

پیش بینی خواص مکانیکی نانوکامپوزیت های پلی اتیلن سبک - نشاسته گرمانرم با استفاده از سامانه استنتاج فازی - عصبی تطبیقی

مجله علوم و تکنولوژی پلیمر،
سال بیست و پنجم، شماره ۳،
صفحه ۱۸۰-۱۷۱، ۱۳۹۱
ISSN: 1016-3255
Online ISSN: 2008-0883

مریم ثابت زاده^۱، روح اله باقری*^۲، مریم شهریار کاهکشی^۲

اصفهان، دانشگاه صنعتی اصفهان، کدپستی ۸۳۱۱۱-۸۱۵۶:

۱- دانشکده مهندسی شیمی، گروه مهندسی پلیمر، ۲- دانشکده مهندسی برق و کامپیوتر، گروه مهندسی برق

دریافت: ۹۰/۹/۲۱، پذیرش: ۹۱/۴/۱۳

چکیده

رفتار مکانیکی نانوکامپوزیت های پلی اتیلن سبک - نشاسته گرمانرم با استفاده از سامانه استنتاج فازی - عصبی تطبیقی بررسی شده است. بدین منظور، کامپوزیت های پلی اتیلن سبک - نشاسته گرمانرم حاوی مقادیر مختلف (صفر تا ۳ درصد وزنی) نانوکاکرس (Cloisite 15A) با استفاده از فرایند اکستروژن تهیه شد. در عمل، انجام آزمون های مختلف برای تشخیص ارتباط میان پارامترهای فرایندی اکستروژن و خواص مکانیکی نانوکامپوزیت ها بسیار مشکل است. در این پژوهش، سامانه استنتاج فازی - عصبی تطبیقی (ANFIS) برای ایجاد نگاشت غیرخطی میان پارامترهای فرایندی و خواص مکانیکی نانوکامپوزیت ها به کار گرفته شد. مدل انفیس به دلیل داشتن قابلیت استنتاج و استدلال سامانه های فازی و خاصیت یادگیری شبکه های عصبی، می تواند به عنوان مدل چندورودی - چندخروجی برای پیش بینی خواص مکانیکی نانوکامپوزیت ها مانند استحکام کششی نهایی، از دیاد طول تا پارگی، مدول یانگ و استحکام ضربه ای نسبی به کار رود. در مدل پیشنهادی گشتاور فرایندی، دما و مقدار نانوکاکرس کلویزیت 15A به عنوان پارامترهای ورودی برای پیش بینی خاصیت مکانیکی مدنظر استفاده شدند. نتایج به دست آمده در این پژوهش نشان می دهد، مدل انفیس پیشنهادی روش مؤثر و هوشمندی برای پیش بینی خواص مکانیکی نانوکامپوزیت های پلی اتیلن سبک - نشاسته گرمانرم با دقت خوبی است. کیفیت آماری مدل انفیس به دلیل داشتن معیار میانگین مجذور مربع خطای قابل قبول و ضریب همبستگی خوب (مقادیر R^2 بیشتر از ۰/۸) بین خروجی های تجربی و شبیه سازی شده، مورد پذیرش است.

واژه های کلیدی

پیش بینی،
نانوکاکرس،
دما،
گشتاور،
خواص مکانیکی

* مسئول مکاتبات، پیام نگار:

bagheri@cc.iut.ac.ir

مقدمه

پلی‌اتیلن سبک (LDPE) که به سختی در طبیعت تخریب می‌شود، از متداول‌ترین پلاستیک‌های گرمانرم برای کاربردهای بسته‌بندی است. علت این موضوع سهولت دسترسی، فرایندپذیری آسان، انعطاف‌پذیری، خواص نوری بهبودیافته و خواص مکانیکی مطلوب است. بنابراین، استفاده از آن در تولید محصولات یک‌بار مصرف یا بسته‌بندی منجر به ایجاد مشکلات زیست‌محیطی جدی می‌شود. از این رو، توجه زیادی به افزایش خواص زیست‌تخریب‌پذیری پلی‌اتیلن به کمک مخلوط کردن آن با پلیمر طبیعی ارزان‌قیمت به وجود آمده است [۱،۲].

نشاسته پلیمری ارزان، طبیعی، دسترس‌پذیر و تجدیدپذیر است که پایداری گرمایی مناسب، حداقل تداخل با خواص جریان و کمترین اختلال را در کیفیت محصول فراهم می‌کند. Griffin برای اولین بار ایده استفاده از نشاسته گرانولی را به عنوان پرکننده در سامانه کامپوزیتی پلی‌اتیلن، برای افزایش زیست‌تخریب‌پذیری آن مطرح کرد [۳،۴].

از طرف دیگر، امروزه تهیه نانوکامپوزیت‌های پلیمر - سیلیکات لایه‌ای با هدف بهبود و افزایش خواص و نیز تولید موادی با کارایی بیشتر بسیار مورد توجه قرار گرفته است. این نانوکامپوزیت‌ها دسته‌ای از پلیمرهای تقویت‌شده حاوی مقادیر کمی خاک‌رس با ابعاد نانومتری هستند. خواص این نوع مواد به‌طور قابل ملاحظه‌ای نسبت به کامپوزیت‌های معمولی افزایش یافته است [۵]. خواص بهبودیافته شامل استحکام کششی تقویت‌شده [۶]، مدول زیاد [۷]، پایداری گرمایی و ابعادی مناسب، نفوذپذیری کاهش‌یافته در برابر گازها و مایعات و نیز زیست‌تخریب‌پذیری افزایش‌یافته در پلیمرهای زیست‌تخریب‌پذیر است [۸]. مهم‌ترین دلیل برای این خواص بهبودیافته برهم‌کنش بین سطحی بین ماتریس پلیمر و نانوذرات است که یکی از عوامل بحرانی در دست‌یابی به خواص عالی است [۹].

در سال‌های اخیر، مدل‌سازی و پیش‌بینی خواص ویژه در مهندسی پلیمر توجه پژوهشگران زیادی را به این موضوع جلب کرده است. به دلیل پیچیدگی فرایند اکستروژن، مدل‌های ریاضی زیادی برای توصیف این فرایند پیشنهاد شده است. امروزه، ابزارهای مدل‌سازی جدیدی مانند مدل‌سازی فازی (Fuzzy) در شبکه‌های عصبی استفاده شده‌اند. در منطق فازی دانش و تجربه متخصص برای به‌دست‌آوردن مدلی مناسب از فرایند، به کار گرفته می‌شود. از سوی دیگر، شبکه‌های عصبی به دلیل دارا بودن قابلیت یادگیری قابلیت تقریب هر نوع تابع غیرخطی دلخواه را دارند و می‌توانند برای اهداف مدل‌سازی و شناسایی به کار روند. در سال‌های اخیر، شبکه‌های عصبی برای

شناسایی مدل‌های پیشگویانه، کنترل فرایندهای اکستروژن غذا و پلیمر استفاده شده‌اند [۱۰،۱۱].

