

## 基于BP神经网络的聚偏氟乙烯/聚丙烯梯度复合滤料工艺优化

康乐 王立志 高晓平

### Process optimization of polyvinylidene fluoride/polypropylene gradient composite filter media based on BP neural network

KANG Le, WANG Lizhi, GAO Xiaoping

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.13801/j.cnki.fhclxb.20210913.005>

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

#### 用于空气过滤的改性大豆蛋白-细菌纤维素复合材料的制备及性能

Preparation and properties of modified soy protein-bacterial cellulose composites for air filtration

复合材料学报. 2021, 38(3): 843-853 <https://doi.org/10.13801/j.cnki.fhclxb.20200727.001>

#### 电纺制备聚丙烯腈/聚偏氟乙烯复合纤维膜及其空气过滤性能

Preparation of polyacrylonitrile/polyvinylidene fluoride composite fiber membrane by electrospinning and its air filtration performance

复合材料学报. 2021, 38(3): 741-748 <https://doi.org/10.13801/j.cnki.fhclxb.20200814.001>

#### 基于改进粒子群算法的径向基人工神经网络淀粉基发泡复合材料性能预测

Prediction of properties of starch matrix foam composites by radial basis function artificial neural network based on improved particle swarm optimization

复合材料学报. 2017, 34(12): 2882-2889 <https://doi.org/10.13801/j.cnki.fhclxb.20170320.005>

#### 基于广义回归神经网络的纤维增强聚合物复合材料约束损伤混凝土强度预测

Strength prediction of fiber reinforced polymer composite confined damaged concrete using general regression neural network

复合材料学报. 2021, 38(5): 1623-1628 <https://doi.org/10.13801/j.cnki.fhclxb.20200804.001>

#### 空气过滤用电纺聚偏氟乙烯-聚丙烯腈/熔喷聚丙烯无纺布复合材料的制备及过滤性能

Preparation and filtration properties of electrospun poly(vinylidene fluoride)-polyacrylonitrile/melt-blow polypropylene nonwoven composite filtration materials

复合材料学报. 2019, 36(2): 277-282 <https://doi.org/10.13801/j.cnki.fhclxb.20180514.002>

#### 基于径向基函数神经网络优化制备复合改性钠基蒙脱土/橡胶复合材料及其补强-阻燃性能

Optimizing preparation of compound modified Na-montmorillonite/rubber composites based on radial basis function neural network and its reinforcement-flame retardant properties

复合材料学报. 2019, 36(10): 2389-2397 <https://doi.org/10.13801/j.cnki.fhclxb.20181119.005>

DOI: 10.13801/j.cnki.fhclxb.20210913.005

基于 BP 神经网络的聚偏氟乙烯/聚丙烯  
梯度复合滤料工艺优化



康乐<sup>1</sup>, 王立志<sup>2</sup>, 高晓平<sup>\*1</sup>

(1. 内蒙古工业大学 轻工与纺织学院, 呼和浩特 010010; 2. 内蒙古自治区纤维质量监测中心, 呼和浩特 010010)

**摘要:** 口罩是防止病毒通过呼吸系统和黏膜进入人体的重要防疫屏障。一次性口罩存在过滤效率随静电衰减下降快、呼吸阻力大、使用寿命短等问题。将静电纺纳米纤维膜与熔喷布复合, 减少颗粒物过滤性能对静电作用的依赖, 实现长效过滤。以 N,N-二甲基甲酰胺 (DMF) 为溶剂, 基于静电纺丝技术制备聚偏氟乙烯 (PVDF) 纳米纤维膜, 与聚丙烯 (PP) 熔喷基布覆合, 制备 PVDF/PP 纳/微米复合纤维膜。实验研究静电纺丝工艺参数对复合结构纤维膜气溶胶过滤性能的影响规律。建立三元二次多项式模型优化纺丝工艺, 同时构建反向传播 (BP) 神经网络模型, 预测不同工艺下的纤维膜过滤阻力。结果表明, 电压、接收距离、注射速度、纺丝液浓度和纤维膜面密度对过滤效率和过滤阻力有着一致的影响规律。纺丝液浓度为 15wt%、面密度为 3 g/m<sup>2</sup> 时, 优化纺丝工艺参数为: 电压 30 kV, 接收距离 16.8 cm, 注射速度 1.6 mL/h。应用多项式模型预测的过滤阻力值为 76.79 Pa, 相对误差为 9.23%, 误差变异系数 (CV) 值为 59%。BP 神经网络预测的过滤阻力值为 81.25 Pa, 相对误差为 1.99%, 误差 CV 值为 48%。实验证明, 三元二次模型和 BP 神经网络具有较高的预测准确度。

**关键词:** 纳/微复合纤维膜; 静电纺丝工艺优化; 空气过滤; 非线性拟合; 三元二次多项式; BP 神经网络  
**中图分类号:** TS174.8      **文献标志码:** A      **文章编号:** 1000-3851(2022)08-3776-10

Process optimization of polyvinylidene fluoride/polypropylene gradient  
composite filter media based on BP neural network

KANG Le<sup>1</sup>, WANG Lizhi<sup>2</sup>, GAO Xiaoping<sup>\*1</sup>

(1. College of Light Industry and Textile, Inner Mongolia University of Technology, Hohhot 010010, China;  
2. Inner Mongolia Fiber Quality Monitoring Center, Hohhot 010010, China)

**Abstract:** Mask was an important epidemic prevention barrier to prevent virus from entering human body through respiratory system and mucous membrane. The disposable mask had some problems, such as rapid decline of filtration efficiency with electrostatic attenuation, large respiratory resistance, short service life and so on. Electrospun nanofiber membrane was compounded with melt blown cloth to reduce the dependence of particle filtration on static electricity and realize long-term filtration. Polyvinylidene fluoride (PVDF) nanofiber membrane was prepared by electrospinning with N,N-dimethylformamide (DMF) as solvent. Then it was coated with polypropylene (PP) melt blown base cloth to prepare PVDF/PP nano/micron structure composite fiber membrane. The effect of electrospinning process parameters on the aerosol filtration performance of composite fiber membrane was experimentally studied. The ternary quadratic polynomial model was established to optimize the spinning process and predict the fiber membrane resistance. At the same time, the back propagation (BP) neural network model was constructed to predict the fiber membrane resistance. The results show that the effects of voltage, receiving distance,

收稿日期: 2021-08-03; 修回日期: 2021-08-19; 录用日期: 2021-08-27; 网络首发时间: 2021-09-14 10:18:54

网络首发地址: <https://doi.org/10.13801/j.cnki.fhclxb.20210913.005>

基金项目: 内蒙古科技计划项目 (2020GG0282)

通信作者: 高晓平, 博士, 教授, 博士生导师, 研究方向为静电纺纳米纤维及碳玻复合材料 E-mail: [gaoxp@imut.edu.cn](mailto:gaoxp@imut.edu.cn)

引用格式: 康乐, 王立志, 高晓平. 基于 BP 神经网络的聚偏氟乙烯/聚丙烯梯度复合滤料工艺优化 [J]. 复合材料学报, 2022, 39(8): 3776-3785.

