式

$$\begin{cases} x(k+1) = x(k) + T x'(k) \\ y(k) = x(k) + d(k) \end{cases}, \quad (25)$$

式中: $x(k)$ 表示系统实际状态; $x'(k)$ 表示两次采样间隔时间内控制系统状态的变化率; $d(k)$ 表示测量噪声.

式(25)中 $x'(k)$ 是一个动态变化量,将 $x'(k)$ 看作可以通过 ESO 估计的系统总扰动,同时考虑到滤波器的作用是对系统输出进行准确观测,不需要总扰动的准确值,所以可以将式(25)中的 T 设计为可调参数,并用 τ 代替,从而根据观测器的设计原理设计式(25)对应的扩张状态观测滤波器

$$\begin{cases} e_1(k) = z_1(k) - y(k) \\ z_1(k+1) = z_1(k) + \tau z_2(k) - \beta_{01} e_1(k) \\ z_2(k+1) = z_2(k) - \beta_{02} e_1(k) \end{cases}, \quad (26)$$

式中: τ 是设置的类似采样周期的可调滤波参数. 根据扩张状态观测器离散方法,式(26)中有

$$\begin{bmatrix} \beta_{01} \\ \beta_{02} \end{bmatrix} = \Phi L_c. \quad (27)$$

线性扩张状态观测滤波器可表示为

$$\begin{cases} e_1(k) = z_1(k) - y(k) \\ Z(k+1) = \Phi Z(k) - \Phi L_c e_1(k) \end{cases}, \quad (28)$$

其中,

$$\Phi = \begin{bmatrix} 1 & \tau \\ 0 & 1 \end{bmatrix}; L_c = \begin{bmatrix} 1 - \beta^2 \\ \frac{(1 - \beta)^2}{\tau} \end{bmatrix}; \beta = \exp(-\omega_o \tau), \quad (29)$$

式中: ω_o 和 τ 是扩张状态观测滤波器的滤波调节参数。

3 仿真分析与应用研究

为说明线性扩张状态观测滤波器的滤波效果,加入了应用广泛的卡尔曼滤波算法作为对比. 在卡尔曼滤波算法中,系统状态方程和测量方程为^[15-16]

$$X_k = \Phi_{k|k-1} X_{k-1} + \Gamma_{k-1} W_{k-1}, \quad (30)$$

$$Z_k = H_k X_k + V_k, \quad (31)$$

式中: X_k 为状态矩阵; $\Phi_{k|k-1}$ 为 $k-1$ 时刻到 k 时刻的状态转移矩阵; Γ_{k-1} 为 $k-1$ 时刻的噪声转移矩阵; W_{k-1} 为系统噪声; Z_k 为系统测量向量; H_k 为系统测量矩阵; V_k 表示系统噪声. 其中噪声特征描述为 $E(W_k) = q$; $E(V_k) = r$; $E(W_k W_i^T) = Q\delta_i$, $E(V_k V_i^T) = R\delta_i$, δ_i 为 Kronecker 函数. 在对比中假定噪声的统计特征均为已知的. 卡尔曼递推更新算法表示为

$$X_{k|k-1} = \Phi_{k|k-1} X_{k-1} + \Gamma_{k-1} q, \quad (32)$$

$$\varepsilon_k = Z_k - H_k X_{k|k-1} - r, \quad (33)$$

$$K_k = P_{k|k-1} H_k^T [H_k P_{k|k-1} H_k^T + R]^{-1}, \quad (34)$$

$$P_{k|k-1} = \Phi_{k|k-1} P_{k-1} \Phi_{k|k-1}^T + \Gamma_{k-1} Q \Gamma_{k-1}^T, \quad (35)$$

$$X_k = X_{k|k-1} + K_k \varepsilon_k, \quad (36)$$

$$P_k = [I - K_k H_k] P_{k|k-1} [I - K_k H_k]^T. \quad (37)$$

3.1 仿真分析

在仿真分析中,设置带测量噪声的传感器输出序列的采样周期为 100 Hz,这满足一般工业传感器的实际采样频率。

在二阶的线性扩张状态观测滤波器中,有两个可调参数, ω_o 和 τ 均与测量输出的采样频率无关. 在参数调节中,一般考虑调节 ω_o 、 τ 改变 β 的值实现线性扩张状态观测滤波器的极点配置,参数调整方式与线性扩张状态观测器的调参方式相同^[7]. ω_o 的值越大收敛速度越快,相应的噪声也同样放大; ω_o 的值越小滤波器滤波效果也好,但会带来较大的相位偏差,造成时间上的滞后. τ 的取值影响滤波精度,仿真实验表明,一般取 $\tau \in [0.1, 1]$ 时滤波效果比较理想。

以控制系统输出周期为 10 s,幅值为 1 的正弦波和三角波为例,采样间隔 0.01 s,加入幅值

为正弦波 10% 的高斯白噪声,测量结果与实际值的对比如图 1 所示. $y(k)$ 为实际输出序列; $z_1(k)$ 为 $y(k)$ 的带噪声测量序列. 控制系统的传递函数为

$$y' = -200y + 200u. \quad (38)$$

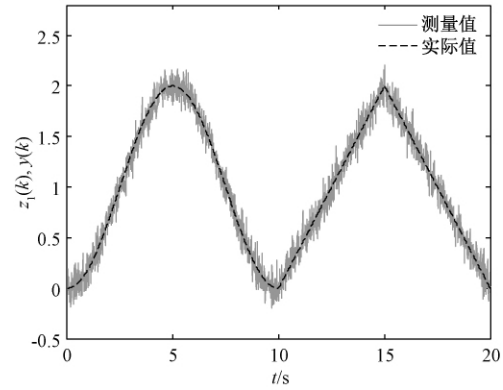


图 1 系统实际输出与测量值

Fig. 1 Actual and measured output of system

线性扩张观测滤波器参数选择 $\tau = 0.5$, 分别对 $\omega_o = 0.01, 0.1, 0.5$ 进行滤波分析. 分别用 $z_{A1}(k)$, $z_{B1}(k)$ 和 $z_{C1}(k)$ 表示 ω_o 取 0.1、0.01 和 0.5 时滤波器的输出,用 $z_{D1}(k)$ 表示噪声统计特征已知时卡尔曼滤波器的输出. 滤波器输出结果与 $y(k)$ 的对比结果如图 2.

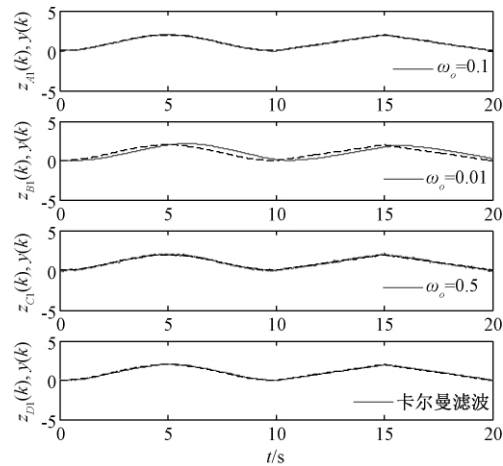


图 2 滤波器输出与系统实际输出比较

Fig. 2 Comparisons between filter output and source data

线性扩张状态观测滤波器不同参数取值与卡尔曼滤波器滤波效果的数值特征统计如表 1 所示. 卡尔曼滤波器根据式(25)描述的系统进行设计,取 $R = 0.1, Q = 0.001$.

从表 1 可以看出,线性扩张状态观测滤波器的总计算时间在 0.011 s 左右,仅为卡尔曼滤波器计算时间的 40%. 在算法实现中,卡尔曼滤波

表1 滤波结果对比

Tab.2 Comparison of filtering results

项目	扩张状态观测滤波器($\tau=0.5$)			卡尔曼滤波器
	$\omega_o=0.1$	$\omega_o=0.01$	$\omega_o=0.5$	
计算时间/s	0.010 5	0.011 0	0.012 1	0.028 1
平均绝对误差	0.019 6	0.346 4	0.043 7	0.041 6
误差方差	5.9e-04	0.143 4	0.003 0	0.002 3

器需要进行求逆矩阵运算,对于单片机尤其是低位宽、低频率的嵌入式系统来说实现比较困难,计算周期比较长,可能影响实时性,自适应卡尔曼滤波器等需要在线辨识噪声统计特征的滤波算法则运算效率更低.线性扩张状态观测滤波器结构简单,计算效率更高.

从平均绝对误差和误差方差指标的对比中可以看出,在 ω_o 取0.1时,扩张状态观测滤波器滤波性能优于卡尔曼滤波器;当 ω_o 取0.5时,扩张状态观测滤波器的滤波性能有所下降,与卡尔曼滤波器效果接近.从图2中的 $z_{BI}(k)$ 与 $y(k)$ 对比中可以得出,当 ω_o 取0.01时滤波器输出序列 $z_{BI}(k)$ 趋于平滑,但相对 $y(k)$ 出现了相位偏差,因此平均绝对误差和误差方差均有所增大.

从以上比较中可以得出结论,线性扩张状态观测滤波器比卡尔曼滤波器具有更高的计算效率,算法结构简单便于实现,通过调整 ω_o 和 τ 可以使线性扩张状态观测滤波器得到更好的滤波效果,而且不存在因噪声统计特征未知而出现的滤波发散等问题. ω_o 和 τ 都是与测量信号的采样频率无关的参数,因此扩张状态观测滤波器对测量信号的来源系统和传感器参数不做要求.

3.2 动力翼伞风场辨识中的滤波器应用

本节以动力翼伞系统空投风场的风速风向辨识为例,对线性扩张状态观测滤波器的应用效果进行分析.

翼伞是一种由轻质材料制作的可操纵降落伞^[17-18],由于质量轻,在飞行过程中非常容易受到风场的干扰,因此在动力翼伞系统轨迹规划、轨迹跟踪、雀降着陆等操作中需要获得风场信息^[19],其中最主要的是风向信息.

动力翼伞系统通过其对地速度、对空气速度和风速之间的矢量关系求解风速和风向^[20-21].风场辨识原理如图3所示.

图3中, ψ 代表欧拉偏航角; β 代表侧滑角; V_o 代表动力翼伞系统相对于空气的速度,即空速; V_w 代表风速; V 代表动力翼伞系统相对于大地的速度,即地速.从图3中可以看出, V_o 、 V_w 和 V 组成

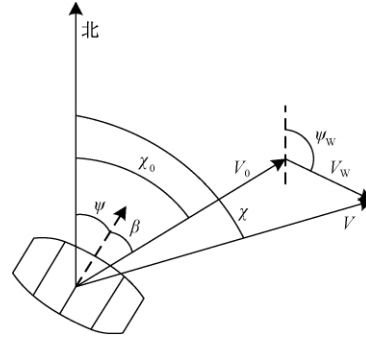


图3 动力翼伞系统速度矢量关系图

Fig.3 Velocity vector diagram of powered parafoil system

一个速度矢量三角形, χ_o 、 χ 和 ψ_w 分别是 V_o 、 V_w 和 V 与正北方向的夹角.动力翼伞系统的地速 V 是由GPS测得的实际速度,空速 V_o 和风速 V_w 在辨识过程中保持不变^[20].

由于GPS存在一定的定位误差,动力翼伞系统通过GPS获得的定位信息都是带有测量误差的含噪声信号,所以在进行风场辨识之前需要对GPS数据进行滤波处理.在系统中加入线性扩张状态观测滤波器对GPS数据进行滤波处理.

通过对动力翼伞系统进行建模和仿真获得动力翼伞系统的飞行轨迹,模拟GPS获得采样信息,并添加与GPS模块定位精度相等的白噪声作为定位干扰.在对仿真环境添加 $V_w=(1,2)$ m/s的稳定风场时,动力翼伞系统在单下偏控制时的飞行轨迹和风场辨识结果如图4和图5所示.风场辨识过程中GPS的采样频率为4 Hz,线性扩张状态观测滤波器的结构根据式(28)进行设计,滤波参数取 $\tau=0.2$, $\omega_o=0.23$.

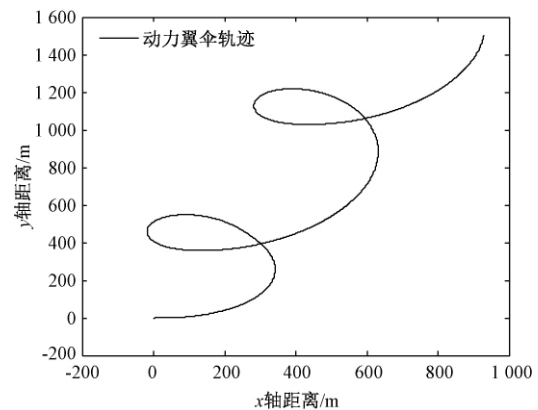


图4 单下偏作用下动力翼伞水平轨迹

Fig.4 Horizontal trajectory of the powered parafoil system with unilateral bias

从图4中可以看出,动力翼伞系统的轨迹在

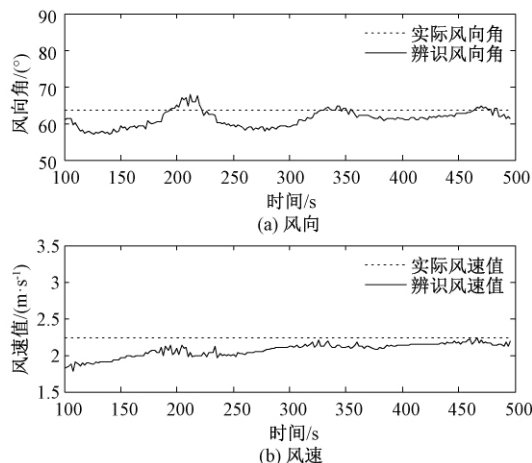


图5 单下偏作用下风场辨识结果

Fig. 5 Wind identification result of the powered parafoil system with unilateral bias

单下偏控制时受风场作用沿风向发生偏移,即风场影响动力翼伞的运动状态。

图5表示风场辨识的迭代更新结果。因为递推最小二乘法的初值设置为0,所以前期的估计结果为无效值,未在图中给出。风向角的辨识结果最大误差为 6.48° ,绝对平均误差为 2.67° ,风速值的辨识结果中最大误差值为 0.45 m/s ,平均误差为 0.17 m/s ,而且随着迭代步数的增加,辨识结果接近真实数值。结果表明经过GPS信号滤波后的风场辨识结果在风速和风向上均有较高的辨识精度。

4 结论

线性扩张状态观测器可以对带有测量噪声的信号进行准确的观测,具有一定的滤波能力。将扩张状态观测器的滤波能力作为主要指标进行设计,提出了一种线性扩张状态观测滤波器。线性扩张状态观测滤波器设计中对参数 τ 的引入可以实现滤波器对采样频率未知或者变化系统输出的滤波处理,扩大了滤波器的应用范围。仿真对比结果显示,线性扩张状态观测滤波器比卡尔曼滤波器具有更快的计算速度。同时,线性扩张状态观测滤波器不需要测量噪声的统计特征,因而更实用。线性扩张状态观测滤波器在动力翼伞系统风场辨识中的应用结果也表明其具有良好的滤波效果,风场辨识结果中风向的辨识精度足以保证动力翼伞系统雀降时的迎风对准和着陆。

参考文献:

- [1] 丁国强,张铎,熊明,等. SINS 姿态估计的 HoMM-UKF 模型算法[J]. 郑州大学学报(工学版), 2017, 38(4): 39-45.
- [2] 王晓东,马磊,韦宗毅. 基于 Sage-Husa 方法的旋翼姿态控制[J]. 计算机工程与设计, 2015, 36(7): 1747-1751.
- [3] 李明,许川佩,李翔. 基于 UD 分解的 Sage-Husa 自适应滤波算法[J]. 计算机仿真, 2017, 34(11): 285-289.
- [4] 韩京清. 自抗扰控制器及其应用[J]. 控制与决策, 1998, 13(1): 19-23.
- [5] 周宜然,甘屹,陶益民,等. 基于改进遗传算法的伺服系统自抗扰控制研究[J]. 机械工程与自动化, 2015(1): 159-161.
- [6] 刘一莎,杨晨萱,王伟. 四旋翼飞行器的自抗扰飞行控制方法[J]. 控制理论与应用, 2015, 32(10): 1351-1360.
- [7] FENG G, LIU Y F, HUANG L P. A new robust algorithm to improve the dynamic performance on the speed control of induction motor drive [J]. IEEE transactions on power electronics, 2004, 19(6): 1614-1627.
- [8] HAN J Q. From PID to active disturbance rejection control [J]. IEEE transactions on industrial electronics, 2009, 56(3): 900-906.
- [9] GAO Z Q. Scaling and bandwidth-parameterization based controller tuning [C] // Proceedings of the American Control Conference. Colorado: 2003(6): 4989-4996.
- [10] 周宏,谭文. 线性自抗扰控制的抗饱和补偿措施[J], 控制理论与应用, 2014, 31(11): 1457-1463.
- [11] 宋金来,甘作新,韩京清. 自抗扰控制技术滤波特性的研究[J]. 控制与决策, 2003, 18(1): 110-113.
- [12] BAI W, XUE W, HUANG Y, et al. The extended state filter for a class of multi-input multi-output nonlinear uncertain hybrid systems [C] // Conference on computational complexity. Nanjing, 2014: 2608-2613.
- [13] 陈增强,孙明玮,杨瑞光. 线性自抗扰控制器的稳定性研究[J], 自动化学报, 2013, 39(5): 574-580.
- [14] MIKLOSOVIC R, RADKE A, GAO Z Q, et al. Discrete implementation and generalization of the extended state observer [C] // American control conference. Minneapolis, 2006: 2209-2214.
- [15] VENKATARAMAN V, FAN G, HAVLICEK J P, et al. Adaptive kalman filtering for histogram-based appearance learning in infrared imagery [J]. IEEE transactions on image processing, 2012, 21(11): 4622-4635.
- [16] GAO X D, YOU D Y, KATAYAMA S. Seam tracking monitoring based on adaptive Kalman filter embedded

- elman neural network during high-power fiber laser welding [J]. IEEE transactions on industrial electronics, 2012, 59(11): 4315–4325.
- [17] ZHU E L, SUN Q L, TAN P L, et al. Modeling of powered parafoil based on Kirchhoff motion equation [J]. Nonlinear dynamics, 2015, 79(1): 617–629.
- [18] TAO J, SUN Q L, TAN P L, et al. Autonomous homing control of a powered parafoil with insufficient altitude [J]. Isa transactions, 2016(65): 516–524.
- [19] 檀盼龙,孙青林,陈增强. 自抗扰技术在动力翼伞轨迹跟踪控制中的应用[J]. 浙江大学学报(工学版), 2017, 51(5): 992–999.
- [20] 檀盼龙,孙青林,高海涛,等. 动力翼伞系统空投风场的辨识与应用[J]. 航空学报, 2016, 37(7): 2286–2294.
- [21] 高海涛. 翼伞系统自主归航航迹规划与控制研究[D]. 天津: 南开大学计算机与控制工程学院, 2014.

Analysis and Application of Linear Extended State Observer Filter

TAN Panlong, LI Yimin, ZHAO Xiangbin, SHAO Xin

(Intelligent Manufacturing College, Tianjin Sino-German University of Applied Sciences, Tianjin 300350, China)

Abstract: A novel filtering method based on the extended state observer (ESO) was proposed according to the engineering practice that the system outputs are impact by measurement noise. The linear ESO (LESO) filter achieved noise reduction process based on the accurate observation ability of ESO. And the LESO filter did not need the statistical characteristics of noise in its application and it was capable for control system outputs with unknown or varied sampling rate. The LESO filter was simple in structure with two tunable parameters; and was suitable for embedded systems. Proof of the uniform convergence of the LESO for control systems with output measurement noise was presented in the analysis section. And the LESO filter was presented in discrete form. Simulation results reveals that the linear ESO filter outperforms the Kalman filter with less computing time and higher precision. Then the proposed filter was applied to the wind identification of the powered parafoil and payload system in landing area. The application showed that the LESO filter was effective and easy to use.

Key words: extended state observer; filter; active disturbance rejection control; powered parafoil; wind identification

文章编号: 1671-6833(2019)02-0048-07

融合社交信息的跨域时序兴趣预测方法

郝志峰, 申 策, 蔡瑞初, 温 雯

(广东工业大学 计算机学院, 广东 广州 510006)

摘 要: 引入用户的社交网络信息是解决冷启动问题提升推荐效果的有效方法. 现有引入社交关系的静态方法忽略用户兴趣的变化导致预测结果滞后, 针对这一问题提出一种跨域时序兴趣预测方法, 引入用户社交行为信息. 首先提出跨域个性化排序模型, 实现社交特征和购物特征的跨域融合. 其次按时间段划分用户历史行为, 提出一种时序特征建模方法. 在真实数据集上的验证结果表明, 所提出的方法能更有效地预测用户兴趣.

关键词: 兴趣预测; 跨域推荐; 社交信息; 时序行为; 排序学习

中图分类号: TP391

文献标志码: A

doi: 10.13705/j.issn.1671-6833.2019.02.024

0 引言

个性化商品推荐系统通过分析用户购买信息来建模用户兴趣, 并根据用户兴趣推荐相应商品解决信息过载问题. 虽然个性化商品推荐系统在一定程度上取得了较好的推荐效果, 但是仍然面临着用户冷启动和预测结果滞后等问题.

随着社交网络的发展, 用户在社交网站上留下了大量社交信息, 为预测用户兴趣提供了额外的信息来源. 引入用户的社交信息, 能够有效解决用户购物信息不足带来的预测精度低、冷启动等问题^[1]. 依据社交关系理论^[2-4], Yang等^[5]提出了基于信任与被信任社交关系的推荐模型, Tang等^[6]从不同视角引入局部与全局社交信息并进行融合. Guo等^[7]将用户信任关系与评分信息一同看作隐式反馈信息提出了 TrustSVD 模型. 文献[8-9]通过分析社交邻近方法提出了低秩社交推荐模型, 上述研究引入了的社交关系信息, 一定程度上解决了用户冷启动问题.

笔者研究引入用户社交行为信息提升对用户兴趣的预测效果. 社交行为本身就包含着用户的兴趣, 能够提供更准确的用户兴趣信息; 并且社交行为与购物行为都具有时序性. 通过跨

域的方式引入用户的社交行为信息存在两方面的挑战: ①通过引入时序信息^[10-11], 能够使模型有效捕捉兴趣的动态变化, 解决兴趣漂移问题^[12]. 用户的社交、购物数据一般来自不同的网站, 通常两个域中只有部分用户是重叠的, 其余用户只有一个域的信息. 跨域引入用户的社交信息, 需要以重叠用户作为信息传递的桥梁, 而重叠用户数量不足必然会影响预测效果. ②两种行为统一时序建模困难. 用户的社交行为和购物行为都能反映用户当时的兴趣, 在预测用户兴趣时可以互相作为补充. 但是, 从时间上看两种行为的变化通常是不同步的, 因此引入时序信息时需要尽量避免行为数据不同步对兴趣预测带来的干扰. 为此笔者提出一种跨域时序兴趣预测 (cross-domain temporal interest prediction, CDTIP) 方法, 首先提出跨域兴趣预测模型, 构建社交特征与购物特征间的跨域映射关系. 然后对用户两个域的时序行为进行特征建模, 将用户行为数据按时间段分割, 分别根据每个时间段的行为数据构造相应的社交特征和购物特征, 根据这些特征训练模型预测用户兴趣. 实验结果表明, 所提出的方法能够有效提升对用户兴趣的预测效果.

收稿日期: 2018-08-17; **修订日期:** 2018-10-11

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (61472089、61572143); NSFC-广东联合基金 (U1501254); 广东省自然科学基金 (2014A030306004、2014A030308008); 广东省科技计划项目 (2013B051000076、2015B010108006、2015B010131015); 广东特支计划 (2015TQ01X140); 广州市珠江科技新星 (201610010101)

作者简介: 郝志峰 (1968—), 男, 广东广州人, 广东工业大学教授, 博士, 主要从事机器学习、人工智能方向的研究, E-mail: zfhao@gdut.edu.cn.

1 跨域时序兴趣预测方法

1.1 问题定义

在电商域中,所有的用户由集合 U_1 表示,所有的商品由集合 I 来表示. 商品推荐系统通过分析用户的购物历史记录,预测用户的兴趣. 购物记录由集合 $E = \{(u, i, t)\}$ 来表示,其中每个三元组 (u, i, t) 为用户的一条真实购买记录,其中 $u \in U_1, i \in I$ 分别表示用户和商品, $t \in T = \{t_1, \dots, t_l\}$ 为对应的购物时间.

在社交域中,所有的用户由集合 U_2 表示,用户的社交信息主要包括用户个人信息、社交行为信息、社交关系信息等. 用户个人信息包括用户的性别、年龄等,可以通过特征向量表示这些信息,对应的特征向量集合为 S_A ; 笔者研究的用户社交行为信息主要为用户发送的文本信息,用户发送的所有文本由集合 $S_D = \{(text, t)\}$ 表示. 社交域和电商域的重叠用户由集合 $U = U_1 \cap U_2$ 表示, $t \in T$ 为文本发表时间.

根据上述符号定义,跨域兴趣预测问题可以形式化地描述为: 通过电商域中的 $\{U_1, I, E\}$ 以及社交域中的 $\{U, S_A, S_D\}$ 学习兴趣预测模型 f , 对于任意用户 $u \in U_1 \cup U_2$ 模型预测用户的兴趣 $f_u: I \rightarrow y_u$, 其中 y_u 为 $|I|$ 维实值向量, 每个维度的值 y_{ui} 表示用户对于对应商品 i 的兴趣值.

1.2 跨域个性化排序模型

笔者引入因子分解机 (factorization machines, FM) 模型,并将其扩展为跨域个性化排序模型来解决用户社交信息与购物信息的融合问题. 下面将简单讲解 FM 模型,随后介绍如何构建跨域个性化排序模型.

FM 模型由 Rendle 等^[13] 提出,是一个基于特征的预测模型. 给定 n 维特征向量 \mathbf{x} , 其第 i 维的特征用 \mathbf{x}_i 表示. 2 阶 FM 模型可以定义如下:

$$\hat{y}(\mathbf{x}) = w_0 + \sum_{i=1}^n w_i \mathbf{x}_i + \sum_{i=1}^n \sum_{j=i+1}^n \mathbf{x}_i \mathbf{x}_j \sum_{k=1}^l v_{ik} \cdot v_{jk}, \quad (1)$$

式中: $w \in \mathbf{R}^n, V \in \mathbf{R}^{n \times k}$ 为待学习参数. FM 模型能够有效的模拟向量 \mathbf{x} 中不同特征之间的交互关系,通过改写为等价形式可以在线性时间复杂度内完成计算,等价公式为:

$$\begin{aligned} \hat{y}(\mathbf{x}) &= w_0 + \sum_{i=1}^n w_i \mathbf{x}_i - \\ &\quad \frac{1}{2} \sum_{k=1}^l \left(\left(\sum_{i=1}^n v_{ik} \mathbf{x}_i \right)^2 - \sum_{i=1}^n v_{ik}^2 \mathbf{x}_i^2 \right). \quad (2) \end{aligned}$$

用户的历史购物记录直接反映了用户对商品

的兴趣,但也由于用户购买记录的隐式反馈^[14]特性(用户未购买的商品夹杂着不感兴趣和感兴趣但还未浏览到的商品),因此直接将购买的商品标为正类 $y_{ui} = 1, (u, i) \in E$; 没有购买的商品标为负类 $y_{ui} = 0, (u, i) \notin E$ 所训练的预测模型会存在过拟合问题. 笔者借鉴个性化排序技术的思想,不再直接预测用户对每个商品 $i \in I$ 的兴趣值 y_{ui} ; 而是每次抽取一对商品 $a, b \in I$ (其中 $y_{ua} \neq y_{ub}$), 预测用户对于该对商品的相对偏好 $y_{uab} = y_{ua} - y_{ub}$, 也即预测用户喜欢商品 a 胜过商品 b 的概率 $p_{uab} = \frac{1}{2}(y_{uab} + 1)$. 假设用户的特征向量为 \mathbf{x}_u , 两个商品的特征向量分别为 $\mathbf{z}_a, \mathbf{z}_b$, 则模型通过用户和商品的特征,预测用户对商品的相对兴趣,形式化描述如下:

$$\begin{aligned} \hat{y}_{uab}(\mathbf{x}, \mathbf{z}) &= \sum_{i=1}^m u_i \mathbf{x}_i + \sum_{i=1}^n v_i \mathbf{z}_i + \\ &\quad \frac{1}{2} \sum_{k=1}^l \left(\left(\sum_{i=1}^m u_{ik} \mathbf{x}_i + \sum_{i=1}^n v_{ik} \mathbf{z}_i \right)^2 - \sum_{i=1}^m u_{ik}^2 \mathbf{x}_i^2 - \sum_{i=1}^n v_{ik}^2 \mathbf{z}_i^2 \right), \quad (3) \end{aligned}$$

式中: u_i, v_i, u_{ik}, v_{ik} 为模型参数; \mathbf{x} 即为用户向量 \mathbf{x}_u ; $\mathbf{z}_{ab} = \mathbf{z}_a - \mathbf{z}_b$, 为两个不同商品对应特征向量的差向量. $\hat{y}_{uab}(\mathbf{x}, \mathbf{z})$ 为模型预测的相对兴趣值,通过 sigmoid 回归函数可以将预测结果转化为用户喜欢商品 a 胜过商品 b 的概率表示形式,

$$\hat{p}_{uab} = \sigma(\hat{y}_{uab}) = \frac{1}{1 + e^{-\hat{y}_{uab}}}. \quad (4)$$

通过交叉熵 (cross-entropy, CE) 损失函数计算损失 $-p_{uab} \log(\hat{p}_{uab}) - (1 - p_{uab}) \log(1 - \hat{p}_{uab})$, 并根据随机梯度下降法 (stochastic gradient descent, SGD) 更新模型参数,模型各参数对应的更新公式如下:

$$u_i \leftarrow u_i - \eta (\sigma(\hat{y}_{uab}) - p_{uab}) \mathbf{x}_i, \quad (5)$$

$$v_i \leftarrow v_i - \eta (\sigma(\hat{y}_{uab}) - p_{uab}) \mathbf{z}_i, \quad (6)$$

$$u_{ik} \leftarrow u_{ik} - \eta (\sigma(\hat{y}_{uab}) - p_{uab}) \left(\mathbf{x}_i \sum_{j=1}^m u_{jk} \mathbf{x}_j - u_{ik} \mathbf{x}_i^2 \right), \quad (7)$$

$$v_{ik} \leftarrow v_{ik} - \eta (\sigma(\hat{y}_{uab}) - p_{uab}) \left(\mathbf{z}_i \sum_{j=1}^n v_{jk} \mathbf{z}_j - v_{ik} \mathbf{z}_i^2 \right). \quad (8)$$

1.3 基于兴趣区间特征建模

用户的社交行为和购物行为都是时序行为,但不同行为间的时序关系复杂,导致同时建模两种时序行为并预测用户兴趣非常困难. 为此,笔者提出一种基于兴趣区间的行为数据划

分与时序特征建模方法.

1.3.1 兴趣区间定义

虽然用户的行为随着兴趣发生变化具有时序性,但是可以假设在一个时间段内用户的兴趣和相应行为是稳定的;虽然社交行为、购物行为以及用户兴趣三者的变化都不同步,但是可以假设在一个时间段内,用户的社交、购物行为所反应的兴趣与该段时间的实际兴趣是一致的.基于上述两点定义了用户的兴趣区间.

定义 1 兴趣区间.将用户的历史行为时间按照长度 τ 分割为首尾相接的时间段,假设每个时间段都满足:①时间段内用户兴趣基本不变;②不同的时间段之间用户的兴趣相互独立;③时间段内用户的社交、购物行为能且只能反映用户该段时间内的兴趣.则称这些时间段 $\{h_1, \dots, h_l\}$, $h \subseteq T$ 为用户的兴趣区间.

根据兴趣区间的定义,可以将用户的历史社交行为和购物行为分到不同的兴趣区间中,如图 1 所示.传统的为每个用户构造特征 \mathbf{x}_u 并预测用户兴趣 \mathbf{y}_u 的方法,被转化为每个时间段都为用户构造相应特征 \mathbf{x}_{uh} 并预测相应时间用户兴趣 \mathbf{y}_{uh} 的方法.因此传统方法可以认为是本方法的一个特例,当时间段的长度 τ 大于用户历史行为时间时,由于无法分割出兴趣区间,本方法便退化为传统方法.

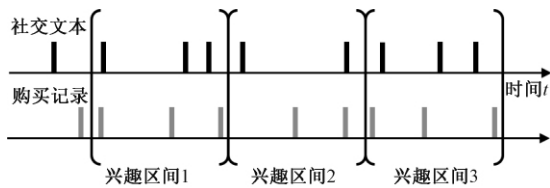


图 1 用户兴趣区间

Fig. 1 User's interest period

1.3.2 基于兴趣区间的特征建模

根据兴趣区间的定义,用户的社交行为数据和购物行为数据被分成了不同的子集合,根据新划分的数据,对用户进行特征建模.