با الهام از مفاهیم سامانه استنتاج فازی Kang-Sugeno-Takagi و قابلیت یادگیری شبکه‌های عصبی، سامانه استنتاج فازی - عصبی تطبیقی (انفیس) پیشنهاد شده است. این سامانه قابلیت ایجاد نگاشت (mapping) ورودی - خروجی بر اساس دانش بشری به شکل قوانین اگر - آنگاه فازی و مجموعه داده‌های ورودی - خروجی را برای آموزش شبکه‌های عصبی دارد. پارامترهای شبکه شامل توابع عضویت فازی و پارامترهای وزن شبکه‌های عصبی هستند که طی مرحله آموزش، طوری تنظیم می‌شوند که میانگین مجذور مربعات خطا بین خروجی مدل و خروجی واقعی حداقل شود [۱۲].

پژوهش‌های کمی درباره نانوکامپوزیت‌های پلی‌اتیلن - نشاسته گرمانرم انجام شده [۱۵-۱۳] و تاکنون گزارشی درباره تهیه و پیش‌بینی رفتار خواص نانوکامپوزیت‌های پلی‌اتیلن سبک - نشاسته گرمانرم مشاهده نشده است. در این پژوهش، پس از بررسی ساختار و شکل‌شناسی کامپوزیت‌های پلی‌اتیلن سبک - نشاسته گرمانرم حاوی مقادیر مختلف نانوخاک رس (۰/۵-۳٪) وزنی مونت‌موریلونیت اصلاح شده با مواد آلی)، رفتار خواص مکانیکی آنها با استفاده از مدل انفیس بررسی شده است. مدل انفیس برای به‌دست آوردن ارتباط بین پارامترهای فرایندی و خواص مکانیکی نانوکامپوزیت‌ها پیشنهاد شده است. بدین منظور، ابتدا مدلی مناسب بر پایه داده‌های آموزشی و قوانین فازی ایجاد شده و سپس مدل ساخته شده برای پیش‌بینی مقدار هر خاصیت مکانیکی نانوکامپوزیت‌ها به کار رفته است. در نهایت، مقدار تجربی به‌دست آمده با مقدار پیش‌بینی شده از مدل مقایسه شده و ارتباط بین آنها به شکل ضریب همبستگی نشان داده شده است.

تجربی

مواد

پلی‌اتیلن سبک (LDPE) با چگالی 0.924 g/cm^3 و شاخص جریان مذاب $4/7 \text{ g/10 min}$ از شرکت پتروشیمی آریاساسول عسلویه تهیه شد. نشاسته ذرت خالص از شرکت گلوکزان قزوین خریداری شد. پلی‌اتیلن پیوندخورده با مالئیک انیدرید (PE-g-MA) حاوی ۲٪ وزنی مالئیک انیدرید در آزمایشگاه تهیه و به عنوان سازگارکننده استفاده شد. گلیسرول نیز از شرکت آلمانی Hansa فراهم شد. مونت‌موریلونیت اصلاح شده با نام تجاری کلویزیت 15A (Cloisite® 15A) از شرکت آمریکایی Southern Clay Products تأمین شد.

جدول ۱- فرمول بندی نانوکامپوزیت های پلی اتیلن سبک - نشاسته گرمانرم.

نمونه	پلی اتیلن سبک (wt%)	نشاسته گرمانرم (wt%)	PE-g-MA (phr)*	نانو خاک رس (phr)
۱	۷۵	۲۵	۳	۰/۵
۲	۷۵	۲۵	۳	۱
۳	۷۵	۲۵	۳	۲
۴	۷۵	۲۵	۳	۳

* قسمت به ازای ۱۰۰ g از LDPE + TPCS.

شکل ورقه هایی به ضخامت ۲ mm تهیه شدند. برای این کار، ابتدا گرانول های تهیه شده در دمای ۱۵۰°C درون پرس هیدرولیک قرار گرفتند تا بدون اعمال فشار به مدت ۶ min پیش گرم شوند. سپس، در همان دما و زیر فشار ۱۰ MPa به مدت ۳ min قالب گیری شدند. در نهایت، ورقه ها با سرعت ۲۵°C/min تا دمای محیط خنک شده و از قالب جدا شدند [۱۶].

شکل شناسی نمونه ها

برای بررسی ریزساختار نمونه های تهیه شده و برای تعیین نحوه پراکنش نانو خاک رس در ماتریس پلی اتیلن سبک - نشاسته گرمانرم از آزمون پراش پرتو X (XRD) و میکروسکوپ الکترونی عبوری (TEM) استفاده شد. برای انجام آزمون XRD، مولد پرتو X در ۴۰ kV و ۴۰ mA تنظیم شد و نمونه ها در معرض پرتو X با طول موج ۰/۱۵۴ nm قرار گرفتند. پرتوهای بازتابشی از نمونه ها در دمای محیط و در محدوده زاویه ۲θ برابر ۱۰-۲۰ با سرعت ۱°/min جمع آوری و نمودار مربوط به آنها رسم شد. برای تأیید ساختارهای نانوکامپوزیتی به دست آمده از میکروسکوپی الکترونی عبوری نیز استفاده شد. تصاویر میکروسکوپی با استفاده از میکروسکوپ الکترونی عبوری به دست آمد که در ولتاژ ۲۰۰ kV عمل می کند. برای انجام آزمون میکروسکوپی، برش های بسیار نازک از نمونه ها در شرایط سرما تهیه شد.

اندازه گیری خواص مکانیکی نمونه ها

خواص کششی نانوکامپوزیت ها مانند استحکام کششی نهایی، ازدیاد طول تا پارگی و مدول یانگ مطابق با استاندارد ASTM D 638-03 و با استفاده از دستگاه کشش سنج مجهز به سلول بار ۱۰ kN و سامانه اکتساب داده ها اندازه گیری شد. نمونه های دمبلی شکل با ضخامت ۲ mm از ورقه های قالب گیری شده به روش فشاری بریده شد و با سرعت کشش ۲۰ mm/min در دمای محیط در آزمون کشش قرار

دستگاه ها

مخلوط کن داخلی Haake مدل System90 برای تهیه نشاسته گرمانرم، اکسترودر دوپیچی Brabender برای تهیه نانوکامپوزیت ها، پراش سنج پرتو X (XRD) و میکروسکوپ الکترونی عبوری (TEM) مدل Phillips CM200 برای بررسی ریزساختار و شکل شناسی نانوکامپوزیت های تهیه شده، کشش سنج مدل Zwick446-60 برای اندازه گیری خواص کششی نمونه ها، دستگاه اندازه گیری استحکام ضربه ای ایزود مدل Zwick5102 و همچنین دستگاه پرس برای تهیه نمونه از نانوکامپوزیت ها به کار گرفته شد.