KANG Le, WANG Lizhi, GAO Xiaoping. Process optimization of polyvinylidene fluoride/polypropylene gradient composite filter media based on BP neural network[J]. Acta Materiae Compositae Sinica, 2022, 39(8): 3776-3785(in Chinese).

injection speed, spinning solution concentration and fiber membrane surface density on the filtration efficiency and filtration resistance are consistent. When the concentration of spinning solution is 15wt% and the area density is 3 g/m<sup>2</sup>, the optimized spinning process parameters are voltage of 30 kV, receiving distance of 16.8 cm and injection speed of 1.6 mL/h. The filtration resistance predicted by polynomial model is 76.79 Pa, the relative error is 9.23%, and the error coefficient of variation (CV) value is 59%. The filtration resistance predicted by BP neural network is 81.25 Pa, the relative error is 1.99%, and the error CV value is 48%. The experiments show that the ternary quadratic model and BP neural network have high prediction accuracy.

**Keywords:** nano/micro composite fiber membrane; optimization of electrospinning parameters; air filtration; nonlinear fitting; ternary quadratic polynomial model; BP neural network

口罩是重要的防疫物资,可有效阻隔气溶胶颗粒,保护人体健康,免受新冠病毒的侵袭。传统医用口罩滤料,采用驻极聚丙烯熔喷布,虽能有效吸附纳米级气溶胶微粒<sup>[1]</sup>,但过滤效率依赖纤维表面静电荷。静电随呼吸产生的水蒸气快速衰减,导致过滤效率逐渐下降,影响口罩使用寿命<sup>[2]</sup>。

根据经典过滤理论,滤料利用重力、碰撞、沉积、布朗运动、静电吸附等形式,实现对颗粒物的捕捉<sup>[3]</sup>。将纳米纤维膜与微米纤维膜复合,增加纤维比表面积,有效提高机械过滤的综合作用<sup>[4]</sup>,减轻静电依赖,实现高效长效过滤<sup>[5]</sup>,延长口罩使用寿命<sup>[6]</sup>。同时,降低滤材面密度,不仅降低呼吸阻力,提升佩戴舒适度,而且节约原料,减轻一次性口罩弃用带来的环境分解压力<sup>[7]</sup>。

静电纺丝是制备纳米纤维的有效手段之一,在聚合物溶液上施加高压电场,喷出射流经泰勒锥牵伸后,富集到接收装置上形成纳米纤维膜<sup>[8]</sup>。静电纺纳米纤维具有比表面积大、孔隙率高、透气透湿性好等优点,满足新型生物防护材料的要求<sup>[9]</sup>。聚偏氟乙烯(PVDF)具有优异的介电性、耐化学腐蚀性和耐高温等性能,是静电纺丝的常用原料之一。王丽娜等<sup>[10]</sup>将PVDF-聚丙烯腈(PAN)纺丝液共混制得复合静电纺纳米纤维,在85 L/min气流量下,0.3 μm气溶胶过滤效率为99.95%,过滤阻力高达77 mm H<sub>2</sub>O。

静电纺丝工艺参数的设计影响纤维形态、细度、纤维膜孔隙率及孔径大小,进而影响纤维膜过滤效率和过滤阻力。通过优化纺丝工艺参数,能够改善纤维直径及纤维分布。多元回归方法常用于各种参数的优化中,然而线性回归易产生多重共线性和变量间严重的自相关问题,降低模型准确度<sup>[11]</sup>。非线性回归是线性回归分析的扩展,许多实际问题多是较复杂的非线性函数<sup>[12]</sup>。此外,反向传播(Back propagation, BP)神经网络能搭建

出处理非线性信息智能化网络模型,采用梯度下降算法,通过多次迭代学习、信号正向传播、误差反向传播的方式,用于结果预测<sup>[13]</sup>。

本文以PVDF为溶质、N,N-二甲基甲酰胺(DMF)为溶剂,基于静电纺丝技术,以聚丙烯(PP)熔喷布为基材,制备PVDF/PP纳/微米复合纤维膜(Nano/micro composite membrane, NMCM)。探究静电纺丝工艺参数对NMCM颗粒物过滤性能的影响。以颗粒物过滤阻力为目标值,建立以纺丝工艺因素为自变量的三元二次多项式模型,优化工艺。并以纺丝工艺参数为输入数据、过滤阻力为输出数据,构建BP神经网络,对优化工艺进行结果预测。

## 1 实验部分

### 1.1 原材料

聚偏氟乙烯(PVDF, SOLEF6020/1001, 无锡市联合恒洲化工有限公司); N,N-二甲基甲酰胺(DMF, 分析纯, 上海麦克林生化科技有限公司); 聚丙烯(PP)熔喷布(面密度为20 g/m<sup>2</sup>, 山东俊富无纺布有限公司)。

### 1.2 纤维膜制备

以PVDF为溶质、DMF为溶剂,配制质量分数为11wt%~15wt%的PVDF纺丝液。在80℃下,水浴磁力搅拌4 h(ZNCL-G型智能磁力搅拌器,河南爱博科技发展有限公司),至粉末完全溶解,室温静置1 h消泡。采用三针头高压直流静电纺丝装置(自组装),选取22号针头固定在滑台上,滑台以20 mm/s速度水平往复移动,收滚筒转速为50 r/min。以注射泵驱动纺丝液流速,设定高压直流电源输出电压,调节针头到滚筒的接收距离,控制纳米纤维膜面密度,将PVDF纳米纤维膜收集在面密度为20 g/m<sup>2</sup>的PP熔喷布上,在线复合得到PVDF/PP纳/微米复合纤维膜过滤材料NMCM。将纤维膜置于40℃鼓风干燥箱(GZX-9146 MBE型,上海博讯实业有限公司医疗设备厂)中,烘焙6 h

至溶剂完全挥发。

1.3 实验方案

分别以电压、接收距离、注射速度、纺丝液浓度以及 PVDF 纳米纤维膜面密度为 5 个实验因素，由预实验和实验设备量程，设定电压在 25~29 kV，

接收距离在 10~22 cm，注射速度在 0.5~2.5 mL/h，浓度在 11wt%~15wt%，纤维膜面密度为 1~5 g/m<sup>2</sup> 范围内，每个因素设计 5 个水平，见表 1。采用单因素控制变量法，实验研究各因素对 NMCM 颗粒物过滤性能的影响，见表 2。

