

基于遗传算法和神经网络的 C/C 复合材料等温 CVI 工艺参数优化模型

李妙玲^{1,*}, 全军锋², 赵红霞¹

(1. 洛阳理工学院 机械工程学院, 洛阳 471023; 2. 洛阳理工学院 电气工程与自动化学院, 洛阳 471023)

摘 要: 建立了基于遗传算法和误差反传(GA-BP)神经网络的化学气相渗透(CVI)工艺参数优化模型。以新型等温 CVI 工艺制备 C/C 复合材料时采集的实验数据作为模型评价样本, 分析了主要可控影响因素(沉积温度、前驱气体分压与滞留时间等)对 C/C 复合材料制品密度及其密度均匀性的作用规律。在该模型指导下, 样本的期望密度和实测密度最大误差不超过 6.2%, 密度差最大误差不超过 8.2%。实验结果也证明了该模型具有较高的精度和良好的泛化能力, 可以用于 CVI 工艺参数的优化。

关键词: C/C 复合材料; 化学气相渗透; BP 神经网络; 遗传算法; 参数优化

中图分类号: TB330.1 **文献标志码:** A **文章编号:** 1000-3851(2016)11-2666-08

化学气相渗透(CVI)工艺是 20 世纪 60 年代发展起来的用于制备纤维增强陶瓷基复合材料的新技术, 在制备 C/C、C/SiC 和 SiC/SiC 等高温复合材料方面应用前景广阔^[1-2]。

CVI 工艺是气体组分在空间中发生化学反应并在多孔体内表面生成固体物质的过程。其气-固两相相互作用构成了复杂的多相反应体系, 并涉及到新固相的生成, 物理和化学反应过程复杂。由于当前原位化学反应检测手段的匮乏, 使对 CVI 机理的认识受到局限, 直接影响工艺参数的合理选取。目前, 基本上依靠经验和大量实验来确定工艺参数。但实验的高成本和长周期又制约着这一问题的解决。近年来, 数值模拟技术在 CVI 工艺过程研究中受到重视^[3-4]。尽管 CVI 工艺影响因素多、机理复杂, 但经过长期的研究和完善^[5-6], CVI 工艺制备 C/C 复合材料致密化过程数值模型的可靠性正得到进一步验证。

人工神经网络具有大规模并行处理、适应性学习、联想推理、较强的鲁棒性和容错性等优点, 很快渗透到众多的工程应用领域。作为复杂非线性系统建模、估计、预测、诊断和自适应控制的有效工具, 已在复合材料性能预测、化学气相沉积(CVD)/CVI

工艺等许多方面都得到了广泛应用^[7-8]。它可以在已知有限实验数据的基础上, 通过反复迭代, 不断修正与目标值的差异, 得到反映实际过程内在规律的模型。尤其在材料组分复杂、工艺参数较多、且没有明显函数关系的情况下, 其优越性更为突出。

本研究利用人工神经网络的这一特点, 基于误差反向传播(BP)神经网络^[9], 建立等温 CVI 工艺参数优化模型, 探索 CVI 工艺参数对 C/C 复合材料致密化程度的影响规律, 达到工艺参数优化的目的。并可以对不同工艺参数下复合材料的表观密度及密度均匀性进行预测。为了克服 BP 算法易收敛到局部极小点的问题, 采用遗传算法(GA)^[10]来训练网络的初始权值和域值。

1 GA-BP 神经网络预测模型

BP 网络具有强大的非线性映射能力, 但其算法训练是基于误差梯度下降的权重修改原则, 不可避免地会出现容易陷入局部极小、收敛速度慢和引起振荡效应等问题。因此直接应用在 CVI 工艺优化建模中尚存在一定缺陷。GA 善于全局搜索, 且能以较大概率找到全局最优解, 用它来完成前期搜索能较好地克服 BP 算法的缺陷。将 GA 和 BP 结

合起来, 形成 GA-BP 混合训练算法, 以 GA 优化 BP 网络的初始权值和阈值, 再由 BP 算法修正网络权值及阈值, 进行网络训练。达到避免缺陷、优化 BP 神经网络的目的, 从而精确地实现 C/C 复合材料密度预测。