用户特征向量 \mathbf{x}_{uh} 构建. ①本研究筛选出了性别、地域(精确到省份)、等级、信用、注册日期、关注数、粉丝数等 7 个有代表性的个人信息,构造个人信息特征向量.其中性别和地域等标签类型的特征采用了 one-hot 向量表示法,其余的数值类型的特征则使用 max-min 归一化后的值进行表示,最后所有的特征组合成用户的个人信息特征向量 \mathbf{a}_u . ②用户的社交行为主要为发送的文本信

息,将用户每个兴趣区间内发送的文本合并,然后通过 word2vec 工具中训练好的 Skip-gram 模型,将文档中的每个词转化为相应的向量形式,最后获得每个句子包含的所有词向量的平均向量;使用 TF-IDF 对句子的每个词进行词频统计,并通过 PCA 算法^[15]对句子的稀疏向量表示进行降维,最后与句子的词向量拼接,作为文本特征向量 \mathbf{d}_{uh} . ③将用户-商品交互矩阵中用户的维度信息作为用户与商品的交互特征.最终,用户特征向量 \mathbf{x}_{uh} 如下所示,

$$\mathbf{x}_{uh} = (\underbrace{1, \dots, 0.2, \dots, 0.5}_{\text{个人信息特征 } \mathbf{a}_u}, \underbrace{-0.7, \dots, -0.1, 0.3, 0, \dots, 0.1, 0, \dots, 0}_{\text{社交行为特征 } \mathbf{d}_{uh}}, \underbrace{0, \dots, 0, 1, 0, \dots, 0}_{\text{用户对应维度为1}}).$$

商品特征向量 \mathbf{z}_i 构建. ①为了方便用户查找和筛选,通常商品被分为不同的类别,如服装、食品等,使用 one-hot 向量 \mathbf{a}_i 表示商品的类别特征;②将用户的购物记录按照购买时间先后排序,并构造用户购买商品的序列,将每个商品作为一个单词,然后使用 word2vec 工具中的 Skip-gram 模型训练商品对应的特征向量 \mathbf{d}_i ; ③将用户-商品交互矩阵中商品的维度信息作为商品与用户的交互特征.最终,商品特征向量 \mathbf{z}_i 如下所示,

$$\mathbf{z}_i = (\underbrace{0, \dots, 1, \dots, 0, 0.4, \dots, -0.6, 0.2}_{\text{类别特征 } \mathbf{a}_i}, \underbrace{0, \dots, 0, 1, 0, \dots, 0}_{\text{商品特征 } \mathbf{d}_i}, \underbrace{0, \dots, 0, 1, 0, \dots, 0}_{\text{用户对应维度为1}}).$$

用户对商品的兴趣评分特征 \mathbf{y}_{uh} 构建.根据用户在每个兴趣区间上的购买记录集合 $E_h \subseteq E$,用户对商品的兴趣表示为;若 $(u, i, t) \in S_h$,则 \mathbf{y}_{uh} 对应商品 i 维度的值 $y_{uhi} = 1$;反之若 $(u, i, t) \notin S_h$ 则用户对商品不感兴趣 $y_{uhi} = 0$.用户兴趣特征向量 \mathbf{y}_{uh} 如下所示,

$$\mathbf{y}_{uh} = (\underbrace{0, 1, 1, \dots, 0, 1, 1, \dots, 1, 1, 0}_{\text{购买过的商品值为1}}).$$

根据用户特征向量 \mathbf{x}_{uh} ;商品特征向量 \mathbf{z}_i ;用户兴趣评分向量 \mathbf{y}_{uh} ,用户在兴趣区间的行为与相应兴趣的映射关系可以表示为: $f(\mathbf{x}_{uh}, \mathbf{z}_i) \rightarrow y_{uhi}$.

1.4 模型训练算法

首先将用户历史行为时间分段构造兴趣区间,然后按照每个区间为用户构造特征向量以及相应的兴趣向量,在每个区间随机抽取用户兴趣商品和不感兴趣商品组成训练样本对,根据 1.2 节提出的跨域个性化排序模型,预测用户时序兴趣偏好,最后通过梯度下降法更新模型参数,具体如下.

算法 1 跨域时序兴趣预测算法

输入: 电商平台用户集合 U_1 ; 商品集合 I ; 历史时间 T ; 社交信息集合 S ; 历史购物集合 E ; 时间段长度 τ ; 算法迭代次数 γ ;

输出: 模型参数 $\theta = (u, v, U, V)$

算法步骤:

- 1: 根据时间段长度 τ 划分历史时间, 获得兴趣区间 $\{h_1, \dots, h_n\} \leftarrow T$;
- 2: 划分社交信息集合 $\{S_h\} \leftarrow S$, 并为每个兴趣区间构造社交特征向量 x_{uh} ;
- 3: 根据历史购物集合 E 构造商品特征向量 z_i ;
- 4: 划分历史购物集合 $\{E_h\} \leftarrow E$, 并为每个兴趣区间构造兴趣向量 y_{uh} ;
- 5: 初始化参数 $\theta: u, v, U, V \leftarrow N(0, 0.1)$;
- 6: **for** $k \leftarrow 1$ to γ **do**
- 7: 随机抽取一个用户 u , 随机抽取一个兴趣区间 h ;
- 8: 随机抽取该区间内的一个样本对 (a, b) , 构造用户兴趣概率 p_{huab} ;
- 9: 输入 $x_{uh}, z = z_a - z_b, p_{huab}$;
- 10: 根据公式 (5), (6) 更新参数向量 u 和 v ;
- 11: 根据公式 (7), (8) 更新参数矩阵 U 和 V ;
- 12: **end for**
- 13: **return** θ

模型训练完成后, 对于任意用户 $u \in U_1 \cup U_2$, 只需根据用户当前的社交信息或购物信息 (重叠用户则是两种信息) 构造相应的特征向量 x_{uh} , 即可预测用户当前的购买兴趣 y_{uh} .

2 实验及分析

2.1 实验设置

通过与国内某电商平台的合作, 我们获取了大约 1.3 万使用微博账号登录电商平台的用户数据, 包括用户的微博 ID 和用户的购物数据. 其中购物数据包含了从 2014 年 1 月到 2017 年 7 月 (共 42 个月) 该批用户对 6 838 个不同品牌商品的共计 148 万条购物记录, 其中每条购物记录包括用户 ID、品牌 ID 和订单的支付日期.

通过微博提供的 API 接口, 我们获取了该批用户 2014 年 1 月到 2017 年 7 月的微博数据, 包括用户的个人信息数据以及用户发送和转发的共

计 213 万条微博. 用户的个人信息包含性别、所在省份、等级、信用、注册日期、关注数、粉丝数共 7 个部分. 两部分数据集的数据描述如表 1 所示, 不同购买力的用户数量分布如图 2 所示, 发送不同数量微博的用户数量分布如图 3 所示.

表 1 数据集描述

Tab. 1 Dataset description

数据来源	重叠用户	商品种类	数据	
			类型	数量/条
微博数据	13 165	—	微博文本	148 万
电商数据		6 838	购买记录	213 万

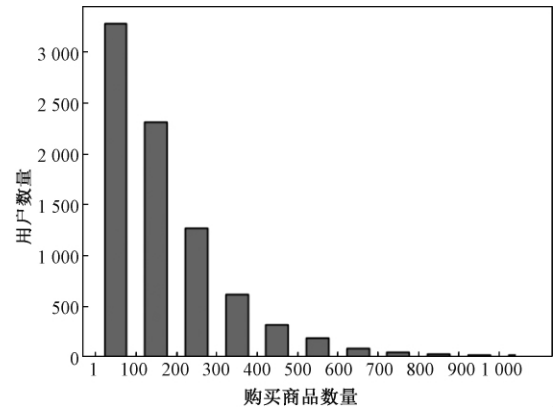


图 2 不同购买能力的用户分布

Fig. 2 Distribution of users with different purchases

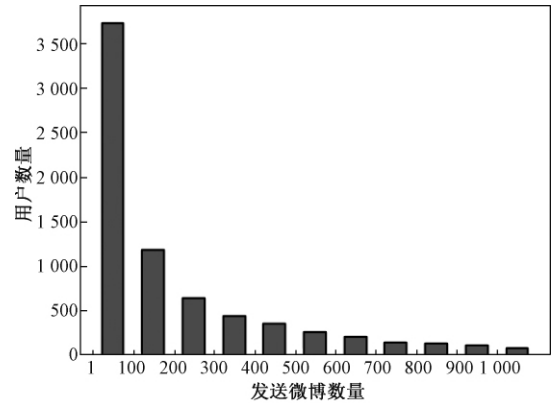


图 3 不同微博数量的用户分布

Fig. 3 Distribution of users with different blogs

通过将 2016 年 1 月设定为分界日期, 获取到 2016 年初才开始出现购买记录的 327 位用户, 将该部分用户作为冷启动用户, 冷启动用户共有 19 433 条购物数据, 该部分数据将不参与模型的训练, 而是直接作为测试集用来测试模型对于冷启动用户的推荐效果.

根据购物记录条数是否超过 50 条对剩余用户进行筛选, 并筛选出 1 423 位购物数量过少的用户作为长尾用户, 长尾用户共有 38 612 条购物记录. 剩余的用户为普通用户, 在模型训练过程

中,将分别从普通用户和长尾用户的购物记录中各随机抽取 4/5 混合后用于模型训练,剩余 1/5 的长尾用户和普通用户的数据将分别用来测试模型对于长尾用户和整体用户的推荐效果.最终,训练和测试数据的分布情况如表 2 所示.其中整体用户由普通用户、长尾用户和冷启动用户共同组成.

表 2 用户数据描述

Tab.2 User data description

用户类别	用户数量	购物记录数量	发送微博数量	训练测试数据占比/%	
				用于训练	用于测试
冷启动用户	327	19 433	28 967	0	100
长尾用户	1423	38 612	55 369	80	20
普通用户	11 415	1 421 306	2 054 932	80	20

2.2 评价指标

平均绝对误差 (mean absolute deviation, MAE) 和均方根误差 (root mean square error, RMSE) 是评分预测任务中广泛使用的性能评价指标. N 为样本数量、 y_{ab} 为实际评分值、 \hat{y}_{ab} 为模型预测评分值, 则 MAE 的定义为:

$$MAE = \frac{1}{N} \sum_{a,b} |y_{ab} - \hat{y}_{ab}|. \quad (9)$$

RMSE 的定义为:

$$RMSE = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{a,b} (y_{ab} - \hat{y}_{ab})^2}. \quad (10)$$

对于 top- N 推荐任务, 准确率 precision@ N 和召回率 recall@ N 也是常用的性能评测指标. 对用户 u 推荐的 N 个商品用集合 $R(u)$ 表示, 用户 u 真实购买过的商品用集合 $T(u)$ 表示, 则准确率的定义为:

$$\text{precision@}N = \sum_u \frac{|R(u) \cap T(u)|}{|R(u)|}. \quad (11)$$

召回率的定义为:

$$\text{recall@}N = \sum_u \frac{|R(u) \cap T(u)|}{|T(u)|}. \quad (12)$$

2.3 对比方法和参数设置

选取如下方法同笔者提出的 CDTIP 方法进行对比.

①SVD^[16]. 同时考虑到用户特征、商品特征和二元交互特征 3 个方面的基于特征的矩阵分解模型.

②RFM^[17]. 考虑到用户购物数据是隐反馈数据, 因此使用了基于因子分解机改进的成对

(pairwise) 排序模型 RFM 模型.

③TrustSVD^[7]. 对用户社交特征向量进行余弦相似度计算, 相似度大于 0.5 的用户认为有社交关系.

④CDPR. 笔者提出的跨域个性化排序模型, 实验给出该模型与 CDTIP 的对比, 用于验证引入兴趣区间这一时序信息的效果.

对于训练数据集, 将每一条真实购物记录作为一个正例样本, 并为每个正例随机抽取一个该用户未购买过的商品作为负例, 使正负例的比例为 1:1 组成训练样本对; 对于测试数据集, 将每一条购物记录作为一个正例, 并为每个正例随机抽取 50 个负例, 使正负例的比例为 1:50 组成测试数据.

对于所有模型, 统一采用梯度下降法进行优化, 迭代次数统一设置为 500 次, 即每条训练样本都会参与 500 次训练, 模型的学习率为 0.01, 正则项设置为 0.004, 分解因子的数量统一设置为 32. 社交特征向量都使用了用户个人信息和用户的微博文本, 文本统一使用 Skip-gram 模型转化为词向量, 向量的维度统一为 50.

2.4 实验效果对比

按照之前所述选取数据进行训练, 将剩余未参与训练的数据分为整体用户、冷启动用户和长尾用户 3 个测试集, 分别测试模型对于不同类型用户的推荐效果, 各方法在 Pre@ N 作为评价指标上的实验效果如图 4 所示; 各方法在 Rec@ N 作为评价指标上的实验效果如图 5 所示; 各模型在不同类型用户上的 MAE、RMSE 等指标的测试效果对比如表 3、4、5 所示.

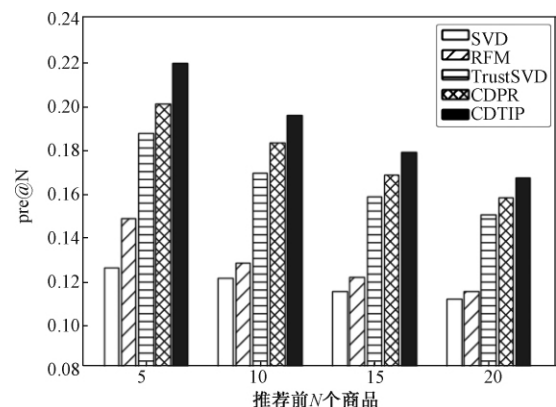


图 4 精度指标对比

Fig.4 Precision@N

在参与对比的方法中, 笔者提出的跨域时序兴趣预测 CDTIP 方法, 无论是在精度指标上还是召回率指标上都比加入社交信息的 TrustSVD 方

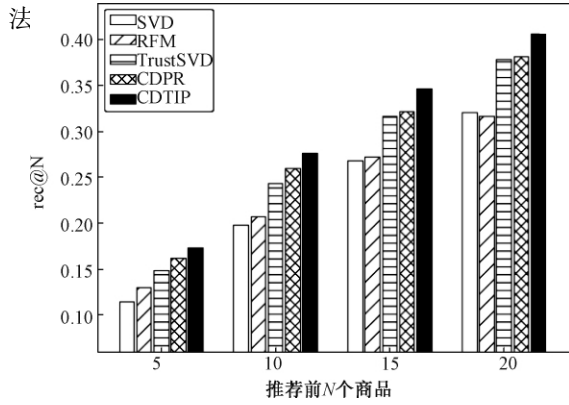


图5 召回率指标对比

Fig.5 Recall@N

表3 整体用户测试结果

Tab.3 Performance for all users

方法	p@ 5	p@ 10	r@ 5	r@ 10	MAE	RMSE
SVD	0.125	0.121	0.114	0.197	0.643	0.712
RFM	0.158	0.147	0.130	0.217	0.597	0.669
TrustSVD	0.186	0.168	0.148	0.242	0.545	0.610
C DPR	0.191	0.172	0.151	0.250	0.505	0.587
CDTIP	0.209	0.185	0.163	0.266	0.503	0.582

表4 冷启动用户测试结果

Tab.4 Performance for cold start users

方法	p@ 5	p@ 10	r@ 5	r@ 10	MAE	RMSE
SVD	0.089	0.082	0.067	0.157	0.729	0.783
RFM	0.116	0.107	0.083	0.174	0.668	0.718
TrustSVD	0.129	0.126	0.102	0.185	0.641	0.698
C DPR	0.134	0.119	0.101	0.193	0.635	0.689
CDTIP	0.141	0.123	0.115	0.201	0.624	0.682

表5 长尾用户测试结果

Tab.5 Performance for long tail users

方法	p@ 5	p@ 10	r@ 5	r@ 10	MAE	RMSE
SVD	0.115	0.109	0.091	0.169	0.675	0.740
RFM	0.133	0.115	0.128	0.183	0.639	0.703
TrustSVD	0.161	0.147	0.132	0.209	0.598	0.647
C DPR	0.170	0.165	0.148	0.238	0.570	0.616
CDTIP	0.184	0.172	0.154	0.240	0.563	0.599

效果有所提升,本方法在精度上平均提升 11%,在召回率上平均提升 9%。与不按照兴趣区间划分数据的 C DPR 方法进行对比,在精度上平均提升 7%,在召回率上平均提升 6%,MAE 和 RMSE 指标也有所降低。

与其他用户部分数据参与模型训练部分数据用于测试不同,冷启动用户的所有数据都不参与模型训练,因此对模型提出了更大的挑战。得益于使用 word2vec 训练得到的商品向量能够包含一定的用户购物相似性信息,以及用户社

交网络信息对用户特征的补充,笔者提出的方法对冷启动用户的推荐效果优于其他对比方法。

对长尾用户的推荐效果低于对整体用户的推荐效果,一个可能的原因是长尾用户购买的商品量过少,对模型预测产生了影响,但是从实验结果可以看出,笔者提出的方法对长尾用户的推荐效果优于其他对比方法。

2.5 兴趣区间范围大小的影响

根据 1.3 节中所述,时间段长度 τ 规定了兴趣区间的时间范围,本研究分别选取了周(7 天)、月(30 天)、季度(91 天)、半年(182 天)和一年(365 天)作为 τ 的待选值,通过实验效果对比,确定 τ 的合理取值。采用了 pre@5 和 pre@10 作为评价指标,结果如图 6 所示。

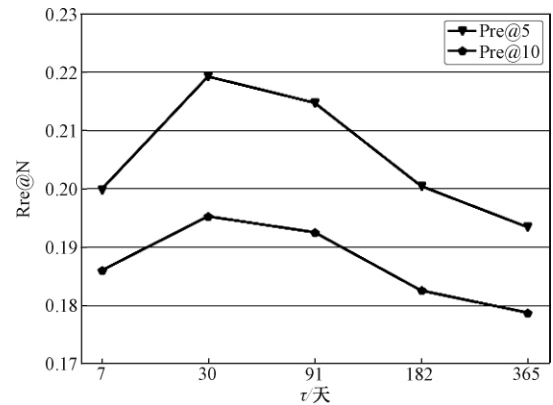


图6 时间段长度的影响

Fig.6 Effects of period length

由图 6 可知,兴趣区间范围越小越能得到精确的用户社交与购物行为之间的关系,但是兴趣区间范围过小,会因为无法获取足够的信息,而导致效果更差。当时间段长度 τ 的取值为一个月(30 天)时效果优于其余选择。

3 结论

提出了一种跨域时序兴趣预测方法,实验结果验证了本方法同时引入社交信息和时序信息的有效性。虽然取得了一定的成功,但是本方法只是假设用户的每个兴趣区间内的兴趣是相互独立的,而事实上区间内的兴趣之间存在一定的相关性。我们将在接下来的工作中研究如何利用神经网络^[18]等模型建模这种相关性。

参考文献:

- [1] 刘华锋,景丽萍,于剑.融合社交信息的矩阵分解推荐方法研究综述[J].软件学报,2018,29(2):

- 340 – 362.
- [2] MARSDEN P V, FRIEDKIN N E. Network studies of social influence. [J]. *Sociological Methods & Research*, 1993, 22(1): 127 – 151.
 - [3] WASSERMAN S, FAUST K. Social Network Analysis [J]. *Encyclopedia of Social Network Analysis & Mining*, 1994, 22(Suppl 1): 109 – 127.
 - [4] MA H, ZHOU D, LIU C, et al. Recommender systems with social regularization [C] // *Forth International Conference on Web Search & Web Data Mining*. DBLP, 2011: 287 – 296.
 - [5] YANG B, LEI Y, LIU J, et al. Social Collaborative Filtering by Trust. [C] // *International Joint Conference on Artificial Intelligence*. AAAI Press, 2013: 2747 – 2753.
 - [6] TANG J, HU X, GAO H, et al. Exploiting local and global social context for recommendation [C] // *International Joint Conference on Artificial Intelligence*. AAAI Press, 2013: 2712 – 2718.
 - [7] GUO G, ZHANG J, YORKE-SMITH N. TrustSVD: collaborative filtering with both the explicit and implicit influence of user trust and of item ratings [C] // *Twenty-Ninth AAAI Conference on Artificial Intelligence*. AAAI Press, 2015: 123 – 129.
 - [8] SEDHAIN S, SANNER S, BRAZIUNAS D, et al. Social collaborative filtering for cold-start recommendations [J]. 2014: 345 – 348.
 - [9] SEDHAIN S, MENON A K, SANNER S, et al. Low-Rank linear cold-start recommendation from social data. In: *Proc. of the 31th AAAI Conf. on Artificial Intelligence*. AAAI Press, 2017: 1502 – 1508.
 - [10] REN Y, ZHU T, LI G, et al. Top-N Recommendations by Learning User Preference Dynamics [C] // *Pacific-Asia Conference on Knowledge Discovery and Data Mining*. Springer Berlin Heidelberg, 2013: 390 – 401.
 - [11] WANG X, ZHU J, ZHENG Z, et al. A Spatial-Temporal QoS Prediction Approach for Time-aware Web Service Recommendation [J]. *Acm Transactions on the Web*, 2016, 10(1): 7.
 - [12] 孙光福, 吴乐, 刘淇, 等. 基于时序行为的协同过滤推荐算法 [J]. *软件学报*, 2013(11): 2721 – 2733.
 - [13] RENDLE S. Factorization Machines [C] // *IEEE, International Conference on Data Mining*. IEEE, 2011: 995 – 1000.
 - [14] RENDLE S, FREUDENTHALER C, GANTNER Z, et al. BPR: Bayesian personalized ranking from implicit feedback [J]. 2012: 452 – 461.
 - [15] 董建华, 王国胤, 雍熙, 等. 基于 Spark 的标准化 PCA 算法 [J]. *郑州大学学报(工学版)*, 2017, 38(5): 7 – 12.
 - [16] CHEN T, ZHANG W, LU Q, et al. SVDFeature: a toolkit for feature-based collaborative filtering [J]. *Journal of machine learning research*, 2012, 13(1): 3619 – 3622.
 - [17] YUAN F, GUO G, JOSE J M, et al. LambdaFM: Learning Optimal Ranking with Factorization Machines Using Lambda Surrogates [J]. 2016: 227 – 236.
 - [18] 孙峰, 龚晓玲, 张炳杰, 等. 一种基于共轭梯度法的广义单隐层神经网络 [J]. *郑州大学学报(工学版)*, 2018, 39(2): 28 – 32.

A Cross-domain Temporal Interest Prediction Method by Integrating Social Information

HAO Zhifeng, SHEN Ce, CAI Ruichu, WEN Wen

(School of Computer Science, Guangdong University of Technology, Guangzhou 510006, China)

Abstract: Integrating user's social information was an appropriate way to solve the user-cold start problem. Among various prediction models focusing on integrating social relation information, few noticed the dynamic change of the user's interest. Thus, in this paper, we propose a cross-domain temporal interest prediction approach was proposed by integrating social activity information. Firstly a cross-domain personalized ranking model was constructed which can map the feature from social space into the purchase space. Further, we propose a feature modeling method based on data grouped by time period was proposed. Experiments on the dataset verified that the proposed method could predict user's interest more effectively.

Key words: interest prediction; cross-domain recommendation; social information; sequential behavior; learning to rank

文章编号: 1671-6833(2019)02-0055-04

自助三维导诊系统的研究与实现

黄云辉¹, 刘笑寒², 姚俊峰², 吕奕清¹, 陈进春³

(1. 厦门市中医院 信息科, 福建 厦门 361009; 2. 厦门大学 软件学院数字媒体技术研究中心, 福建 厦门 361005; 3. 福建省厦门市人大, 福建 厦门 361000)

摘要: 随着信息化的发展,越来越多的医院开始建设信息化导诊平台,本文的导诊系统对厦门中医院总院门诊片区进行三维模拟,具有行走、漫游、自动导航、医院介绍、科室介绍等功能.系统基于 Windows 平台开发,使用 3DMAX、MAYA 等进行三维建模,在 Unity3d 中实现互动.根据医院内物体相对固定、道路纵横交错的特点采用曼哈顿启发函数,简化了算法.该系统有效帮助患者了解就医环境,操作简单直观,便于各层次的患者使用.

关键词: 三维导诊系统; 虚拟医院; 门诊信息系统; A* 算法; 虚拟现实

中图分类号: TU528.1 **文献标志码:** A **doi:** 10.13705/j.issn.1671-6833.2019.02.005

0 引言

传统医院各个部门分工过分专业,环节衔接不流畅,工作效率低,导致患者对医院信息不了解,整个就医过程割裂,就医体验不佳,也给医院管理带来了很大的困难^[1].

随着信息技术的快速发展,越来越多的医院正加速实施信息化平台建设,以提高医院的服务水平与核心竞争力.王伟东等^[2]基于 Web 设计了 3D 虚拟人工智能导诊系统,虚拟人可以与患者和医务人员进行简单对话交互,提供帮助,但关于医院的信息不多;蔡莹莹等^[3]创建全景导诊系统,可以反映医院各个部分的情况,但医患双方互动性还有待加强;邓娴等^[4]建立了一套门诊患者诊后检查智能引导系统,为患者提供最优检查方案和最短路线指引;刘艳丽等^[5]介绍了包括自助查询系统、排队叫号系统、电子处方系统在内的多媒体导诊系统.

目前已有的导诊系统大多是针对一个功能,而且展示方式比较传统,不够直观.笔者系统将三维虚拟现实技术和医院信息系统融合在一起,对厦门中医院总院门诊片区进行三维虚拟,通过与患者智能交互,可以有效帮助患者了解医院,并解

决就医过程中遇到的相关问题.

1 系统设计与研究

1.1 系统总体设计

厦门中医院自助三维导诊系统主要由虚拟现实三维展示模块、互动功能模块、硬件设备 3 部分构成,系统结构如图 1 所示.

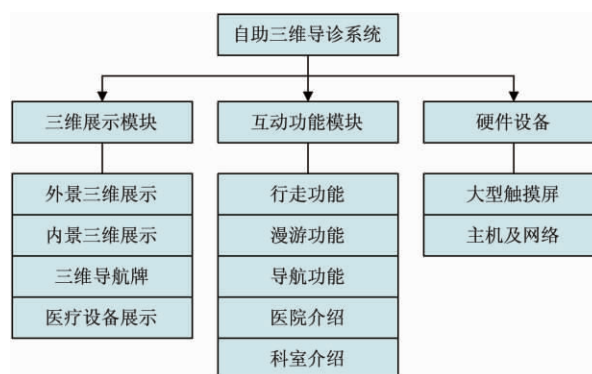


图 1 系统结构图

Fig. 1 The system structure frame

自助三维导诊系统的系统架构如图 2 所示.前端 UI 主要是基于 Web 的 Html 和 CSS 以及图片.展示层包括外景三维展示、内景三维展示、三维导航牌、医疗设备展示,采用当前流行的

收稿日期: 2017-12-07; 修订日期: 2018-04-21

基金项目: 虚拟现实技术与系统国家重点实验室开放基金(BUAA-VR-46KF-22); 2015 年福建省教育厅高校学科带头人访问学者; 厦门市科技计划指导性项目(3502Z20149011); 2014 年厦门市卫生和计划生育委员会资助项目

作者简介: 黄云辉(1978—),男,福建厦门人,厦门市中医院高级工程师,硕士,主要从事增强现实技术研究,E-mail: helloemail@163.com.

3DMAX、RHINO、MAYA 等三维建模软件进行建模.业务层中系统的各种功能主要在 Unity3d 中实现.数据层包括系统中各种数据的处理缓存等.

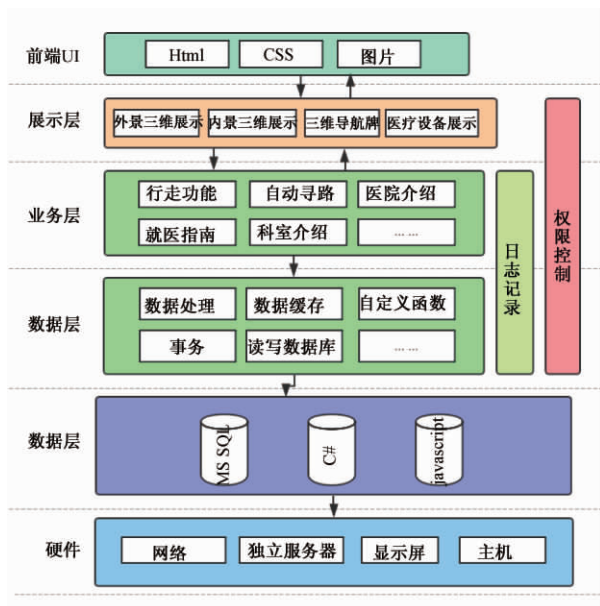


图2 系统架构图

Fig.2 System architecture frame

1.2 自动导航技术

自动导航技术是本三维导诊系统的关键互动模块.当用户选择某一目标后,计算机会根据当前位置和目标位置自动计算出最优路径,然后引导虚拟角色沿路径行走.

自动导航功能使用 Unity3d 实现,其关键是路径规划.路径规划根据漫游前所知信息的多少可以分为全局路径规划和局部路径规划.全局路径规划就是在漫游前已经知道漫游区域的所有信息,从而规划出最优路径;局部路径规划在漫游前不知道或只知道部分信息,需要根据漫游中获得的信息进行路径规划^[6].由于虚拟医院的构造信息已知,障碍物固定,所以采用全局路径规划.寻路方式选择静态寻路,在漫游前确定路径,沿着规划好的路径漫游.对于虚拟医院,由于目标一般是整个房间,范围较大,不易规划路径,所以将每个科室简化为用门口代替的一个节点.

在 Unity3d 中使用 A* 算法实现自动寻路.定义估价函数 $F(n)$, $F(n)$ 代表当前节点的重要性, $F(n)$ 越小,说明经过该节点到达目标的代价越小,该节点重要性越强. $F(n)$ 的计算公式如下:

$$F(n) = G(n) + H(n), \quad (1)$$

其中, $G(n)$ 为既定代价^[7],如果只考虑距离,那么 $G(n)$ 就是起始节点到当前节点所走过的路径长度; $H(n)$ 为估算代价, $H(n)$ 需要根据启发函数得

到.由于医院走廊大多是直线纵横连接,因此采用曼哈顿启发函数,它只计算当前节点与目标节点行数差与列数差之和,也就是不走对角线,如图3.

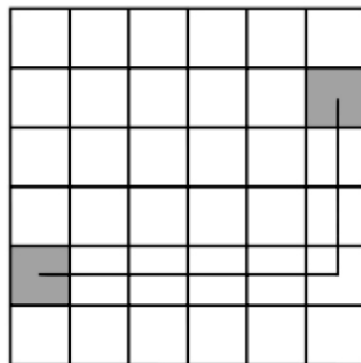


图3 曼哈顿启发函数示意图

Fig.3 The Effects of Manhattan heuristic function

综上所述,定义每个节点代表医院中一个科室或柜台,节点中存储科室位置(本文抽象为科室门口位置)、当前节点的既定代价 $G(n)$ 、当前节点的估算代价 $H(n)$ 、当前节点的估价函数 $F(n)$ 。

使用自动导航功能时,用户输入目标位置,系统自动定位当前位置,从而识别当前节点和目标节点.算法会得出最短路径,包括经过的节点及顺序,系统再将该最短路径在地图中标出并输出给用户,还可以提供语音导航.

A* 算法中设有开启列表和关闭列表,开启列表中存放所有待检查节点,关闭列表中保存所有不需要再次检查的节点.得到用户当前位置,输入当前节点后,算法主循环流程如下:

- ①将所有需要检测的节点读入开启列表.
- ②取开启列表中 $F(n)$ 最小的顶点作为当前节点.
- ③若当前节点是终点,那么寻路完成,转到(4).
- ④检查当前节点的相邻节点:
 - (a) 若该相邻节点不可通过,则跳过继续检查下一个邻节点,否则继续.
 - (b) 计算该邻节点的估价函数 $F(n)$.
 - (c) 检查开启列表或关闭列表,判断节点现在计算出的 $F(n)$ 值是否小于之前的 $F(n)$ 值.如果是,那么将当前计算出的 $G(n)$ 、 $H(n)$ 、 $F(n)$ 赋给该节点,当前节点变为其父节点,跳过步骤(4).否则,跳过该节点处理下一个邻节点.若这个邻节点不在开启或关闭列表中,继续下

一步.

(d) 将该节点的 $G(n)$ 、 $H(n)$ 、 $F(n)$ 更新为新计算出的值,并将节点读入开启列表.

⑤将当前节点加进关闭列表.

2 系统实现

系统基于 Microsoft Windows 平台开发.

1. 3D 展示模块: 场景建模过程借助 CAD 建筑布局图对建筑进行参照,可较为精确地对医院各楼层及场所位置进行编辑,然后以中医院实景拍摄数据为基础对建模进行修正.模型完成后,通过 Photoshop 图像处理软件进行材质处理、灯光处理以及烘焙,最终达到仿真的效果.

2. 互动操作功能: 采用虚拟现实技术来实现.将已建立好的 3D 场景和其他 3D 展示模块导入到 Unity3d,进行功能和位置编辑,通过引擎中的模块化功能调整灯光、环境、质感,使整个场景达到逼真的效果,从而形成一个虚拟的三维场景.然后在场景中增加虚拟角色、通过设置属性功能,为物体添加道路属性、墙壁属性、障碍物属性、碰撞属性、重力环境属性实现环境仿真.

再运用 C#、javascript 等程序语言编程来实现用户的操作互动功能,自动漫游功能、三维导航功能、科室介绍、设备介绍、角色创建功能、前台咨询功能、预约功能、实时聊天功能等都可以通过编程来实现.

3. 后台模块: 该部分主要使用 Microsoft SQL Server 创建数据库,然后在数据库中创建相应的表,表中包含所需要的字段,并结合 C#、javascript 等开发程序,建立前台与数据库之间的连接,实现前台与后台的通信,完成数据存储和调用.

3 系统功能展示

3.1 外景及内景漫游

用户可以通过手指拖动画面中的人物进行漫游,如在内景的时候可通过点击界面左上角的“外景漫游”图标切换至医院外景.如图 4.

3.2 就医导航

用户可以点击菜单栏上的“就医导航”按钮,点击后会跳出以下窗口选择想要导航去的科室,如图 5.系统会自动计算出最短线路,指引画面中的人物走到目的地,起到导航的作用.