表 1 因子水平  
Table 1 Factor level

| Level | Voltage/kV | Receiving distance/cm | Injection speed/(mL·h <sup>-1</sup> ) | Concentration/wt% | Area density/(g·m <sup>-2</sup> ) |
|-------|------------|-----------------------|---------------------------------------|-------------------|-----------------------------------|
| 1     | 25         | 10                    | 0.5                                   | 11                | 1                                 |
| 2     | 26         | 13                    | 1.0                                   | 12                | 2                                 |
| 3     | 27         | 16                    | 1.5                                   | 13                | 3                                 |
| 4     | 28         | 19                    | 2.0                                   | 14                | 4                                 |
| 5     | 29         | 22                    | 2.5                                   | 15                | 5                                 |

表 2 实验方案  
Table 2 Experimental scheme

| Group | Voltage/kV | Receiving distance/cm | Injection speed/(mL·h <sup>-1</sup> ) | Concentration/wt% | Area density/(g·m <sup>-2</sup> ) |
|-------|------------|-----------------------|---------------------------------------|-------------------|-----------------------------------|
| 1     | 25         | 16                    | 1.5                                   | 12                | 3                                 |
| 2     | 26         | 16                    | 1.5                                   | 12                | 3                                 |
| 3     | 27         | 16                    | 1.5                                   | 12                | 3                                 |
| 4     | 28         | 16                    | 1.5                                   | 12                | 3                                 |
| 5     | 29         | 16                    | 1.5                                   | 12                | 3                                 |
| 6     | 27         | 10                    | 1.5                                   | 12                | 3                                 |
| 7     | 27         | 13                    | 1.5                                   | 12                | 3                                 |
| 8     | 27         | 16                    | 1.5                                   | 12                | 3                                 |
| 9     | 27         | 19                    | 1.5                                   | 12                | 3                                 |
| 10    | 27         | 22                    | 1.5                                   | 12                | 3                                 |
| 11    | 27         | 16                    | 0.5                                   | 12                | 3                                 |
| 12    | 27         | 16                    | 1.0                                   | 12                | 3                                 |
| 13    | 27         | 16                    | 1.5                                   | 12                | 3                                 |
| 14    | 27         | 16                    | 2.0                                   | 12                | 3                                 |
| 15    | 27         | 16                    | 2.5                                   | 12                | 3                                 |
| 16    | 27         | 16                    | 1.5                                   | 11                | 3                                 |
| 17    | 27         | 16                    | 1.5                                   | 12                | 3                                 |
| 18    | 27         | 16                    | 1.5                                   | 13                | 3                                 |
| 19    | 27         | 16                    | 1.5                                   | 14                | 3                                 |
| 20    | 27         | 16                    | 1.5                                   | 15                | 3                                 |
| 21    | 27         | 16                    | 1.5                                   | 12                | 1                                 |
| 22    | 27         | 16                    | 1.5                                   | 12                | 2                                 |
| 23    | 27         | 16                    | 1.5                                   | 12                | 3                                 |
| 24    | 27         | 16                    | 1.5                                   | 12                | 4                                 |
| 25    | 27         | 16                    | 1.5                                   | 12                | 5                                 |

1.4 纤维膜性能测试

1.4.1 纤维膜微观结构

采用场发射扫描电子显微镜 (FEI QUANTA 650 FEG)，利用高能电子束扫描，反应样品表面形貌，得到 PVDF 纤维、NMCM 纤维形态、取向、纤维直径、孔径大小等微观结构。制备 0.5 mm×0.5 mm 试样，通过导电胶带黏于电镜台上，经离子溅射仪喷金处理，以提高试样表面导电性和成

像清晰度。

1.4.2 颗粒物过滤测试

采用全自动过滤材料测试仪 (SLGLY-2626)，测试 NMCM 颗粒物过滤效率及过滤阻力。根据 GB19083—2010《医用防护口罩技术要求》<sup>[14]</sup>，设定气体流量 (85±2)L/min。配制质量分数为 2wt%NaCl 溶液，调节仪器喷射气溶胶颗粒，使颗粒物的空气动力学质量中值 (MMAD) 直径为 (0.24±0.06) μm。



1.5 纺丝工艺优化

本文中通过建立数学模型优化经典纺丝工艺。

1.5.1 多元非线性拟合

采用多元非线性回归方法,以过滤阻力为目标值,纺丝工艺因素为自变量,建立三元二次多项式模型,如下式所示:

$$y = \beta_0 + \sum_{i=1}^3 \beta_i x_i + \sum_{i=1}^3 \sum_{j=1}^3 \beta_{ij} x_i x_j$$
 (1)

式中:  $\beta_0$  为常数;  $\beta_i$  为一次项系数;  $\beta_{ij}$  为二次项系数;  $y$  为过滤阻力 (Pa);  $x_1$  为电压 (kV);  $x_2$  为距离 (cm);  $x_3$  为流速 (mL/h)。

利用 MATLAB 软件求解,根据纺丝工艺参数边界条件及过滤阻力取值范围,求得阻力最小值及对应的纺丝工艺参数。

1.5.2 BP 神经网络预测

采用 MATLAB 构建前馈神经网络<sup>[15]</sup>。通过对样本数据的学习、训练、测试使算法掌握计算能力。再输入用于预测数据,得到预测结果。

BP 神经网络由输入层、隐藏层、输出层组成(图 1)。隐藏层代表输入层到输出层复杂的映射关系。以电压、接收距离和注射速度为三个输入单元,设置四个隐藏单元,以过滤阻力为输出单元。

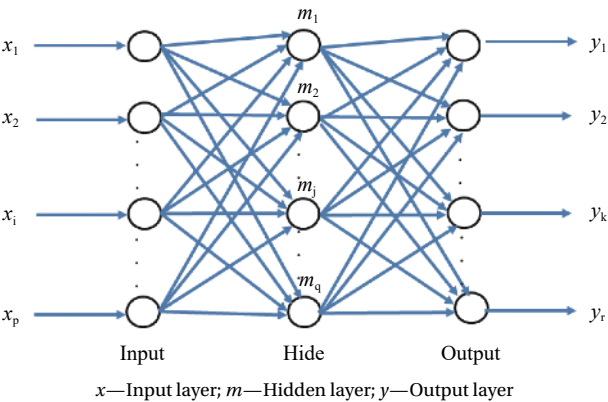


图 1 人工神经网络结构

Fig. 1 Structure of back propagation neural network

将表 2 中实验组 1~15 每组的电压、距离、流速工艺参数作为输入训练样本,其对应的过滤阻力作为期望输出值,进行归一化处理。

使用 Newff 函数建立进行前反馈训练的网络对象。设置网络参数,每训练 400 次反馈一次结果,最大训练次数为 500。

采用 Sigmoid 激励函数,计算各层输出值,结果反归一化:

$$f(x) = \frac{1}{1 + e^{-x}}$$
 (2)