1.1 BP 网络结构的确定

由 Kolmogorov 定理易知, 一个 3 层 BP 神经网络可以任意精度逼近任何有理函数。为此, 使用包含输入层、隐含层、输出层 3 层结构的 BP 神经网络作为预测模型的网络结构。输入层和输出层节点数分别等于输入模式和输出模式的特征值数, 隐层节点数采用经验公式确定。设神经网络输入层节点数为 m , 输出层节点数为 n , 那么隐含层节点数 S_1 根据以下原则确定:

$$S_1 = \sqrt{n + m} + a \tag{1}$$

$$k < \sum_{i=0}^m C\left(\begin{matrix} S_1 \\ i \end{matrix}\right) \tag{2}$$

式中: k 为样本数, a 为修正项, 取 1~10 之间的常数; C 为数理统计组合数计算函数。输入层到隐含层使用双曲正切 Sigmoid 传递函数, 隐含层到输出层使用线性传递函数。

CVI 工艺制备纤维增强复合材料的影响因素众多, 对于每一种具体工艺, 确定起主要作用的可控工艺参数作为模型输入变量, 一般有反应室体积、纤维预制体体积分数、前驱体类型、沉积温度、前驱体分压和滞留时间等。

因此, 针对确定的沉积炉、纤维预制体和前驱体, 致密化实验控制参数为沉积温度 (T)、前驱体分压 (p)、气体滞留时间 (τ), 则输入层节点数 $m=3$ 。

C/C 复合材料制件的表观密度和密度均匀性 (用最大、最小表观密度之差表示) 通常被作为评价 CVI 工艺沉积效果的质量指标。输出层节点数 $n=2$ 。

1.2 GA 优化初始权值和阈值

利用 GA 优化 BP 网络权值和阈值的关键问题包括以下 2 个方面:

(1) 染色体编码

根据 BP 神经网络结构计算网络权值和阈值, 将一组权值和阈值作为一条染色体, 采用实值编码, 则 GA 染色体的编码长度就为 $S = mS_1 + S_1n + S_1 + n$ 。

(2) 目标函数与适应度函数的确定

GA 的目标函数采用误差平方和函数, 即在进

化过程中搜索获取使网络输出误差最小的权值和阈值。如果用 Q 表示输入样本 P 的对应实际结果, A 表示 BP 网络的输出结果, 目标函数的表达式就为

$$SSE(i) = \sum_n \sum_k (A - Q)^2 \tag{3}$$

式中: i 为 1~ N 种群数。GA 以适应度函数作为进化目标, 且只能朝着适应度函数值增大的方向进化, 所以采用目标函数倒数作为适应度函数, 即 $f(i) = 1/SSE(i)$ 。

GA 流程图如图 1 所示。GA-BP 算法基于适应值的选择策略, 利用交叉、变异操作, 既可以防止陷入局部最优解, 又保证了适应度高的染色体被选择为后代的机会越大。经过给定次数的迭代后, 把适应度最高的染色体作为优化问题的最优解, 即获得最优的 BP 网络的初始权值和阈值。

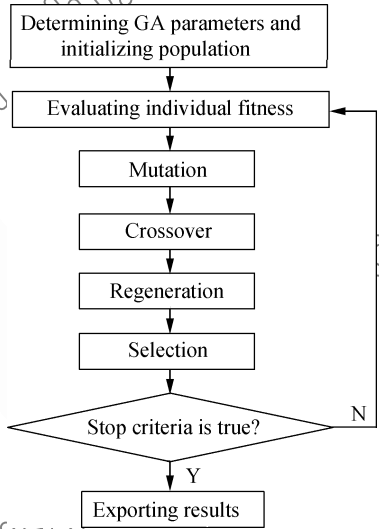


图 1 GA 流程图
Fig. 1 Flow chart of GA

1.3 BP 网络的训练

(1) 输入样本的预处理

新型等温 CVI 致密化工艺^[11-12]是在传统负压等温 CVI 工艺的基础上, 通过减小预制体周围前驱气体流动空间和调节气体流量的方法来控制气体在沉积炉中的滞留时间, 达到减弱气体扩散、缩短致密化时间、提高致密化效率、降低 C/C 复合材料生产成本的目的。在文献[11]中, 改进了传统的等温 CVI 炉和石墨夹具, 实验用预制体为体积分数 28.7% 的针刺炭毡, 前驱气体为 CH_4 。通过改变沉积温度、前驱体分压和滞留时间, 获得一系列的致密化 C/C 复合材料试样。将试样切割分块, 测量

