



Prediction of miscibility of sodium alginate/poly(ethylene glycol) blends by fuzzy systems

Dilek İmren Koç¹, Nisa Özel Ergün¹, Mehmet Levent Koç²

¹Department of Chemical Engineering, Sivas Cumhuriyet University, Sivas, 58140, Turkey

²Department of Civil Engineering, Sivas Cumhuriyet University, Sivas, 58140, Turkey

Highlights:

- Prediction of miscibility of polymer-polymer blends by fuzzy systems
- Fuzzification of viscosimetric interaction parameters
- The best predictive performance with Sugeno type fuzzy system

Keywords:

- Fuzzy system
- Mamdani type model
- Sugeno type model
- Miscibility
- Viscometry

Article Info:

Received: 13.08.2017

Accepted: 20.10.2017

DOI:

10.17341/gazimmfd.416521

Acknowledgement:

The authors thank CUBAP (Grand No. M-634) for the viscometric and refractometric data used in this work

Correspondence:

Author: Dilek İmren Koç
e-mail:
dimren@cumhuriyet.edu.tr
phone: +90 346 219 1010
/2242

Graphical/Tabular Abstract

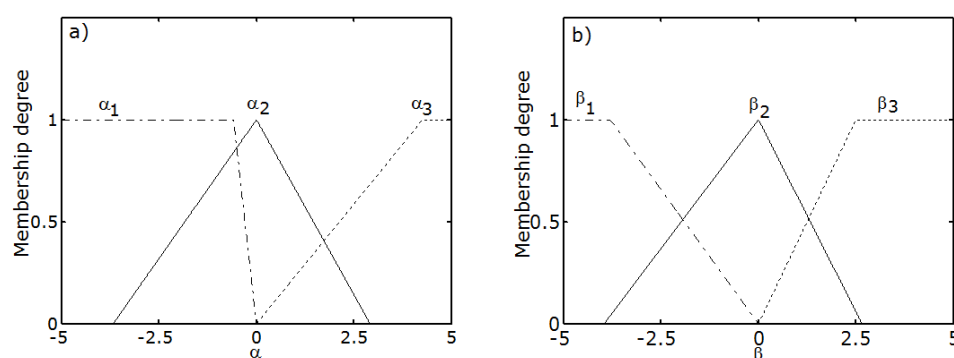


Figure A. Modified fuzzy sub-sets for interaction parameters a) α and b) β .

Purpose: This study firstly presents Mamdani and Sugeno type fuzzy systems based on fuzzified interaction parameters for the prediction of the miscibility of sodium alginate/poly(ethylene glycol) blends in solution phase.

Theory and Methods: This study transforms Mamdani type fuzzy system into Sugeno type fuzzy system by using Levenberg-Marquardt learning algorithm. Sugeno type fuzzy system is designed by the optimal constants of Sugeno type fuzzy system as well as optimal fuzzy sub-sets of interaction parameters (Figure A). The predictive performances of both fuzzy systems are compared with each other to discuss the results of the proposed transformation.

Results: The results show that trained fuzzy model (i.e., Sugeno type fuzzy system) have a better predictive performance than untrained fuzzy model (i.e., Mamdani type fuzzy system) and a good potential to be used for viscometric studies.

Conclusion: Fuzzy systems have a good potential for the decision making on polymer-polymer miscibility in viscometric studies.