选取 70% 数据进行训练、15% 数据进行修正、15% 数据进行测试,得到拟合曲线。

完成训练后进行结果预测。将工艺参数组合输入,得到过滤阻力预测值。

1.5.3 数学模型准确性分析

将表 2 实验组 1~15 的电压、距离、流速工艺参数代入三元二次多项式模型,得到过滤阻力结果  $\Delta P_1$ ; 代入 BP 神经网络预测,结果为  $\Delta P_2$ ; 将两组预测结果与阻力实验结果比较,分析相对误差。

2 结果与讨论

2.1 PVDF 纳米纤维膜微观结构

随纺丝液浓度由 11wt% 增加至 15wt%,纤维表面形貌由串珠状(图 2(a))逐渐过渡成光滑圆柱状(图 2(b))。这是由于纺丝液射流同时受到表面张力、库仑力和黏弹力作用。表面张力使射流具有形成珠粒的趋势,以降低表面能。库仑力使射流表面携带相同电性的电荷,电荷斥力使射流保持柱状,阻止珠粒形成,黏弹力使射流连续。当射流表面张力大于库仑力和黏弹力的合力时,珠粒形成。提高纺丝液浓度,黏度增加,表面张力降低,电导率增加,导致库仑力增加。当库仑力与黏弹力的合力克服表面张力时,串珠消失<sup>[16]</sup>。

然而串珠结构不利于形成结构均匀的纳米纤维膜空气过滤材料,严重影响材料的过滤性能<sup>[17]</sup>,为此需克服串珠结构,提升纳米纤维均匀度。

2.2 纺丝工艺对 NMCM 过滤性影响

根据表 1 实验方案制备 NMCM,过滤效率均超过 95%,过滤阻力介于 72.97~214.97 Pa,满足 GB19083—2010《医用防护口罩技术要求》<sup>[14]</sup>,在气体流量为 85 L/min 情况下,口罩对非油性颗粒过滤效率  $\geq 95\%$ ,吸气阻力不得超过 343.2 Pa(35 mm H<sub>2</sub>O) 的防护要求。与报道的<sup>[18]</sup>0.7 g/m<sup>2</sup> 纳米纤维毡将熔喷布 30% 的过滤效率提升到 92% 的结果相比,具有更优异的过滤性能。

2.2.1 电压对纤维膜过滤性能的影响

图 3 为电压对纤维膜过滤性能的影响。可知,随电压增加,过滤效率与过滤阻力呈渐近下降。由于滚筒上包裹熔喷布,构成非导电接收装置,静电纺纳米纤维膜覆盖在熔喷布上,携带的电荷难以及时通过接地装置导走,导致电荷聚集。纳

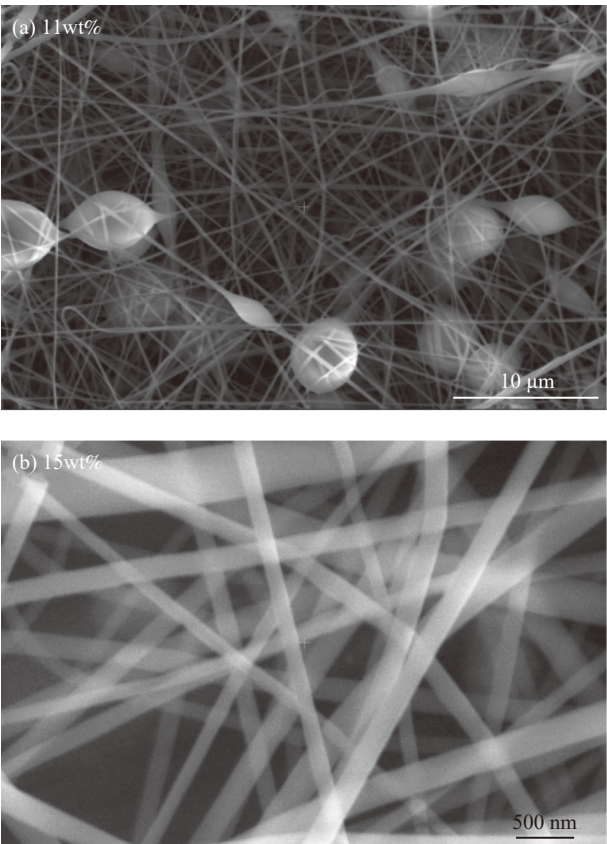


图2 不同纺丝液浓度下聚偏氟乙烯 (PVDF) 纤维形貌  
Fig. 2 Morphologies of polyvinylidene fluoride (PVDF) fiber under different concentration of spinning solution

米纤维膜与电场中牵伸的纤维具有同种电性的电荷，存在排斥作用。当电压增加，纤维与纤维膜携带的电荷量增加，排斥作用增强。纤维逸散程度增大，导致收集到接收装置上的纤维根数减少，排列松散，孔径大，过滤效率和过滤阻力降低。当电压为 28 kV 时，过滤阻力最低。

2.2.2 接收距离对纤维膜过滤性能的影响

图 4 为距离对纤维膜过滤性能的影响。可知，随接收距离增加，过滤效率与过滤阻力先升高后降低。当拒收距离增加时，纤维到接收装置的飞行时间增长，牵伸更加充分，纤维细度降低，比表面积增大，对颗粒物的捕捉能力增强，然而纤维堆叠使孔径变小，导致阻力增加。当接收距离过大时，电场强度射流受到的电场力逐渐降低，射流加速度减小，拉伸作用减弱导致纤维直径增加，孔径增大，且接收面积增大，纤维的散逸程度增加，接收装置上纤维根数减少，导致效率下降，阻力下降。当距离为 19 cm 时，过滤阻力最低。

2.2.3 注射速度对纤维膜过滤性能的影响

图 5 为注射速度对纤维膜过滤性能的影响。

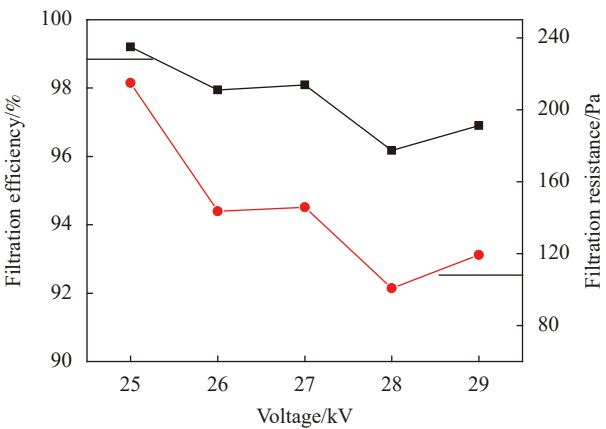


图3 电压对聚偏氟乙烯/聚丙烯纳/微米复合纤维膜 (PVDF/PP 纳/微米复合纤维膜 (NMCM)) 过滤效率及阻力影响

Fig. 3 Effect of voltage on filtration efficiency and resistance of polyvinylidene fluoride/polypropylene nano/micro composite membrane (PVDF/PP nano/micro composite membrane (NMCM))