3.3 医院简介

用户可以点击菜单栏上的“医院简介”按钮,系统会自动弹出医院简介窗口.如图 6.



图 4 外景漫游

Fig. 4 Outdoor scene wandering



图 5 就医导航

Fig. 5 Hospitalization navigation

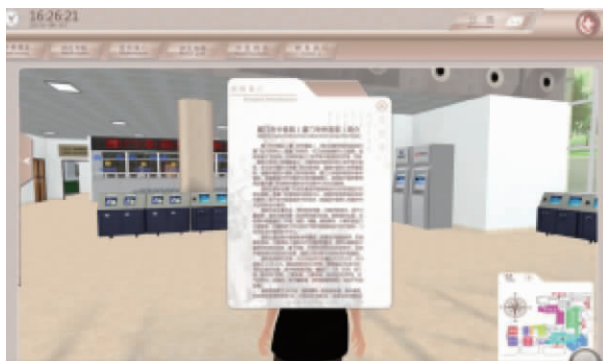


图 6 医院简介

Fig. 6 Hospital introduction

3.4 就医指南

用户可以点击菜单栏上的“就医指南”按钮,会弹出一个子菜单,里面包含医院分布图、住院须知、就诊流程、交通指南、专家门诊时间等按钮.通过点击相应的按钮会弹出相应的信息介绍,用户可以通过手指左右滑动或者上下滑动来切换内容.如图 7.

3.5 中医特色

用户点击菜单栏上的“中医特色”按钮,会弹出一些对中医特色治疗法的介绍,点击“查看特色治疗法”,会弹出相应的内容,如图 8 所示.

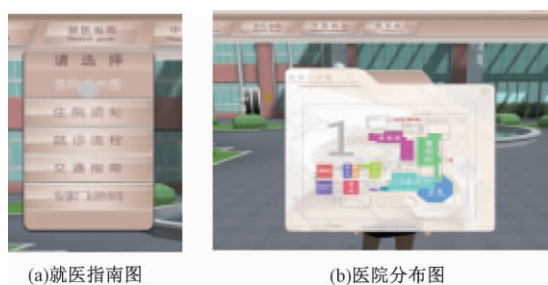


图 7 就医指南

Fig. 7 Hospitalization guidance

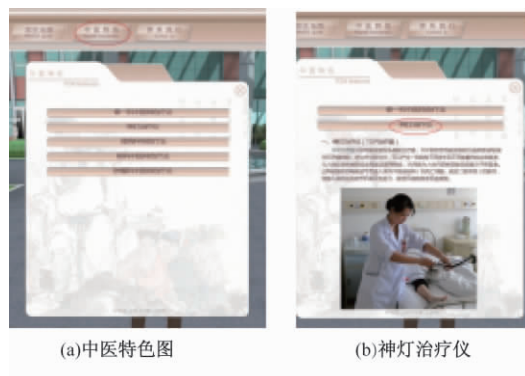


图 8 中医特色

Fig. 8 Traditional Chinese Medicine

3.6 科室介绍及专家介绍

如用户想对科室或专家进行了解,可以自行走到科室导诊台前也可通过导航到科室导诊台前,点击对话框或者护士角色,会弹出科室介绍及专家介绍的窗口(部分科室含有注意事项及设备展示),如图 9 所示。



图 9 科室介绍

Fig. 9 Department introduction

3.7 小地图

小地图位于界面的右下角,如图 10. 用户可

以通过小地图观察自己所在的位置. 用户可以点击小地图左上角的三角按钮来隐藏小地图或者显示小地图。



图 10 小地图

Fig. 10 Minimap

4 结论

厦门中医院自助三维导诊系统包括漫游、自动寻路、医院与科室介绍功能,为医院省去大量的人工引导和讲解,节约成本,也有利于患者了解就诊路线,缩短了就医时间,通过该系统,患者可以自主就医和了解医院信息。

参考文献:

- [1] 伍宏伟, 杨东. 基于赋时层次有色 Petri 网的医疗服务流程建模与优化[J]. 系统仿真学报, 2007, 19(8): 1657-1663.
- [2] 王伟东, 余华强, 赵法信. 基于 Web 的 3D 虚拟人智能导诊系统设计[J]. 湛江师范学院学报, 2012, 33(6): 124-127.
- [3] 蔡莹莹, 赵丹一, 李战国. 医院“全景导诊”系统的创建与应用[J]. 中国医学教育技术, 2011, 25(3): 305-308.
- [4] 邓娴, 国希云, 库洪安, 等. 门诊患者诊后检查智能引导系统的使用[J]. 中国病案, 2016, 17(7): 28-29.
- [5] 刘艳丽, 龙海雪. 创建多媒体导诊系统推动医院现代化发展[J]. 中国医疗设备, 2008, 23(12): 79-82.
- [6] 罗景馨. 与三维场景漫游相关的部分技术研究[D]. 长沙: 中南大学软件学院, 2009.
- [7] 潘长安. 基于改进 A 星算法的城市交通寻径的研究[D]. 厦门: 华侨大学计算机科学与技术学院, 2015.

(下转第 81 页)

文章编号: 1671-6833(2019)02-0059-07

聚乙烯亚胺负载四氧化三铁对刚果红的吸附性能

韩润平, 房丽燕, 李小钰, 韩旻媛, 张 征

(郑州大学 化学与分子工程学院, 河南 郑州 450001)

摘 要: 采用表面负载法制得聚乙烯亚胺/四氧化三铁吸附剂(PEI@Fe₃O₄), 以刚果红(Congo red, CR)为吸附质, 系统考察 pH 值、吸附时间和染料初始浓度等因素对吸附材料性能的影响. 结果表明, 离子强度有利于 CR 在 PEI@Fe₃O₄ 上的吸附量; 303 K 时的最大吸附量为 58.3 mg/g, 等温吸附曲线符合 Redlich-Peterson 方程且吸附过程符合 Elovich 动力学模型. 解吸再生实验表明, 吸附剂多次吸附/解吸循环仍可维持吸附性能, 显示出良好的化学稳定性. 因此, 该吸附剂在染料废水 CR 去除方面具有良好应用前景.

关键词: PEI@Fe₃O₄; 吸附; 刚果红; 再生

中图分类号: X703.1, O657.3

文献标志码: A

doi: 10.13705/j.issn.1671-6833.2019.02.009

0 引言

染料在纺织、造纸、橡胶、化妆品、食品等领域广泛使用, 通过“跑冒滴漏”等无组织排放进入水体, 严重威胁生态环境和人类健康. 染料废水具有难降解、色度高、品种多、水质变化大等特点, 不易处理. 为有效控制染料废水, 国内外已研究许多种方法和水处理技术, 吸附法为处理染料废水的优良方法之一^[1-2]. 吸附剂主要有活性炭^[3]、天然矿物^[4]、生物质材料^[5]、微生物吸附剂^[6]等. 研究表明, 磁性吸附剂具有制备简单、分离快速、易回收和再生循环利用、吸附性能好、毒性低的优势, 是一种绿色环保吸附剂^[7]. 磁性 Fe₃O₄ 吸附剂被广泛应用于水污染控制领域. 聚乙烯亚胺(polyethyleneimine, PEI) 是一种典型水溶性聚胺, 在高分子染料^[8]、造纸^[9]、催化^[10]、絮凝剂^[11]、纤维改性^[12]、基因传递^[13]、生物医学^[14]等领域有广泛的应用, 具有生物相容性, 使用过程中不会对环境造成二次污染. PEI 在水溶液中以游离分子态形式存在, 直接作为吸附剂不易分离回收、易流失, 制约了 PEI 作为吸附剂在实际中的应用. 因此需要将 PEI 固载在基质材料上, 或进行接枝和交联改性形成更适应环境污染治理的形貌和材质. Fe₃O₄ 粒径小、比表面积大、超顺磁性, 很容易发

生团聚或氧化, 影响吸附剂的吸附性能, PEI@Fe₃O₄ 磁性复合材料不仅增强了 Fe₃O₄ 在水溶液中的分散性和稳定性, 同时克服 PEI 易流失的缺点, 表面修饰基团的引入进一步增强了吸附性能. 因此通过物理或化学方法对其进行表面功能化修饰十分必要. 刚果红是一种典型的联苯胺类直接偶氮阴离子型染料, 厌氧条件下它会生成毒性更大的芳香胺类物质. 基于 PEI 功能化磁性纳米复合材料同时具有磁分离特性和 PEI 对污染物吸附性能优异的特点, 笔者通过戊二醛化学交联反应制备 PEI 功能化磁性吸附剂(PEI@Fe₃O₄), 以刚果红染料为目标吸附物, 研究初始 pH 值、吸附时间、染料初始浓度等因素对刚果红在 PEI@Fe₃O₄ 上吸附性能的影响, 进一步探讨 PEI@Fe₃O₄ 对刚果红的吸附去除机制.

1 材料与方法

1.1 实验材料和仪器

PEI(分子量约为 1 800 g/mol), CR[二苯基-4,4'-二(偶氮 2)-1-氨基萘-4-磺酸钠, 分子式为 C₃₂H₂₂N₆Na₂O₆S₂, 分子量为 696.68], 盐酸、氯化铁、氢氧化钠、硫酸亚铁、戊二醛等均为分析纯.

752 型紫外分光光度计; SHZ-82 型恒温气浴振荡器; DHG-9055 A 型鼓风干燥箱; 90-1 型恒温

收稿日期: 2018-05-16; 修订日期: 2018-07-18

基金项目: 河南省基础与前沿技术计划项目(142300410224)

通信作者: 韩润平(1967—), 男, 河南偃师人, 郑州大学教授, 博士, 主要从事环境化学与工程的研究, E-mail: rphan67@zzu.edu.cn.

磁力搅拌器; Su8020 扫描电镜 (SEM); S4 PIO-NEER X 射线荧光光谱仪.

1.2 吸附剂制备

1.2.1 共沉淀法制备四氧化三铁

称取一定量 $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 和 $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 于 1 L 烧杯中, 室温, 在转速 850 rad/min 磁力搅拌下溶于 0.5 mol/L HCl, 然后逐滴滴加 1.25 mol/L NaOH 溶液 300 mL, 生成黑色 Fe_3O_4 沉淀, 继续搅拌 0.5 h, 混合液的 pH 用 25% HCl 调节至中性, 反应结束后利用磁铁通过外加磁场收集烧杯中的固体材料, 用蒸馏水将所得固体材料洗涤数次, 置于 60 °C 鼓风干燥箱内烘干备用.

1.2.2 制备磁性复合材料 $\text{PEI}@\text{Fe}_3\text{O}_4$

单因素实验确定最佳反应条件: 配置 5 g/L PEI 溶液 300 mL, 然后等质量比例加入 Fe_3O_4 , 恒温水浴 30 °C 磁力搅拌 6 h, 静置 1 h 磁铁分离后, 于 60 °C 鼓风干燥箱内烘干. 然后加入 300 mL 质量百分数 0.05% 的戊二醛溶液, 恒温水浴 30 °C 磁力搅拌 2 h, 磁铁分离, 用蒸馏水将所得固体材料洗涤数次, 于 60 °C 鼓风干燥箱内烘干.

1.3 实验方法

采用静态法进行实验, 将 0.010 g 吸附剂放入 10 mL 锥形瓶中, 加入一定质量浓度的刚果红溶液 10 mL, 在恒温振荡器进行吸附. 一定时间后 (按分计) 取上清液用分光光度法测定刚果红的质量浓度, 计算单位质量的吸附剂对刚果红的吸附量. 吸附温度分别控制在 293、303 和 313 K.

1.4 刚果红测定

采用可见分光光度法, 在 pH 为 6.7 左右, 473 nm 处测量吸光度, 根据吸光度与 CR 的质量浓度在一定范围内呈线性关系进行测定.

2 结果和讨论

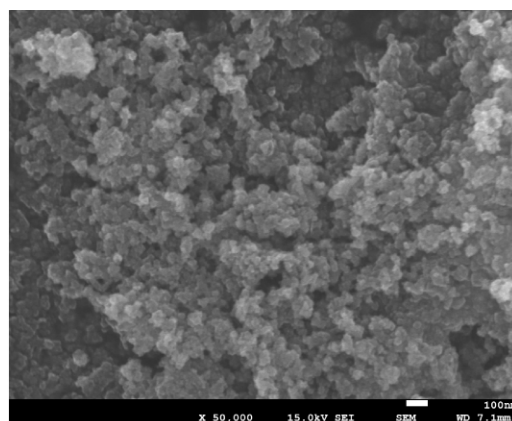
2.1 复合磁性材料的表征

2.1.1 扫描电镜

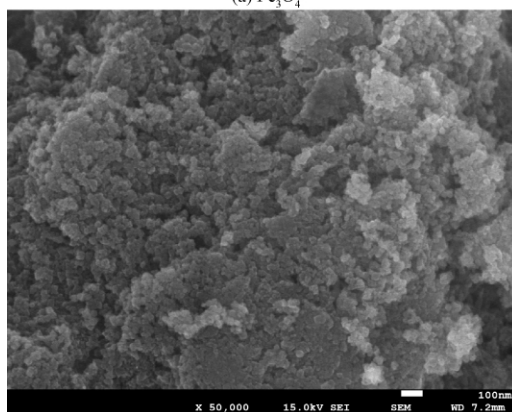
图 1 为 Fe_3O_4 和 $\text{PEI}@\text{Fe}_3\text{O}_4$ 的 SEM 图. 由图 1 看出, 磁性材料处于纳米范围, 负载 PEI 后粒径变化不大, 材料表面较为粗糙, 适合作为吸附剂.

2.1.2 元素分析

对两种材料进行基本元素分析, Fe_3O_4 中 C 为 0.075%、H 为 0.34%、N 为 0.012%, 说明制备过程或保存过程中 Fe_3O_4 表面吸附或夹有少量有机杂质; $\text{PEI}@\text{Fe}_3\text{O}_4$ 中 C 为 3.95%、H 为 0.88%、N 为 1.22%. $\text{PEI}@\text{Fe}_3\text{O}_4$ 中 N、H、C 3 种元素含量明显提高, 说明 PEI 负载到磁性材料 Fe_3O_4 .



(a) Fe_3O_4



(b) $\text{PEI}@\text{Fe}_3\text{O}_4$

图 1 扫描电镜图

Fig. 1 SEM image

2.1.3 $\text{PEI}@\text{Fe}_3\text{O}_4$ XRD 分析

图 2 为 XRD 图谱. 对比标准图谱, 相应的衍射峰为 Fe_3O_4 的峰, PEI 负载到表面对 Fe_3O_4 的晶格结构没有影响.

2.2 吸附性能

2.2.1 pH 值对刚果红吸附的影响

酸度改变吸附剂表面的官能团, 也影响到吸附质的存在状态. 不同溶液 pH 的影响如图 3 所示. pH 在 2 ~ 12 时, 随 pH 升高, 吸附量不断降低, 当 pH 为 2 时, 单位吸附量达到最大.

pH 为 2 ~ 7 内, $\text{pH} < \text{pH}_{\text{pzc}}$ (6.9) 时, PEI 分子由于氨基质子化而显正电. 同时水中刚果红分子磺酸基团 ($-\text{SO}_3\text{Na}$) 会水解为带负电荷的离子, CR 分子中 $-\text{SO}_3^-$ ($\text{pK}_a < 0$) 即使强酸环境仍然能以 $-\text{SO}_3^-$ 的形式稳定存在. 在酸性条件下, CR 分子中 $-\text{SO}_3^-$ 与质子化 PEI 分子之间的静电吸引是主要吸附机理. 随 pH 值升高, 吸附剂表面 PEI 分子质子化程度减弱, 同时溶液中出现大量 OH^- 与 CR 发生竞争吸附, 导致吸附性能降低. 后续实验中 CR 水溶液不调节 pH (溶液 $\text{pH} = 6.7$).

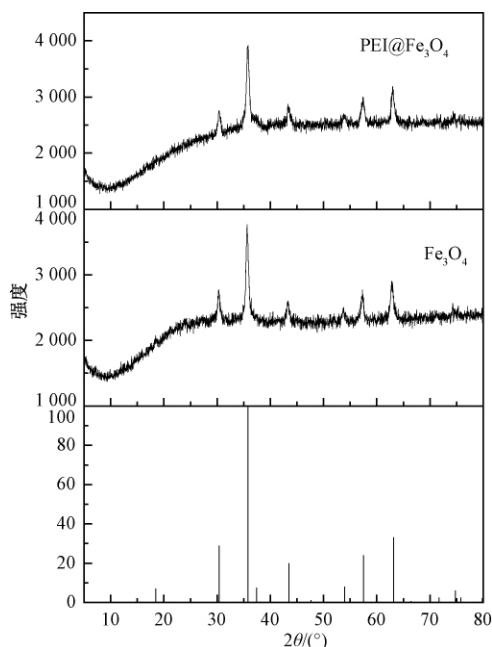
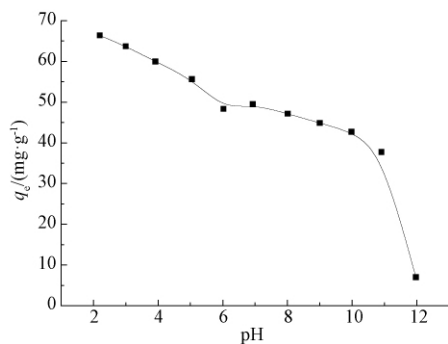
图2 PEI@Fe₃O₄ XRD 图谱Fig.2 XRD of PEI@Fe₃O₄

图3 pH 值对刚果红吸附的影响

Fig.3 Effect of initial pH on CR adsorption

2.2.2 盐浓度对刚果红吸附的影响

染料废水中存在着无机盐,探讨盐度对吸附量的影响很有必要.图4为不同盐浓度对CR吸附量的影响.

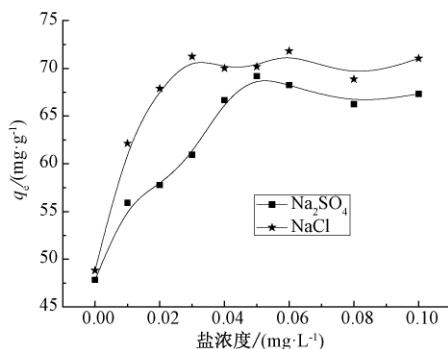


图4 盐浓度对刚果红吸附的影响

($T = 303\text{ K}$, $C_0 = 100\text{ mg/L}$)

Fig.4 Effect of salt concentration on CR adsorption

由图4看出,盐的存在有利于CR的吸附,盐浓度增加,吸附量变大,然后趋于稳定.原因

可能是盐度升高引起溶液中CR染料分子的二聚反应,盐离子迫使CR分子聚集并增强其吸附到PEI@Fe₃O₄的程度.另一原因可能是加入无机盐会降低双电层厚度,溶液中的电解质减小了染料和PEI@Fe₃O₄表面官能团之间的排斥力,减小CR分子扩散到PEI@Fe₃O₄吸附剂表面的阻力.

由图4还可看出,NaCl的影响大于Na₂SO₄.原因是无机盐的加入使溶液离子强度增加,活度系数减小,CR和吸附剂表面活性位点的活度下降.在相同浓度下,Na₂SO₄溶液的离子强度大于NaCl溶液的离子强度,因此导致CR与活性位点间的作用力下降.

2.2.3 刚果红的吸附等温线

在刚果红初始质量浓度为10~120 mg/L的吸附液中(pH为6.67),加入0.01 g吸附剂,分别在293、303和313 K条件下吸附10 h,吸附等温线如图5所示.

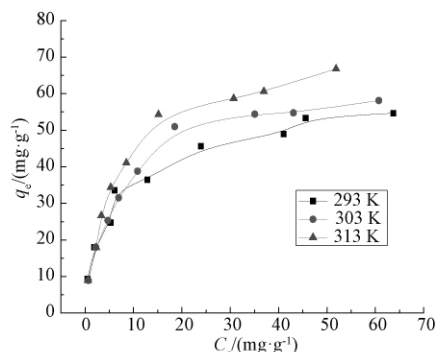
图5 PEI@Fe₃O₄对CR的吸附等温线

Fig.5 Adsorption isotherms of CR

从图5得出,随刚果红浓度增加,吸附量变大;当浓度超过20 mg/L时,刚果红单位吸附量增幅减缓.温度从293 K升至313 K,吸附剂对刚果红单位吸附量增大.在303 K时,实验得到的最大吸附量为58.3 mg/g.

等温吸附模型常用于拟合所得等温线.选择Langmuir、Freundlich、Redlich-peterson和Temkin方程,其表达式如下.

Langmuir吸附等温式为^[15]

$$q_e = \frac{q_m K_L C_e}{1 + K_L C_e}; \quad (1)$$

Temkin吸附等温式为

$$q_e = A + B \ln C_e, \quad (2)$$

Redlich-peterson吸附等温式为:

$$q_e = \frac{AC_e}{1 + BC_e^g}, \quad (3)$$

式中: q_e 为平衡吸附量; K_L 为 Langmuir 常数; K_F 和 $1/n$ 为 Freundlich 方程常数; A 、 B 与 g 为 Redlich-peterson 参数; C_e 为吸附平衡后 CR 的浓度。

采用非线性回归分析,以差方和最小得到相应

模型的参数和可决系数 R^2 和差方和 SSE , 结果列于表 1. 对于 Langmuir 模型, 单位吸附量 q_m 在 293、303、313 K 3 个温度随温度升高单位吸附量增大, 说明 PEI@Fe₃O₄ 吸附 CR 是一个吸热过程。

表 1 PEI 改性磁性四氧化三铁对水中刚果红等温吸附模型参数

Tab. 1 Isotherm parameters for Congo red adsorption onto surfactant-modified magnetite Fe₃O₄ composite

T/K	Langmuir				Temkin				Redlich-peterson		
	$K_L /$ (L·mg ⁻¹)	$q_m /$ (mg·g ⁻¹)	R^2	SSE	A	B	R^2	SSE	g	R^2	SSE
293	0.189 ± 0.036	56.9 ± 2.7	0.959	80.9	13.3 ± 1.7	9.83 ± 0.61	0.959	152	0.805 ± 0.057	0.980	38.0
303	0.153 ± 0.016	64.3 ± 1.9	0.987	30.4	10.5 ± 1.9	11.9 ± 0.7	0.933	176	0.885 ± 0.119	0.990	30.3
313	0.166 ± 0.015	72.4 ± 1.9	0.939	29.3	12.0 ± 2.0	13.7 ± 0.8	0.939	73.9	0.949 ± 0.121	0.990	28.9

对于 Temkin 模型, R^2 在 0.970 以上, 但 SSE 值较大. 说明不适合描述 PEI@Fe₃O₄ 对刚果红的吸附过程. 比较相关系数 R^2 和 SSE , 在不同温度下, Redlich-peterson 方程模型拟合效果好, Redlich-peterson 方程是 Langmuir 和 Freundlich 的结合, $0 < g < 1$ 且接近 1, 说明接近 Langmuir 方程. 吸附为不均匀表面单分子层吸附。

2.2.4 接触时间的影响及吸附动力学研究

在 303 K 时, 不同质量浓度刚果红接触时间对吸附的影响如图 6 所示. PEI@Fe₃O₄ 对刚果红的吸附过程分为 3 个阶段: 初期是快速过程; 40 min 以后, 吸附速率明显减慢, 进入中速过程; 160 min 后进入慢速阶段, 吸附 10 h 后基本达到平衡. 刚果红达到吸附平衡所需时间在很大程度上与初始质量浓度有关, 质量浓度为 40、60 和 90 mg/L 的刚果红溶液, 分别在 100、300 和 400 min 后刚果红吸附量增加缓慢, 基本达到动态平衡. 采用 Pseudo-second-order equation、Double Constant equation、Elovich equation、Particle diffusion reaction 方程非线性拟合。

Pseudo-second-order 方程:

$$q_t = \frac{k_2 q_e^2 t}{1 + k_2 q_e t}; \quad (4)$$

Elovich 方程:

$$q_t = \frac{\ln(\alpha\beta)}{\beta} + \frac{\ln t}{\beta}; \quad (5)$$

Double constant 方程:

$$q_t = A t^{ks}, \quad (6)$$

Intra-particle diffusion 方程:

$$q_t = K_i t^{1/2} + c, \quad (7)$$

式中: k_2 为速率常数, g/(mg·min); α 为初始吸附速率常数, g/(mg·min); β 为吸附常数, g/mg; A 和 ks 为模型参数; K_i 为扩散速率常数, mg/(g·min); c 为边界层厚度有关的常数, mg/g。

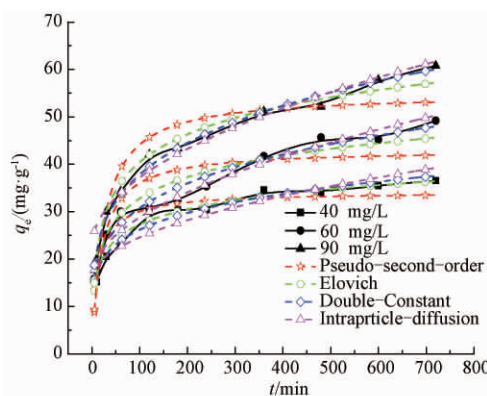


图 6 不同刚果红质量浓度下接触时间对吸附非线性拟合

Fig. 6 Effect of contact time on congo red adsorption at various initial concentrations

拟合结果见表 2, 拟合曲线如图 6 所示。

由表 2 可知, 3 种不同初始质量浓度刚果红溶液, 双常数和 Elovich 动力学模型的相关系数均大于 0.942 且 SSE 小. Pseudo-second-order equation 和 Particle diffusion reaction 得到的 R^2 较小, SSE 较大, 说明两方程不能有效地预测动力学过程. 依据 R^2 和 SSE 值, Double Constant equation 和 Elovich 方程可以更好地预测时间对吸附的影响. Elovich 方程最好, 说明吸附是非均相吸附。

2.2.5 PEI@Fe₃O₄ 对 CR 吸附热力学分析

吸附热力学主要是对吸附作用模式与平衡吸附数学模型的研究, 依据平衡试验可以求得不同温度时的分配系数. PEI@Fe₃O₄ 吸附水中刚果红吉布斯自由能变 (ΔG^0)、焓变 (ΔH^0) 和熵变 (ΔS^0) 等热力学参数通过以下公式加以计算:

$$\Delta G^0 = -RT \ln K_d; \quad (8)$$

$$\Delta G^0 = \Delta H^0 - T\Delta S^0, \quad (9)$$

式中: K_d ($= q_e / C_e$) 为吸附平衡系数, mL/g; T 为反应温度, K; R 为理想气体常数, 8.314 (J·mol⁻¹·K⁻¹)。

表 2 PEI@Fe₃O₄ 对 CR 的吸附动力学曲线非线性模型拟合结果(*T* = 303 K)

Tab. 2 Parameters of kinetic models at various conditions					
Pseudo-second-order equation			$q_{e(\text{theo})} /$ ($\text{mg}\cdot\text{g}^{-1}$)	R^2	SSE
$C_0 / (\text{mg}\cdot\text{L}^{-1})$	$q_{e(\text{exp})} / (\text{mg}\cdot\text{g}^{-1})$	$k_2 / (\text{g}\cdot\text{mg}^{-1}\cdot\text{min}^{-1})$			
40	36. 6	0. 002 17 ± 0. 000 66	34. 1 ± 1. 5	0. 827	97. 3
60	49. 2	0. 001 19 ± 0. 000 48	43. 1 ± 2. 6	0. 777	252
90	60. 8	0. 000 75 ± 0. 000 23	54. 9 ± 2. 7	0. 867	247
Elovich equation			β	R^2	SSE
$C_0 / (\text{mg}\cdot\text{L}^{-1})$	$q_{e(\text{exp})} / (\text{mg}\cdot\text{g}^{-1})$	α			
40	36. 6	16. 7 ± 1. 4	0. 216 ± 0. 274	0. 966	18. 9
60	49. 2	10. 1 ± 2. 5	0. 154 ± 0. 509	0. 942	65. 9
90	60. 8	23. 1 ± 1. 9	0. 118 ± 0. 397	0. 978	40. 1
Double Constant equation			a	R^2	SSE
$C_0 / (\text{mg}\cdot\text{L}^{-1})$	$q_{e(\text{exp})} / (\text{mg}\cdot\text{g}^{-1})$	ks			
40	36. 6	0. 183 ± 0. 013	11. 3 ± 0. 8	0. 963	20. 6
60	49. 2	0. 225 ± 0. 014	10. 9 ± 0. 8	0. 974	29. 9
90	60. 8	0. 234 ± 0. 009	12. 9 ± 0. 7	0. 988	21. 8
Particle diffusion reaction			K	R^2	SSE
$C_0 / (\text{mg}\cdot\text{L}^{-1})$	$q_{e(\text{exp})} / (\text{mg}\cdot\text{g}^{-1})$	C			
40	36. 6	15. 9 ± 1. 5	0. 871 ± 0. 098	0. 945	63. 7
60	49. 2	16. 0 ± 1. 4	1. 28 ± 0. 09	0. 887	48. 2
90	60. 8	22. 7 ± 0. 4	1. 45 ± 0. 02	0. 957	102. 0

根据公式(8)、公式(9),分别计算不同温度下 ΔG^0 ,用 ΔG^0 对 *T* 作图,通过直线的斜率和截距可以计算出 ΔH^0 与 ΔS^0 . PEI@Fe₃O₄ 吸附水中刚果红热力学参数值如表 3 所示.

表 3 PEI@Fe₃O₄ 对 CR 吸附热力学参数

Tab.3 Thermodynamic parameters for CR adsorption onto PEI@Fe ₃ O ₄						
项目	$E_a /$ ($\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$)	$\Delta H /$ ($\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$)	$\Delta S /$ ($\text{mol}\cdot\text{K}$)	$\Delta G / (\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1})$		
				293 K	303 K	313 K
结果	34. 1	10. 7	58. 6	- 6. 45	- 7. 13	- 7. 62

计算不同温度条件吉布斯自由能变均为负值,说明 PEI@Fe₃O₄ 对水中刚果红吸附属于自发过程. 焓变 ΔH 为正值,说明 PEI@Fe₃O₄ 吸附水中刚果红是吸热反应. 吸附剂对刚果红吸附容量随着温度升高而增大,与实验结果相符. 熵变 ΔS 为正值,表明吸附过程总熵增加,说明 PEI@Fe₃O₄ 吸附刚果红后增加了固-液界面上无序程度.

2. 2. 6 解吸再生研究

PEI@Fe₃O₄ 对 CR 吸附达到平衡(303 K, $C_0 = 100 \text{ mg/L}$, $t = 600 \text{ min}$),计算吸附量. 然后用不同方法进行解吸,对解吸后的吸附剂进行再次吸附研究,计算解吸率和再生吸附剂的吸附量.

结合 CR 的 PEI@Fe₃O₄ 进行再生及重复使用性研究,再生结果如图 7 所示. 用水、乙醇等解吸率低,说明 CR 与吸附剂作用力大,但有较好的一次再生率,说明在该浓度下吸附剂表面的活性点位未被占满,仍有一定的吸附量. 采用 0. 1 mol/L

的 NaOH 溶液可实现 CR 有效解吸附. 对吸附饱和和后磁性材料 PEI@Fe₃O₄ 连续 3 次吸附/解吸附循环操作后,吸附量分别为初始的 74. 5%、58. 7%、55. 8%,表明 PEI@Fe₃O₄ 对 CR 吸附性能有所下降,但仍有较大的吸附量,说明 PEI@Fe₃O₄ 作为吸附剂具有良好稳定性、再生性和重复利用性,PEI@Fe₃O₄ 有望用于废水中 CR 的吸附去除.

2. 2. 7 刚果红吸附机理探讨

由于在 CR 分子结构中存在 $-\text{SO}_3^-$ 和 $-\text{NH}_2$ 基团,当 pH 降低时,吸附剂表面 PEI 及 CR 分子上的一 NH_2 都被质子化为一 NH_3^+ ,两者间的静电引力减弱,导致吸附量减小. 综上,本实验无机盐离子共存利于 CR 染料吸附,盐度影响的结果表明 PEI@Fe₃O₄ 吸附 CR 主要机理不是静电作用力. 如图 8 所示. 在适宜 pH 条件下,部分 CR 分子絮凝在吸附剂表面,说明吸附的同时发生一定的絮凝作用,吸附过程可能包含一定的吸附架桥作

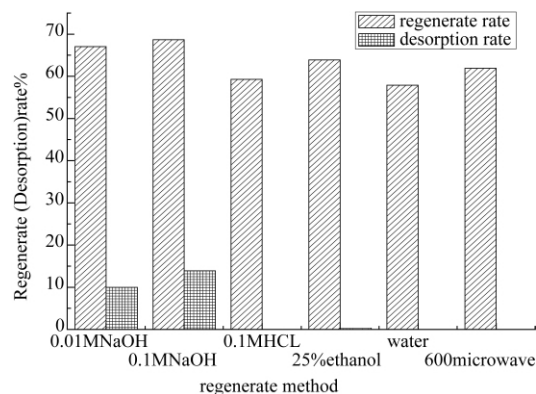
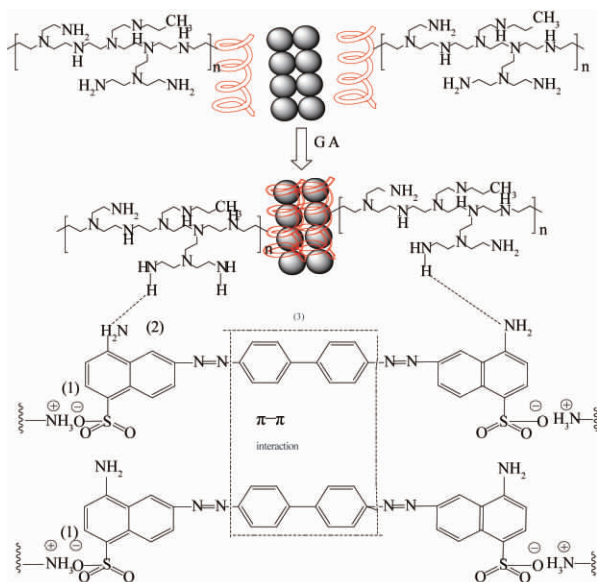


图7 不同解吸剂的解吸效率和再生性能比较

Fig.7 Efficiency of desorption and regeneration about spent adsorbents by various agents



(1) 离子间相互作用(2) PEI 上氨基与 CR 分子上的 N 之间形成氢键 (3) CR 分子与 CR 分子中 $\pi-\pi$ 之间形成分子间作用力. ● 代表四氧化三铁; 代表 PEI 分子链.