روش ها

تهیه نشاسته گرمانرم

پیش از تهیه، نشاسته ذرت به مدت ۲۴ h در دمای ۸۰°C درون گرم خانه خلأ قرار داده شد تا رطوبت آن کاهش یابد. نشاسته گرمانرم از پیش اختلاط نشاسته ذرت با ۳۵٪ وزنی گلیسرول در دمای محیط به دست آمد. مخلوط تهیه شده به مدت ۲۴ h باقی ماند تا گرانول های نشاسته متورم شوند. گرانول های متورم شده سپس با استفاده از مخلوط کن داخلی به حجم ۳۰۰ mL و تیغه بنبوری در دمای ۱۴۰°C و سرعت ۶۰ rpm به مدت ۸ min به شکل مذاب مخلوط شدند. سپس، مخلوط تهیه شده از محفظه دستگاه خارج و تا دمای محیط سرد شد [۱۶].

تهیه نانوکامپوزیت های پلی اتیلن سبک - نشاسته گرمانرم

کامپوزیت هایی از پلی اتیلن سبک و ۲۵٪ وزنی نشاسته گرمانرم حاوی مقادیر مختلف نانو خاک رس (۰/۵، ۱، ۲ و ۳٪ وزنی) در یک اکسترودر دوپیچی چرخشی هم محور آزمایشگاهی Brabender با نسبت L/D برابر ۴۰/۱ به حالت مذاب تهیه شدند. سرعت پیچ اکسترودر ۱۵۰ rpm و محدوده دمایی ۱۹۰-۱۷۰°C در طول محفظه اکسترودر (از ناحیه تغذیه تا قالب) تنظیم شد. سازگار کننده در همه نمونه ها به مقدار ۳٪ وزنی بر اساس وزن کل مخلوط پلی اتیلن سبک - نشاسته گرمانرم استفاده شد. ترکیبات مختلف مجدداً در فرایند اکستروژن قرار گرفتند تا یکنواختی در آنها ایجاد شود. سپس، مخلوط در حمام آب سرد به شکل دانه های ریز خرد شد. طی فرایند اکستروژن کامپوزیت ها، گشتاور و دمای فرایند برای هر نمونه ثبت شد. فرمول بندی تهیه نمونه ها در جدول ۱ آمده است.

قالب گیری

نمونه ها با استفاده از قالب های صفحه ای با ابعاد ۱۸×۲۱۸ cm به کمک دستگاه پرس هیدرولیک در گرما، قالب گیری فشاری شده و به

قوانین اگر - آنگاه فازی به شکل زیر نشان داد (برای نمونه دو قانون در زیر آورده شده است):

قانون اول: اگر x برابر A_1 و y برابر B_1 باشد، آنگاه

$$f_1 = p_1x + q_1y + r_1$$

قانون دوم: اگر x برابر A_2 و y برابر B_2 باشد، آنگاه

$$f_2 = p_2x + q_2y + r_2$$

در ادامه پارامترهای قوانین گفته شده، معرفی می‌شوند. همان‌طور که در شکل ۱ مشاهده می‌شود، انفیس شبکه‌ای پنج‌لایه است و هر لایه گره‌های مختلف دارد و هر گره در یک لایه ثابت یا تطبیقی است. لایه‌های مختلف با گره‌های متناظر آنها به‌طور خلاصه در زیر توصیف شده‌اند:

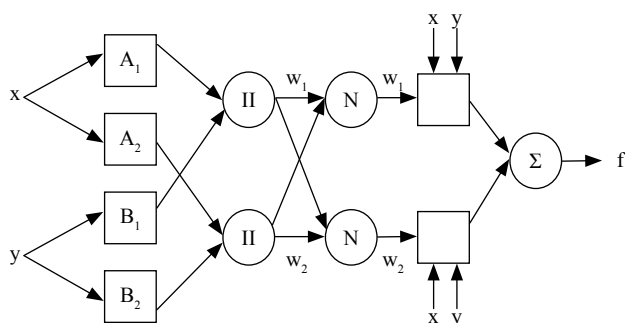
لایه اول، گره‌های ورودی: هر گره از این لایه، مقادیر عضویتی است که به هریک از متغیرهای ورودی مدل (x و y) نسبت داده می‌شود. مقادیر عضویت بر اساس تعلق ورودی‌ها به هریک از مجموعه‌های فازی A_i و B_i معین می‌شود. به عبارت دیگر، خروجی هر گره در این لایه درجه عضویت تخصیص داده شده به متغیرهای ورودی در مجموعه‌های فازی است که به شکل زیر بیان می‌شود:

$$i=1,2 \quad O_{1,i} = \mu_{A_i}(x) \quad (1)$$

$$i=3,4 \quad O_{2,i} = \mu_{B_{i-2}}(y) \quad (2)$$

در معادله‌های بالا، x و y ورودی‌های غیرفازی گره i ام و A_i و B_i توابع عضویت فازی هستند. همچنین، مقدار عضویت هر ورودی به عنوان خروجی لایه اول با $\mu_{A_i}(x)$ و $\mu_{B_i}(y)$ مشخص می‌شود. بنابراین، باید پارامترهای توابع عضویت که به عنوان پارامترهای بخش مقدم قوانین فازی شناخته می‌شوند و از دسته پارامترهای غیرخطی هستند،

لایه ۵ لایه ۴ لایه ۳ لایه ۲ لایه ۱



شکل ۱- ساختار کلی سامانه استنتاج فازی - عصبی تطبیقی (انفیس).

گرفتند. برای هر فرمول‌بندی، ۵ نمونه زیر کشش قرار گرفت و مقادیر متوسط آنها گزارش شد. خواص کششی از منحنی‌های تنش - کرنش به دست آمده است، به طوری که استحکام کششی نهایی حداکثر تنش است که نمونه آزمایش تحمل می‌کند تا بشکند. ازدیاد طول تا پارگی نیز حداکثر کرنش در نقطه شکست است. همچنین، مدول یانگ از شیب ناحیه خطی منحنی تنش - کرنش به دست آمده است.

آزمون استحکام ضربه‌ای نیز مطابق با استاندارد ASTM D 256-04 و با استفاده از دستگاه اندازه‌گیری استحکام ضربه‌ای روی نمونه‌های شکاف‌دار انجام شد. برای هر ترکیب ۶ نمونه اندازه‌گیری و مقادیر متوسط آنها گزارش شد. استحکام ضربه‌ای نسبی، نسبت استحکام ضربه‌ای هر نمونه به نمونه شاهد (نمونه بدون نانوذره) است و به شکل انرژی جذب شده به ازای واحد سطح مقطع در شکاف معین شد.