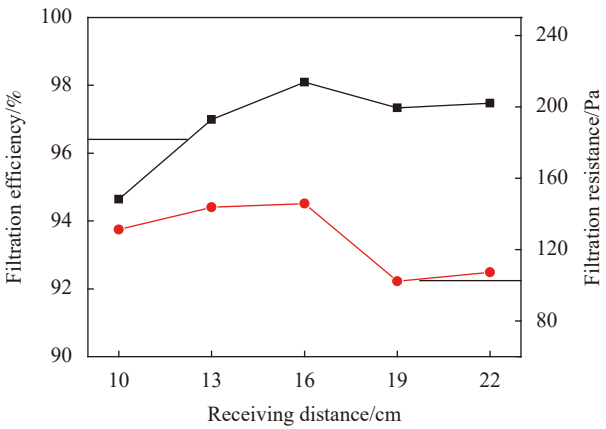


图4 接收距离对 NMCM 过滤效率及阻力影响

Fig. 4 Effect of receiving distance on filtration efficiency and resistance of NMCM

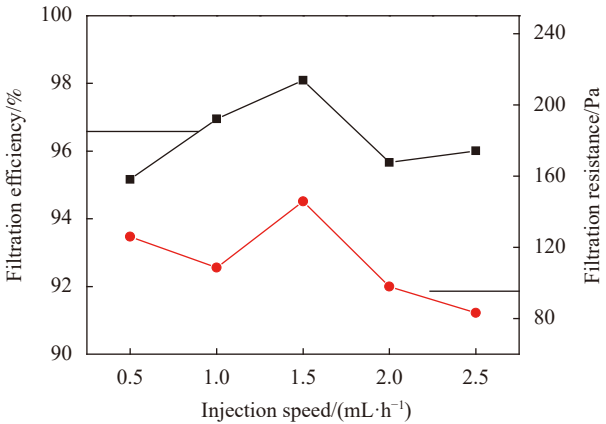


图5 注射速度对 NMCM 过滤效率及阻力影响

Fig. 5 Effect of injection speed on filtration efficiency and resistance of NMCM

当流速增加时,过滤效率与过滤阻力呈现先增加后降低趋势。这是由于当流速增加时,射流携带的电荷量增加,所受电场力增大,牵伸充分,纤维细度降低,过滤效率和过滤阻力增大。当流速增加到一定程度时,由于射流携带的电荷量较大,受非导电接收装置上同种电性纤维膜的斥力作用增强,使纤维逸散程度增加,收集到的纤维根数减少,过滤效率与过滤阻力降低。当注射速度为 2.5 mL/h 时,过滤阻力最低。

2.2.4 纺丝液浓度对纤维膜过滤性能的影响

图 6 为浓度对纤维膜过滤性能的影响。当浓度低于 13wt% 时,纤维形态呈现串珠状,过滤效率与过滤阻力随着纺丝液浓度增加而增大。当浓度高于 13wt% 时,纤维转为光滑圆柱状,过滤阻力明显下降。纺丝液浓度对纤维形态的调控发挥重要作用。当纺丝液浓度为 15wt% 时,纤维呈光滑圆柱状,无串珠和扁平坍塌现象,故以此作为定量优化纺丝工艺过程中的固定参数。

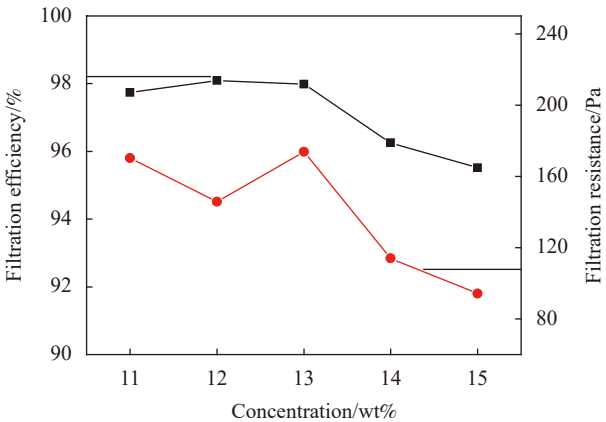


图 6 纺丝液浓度对 NMCM 过滤效率及阻力影响

Fig. 6 Effect of spinning solution concentration on filtration efficiency and resistance of NMCM

2.2.5 纤维膜面密度对纤维膜过滤性能的影响

图 7 为面密度对纤维膜过滤性能的影响。由于面密度增加,单位面积的纤维根数增多,能有效捕捉颗粒物的纤维表面增大,过滤效率提升。随纤维堆叠程度加深,纤维间孔隙减小,导致过滤阻力下降<sup>[19]</sup>。过滤效率与过滤阻力随纤维膜面密度的增大而增加。当面密度为 3 g/m<sup>2</sup> 时,既能使过滤阻力维持在较低水平,同时也能保证纤维膜的力学性能。因此选取面密度为 3 g/m<sup>2</sup> 作为定量优化纺丝工艺过程中的固定参数。

根据单因素控制变量的实验因子水平得出较

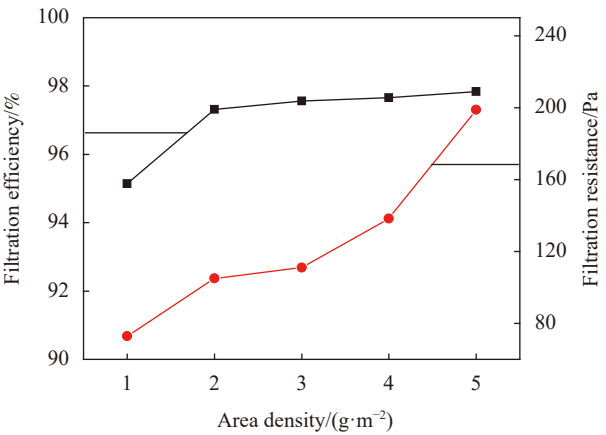


图 7 面密度对 NMCM 过滤效率及过滤阻力影响

Fig. 7 Effect of area density on filtration efficiency and resistance of NMCM

优工艺范围为:电压 27~29 kV,接收距离 16~22 cm,流速在 1.5~2.5 mL/h,面密度在 1~3 g/m<sup>2</sup>。

2.3 NMCM 纺丝工艺优化

当 NMCM 过滤效率满足标准即 95% 以上时,为提升过滤材料呼吸舒适度,以 NMCM 的过滤阻力为目标值优化纺丝工艺。采用 15wt% 纺丝液制备 3 g/m<sup>2</sup> 纳米纤维膜,以电压、接收距离、流速为自变量,过滤阻力为目标值,建立三元二次多项式模型优化纺丝工艺。