图8 PEI@Fe₃O₄ 和 CR 的吸附机理图

Fig.8 Mechanism of CR adsorption

用,刚果红分子之间形成分子间作用力.

3 结论

研究表明,PEI@Fe₃O₄ 对水中阴离子染料刚果红具有好的去除效果. pH 为 6.67 和反应温度为 303 K 条件 PEI@Fe₃O₄ 对刚果红的吸附量为 58.3 mg/g,且随温度升高吸附量增大. 吸附等温线符合 Redlich-Peterson 方程,吸附动力学符合 Elovich 动力学模型和双常数模型,随 CR 溶液浓度增大,温度升高及盐浓度增加,吸附量增大. PEI@Fe₃O₄ 对水中刚果红吸附属于自发和吸热过程,作用机制可能包括静电吸引、氢键和分子间

作用力等. 吸附刚果红后吸附剂可以很容易地通过外加磁场的作用快速地从水溶液中分离出来.

参考文献:

- [1] ALI I, ASIM M, KHAN T A. Low cost adsorbents for the removal of organic pollutants from wastewater [J]. Journal of environmental management, 2012 (113): 170 - 183.
- [2] AKSU Z. Application of biosorption for the removal of organic pollutants: a review [J]. Process biochemistry, 2005, 40(3/4): 997 - 1026.
- [3] BJELOPAVLIC M, NEWCOMBE G, HAYES R. Adsorption of NOM onto activated carbon: Effect of surface charge, ionic strength, and pore volume distribution [J]. Journal of colloid & interface science, 1999, 210(2): 271 - 280.
- [4] HAN R P, WANG Y, SUN Q, et al. Malachite green adsorption onto natural zeolite and reuse by microwave irradiation [J]. Journal of hazardous materials, 2010, 175(1 - 3): 1056 - 1061.
- [5] XU X, GAO B Y, JIN B, et al. Removal of anionic pollutants from liquids by biomass materials: A review [J]. Journal of molecular liquids, 2016 (215): 565 - 595.
- [6] 韩润平, 杨贯羽, 张敬华, 等. 光谱法研究酵母菌对铜离子的吸附机理 [J]. 光谱学与光谱分析, 2006, 26(12): 2334 - 2337.
- [7] UI-ISLAM M, ULLAH M W, KHAN S, et al. Current advancements of magnetic nanoparticles in adsorption and degradation of organic pollutants [J]. Environmental science and pollution research, 2017, 24(14): 12713 - 12722.
- [8] DAWSON D J, GLESS R D, JR R E W. Poly(vinyl-amine hydrochloride). Synthesis and utilization for the preparation of water-soluble polymeric dyes [J]. Journal of the American chemical society, 1976, 98(19): 5996 - 6000.
- [9] 景宜, 周红霞, 胡雪, 等. 聚乙烯亚胺双组分体系在废新闻纸浆造纸中的应用 [J]. 造纸科学与技术, 2002, 21(1): 23 - 24.
- [10] MARTEL B, MORCELLET M. Cyclodextrin-poly(vinylamine) systems—II. Catalytic hydrolysis of p-nitrophenyl acetate [J]. European polymer journal, 1995, 31(11): 1089 - 1093.
- [11] 王刚. 重金属絮凝剂聚乙烯亚胺基黄原酸钠的制备及性能研究 [D]. 兰州: 兰州交通大学环境与市政工程学院, 2013.
- [12] LIN J, QIU S, LEWIS K, et al. Mechanism of bactericidal and fungicidal activities of textiles covalently

- modified with alkylated polyethylenimine [J]. *Biotechnology & bioengineering*, 2003, 83(2): 168 – 172.
- [13] CHUMAKOVA O V, LIOPO A V, ANDREEV V G, et al. Composition of PLGA and PEI/DNA nanoparticles improves ultrasound-mediated gene delivery in solid tumors in vivo. [J]. *Cancer letters*, 2008, 261(2): 215 – 225.
- [14] QIU Y, ZHANG T, RUEGSEGER M, et al. Novel nonionic oligosaccharide surfactant polymers derived from poly (vinylamine) with pendant dextran and hexanoyl groups [J]. *Macromolecules*, 1998, 31(1): 165 – 171.
- [15] 韩秀丽, 宋阿娟, 白净, 等. 改性荷叶对 1,4 - 苯二酚吸附性能的研究. *郑州大学学报(工学版)*, 2017, 38(3): 25 – 29.

Removal of Congo Red by PEI@Fe₃O₄ Magnetic Composites in Batch Mode

HAN Runping, FANG Liyan, LI Xiaoyu, HAN Minyuan, ZHANG Zheng

(College of Chemistry and Molecular Engineering, Zhengzhou University, Zhengzhou 450001, China)

Abstract: Polyethylenimine@Fe₃O₄ magnetic composites (PEI@Fe₃O₄) were prepared by a surface overlay method and characterized. Its adsorption property toward Congo red (CR) from solution was performed in batch mode. The results showed that it was favor of CR adsorption onto PEI@Fe₃O₄ with the increase of ionic strength. Adsorption isotherms from experimental results were fitted well by Redlich-Peterson model and the adsorption quantity from experiment was up to 58.3 mg/g at 303 K. The kinetic process was best predicted by the Elovich model. Desorption and regeneration experiments showed that the adsorbent could retain its adsorption capacity even after adsorption/desorption cycles, showing excellent mechanical and chemical stabilities. It was implied that PEI@Fe₃O₄ is promising in the removal of anionic dyes from wastewater.

Key words: PEI@Fe₃O₄; Adsorption; Congo red; Regeneration

文章编号: 1671-6833(2019)02-0066-06

响应面法优化纤维素基载体固定糖化酶的研究

陈俊英^{1,2}, 周航宇¹, 唐焕妍¹, 白 净^{1,2}, 赵富强¹, 李清亮¹

(1. 郑州大学 化工与能源学院, 河南 郑州 450001; 2. 河南省杰出外籍科学家工作室, 河南 郑州 450001)

摘 要: 利用纤维素的空间结构特点(海藻酸可与钙离子交联形成凝胶的性质), 采用纤维素-海藻酸钠混合溶液滴入氯化钙溶液的包埋法固定糖化酶. 考察纤维素-海藻酸钠质量比、纤维素-海藻酸钠混合溶液质量浓度、氯化钙溶液质量浓度等单因素对酶活力的影响. 在单因素试验的基础上应用响应面优化试验, 得到最优制备固定化糖化酶的工艺条件为: 纤维素-海藻酸钠用量比例为 1.5:1, 两者混合溶液质量浓度为 2.80%, 氯化钙溶液质量浓度为 2.77%, 响应面优化结果验证良好. 此外还进行了重复使用性试验, 相比仅用包埋法制备的固定化糖化酶, 包埋并且经过吸附酶液的固定化糖化酶重复使用性较好.

关键词: 纤维素; 海藻酸钠; 固定化; 糖化酶; 响应面法

中图分类号: Q814

文献标志码: A

doi: 10.13705/j.issn.1671-6833.2018.05.016

0 引言

糖化酶可将淀粉完全分解成葡萄糖^[1-2], 广泛用于酒精、葡萄糖、抗生素、有机酸等物质的发酵生产. 在酶催化反应中, 游离酶具有难与底物分离, 不能重复利用, 易失活等缺点; 而固定化酶易与底物分离, 可重复使用, 可连续生产, 稳定性好^[3-4]. 酶的固定化通常分为载体结合法、交联法、包埋法及新型的定向固定法^[5-9], 包埋法制备的固定化酶具有条件温和、酶包埋率不受保护剂及稳定剂的影响等优点, 因此, 本试验采用包埋法制备固定化酶, 并且选择纤维素作为载体材料. 与其他载体^[10-14]相比, 纤维素是具有一定空间结构的天然有机高分子多糖物质. 纤维素疏松的孔隙以及长链结构有利于渗透和吸附大分子, 具有生物相容性好, 无毒, 可降解, 价格低廉, 适合作为固定化酶的载体材料.

1 材料与方法

1.1 原料与试剂

糖化酶由河南天冠企业集团提供, 原液酶活力约为 100 000 U/mL.

海藻酸钠为化学纯, 3,5-二硝基水杨酸、微晶

纤维素、氯化钙、酒石酸钾钠、苯酚、无水亚硫酸钠、乙酸、结晶乙酸钠、氢氧化钠均为分析纯.

1.2 试验仪器

LDZF-30KB-III型立式压力蒸汽灭菌器, 上海申安医疗器械厂; AL204 电子分析天平, 上海梅特勒-托利多仪器有限公司; NDJ-79 型旋转式黏度计, 同济大学机械厂; 恒温水浴振荡器; WFZ UV-2012 PC 型紫外可见分光光度计, 上海尤尼柯仪器有限公司.

1.3 测定方法

黏度测定: 用 NDJ-79 型旋转式黏度计.

酶活测定方法: 3,5-二硝基水杨酸(DNS)比色法^[15-16].

建立葡萄糖标准曲线 $y = 3.3953x + 0.1930$, x 为吸光度; y 为葡萄糖浓度, mg/mL; 得到的线性回归系数 R^2 为 0.9992.

1.4 相关试剂与固定化酶的制备

(1) DNS 试剂: 准确称取 3,5-二硝基水杨酸 10 g, 氢氧化钠 10 g, 酒石酸钾钠 200 g, 重蒸苯酚 2 g, 无水亚硫酸钠 5 g. 用 500 mL 水在 45 °C 水浴中溶解至澄清后, 放置冷却至室温. 然后加水定容到 1 000 mL, 滤除杂质后移至棕色试剂瓶中避光干燥存放 7 d 后方可使用.

收稿日期: 2018-01-21; 修订日期: 2018-03-21

基金项目: 河南省自然科学基金资助项目(162300410250)

作者简介: 陈俊英(1972—), 女, 郑州大学副教授, 博士, 主要从事生化设备强化及可再生能源技术的研究, E-mail: chenjy@zzu.edu.cn.

通信作者: 白 净(1975—), 男, 郑州大学副教授, 博士, 从事新能源开发研究, E-mail: baijing@zzu.edu.cn.

(2) 葡萄糖溶液(10 mg/mL):称取一定质量的无水葡萄糖在103℃下烘干到质量恒定,精准测取1 g,用水溶解并定容至100 mL.

(3) 葡萄糖标准溶液:分别吸取(2)中的葡萄糖溶液0.0、1.0、1.5、2.0、2.5、3.0、3.5 mL于10 mL容量瓶中,加蒸馏水定容,摇匀备用.

(4) 2%的可溶性淀粉溶液(文中百分数不加特殊说明,均指质量百分数):称取淀粉20 g在蒸馏水中加热溶解,然后定容至1 000 mL.

(5) 0.05 mol/L的乙酸-乙酸钠缓冲溶液(pH4.6):称取质量为6.7 g的乙酸钠,吸取2.6 mL冰乙酸,用水溶解并定容至1 000 mL,再使用pH计校正至pH=4.6即可.

(6) 包埋糖化酶的纤维素-海藻酸钙凝胶^[17-20]:测定经过杀菌的纤维素和海藻酸钠混合液黏度后,加入2.0 mL糖化酶原液搅拌均匀,取注射器将混合溶液滴加至氯化钙溶液中,反应2 h.滤出纤维素-海藻酸钙凝胶颗粒后用水洗几次,再次移到氯化钙溶液中,在4℃冰箱中平衡12 h.取出后用蒸馏水洗涤多次,放入冰箱中过夜.

1.5 糖化酶活力的测定

(1) 原酶液活力测定:在50 mL锥形瓶中分别加入25.0 mL当天配置的可溶性淀粉溶液和5.0 mL乙酸-乙酸钠缓冲溶液,先放入40℃的恒温槽预热5 min,后加入2.0 mL稀释500倍的酶液,准确反应1 h.反应结束后,加入0.2 mL 20% NaOH溶液终止反应,冷却至室温.将待测溶液稀释5倍后测定吸光度及葡萄糖含量.

(2) 固定化糖化酶活力测定:测定方法同(1),其中加入的待测固定化糖化酶量为2 g,反应结束后,及时分离固定化酶颗粒与反应液,冷却至室温.

糖化酶活力(U/mL)计算:

原糖化酶液活力 $=y \times 5 \times (32.2/2) \times 500$, (1)
式中: y 为根据吸光度由回归方程计算的含糖量,mg/mL;5为待测液的稀释倍数;32.2为反应体系的总体积,mL;2为加入了2 mL的酶液参加反应,mL;500为待测酶液的总稀释倍数.

固定化酶活力 $=y \times 5 \times (30.0/2) \times (m_{\text{总}}/m)$, (2)
式中:30.0为反应体系总体积,mL;2为包埋制固定化酶加入的酶液体积,mL; $m_{\text{总}}$ 为固定化酶颗粒总质量,g; m 为参与反应固定化酶颗粒质量,g.

1.6 对固定化酶活力影响的单因素试验研究

(1) 纤维素-海藻酸钠混合液质量浓度的影响

取氯化钙溶液的质量浓度为20.0 mg/mL,包埋酶量为2.0 mL,取最合适的纤维素-海藻酸钠用量比例,设定纤维素-海藻酸钠混合溶液质量浓度分别为20.0、25.0、30.0、35.0、40.0 mg/mL,制备固定化酶,考察其对酶活的影响.

(2) 氯化钙溶液质量浓度的影响

取包埋酶量为2.0 mL,按最佳纤维素-海藻酸钠用量比例,最适纤维素-海藻酸钠混合溶液质量浓度,设定氯化钙溶液质量浓度分别为20.0、30.0、40.0、50.0、60.0 mg/mL,制备固定化酶,考察其对酶活的影响.

(3) 纤维素、海藻酸钠质量比例的影响

取纤维素-海藻酸钠混合溶液和氯化钙溶液的质量浓度均为20.0 mg/mL,包埋酶量为2.0 mL,设定纤维素-海藻酸钠的质量比分别为3:1、2:1、1:1、1:2,按照上述方法制备固定化酶,测酶活,考察对酶活的影响.

1.7 响应面优化试验设计

本次试验采用Design-Expert V8.0.6.1软件和BBD试验设计方法处理数据.根据单因素试验结果,试验因素选择纤维素-海藻酸钠用量比(A)、纤维素-海藻酸钠混合溶液质量浓度(B,%),氯化钙溶液质量浓度(C,%),响应值用酶活力表示,设计三因素三水平的响应面优化试验,从而确定最优的固定化糖化酶条件.其中A取值为3、2、1,B取值为2.0、2.5、3.0,C取值为1.0、2.0、3.0.

2 结果与讨论

2.1 不同因素对固定化糖化酶活力的影响

2.1.1 纤维素-海藻酸钠混合溶液质量浓度对固定化糖化酶活力的影响

由图1纤维素-海藻酸钠混合溶液质量浓度对固定化糖化酶活力的影响可知,随着混合溶液质量浓度的增加,固定化酶活力呈现先增大后减小然后趋于平稳的趋势.质量浓度越大,形成的颗粒越大,而总的接触面变小;另外,混合溶液的质量浓度增大,海藻酸钠的含量也增加,使得颗粒结构紧凑,不利于活性位点的显现,造成酶活降低,但总的来说纤维素-海藻酸钠混合溶液质量浓度对固定化糖化酶整体活力的影响较小.

2.1.2 氯化钙溶液质量浓度对固定化糖化酶颗粒形状及活力的影响

试验中氯化钙溶液质量浓度越大,滴入的复合溶液进入氯化钙溶液内部的阻力就越大.在滴

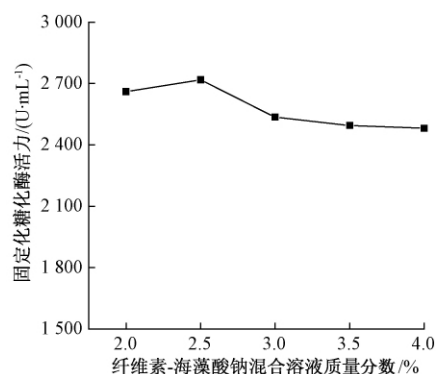


图1 纤维素-海藻酸钠混合溶液质量浓度对固定化糖化酶活力的影响

Fig.1 Effects of mass concentration of the mixed solution on enzyme activity of immobilized glucoamylase

加过程中,颗粒会漂浮在表面,形成障碍面,阻碍后续滴入溶液接触氯化钙。由于障碍面的存在,凝胶颗粒形状不均匀,或大或小,或不成球形,在不同浓度氯化钙溶液中固定化酶颗粒形状如图2所示。图3为对酶活力的影响。

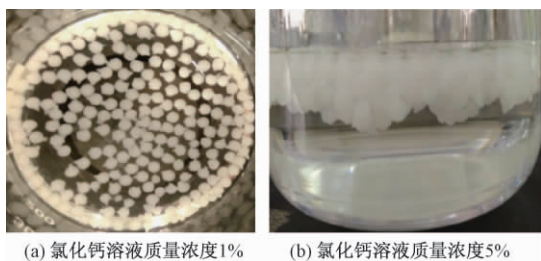


图2 在不同浓度氯化钙溶液中固定化酶颗粒形状

Fig.2 The shapes of immobilized glucoamylase in the different concentrations of calcium chloride solution

由图3可知,随着氯化钙溶液质量浓度的增大,固定化后酶活力先增大后减小。氯化钙溶液质量浓度为2%时固定化糖化酶活力最好。海藻酸钠的分子结构会受离子浓度的影响,离子浓度越

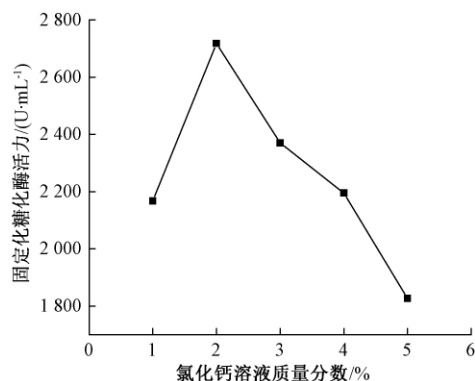


图3 氯化钙溶液质量浓度对固定化糖化酶活力的影响

Fig.3 Effects of mass concentration of calcium chloride solution on enzyme activity of immobilized glucoamylase

大,作用越大,在离子浓度过大时,酶活力受到影响而减小。

2.1.3 纤维素-海藻酸钠质量比对固定化糖化酶活力的影响

图4为纤维素-海藻酸钠质量比对固定化糖化酶活力的影响。一定范围内,随着纤维素用量的增加,固定化糖化酶活力逐渐升高,当纤维素-海藻酸钠质量比超过2:1时,固定化酶活力有所降低。海藻酸钠具有低浓度高黏度的性质,海藻酸钠比例高会影响所包埋酶活性位点的暴露,以致固定化后的糖化酶活力减少。而当海藻酸钠量太少时,则影响固定化酶的成球性能,难以得到相似的规则颗粒,且酶颗粒的硬度低、机械强度弱,颗粒形状小。

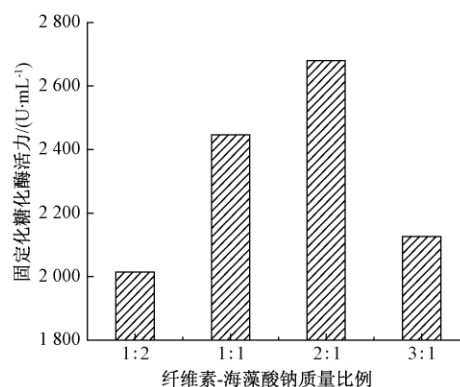


图4 纤维素-海藻酸钠质量比对固定化糖化酶活力的影响

Fig.4 Effects of mix proportion of cellulose and sodium alginate

2.2 固定化糖化酶制备条件优化

以固定化酶酶活为响应值,响应面的试验方案和结果如表1所示。

表1 响应面试验矩阵及结果

Tab.1 Results of response surface experiments

实验号	A	B	C	酶活力/(U·mL ⁻¹)
1	0	0	0	2 718
2	0	-1	-1	1 853
3	-1	-1	0	2 027
4	-1	0	-1	1 505
5	1	0	1	2 743
6	-1	0	1	1 779
7	-1	1	0	1 896
8	0	1	1	2 965
9	0	0	0	2 748
10	1	0	-1	1 879
11	0	1	-1	1 498
12	1	-1	0	2 446
13	1	1	0	2 656
14	0	-1	1	1 806
15	0	0	0	2 835

应用 Design Expert 8. 0. 6. 1 软件对所得试验数据进行了多元回归拟合,得到下面的回归方程:

酶活力 = 2 747. 51 + 317. 17A + 110. 38B + 322. 49C + 62. 78AB + 174. 74AC + 346. 00BC - 286. 44A² - 295. 30B² - 512. 18C².

表 2 为回归模型及方差分析结果. 由表 2 可知,模型的 *P* 值为 0. 027 0,失拟项的值是 0. 054 0,模型拟合效果显著,且失拟项不显著说明模型拟合度好^[21-22]. 从纤维素-海藻酸钠质量比例、纤维素-海藻酸钠混合溶液质量浓度、氯化钙溶液质量浓度的 *F* 值来看,影响酶活力值的强

度由大到小依次为: 氯化钙溶液质量浓度、纤维素-海藻酸钠质量比例、纤维素-海藻酸钠混合溶液质量浓度. 由响应面试验得到的模型复相关系数 *R*² 为 0. 920 6,校正后的复相关系数 *R*² 为 0. 777 6,表明模型的相关性较好; 变异系数表示的是试验数据的离散程度,变异系数的值越大表示试验的可信度越小,本试验的变异系数(*C. V. %*) 的值为 11. 77,由此说明试验操作是可靠的; 信噪比的值大于 4 则表示模型可用于预测,本试验的信噪比为 6. 643,大于 4,所以由软件得出的模型可用来预测^[23-25].

表 2 回归模型及方差分析结果
Tab. 2 Results of regression model and variance analysis

方差来源	平方和	自由度	均方	<i>F</i> 值	<i>P</i> 值
模型	3. 758e + 06	9	4. 176e + 05	6. 44	0. 027 0
A	8. 048e + 05	1	8. 048e + 05	12. 41	0. 016 9
B	9. 747e + 04	1	9. 747e + 04	1. 50	0. 274 8
C	8. 320e + 05	1	8. 320e + 05	12. 83	0. 015 9
AB	1. 577e + 04	1	1. 577e + 04	0. 24	0. 642 9
AC	1. 221e + 05	1	1. 221e + 05	1. 88	0. 228 4
BC	4. 789e + 05	1	4. 789e + 05	7. 38	0. 041 9
残差	3. 243e + 05	5	6. 486e + 04		
失拟项	3. 125e + 05	3	1. 042e + 05	17. 70	0. 054 0
纯误差	1. 177e + 04	2	5. 886e + 03		
总计	4. 083e + 06	14			

图 5 为各因素交互作用对固定化酶活力影响的响应曲面. 固定化糖化酶的最佳工艺条件是: 纤维素-海藻酸钠用量比例为 1. 5: 1,纤维素-海藻酸钠混合溶液质量浓度为 2. 80%,氯化钙溶液质量浓度为 2. 77%.

2. 3 优化工艺验证试验

模型预测最优条件下理论酶活力为 2 984 U/mL. 在由软件优化得出的最优条件下制备固定化糖化

酶,进行了三组平行验证性试验,测得的平均酶活力为 2 880 U/mL,与模型预测理论值相近,可以看出模型是可靠的.

2. 4 不同吸附情况对比

吸附试验步骤: 取一定量经晾干 7 h 后的固定化糖化酶小球于 5. 0 mL 原酶液中进行吸附试验,吸附时间为 1 h; 分离吸附后的固定化酶颗粒与酶液,自然晾干吸附后固定化酶颗粒 2 h,称其

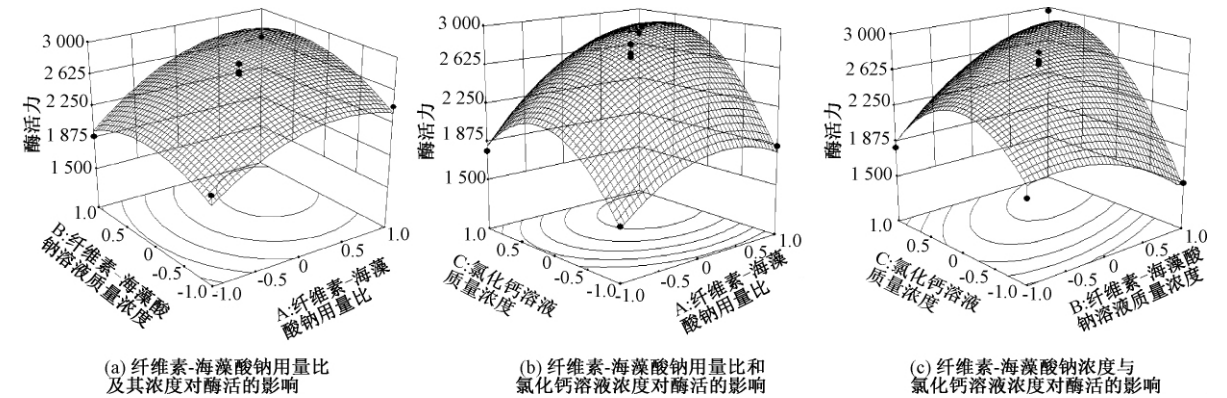


图 5 各因素交互作用对固定化酶活力影响的响应曲面

Fig. 5 The interactive influences of the parameters on enzyme activity of immobilized glucoamylase

质量。

分别取在最优方案下制备的固定化糖化酶颗粒 2 g, 吸附试验最优条件下制备的固定化糖化酶 0.999 8 g, 做重复使用试验, 用于可溶性淀粉溶液的分解, 每次反应 1 h, 多次进行反应。后用分光光度计测反应液的吸光度, 计算其含糖量, 考察固定化糖化酶分解淀粉的能力。固定化糖化酶的重复使用性试验结果如图 6 所示。

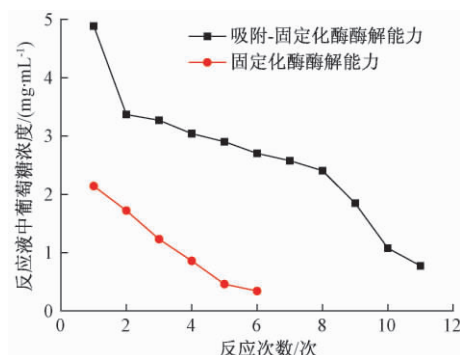


图 6 固定化糖化酶重复性试验结果

Fig. 6 Reusability of immobilized glucoamylase

由图 6 可知, 未吸附的固定化酶重复使用性较差, 吸附后的固定化酶重复使用性较好。随着反应次数的增加, 未吸附的淀粉量减少, 反应液含糖量也减少。随着反应次数的增加, 未吸附的固定化酶分解淀粉的能力快速降低, 使用 3 次后固定化酶分解淀粉的能力仅为原来的 48%。吸附后的固定化糖化酶分解淀粉的能力降低得较缓慢, 有一段较平稳期, 如 2~8 次, 反应 8 次后固定化糖化酶分解淀粉的能力仍有原来的 50%。

3 结论

在单因素试验的基础上, 利用响应面试验优化了固定化糖化酶的工艺条件, 优化后的工艺条件为: 纤维素-海藻酸钠用量比例为 1.5:1, 纤维素-海藻酸钠混合溶液质量浓度为 2.80%, 氯化钙溶液质量浓度为 2.77%。验证试验所得酶活力为 2 880 U/mL, 与理论值 2 984 U/mL 较接近, 表明该模型可用于试验的设计和预测。

本研究还对固定化酶进行了吸附酶液试验, 实验表明仅用包埋法制备的固定化糖化酶重复使用性较差, 包埋并且吸附酶液的固定化糖化酶重复使用性较好。

参考文献:

- [1] TALEKAR S, DESAI S, PILLAI M, et al. Carrier free co-immobilization of glucoamylase and pullulanase as combi-cross linked enzyme aggregates (combi-CLEAs) [J]. Rsc advances, 2013, 3(7): 2265–2271.
- [2] BALDIKOVA E, POSPISKOVA K, LADAKIS D, et al. Magnetically modified bacterial cellulose: a promising carrier for immobilization of affinity ligands, enzymes, and cells [J]. Materials science & engineering C, 2017, 127(11): 214–221.
- [3] AMIRBANDEH M, TAHERIKAFRANI A, SOOZANIP-OUR A, et al. Triazine-functionalized chitosan encapsulated super-paramagnetic nanoparticles as reusable and robust nanocarrier for glucoamylase immobilization [J]. Biochemical engineering journal, 2017, 127(1): 119–127.
- [4] BRYJAK J, LIESIENE J, STEFUCA V. Man-tailored cellulose-based carriers for invertase immobilization [J]. Cellulose, 2008, 15(4): 631–640.
- [5] HAMERSKA-DUDRA A, BRYJAK J, TROCHIMCZUK A W. Immobilization of glucoamylase and trypsin on crosslinked thermosensitive carriers [J]. Enzyme & microbial technology, 2007, 41(3): 197–204.
- [6] ZHANG J, ZHANG F, YANG H, et al. Graphene oxide as a matrix for enzyme immobilization. [J]. Langmuir the ACS journal of surfaces & colloids, 2010, 26(9): 6083–6085.
- [7] 李小东. 交联淀粉酶聚集体的制备及其在淀粉酒精发酵中的应用研究 [D]. 昆明: 云南大学生物资源保护与利用重点实验室, 2012.
- [8] 侯红萍, 张萍, 王如福. 生物素-亲和素系统定向固定糖化酶的研究 [J]. 中国食品学报, 2014, 14(3): 106–114.
- [9] 王家东, 张茜, 侯红萍. 介孔分子筛 MCM-41 固定糖化酶的研究 [J]. 中国酿造, 2013, 32(1): 116–119.
- [10] 韩秀丽, 赵浩浩, 鲁峰, 等. 有机酸对纤维素酶解和纤维乙醇发酵的影响 [J]. 郑州大学学报(工学版), 2015, 36(6): 5–9.
- [11] 谈昭君. 磁性载体的制备及其固定化纤维素酶的研究 [D]. 兰州: 兰州理工大学石油化工学院, 2015.
- [12] LEE D D, LEE Y Y, REILLY P J, et al. Pilot plant production of glucose with glucoamylase immobilized to porous silica. [J]. Biotechnology & bioengineering, 1976, 18(2): 253–267.
- [13] 左文刚, 黄兵, 侯红萍, 等. 铜金属螯合载体固定糖化酶 [J]. 微生物学通报, 2013, 40(3): 400–406.
- [14] AMIRBANDEH M, TAHERIKAFRANI A. Immobilization of glucoamylase on triazine-functionalized Fe₃O₄/

- graphene oxide nanocomposite: Improved stability and reusability. [J]. International journal of biological macromolecules, 2016, 93(Pt A): 1183 – 1191.
- [15] 齐香君, 苟金霞, 韩戊珺, 等. 3,5-二硝基水杨酸比色法测定溶液中还原糖的研究[J]. 纤维素科学与技术, 2004, 12(3): 17 – 19.
- [16] 舒馨, 刘雄民, 梁秋霞. 3,5-二硝基水杨酸吸光度法测定八角残渣中总糖、还原糖含量[J]. 食品工业科技, 2010, 31(6): 341 – 343.
- [17] 王冕, 王如福, 焦玉双. 海藻酸钠-阿拉伯胶固定化糖化酶及其性质的研究[J]. 中国酿造, 2015, 34(3): 24 – 29.
- [18] 董昭, 周志明. 海藻酸铝固定化糖化酶特性研究[J]. 应用化工, 2010, 39(6): 886 – 888.
- [19] 夏烈文, 李晓燕, 王应红, 等. 凝胶组成和结构对淀粉糖化酶固定化效果的影响[J]. 内蒙古师范大学学报(自然科学汉文版), 2013, 42(1): 59 – 63.
- [20] 张浩, 杜立红, 侯红萍. 树脂-海藻酸钠混合凝胶共固定化糖化酶和酵母菌的研究[J]. 山西农业大学学报(自然科学版), 2014, 34(1): 88 – 92.
- [21] SHOJAEIMEHR T, RAHIMPOUR F, KHADIVI M A, et al. A modeling study by response surface methodology (RSM) and artificial neural network (ANN) on Cu^{2+} , adsorption optimization using light expended clay aggregate (LECA) [J]. Journal of industrial & engineering chemistry, 2014, 20(3): 870 – 880.
- [22] 武秋颖, 陈复生, 时冬梅, 等. 响应面优化超声辅助碱法提取花生壳木聚糖的工艺研究[J]. 食品工业科技, 2012, 33(2): 307 – 310.
- [23] 孙旸, 努尔, 林晓琼, 等. 纤维素酶处理玉米秸秆工艺条件的优化[J]. 吉林农业大学学报, 2017, 39(5): 544 – 550.
- [24] 侯学敏, 李林霞, 张直峰, 等. 响应面法优化薄荷叶总黄酮提取工艺及抗氧化活性[J]. 食品科学, 2013, 34(6): 124 – 128.
- [25] 刘新, 李新生, 吴三桥, 等. 响应面法优化橘汁糯米粉糖化醪液制备工艺[J]. 食品科学, 2012, 33(2): 84 – 88.