مدل سازی انفیس

سامانه فازی، سامانه‌ای منطبق بر قوانین اگر- آنگاه فازی است که با نظریه‌های احتمال کلاسیک تحلیل پذیر نیست. هدف از منطق فازی، استخراج نتایج دقیق با استفاده از مجموعه‌ای از قوانین است که توسط افراد خبره و متخصص تعریف شده است. از طرفی، شبکه‌های عصبی قابلیت آموزش و یادگیری دارند و می‌توانند با استفاده از داده‌های مشاهده شده، پارامترهای شبکه را به نحوی معین کنند که به ازای ورودی دلخواه، خروجی مطلوب حاصل شود. در عین حال، شبکه‌های عصبی قابلیت استفاده از دانش بشری را ندارد و نمی‌تواند مانند سامانه‌های فازی با استفاده از عبارات زبانی استنتاج کند [۱۲]. بنابراین، برای دستیابی به قابلیت یادگیری بهتر، دقت تقریب بیشتر و ساختار ساده‌تر، با الهام از قابلیت یادگیری شبکه‌های عصبی و خواص استنباط سامانه‌های فازی در مدل فازی TSK، شبکه‌های فازی - عصبی تطبیقی موسوم به انفیس در سال ۱۹۹۹ ارائه شد. این شبکه‌ها ضمن داشتن قابلیت یادگیری شبکه‌های عصبی و قدرت استنتاج سامانه‌های فازی، قابلیت یافتن هر نوع مدل یا نگاشت غیرخطی را دارند که بتوانند به‌طور دقیق، ورودی‌ها (مقادیر اولیه) را با خروجی (مقادیر پیش‌بینی شده) مرتبط سازند. بنابراین، انفیس شبکه عصبی چندلایه مبتنی بر سامانه‌های فازی است که ساختار آن در شکل ۱ نشان داده شده است.

در این ساختار، گره‌های ورودی و خروجی به ترتیب مقادیر ورودی و مقادیر پیش‌بینی شده را نشان می‌دهند. برای ساده‌سازی، یک شبکه دو ورودی - تک خروجی در نظر گرفته شده است. بدین ترتیب می‌توان مدل فازی TSK مرتبه اول را بر اساس مجموعه‌ای از

روشن است، الگوریتم یادگیری شبکه انفیس یک الگوریتم یادگیری هیبریدی مشتمل بر الگوریتم گرادیان نزولی و روش حداقل مربع بازگشتی است. از الگوریتم گرادیان نزولی برای به روزرسانی پارامترهای غیرخطی شبکه و از تخمین زن حداقل مربع بازگشتی برای تنظیم وزن های شبکه استفاده می شود. خطای آموزش شبکه به شکل معادله (۷) تعریف شده است:

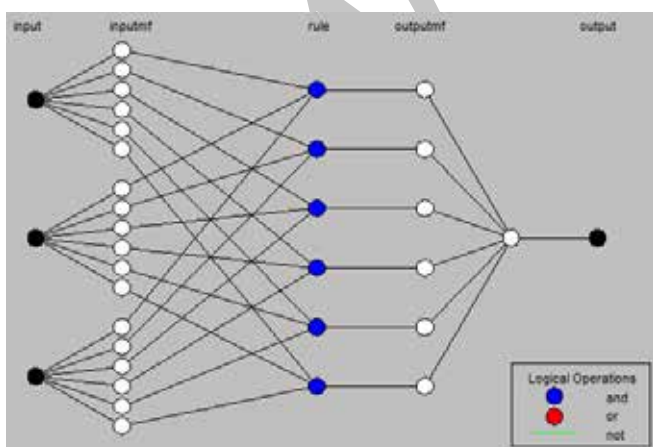
$$E = \sum_{i=1}^N (f_i - \hat{f}_i)^2 \quad (7)$$

که در آن، f_i و \hat{f}_i به ترتیب خروجی مطلوب و تخمین زده شده شبکه به ازای i امین ورودی هستند. همچنین، N تعداد کل زوج داده های ورودی - خروجی (داده های آموزشی) شبکه است [۱۸].

گفتنی است، همه مدل سازی ها برای یافتن ارتباط بین پارامترهای فرایندی و خواص مکانیکی نانوکامپوزیت های پلی اتیلن - نشاسته گرمانرم، با استفاده از سامانه استنتاج فازی - عصبی تطبیقی در محیط نرم افزار MATLAB انجام شده است. بدین منظور، مدل های چندورودی - چندخروجی (MIMO, multi input multi output) برای پیش بینی خروجی ها (خواص مکانیکی نانوکامپوزیت ها) توسعه داده شده است.

در تمام مدل های ارائه شده، ورودی شامل سه متغیر، مقدار نانوخاک رس، دما و گشتاور فرایندی است. شکل ۲ ساختار مدل پیشنهادی، مقادیر هر پارامتر و پارامترهای فرایندی را برای نانوکامپوزیت های پلی اتیلن - نشاسته گرمانرم نشان می دهد. خروجی های مدل استحکام کششی نهایی، ازدیاد طول تا پارگی، مدول یانگ و استحکام ضربه ای نسبی هستند.

در تمام مدل های پیشنهادی، ۳۰۰ نمونه داده ورودی - خروجی به طور



شکل ۲- مدل انفیس پیشنهادی برای نانوکامپوزیت های پلی اتیلن سبک - نشاسته گرمانرم.

مشخص شوند. در ساختار انفیس معمولاً از فازی سازی های گوسی (Gaussian fuzzifier) استفاده می شود. فازی سازی گوسی یکی از انواع فازی سازی ها در سامانه های فازی است. به دلیل اینکه سامانه های واقعی و کاربردهای مهندسی همواره با متغیرهای عددی سروکار دارند، بنابراین برای اینکه بتوان از سامانه فازی برای توصیف یا مدل سازی هر سامانه واقعی استفاده کرد، باید نگاهی بین ورودی های عددی (غیرفازی) سامانه و یک مجموعه فازی ایجاد کرد. به همین منظور از فازی سازی ها استفاده می شود. به عبارت دیگر، فازی سازی قابلیت آن را دارد تا به شکل یک رابط، هر ورودی غیرفازی (عدد) را به یک ورودی فازی تبدیل کند. این نوع از فازی سازی ها به طور کامل در مرجع [۱۷] توصیف شده اند.