Sodyum aljinat/poli(etilen glikol) karışımların karışabilirliğinin bulanık sistemlerle tahmini

Dilek İmren Koç^{1*}, Nisa Özel Ergün¹, Mehmet Levent Koç²

¹Cumhuriyet Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Kimya Mühendisliği Bölümü, 58140, Sivas, Türkiye

²Cumhuriyet Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, İnşaat Mühendisliği Bölümü, 58140, Sivas, Türkiye

Ö N E Ç I K A N L A R

- Bulanık sistemlerle polimer-polimer karışımlarının karışabilirlik tahmini
- Viskozimetrik etkileşim parametrelerinin bulanıklaştırılması
- Sugeno tip bulanık sistem ile en iyi tahmin performansı

Makale Bilgileri

Araştırma Makalesi

Geliş: 13.08.2017

Kabul: 20.10.2017

DOI:

10.17341/gazimmfd.416521

Anahtar Kelimeler:

Bulanık sistem,
mamdani tipi model,
sugeno tipi model,
karışabilirlik,
viskozimetri

ÖZET

Bu çalışmada, bulanıklaştırılmış etkileşim parametrelerine (α ve β) dayalı Mamdani ve Sugeno tipi bulanık sistemler çözelti fazındaki sodyum aljinat/poli(etilen glikol) karışımların karışabilirlik tahminine uygulanmıştır. Bulanık sistemlerden elde edilen karışabilirlik tahminleri, etkileşim parametrelerini (α , $\Delta\eta$ and β) kullanan klasik viskozimetrik analiz sonuçları ile birlikte refraktif indeks ölçümleriyle karşılaştırılmıştır. Çalışmanın sonuçları, veri tabanlı sıfırıncı mertebeden Sugeno tipi bulanık modelin Mamdani tipi bulanık sistemden daha iyi bir tahmin performansına ve viskozimetrik çalışmalarda kullanılabilecek iyi bir potansiyele sahip olduğunu göstermiştir.

Prediction of miscibility of sodium alginate/poly(ethylene glycol) blends by fuzzy systems

H I G H L I G H T S

- Prediction of miscibility of polymer-polymer blends by fuzzy systems
- Fuzzification of viscosimetric interaction parameters
- The best predictive performance with Sugeno type fuzzy system

Article Info

Research Article

Received: 13.08.2017

Accepted: 20.10.2017

DOI:

10.17341/gazimmfd.416521

Keywords:

Fuzzy system,
mamdani type model,
sugeno type model,
miscibility,
viscometry

ABSTRACT

In this study, Mamdani and Sugeno type fuzzy systems based on fuzzified interaction parameters (α and β) are employed to predict the miscibility of sodium alginate/poly (ethylene glycol) blends in solution phase. The miscibility predictions from the fuzzy systems are presented and compared with the results from traditional viscometric analysis using interaction parameters (α , $\Delta\eta$ and β), as well as refractive index measurements. The results show that data-driven zero-order Sugeno type fuzzy model have a better predictive performance than Mamdani type fuzzy system and a good potential to be used for viscometric studies.

*Sorumlu Yazar/Corresponding Author: dimren@cumhuriyet.edu.tr, nisa_ozl@hotmail.com, mkoc@cumhuriyet.edu.tr /

Tel: +90 346 219 1163/2242

1. GİRİŞ (INTRODUCTION)

Viskozimetri, ucuz ve basit olması nedeniyle polimer-polimer karışabilirliğinin analizinde en çok tercih edilen tekniklerden biridir ve termodinamik etkileşim parametresi α [1], viskozite etkileşim parametresi $\Delta\eta$ [2] ve gelişmiş termodinamik etkileşim parametresi β [3] karışabilirlik tahmininde yaygın olarak kullanılan viskozimetrik yöntemlere örnek olarak gösterilebilir. Ancak, bu yöntemlerin sıklıkla birbirleriyle çelişen sonuçlar verebilmesi ve doğru sonuca ulaşmayı garanti etmemesi viskozimetrik analiz yardımıyla karar almayı güçleştirebilmektedir. Koç ve Koç [4] literatürde ilk kez "bulanıklaştırılmış" viskozimetrik analiz yardımıyla polimer-polimer karışabilirlik/karışmazlık durumlarına ait kararların daha kolay alınabileceğini göstermiştir. Bu kapsamda yapılmış çalışmaların literatürdeki tek örneğini de oluşturan söz konusu çalışmada yazarlar; polistiren/ stiren akrilonitril kopolimer karışımlarının farklı çözücü ve sıcaklıklardaki viskozimetrik analizlerinde klasik regresyonun yerine bulanık regresyona dayalı bulanık termodinamik etkileşim parametresini önermişlerdir. Bu bulanık yaklaşım, olabilirlik teorisine bağlı olarak karışabilirliğin klasik olarak kesinlikler üzerine kurulu karışabilirlik var/yok şeklindeki tahmini yerine karışmazlık / karışabilirlik olayına ait "olabilirlik"/"zorunluluk" derecelerine göre karar alınmasını sağlamış; "bulanıklık" altında alınan kararların klasik yaklaşıma kıyasla birbirleriyle ve refraktif indeks yöntemine dayalı kararlarla daha uyumlu olduğunu göstermiştir. Ancak, bulanık yöntemlerin polimer-polimer karışabilirlik tahmininde kullanımının henüz çok yeni ve başlangıç aşamasında olduğu ve bu alandaki literatürün alternatif yöntemleri de içeren başka çalışmalara ihtiyaç duyduğu söylenebilir.