Optimization for Cellulose Carrier Immobilized Glucoamylase by Response Surface Methodology

CHEN Junying^{1,2}, ZHOU Hangyu¹, TANG Huanyan¹, BAI Jing^{1,2}, ZHAO Fuqiang¹, LI Qingliang¹

(1. School of Chemical Engineering and Energy, Zhengzhou University, Zhengzhou 450001, China; 2. Henan Outstanding Foreign Scientists' Workroom, Zhengzhou 450001, China)

Abstract: Cellulose, had loose pore and long chain structure favorable for the permeation and adsorption of macromolecules. When the calcium chloride solution was added to the mixed solution of cellulose and sodium alginate, cellulose and alginate would be cross-linked with calcium ions to form gel. So glucoamylase could be immobilized by the carrier materials mixed with cellulose and sodium alginate. Some factors which could affect the immobilized enzyme activity were examined, such as mixture of cellulose and sodium alginate, mass concentration of the mixed solution of cellulose and sodium alginate, and mass concentration of calcium chloride solution. The response surface methodology was carried out on the basis of single factor test, and the optimal condition for preparing immobilized glucoamylase was obtained. The ratio of cellulose and sodium alginate was 1.5:1, the mass concentration of the mixed solution of cellulose and sodium alginate was 2.80%; and the mass concentration of calcium chloride solution was 2.77%. The result under optimal condition of response surface methodology was tested successfully. In addition, the reusability test was conducted, and results showed that the immobilized glucoamylase which adsorbed to the enzyme solution was better than unadsorbed immobilized glucoamylase in terms of reusability.

Key words: cellulose; sodium alginate; immobilization; glucoamylase; response surface methodology

文章编号: 1671-6833(2019)02-0072-05

石墨烯/TPU/PDMS 导电复合材料的拉伸敏感性能研究

代坤^{1,2}, 孔威威¹, 展鹏飞¹, 宗继友¹, 翟威², 刘春太^{1,2}

(1. 郑州大学 材料科学与工程学院, 河南 郑州 450001; 2. 郑州大学 橡塑模具国家工程研究中心, 河南 郑州 450001)

摘要: 通过静电纺丝和喷涂工艺制备了含导电纤维网络的石墨烯(G)/热塑性聚氨酯(TPU)/聚二甲基硅氧烷(PDMS)导电复合材料, 并对其拉伸敏感性能进行了研究. 在拉伸应力场中, 该导电复合材料断裂伸长率大(165%). 随拉伸应变增加, 复合材料拉敏响应度先缓慢上升, 当应变大于50%时, 发生突变, 整体表现出正的应变电阻响应行为. 基于PDMS的封装作用, 材料在循环应力场中表现出较弱的滞后效应和稳定的电阻响应行为. 在电阻响应循环曲线中, 复合材料在不同的应变幅度下均表现出良好的响应稳定性, 在柔性可穿戴电子设备领域具有良好的应用前景.

关键词: 聚二甲基硅氧烷; 导电网络; 导电高分子复合材料; 封装; 拉伸敏感性能; 滞后效应

中图分类号: TQ320.6

文献标志码: A

doi: 10.13705/j.issn.1671-6833.2019.02.012

0 引言

导电高分子复合材料(CPCs)是由高分子基体和导电填料[石墨烯(G)、碳纳米管、金属粉末等]复合制备而成的一类功能型高分子复合材料, 在电子电工、运动器材、航空航天、环境监测等领域具有广泛的应用前景^[1-3].

CPCs在应力场刺激下(拉伸、压缩、弯曲和扭转等)表现出明显的电阻-应变响应行为, 这是由于CPCs内部导电网络发生变化引起的. 一般而言, 在应力场刺激下, CPCs的内部导电网络同时存在着破坏与重建两种机制. 当导电网络的破坏占主导地位时, 体系电阻增大; 当导电网络重建占主导地位时, 体系电阻减小^[4]. 这两种机制为CPCs作为柔性应变传感器的应用提供了理论基础, 相关的研究受到了学术界和产业界的广泛关注.

然而, 传统CPCs的拉伸敏感性能在稳定性和可重复性等方面仍存在不足, 表现出严重的滞后效应, 甚至伴有明显的“肩峰”现象, 这限制了其应用. 因此, 本文采用静电纺丝和喷涂工艺制备出G/热塑性聚氨酯(TPU)导电纤维膜, 然后利用聚二甲基硅氧烷(PDMS)进行封装处理, 制备

出具有“三明治”结构的G/TPU/PDMS导电复合材料, 并对其应力-应变行为和应变-电阻行为进行了研究.

1 实验部分

1.1 实验原料及化学试剂

热塑性聚氨酯(TPU), 聚酯型, 型号1185A, 德国巴斯夫股份公司; 石墨烯油墨, 苏州恒球石墨烯科技有限公司; 聚二甲基硅氧烷(PDMS), 型号Sylgard 184, 美国道康宁(Dow Corning)公司; 双组分液体硅橡胶, A组分(预聚体, 1 kg)和B组分(固化剂, 100 g); 四氢呋喃(THF), 分析纯, 天津市富宇精细化工有限公司; N,N-二甲基甲酰胺(DMF), 分析纯, 天津市富宇精细化工有限公司; 乙醇, 分析纯, 天津市富宇精细化工有限责任公司; 去离子水, 明澈-D24UV, 上海默克密理博有限公司.

1.2 实验设备及仪器

DF-401S型恒温加热磁力搅拌器(河南省予华仪器有限公司); UTM2203型电子万能试验机(深圳三思纵横科技股份有限公司); FECS-4800型扫描电子显微镜(日本日立高新技术公司); JEM-2100F型透射电子显微镜(日本电子株式会

收稿日期: 2018-06-02; 修订日期: 2018-08-11

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(51773183、51603193)

作者简介: 代坤(1982—), 男, 河南永城人, 郑州大学副教授, 博士, 主要从事导电高分子复合材料形态结构调控及性能、聚合物成型加工-形态结构-性能关系的研究, E-mail: kundai@zzu.edu.cn.

社公司); HD-130 型气动喷笔(锐壹科技有限公司); Model KH-2 型静电纺丝机(济南良睿科技有限公司); FA1004B 型电子分析天平(上海越平教学仪器公司); ZKXF 型电热真空干燥箱(上海树立仪器仪表有限责任公司); DMM4050 型数字万用表(美国泰克公司)。

1.3 G/TPU/PDMS 导电复合材料的制备

首先将未经稀释的石墨烯油墨(rGO ink)放置于超声清洗机中超声 50 min,使其达到均匀分散的状态.利用喷涂的方法将石墨烯油墨喷涂在静电纺丝膜上^[5-6](纺丝电压为 25 kV,针头与接收辊距离为 20 cm,滚筒转速为 600 r/min),得到 G/TPU 导电纤维膜.然后,将 PDMS 预聚体和固化剂利用搅拌器搅拌均匀,放入 80 °C 烘箱中保温 10 min,使其达到半固化的状态.再将导电纤维膜覆盖在半固化的 PDMS 上,同时在膜的两端涂上导电银胶,连接铜胶带作为电极.最后在上边旋涂上一层 PDMS,并将其置于 80 °C 的烘箱中进行固化处理,得到 G/TPU/PDMS 导电复合材料。

1.4 G/TPU/PDMS 导电复合材料的表征与测试

透射电镜观察(TEM):在透射电子显微镜下观察实验所用的石墨烯油墨的表面微观结构。

扫描电镜观察(SEM):将 G/TPU 导电纤维膜、G/TPU/PDMS 导电复合材料放置于液氮中淬断,并分别对其表面和断面进行喷金处理,在扫描电子显微镜下观察它们的表面和断面形貌。

拉伸敏感性能测试:采用实验室自行组装的电阻-力-时间综合分析系统对该导电复合材料进行拉伸敏感性能测试.该装置主要由 DMM4050 型数字万用表、SUNS-UTM2203 型单轴拉伸测试仪、电脑等组成.如图 1 所示.在测试过程中,将试样两端的电极固定在单轴拉伸测试仪(最大拉伸载荷为 100 N)的两个绝缘夹板上,铜带电极之间的距离为 20 mm,拉伸速率为 10 mm/min.单轴拉伸测试仪开始工作后,试样的电阻(R)、应力(σ)和应变(ε)数据可通过台式万用表 DMM4050 和电脑采集。

2 结果与讨论

2.1 G/TPU/PDMS 导电复合材料的微观形态

图 2(a) 为石墨烯油墨的 TEM 照片.从图中可以看出石墨烯具有二维片状结构,比表面积大,表面有褶皱结构,这些特征对导电复合材料在应

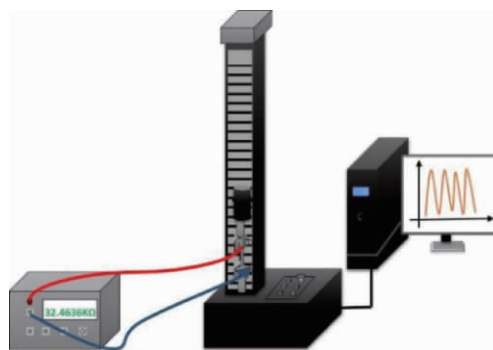


图 1 电阻-力-时间综合分析系统示意图

Fig. 1 Schematic diagram of resistance-stress-time comprehensive analysis system

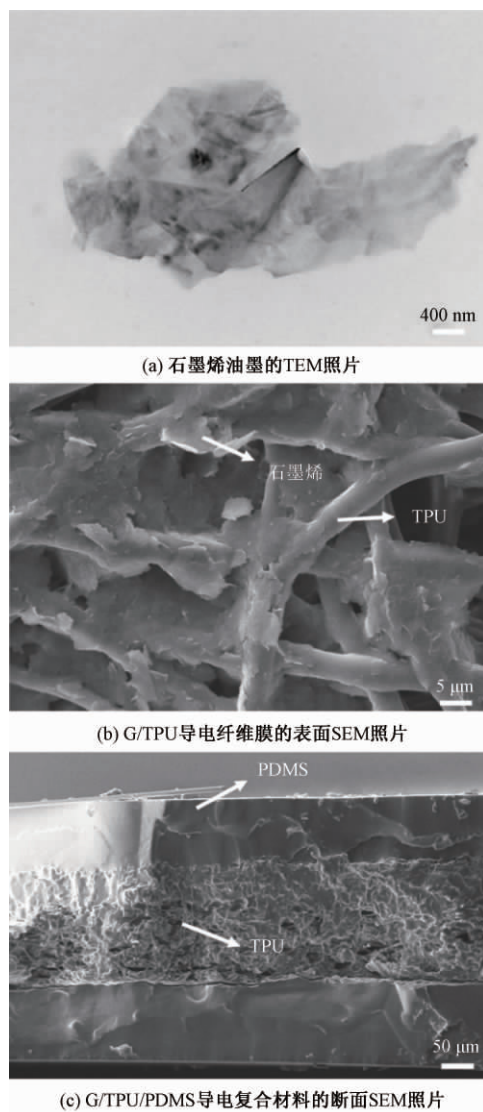


图 2 G/TPU/PDMS 导电复合材料的微观形貌

Fig. 2 Morphology of G/TPU/PDMS CPCs

力场中的电阻响应是有利的^[7-8].图 2(b) 为 G/TPU导电纤维膜的表面 SEM 照片.石墨烯呈鳞片状,均匀地覆盖在相互交错的 TPU 纤维表面,相互搭接构成良好的导电网络.图 2(c) 为

G/TPU/PDMS 导电复合材料的断面 SEM 照片. 从中可以清楚地观察到 G/TPU/PDMS 导电复合材料呈“三明治”结构, 即 PDMS 包裹在石墨烯和 TPU 形成的导电纤维膜表面. 少量的 PDMS 已经进入 TPU 纤维的缝隙中, 这是因为 PDMS 具有较低的黏度和表面张力^[9]. 这样有助于石墨烯在 TPU 纤维上固定, 防止石墨烯片在拉伸过程中发生滑移甚至脱落.

2.2 G/TPU/PDMS 导电复合材料在单轴拉伸过程中的力学性能和电学性能研究

图 3 为 G/TPU/PDMS 导电复合材料的应力和响应度($\Delta R/R_0$, 其中 $\Delta R = R - R_0$, ΔR 为试样在拉伸过程中电阻的变化值, R_0 为试样的初始电阻值) 随应变变化的曲线. 从图 3 可以看出, 随着应变的增加, 复合材料响应度的变化分为两个阶段. 在初始阶段, 响应度随应变增长缓慢; 当应变大于 50% 时, 响应度随应变急剧上升. 这是因为 G/TPU/PDMS 导电复合材料在拉伸过程中, 内部导电层存在两种机制: ①分布在 TPU 纤维上的石墨烯网络会沿拉伸方向发生断裂; ②TPU 纤维沿拉伸方向排列, 使得相邻 TPU 纤维表面包覆的石墨烯片间的距离减小^[10]. 小应变下, 两种机制激烈竞争, 复合材料的电阻随应变缓慢增长. 当应变继续增大时($>50\%$), 机制①逐渐成为主导, 电阻急剧增大. 大的拉伸应变也会导致部分 TPU 纤维断裂, 进一步加剧了复合材料中石墨烯导电网络的破坏. 除此之外, G/TPU/PDMS 导电复合材料的断裂伸长率可达 165%, 表现出优异的可拉伸性能, 这为其作为柔性应变传感器奠定了基础. G/TPU/PDMS 导电复合材料的应力-应变曲线中出现了两个明显的应力断裂峰. 这主要和 TPU 纺丝膜和 PDMS

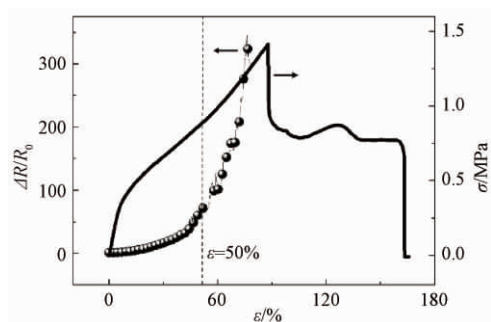


图 3 G/TPU/PDMS 导电复合材料响应度和应力随应变变化曲线

Fig. 3 The sensitivity-stress and strain-stress curves of G/TPU/PDMS CPCs

膜之间形态结构和力学性能的差异有关. 由于 TPU 纺丝膜特殊的纤维网络结构, 在拉伸过程中, PDMS 膜会先于 TPU 纺丝膜断裂(对应第一个应力断裂峰); 随着拉伸应变继续增大, TPU 纺丝膜的纤维网络结构被逐渐破坏, 直至完全断裂(对应平台和第二个应力断裂峰).

Kim 等^[11]研究证明, 通过调节 PDMS 与固化剂的比例, 改变上下封装层的弹性模量, 可以有效改善这种导电复合材料的延展性, 这对提高该导电复合材料的可拉伸性能具有重要意义.

2.3 G/TPU/PDMS 导电复合材料在循环拉伸应力场下的力学性能研究

图 4 为 G/TPU/PDMS 导电复合材料在 10%、20%、30%、40% 应变下循环 50 次的应力-应变曲线. 从图 4 可以看出, 在每个循环中, G/TPU/PDMS 导电复合材料都展现出较弱的滞后效应, 应力恢复到 0 时应变还不能恢复到 0, 施加应变越大, 材料产生的残余应变越大. 这是因为高分子材料具有黏弹性, 高分子链段间具有内摩擦力. 在循环拉伸过程中, TPU 分子链段发生重排, 外力所做的功一部分会用于克服链段间内摩擦阻力转化为热, 使应变跟不上应力的变化, 产生残余应变. 同时, 固化后的 PDMS 具有高的拉伸强度, 这使得复合材料的滞后效应相应减弱^[12]. 且经历多次的循环拉伸后该导电复合材料的力学性能未发生较大的改变.

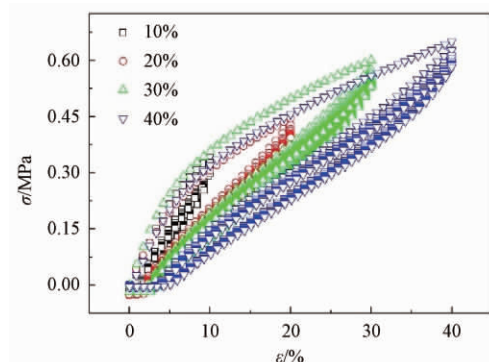


图 4 G/TPU/PDMS 导电复合材料在不同应变下循环 50 次的应力-应变曲线

Fig. 4 The stress-strain curves of the G/TPU/PDMS CPCs circularly stretched for 50 times under different strains

2.4 G/TPU/PDMS 导电复合材料在循环拉伸应力场下的应变敏感性能研究

图 5 为 G/TPU/PDMS 导电复合材料在应变分别为 5%、10%、20%、40% 时的循环电阻-应变响应行为. 笔者选取 1-10 和 41-50 循环对其循环

电阻-应变响应行为进行分析. 由图 5 可得, 当定应变为 5% 时, 该导电复合材料的响应度为 0.91; 当定应变增加到 10%、20%、40% 时, 响应度依次增加到 3.69、7.24、44.25. 即响应度随拉伸应变的增加而增加, 这与前面单轴拉伸结果一致. 在循环拉伸过程中, 响应度峰值和响应度谷值基本保持恒定, 与之前文献中所报道的 G/TPU 导电复合

材料相比, 电阻响应峰初始上升的现象明显减弱^[13], 这表明 G/TPU/PDMS 导电复合材料具有良好的稳定性和可重复性. 同时, 在应变回复过程中, 电阻响应循环曲线中未出现“肩峰”. 肩峰的形成往往与导电网络破坏和重建的竞争有关^[14], 我们认为这种现象与 TPU 和 PDMS 的黏弹性及二者的差异性有关.

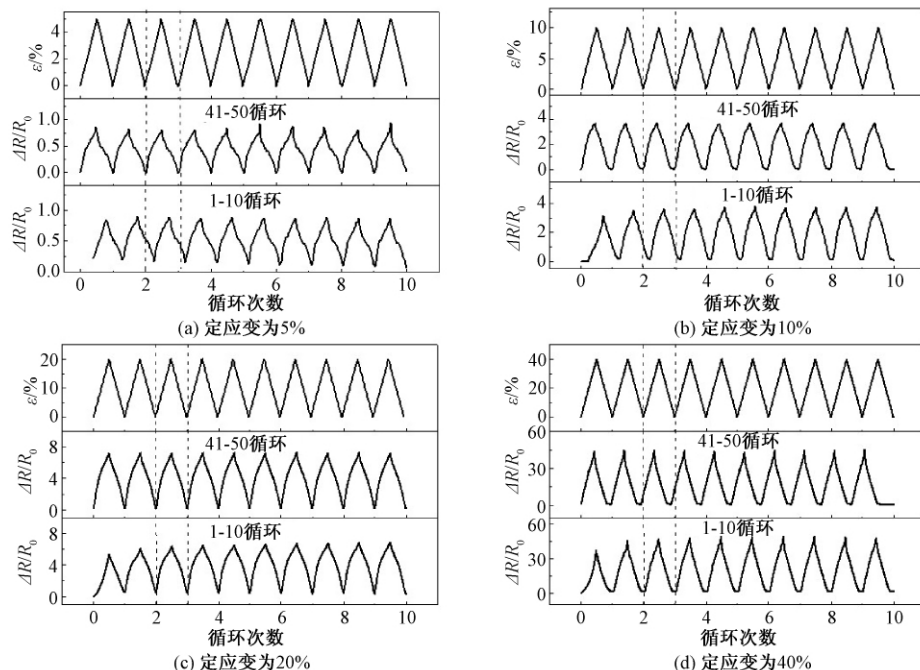


图 5 G/TPU/PDMS 导电复合材料在不同应变下循环应变电阻响应行为

Fig. 5 The cyclic strain sensing behaviors of G/TPU/PDMS CPCs under different strains

3 结论

通过静电纺丝和喷涂工艺制备了具有“三明治”结构的 G/TPU/PDMS 导电复合材料, 系统地研究了该材料在不同应变和不同应力场下的力学性能和电学性能. 研究表明, G/TPU/PDMS 导电复合材料具有完善的石墨烯导电网络和稳定的“三明治”结构; 在拉伸应力场中, 该复合材料具有高的断裂伸长率 (165%); 随着拉伸应变的增加, 复合材料的响应度先缓慢上升, 当到达 50% 应变时响应度快速上升, 整体为正的应变电阻响应行为; 在循环拉伸过程中, 该导电复合材料具有较好的可重复性和较弱的滞后效应, 且电阻响应循环曲线中响应度峰值和谷值稳定, 未出现“肩峰”现象, 表明该导电复合材料具有较好的稳定性, 能够有效地将拉伸应变信号转化为稳定的电信号, 在柔性可穿戴电子设备领域有巨大的应用潜力.

参考文献:

[1] MA R, LEE J, CHOI D, et al. Knitted fabrics made

from highly conductive stretchable fibers [J]. Nano letters, 2014, 14(4): 1944–1951.

[2] CHENG Y, WANG R, SUN J, et al. Highly conductive and ultra-stretchable electric circuits from covered yarns and silver nanowires [J]. ACS Nano, 2015, 9(4): 3887–3895.

[3] ZHANG B C, WANG H, ZHAO Y, et al. Large-scale assembly of highly sensitive Si-based flexible strain sensors for human motion monitoring [J]. Nanoscale, 2016, 8(4): 2123–2128.

[4] 赵俊慧, 代坤, 郑国强, 等. CPCs 在应力场下的性能演变及机理研究进展 [J]. 合成树脂及塑料, 2012(3): 80–84.

[5] LI D, XIA Y. Electrospinning of nanofibers: reinventing the wheel [J]. Advanced materials, 2004, 16(14): 1151–1170.

[6] 冯秋霞, 于鹏, 王兢, 等. 静电纺丝法制备钇掺杂的 ZnO 及其对丙酮的气敏特性研究 [J]. 郑州大学学报(工学版), 2016, 37(2): 54–57.

[7] MEYER J C, GEIM A K, KATSNELSON M I, et al. The structure of suspended graphene sheets [J]. Nature, 2007, 446(7131): 60–63.

[8] 叶宗标, 郑伟健, 太惠玲, 等. 石墨烯-氧化钛复

- 合氨敏感材料的制备与特性研究[J]. 郑州大学学报(工学版), 2016, 37(4): 49–52.
- [9] LAMNAWAR K, BOUSMINA M, MAAZOUZ A. 2D encapsulation in multiphase polymers: role of viscoelastic, geometrical and interfacial properties [J]. *Macromolecules*, 2011, 45(1): 441–454.
- [10] DU D, LI P, OUYANG J. Graphene coated nonwoven fabrics as wearable sensors [J]. *Journal of materials chemistry C*, 2016, 4(15): 3224–3230.
- [11] KIM D H, LIU Z, KIM Y S, et al. Optimized structural designs for stretchable silicon integrated circuits [J]. *Small*, 2009, 5(24): 2841–2847.
- [12] YILGOR I, EYNUR T, BILGIN S, et al. Influence of soft segment molecular weight on the mechanical hysteresis and set behavior of silicone-urea copolymers with low hard segment contents [J]. *Polymer*, 2011, 52(2): 266–274.
- [13] GUO Z, LIU H, LI Y, et al. Electrically conductive thermoplastic elastomer nanocomposites at ultralow graphene loading levels for strain sensor applications [J]. *Journal of materials chemistry C*, 2016, 4(1): 157–166.
- [14] ZHANG R, DENG H, VALENCA R, et al. Strain sensing behaviour of elastomeric composite films containing carbon nanotubes under cyclic loading [J]. *Composites science & technology*, 2013, 74(4): 1–5.

A Study on Tensile Sensitive Behaviors of Graphene/Thermoplastic Polyurethane/ Polydimethylsiloxane Conductive Polymer Composites

DAI Kun^{1,2}, KONG Weiwei¹, ZHAN Pengfei¹, ZONG Jiyou¹, ZHAI Wei², LIU Chuntai^{1,2}

(1. School of Material Science and Engineering, Zhengzhou University, Zhengzhou 450001, China; 2. National Engineering Research Center for Advanced Polymer Processing Technology, Zhengzhou University, Zhengzhou 450001, China)

Abstract: The graphene (G) /thermoplastic polyurethane (TPU) /polydimethylsiloxane (PDMS) conductive polymer composites (CPCs) containing conductive fibrous networks were prepared by electrospinning-spraying technology, their strain sensing behaviors were studied in detail. The CPCs have a large elongation at break (165%). With the increasing of the strain, the sensitivity increases gently at first, and when the applied strain is beyond 50%, the sensitivity increases sharply, showing a positive response between strain and the sensitivity. Meanwhile, the CPCs exhibit weak hysteresis effect and stable resistance-strain sensing response behavior during the cyclic stretching, and these sensing properties are attributed to the encapsulation of PDMS. For the cyclic resistance-strain sensing curves, the CPCs show good response stability towards different strain amplitudes. The G/TPU/PDMS CPCs reported in this paper have brilliant application prospects in the field of flexible wearable electronics.

Key words: polydimethylsiloxane; conductive network; conductive polymer composites; encapsulation; strain sensing behaviors; hysteresis effect

文章编号: 1671-6833(2019)02-0077-05

PAN基弱碱性离子交换纤维对钒的吸附性能研究

马楠楠, 耿红涛, 段建榜, 冯修, 张翔

(郑州大学 化工与能源学院, 河南 郑州 450001)

摘要: 以一种 PAN 基弱碱性离子交换纤维为材料, 研究了其对钒的吸附性能. 静态吸附条件下, 对比了两种功能基纤维(氢氧型、氯型)对钒吸附和再生性能的影响; 探讨了 pH、温度、吸附时间、钒溶液浓度对氯型纤维吸附性能的影响; 考察了氢氧化钠解吸纤维的最佳浓度. 动态吸附条件下, 研究了温度、流速对纤维吸附钒的影响. 实验结果表明: 氯型纤维比多胺型纤维更稳定; 氯型纤维在 pH 值为 6~8 时吸附性能最好, 温度越高吸附量越大, 反应 6 h 时吸附达到一种动态平衡, 饱和离子吸附量为 294 mg/g, 钒的去除率达到 98% 以上. 用 0.5 mol/L 的氢氧化钠进行解吸, 解吸率 98.02% 以上.

关键词: PAN 基; 弱碱性离子交换纤维; 钒; 吸附性能

中图分类号: TQ342.84

文献标志码: A

doi: 10.13705/j.issn.1671-6833.2019.02.004

0 前言

钒是一种稀有金属, 被广泛应用于钢铁、航空、火箭、化工、生物制药等领域^[1]. 含钒废水不仅破坏生态环境, 也危害人类健康. 当人体内钒含量超过规定指标时, 将会引起肾脏等器官衰竭, 对神经、呼吸以及免疫系统都有损害^[2]. 因此, 针对含钒溶液, 建立简便、稳定、高效的去除钒的方法尤为重要.

目前, 处理重金属的方法大致分为 4 类: 生物法、化学法、物理法和物理化学法^[3]. 生物法实际应用难度大, 化学法、物理法应用最为广泛. 李先荣等^[4]利用羟氧化铬去除铬酸钠溶液中的钒, 除钒后溶液中钒杂质的质量浓度能降低到工业生产的允许量, 但是羟氧化铬粒度较小(1~10 μm)、过滤性能较差. 林海等^[5]研究了水生植物黑藻和狐尾藻对水体中重金属的削减效果, 结果表明黑藻和狐尾藻对 Pb^{2+} 、 Cd^{2+} 、 Cr^{6+} 的削减效果都很好, 但是对 V^{5+} 的削减率不高. 关洪亮等^[6]利用铵离子和六聚钒酸盐生成六聚钒酸铵沉淀机理, 采用氯化铵处理酸性含钒废水, 钒去除率可达 96% 以上, 该方法虽然操作简单, 但是不利于钒资源回收, 造成浪费.

物理化学法中的离子交换法由于在净化废

水的同时还能实现重金属的资源化回收^[7], 而且离子交换纤维具有吸附-解脱速度快、渗透压稳定性高等优势^[8], 因此, 近年来在重金属废水治理方面得到了很好的应用^[9]. 余训民等^[10]以棉纤维为原料, 采用二乙烯三胺进行接枝共聚, 制备了一种新型离子交换纤维, 该纤维对电镀废水中铜及镍有较好的吸附效果, 饱和吸附量分别达到 337.3 mg/g 和 396.9 mg/g. 崔兰等^[11]研究了 PAN 基弱碱离子交换纤维在含铬废水资源化治理中的应用, 该纤维对 Cr(VI) 的饱和吸附容量高达 300 mg/g, 且经多次吸附、再生循环后, 纤维吸附容量基本不变, 具有很好的实际应用前景.

本实验所选用的新材料弱碱性离子交换纤维, 以腈纶(PAN, polyacrylonitrile)为基体, 在非溶剂体系下与三乙烯四胺直接反应制得^[12]. 该纤维制备简单、交换容量大, 而且由于外比表面积大、传质距离短, 所以在离子交换与吸附过程中具有突出的优势^[13]. 笔者研究了该材料对钒的吸附性能, 考察了功能基类型(氢氧型、氯型)、溶液 pH、温度、时间对吸附的影响, 并探讨了吸钒纤维所需的最佳氢氧化钠浓度. 为含钒废水资源化提供了系统的理论依据和工艺参数.

收稿日期: 2017-04-05; 修订日期: 2017-06-06

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(21506169)

通信作者: 张翔(1970—), 男, 河南夏邑人, 郑州大学副教授, 博士, 主要从事污水处理研究, E-mail: zhangxiang68@zzu.edu.cn.

1 实验部分

1.1 试剂与仪器

主要试剂: 实验室自制 PAN 基弱碱性阴离子交换纤维^[12]; 偏钒酸铵、浓盐酸、氢氧化钠均为分析纯。

主要仪器: DZF-0 型真空干燥仪(上海跃进医疗器械厂); UV-2450 紫外分光光度计(日本岛津); PHS-3C PH 计(杭州奥立龙); BS-1E 恒温震荡培养箱(常州国华仪器有限责任公司)。

1.2 静态吸附过程

准确称取一定量的离子交换纤维, 加入含一定浓度钒溶液的具塞锥形瓶中, 进行恒温振荡, 不同的时间段进行取样, 测定溶液中钒的浓度, 达到吸附平衡为止。按下面公式计算吸附量 Q ,

$$Q = \frac{(C_0 - C_t)V}{W}, \quad (1)$$

式中: Q 为吸附量, mg/g ; C_0 、 C_t 分别为吸附前、吸附后的钒浓度; W 为纤维的质量; V 为含钒溶液体积。

1.3 动态吸附过程

用一定量的纤维填充离子交换柱, 含钒溶液在一定流速下通过交换柱, 每隔一定的时间测定流出液的浓度, 吸附量 Q 的计算如下:

$$Q = \frac{(C_a - C_b)V}{W}, \quad (2)$$

式中: Q 为吸附量, mg/g ; C_a 、 C_b 分别为进水、出水的钒浓度; W 为纤维的质量; V 为含钒溶液的体积。

采用电感耦合等离子体发射光谱法(ICP-AES)测定溶液中钒离子的浓度, 该检测方法简便快捷, 具有较好的可靠性^[14]。

2 结果与讨论

2.1 静态吸附条件下功能基型式对纤维吸附钒的影响

图 1 为纤维型式对吸附钒的影响。用一定浓度的 HCl 溶液把氢氧型多胺纤维转化为氯型多胺纤维, 分别用两种不同功能基型式的纤维处理钒溶液, 测定其饱和吸附量, 然后用一定浓度的氢氧化钠溶液解吸, 重复吸附。从图 1 中可以看出, 氯型纤维的饱和吸附量明显大于氢氧型纤维。这是由于氯型纤维是强电解质, Cl^- 在溶液中更易发生离解, 与钒酸根进行高效率的离子交换。此外, 从图 1 中还可以看出, 氯型纤维经吸附解吸几

次后的饱和吸附量维持在 290 mg/g 左右, 而氢氧型纤维的饱和吸附量逐渐下降, 可见氯型纤维吸附更稳定, 本实验将选用氯型纤维进行吸附研究。

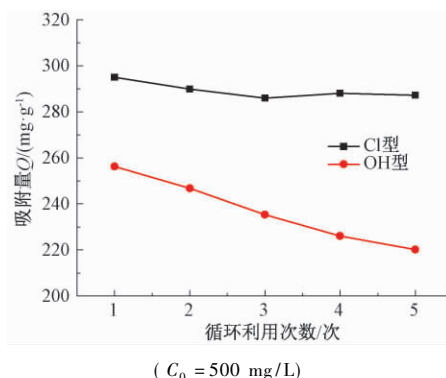
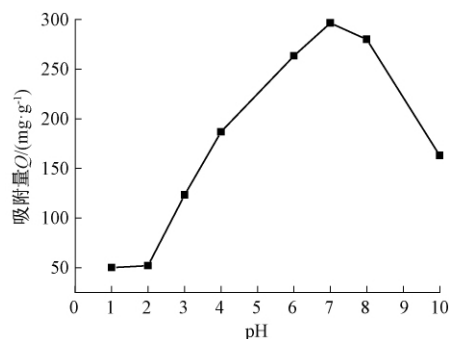


图 1 纤维型式对吸附钒的影响

Fig.1 The effect of fiber type on adsorption of Vanadium

2.2 静态吸附条件下溶液 pH 对纤维吸附钒的影响

图 2 是溶液 pH 对纤维吸附钒的影响。取一定质量(m)的纤维, 加入适当体积(V)的钒溶液, 进行吸附实验。从图 2 可以看出, 溶液 pH 值对纤维的吸附有很大影响。pH 值从 1 增加到 7, 纤维对钒的吸附量逐渐增大, 随着 pH 值继续增大, 纤维吸附量反而不断降低。因为钒酸根在 pH 值为 2~5 时主要以 $\text{V}_{10}\text{O}_{28}^{6-}$ 、 $\text{HV}_{10}\text{O}_{28}^{5-}$ 和 $\text{H}_2\text{V}_{10}\text{O}_{28}^{4-}$ 形式存在, pH 值为 8~10 时, 主要以 HVO_4^{2-} 、 $\text{HV}_2\text{O}_7^{3-}$ 和 $\text{V}_2\text{O}_7^{4-}$ 形式存在, 而在 pH 为 6~8 时, 主要以 H_2VO_4^- 和 VO_3^- 存在^[15], 交换吸附时离子占用的交换基数相对较少。所以 pH 为 6~8 时, 吸附效果最好。



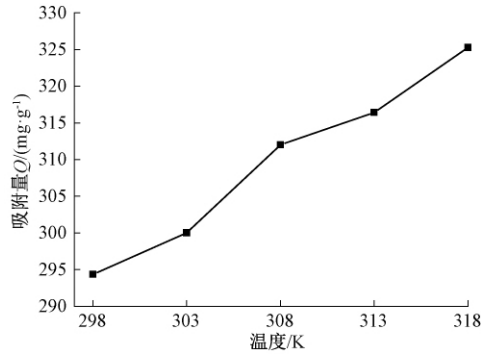
($m = 0.1 \text{ g}$ $V = 200 \text{ mL}$ $T = 298 \text{ K}$ $C_0 = 500 \text{ mg/L}$ $t = 10 \text{ h}$)

图 2 溶液 pH 对纤维吸附钒的影响

Fig.2 The effect of pH on fiber adsorption of Vanadium

2.3 静态吸附条件下温度对纤维吸附钒的影响

图 3 为温度对纤维吸附钒的影响。如图 3 所示, 纤维对钒的吸附量随温度的升高不断增加。这说明此吸附过程是一个典型的吸热过程, 适当提高温度有利于吸附。



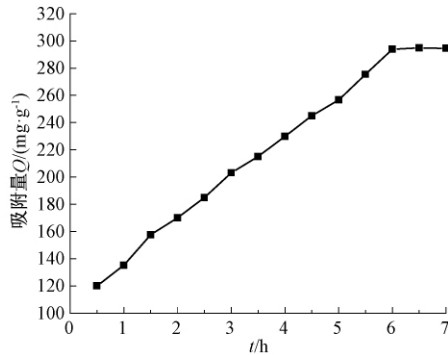
(pH = 7 $m = 0.1$ g $V = 200$ mL $C_0 = 500$ mg/L $t = 10$ h)

图3 温度对纤维吸附钒的影响

Fig.3 The effect of temperature on fiber adsorption of Vanadium

2.4 静态吸附条件下时间对纤维吸附钒的影响

图4是吸附时间对纤维吸附钒的影响.从图4可以看出,随着反应的进行,纤维对钒的吸附量不断增加,吸附时间达到6 h后,纤维对钒的吸附接近动态平衡,可见,吸附时间6 h时,纤维对溶液中钒的吸附达到饱和.