其表观密度和密度均匀性(用最大、最小表观密度之差表示)作为输出变量。由于 CVI 工艺的控制参数属于不同量纲,样本数据之间甚至差几个数量级,鉴于 Sigmoid 函数的输入输出特性,所有的输入样本数据都进行了归一化处理,并将实验数据变换到 $[-1, 1]$ 之间。

(2) GA 的初始化

初始化包括定义初始种群个数、交叉概率、选择概率、变异概率以及确定网络搜寻最优初始权值和阈值的边界条件,本研究中分别取 30、0.3、0.8、0.05、 $[-1, 1]$ 。

(3) 最优染色体的解码

设 100 次遗传迭代后,输出的解为最优个体,将最优染色体解码为 BP 网络的初始权值 $W1$ 、 $W2$ 和阈值 $B1$ 、 $B2$ 。

(4) 训练 BP 网络

将 GA 得到的最优解作为网络的初始权值和阈值,进行网络训练,训练过程中使用的各参数值设置如下:最大循环次数为 1 000,目标误差设为 0.000 2,学习速率为 0.01,训练算法用 Levenberg-Marquardt。当 BP 网络收敛到目标误差时,得到一组权值和阈值就可以确定网络,由此可以建立输入、输出参数之间的映射关系,用于 CVI 复合材料的密度预测和工艺参数优化研究。

2 基于 GA-BP 神经网络模型的 CVI 工艺参数优化

以文献[11-12]采用新型等温 CVI 致密化工艺制备 C/C 复合材料为例,验证建立的 GA-BP 神经网络模型的预测能力。在相同的 CVI 炉中,采用天然气为原料,对同一纤维含量的 2D 针刺炭毡预制体在不同的沉积温度($T=1\ 070\ ^\circ\text{C}$, $1\ 100\ ^\circ\text{C}$)、不同前驱体分压($p=20\ \text{kPa}$, $30\ \text{kPa}$)、气体滞留时间($\tau=0.1\ \text{s}$)下进行了致密化实验,直到发现结壳中止沉积。测得了 17 组 C/C 复合材料的表观密度(ρ)和密度差($\Delta\rho$)分布数据。根据式(1)和式(2)可以定义一个 3-7-2 结构的 BP 网络。

2.1 网络模型精度验证

图 2 为基于 GA-BP 神经网络的 C/C 复合材料样本实际输出与期望输出的比较。空心符号均代表期望输出,实心符号代表实际输出。前 13 个样本为参与过网络训练的样本,后 4 个样本为测试样本。可以看出,参与过训练的样本的网络实际输出

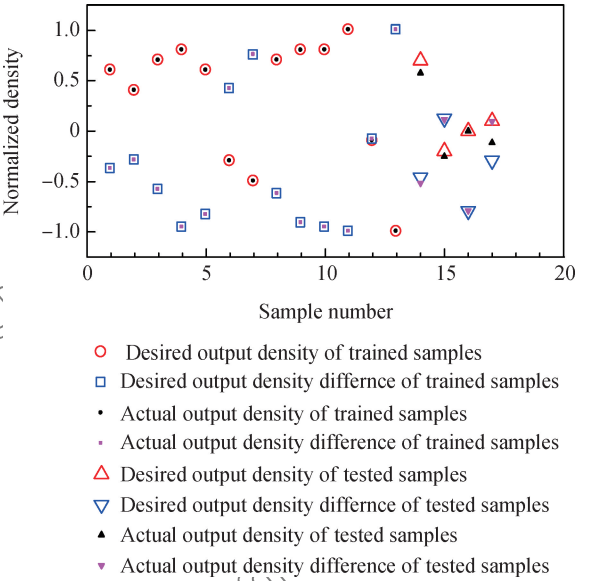


图 2 基于 GA-BP 神经网络的 C/C 复合材料样本实际输出与期望输出的比较

Fig. 2 Comparison between actual outputs and desired outputs of C/C composite samples based on GA-BP neural network

和期望输出的差值很小,密度最大相对误差为 0.08%,密度差最大相对误差为 0.16%,误差绝对值在 $10^{-4} \sim 10^{-3}$ 数量级,如此小的误差表明建立的 GA-BP 神经网络具有较强的联想记忆能力。14~17 号测试样本的网络实际输出和期望输出的差值略有增加,密度最大相对误差为 6.2%,最大绝对误差为 0.1;密度梯度最大误差为 8.2%,最大绝对误差为 0.008。预测结果可以满足实际需要,说明网络具有良好的泛化能力。