لایه دوم: شامل گره های قوانین است، هر گره در این لایه درجه فعالیت یک قانون را محاسبه می کند. در این لایه از عملگر "و" برای محاسبه درجه مشارکت هر قانون استفاده می شود. $O_{2,k}$ نمایانگر خروجی گره k ام در لایه دوم و برابر حاصل ضرب درجه عضویت هر ورودی است:

$$O_{2,k} = \mu_{A_i}(x) * \mu_{B_j}(y) \quad (3)$$

لایه سوم: شامل گره های نرمال شده است که نسبت درجه مشارکت هر قانون به مجموع درجه مشارکت همه قوانین را محاسبه می کند. در نتیجه، این لایه به شکل معادله (۴) تعریف می شود:

$$O_{3,i} = \bar{w}_i = \frac{w_i}{\sum_{k=1}^4 w_k} \quad (4)$$

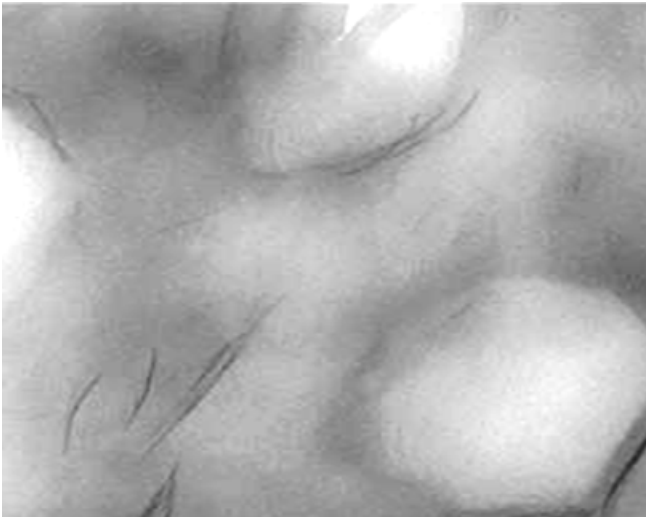
لایه چهارم: مشتمل بر گره های تطبیقی است که با استفاده از پارامترهای نتیجه، خروجی هر گره را محاسبه می کند و به شکل معادله (۵) تعریف می شود:

$$O_{4,i} = \bar{w}_i f_i = \bar{w}_i (p_i x + q_i y + r_i) \quad (5)$$

که w_i خروجی i امین گره از لایه قبلی است و $\{p_i, q_i, r_i\}$ پارامترهای تطبیقی خطی هستند.

لایه پنجم: مشتمل بر گره خروجی است که مقدار نهایی خروجی را به شکل مجموع خروجی گره های لایه ماقبل بیان می کند:

$$O_{5,i} = \bar{w}_i f_i = \sum_{i=1}^4 w_i f_i \quad (6)$$



شکل ۴- تصویر میکروسکوپ الکترونی عبوری نمونه ۲.

پیک‌ها تیزتر هستند که احتمالاً به دلیل توزیع ناهمگن‌تر ذرات خاک‌رس در مقادیر بیشتر نانوذرات است. نحوه پراکندگی و توزیع نانوخاک‌رس در ماتریس پلی‌اتیلن سبک - نشاسته گرمانرم استحکام کششی نمونه‌ها را تحت تأثیر قرار داده که در بخش بررسی خواص مکانیکی به آن اشاره می‌شود.

برای تأیید تصاویر XRD، شکل‌شناسی نمونه ۲ به وسیله میکروسکوپی الکترونی عبوری (TEM) بررسی شد (شکل ۴). این نمونه بیشترین استحکام کششی را در میان نمونه‌ها نشان داده است. در این شکل ذرات پراکنده شده نشاسته به شکل نواحی دایره‌ای متمایزی در ماتریس پلی‌اتیلن سبک دیده می‌شوند. همچنین، خطوط تیره نشان‌دهنده ذرات خاک‌رس هستند و به نظر می‌رسد که به خوبی در ماتریس پلیمری پراکنده شده یا در سطح مشترک بین فازهای پلی‌اتیلن سبک و نشاسته گرمانرم قرار گرفته‌اند [۱۳، ۱۵].

جدول ۲- خواص مکانیکی تجربی نانوکامپوزیت‌های پلی‌اتیلن سبک - نشاسته گرمانرم.

نمونه	استحکام کششی نهایی (MPa)	ازدیاد طول تا پارگی (%)	مدول یانگ (MPa)	استحکام ضربه‌ای نسبی
۱	۹/۹۲ ± ۰/۵	۱۰۸ ± ۳/۸	۲۸۰ ± ۷/۲	۰/۷۵ ± ۰/۰۱
۲	۱۰/۵۰ ± ۰/۴	۱۰۵ ± ۴/۳	۳۲۶ ± ۶/۸	۰/۷۰ ± ۰/۰۱
۳	۹/۷۴ ± ۰/۴۵	۹۵ ± ۴/۸	۳۸۴ ± ۶/۲	۰/۶۸ ± ۰/۰۱
۴	۹/۷۰ ± ۰/۳	۸۲ ± ۵/۲	۴۱۴ ± ۵/۹	۰/۶۸ ± ۰/۰۱

± انحراف معیار برای حداقل ۵ اندازه‌گیری.

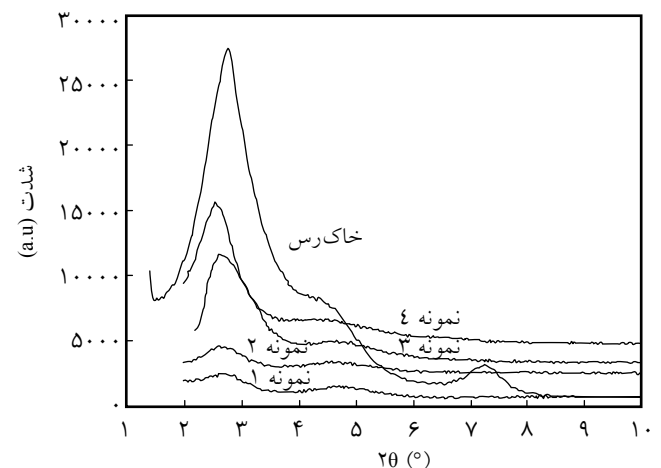
تصادفی به عنوان مجموعه داده‌های آموزشی و آزمایشی مدل انتخاب شدند. همچنین، برای هر مدل ۵۰۰ دوره (epoch) آموزشی تحت آموزش قرار گرفته و ۵۰۰ دوره بعدی آزمایش شدند. مقادیر پیش‌بینی شده برای هر مدل با استفاده از تابع evalfis نرم‌افزار MATLAB به دست آمده است. مدل‌های توسعه داده شده، سپس به وسیله ضریب همبستگی R^2 و میانگین مجذور مربع خطا (MSE) ارزیابی شدند.