Bulanıklık altında modellemenin yaygın alternatif yollarından biri de bulanık sistemler olup bulanık sistemleri sözel değişkenler üzerine kurulan bulanık kural tabanı ile kesinlik içermeyen bilgiyi veya bulanıklığı işleyen bir yapay zekâ tekniği olarak tanımlamak mümkündür. EĞER-İSE şeklinde tarif edilen ve sezgiye dayanan uzman bilgisini temsil ettiği de söylenebilen bulanık kuralların EĞER-İSE kısmı bulanık sistemlerin girdisini temsil ederken İSE'den sonraki kısmı ise çıktıyı ifade etmektedir. Bulanık kuralların oluşturulma şekline bağlı olarak bulanık sistemler, Mamdani [5] ve Sugeno [6] tipi bulanık sistemler olarak sınıflandırılabilir: Mamdani tipi sistemlerde çıktı, bulanık alt kümelerle ifade edilirken Sugeno tipi bulanık sistemin çıktısını kesin/belirgin fonksiyonlar oluşturmaktadır. Her iki tip bulanık sistemin farklı disiplinlerdeki güncel problemlerin çözümüne başarıyla uygulandığı [7-9]; ancak polimer-polimer karışımların karışabilirlik tahminine uygulanmadığı yapılan literatür taramasından anlaşılmaktadır. Bu çalışma, Koç ve Koç [4] tarafından önerilen viskozimetrik analizi bulanıklaştırma yaklaşımını tümüyle farklı yöntemlerle izleyerek polimer-polimer karışımların karışabilirlik tahminine alternatif bulanık çözümler sunmayı amaçlamıştır: Mamdani ve Sugeno tipi

bulanık sistemler, sodyum aljinat/poli(etilen glikol) (SA/PEG) karışımların karışabilirlik tahminine uygulanmış; refraktif indeks yöntemiyle elde edilen sonuçlara göre her iki teknikte birlikte klasik etkileşim parametreleri yöntemi karşılaştırılmıştır. Bu kapsamda; literatürde ilk kez bulanık sistemler, polimer-polimer karışımların karışabilirlik tahmininde kullanılmış ve yapay zekâ tekniklerinin bu alandaki uygulamalarının olası faydalarını/potansiyelini ortaya koymak için henüz çok yetersiz olan bu alandaki literatürün, yukarıda da değinildiği şekilde, zenginleştirilmesine katkı sağlamak amaçlanmıştır.