2.3.1 三元二次多项式非线性优化

根据静电纺丝机装置,高压电源的量程为 [0, 30] kV,由预实验得知,当电压低于 20 kV 时,电场力牵伸作用弱,纤维成型不佳,出现黏连现象。因此电压参数选择 [25, 30] kV,梯度为 0.1 kV。调节滑台位置,改变纺丝针头到滚筒的接收距离,量程为 [8, 22] cm,梯度为 0.1 cm;纺丝液流速直接影响纳米纤维的生产效率,但当纺丝液流速过高时,不仅影响射流在电场中的受力,同时易造成溶剂未能及时挥发,导致纤维黏连。因此综合考虑能源成本和纤维品质,纺丝液流速选取 [0.5, 3] mL/h,梯度为 0.1 mL/h。面密度 20 g/m<sup>2</sup> 的 PP 熔喷布的过滤阻力为 48.5 Pa,为满足防护需求过滤阻力低于 340 Pa,因此选取 y 值限定在 [48, 340]。

利用 MATLAB 编程,求解三元二次多项式系数:

$$\begin{aligned} \beta_0 &= 157.65; \beta_1 = -51.13; \beta_2 = 107.46; \\ \beta_3 &= 207.37; \beta_{11} = 8.83; \beta_{22} = -0.26; \\ \beta_{33} &= -28.01; \beta_{12} = -15.67; \beta_{13} = -132.13; \beta_{23} = 214.06. \end{aligned}$$

得三元二次方程:

$$y=8.83x_1^2-0.26x_2^2-28.01x_3^2-15.67x_1x_2-132.13x_1x_3+214.06x_2x_3-51.13x_1+107.46x_2+207.37x_3+157.65$$
$$x_1 \in [20,30]; x_2 \in [8,22]; x_3 \in [0.5,3]; y \in [48,340] \quad (3)$$

式中： $y$ 为过滤阻力； $x_1$ 为电压(kV)； $x_2$ 为距离(cm)； $x_3$ 为流速(mL·h<sup>-1</sup>)

不考虑多种纺丝工艺因素间交互影响，根据单因素实验方案得出过滤阻力最低的各因素最优纺丝条件为：电压 28 kV，距离 19 cm，注射速度 2.5 mL/h。

将  $x_2=19$ 、 $x_3=2.5$  代入式 (3) 中，当  $x_1=30$  时， $y_{\min}=188.19$ ；

将  $x_1=28$ 、 $x_3=2.5$  代入式 (3) 中，当  $x_2=16.8$  时，

$y_{\min}=94.29$ ；  
将  $x_1=28$ 、 $x_2=19$  代入式 (3) 中，当  $x_3=1.6$  时， $y_{\min}=108.26$ 。

将通过公式计算，考虑交互作用的各因素的最优工艺参数组合为工艺： $x_1=30$ 、 $x_2=16.8$ 、 $x_3=1.6$  时， $y=76.79$ 。即当电压为 30 kV、距离为 16.8 cm、流速为 1.6 mL/h 时，计算得过滤阻力为 76.79 Pa。

2.3.2 BP 神经网络预测

BP 神经网络训练拟合系数 0.9686、修正拟合系数为 0.9799，测试拟合系数为 0.9931，综合拟合系数为 0.9767，拟合系数  $R$  值接近于 1，表明输入数据与学习程度的匹配性越高，越有利于提高预测输出值的准确性<sup>[20]</sup>。图 8 为 NMCM 纺丝工艺

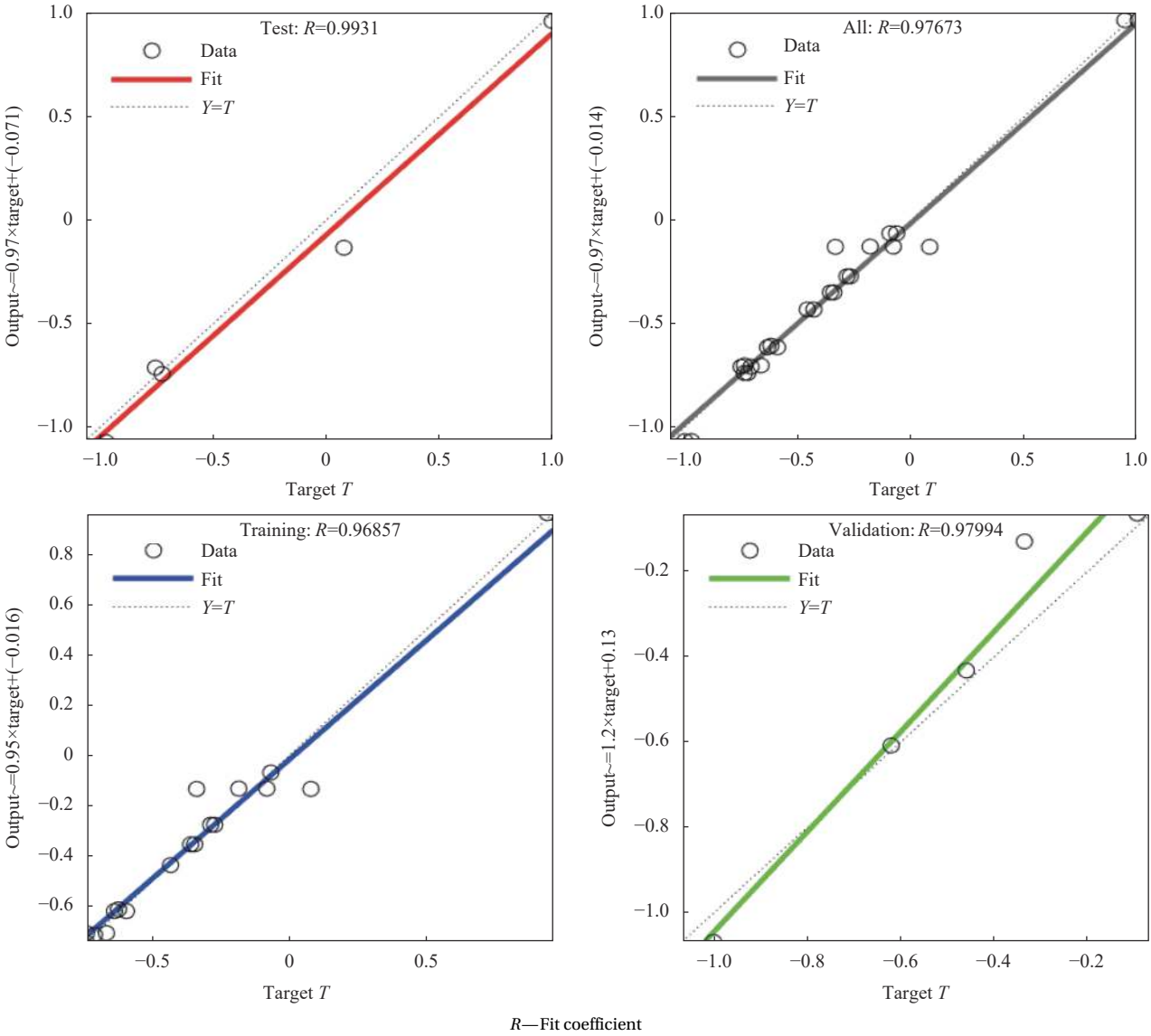


图 8 NMCM 纺丝工艺的反向传播 (BP) 神经网络拟合

Fig. 8 Fitting of back propagation (BP) neural network for NMCM spinning process



BP 神经网络拟合，训练、修正和测试的均方误差一致，趋近于  $10^{-2}$ 。

将电压 30 kV、距离 16.8 cm、流速 1.6 mL/h 输入神经网络进行预测，得过滤阻力预测值为 81.25 Pa。

2.3.3 模型验证

根据表 1 第 1~15 组试验方案，表 3 为以电压、距离、流速为自变量的单因素实验方案制得 NMCM 过滤阻力。由验证模型可知，由三元二次多项式模型预测相对误差在 2.21% 至 20.45%，误