نتایج و بحث

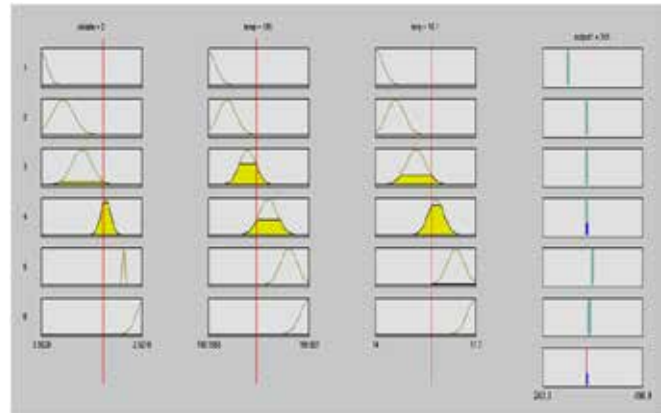
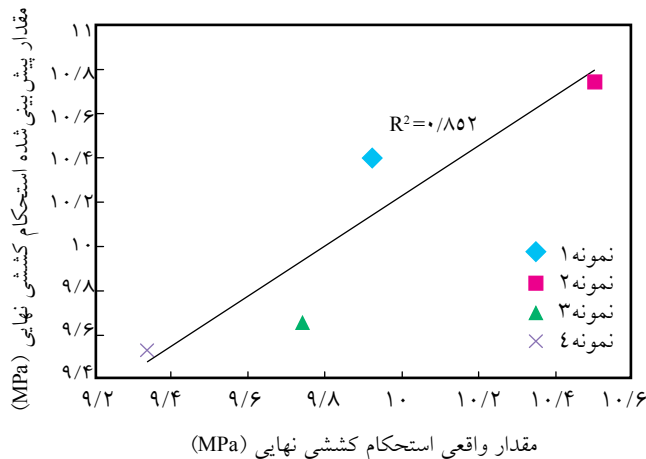
بررسی شکل‌شناسی نمونه‌ها

شکل ۳ الگوی پراش پرتو X نمونه‌های تهیه شده را در مقایسه با نانوخاک‌رس نشان می‌دهد. در این شکل، پیک پراش مشخصی برای نانوخاک‌رس در 2θ برابر $2/76^\circ$ مشاهده می‌شود. برای همه نمونه‌ها صرف‌نظر از مقدار خاک‌رس، موقعیت این پیک به زوایای کمتر انتقال یافته و بنابراین فاصله بین لایه‌های آن افزایش یافته است. این فاصله برای نمونه‌های ۱، ۲، ۳ و ۴ به ترتیب $3.1/93$ ، $3.2/55$ ، $3.3/50$ و $3.4/0.9 \text{ \AA}$ است. همچنین، ساختارهای بین‌لایه‌ای در همه نمونه‌ها مشاهده شده و با افزایش مقدار خاک‌رس شدت پیک‌ها افزایش یافته است.

این نتایج نشان می‌دهد، زنجیرهای پلیمری به درون لایه‌های خاک‌رس نفوذ کرده و صفحات آنها را از هم جدا کرده است. این مسئله منجر به ایجاد پیک‌های پهن‌تری در برخی نمونه‌ها شده که نشان‌دهنده بین‌لایه‌ای شدن مذاب با توزیع خوبی از نانوذرات در ماتریس پلیمری است. این پیک‌های پهن در تصاویر مربوط به نمونه‌های ۱ و ۲ به وضوح قابل مشاهده است، اما در نمونه‌های ۳ و ۴



شکل ۳- الگوی پراش پرتو X نانوکامپوزیت‌های پلی‌اتیلن سبک - نشاسته گرمانرم.



شکل ۵- نمایش قانون برای مدول یانگ نانوکامپوزیت های پلی اتیلن سبک - نشاسته گرمانرم.

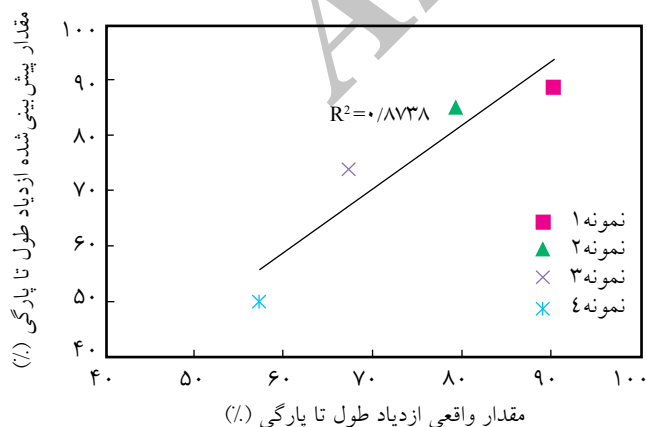
خواص مکانیکی نانوکامپوزیت ها

شکل ۷- رابطه بین مقادیر واقعی و پیش بینی شده استحکام کششی نهایی نانوکامپوزیت های پلی اتیلن سبک - نشاسته گرمانرم.

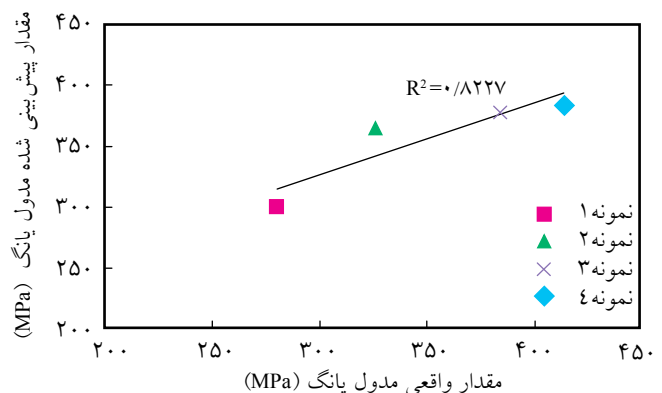
نانوذرات خاک رس منجر به کاهش تحرک مولکولی زنجیرهای پلیمری ماتریس شده و ازدیاد طول تا پارگی و استحکام ضربه ای را کاهش می دهند [۱۹،۲۰].

مدل سازی انقیس

مدل های چندرودی - چندخروجی بر اساس پارامترهای ورودی و خروجی به شکل داده های آموزشی ساخته شده، تحت آموزش و آزمایش قرار گرفته و سپس برای پیش بینی خروجی های خاص از مشاهدات ورودی شامل مقدار نانوذرات، دما و گشتاور فرایندی به کار گرفته شده اند. این الگوها ترکیبی از روش های پس انتشار و حداقل مربع خطا هستند. پس از آموزش و آزمایش، خطا به حالت پایدار رسیده، مقادیر پیش بینی شده با استفاده از تابع evalfis نرم افزار MATLAB ثبت شده و با مقادیر تجربی مقایسه شدند.



شکل ۸- رابطه بین مقادیر واقعی و پیش بینی شده ازدیاد طول تا پارگی نانوکامپوزیت های پلی اتیلن سبک - نشاسته گرمانرم.



شکل ۹- رابطه بین مقادیر واقعی و پیش بینی شده مدول یانگ نانوکامپوزیت های پلی اتیلن سبک - نشاسته گرمانرم.