2. YÖNTEM (METHOD)

Mamdani tipi bulanık sistemler [5], bir sistemi sözel değişkenler yardımıyla oluşturulan bulanık kural veya kurallar ile modelleyen sistemler olarak tanımlanabilir [10]. Bulanık bir kural (R^k), x_i ($i = 1, 2, 3, \dots, m$) ve y sözel değişkenler, A_i^k ($k = 1, 2, 3, \dots, K$) ve B^k bulanık alt kümeler ise $x_i \in X_i \subset R$, $y \in Y \subset R$, $A_i^k \in A_i$, $B^k \in B$ koşullarında A_i^k ile B^k sırasıyla $\mu_{A_i^k}(x_i): X_i \rightarrow [0, 1]$ ve $\mu_{B^k}(y): Y \rightarrow [0, 1]$ üyelik fonksiyonları ile temsil edilmek ve X_i , Y , A_i , ve B evrensel kümeler olmak üzere Eş. 1'deki gibi ifade edilebilir:

$$R^k : \text{eğer } x_1 A_1^k \text{ VE } x_2 A_2^k \text{ VE } \dots \text{ VE } x_m A_m^k \text{ ise } y B^k \text{ dir.} \quad (1)$$

Bulanık sistem içinde yer alan bulanık kuralların tümü ise R_b bulanık kural tabanını ($R_b = \{R^k | k = 1, 2, 3, \dots, K\}$) oluşturur ve kural tabanı içindeki herhangi bir kural için, sözel değişkenler arasındaki ilişki $R^k(x_1, x_2, \dots, x_m, y)$ analitik olarak Eş. 2'deki gibi tanımlanabilir:

$$R^k(x_1, x_2, \dots, x_m, y) = \frac{\int_{(x_1, x_2, \dots, x_m, y)} \mu_{R^k}}{(x_1, x_2, \dots, x_m, y)} \quad (2)$$

Burada, $\mu_{R^k}(x_1, x_2, \dots, x_m, y)$ sözel değişkenler arasındaki bulanık ilişkinin üyelik fonksiyonu olup bir bulanık ilişki operatörü \emptyset kullanılarak hesaplanabilir: (Eş. 3)

$$\mu_{R^k}(x_1, x_2, \dots, x_m, y) = \emptyset \left[\mu_{A_1^k}(x_1) \wedge \mu_{A_2^k}(x_2) \wedge \dots \wedge \mu_{A_m^k}(x_m), \mu_{B^k}(y) \right] \quad (3)$$

Bulanık sisteme ait "genelleştirilmiş bulanık ilişki" (R) ise Eş. 4'deki gibi elde edilebilir:

$$R = \bigvee_{i=1}^K R_i \quad (4)$$

R bulanık alt kümeleri "durulaştırma" işlemiyle kesin değerlere dönüştürülebilir ve bu amaçla yaygın olarak kullanılan yöntemlere örnek olarak "maksimum üyelik" ve "ağırlık merkezi" yöntemleri verilebilir [11]. Sugeno tipi bulanık sistemler [6] bulanık kurallarda yer alan çıktı değişkenlerinin bulanık alt kümeler yerine bir fonksiyon

(doğrusal) ile tanımlanmasıyla Mamdani tipi bulanık sistemlerden ayrılır:8Eş. 5)

$$R^k : \text{eğer } x_1 A_1^k \text{ ve } x_2 A_2^k \text{ ve ... ve } x_m A_m^k \text{ ise } y = B^k = a_0^k + b_1^k x_1 + b_2^k x_2 + \dots + b_m^k x_m \quad (5)$$

Aşağıda verilen durulaştırma işlemi sonucunda ise; (eş. 6)