差均值为 9.23%，误差变异系数 (CV) 值为 59%；由 BP 神经网络预测相对误差在 1.38% 至 4.70%，误差均值为 1.99%，误差 CV 值为 48%。表明 BP 神经网络的预测准确性更高。由于三元二次多项式模型，只包含两个因素间交互作用，且最高次项限于二次预测准确度较低。BP 神经网络存在多个隐藏层单元，多重计算输入到输出的映射关系，具有并行计算、自适应学习和调整能力<sup>[21]</sup>，因此 BP 神经网络的预测准确性更高。

表 3 NMCM 纺丝工艺优化模型验证  
Table 3 Verification of NMCM spinning process optimization model

| Group | Actual value | Predicted value of filtration resistance/Pa |                   | Absolute value of relative error/% |                   |
|-------|--------------|---------------------------------------------|-------------------|------------------------------------|-------------------|
|       |              | Ternary quadratic polynomial                | BP neural network | Ternary quadratic polynomial       | BP neural network |
| 1     | 214.97       | 210.23                                      | 219.00            | 2.21                               | 1.88              |
| 2     | 143.43       | 160.32                                      | 143.50            | 11.77                              | 0.05              |
| 3     | 145.77       | 128.06                                      | 143.75            | 12.15                              | 1.38              |
| 4     | 100.73       | 113.46                                      | 102.50            | 12.63                              | 1.75              |
| 5     | 119.17       | 116.51                                      | 122.00            | 2.23                               | 2.38              |
| 6     | 131.13       | 136.37                                      | 133.50            | 4.00                               | 1.80              |
| 7     | 143.70       | 134.60                                      | 147.00            | 6.34                               | 2.30              |
| 8     | 145.77       | 128.06                                      | 143.75            | 12.15                              | 1.38              |
| 9     | 102.17       | 116.77                                      | 104.50            | 14.29                              | 2.28              |
| 10    | 107.33       | 100.72                                      | 110.00            | 6.16                               | 2.48              |
| 11    | 125.93       | 119.31                                      | 128.50            | 5.26                               | 2.04              |
| 12    | 108.50       | 130.69                                      | 110.50            | 20.45                              | 1.84              |
| 13    | 145.77       | 128.06                                      | 143.75            | 12.15                              | 1.38              |
| 14    | 97.90        | 111.43                                      | 102.50            | 13.82                              | 4.70              |
| 15    | 83.10        | 80.80                                       | 85.00             | 2.77                               | 2.29              |

3 结论

以聚偏氟乙烯 (PVDF) 为原料，基于静电纺丝工艺纺制纳米纤维膜，与熔喷布在线复合制备 PVDF/聚丙烯 (PP) 纳/微米复合纤维膜 (NMCM)，用于过滤气溶胶。分析纺丝工艺参数对纤维形貌和过滤性能影响。建立数学模型，定量分析纺丝工艺对纤维膜过滤性能的影响，以过滤阻力为目标值优化纺丝工艺参数。结论如下：

(1) 制得面密度为 3 g/m<sup>2</sup> PVDF 纳米纤维膜与 20 g/m<sup>2</sup> PP 微米纤维基材复合，得到纳微复合结构纤维膜 NMCM。SEM 观察到 PVDF 纤维膜直径处于微纳米尺度。NMCM 过滤效率高达 95% 以上、过滤阻力在 70~200 Pa 范围内，满足口罩防护要求；

(2) 纺丝工艺对过滤效率与过滤阻力的影响趋势一致。随电压增加，效率与阻力呈现下降趋势。随接收距离和流速增加，效率与阻力先增加后降低。随纺丝液浓度增加，纤维形态由珠粒状逐渐转变为圆柱状，且纤维表面光滑。随 PVDF 纳米

纤维膜面密度的增加，过滤效率与过滤阻力均增大。较优工艺范围为电压 27~29 kV，接收距离 16~22 cm，流速 1.5~2.5 mL/h，纺丝液浓度 13wt%~15wt%，面密度 1~3 g/m<sup>2</sup>；

(3) 以纤维膜过滤阻力为目标值，应用三元二次多项式模型和反向传播 (BP) 神经网络优化纺丝工艺。经优化的工艺参数为电压为 30 kV，接收距离为 16.8 cm，流速为 1.6 mL/h。比较分析两种优化方法得到三元二次多项式的相对误差为 9.23%，得出区间最小阻力值为 76.79 Pa；BP 神经网络相对误差为 1.99%，得阻力预测值为 81.25 Pa，预测精度高。为静电纺丝工艺定量优化，提供新的思路。

参考文献：

[ 1 ] 张煌忠. 聚丙烯熔喷非织造材料的空气过滤效果研究[J]. 合成纤维工业, 2015, 38(4): 28-30.  
ZHANG Huangzhong. Air filtration efficiency of melt-blown polypropylene nonwoven[J]. China Synthetic Fiber