从验证结果发现,较大的预测误差往往发生在实验样本稀疏的区域,说明获得丰富的实验数据并合理选取训练样本对建模精度有较大影响。但由于本实验周期长(沉积时间一般为 125 h),成本高,只能获得有限的实验数据,因此在实际工艺参数预测模型训练中将全部数据用于训练,以增加网络的泛化能力。

2.2 C/C 复合材料密度预测和工艺参数优化

一般来说,温度越高,CVI 沉积速率较大,但材料表面容易出现过早结壳现象,封堵气体传输通道,影响材料内部的沉积,造成材料密度不均匀。但选用低温沉积效率低、成本高。为此,等温 CVI 工艺总是采用适宜的温度,通过调节分压和气体滞留时间达到最优参数组合。

图 3 为不同沉积温度下制备的 C/C 复合材料

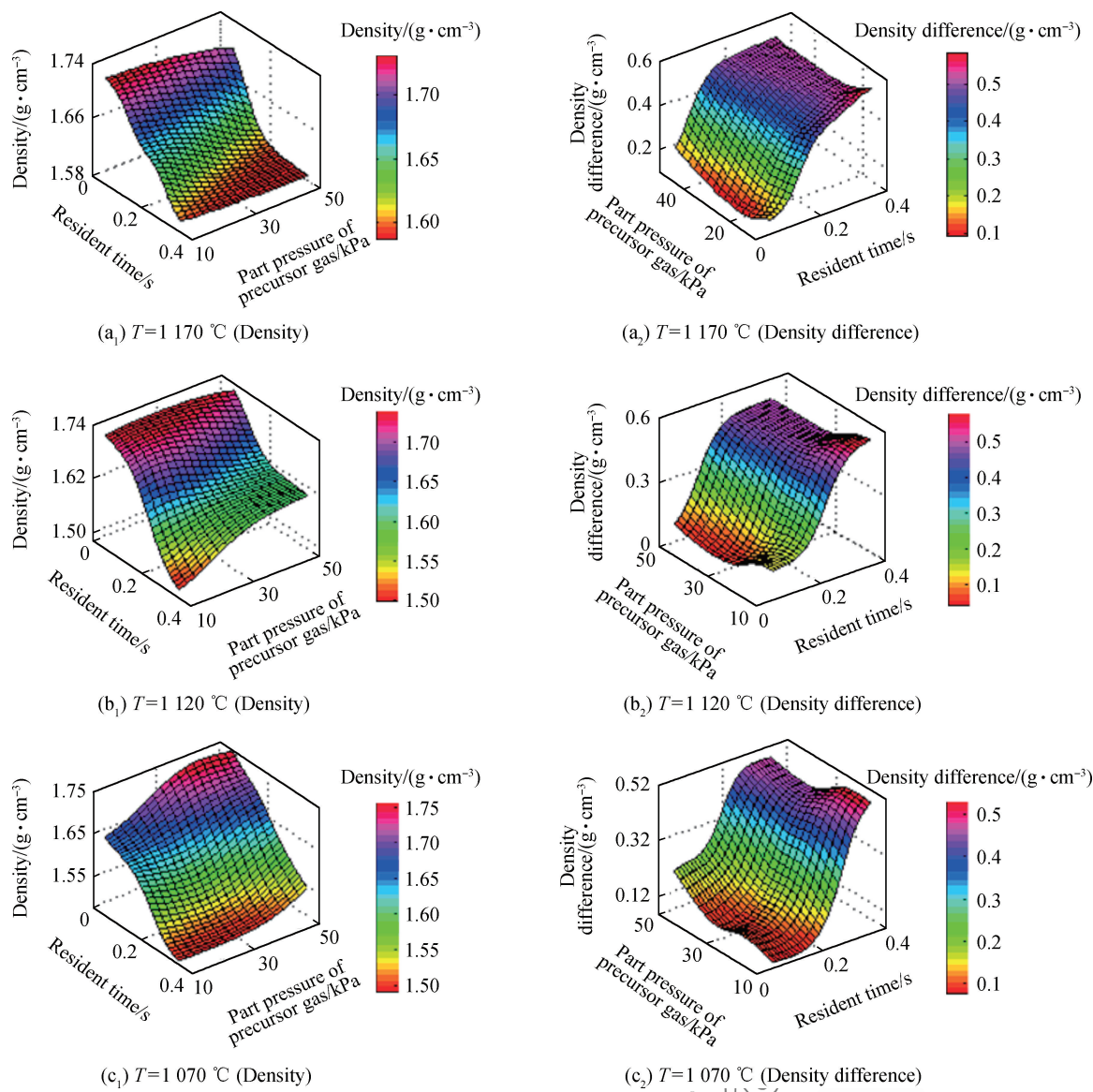


图 3 不同沉积温度下制备的 C/C 复合材料密度、密度梯度差与前驱气体分压及滞留时间的耦合关系

Fig. 3 Coupling relationship between density, density difference of C/C composites and part pressure of precursor gas, residence time at different infiltration temperatures

密度、密度梯度差与前驱气体分压及气体滞留时间之间的耦合关系。可以看出,不同温度下,前驱气体分压及气体滞留时间对密度、密度差的影响规律基本相同。气体滞留时间的影响远远大于前驱气体分压的作用,在分压不变的情况下,气体滞留时间和材料密度之间近似 S 形反比关系,即随着气体滞留时间增加, C/C 复合材料表观密度单调降低,而密度差单调增加。这说明气体滞留时间增加将会使材料内部密度均匀性降低。

既然气体滞留时间对 CVI 沉积结果的影响显著,用图 4 描述不同滞留时间($\tau=0.05、0.10、0.20$

或 0.30 s)下, C/C 复合材料密度、密度梯度差与沉积温度及前驱体分压之间的耦合关系。可以看出,在相同滞留时间下,沉积温度的影响要大于气体分压的影响,但 2 个参数的耦合作用影响很明显。在较小的滞留时间,如图 4(a₁)和图 4(a₂)中 0.05 s 、图 4(b₁)和图 4(b₂)中 0.10 s 时,密度随沉积温度的变化呈近似抛物线关系,密度梯度差大致呈相反方向变化,在中等分压(约 30 kPa 左右)、沉积温度大约 $1100\text{ }^{\circ}\text{C}$ 时,密度达到最大,密度梯度差最小。随着滞留时间的增加,如图 4(c₁)和图 4(c₂)中 0.20 s 、图 4(d₁)和图 4(d₂)中 0.30 s ,沉积温度及