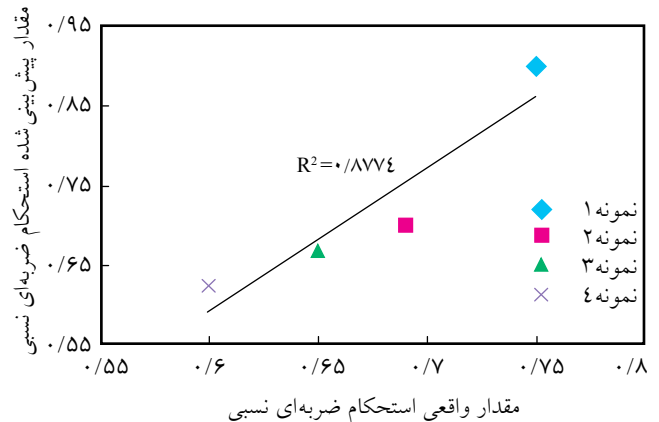
قانون مقادیر به دست آمده از ۲٪ وزنی نانوذرات، 195°C برای دما و $16/1 \text{ Nm}$ برای گشتاور هستند و مقدار به دست آمده برای مدول یانگ 355 MPa است.

همان‌طور که از شکل ۵ مشاهده می‌شود، برای هر تابع عضویت خاص، محدوده مقادیر ورودی به وسیله مقادیر روی محور X و مقدار تابع عضویت نشان داده شده روی محور Y مشخص شده است. ناحیه سایه‌دار نمایش گرافیکی از توابع عضویت به دست آمده از مقادیر ورودی را نشان می‌دهد. برای ساخت مدل، توابع عضویت ورودی در قسمت مقدم قوانین، می‌توانند توابع عضویت متفاوت مانند سیگموئید (sigmoid)، زنگوله‌ای (bell function) یا گوسی انتخاب شوند. در این پژوهش، توابع عضویت ورودی از نوع توابع عضویت گوسی تعریف شده‌اند. در مدل ساخته شده عملگر "و" بر اساس استنتاج فازی Larson (ترکیب Product-Maximum) است [۱۷]. بخش میله‌ای ستون آخر ضریب وزنی را برای آن قانون نشان می‌دهد و به وسیله مقدار عضویت حداقل در هر قانون معین شده است.

شکل‌های ۶ تا ۹ منحنی‌های مقادیر پیش‌بینی شده برحسب مقادیر تجربی واقعی را برای خواص مکانیکی نانوکامپوزیت‌های پلی‌اتیلن - نشاسته گرمانرم به ازای داده‌های تجربی مشاهده شده با استفاده از مدل MIMO نشان می‌دهند. نتایج مشاهده شده از این منحنی‌ها دقت نسبتاً خوبی را نشان می‌دهند. جدول ۳ نیز پارامتر R^2 و میانگین مربع خطای همه مدل‌های پیشنهادی را بر اساس مقادیر پیش‌بینی شده (خروجی مدل) و مقادیر مشاهده شده از آزمون نشان می‌دهد. برای مدول یانگ، پس از مقایسه مقادیر پیش‌بینی شده با مقادیر واقعی، مقادیر $0/8227$ و $0/0953$ به ترتیب برای R^2 و مقدار خطا به دست آمده است. همان‌طور که از مقادیر پارامترهای ارائه شده در جدول مشاهده می‌شود، مدل انفیس پیشنهادی قابلیت پیش‌بینی خواص نانوکامپوزیت‌های پلی‌اتیلن - نشاسته گرمانرم را دارد و عملکرد مطلوبی نشان می‌دهد.

نتیجه‌گیری

در این پژوهش، رفتار خواص مکانیکی نانوکامپوزیت‌های پلی‌اتیلن سبک - نشاسته گرمانرم با استفاده از سامانه استنتاج فازی - عصبی تطبیقی (انفیس) بررسی شده است. نتایج به دست آمده نشان می‌دهد، سامانه انفیس ابزار مفیدی برای مدل‌سازی اکستروژن نانوکامپوزیت‌های پلی‌اتیلن سبک - نشاسته گرمانرم و یافتن نگاهت غیرخطی میان پارامترهای فرایندی در اکستروژن و خواص مکانیکی



شکل ۹- رابطه بین مقادیر واقعی و پیش‌بینی شده استحکام ضربه‌ای نسبی نانوکامپوزیت‌های پلی‌اتیلن سبک - نشاسته گرمانرم.

کارایی مدل‌های به دست آمده به وسیله مقادیر R^2 و میانگین مجذور مربع خطا ارزیابی شدند.

در ساختار مدل انفیس، ۶ تابع عضویت به هر ورودی اختصاص داده شده و ۶ قانون فازی نیز برای توصیف فرایند و ساخت مدل تعریف شده است. هر قانون به یک تابع عضویت متصل شده که این توابع عضویت خروجی را می‌سازند. به عنوان مثال، شکل ۵ طرحی از قانون مدول یانگ نانوکامپوزیت‌های پلی‌اتیلن سبک - نشاسته گرمانرم را نشان می‌دهد که نگاهتی از ورودی‌ها و خروجی بوده و سامانه استنتاج فازی را توصیف کرده است. هر ردیف در این شکل یک قانون را نشان می‌دهد. همچنین، سه ستون اول متناظر با خروجی هر قانون به ازای ورودی مربوط و ستون آخر بیانگر خروجی هر قانون (مدول یانگ) به ازای ورودی مشاهده شده است. بخش مقدم هر قانون از سه تابع عضویت متناسب با هر یک از سه ورودی (دما، گشتاور فرایندی و مقدار نانوذره) تشکیل شده است. توابع عضویتی که در سه ستون اول نیز نشان داده شده‌اند، توابع عضویت بخش مقدم قوانین هستند. در این مثال، مقادیر ورودی برای نشان دادن

جدول ۳- مقادیر ضریب همبستگی و حداقل مربع خطا برای آموزش و آزمایش مدل انفیس برای خواص مکانیکی نانوکامپوزیت‌ها.

مقدار ضریب همبستگی (R^2)	میانگین مجذور مربع خطا (MSE)	خاصیت مکانیکی
0/8520	0/2052	استحکام کششی نهایی
0/8738	0/2796	ازدیاد طول تا پارگی
0/8227	0/0953	مدول یانگ
0/8774	0/0104	استحکام ضربه‌ای نسبی

مطلوبی هستند. مدل‌های با بیشترین مقدار R^2 و حداقل خطا به عنوان بهترین مدل‌ها در نظر گرفته می‌شوند. علاوه بر ویژگی‌های عنوان شده، این مدل‌ها می‌توانند به عنوان ابزاری مناسب برای پیش‌بینی خروجی به ازای ورودی‌های مشاهده شده و همچنین برای پیش‌بینی مقادیر ورودی مورد نیاز برای ایجاد خاصیتی مطلوب استفاده شوند.