(pH = 7 $m = 0.1$ g $V = 200$ mL $C_0 = 500$ mg/L $T = 298$ K)

图4 时间对纤维吸附钒的影响

Fig.4 The effect of adsorption time on fiber adsorption of Vanadium

2.5 静态吸附条件下钒溶液浓度对纤维吸附钒的影响

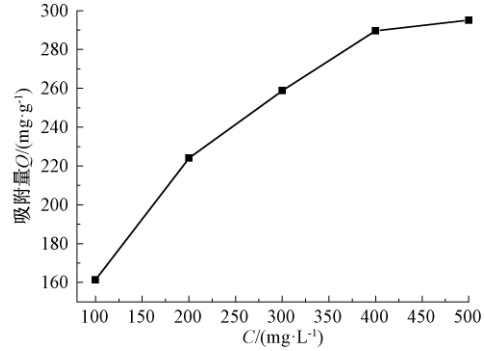
图5为钒溶液浓度对纤维吸附钒的影响.由图5可知,溶液中钒的浓度越大,纤维对钒的吸附量越大.这表明 PAN 基弱碱性离子交换纤维在吸附钒方面展现出优良性能.

为探究纤维在溶液体系中对钒的吸附机理,分别采用 Langmuir 和 Freundlich 吸附等温模型[式(3)、(4)]对吸附等温线进行线性拟合,其拟合常数与相关系数列于表1.

$$\frac{1}{q_e} = \frac{1}{q_{\max}} + \frac{1}{bC_e q_{\max b}}; \quad (3)$$

$$\ln q_e = \ln K_F + \frac{\ln C_e}{n}, \quad (4)$$

式中: b 、 K_F 、 n 为方程特征常数; q_e 为纤维的平衡吸附容量,mg/g; C_e 为钒溶液中钒的平衡浓度,mg/L; q_{\max} 是纤维的饱和吸附量,mg/g.



(pH = 7 $m = 0.1$ g $V = 200$ mL $T = 298$ K $t = 6$ h)

图5 钒溶液浓度对纤维吸附钒的影响

Fig.5 The effect of Vanadium solution concentration on fiber adsorption of Vanadium

表1 Langmuir 和 Freundlich 等温吸附模型常数和
相关系数

Tab.1 Langmuir and Freundlich adsorption isotherm constants and correlation coefficients

数值	Langmuir 模型			Freundlich 模型		
	b	q_{\max}	R^2	n	K_F	R^2
V	0.008	385.66	0.9950	2.73	31.33	0.9947

从表1中可以看出,两种吸附等温模型相关系数均大于0.99,说明其拟合曲线能很好地描述 PAN 基弱碱性阴离子交换纤维对钒的吸附,其吸附过程以单分子层吸附为主. Freundlich 模型中 $n > 1$,说明吸附过程易于进行.

2.6 静态吸附条件下氢氧化钠浓度对纤维解吸钒的影响

图6是 NaOH 浓度对纤维解吸钒的影响.采用氢氧化钠对纤维进行解吸,由图6可知,氢氧化钠的浓度越高,已吸附钒的纤维解吸率越高,当氢氧化钠的浓度达到0.5 mol/L以后,继续升高浓度、纤维的解吸率反而减小,因此0.5 mol/L为最佳解吸剂浓度.

2.7 静态吸附条件下纤维处理工业含钒废水

以南阳某钒矿的废水为研究对象,此废水中含有高浓度的铁铝矾,经过碱性除铁-中和沉铝-铵盐沉钒后,废水中钒含量为96.6 mg/L.取一定质量的纤维,在 pH = 7 常温条件下,对含钒废水吸附6 h,结果废水中钒含量减至1.84 mg/L,钒的去除率达到98%以上,废水中钒含量小于2 mg/L,即符合国家规定的排放标准(GB 26452—2011).

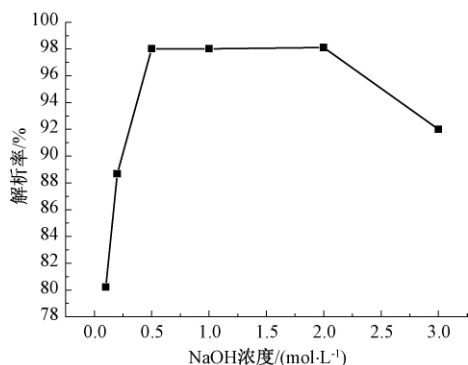


图6 NaOH 浓度对纤维解吸钒的影响

Fig.6 The effect of sodium hydroxide solution concentration on fiber desorption of Vanadium

2.8 动态吸附条件下温度对纤维吸附钒的影响

图7为动态条件下温度对纤维吸附钒的影响。从图7可以看出,升高温度有利于纤维对溶液中钒的吸附,可能是由于升高温度有助于旧键断裂新键形成,所以纤维吸附钒的过程表现为吸热过程。

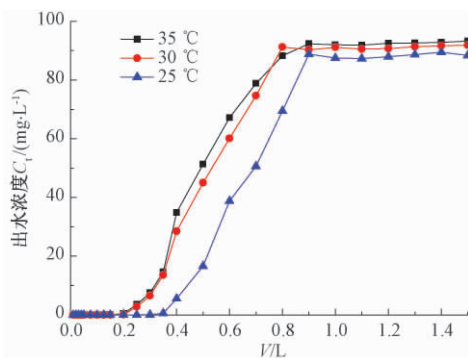
(pH=7 m=1.0 g C₀=100 mg/L U=2 mL/min)

图7 动态条件下温度对纤维吸附钒的影响

Fig.7 The effect of temperature on fiber adsorption of Vanadium under the dynamic adsorption condition

2.9 动态吸附条件下流速对纤维吸附钒的影响

图8为动态条件下流速对纤维吸附钒的影响。由图8可知,低流速有利于纤维对钒的吸附。增大流速,一方面钒溶液的负荷增大,在较短时间内就可达到动态吸附饱和。另一方面,增大流速也会使进水的水力停留时间缩短。水力停留时间越短,钒与纤维接触越不充分,导致穿透时间提前。但是流速也不宜过低,过低会导致处理废水量下降,影响工作效率,同时也易出现柱内液相的“纵向返混”。

3 结论

(1) 考察了一种 PAN 基弱碱性离子交换纤维对钒的吸附性能。发现不同型式功能基的纤维对吸附钒有影响,氯型离子交换纤维吸附及再生性能明显优于多胺型纤维。

(2) 静态吸附条件下,溶液 pH 为 6~8 时,氯

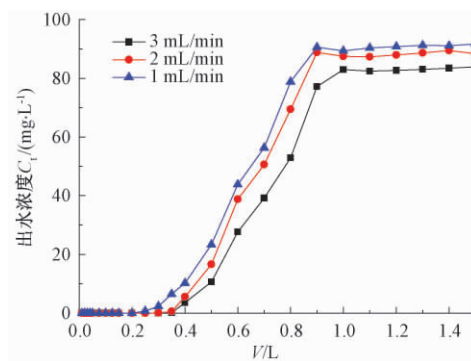
(pH=7 m=1.0 g C₀=100 mg/L T=298 K)

图8 动态条件下流速对纤维吸附钒的影响

Fig.8 The effect of velocity on fiber adsorption of Vanadium under the dynamic adsorption condition

型纤维对钒的吸附效果最好,温度越高吸附量越大,反应时间 6 h 时吸附达到饱和,饱和离子吸附量为 294 mg/g;氢氧化钠解吸纤维的最佳浓度为 0.5 mol/L,解吸率达到 98.02% 以上。

(3) 分别采用 Langmuir 和 Freundlich 吸附等温模型对纤维与钒的吸附等温线进行了线性拟合,两种吸附等温模型相关系数均大于 0.99, $n > 1$,说明吸附过程以单分子层吸附为主,且易于进行。

(4) 含钒工业废水经过纤维吸附处理后,钒含量降低,达到了排放标准。

(5) 动态吸附条件下,升高温度有利于纤维对钒的吸附,该吸附是一个吸热过程。

参考文献:

- [1] 吴起鑫,王建平,车东,等. 中国钒资源现状及可持续发展建议[J]. 资源与产业, 2016, 18(3): 29-33.
- [2] 李延芬,刘叶凤,罗浩,等. 提钒技术研究进展[J]. 化工进展, 2016, 35(1): 223-229.
- [3] 周楠楠,张威,赵金龙,等. 废水深度处理的研究进展[J]. 无机盐工业, 2017, 49(2): 10-14.
- [4] 李先荣,陈宁,董明甫,等. 铬酸钠碱性液除钒工艺研究[J]. 能源化工, 2015, 36(1): 59-63.
- [5] 林海,陈思,董颖博,等. 黑藻、狐尾藻对重金属铅、镉、铬、钒污染水体的修复[J]. 中国有色金属学报, 2017, 27(1): 178-186.
- [6] 关洪亮,王杏林,张璐,等. 氯化铵处理含钒废水的研究[J]. 环境科学与技术, 2014, 37(5): 122-125.
- [7] 刘萍. 离子交换纤维应用研究进展[J]. 化学工程与装备, 2015(7): 221-223.
- [8] 代立波,周从章,原思国. 弱碱性离子交换纤维对六价铬吸附性能的研究[J]. 高校化学工程学报, 2012, 26(4): 674-678.
- [9] TIINA L, MUHAMMAD K K, ARJA S, et al. Remov-

- al of vanadium from industrial wastewater using iron sorbents in batch and continuous flow pilot systems [J]. Journal of environmental management, 2017, 190: 231–242.
- [10] 余训民,张璐,王术智,等. 一种新型离子交换纤维对铜和镍的吸附及其动力学研究 [J]. 武汉工程大学学报, 2015, 37 (12): 10–15.
- [11] 崔兰,代立波,原思国. 离子交换纤维对含铬废水的资源化治理研究 [J]. 离子交换与吸附, 2015, 31 (2): 123–130.
- [12] 原思国,曾汉民. 新型有机功能纤维的制备、结构及其性能研究 [J]. 高科技纤维与应用, 2002, 27 (2): 35–40.
- [13] 原思国,吕邢鑫,安威威,等. 弱碱型离子交换纤维对铬酸雾的吸附性能研究 [J]. 郑州大学学报(工学版), 2013, 34 (2): 7–10.
- [14] 刘琳琳,薛晓康,王露. 水中铝元素和钒元素测定方法的研究 [J]. 环境科学导刊, 2012, 31 (6): 119–122.
- [15] XING X Y, NING S M, LI S J. Extraction of vanadium from acid leaching solution of stone coal by anion exchange resin [J]. Hydrometallurgy of China, 2009, 35 (6): 86–87.

Adsorption Performance of Weak Alkaline Ion Exchange Fiber for Vanadium

MA Nannan, ZHI Hongtao, DUAN Jianbang, FENG Xiu, ZHANG Xiang*

(School of Chemical Engineering and Energy, Zhengzhou University, Zhengzhou 450001, China)

Abstract: A kind of PAN-based weak alkaline ion exchange fiber was synthesized to remove for vanadium. The adsorption and regeneration performance of two different types of functional groups of ionexchange materials were compared. Effects of pH, temperature, time, and the concentration of vanadium on fiber saturated adsorption amount were investigated. The optimal concentration of sodium hydroxide for desorption the fiber was discussed. The results showed that the static adsorption capacity of Cl^- form fiber were more superior; The maximum adsorption capacity (294 mg/g) was obtained under pH 6~8 and adsorption capacity increased with the increase of temperature; the adsorptive equilibrium can be achieved with in 6 hours, and the removal ratio for Vanadium was more than 98%. The desorption rate of the fiber was above 98.02%, when the concentration of desorption solution (sodium hydroxide) was 0.5 mol/L.

Key words: PAN-based; weak alkaline ion exchange fiber; Vanadium; adsorption performance

(上接第58页)

Research and Implementation of Self-Help 3D Consultation System

HUANG Yunhui¹, LIU Xiaohan², LÜ Yiqing¹, YAO Junfeng², CHEN Jinchun³, LAN Zhijie¹

(1. The Chinese Traditional Medicine Hospital of Xiamen, Xiamen, Fujian Province 361009; 2. Center for Digital Media Computing of Xiamen University, Xiamen University, Xiamen, Fujian Province 361005; 3. The People's Congress of Xiamen, Xiamen, Fujian Province 361000)

Abstract: The traditional hospital division is too professional and medical treatment process separates. In the absence of good consultation service, patients are very inconvenient. With the development of information technology, more and more hospitals begin the construction of consultation system, but the function of these systems is still not comprehensive. The consultation system in this paper is used for 3D modeling of the Chinese Traditional Medicine Hospital of Xiamen, with walking, roaming, automatic navigation, hospital department introduction and other functions. The system is based on Windows platform, using 3DMAX, MAYA to build 3D models, and interaction is implemented in Unity3d. The core of interaction is automatic navigation. It use A* algorithm. According to the relative fixation of the objects in the hospital and the crisscrossing of the road, the heuristic function of Manhattan is adopted to simplify the algorithm. The system can effectively help patients understand the medical environment, and the operation of the system is simple and intuitive, which is convenient for patients among different ranks.

Key words: 3D consultation system; virtual hospital; outpatient service information system; A* algorithm; virtual reality

文章编号: 1671-6833(2019)02-0082-05

熔盐法制备钽酸钠超细粉体及其光催化性能研究

贾全利¹, 闫 帅¹, 汪 涤², 刘新红¹

(1. 郑州大学 高温功能材料河南省重点实验室, 河南 郑州 450001; 2. 河南建筑材料研究设计院有限公司, 河南 郑州 450002)

摘 要: 以 Ta_2O_5 、 NaCO_3 为原料, 分别以 NaCl-KCl-NaF 和 NaCl-KCl 为熔盐介质, 合成了 NaTaO_3 粉体. 借助 X 射线衍射仪、扫描电子显微镜研究了熔盐种类、热处理温度对合成粉体的物相组成和显微形貌的影响. 结果表明: 不加熔盐时完全反应生成 NaTaO_3 的温度为 $700\text{ }^\circ\text{C}$, $1\ 000\text{ }^\circ\text{C}$ 烧后粉体形貌不规则, 且团聚严重. 当反应物与熔盐的质量比为 1:1 时, 以 NaCl-KCl-NaF 为熔盐, 反应物完全转化为 NaTaO_3 的温度为 $600\text{ }^\circ\text{C}$, $1\ 000\text{ }^\circ\text{C}$ 时 NaTaO_3 晶体长大发育成长方状, 粉体晶粒小于 $1\ \mu\text{m}$; 而以 NaCl-KCl 为熔盐时完全转化为 NaTaO_3 的温度为 $700\text{ }^\circ\text{C}$, $900\text{ }^\circ\text{C}$ 合成了形貌为长方状的 NaTaO_3 超细粉体. NaTaO_3 超细粉体的粒度和晶体发育程度对光催化性能影响较大.

关键词: 钽酸钠; 熔盐法; 光催化; 超细粉体; 固相反应

中图分类号: TU728.4

文献标志码: A

doi: 10.13705/j.issn.1671-6833.2018.05.014

0 引言

钽酸盐、铌酸盐和钛酸盐^[1]是具有 ABO_3 钙钛矿结构的半导体材料, 在利用太阳能光解水及光降解污染物方面具有广阔的应用前景, 尤其是钽酸盐结构容忍度大, 能有效地进行部分离子的交换, 结构和性能调变的范围较大, 在可见光催化剂领域具有广阔的应用前景. NaTaO_3 具有高度的稳定性, 反应中不发生光腐蚀和化学腐蚀, 且安全无毒, 其光生电子、空穴具有足够的还原和氧化能力, 同时 NaTaO_3 半导体材料独特的晶体结构及能带结构使其在光催化降解有机污染物及光催化制备氢气等领域有应用前景^[2]. NaTaO_3 负载 NiO 后具有较高的光量子产率, 也明显提高了太阳光的利用率^[3].

目前 NaTaO_3 的合成方法主要有固相法^[4-6]、水热法^[7-11], 溶胶-凝胶法^[12,13]. Kato 等^[4]以 Ta_2O_5 为钽源, 分别以 $(\text{Li}, \text{Na}, \text{K})_2\text{CO}_3$ 为原料, 采用固相法合成一系列钽酸盐. Li 等^[8]采用水热法合成了具有钙钛矿结构的 NaTaO_3 , 并测试了粉体光催化性能. Hu 等^[12]采用溶胶-凝胶法合成了高

活性的 NaTaO_3 粉体. 现有合成 NaTaO_3 粉体存在着如下缺点, 如: 固相法的合成温度高、粉体尺寸大; 水热法产率低; 溶胶-凝胶法生产成本低, 限制了 NaTaO_3 粉体的开发与应用.

熔盐法具有合成温度低、反应时间短、产物粒径细小、纯度高、结构可控、过程简单等优点^[14], 近年来在无机粉体材料的制备中被广泛应用. 如 Katayama^[15]等以 BaCO_3 、 TiO_2 和氧化铷为初始原料, LiCl 、 KCl 、 NaCl 为熔盐, 在 $1\ 000\sim 1\ 200\text{ }^\circ\text{C}$ 合成了单相 $\text{BaNd}_2\text{Ti}_4\text{O}_{12}$ 粉体, 降低了合成温度. Tian 等^[16]以 MgO 、 Nd_2O_5 、 BaCO_3 为原料, 以 KCl 为熔盐, $900\text{ }^\circ\text{C}$ 保温 2 h 制备了单相 $\text{Ba}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ 陶瓷粉体, 粉体粒径约 $1\ \mu\text{m}$, 比用固相反应法合成温度降低了约 $400\text{ }^\circ\text{C}$. Xie 等^[17]以 LiNO_3 为熔盐, 熔盐与反应物的质量比为 1:8, $350\text{ }^\circ\text{C}$ 合成了片状 Bi_2MoO_6 粉体, 加入熔盐并能够控制粉体的显微形貌. Arney 等^[18]以 TiO_2 和 La_2O_3 为前驱体, $\text{Na}_2\text{SO}_4/\text{K}_2\text{SO}_4$ 为熔盐, $1\ 100\text{ }^\circ\text{C}$ 保温 $1\sim 10\text{ h}$ 合成了 $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ 粉体, 并且熔盐加入量和保温时间对粉体的形貌、催化活性有较大影响.

收稿日期: 2018-01-23; 修订日期: 2018-04-12

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(51672253、U1204505); 河南省基础与前沿技术计划资助项目(162300410051)

作者简介: 贾全利(1972—), 男, 河南周口人, 郑州大学副教授, 博士. 主要从事高温功能材料研究, E-mail: jiaquanli@zzu.edu.cn.

笔者以 Ta_2O_5 和 Na_2CO_3 为原料,以 NaCl-KCl-NaF 和 NaCl-KCl 为熔盐介质合成 NaTaO_3 粉体,借助 X 射线衍射仪、扫描电子显微镜研究了熔盐种类、反应温度对粉体物相组成和显微形貌的影响规律,并测试了部分粉体的光催化性能。

1 试验方案

1.1 试验原材料

以 Ta_2O_5 (99.5%, 粒度 500 nm)、 Na_2CO_3 (99.5%) 为原料,以 NaCl (99.5%)、 KCl (99.5%) 和 NaF (>98.5%) 为熔盐。按照 Ta_2O_5 和 Na_2CO_3 摩尔比 1:1.1 (Na_2CO_3 过量 10%) 称取后充分混合;分别将 NaCl/KCl/NaF 和 NaCl/KCl 按摩尔比为 1:1:0.4 和 1:1 称取混合均匀得到混合盐,110 °C 干燥 4 h 备用。

1.2 试验配比及试验方法

按照反应物 (Ta_2O_5 与 Na_2CO_3 的混合粉料) 与 NaCl-KCl-NaF 或 NaCl-KCl 复合盐质量比 1:0.5:1:1:1:3:1:5:1:7 称取适量的反应物和盐,混合均匀后分别于 500、600、700、800、900、1 000 °C 保温 2 h,随炉自然冷却至室温,取出样品。将煅烧产物用热的去离子水洗涤数次以除去多余的熔盐,经离心分离后得到的粉体,再经 110 °C 干燥 6 h 得到产物粉体。

用 X 射线粉末衍射仪 (XRD, Philips X'Pert Pro 型, Cu K α) 分析样品的物相组成;用扫描电子显微镜 (SEM, Zeiss EVO HD15 型) 分析样品的显微形貌。

采用液相评价法,以 10 mg/L 亚甲基蓝为降解物,将 40 mg NaTaO_3 粉体加入到 60 mL 亚甲基蓝溶液中,避光搅拌 30 min 使染料在样品表面达到吸附-脱附平衡,以氙灯 (Abet Technologies Inc., ~150 mW/cm²) 作为光源。降解过程中,每间隔 20 min 取 4 mL 亚甲基蓝溶液,离心后取上清液,利用紫外-可见分光光度计 (UV-1800PC) 测定其吸光度,计算亚甲基蓝溶液浓度随降解时间的变化情况。

2 分析与讨论

按照反应物与熔盐的质量比 1:1 称取适量的反应物 (Ta_2O_5 和 Na_2CO_3 的混合粉料) 和 NaCl-KCl-NaF 、 NaCl-KCl 复合盐 (设置对照试验),分别在不同温度下煅烧 2 h,产物粉体的 XRD 图谱如图 1 所示。

由图 1 (a) 可知,不同温度烧后产物中均出现了 NaTaO_3 特征衍射峰。500、600 °C 烧后残留有斜

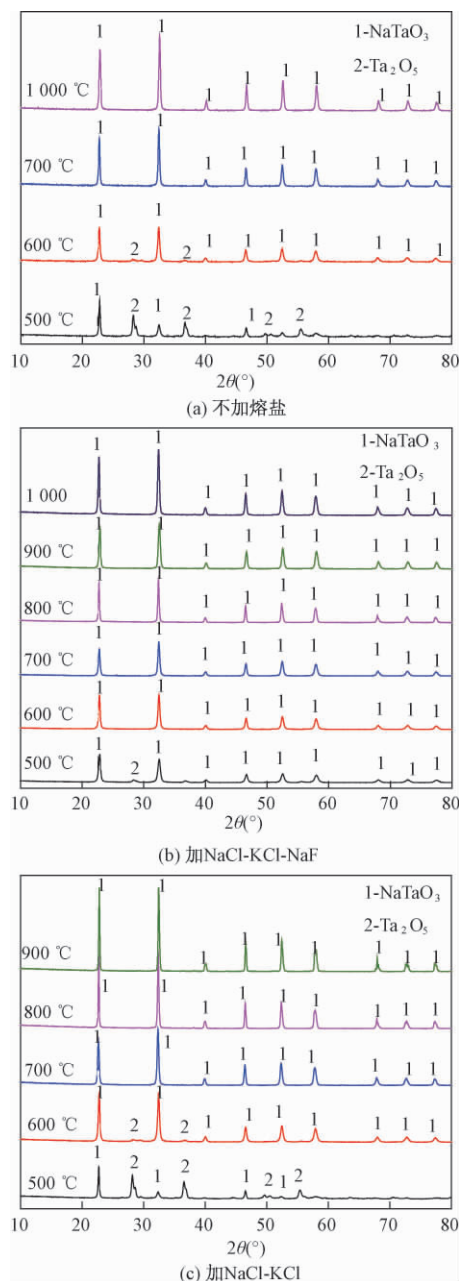


图 1 合成产物粉体的 XRD 图谱

Fig. 1 XRD patterns of as-achieved samples

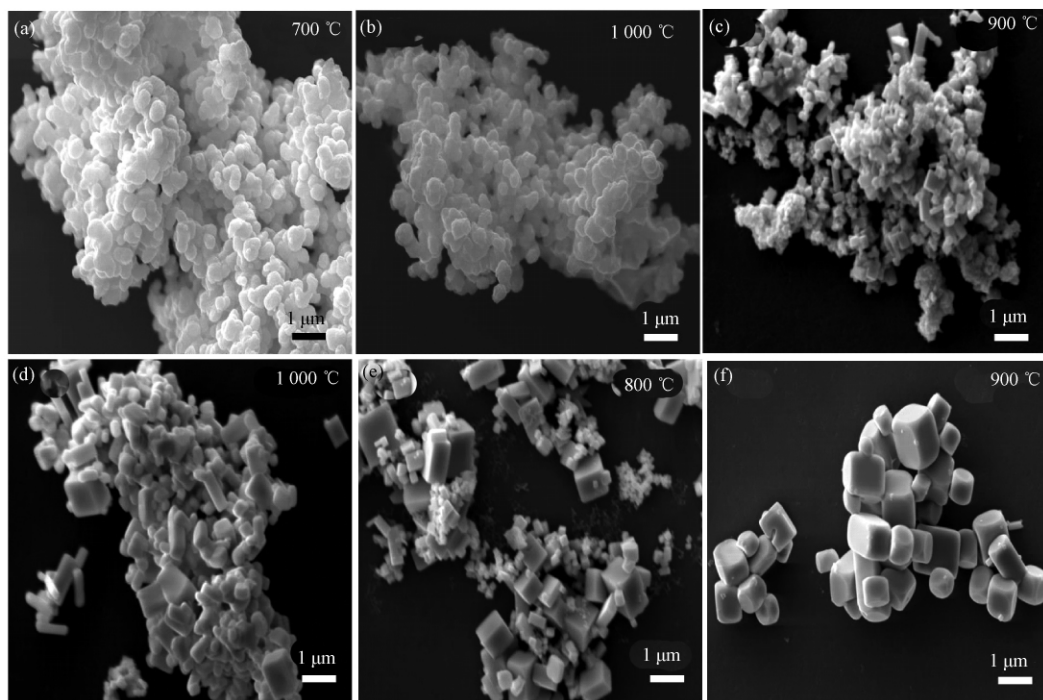
方相 Ta_2O_5 的衍射峰;当温度升高到 700 °C 时 Ta_2O_5 的衍射峰消失,只有斜方 NaTaO_3 的衍射峰,表明此时 Ta_2O_5 已经完全转化为 NaTaO_3 。

由图 1 (b) 可知,添加 NaCl-KCl-NaF 时,500 °C 烧后粉体物相组成主要为 NaTaO_3 和少量未完全反应的 Ta_2O_5 ;当温度升高到 600 °C 及以上时,XRD 图谱中只有 NaTaO_3 的衍射峰。由图 1 (c) 可知,添加 NaCl-KCl 复合盐时,500 °C 烧后粉体中存留有较多未完全反应的 Ta_2O_5 ,600 °C 时仍有少量未完全反应的 Ta_2O_5 ;温度升高到 700 °C 时,物相为纯相的 NaTaO_3 。随处理温度升高, NaTaO_3 的衍射峰强度逐渐增强, NaTaO_3 的晶体发

育趋于完善. 以上结果表明, 添加 NaCl-KCl-NaF 熔盐能够使 NaTaO_3 的初始合成温度降低约 $100\text{ }^\circ\text{C}$, 主要因为三元复合熔盐的熔点较低(约为 $619\text{ }^\circ\text{C}$), 在较低温度下形成液相环境, 其次可能是 Ta_2O_5 在 NaF 中溶解度大, 促进了反应的进行, 因此 $600\text{ }^\circ\text{C}$ 时反应基本完成; 而 NaCl-KCl 复合盐的熔点约为 $673\text{ }^\circ\text{C}$, $600\text{ }^\circ\text{C}$ 体系形成的液相较少, 因而样品中残留有未反应的 Ta_2O_5 .

进一步分析了部分产物粉体的显微形貌, 结果如图 2 所示. 由图 2(a) ~ (b) 可知, 当不添加熔盐时, 700 、 $1\ 000\text{ }^\circ\text{C}$ 保温 2 h 合成粉体的粒径大多在 500 nm 以下, 形貌为类似球形颗粒, 粉体有不

同程度的团聚. 加入 NaCl-KCl-NaF 熔盐, $900\text{ }^\circ\text{C}$ 烧后大部分 NaTaO_3 粉体已发育为长方体状; 继续升高温度到 $1\ 000\text{ }^\circ\text{C}$ 时 NaTaO_3 晶体发育长大, 颗粒形貌为长方体 [图 2(c), (d)], 粉体粒径在 $1\text{ }\mu\text{m}$ 以下. 由图 2(e) ~ (f) 可知加入 NaCl-KCl 熔盐后, $800\text{ }^\circ\text{C}$ 时大部分 NaTaO_3 粉体已发育为长方体; 当温度升高到 $900\text{ }^\circ\text{C}$ 时, NaTaO_3 粉体全部发育成为 $1\text{ }\mu\text{m}$ 左右的长方体状小颗粒, 且合成的粉体不团聚, 分散性较好. 以上结果表明: 熔盐能够促进 NaTaO_3 晶体发育长大, 并可在较低温度下发育长大成规则的长方体, 比传统固相法温度降低约 $200\text{ }^\circ\text{C}$ [19].



(a), (b) 未用熔盐; (c), (d) 添加 NaCl-KCl-NaF; (e), (f) 添加 NaCl-KCl

图 2 合成粉体的 SEM 图像

Fig. 2 SEM images of obtained powers

图 3 为不同熔盐、不同温度下合成的 NaTaO_3 粉体的紫外-可见漫反射 (UV-vis) 光谱. 从图 3 中可以看出不同条件下合成的样品 UV-vis 光谱图没有显著的差异, 光吸收特性基本一致, 晶体发育完整的粉体具有更高的可见光吸收. NaTaO_3 的吸收边在 310 nm , 计算出样品的禁带宽度 E_g 约为 4.0 eV , 与文献报道的一致 [12], 由此可知在熔盐介质中制备的粉体与水热法、固相法等方法合成的粉体具有相同的禁带宽度. NaTaO_3 晶体发育越好, 更有利于提高其在可见光区的光吸收.