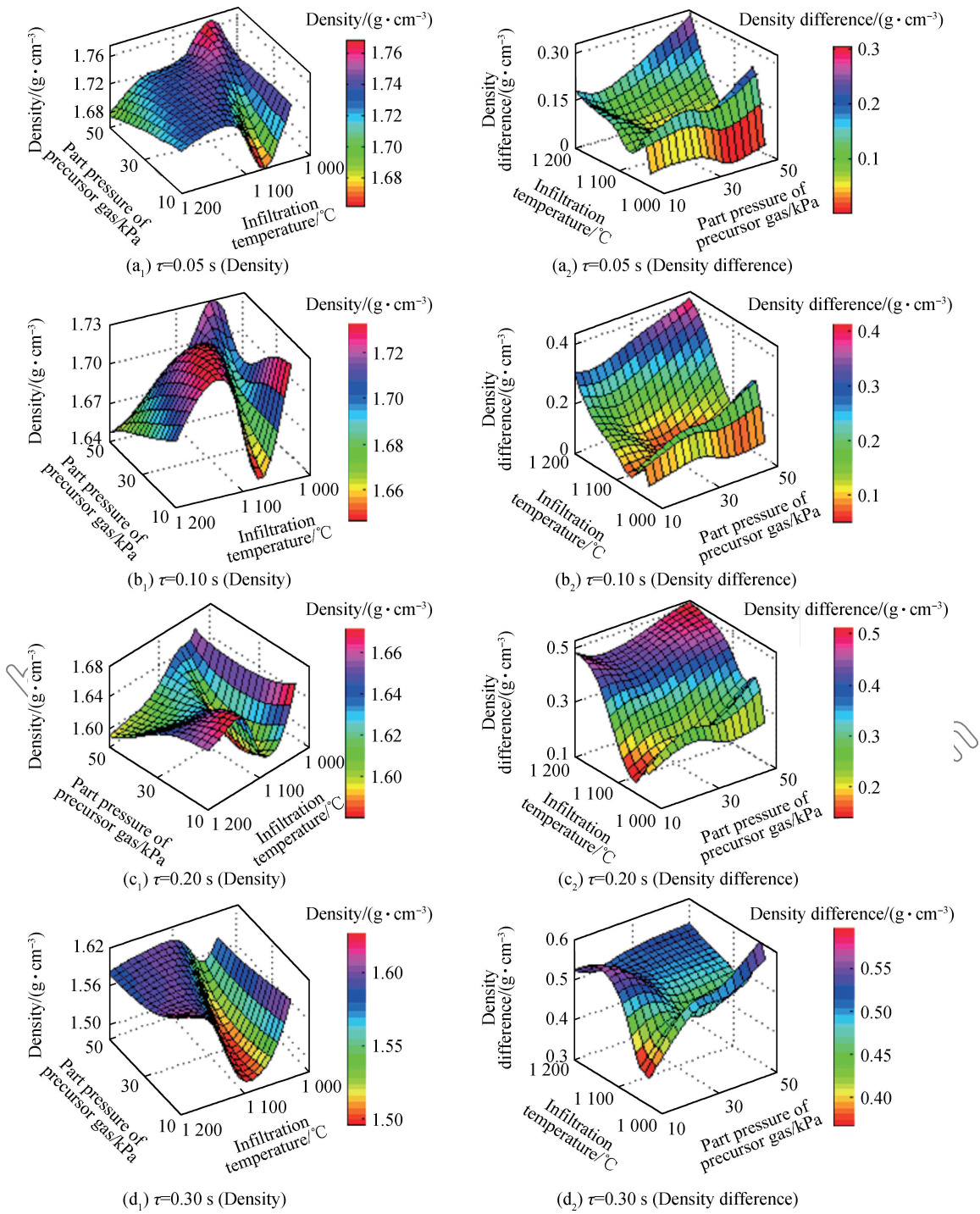


图 4 不同气体滞留时间下制备的 C/C 复合材料密度、密度梯度差与前驱体分压及沉积温度的耦合关系

Fig. 4 Coupling relationship between density, density difference of C/C composites and part pressure of precursor gas, infiltration temperature at different residence time

气体分压之间的耦合关系对材料密度的综合作用加剧，材料密度和密度梯度差的变化趋势变得复杂，没有明显的规律可循。从各图中的色度条可直观看出，随着滞留时间的增加，C/C 复合材料的整体密度下降，密度梯度差增大较多，即制备的 C/C 复合

材料致密程度更加不均匀。

图 4 的分析结果表明，在等温 CVI 工艺制备 C/C 复合材料时，较长的滞留时间会使沉积温度和分压的合理选择变得困难，因此应尽可能地缩短气体滞留时间。同时也验证了较长的滞留时间会使

CVI 沉积室流场变得复杂,不利于沉积反应的控制;而减小滞留时间使 CVI 沉积室的流场变得简单,有利于控制沉积效果。可见,对于等温 CVI 工艺而言,保持气体滞留时间足够短是提高其致密化速率,降低密度梯度的重要保证。而滞留时间的调节依赖于气体流量和气体流动空间的大小,因此,缩小预制体外围的气体流动空间是改进传统等温 CVI 的一种有效的措施。这正是这种新型等温 CVI 工艺设计的目的^[11]。

从图 3 和图 4 中还可以看出,气体分压对材料的密度和密度梯度差的影响程度比沉积温度和气体滞留时间的影响要小得多。但在相同的滞留时间或沉积温度下,选择中等的分压可以得到密度差较小的材料,也就是说 CVI 制件的均匀性较好。

按本文中所建立的 GA-BP 模型中的参数指导实验和建模^[6, 13],已取得与模型预测值吻合良好的结果。例如,文献[6]根据图 3,选择预测沉积密度最大的一组特征参数(见图 3(b₁)):沉积温度 1 393 K(相当于 1 120 °C)、前驱气体分压 10 kPa、气体流速 4 m/s(根据实验装置,前驱气体滞留时间约 0.05~0.10 s),作为多场耦合模型的建模参数,预测密度 1.871 g/cm³,实际得到 1.845 g/cm³的制件,且内外密度差很小。文献[13]选用沉积温度为 1 050、1 100、1 150 °C,压力为 6 kPa,以液态正丙醇为前驱体,故气体滞留时间极短,96 h 制备出表观密度分别为 1.64、1.68 和 1.69 g/cm³的 C/C 复合材料。与图 4 预测的不同气体滞留时间下密度变化趋势一致,且可以观察到织构分布均匀的显微结构。