مراجع

1. Ammala A., Bateman S., Dean K., Petinakis E., Sangwan P., Wong S., Yuan Q., Yu L., Patrick C., and Leong K.H., An Overview of Degradable and Biodegradable Polyolefins, *Prog. Polym. Sci.*, **36**, 1015-1049, 2011.
2. Lohse D.J., *Polyolefins*, in *Applied Polymer Science: 21st Century*, Clara D.C. and Carraher C.E. (Eds.), Elsevier, 73-91, 2001.
3. Griffin G.J.L., Starch Polymer Blends, *Polym. Degrad. Stabil.*, **45**, 241-247, 1994.
4. Carvalho A.J.F., *Starch: Major Sources, Properties and Applications as Thermoplastic Materials*, in *Monomers, Polymers and Composites from Renewable Resources*, Mohamed Naceur B. and Alessandro G. (Eds.), Elsevier, Amsterdam, 321-342, 2008.
5. Sinha Ray S. and Okamoto M., Polymer/layered Silicate Nanocomposites: A Review from Preparation to Processing, *Prog. Polym. Sci.*, **28**, 1539-1641, 2003.
6. Dennis H.R., Hunter D.L., Chang D., Kim S., White J.L., Cho J.W., and Paul D.R., Effect of Melt Processing Conditions on the Extent of Exfoliation in Organoclay-based Nanocomposites, *Polymer*, **42**, 9513-9522, 2001.
7. Nam P.H., Maiti P., Okamoto M., Kotaka T., Hasegawa N., and Usuki A., A Hierarchical Structure and Properties of Intercalated Polypropylene/Clay Nanocomposites, *Polymer*, **42**, 9633-9640, 2001.
8. Sinha Ray S. and Bousmina M., Biodegradable Polymers and their Layered Silicate Nanocomposites: In *Greening the 21st Century Materials World*, *Prog. Mater. Sci.*, **50**, 962-1079, 2005.
9. Okamoto M., *Polymer/Layered Silicate Nanocomposites*, *Shawbury*, Rapra Technology, 3-7, 2003.
10. Ganjyal G.M., Hanna M.A., and Jones D.D., Modeling Selected Properties of Extruded Waxy Maize Cross - Linked Starches with Neural Networks, *J. Food. Sci.*, **68**, 1384-1388, 2003.
11. Huang H.X. and Lu S., Modeling Parison Formation in Extrusion Blow Molding by Neural Networks, *J. Appl. Polym. Sci.*, **96**, 2230-2239, 2005.
12. Jang J.S.R., ANFIS: Adaptive - Network-based Fuzzy Inference System, *IEEE Trans. Syst. Man Cybern.* **23**, 665-685, 1993.
13. Chiu F.C., Lai S.M., and Ti K.T., Characterization and Comparison of Metallocene - catalyzed Polyethylene/Thermoplastic Starch Blends and Nanocomposites, *Polym. Test.*, **28**, 243-250, 2009.
14. Kim H.J., Lee J.J., Kim J.C., and Kim Y.C., Effect of Starch Content on the Non-isothermal Crystallization Behavior of HDPE/Silicate Nanocomposites, *J. Ind. Eng. Chem.*, **16**, 406-410, 2010.
15. Sharif A., Aalaie J., Shariatpanahi H., Hosseinkhanli H., and Khoshniyat A., Study on the Structure and Properties of Nanocomposites Based on High-density Polyethylene/Starch Blends, *J. Polym. Res.*, **18**, 1-15, 2011.
16. Sabetzadeh M., Bagheri R., and Masoomi M., Effect of Corn Starch Content in Thermoplastic Starch/Low-Density Polyethylene Blends on their Mechanical and Flow Properties, *J. Appl. Polym. Sci.*, **126**, E63-E69, 2012.
17. Wang L.X., *A Course in Fuzzy Systems and Control*, Prentice-Hall, Englewood Cliffs, New Jersey, 1997.
18. Jang J.S.R., Sun C.T., and Mizutani E., *Neuro-fuzzy and Soft Computing: A Computational Approach to Learning and Machine Intelligence*, Prentice Hall, 1997.
19. Arroyo O.H., Huneault M.A., Favis B.D., and Bureau M.N., Processing and Properties of PLA/Thermoplastic Starch/Montmorillonite Nanocomposites, *Polym. Compos.*, **31**, 114-127, 2010.
20. Dean K., Yu L., and Wu D.Y., Preparation and Characterization of Melt - extruded Thermoplastic Starch/Clay Nanocomposites, *Compos. Sci. Technol.*, **67**, 413-421, 2007.

Prediction of Mechanical Properties of LDPE-TPS Nanocomposites Using Adaptive Neuro-Fuzzy Inference System

Maryam Sabetzadeh¹, Rouhollah Bagheri^{*1}, and Maryam Shahriari Kahkeshi²

(1) Polymer Engineering Group, Department of Chemical Engineering (2) Electrical Engineering Group, Department of Electrical and Computer Engineering, Isfahan University of Technology,

Postal Code: 84156-83111, Isfahan, Iran

Received 12 December 2011, accepted 3 July 2012

ABSTRACT

The changes in the behaviour of mechanical properties of low density polyethylene-thermoplastic corn starch (LDPE-TPCS) nanocomposites were studied by an adaptive neuro-fuzzy inference system. LDPE-TPCS composites containing different quantities of nanoclay (Cloisite®15A, 0.5-3wt%) were prepared by extrusion process. In practice, it is difficult to carry out several experiments to identify the relationship between the extrusion process parameters and mechanical properties of the nanocomposites. In this paper, an adaptive neuro-fuzzy inference system (ANFIS) was used for non-linear mapping between the processing parameters and the mechanical properties of LDPE-TPCS nanocomposites. ANFIS model due to possessing inference ability of fuzzy systems and also the learning feature of neural networks, could be used as a multiple inputs-multiple outputs to predict mechanical properties (such as ultimate tensile strength, elongation-at-break, Young's modulus and relative impact strength) of the nanocomposites. The proposed ANFIS model utilizes temperature, torque and Cloisite®15A contents as input parameters to predict the desired mechanical properties. The results obtained in this work indicated that ANFIS is an effective and intelligent method for prediction of the mechanical properties of the LDPE-TPCS nanocomposites with a good accuracy. The statistical quality of the ANFIS model was significant due to its acceptable mean square error criterion and good correlation coefficient (values > 0.8) between the experimental and simulated outputs.

Keywords:

prediction,
nanoclay,
temperature,
torque,
mechanical properties

(*)To whom correspondence should be addressed.

E-mail: bagheri@cc.iut.ac.ir