由 Lambert-Beer 定律 [20] 得出

$$C/C_0 = A/A_0, \quad (1)$$

式中: C 为亚甲基蓝溶液在 t 时刻的浓度; C_0 为亚

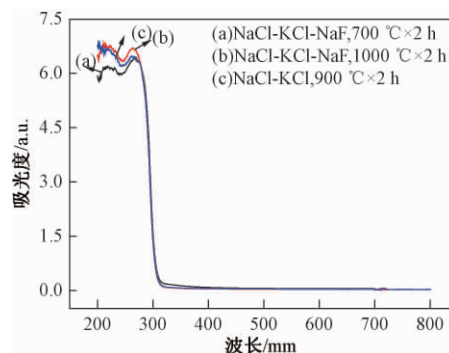


图 3 样品的紫外-可见漫反射吸收光谱

Fig. 3 UV-vis diffuse reflectance spectra of as-obtained samples

甲基蓝溶液在 t_0 时刻的浓度 (黑暗条件下吸附平

衡后); A 为亚甲基蓝溶液在 t 时刻的吸光度; A_0 为亚甲基蓝黑暗条件下吸附平衡后的吸光度; C/C_0 为亚甲基蓝在 t 时刻的降解率。

根据式(1)计算得到的 NaTaO_3 粉体在紫外-可见光下对亚甲基蓝的降解曲线(C/C_0)与降解时间(t)的关系如图4。由图4可以看出,经紫外-可见光照射2 h后,不同条件下合成的 NaTaO_3 粉体均表现一定的光催化活性。 NaCl-KCl-NaF 熔盐中1 000 ℃合成的粉体光催化活性最高,2 h降解率为60%,其次是在 NaCl-KCl 熔盐中900 ℃合成的样品,2 h降解率为45%,而在 NaCl-KCl-NaF 熔盐中700 ℃保温2 h合成的样品,2 h降解率为32%。但亚甲基蓝没有完全降解,原因可能是钽酸钠的禁带较宽,只能响应紫外光。

不同温度和熔盐条件下合成的粉体的光催化性能有明显的差异, NaTaO_3 粉体的显微形貌为规则的长方体时具有较好的光催化性能,该结果与文献报道的结果一致^[21];其次光催化性能也与粉体的粒度有关。由表1可知 NaCl-KCl-NaF 熔盐中经1 000 ℃×2 h合成的粉体平均粒径为0.8 μm,而在 NaCl-KCl 熔盐中经900 ℃×2 h合成的粉体平均粒径1.3 μm,在相同条件下粉体的粒径越小,其光催化活性相对较高。光催化结果表明 NaTaO_3 粉体的光催化性能与晶体结晶程度和粉体粒度大小有关。

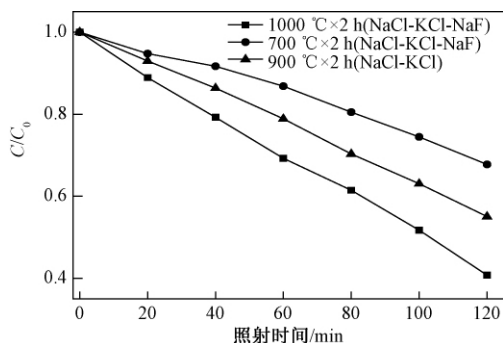


图4 不同条件下合成的样品对亚甲基蓝的降解曲线

Fig.4 Photocatalytic performance of samples synthesized at different condition for degradation of MB

表1 不同条件下合成 NaTaO_3 粉体的平均粒径

Tab.1 Particle size of as-synthesized NaTaO_3 powder at different conditions

所用熔盐	热处理条件	平均粒径/μm
NaCl-KCl-NaF	1 000 ℃ × 2 h	0.8
NaCl-KCl-NaF	700 ℃ × 2 h	0.6
NaCl-KCl	900 ℃ × 2 h	1.3

与文献[22]对比可知,采用 NaCl-KCl-NaF 熔盐1 000 ℃合成的 NaTaO_3 粉体的60 min降解率

为37%,比水热法合成的粉体有所提高,其降解率为20%,表明其光催化性能更好。

3 结论

(1) 以 Ta_2O_5 、 NaCO_3 为原料,分别以 NaCl-KCl 和 NaCl-KCl-NaF 为熔盐,通过调整热处理温度、熔盐种类等工艺参数制备了形貌和尺寸不同的 NaTaO_3 粉体。

(2) 以 NaTaO_3 粉体为熔盐时,600 ℃即可合成纯相的,与不加熔盐的固相反应法相比,其合成温度降低了约100 ℃,1 000 ℃烧后制备的粉体分散性好,粒径小于1 μm,其显微形貌为长方体状,并具有最好的光催化性能。

(3) NaTaO_3 超细粉体的晶体发育越好,粉体粒度越小,粉体的光催化性能越优。

参考文献:

- [1] SHI J, LIU G, WANG N, et al. Microwave-assisted hydrothermal synthesis of perovskite NaTaO_3 nanocrystals and their photocatalytic properties [J]. Journal of materials chemistry, 2012, 22(36): 18808–18813.
- [2] 李霞, 刘艳. NaTaO_3 光催化剂的水热合成与催化性能研究[J]. 功能材料, 2009, 40(3): 407–409.
- [3] HWANG D W, CHA K Y, KIM J, et al. Photocatalytic degradation of CH_3Cl over a nickel-loaded layered perovskite [J]. Industrial & engineering chemistry research, 2003, 42(6): 1184–1189.
- [4] KATO H, KUDO A. New tantalite photocatalysts for water decomposition into H_2 and O_2 [J]. Chemical physics letters, 1998, 295(5): 487–492.
- [5] SKILLEN N, ADAMS M, MCCULLAGH C, et al. The application of a novel fluidised photo reactor under UV-Visible and natural solar irradiation in the photocatalytic generation of hydrogen [J]. Chemical engineering journal, 2016, 286: 610–621.
- [6] KATO H, ASAKURA K, KUDO A. Highly efficient water splitting into H_2 and O_2 over lanthanum-doped NaTaO_3 photocatalysts with high crystallinity and surface nanostructure [J]. Journal of the American chemical society, 2003, 125(10): 3082–3089.
- [7] RONG Y, TANG L, SONG Y, et al. A new visible-light driving nanocomposite photocatalyst $\text{Er}^{3+}:\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}/\text{MoS}_2\text{-NaTaO}_3\text{-PdS}$ for photocatalytic degradation of a refractory pollutant with potentially simultaneous hydrogen evolution [J]. RSC advances, 2016, 6(84): 80595–80603.
- [8] LI X, ZANG J. Facile hydrothermal synthesis of sodium tantalite (NaTaO_3) nanocubes and high photocata-

- lytic properties [J]. The Journal of physical chemistry C, 2009, 113(45): 19411–19418.
- [9] HE Y, ZHU Y, WU N. Synthesis of nanosized Na-TaO₃ in low temperature and its photocatalytic performance [J]. Journal of solid state chemistry, 2004, 177(11): 3868–3872.
- [10] LAN N T, PHAN L G, HOANG L H, et al. Hydrothermal synthesis, structure and photocatalytic properties of La/Bi Co-Doped NaTaO₃ [J]. Materials transactions, 2016, 57(1): 1–4.
- [11] 李文琪, 李霞. 可见光响应 S 掺杂 NaTaO₃ 的制备及其催化性能研究 [J]. 硅酸盐通报, 2017, 36(11): 3867–3872.
- [12] HU C C, TENG H. Influence of structural features on the photocatalytic activity of NaTaO₃ powders from different synthesis methods [J]. Applied catalysis A: general, 2007, 331: 44–50.
- [13] LIN W H, CHENG C, HU C C, et al. NaTaO₃ photocatalysts of different crystalline structures for water splitting into H₂ and O₂ [J]. Applied physics letters, 2006, 89(21): 211904.
- [14] 闫帅, 贾全利, 李韦, 等. 熔盐辅助碳热还原法合成碳化钽粉体 [J]. 人工晶体学报, 2016, 45(10): 2383–2388.
- [15] KATAYAMA K, AZUMA Y, TAKAHASHI Y. Molten salt synthesis of single-phase BaNd₂Ti₄O₁₂ powder [J]. Journal of materials science, 1999, 34(2): 301–305.
- [16] TIAN Z Q, LIU H X, HONG-TAO Y U, et al. Molten salt synthesis of Ba(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O₃ powder [J]. Journal of Wuhan university of technology-Mater. Sci. Ed. 2004, 19(2): 17–19.
- [17] XIE L, MA J, XU G. Preparation of a novel Bi₂MoO₆ flake-like nanophotocatalyst by molten salt method and evaluation for photocatalytic decomposition of rhodamine B [J]. Materials chemistry and physics, 2008, 110(2): 197–200.
- [18] ARNEY D, PORTER B, GREVE B, et al. New molten-salt synthesis and photocatalytic properties of La₂Ti₂O₇ particles [J]. Journal of photochemistry and photobiology A: Chemistry, 2008, 199(2): 230–235.
- [19] SUN J, CHEN G, LI Y, et al. Novel (Na,K)TaO₃ single crystal nanocubes: molten salt synthesis, invariable energy level doping and excellent photocatalytic performance [J]. Energy & environmental science, 2011, 4(10): 4052–4060.
- [20] 卢红霞, 吕泽刚, 程向前, 等. 利用废渣一次烧结制备微晶波动釉面砖的研究 [J]. 郑州大学学报(工学版), 2018, 39(2): 92–96.
- [21] 章薇, 谈国强, 夏傲, 等. 反应温度对水热法制备的 NaTaO₃ 粉体结构及光催化性能的影响 [J]. 硅酸盐学报, 2011, 39(11): 1724–1728.
- [22] 孔新刚, 郭章林, 黄剑锋, 等. 不同晶体结构钽酸钠的制备及光催化性能的研究 [J]. 陕西科技大学学报(自然科学版), 2014, 32(6): 61–66.

The Preparation and Photocatalytic Properties of NaTaO₃ Ultrafine Powders Via a Molten Salt Mediated Method

JIA Quanli¹, YAN Shuai¹, WANG Di², LIU Xinhong¹

(1. High temperature Ceramics Institute, Zhengzhou University, Zhengzhou 450001, China; 2. Henan Building Materials Research and Design Institute Co., Ltd. Zhengzhou 450002, China)

Abstract: Sodium tantalum oxide (NaTaO₃) powders were synthesized by using tantalum oxide (Ta₂O₅) and sodium carbonate as precursors, NaCl-KCl-NaF and NaCl-KCl as molten salt medium. Effects of the types of molten salt, reaction temperature on the phase composition and microstructure of the as-prepared samples were studied. and characterized by X-ray diffraction and scanning electron microscope respectively. When the ratio of molten salt and reactant precursor was 1:1, only NaTaO₃ phase could be detected in the samples after firing at 600 °C in NaCl-KCl-NaF molten salt system. On increasing the reaction temperature to 1000 °C, particle size of as-prepared products was less than 1 μm, and their morphology of NaTaO₃ was like shape. The complete convention temperature of precursors to NaTaO₃ was 700 °C in NaCl-KCl molten salt medium, and cuboid-like shape NaTaO₃ powders were fully synthesized at 900 °C. The as-prepared NaTaO₃ powders possess good photocatalytic properties, which were correlated to the particle size and morphology of NaTaO₃ powders.

Key words: NaTaO₃; molten salt method; photocatalysis; ultrafine powder; solid state reaction

文章编号: 1671-6833(2019)02-0087-05

基于 LSDV 估计法的中国主要品种能源消费影响 碳排放强度效应分析

魏冉^{1,2}

(1. 中原工学院 系统与工业工程技术研究中心, 河南 郑州 450001; 2. 中原工学院 经济管理学院, 河南 郑州 450001)

摘 要: 基于 LSDV 估计法, 采用固定影响效应模型回归分析了 2005—2017 年年鉴数据中的主要品种能源消费对碳排放强度的影响效应. 对传统 STIRPAT 模型进行了改进. 通过分析发现, 样本期间我国各主要品种能源消费对碳排放强度的影响差异较大, 具有正向作用的能源消费因素包括: 煤炭消费、焦炭消费、汽油消费、柴油消费和天然气消费; 具有负向作用的因素包括原油消费、燃料油消费和煤油消费. 此外, 从全国角度来看, 近年来的人口规模变化对于降低碳排放强度具有积极作用, 而人均财富和煤炭消费仍然是拉高碳排放强度的主要原因.

关键词: LSDV 估计法; 效应分析; 面板数据; 碳排放强度; 能源消耗

中图分类号: X24 **文献标志码:** A **doi:** 10.13705/j.issn.1671-6833.2019.02.010

0 引言

我国确立了 2020 年单位国内生产总值的二氧化碳排放量(即碳排放强度)比 2015 年下降 18% 的目标^[1]. 毋庸置疑, 能源燃烧是碳排放的直接因素. 近年的研究表明, 能源消费量的增加是提高碳排放量的首要因素^[2], 而减小碳排放强度的主要因素包括降低能源强度^[3], 其次是能源结构^[4]. 其他文献也得到相近结果^[5-6]. 此外, 人口规模和人均财富仍然是影响碳排放量的重要因素^[7], 研究发现能源结构变化对于碳排放量的影响已经超越了经济增长^[8]. 综上所述, 人口规模、人均财富、能源消费类指标与碳排放量存在较为显著的关系, 考虑到采用不同品种能源消耗作为技术因素分析影响碳排放强度的文献较少, 且不同品种能源消耗对碳排放贡献的差异是非常显著的, 因此, 笔者将以人口规模、人均 GDP、煤炭消费量、焦炭消费量、原油消费量、燃料油消费量、汽油消费量、煤油消费量、柴油消费量和天然气消费量为影响因素, 以碳排放强度为目标参数展开研究.

在分析影响效应方面, 李欢等^[9]基于 STIRPAT

模型发现能源结构因素边际贡献率最大, 魏景赋等^[10]采用同样模型得到能源消耗量对碳排放量影响最大; 宋健等^[11]采用了 STIRPAT 和 LM-DI 两种模型分析发现能源强度和能源消费结构对碳排放呈现出抑制效应. 鉴于面板数据的特点, 笔者基于虚拟变量最小二乘法(LSDV 估计法)原理, 扩展 STIRPAT 模型, 探讨了以我国主要品种能源消费为技术因素的因素集合对于碳排放强度的影响效应.

1 方法与数据

1.1 扩展的 STIRPAT 模型与 LSDV 原理

可拓展的随机性环境影响评估模型(stochastic impacts by regression on population, affluence, and technology model, STIRPAT)为 $I = P \cdot F$, 其中 I 为环境压力变量; P 为人口规模因素; F 为人均财富因素^[12]. 由于该模型分析因素规模有限, Dietz 等^[13]在 1998 年对该模型进行了改进, 建立了 STIRPAT 模型.

笔者对 STIRPAT 模型进行了改进, 扩展了技术因素项, 引入煤炭消费量、焦炭消费量、原油消

收稿日期: 2018-05-10; 修订日期: 2018-08-17

基金项目: 2018 年河南省软科学研究计划项目(182400410198); 河南省哲学社会科学规划项目(2018BJJ065); 2015 年度河南省高等学校青年骨干教师资助计划项目(2015GGJS-494)

作者简介: 魏冉(1976—), 女, 河南郑州人, 中原工学院副教授, 硕士, 主要从事环境经济与区域可持续发展研究, E-mail: weiranhua@163.com.

费量、燃料油消费量、汽油消费量、煤油消费量、柴油消费量和天然气消费量等能源消费类因素;假定分析模型截距随每个影响因素变化,但斜率系数仍然不变,采用最小二乘虚拟变量回归分析原理^[14],建立回归模型如公式(1)所示,

$$(I_{ij}) = \alpha_0 + \alpha_1 D_{1i} + \alpha_{23} D_{23i} + \beta_{ij}(P_{ij}) + \gamma_{ij}(G_{ij}) + \delta_{ij}(COA_{ij}) + \varepsilon_{ij}(COK_{ij}) + \theta_{ij}(CO_{ij}) + \mu_{ij}(FO_{ij}) + \rho_{ij}(GO_{ij}) + \sigma_{ij}(KO_{ij}) + \tau_{ij}(DO_{ij}) + \varphi_{ij}(NG_{ij}) + e_{ij}, \quad (1)$$

式中: i 表示各地区序号($i=1, \dots, 24$),按照序号分别为北京、天津、河北、内蒙古、辽宁、吉林、黑龙江、上海、江苏、浙江、安徽、福建、江西、山东、河南、湖北、湖南、广东、四川、云南、陕西、甘肃、宁夏、新疆,由于缺少数据,其余地区不在分析之列.其中 D_{1i}, \dots, D_{23i} 为哑变量.当 $i=1$ 时, $D_{1i}=1$,否则为0; D_{2i}, \dots, D_{23i} 同理取值; j 表示面板数据采集的样本年份($j=2004, \dots, 2016$). I_{ij} 为碳排放强度; P_{ij} 为人口规模; G_{ij} 为人均GDP; COA_{ij} 为煤炭消费量; COK_{ij} 为焦炭消费量; CO_{ij} 为原油消费量; FO_{ij} 为燃料油消费量; GO_{ij} 为汽油消费量; KO_{ij} 为煤油消费量; DO_{ij} 为柴油消费量; NG_{ij} 为天然气消费量; α_0 为常数项, $\beta_{ij}, \gamma_{ij}, \delta_{ij}, \varepsilon_{ij}, \theta_{ij}, \mu_{ij}, \rho_{ij}, \sigma_{ij}, \tau_{ij}, \varphi_{ij}$ 为各因变量项系数; e_{ij} 为误差项.

对公式(1)中除哑变量和人口规模外的各项进行人口加权,并对所有自变量项自然对数化处理,可得到公式(2),

$$\ln(I_{ij}^*) = \alpha^* + \beta_{ij}^* \ln(P_{ij}^*) + \gamma_{ij}^* \ln(G_{ij}^*) + \delta_{ij}^* \ln(COA_{ij}^*) + \varepsilon_{ij}^* \ln(COK_{ij}^*) + \theta_{ij}^* \ln(CO_{ij}^*) + \mu_{ij}^* \ln(FO_{ij}^*) + \rho_{ij}^* \ln(GO_{ij}^*) + \sigma_{ij}^* \ln(KO_{ij}^*) + \tau_{ij}^* \ln(DO_{ij}^*) + \varphi_{ij}^* \ln(NG_{ij}^*) + e_{ij}^*, \quad (2)$$

式中: $\ln(I_{ij}^*)$ 、 $\ln(G_{ij}^*)$ 、 $\ln(COA_{ij}^*)$ 、 $\ln(COK_{ij}^*)$ 、 $\ln(CO_{ij}^*)$ 、 $\ln(FO_{ij}^*)$ 、 $\ln(GO_{ij}^*)$ 、 $\ln(KO_{ij}^*)$ 、 $\ln(DO_{ij}^*)$ 和 $\ln(NG_{ij}^*)$ 由因变量和各自变量进行人口加权后再自然对数化处理; α^* 为新的常数项,包含了公式(1)中原常数项变量和哑变量的数据信息; β_{ij}^* 、 γ_{ij}^* 、 δ_{ij}^* 、 ε_{ij}^* 、 θ_{ij}^* 、 μ_{ij}^* 、 ρ_{ij}^* 、 σ_{ij}^* 、 τ_{ij}^* 、 φ_{ij}^* 为各因变量项系数; e_{ij}^* 为误差项.

1.2 面板数据的构建

构建面板数据的空间维度为24个地区,时间维度为2004年—2016年序列,构成包括人口规模、人均GDP、煤炭消费量、焦炭消费量、原油消费量、燃料油消费量、汽油消费量、煤油消费量、柴

油消费量和天然气消费量等10个自变量参数和碳排放强度因变量参数.其中,历年各省名义人口规模、GDP原始数据均来源于2005年—2017年《中国统计年鉴》^[15];能源消费类因素和用于计算碳排放强度的总能源消耗量的原始数据均来源于2005年—2017年《中国能源统计年鉴》^[16].

实际GDP采用2004年不变GDP折算价格,人均GDP按照GDP与名义人口规模之比进行计算;人口加权各品种能源消耗量按照各品种能源消耗量与对应地区和年份的人口加权系数之积计算;碳排放强度按照单位GDP能耗量与碳排放系数之积计算(根据文献,标准煤碳排放系数取0.69^[17]).

为了降低异方差和不同量纲的影响,笔者采用各能源消耗类因素进行人口加权和自然对数化处理.

2 单位根、协整性与效应检验

2.1 面板数据单位根检验

笔者采用了Levin-Lin-Chu检验(LLC)、Im-Pesaran-Shin test检验(IPS)、ADF-Fisher检验和PP-Fisher检验方法.检验结果为I(1)单整,即所有变量截面数据具有平稳性,如表1所示.

2.2 面板数据协整性检验

同时采用Fisher个体联合协积检验法(Johansen Fisher)和Pedroni协积检验法(包括Panel v、Panel PP、Panel ADF、Group PP、Group ADF)进行协整性检验,如表2所示.除对 $\ln(COK_{ij}^*)$ 与 $\ln(I_{ij}^*)$ 、 $\ln(FO_{ij}^*)$ 与 $\ln(I_{ij}^*)$ 间使用组内检验的Panel v统计检验,分别得到的估计(Prob.)为0.109 0和0.173 3外,其他协整性检验结果均为拒绝原假设(Prob. < 0.05),按照少数服从多数的判断原则,认为 $\ln(P_{ij}^*)$ 、 $\ln(G_{ij}^*)$ 、 $\ln(COA_{ij}^*)$ 、 $\ln(COK_{ij}^*)$ 、 $\ln(CO_{ij}^*)$ 、 $\ln(FO_{ij}^*)$ 、 $\ln(GO_{ij}^*)$ 、 $\ln(KO_{ij}^*)$ 、 $\ln(DO_{ij}^*)$ 和 $\ln(NG_{ij}^*)$ 分别与 $\ln(I_{ij}^*)$ 之间存在长期稳定的均衡关系.

2.3 面板数据效应检验

利用极大似然比检验(likelihood ratio test)伴随概率为0.000 0(Prob. < 0.05)可拒绝原假设,不能选用混合效应.利用豪斯曼检验(Hausman test)方法时检验结果如表3,伴随概率(Prob. < 0.05)可拒绝原假设,应选用固定效应.

3 面板数据回归分析

为克服变量间的自相关性,把回归模型中的误差项确定为误差自回归项,即AR(1).最终

表 1 一阶差分单位根检验结果
Tab.1 Results of unit root tests in 1st difference

变量	统计值 / 统计概率	假设存在相同单位根情况	假设存在不同单位根情况		
		LLC	IPS	ADF-Fisher	PP-Fisher
$\ln(P_{ij}^*)$	Stat.	-30.128 9	-10.797 2	136.982 0	195.455 0
	Prob.	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*
$\ln(G_{ij}^*)$	Stat.	-11.527 2	-4.439 7	97.990 4	158.746 0
	Prob.	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*
$\ln(COA_{ij}^*)$	Stat.	-12.300 3	-5.343 8	108.405 0	169.856 0
	Prob.	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*
$\ln(COK_{ij}^*)$	Stat.	-20.880 2	-12.680 4	182.664 0	241.312 0
	Prob.	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*
$\ln(CO_{ij}^*)$	Stat.	-12.645 8	-6.520 2	125.380 0	197.503 0
	Prob.	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*
$\ln(FO_{ij}^*)$	Stat.	-12.948 5	-7.363 6	131.961 0	189.980 0
	Prob.	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*
$\ln(GO_{ij}^*)$	Stat.	-12.872 0	-7.250 5	131.982 0	183.380 0
	Prob.	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*
$\ln(KO_{ij}^*)$	Stat.	-32.939 3	-14.268 3	169.126 0	225.748 0
	Prob.	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*
$\ln(DO_{ij}^*)$	Stat.	-14.130 2	-9.090 8	156.974 0	256.371 0
	Prob.	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*
$\ln(NG_{ij}^*)$	Stat.	-18.246 6	-12.776 8	170.775 0	235.956 0
	Prob.	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*
$\ln(I_{ij}^*)$	Stat.	-11.696 2	-4.727 3	97.358 6	151.079 0
	Prob.	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*

注: * Prob. < 0.05 (two-tailed tests) 对于 ADF-Fisher 和 PP-Fisher 检验使用渐进卡方分布计算; 其他检验使用渐进正态分布。

表 2 协整性检验结果
Tab.2 Results of cointegration tests

变量		Johansen	组内检验方法			组间检验方法	
		Fisher 方法	Panel v	Panel PP	Panel ADF	Group PP	Group ADF
$\ln(P_{ij}^*) - \ln(I_{ij}^*)$	Stat.	123.800 0	7.110 8	-5.413 3	-4.043 3	-4.271 6	-2.912 9
	Prob.	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*	0.001 8*
$\ln(G_{ij}^*) - \ln(I_{ij}^*)$	Stat.	138.100 0	16.002 0	-2.125 9	-3.057 1	-5.553 2	-3.083 5
	Prob.	0.000 0*	0.000 0*	0.016 8*	0.001 1*	0.000 0*	0.001 0*
$\ln(COA_{ij}^*) - \ln(I_{ij}^*)$	Stat.	166.800 0	1.892 7	-4.858 9	-3.116 2	-4.878 9	-4.214 6
	Prob.	0.000 0*	0.029 2*	0.000 0*	0.000 9*	0.000 0*	0.001 0*
$\ln(COK_{ij}^*) - \ln(I_{ij}^*)$	Stat.	186.100 0	1.231 6	-8.202 8	-4.135 7	-8.238 6	-5.410 5
	Prob.	0.000 0*	0.109 0**	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*
$\ln(CO_{ij}^*) - \ln(I_{ij}^*)$	Stat.	178.300 0	2.832 5	-4.004 2	-4.086 0	-3.010 7	-4.742 0
	Prob.	0.000 0*	0.002 3*	0.000 0*	0.000 0*	0.001 3*	0.000 0*
$\ln(FO_{ij}^*) - \ln(I_{ij}^*)$	Stat.	162.100 0	0.941 0	-5.805 0	-3.810 6	-4.647 1	-5.657 7
	Prob.	0.000 0*	0.173 3**	0.000 0*	0.000 1*	0.000 0*	0.000 0*
$\ln(GO_{ij}^*) - \ln(I_{ij}^*)$	Stat.	188.700 0	2.994 9	-3.680 7	-2.953 6	-2.710 8	-3.298 0
	Prob.	0.000 0*	0.001 4*	0.000 1*	0.001 6*	0.003 4*	0.000 5*
$\ln(KO_{ij}^*) - \ln(I_{ij}^*)$	Stat.	142.600 0	4.787 5	-6.381 9	-4.339 7	-6.787 8	-5.121 3
	Prob.	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*
$\ln(DO_{ij}^*) - \ln(I_{ij}^*)$	Stat.	207.800 0	3.202 9	-6.731 9	-4.223 8	-6.149 9	-6.431 1
	Prob.	0.000 0*	0.000 7*	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*
$\ln(NG_{ij}^*) - \ln(I_{ij}^*)$	Stat.	208.500 0	2.087 6	-4.194 3	-4.795 8	-5.050 0	-5.757 9
	Prob.	0.000 0*	0.018 4*	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*	0.000 0*

注: * Prob. < 0.05 (two-tailed tests); ** Prob. < 0.20 (two-tailed tests) 原假设为变量间不存在协整性。

表 3 Hausman 检验结果
Tab.3 Results of Hausman test

检验结果	估计量	伴随概率
截面随机	33.101 3	0.000 3 [*]

^{*} Prob. < 0.05 (two-tailed tests)

得到主要品种能源消费影响碳排放强度固定效应模型如下,

$$\ln(I_{ij}^*) = 3.451\ 9 - 0.833\ 0\ln(P_{ij}^*) + 0.252\ 1\ln(G_{ij}^*) + 0.249\ 3\ln(COA_{ij}^*) + 0.005\ 6\ln(COK_{ij}^*) - 0.010\ 1\ln(CO_{ij}^*) - 0.004\ 8\ln(FO_{ij}^*) + 0.041\ 8\ln(GO_{ij}^*) - 0.005\ 5\ln(KO_{ij}^*) + 0.013\ 3\ln(DO_{ij}^*) + 0.006\ 3\ln(NG_{ij}^*) + 0.689\ 9AR, \quad (3)$$

其中, $R^2 = 0.995\ 8$, 校正回归系数 $R^2 = 0.995\ 3$, F 值为 1 778.624 0, 概率 CF 检验为 0.000 0, 德宾-瓦特逊检验值为 1.647 8. 其中, 回归系数 (R^2) 说明自变量与因变量之间存在着显著相关性; 德宾-瓦特逊检验统计值较为合理(5% 显著水平正态分布), 面板数据不存在自相关. 综上所述, 可以认为采用 LSDV 估计法分析我国主要品种能源消费对碳排放强度的影响并进行固定效应回归得到的结果较为理想.

4 结果分析

(1) 分析发现对我国碳排放强度具有正向推动作用的因素包括人均 GDP、煤炭消费量、焦炭消费量、汽油消费量、柴油消费量和天然气消费量; 具有反向影响作用的因素包括人口规模、原油消费量、燃料油消费量和煤油消费量.

(2) 从回归弹性系数看, 人口规模是影响我国碳排放强度最为显著的因素, 并且在研究期间发挥了降低人口加权碳排放强度的作用. 尽管人口增长被认为是推高实际碳排放量的因素, 但当考察人口规模对人口加权碳排放量的影响时, 人口规模因素(人口集聚效应)的增加将抑制碳排放水平的提高.

(3) 从全国范围来看, 人均 GDP 和煤炭消费量相应因素是影响人口加权碳排放强度较为显著的两个正向因素. 因为碳排放强度与经济发展水平之间关系符合环境库兹涅茨曲线, 但人均 GDP 需要达到 129 314 元^[6] (2016 年全国各省的平均值远低于该值), 全国范围的碳排放强度下降拐点尚未到来.

(4) 在样本期间, 焦炭消费量、原油消费量、燃料油消费量、汽油消费量、煤油消费量、柴油消

费量和天然气消费量等对于碳排放强度的影响相对较为不显著, 但随着机动车保有量大幅增加和交通运输业的不断发展, 汽油消费量对碳排放强度的影响相比其他能源消费而言更为显著.

(5) 假设其他变量不变, 在研究期内, 人均 GDP、煤炭消费量、焦炭消费量、汽油消费量、柴油消费量和天然气消费量对应因素每增加 1%, 相应处理后的碳排放强度分别增加 0.252 1%、0.249 3%、0.005 6%、0.041 8%、0.013 3% 和 0.006 3%. 而人口规模、原油消费量、燃料油消费量和煤油消费量对应因素每增加 1%, 相应处理后的碳排放强度分别降低 0.833 0%、0.010 1%、0.004 8% 和 0.005 5%.

5 结论

(1) 采用了 LSDV 估计法, 对《2005 年—2017 年中国统计年鉴》中列出的我国主要品种能源消费量影响碳排放强度的固定效应, 结果发现人均 GDP、煤炭消费量、焦炭消费量、汽油消费量、柴油消费量和天然气消费量对碳排放强度的升高有推动作用, 其中人均 GDP 和煤炭消费量影响效应最为显著; 而人口规模、原油消费量、燃料油消费量和煤油消费量对碳排放强度的降低具有积极作用, 其中人口规模影响效应最为显著.

(2) 近年来, 我国碳排放政策更加严格, 全国整体上呈现增速放缓的状态. 在样本研究期内, 各地区碳排放强度变化差异较大, 部分地区碳排放强度先增后减, 例如北京、天津、吉林和上海; 一些地区碳排放强度逐步呈现稳定状态, 例如河南和湖北; 其他地区的碳排放强度整体表现为逐年增高的趋势. 分析样本期间, 全国总人口和各地区经济不断增长, 两个因素的增长速度放缓, 但是仍然成为影响碳排放强度的重要因素; 能源消费结构不断调整, 但是除煤炭外的主要品种能源消费量变化对于碳排放强度的影响并不显著, 说明以煤炭为主的能源消费结构必须进一步优化.

(3) 下一步建议针对不同经济水平地区碳排放强度驱动因素的差异. 此外, 在构建面板数据时, 应补充影响碳排放强度的能源结构、能源强度或者能源密度等因素, 使能源消费类因素影响碳排放强度效应的分析更加合理科学.

参考文献:

[1] 中华人民共和国国务院. “十三五”控制温室气体排

- 放工作方案[EB/OL]. (2016-11-04) [2018-03-22].
http://www.gov.cn/zhengce/content/2016-11/04/content_5128619.htm.
- [2] 王建民, 杨文培, 杨力. 经济增长-能源消费-碳排放关系的实证检验[J]. 统计与决策, 2014, 30(5): 137-139.
- [3] 邓荣荣, 陈鸣. 经济发展方式转变是否降低了中国碳排放强度—基于 IO-SDA 模型的分析[J]. 科学决策, 2017, 33(5): 40-63.
- [4] 颜艳梅, 王铮, 吴乐英, 等. 中国碳排放强度影响因素对区域差异的作用分析[J]. 环境科学学报, 2016, 36(9): 3436-3444.
- [5] 邓光耀, 任苏灵. 中国能源消费碳排放的动态演进及驱动因素分析[J]. 统计与决策, 2017, 33(18): 141-143.
- [6] 张珍花, 方勇. 我国区域碳排放强度影响因素及动态关系探究[J]. 统计与决策, 2012, 33(16): 90-93.
- [7] 周维维. 京津冀能源消费碳排放影响因素分析及情景预测研究[D]. 北京: 华北电力大学经济与管理学院, 2016.
- [8] 张翠菊. 中国碳排放强度影响因素-收敛性及溢出性研究[D]. 重庆: 重庆大学经济与工商管理学院, 2016.
- [9] 李欢, 杨珊, 陈建宏, 等. 湖南省能源消费碳排放驱动因素及趋势预测实证分析[J]. 环境工程, 2018, 36(2): 152-157.
- [10] 魏景赋, 徐政, 田文举. 经济增长、能源消耗、金融发展对碳排放的影响: 基于金砖四国的实证研究[J]. 重庆工商大学学报(社会科学版), 2018, 35(1): 42-49.
- [11] 宋健, 赵怡芳. 京津冀能源消费碳排放分解比较研究[J]. 重庆理工大学学报(自然科学), 2018, 32(2): 141-148.
- [12] EHRLICH P, HOLDREN J. Impact of population growth[J]. Sci, 1971, 171(3977): 1213-1217.
- [13] ROSA E, DIERZ T. Climate change and society: speculation, construction and scientific investigation[J]. Int Sociol, 1998, 13(4): 421-455.
- [14] DAMODAR N. Gujarati. Basic Econometrics (Fourth Edition) [M]. Boston: McGraw-Hill, 2003: 642.
- [15] 中华人民共和国国家统计局. 中国统计年鉴 2005—2017 [M]. 北京: 中国统计出版社, 2005-2017.
- [16] 中华人民共和国国家统计局. 中国能源统计年鉴 2005—2017 [M]. 北京: 中国统计出版社, 2005-2017.
- [17] 涂华, 刘翠杰. 标准煤二氧化碳排放的计算[J]. 煤质技术, 2014, 29(2): 57-60.