尽管本文的等温 CVI 工艺参数优化模型是基于预制体为针刺炭毡、前驱气体为 CH₄ 制备 C/C 复合材料时建立的^[11],但该模型具有较强的推广价值,可以指导不同预制体和前驱气体制备 C/C 复合材料的工艺参数优化。例如,文献[13]的前驱体为正丙醇,文献[14]将预制体改为单束碳纤维,但沉积工艺参数均是在本文建立的模型指导下选定的。文献[15-16]在负压下制备 C/C 复合材料,采集的实验参数已被用于重新训练 GA-BP 模型,建立的负压等温 CVI 工艺参数优化模型正在验证中。

3 结 论

(1) 建立了基于遗传算法(GA)和误差反传(BP)神经网络的化学气相渗透(CVI)工艺参数优

化模型,利用 GA 确定初始权值和域值,克服了 BP 神经网络易于陷入局部最小值的缺陷,使神经网络具有更好的收敛速度和收敛质量。

(2) 该模型以 CVI 工艺的主要可控工艺参数作为输入变量,将 C/C 复合材料制件的表观密度和密度均匀性(密度差)作为输出,以此作为评价 CVI 工艺参数优劣的标准。

(3) 以改进的新型等温 CVI 工艺实验数据为实例,对 C/C 复合材料的密度和密度差进行了预测,结果表明该模型具有较高的精度和良好泛化能力。

(4) 利用该模型分析了新型等温 CVI 工艺的主要可控影响因素(如沉积温度、前驱气体分压与滞留时间等),对 C/C 复合材料制件密度及其密度均匀性的作用规律,用于指导 CVI 工艺参数的优化,实验验证结果和模型预测值吻合较好。

参考文献:

- [1] NIE J D, XU Y D, ZHANG L T, et al. Microstructure and tensile behavior of multiply needled C/SiC composite fabricated by chemical vapor infiltration[J]. Journal of Materials Processing Technology, 2009, 209(1): 572-576.
- [2] 张丹,黄清波,李爱军,等.碳/碳复合材料热解碳基体的织构界面形成机制 Monte Carlo 模拟[J]. 复合材料学报, 2014, 31(4): 859-865.
ZHANG D, HUANG Q B, LI A J, et al. Monte Carlo simulations of texture interface formation within pyrocarbon matrix of carbon/carbon composites[J]. Acta Materialiae Compositae Sinica, 2014, 31(4): 859-865 (in Chinese).
- [3] 边国军,齐乐华,宋永善,等.基于数值模拟的热梯度 CVI 制备 C/C 复合材料致密化行为[J]. 复合材料学报, 2011, 28(4): 29-33.
BIAN G J, QI L H, SONG Y S, et al. Densification process for thermal gradient CVI fabricating C/C composites based on numerical simulation[J]. 2011, 28(4): 29-33 (in Chinese).
- [4] LI A J, NORINAGA K, ZHANG W G, et al. Modeling and simulation of materials synthesis: Chemical vapor deposition and infiltration of pyrolytic carbon[J]. Composites Science and Technology, 2008, 68(5): 1097-1104
- [5] 郭春付. C/C 复合材料 CVI 过程模拟仿真[D]. 武汉:华中科技大学, 2011.
GUO C F. Numerical simulation of chemical vapor infiltration process of C/C composites[D]. Wuhan: Huazhong University of Science & Technology, 2011 (in Chinese).
- [6] 王建武,李克智,张守阳,等. ICVI 工艺致密化 C/C 复合材料的数值模拟[J]. 固体火箭技术, 2014, 37(5): 711-718.
WANG J W, LI K Z, ZHANG S Y, et al. Numerical simulation of densification of carbon/carbon composites by ICVI