- Industry, 2015, 38(4): 28-30(in Chinese).
- [2] 侯冠一, 武文杰, 万海肖, 等. 口罩聚丙烯熔喷布的静电机理及其影响因素的研究进展[J]. 高分子通报, 2020(8): 1-22.
- HOU Guanyi, WU Wenjie, WAN Haixiao, et al. Research progress of static-electricity mechanism and influencing factors of polypropylene melt-blown nonwovens in mask[J]. Polymer Bulletin, 2020(8): 1-22(in Chinese).
- [3] 刘学洋. PVDF/PSU复合抗菌纳米纤维空气过滤材料的制备及其在口罩中的应用研究[D]. 上海: 东华大学, 2016.
- LIU Xueyang. Fabrication of antibacterial polyvinylidene-fluoride/polysulfone nanofibrous membranes for air filtration and application in masks[D]. Shanghai: Donghua University, 2016(in Chinese).
- [4] 王珊. 聚偏氟乙烯/聚四氟乙烯复合驻极纳米纤维膜的制备及其空气过滤性能研究[D]. 上海: 东华大学, 2017.
- WANG Shan. Electret polyvinylidene fluoride nanofibers/polytetrafluoroethylene composite fibrous membrane for air filtration[D]. Shanghai: Donghua University, 2017(in Chinese).
- [5] 刘延波, 陈志军, 郝铭, 等. 电纺膜替代荷电熔喷布解决口罩短缺问题的可能性分析[J]. 纺织导报, 2020, 3(7): 64-70.
- LIU Yanbo, CHEN Zhijun, HAO Ming, et al. Possibility analysis on replacement of electrostatic melt-blown non-woven fabric to electrospun membraneto solve mask shortage problem[J]. China Textile Leader, 2020, 3(7): 64-70(in Chinese).
- [6] 丁彬, 斯阳, 俞建勇. 静电纺纳米纤维材料在环境领域中的应用研究进展[J]. 中国材料进展, 2013, 32(8): 492-502.
- DING Bin, SI Yang, YU Jianyong. Progress in the research of electrospun nanofibers for environmental applications[J]. Materials China, 2013, 32(8): 492-502(in Chinese).
- [7] 付文丽, 康为民, 程博闻, 等. 静电纺纳米纤维的工艺原理、应用及发展前景[J]. 现代纺织技术, 2009, 17(1): 51-54.
- FU Wenli, KANG Weimin, CHENG Bowen, et al. Process principle, application and development prospect of electrospun nanofibers[J]. Advanced Textile Technology, 2009, 17(1): 51-54(in Chinese).
- [8] 康卫民, 程博闻, 庄旭品, 等. 静电纺纳米级纤维复合膜及其过滤性能[J]. 纺织学报, 2006, 27(10): 10-12.
- KANG Weimin, CHENG Bowen, ZHUANG Xupin, et al. Electrospun nano-fiber composite membrane and its filtration properties[J]. Journal of Textile Research, 2006, 27(10): 10-12(in Chinese).
- [9] FACCINI M, AMANTIA D, AUBOUY L, 等. 基于静电纺纳米纤维的纺织防护材料[J]. 国际纺织导报, 2011, 39(9): 68.
- FACCINI M, AMANTIA D, AUBOUY L, et al. Textile protective materials based on electrospun nanofibers[J]. Mel-liand China, 2011, 39(9): 68(in Chinese).
- [10] 王利娜, 姜辉清, 辛长征, 等. 空气过滤用电纺聚偏氟乙烯-聚丙烯腈/熔喷聚丙烯无纺布复合材料的制备及过滤性能[J]. 复合材料学报, 2019, 36(2): 277-282.
- WANG Lina, LOU Huiqing, XIN Changzheng, et al. Preparation and filtration properties of electrospun poly(vinylidene fluoride)-polyacrylonitrile/melt-blow polypropylene nonwoven composite filtration materials[J]. Acta Materiae Compositae Sinica, 2019, 36(2): 277-282(in Chinese).
- [11] 李娟, 章明清, 章赞德, 等. 三元非结构肥效模型提高水稻施肥推荐的可靠性[J]. 植物营养与肥料学报, 2019, 25(2): 149-158.
- LI Juan, ZHANG Mingqing, ZHANG Zande, et al. Increasing precision of fertilizer recommendation using ternary non-structural fertilizer response model[J]. Journal of Plant Nutrition and Fertilizers, 2019, 25(2): 149-158(in Chinese).
- [12] 王蕊, 董祥旻, 何卫革. 一种多元非线性回归模型的建立方法及其应用[J]. 中国考试, 2010(11): 17-22.
- WANG Rui, DONG Xiangming, HE Weiping. A kind of multiple nonlinear regression model and its application[J]. China Examinations, 2010(11): 17-22(in Chinese).
- [13] 刘天舒. BP神经网络的改进研究及应用[D]. 哈尔滨: 东北农业大学, 2011.
- LIU Tianshu. The research and application on BP neural network improvement[D]. Harbin: Northeast Agricultural University, 2011(in Chinese).
- [14] 中国国家标准化管理委员会. 医用防护口罩技术要求: GB 19083—2010[S]. 北京: 中国标准出版社, 2010.
- Standardization Administration of the People's Republic of China. Technical requirements for protective face mask for medical use: GB 19083—2010[S]. Beijing: China Standards Press, 2010(in Chinese).
- [15] 李萍, 曾令可, 税安泽, 等. 基于MATLAB的BP神经网络预测系统的设计[J]. 计算机应用与软件, 2008, 25(4): 149-150.
- LI Ping, ZENG Lingke, SHUI Anze, et al. Design of forecast system of back propagation neural network based on matlab[J]. Computer Applications and Software, 2008, 25(4): 149-150(in Chinese).
- [16] 张媛. 静电纺载药串珠纤维形态和尺寸的可控性研究[D]. 上海: 东华大学, 2015.
- ZHANG Yuan. Research on the morphology and size controlling of electrospun beaded nanofibers for drug encapsulation[D]. Shanghai: Donghua University, 2015(in Chinese).
- [17] 梁幸幸, 杨颖, 许德平. 静电纺丝法制备空气过滤膜及应用[J]. 化学工业与工程, 2015, 32(3): 59-67.
- LIANG Xingxing, YANG Ying, XU Deping. Preparation and application of air filtration membrane by electrospinning[J]. Chemical Industry and Engineering, 2015,

32(3): 59-67(in Chinese).

[18] 覃小红, 李妮, 杨恩龙, 等. 静电纺纳米纤维毡在新型高效过滤器上使用的优势与前景[J]. 产业用纺织品, 2007, 4(199): 33-37.

QIN Xiaohong, LI Ni, YANG Enlong, et al. The advantage and foreground of electrospinning nanofiber mats applied on the high-effect filters[J]. Technical Textiles, 2007, 4(199): 33-37(in Chinese).

[19] 尹桂波, 臧传峰. 聚丙烯腈静电纺/聚丙烯熔喷复合材料的制备及过滤性能研究[J]. 纺织科技进展, 2017(11): 17-21.

YIN Guibo, ZANG Chuanfeng. Preparation and filtering performance of PAN electro-spun/PP melt-blown composites[J]. Progress in Textile Science & Technology, 2017(11): 17-21(in Chinese).

[20] 王磊, 王汝凉, 曲洪峰, 等. BP神经网络算法改进及应用[J]. 软件导刊, 2016, 15(5): 38-40.

WANG Lei, WANG Ruliang, QU Hongfeng, et al. Improved BP neural network algorithm and its application[J]. Software Guide, 2016, 15(5): 38-40(in Chinese).

[21] 潘文婵, 刘尚东. BP神经网络的优化研究与应用[J]. 计算机技术与发展, 2019, 29(5): 74-76.

PAN Wenchan, LIU Shangdong. Optimization research and application of BP neural network[J]. Computer Technology and Development, 2019, 29(5): 74-76(in Chinese).