The Impact Evaluation of the Consumption of Main Types of Energy in China on Carbon Emission Intensity Based on LSDV Estimation

WEI Ran^{1,2}

(1. Systems and Industrial Engineering Technology Research Center, Zhongyuan University of Technology, Zhengzhou 450001, China; 2. Department of Economics and Management, Zhongyuan University of Technology, Zhengzhou 450001, China)

Abstract: The data in China stats yearbooks (2015-2017) was examined to explore the impact of consumption of main types of energy on carbon emission intensity. The Influence of main types of energy consumption on carbon emission intensity between 2005-2017 China statistical yearbooks were evaluated with the fixed effect model based on LSDV estimation and Hausman Test. The results showed that consumptions of different types of energy had different effects on carbon emissions intensity from 2004 to 2016 in China. Five types energy consumption, coal, coke, gasoline, diesel oil, and natural gas, played positive role to the increase of carbon emission intensity. Other variables, types energy such as crude oil consumption, fuel oil consumption, and kerosene consumption played opposite role in carbon emission. Moreover, change of population had the most significantly favorable influence on decrease of carbon emission intensity. Unfortunately, per capita GDP and coal consumption contributed to increase the carbon emission intensity in China during the studied period.

Key words: LSDV estimation; effects evaluation; panel data; carbon emission intensity; energy consumption

文章编号: 1671-6833(2019)02-0092-05

环境湿度对 FAIMS 检测性能的影响

杜正¹, 王学峰², 左国民², 朱迎男³, 高适², 张立功², 张永谦², 刘海鹏²

(1. 中国人民解放军 92609 部队, 北京 100077; 2. 陆军防化学院, 北京 102205; 3. 天津大学 化工学院, 天津 300350)

摘要: 非对称场离子迁移谱 (FAIMS) 在化学检测领域最具优势, 研究价值巨大且应用前景广阔. 本文简要介绍了 FAIMS 技术工作原理, 以及当前的研究与应用情况. 同时, 本课题利用自行设计并组装的实验装置, 测定了不同湿度下 FAIMS 信号强度与出峰位置等相关参数. 在实验湿度范围内, 在 $DF = 50\%$ 时, 峰值与相对湿度呈线性关系; 三维图谱中 PIP 均连续; PIP 位置补偿电压值随湿度的增大而略有增大. 为选择 FAIMS 检测的最佳环境湿度提供了数据支持.

关键词: FAIMS; 原理; 化学检测; 应用; 湿度

中图分类号: O657; TH843 **文献标志码:** A **doi:** 10.13705/j.issn.1671-6833.2019.02.014

0 引言

近年来, 全球范围的恐怖事件频发且有愈演愈烈之势. 我国面临的反恐形势同样严峻. 军用毒剂和有毒有害工业化学品, 被恐怖分子广泛使用, 对全球公共安全产生严重威胁. 准确、快速、便捷的侦检技术一直是化学检测领域的研究热点. 目前, 主流的便携式化学检测装备有: 便携式气相色谱-质谱 (GC-MS)、离子迁移谱 (IMS)、金属氧化物半导体 (MOS) 传感、光离子化检测 (PID)、火焰光度检测 (如: AP4C)、电子俘获检测器 (ECD) 等^[1]. 这些技术设备可以不同程度地满足事发现场毒剂的甄别与监测, 但也存在技术性缺陷. 便携式 GC-MS 价格昂贵, 检测周期偏长; PID、MOS 和 ECD 检测技术抗干扰性和可靠性不够好, 难以满足复杂环境条件下的检测. 综合比较, 离子迁移谱可作为复杂环境下毒剂动态监测的优选技术. 传统离子迁移谱仍然存在微型化难度大, 分辨率不够高的问题^[1]. 近年来, 非对称场离子迁移谱 (FAIMS, field asymmetric waveform ion mobility spectrometry) 技术得到了快速发展, FAIMS 是一种芯片级检测技术, 能够高效分离干扰气体分子与待检测目标分子, 提高选择性和信噪比. 因此, 此类技术开发对提升我国化学检测和化学公共安全

全事件的处置水平具有重要意义.

1 FAIMS 工作原理与特点

1.1 工作原理

FAIMS 技术是基于 Mason 与 McDaniel 发表于 1973 年的实验研究^[2]. 1993 年, 该技术首先由 Buryakov 等学者用于多原子离子的分离^[3]. 与 IMS 结构类似, FAIMS 仪器主要分为进样器、离子化区、迁移区、检测器 4 部分^[3]. FAIMS 仪器的核心部件即为迁移区的两块电极板.

FAIMS 主要利用高场强下离子迁移率会随电场强度变化的特性来分离不同种类的化合物. 其工作基础来自于离子迁移率 (K) 在高电场下的非线性变化 $\Delta K/K$, 也被称为迁移率非线性函数, 如图 1(a) 所示, 反映了离子分子微观碰撞属性, 因此也被称为“离子指纹”. FAIMS 迁移管的基本结构及工作方式如图 1(b) 所示. 间距为 d 的平行电极及相应的支撑结构构成可施加电场的气流及离子流通道, 产生高频高幅值不对称电场 (常压下其幅值通常大于 10 000 V/cm, 频率为 MHz 量级), 称为分离电压 (DV), 筛选离子使其选择性通过平行电极迁移管的电压称为补偿电压 (CV), 通过迁移芯片的离子流与补偿电压构成 CV-I 的 FAIMS 谱图. 谱图峰位置即顶点处的 CV, 如图 1

收稿日期: 2018-05-24; 修订日期: 2018-08-16

基金项目: 国家自然科学基金资助项目 (61674172); 国家重点研发计划重大共性关键技术课题 (2016YFC0801301)

通信作者: 王学峰 (1963—), 男, 安徽亳州人, 陆军防化学院特种污染环境监测站研究员, 博导, E-mail: uxwangxu@sohu.com.

(c) 所示. 离子流在射频电压(DV)作用下,因非线性函数特性的不同在电场方向分离;在CV的作用下,或者流向电极被中和,或者随载气流出迁移区. 通过不同DV下的CV-I谱图分析,便可以得到离子非线性函数特性,进而在离子分离的基础上实现对离子的识别.

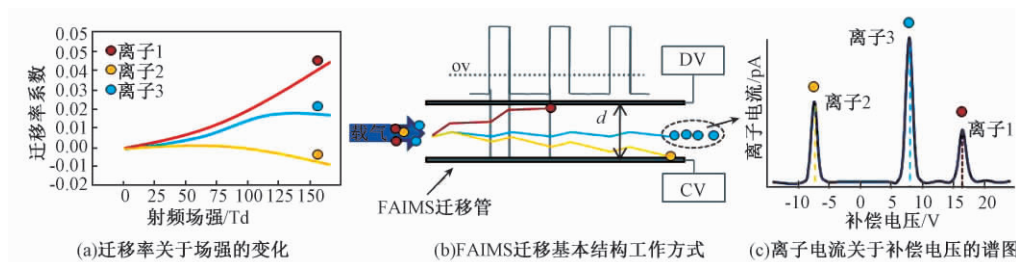


图1 FAIMS 工作原理、工作方式及谱图

Fig.1 FAIMS' operating principle, mode and spectrogram

FAIMS 谱图分为三维和二维两种形式. 三维图谱通常是在若干个不同的 E_{RF} 值(或 E_{RF}/N 值, $Td, 1 Td = 1 \times 10^{-17} V \cdot cm^2$; N 为单位体积内气体分子数量密度, cm^{-3}) 条件下分别对 U_{CV} 进行扫描而获得,其图谱的横轴表示 U_{CV} (或 E_{CV}/N) 的值,纵轴表示 E_{RF} (或 E_{RF}/N),图谱的颜色表示离子电流的信号强度. 根据三维图谱,可选定某一固定的射频电场,生成该射频电场条件下信号强度随补偿电压的变化关系图像,即 FAIMS 二维形式的图谱,亦可同时将多个不同射频电场强度下的二维图谱同时置于同一图中,如图2所示.

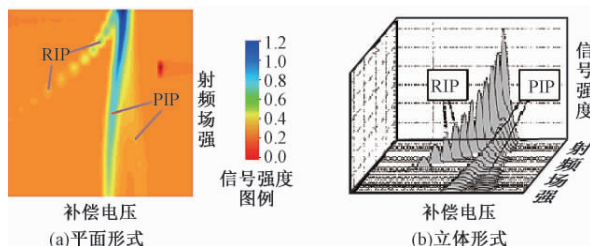
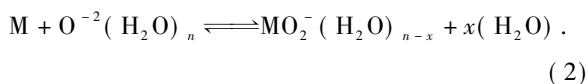
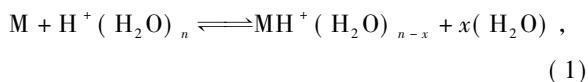


图2 典型 FAIMS 谱图

Fig.2 Typical spectrogram of FAIMS

FAIMS 的工作模式可分为正模式和负模式. 两种模式的主要区别在于离子化区所发生的反应以及在检测器上产生信号的离子. 样品分子(M)会与反应物离子碰撞生成产物离子^[4],从而在谱图中形成反应物离子峰(RIP)和产物离子峰(PIP). 反应如下^[4]:



1.2 FAIMS 的技术特点

①相比于传统 IMS, 结构简单, 易于微型化; ②离子的运动轨迹呈折线, 运动路径更长, 分辨率更高; ③FAIMS 中运动的是连续的离子束, 而不

是由离子门控制的脉冲式离子束, 故灵敏度更高; ④FAIMS 适用的领域及监测对象更加广泛, 从民用到军用, 从小分子物质(如 TNT 及沙林、芥子气等)到大分子物质(如蛋白质)均可.

2 FAIMS 技术的发展与应用

FAIMS 技术与传统低场离子迁移谱 IMS 相比, 在检测分辨率和检测限方面有明显的优势. 其性能提升方面的研究主要集中在两方面, 一是解决样品高效离子化的问题, 二是提高离子高分辨分离检测性能.

作为 FAIMS 离子源主要有: 放射性离子化、电晕放电离子化及大气压辉光放电离子化等. 放射性(如 ^{63}Ni 等)离子源简单、稳定、方便, 可以提供可靠的化学离子化特征, 但是, 其 β 射线的离子化效率相对较低, 导致响应线性范围较窄, 而且由于具有放射性, 在应用中受到了诸多限制^[5]. 电晕放电离子化是利用极不对称电场下的气体放电使样品分子电离的方式, 这类离子源结构简单, 通常采用针-板结构^[6], 其放电产生的离子流强度可达 ^{63}Ni 的 10 倍, 是一种高效的离子化方法, 提高了离子利用率. 刘坤等^[7]基于微机电系统 MEMS 工艺开发出了一种新型敞开式直流电晕放电化学离子源, 性能稳定, 实现了多种化学品的灵敏检测. 大气压辉光放电离子源是一种新型离子源, 与电晕放电相比, 大气可以产生更多的反应离子, 有效提高离子化效率从而提高检测灵敏度, 对环境中痕量化学品的检测具有明显优势^[8].

在离子的分离与检测方面, 高场不对称波形离子迁移谱利用迁移率非线性效应提高了分辨率, 通过连续进样来提高检测灵敏度. 增加分离电场强度是提高 FAIMS 分辨率最有效的手段, 可以通过提高分离电压或缩小迁移沟道间距来实现.

2001 年 Eiceman 研究小组首先提出了基于 MEMS 的 FAIMS^[9], 2008 年英国 Owlstone 公司首次提出了一种新的 FAIMS “Chip”^[10], 沟道宽度为 35 ~ 100 μm . 2012 年 Owlstone 公司开发出手持式 FAIMS, 整个仪器的大小为 12 cm \times 12 cm \times 15 cm, 质量仅为 1.2 kg^[11]. 2015 年, Owlstone 推出基于 LIGA 工艺的 FAIMS 芯片. 芯片选用高导电金属, 可以大大减少电荷累积效应, 其设计的沟道宽 100 μm , 长 700 μm ^[12]. Miller 等^[13] 利用微机电系统(MEMS)技术研发了一种新型的 FAIMS, 由一个长方体迁移管和一套平行电极组成, 其迁移管尺寸为 3 cm \times 1 cm \times 0.2 cm, 并检测到了浓度低至 100 mg/m^3 的甲苯蒸气. 清华大学唐飞和王晓浩^[14]、中国科学院孔德义等^[15-16] 均研究了基于平行极板的 FAIMS 迁移芯片结构, 也获得了较高的灵敏度和分辨率.

FAIMS 用于化学战剂检测的报道虽然相对较少, 但研究结果均表现出较高的灵敏度. 据报道, 美国矿井安全设备有限公司曾经投入市场的一种基于 FAIMS 技术的检测设备对沙林和光气的检测下限分别为 8 mg/m^3 和 4 mg/m^3 ^[5, 17]. Owlstone 公司开发的 Nexsense C 对化学战剂及模拟剂具有较好的检测性能^[17].

3 FAIMS 湿度实验

3.1 实验目的

FAIMS 的检测过程与结果受到电离源种类、样品温度、载气种类、载气流率、载气湿度等多种因素的影响. 湿度是重要的环境因素之一, 且湿度的影响也成为离子迁移谱研究之中的热点. 本实验通过记录湿度大小与 FAIMS 信号强度与出峰位置等参数, 研究二者之间的关系, 旨在确定适宜的 FAIMS 检测湿度条件, 并为检测环境湿度提供数据支持.

3.2 实验装置与操作

自行设计并搭建的装置如图 3 所示. 考虑到实验消耗空气量较大, 为减少因频繁更换钢瓶对实验造成的影响, 本实验采用空气发生装置产生空气气流, 所发生的气流已分别经过三道活性炭及分子筛吸附过滤装置处理, 且又经过沉降除尘操作(以上过滤吸附、除尘流程均在空气发生装置中进行), 以避免尘粒进入管路及实验设备, 所发生的空气气流又通入 FAIMS 进行测试, 所产生的背景图谱较为干净, 满足实验要求. 进入实验体系的气流大小由阀门控制. 气流首先通过分子筛/

活性炭过滤装置, 以去除空气中多余的水分和微小颗粒物. 将细的聚四氟乙烯管置于恒温水浴锅中, 极少量的水蒸气可透过管壁进入管路. 通过对水浴锅按照由低到高的顺序设定不同的水浴温度, 可控制进入管路的水蒸气的量, 从而产生不同湿度. 露点仪主要借助半导体制冷的方法, 测定出含水蒸气的空气的露点, 进而通过露点和体系压力, 可计算出空气的湿度. 经稀释的气体通过膜过滤装置进一步去除微小颗粒物后, 进入 FAIMS 仪器进行测定, 而后排出. 每调节至一个新的水浴温度时, 先使水温上升并稳定到设定值(一般需 10 ~ 15 min, 温度示数波动不超过 ± 0.1 $^{\circ}\text{C}$ 方认为稳定), 而后等待露点仪示数稳定(一般需再等待 10 min, 露点仪示数上下波动总幅度不超过 0.3 $^{\circ}\text{C}$ 方认为稳定), 再使 FAIMS 仪器稳定至少 30 min, 取此后的 10 幅 FAIMS 图谱进行分析.

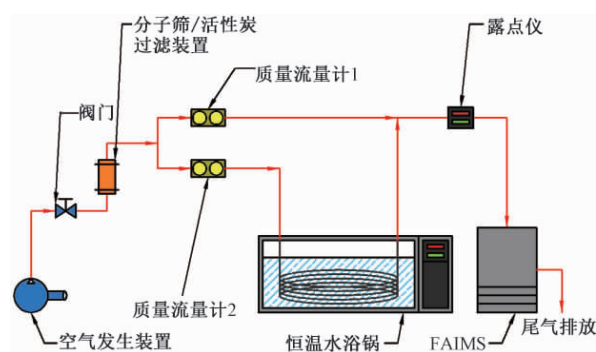


图3 实验装置示意图

Fig.3 Schematic diagram of experimental apparatus

3.3 实验条件及参数

FAIMS 检测仪型号: Owlstone 公司生产的 LonestarTM 型. 本研究团队对芯片进行了进一步优化设计; 流量控制器 1 设定值: 2 000 mL/min; 流量控制器 2 设定值: 15 mL/min; 水浴锅设定温度: 35.0、45.0、55.0、65.0、75.0、85.0、95.0 $^{\circ}\text{C}$; $U_{\text{RF max}}$: 43.0 V; U_{RF} 频率: 25 MHz; DF 值设定变化范围: 20.0% ~ 80.0%; $E_{\text{RF max}}$: 1.23 kV/cm; $(E_{\text{RF}}/N)_{\text{max}}$: 185.91 Td; DF 扫描密度: 30 条; CV 值扫描范围: - 6.0 V ~ + 6.0 V; 每幅三维图谱完成扫描用时: 100 s; 芯片核心温度: 70.0 $^{\circ}\text{C}$; 芯片沟道宽度(即两电极之间间距): 35 μm ; 室温: 27.0 $^{\circ}\text{C}$; 室内气压: 1.0 atm; 电离源: 放射源 ^{63}Ni . 13X 型球形分子筛参数: 直径 1.0 ~ 1.6 mm, 粒度 $\geq 96\%$, 堆密度 0.60 g/mL, 磨耗率 $\leq 0.20\%$, 静态水吸附 $\geq 25\%$. 木质颗粒状活性炭参数: 灰分 $\leq 6\%$, 碘值 $\leq 1\,000$ mg/g, 堆密度 0.34 g/mL, BWC ≥ 10 g/(100 mL), 目数 6 \times 8.

3.4 实验结果与分析

水浴锅未加水且未加热和水浴温度 35.0 ℃ 条件下的正模式图谱分别如图 4 所示.

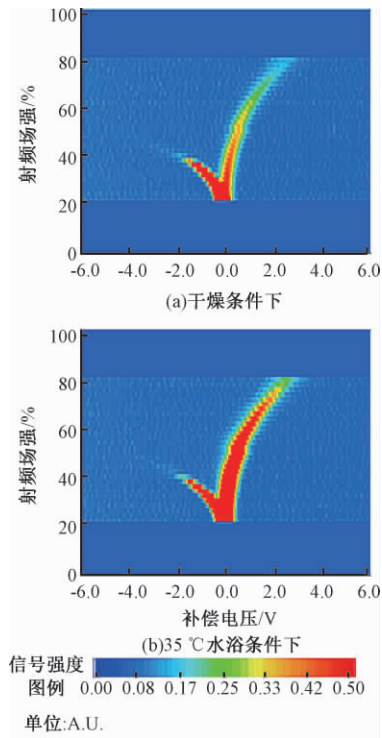


图 4 干燥和 35 ℃水浴条件下正模式谱图
Fig. 4 Spectrogram obtained under dry and 35 ℃ water bath condition, respectively

如上文所述,取露点仪稳定后 FAIMS 仪器再稳定至少 30 min 后的 10 幅图谱进行分析. 对其中正模式 DF = 50% 时的峰位置及峰值取平均值,再计算得出各个设定水浴温度下进入 FAIMS 的 空气的相对湿度,可得表 1.

表 1 湿度与信号关系

Tab.1 Relationship between humidity and signal intensity

露点仪示数 /℃	相对湿度 / %	CV 值 / V	峰值 / (A. U.)
-45.2	0.309	0.458 309	0.759 968
-43.1	0.387	0.458 309	0.765 773
-38.2	0.644	0.481 794	0.945 754
-34.4	0.940	0.481 794	1.001 697
-30.0	1.434	0.481 794	1.196 028
-24.5	2.376	0.481 794	1.525 369
-19.3	3.745	0.528 764	2.087 565

根据表 1 可得出信号强度与相对湿度关系回归图,如图 5 所示.

实验过程中发现,同一幅三维图谱中,增加 DF 值会使 PIP 的位置(补偿电压)逐渐增大,表明实验条件下水蒸气所生成的产物离子的迁移率

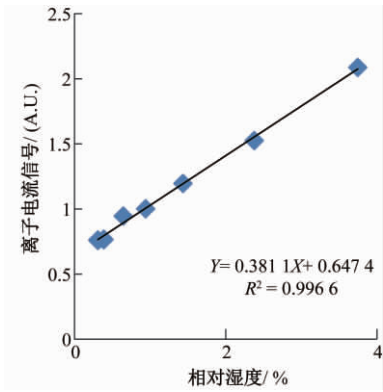


图 5 信号强度与相对湿度回归关系
Fig. 5 Result of regression analysis of humidity and signal intensity

K 随着射频场强的变化而变化. PIP 信号强度随补偿电压的增大而减小,说明随着射频场强的增强,未到达检测元件的离子数量减少,大部分离子运动至迁移区极板,被中和后随气流而离开迁移区. 三维图谱中 PIP 均较为连续,表明实验条件下未出现离子转化(即电离区生成的离子在迁移区进一步发生反应生成其他种类离子或电中性分子). 实验湿度范围内,PIP 的数量只有 1 个,实验湿度范围内未检测出其他种类的产物离子. 从表 4 中还可注意到,DF = 50% 时的 PIP 位置补偿电压值随湿度的增大而略有增大. 根据上文中式 (1)、(2),推测其原因在于湿度增大导致所生成的产物离子中络合的水分子数量即 $(n-x)$ 的值发生变化,即产物离子种类发生变化,但由于 PIP 位置变化幅度很小,则可认为在实验湿度范围内,该影响可以忽略不计. 从图 5 中可以看出,在实验条件下,DF = 50% 时的峰值与相对湿度呈现线性关系.

高湿度条件下,可能会造成 FAIMS 迁移区间隙湿度同样增大而被击穿,且 FAIMS 检测元件信号饱和,影响检测器元件的使用寿命,故实验中未采用更高湿度.

4 结论

本课题自行设计并组装一套实验装置,用以测定不同湿度下,FAIMS 信号强度与出峰位置等相关参数,进而研究湿度大小与 FAIMS 检测性能之间的关系. 实验结果表明,在实验条件下,水蒸气所生成的产物离子的迁移率 K 随着射频场强的变化而变化. 在 DF = 50% 时,峰值与相对湿度呈现线性关系. 由于湿度增大,使得产物离子种类发生变化,因此,PIP 位置补偿电压值随湿度的增大而略有增大. 实验湿度范围内,三维图谱中 PIP

均连续,表明未检测出其他种类产物离子.本课题研究为选择 FAIMS 检测的最佳环境湿度提供了数据支持.

参考文献:

- [1] PUTON J, NAMIEŚNIK J. Ion mobility spectrometry: current status and application for chemical warfare agents detection [J]. *TrAC trends in analytical chemistry*, 2016(85): 10 – 20.
- [2] 吴福民. 高场非对称波形离子迁移谱关键技术研究 [D]. 成都: 电子科技大学空天科学技术研究院, 2012.
- [3] 林丙涛. 高场非对称波形离子迁移谱技术研究 [D]. 合肥: 中国科学技术大学工程学院, 2010.
- [4] ZHANG J, LI L, GUO D, et al. Determination of hazardous chemicals by microchip-based field asymmetric ion mobility spectrometric technique [J]. *Chinese journal of analytical chemistry*, 2013, 41(7): 986 – 992.
- [5] EICEMAN G A, KARPAS Z, HILL JR H H. Ion mobility spectrometry [M]. CRC press, 2013: 128.
- [6] 王静, 蔡忆昔, 包伟伟, 等. 针-网式离子风发生器的散热研究 [J]. *郑州大学学报(工学版)*, 2016, 37(3): 88 – 91.
- [7] 刘坤, 唐飞, 王晓浩, 等. 一种用于高场非对称波形离子迁移谱系统的新型敞开式化学离子源 [J]. *物理化学学报*, 2009, 25(8): 1662 – 1670.
- [8] PORTOLÉS T, SALES C, ABALOS M, et al. Evaluation of the capabilities of atmospheric pressure chemical ionization source coupled to tandem mass spectrometry for the determination of dioxin-like polychlorobiphenyls in complex-matrix food samples [J]. *Analytica chimica acta*, 2016, 937: 96 – 105.
- [9] MILLER R A, NAZAROV E G, EICEMAN G A, et al. A MEMS radio-frequency ion mobility spectrometer for chemical vapor detection [J]. *Sensors and actuators A: physical*, 2001, 91(3): 301 – 312.
- [10] BOYLE B, KOEHL A, RUIZ-ALONSO D, et al. A MEMS fabricated device for field asymmetric ion mobility spectrometry [C] // *Proceedings of the 59th pittcon conference*, New Orleans, LA, 2008.
- [11] SCHNEIDER B B, COVEY T R, COY S L, et al. Planar differential mobility spectrometer as a pre-filter for atmospheric pressure ionization mass spectrometry [J]. *International journal of mass spectrometry*, 2010, 298(1): 45 – 54.
- [12] TOUTOUNGI D, HART M, SOMERVILLE J, et al. Field asymmetric ion mobility spectrometry filter [M]. Google patents, 2016.
- [13] MILLER R A, EICEMAN G A, NAZAROV E G, et al. A novel micromachined high-field asymmetric waveform-ion mobility spectrometer [J]. *Sensors and actuators B: chemical*, 2000, 67(3): 300 – 306.
- [14] 李华, 王晓浩, 唐飞, 等. 一种微型 FAIMS 传感器芯片的研制 [J]. *物理化学学报*, 2010, 26(5): 1355 – 1363.
- [15] 林丙涛, 陈池来, 孔德义, 等. 载气流速对高场非对称波形离子迁移谱的影响 [J]. *分析化学*, 2010, 38(7): 1027 – 1030.
- [16] 陈池来, 赵聪, 王电令, 等. 基于 MEMS 的新型高场非对称波形离子迁移谱仪 [J]. *微纳电子技术*, 2011, 48(2): 112 – 117.
- [17] 夏治强. 化学武器防御与销毁 [M]. 北京: 化学工业出版社, 2014: 305 – 312.

The Effect of Humidity on FAIMS Detection Performance

DU Zheng¹, WANG Xuefeng^{2*}, ZUO Guomin², ZHU Yingnan³, GAO Shi², ZHANG Ligong², ZHANG Yongqian², LIU Haipeng²

(1. Unit No. 92609 of PLA, Beijing 100077, China; 2. Institute of NBC Defence, Beijing 102205, China; 3. School of Chemical Engineering and Technology, Tianjin University, Tianjin 300350, China)

Abstract: The technology of high field asymmetric ion mobility spectrometry (FAIMS) with both huge research value and broad application, had great advantages in the field of chemical detection. The principles of FAIMS technology were briefly introduced in this paper, as well as the current research update and applications. In this study, a set of self-designed apparatus was built and used for the determination of a series of FAIMS parameters in different humidity conditions. Within the experimental range of humidity, the peak values were linear to the humidity when DF = 50%; the signals of PIP were continuous in 3D spectrogram; the values of compensation voltage in the position of PIP increased with the increase of humidity. The results provided data support for optimizing the environmental humidity during the determination using FAIMS.

Key words: FAIMS; principles; chemical detection; application; humidity

《郑州大学学报(工学版)》征稿简则

1. 刊登内容

本刊主要刊登机械、电气、信息、水利、化工、土木、交通、材料、环境工程等学科领域的学术论文。

2. 投稿要求

(1) 原创性论文,有创新性,主题明确、结构完整、论据可靠、论证合理、层次分明、逻辑严密、文字精炼、可读性强。

(2) 投稿具有合法性,不存在抄袭、剽窃、侵权等不良行为;来稿未在任何正式出版物上公开发表过,不允许一稿多投。

(3) 请严格遵守国家有关保密规定,不泄漏国家机密。

(4) 稿件请用 Word 编辑排版,若系基金资助课题,请在首页地脚处注明(包括项目编号)。

(5) 文稿格式要求规范、项目齐全,按顺序给出:题目(一般不超过 20 字),作者(包括工作单位含二级机构、邮编),摘要(包括研究的目的、方法、结果和结论四要素,200~300 字,内容应具体、准确,切忌空洞和主观评价),关键词(3~8 个),中图分类号,正文(包括图、表,6000 字左右为宜),参考文献,英文信息(摘要与中文摘要一一对应,包括英文题目、作者姓名、单位、地址、邮编及关键词),并在首页地脚处注明第一作者和/或通信作者简介(包括出生年、性别、籍贯、职称、学位、研究方向、电子邮箱和电话)。

(6) 物理量的符号和法定计量单位必须符合国家标准、国际标准。例如,物理量的符号用斜体,单位要用正体;矩阵、向量、矢量、张量等,用黑斜体表示。

(7) 文中图、表只附必要的,图、表应有中、英文图题和表题,小图、表宽度不超过 75 mm,大图、表宽度 120~150 mm;插图的纵、横坐标的标目(物理量的符号和单位)要齐全;表格采用三线表。应按标准方式标注,如:时间的标注方式应为 t/s 或 t/min 或 t/h ,速度的标注方式应为 $v/(m \cdot s^{-1})$ 。

(8) 参考文献须在文中标引,并按在文中引用的次序排序;按照 GB/T 7714—2015 著录:

期 刊 [序号] 作者. 题名[J]. 刊名,年,卷(期):起止页码.

专 著 [序号] 作者. 题名[M]. 出版地:出版社,出版年:起止页码.

学位论文 [序号] 作者. 题名[D]. 保存地:保存单位(包括二级学院/系),年份.

论文集 [序号] 作者. 题名[C]. 出版地:出版者,出版年:起止页码.

析出文献 [序号] 作者. 题名[C]//源文献. 出版地:出版者,出版年:起止页码.

标 准 [序号] 起草单位. 标准编号 标准名称[S]. 出版地:出版社,出版年.

专 利 [序号] 专利所有者. 题名:专利号[P]. 日期.

电子文献 [序号] 作者. 电子文献题名[J/OL]. 刊名,年,卷(期):起止页码. 发表或更新日期/引用日期(任选). 电子文献的出版或可获得地址.

3. 投稿方法

请登录《郑州大学学报(工学版)》网站(<http://gxb.zzu.edu.cn/>)进行在线投稿(需要先注册)。同一篇稿件只需投稿一次,以免系统给出多个编号,如果要修改请登录按照提示提交修改稿。若需查询稿件处理状况,请通过“作者登录”进行查询。

4. 作者须知

本刊实行三审制,双盲式同行评议。一般审稿周期为 6 周左右,论文刊发以后给作者赠送当期样刊。本刊已经加入“中国知网”、“万方数据——数字化期刊群”等数据库和检索机构,所付作者稿酬中已包含其著作权使用费,不再另付。如作者不同意,请在来稿时说明,本刊将做适当处理。本刊编辑部使用“科技期刊学术不端文件检测系统”,请作者规范投稿,维护自身及期刊的良好声誉,如果造成“重复发表”,将择期发出撤消论文通告,并在今后 5 年内拒收来稿,通报作者单位,取消论文效用。

5. 联系地址

通信地址:(450001) 郑州市高新区科学大道 100 号郑州大学学报(工学版)编辑部

联系电话:0371—67781276 / 67781277, E-mail: gxb@zzu.edu.cn

本刊被下列数据库及文摘收录:

- 美国《化学文摘》(CA)
- 俄罗斯《文摘杂志》(AJ)
- 英国《科学文摘》(SA)
- 美国《数学评论》(MR)
- 美国《剑桥科学文摘》(CSA)
- 波兰《哥白尼索引》(IC)
- 《中国学术期刊(光盘版)》
- 《中国科技论文统计源》
- 《中文科技期刊数据库》
- 《中国期刊网》
- 《中国学术期刊综合评价数据库》
- 《万方数据系统》
- 《中国机械工程文摘》
- 《中国数学文摘》
- 《中国化学化工文摘》
- 《中国无机分析化学文摘》
- 《中国力学文摘》
- 《中国物理文摘》
- 《工程机械文摘》
- 《中国学术期刊文摘》
- 《电子科技文摘》

郑州大学学报(工学版)
Zhengzhou Daxue Xuebao (Gongxueban)
双月刊 (1980年创刊)
第40卷 第2期 总第164期 2019年3月10日

Journal of Zhengzhou University
(Engineering Science)
Bimonthly (Started in 1980)
Vol.40 No.2 Sum No.164 Mar.10, 2019

主管单位 河南省教育厅
主办单位 郑州大学
出版单位 《郑州大学学报(工学版)》编辑部
电子信箱 gxb@zzu.edu.cn
地 址 河南省郑州市科学大道100号(450001)
电 话 (0371)67781276 67781277
主 编 李燕燕
副 主 编 梁 静
印刷单位 山西同方知网印刷有限公司
发行范围 国内外公开发刊
征 订 处 全国各地邮政局
发行单位 河南省邮政发行局

Administrated by The Education Department
of Henan Province
Sponsored by Zhengzhou University
Edited & Published by Editorial Board of Journal of
Zhengzhou University
E-mail gxb@zzu.edu.cn
Address No.100 Science Avenue, Zhengzhou 450001, China
Telephone (0371)67781276 67781277
Chief Editor LI Yanyan
Executive Chief Editor LIANG Jing
Printed by Shanxi Tongfang Knowledge Network Printing Co., Ltd
Distributed by Publishing Trading Corporation,
P.O.B.782, Beijing 100011, China

中国标准刊号: ISSN 1671-6833
CN 41-1339/T

定价: 20.00元

邮发代号: 36-232