- process[J]. *Journal of Solid Rocket Technology*, 2014, 37(5): 711-718 (in Chinese).
- [7] 王春红, 赵玲, 白肃跃, 等. 改进 Back Propagation 神经网络预测麻纤维/UP 复合材料的界面性能[J]. *复合材料学报*, 2015, 32(6): 1696-1702.
- WANG C H, ZHAO L, BAI S Y, et al. Prediction of bast fiber/UP composites interfacial property by improved Back Propagation neural network[J]. *Acta Materiae Compositae Sinica*, 2015, 32(6): 1696-1702 (in Chinese).
- [8] 顾正彬, 李贺军, 李克智, 等. C/C 复合材料等温 CVI 工艺模糊神经网络建模[J]. *稀有金属材料与工程*, 2004, 33(10): 1037-1040.
- GU Z B, LI H J, LI K Z, et al. Modeling of isothermal CVI process of C/C composites by fuzzy neural network[J]. *Rare Metal Materials and Engineering*, 2004, 33(10): 1037-1040 (in Chinese).
- [9] 朱大奇, 史慧. 人工神经网络原理及应用[M]. 北京: 科学出版社, 2006: 33-53.
- ZHU D Q, SHI H. Principle and applications of artificial neural networks[M]. Beijing: Science Press, 2006: 33-53 (in Chinese).
- [10] 玄光南, 程润伟. 遗传算法与工程优化[M]. 北京: 清华大学出版社, 2004: 2-100.
- XUAN G N, CHENG R W. Genetic algorithm and engineering optimization[M]. Beijing: Tsinghua University Press, 2004: 2-100 (in Chinese).
- [11] 徐国忠, 李贺军, 白瑞成, 等. 新技术制备 C/C 复合材料及特性研究[J]. *无机材料学报*, 2006, 21(6): 1385-1389.
- XU G Z, LI H J, BAI R C, et al. The investigation of carbon/carbon composites preparation by novel technology and its characteristic[J]. *Journal of Inorganic Materials*, 2006, 21(6): 1385-1389 (in Chinese).
- [12] XU G Z, LI H J, BAI R C, et al. Influence of the matrix texture on the fracture behavior of 2D carbon/carbon composites[J]. *Materials Science and Engineering: A*, 2008, 478(1-2): 319-323.
- [13] 刘志成, 张守阳, 李贺军, 等. 正丙醇 ICVI 制备 C/C 复合材料的组织结构及力学性能[J]. *无机材料学报*, 2011, 26(2): 191-196.
- LIU Z C, ZHANG S Y, LI H J, et al. Microstructures and mechanical behavior of C/C composites prepared by ICVI using n-propanol as precursor[J]. *Journal of Inorganic Materials*, 2011, 26(2): 191-196 (in Chinese).
- [14] 杨静, 张守阳, 李贺军, 等. CVI 沉积碳纤维束的组织结构[J]. *固体火箭技术*, 2012, 35(2): 258-261.
- YANG J, ZHANG S Y, LI H J, et al. Texture structure of carbon fiber bundle by CVI[J]. *Journal of Solid Rocket Technology*, 2012, 35(2): 258-261 (in Chinese).
- [15] 拓亚亚, 张守阳, 李贺军, 等. 温度对乙烯热解制备炭/炭复合材料结构的影响[J]. *固体火箭技术*, 2012, 35(4): 528-531.
- TUO Y Y, ZHANG S Y, LI H J, et al. The influence of temperature on the texture of carbon/carbon composites infiltrated by ethylene pyrolysis[J]. *Journal of Solid Rocket Technology*, 2012, 35(4): 528-531 (in Chinese).
- [16] LI W, LI H J, WANG J, et al. Preparation and mechanical properties of carbon/carbon composites with high textured pyrolytic carbon matrix[J]. *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*, 2013, 23(7): 2129-2134.

Optimization model for isothermal CVI process parameters for C/C composites based on genetic algorithm and neural network

LI Miaoling^{1, *}, TONG Junfeng², ZHAO Hongxia¹

(1. School of Mechanical Engineering, Luoyang Institute of Science and Technology, Luoyang 471023, China;

2. College of Electrical Engineering and Automation, Luoyang Institute of Science and Technology, Luoyang 471023, China)

Abstract: An optimization model of the process parameters during a chemical vapor infiltration (CVI) was established based on genetic algorithm and back propagation (GA-BP) neural network. The experimental data from the novel isothermal CVI process of carbon/carbon (C/C) composites were selected as the samples to evaluate the model. The effect of the main controllable factors, such as infiltration temperature, part pressure of precursor gas and resident time etc, on the density and uniformity of C/C composites were analyzed. Under the guidance of the model, the maximum errors between the desired densities and the tested densities of the experiment samples are not larger than 6.2% and those between their density differences were not larger than 8.2%. The results show that the established optimization model has high precision and good generalization. It can be efficiently applied for optimizing CVI process parameters.

Keywords: C/C composites; chemical vapor infiltration; BP neural network; genetic algorithm; parameter optimization