$$y_s = \frac{\sum_{k=1}^K B^k \mu^k}{\sum_{k=1}^K \mu^k} \quad (6)$$

sistemin çıktısı (y_s) elde edilebilir. Burada, $\mu^k = \prod_{i=1}^m \mu_{A_i^k}(x_i)$, a_0^k ve b_i^k fonksiyon sabitleri olup Sugeno tipi sistemlerin sıfırıncı mertebeden tarif edilmesi halinde $B^k = a_0^k$ olacaktır. Sugeno tipi bulanık sistemler genellikle, veri tabanlı “nöro-bulanık” bir sistem [12, 13] olarak göz önüne alınır; fonksiyon sabitlerinin ve üyelik fonksiyonlarına ait parametrelerin uygun değerleri, örneğin Levenberg-Marquardt [14] gibi, bir “eğitime” algoritması ile gerçekleştirilecek “öğrenme” sonucunda elde edilir. Levenberg-Marquardt (LM) yöntemi, amaç fonksiyonu $F(w) = e^T e$ ’nin minimize edilmesine dayalı olarak, ağırlık (örn., fonksiyon sabitleri ve üyelik fonksiyonlarına ait parametreler) faktörleri vektörünün t’inci iterasyondaki değerinin (w) aşağıdaki şekilde iteratif olarak düzeltilmesini amaçlar: (Eş. 7)

$$w_{t+1} = w - (J^T(w)J(w) + \gamma I)^{-1} J^T(w)e(w) \quad (7)$$

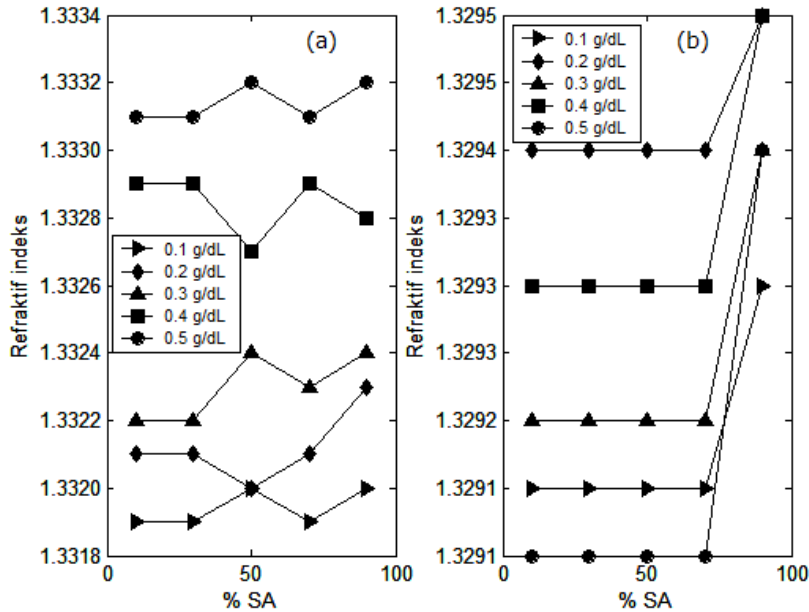
Burada, $e(w)$ hata vektörü, $J(w)$ Jacobian matris, I birim matris, γ öğrenme parametresi ve w_{t+1} ağırlık faktörleri vektörünün (t+1)’inci iterasyondaki düzeltilmiş değeridir. Mamdani ve Sugeno tipi bulanık sistemler, sodyum aljinat/poli(etilen glikol) (SA/PEG) karışımların karışabilirlik tahminine viskozimetrik yöntemeye dayalı olarak

elde edilen etkileşim parametreleri kullanılarak uygulanmıştır.

Viskozimetrik yöntem; 0,1-0,5 g/dL derişim aralığında saf polimer (SA ve PEG) ile farklı SA içeriğine sahip polimer karışımlarının (SA/PEG-4000 ve SA/PEG-8000) ve çözücünün (saf su) akma sürelerinin Ubbelohde tipi kapiler (kapiler çapı 0,46 mm± 0,01) cam viskozimetre (ISO/DIS 3105, ASTM D 2515, ASTM D 446 standartları ile uyumlu, 20 mL doldurma kapasiteli) kullanılarak saniye cinsinden ölçülmesi ile iki farklı sıcaklıkta (30 ve 50°C) yürütülmüştür. Polimer karışımları ise karışımı oluşturan SA ($M_n=45000-49000$, Sigma), PEG-4000 ($M_n= 3500-4500$, Merck) veya PEG-8000 ($M_n= 7500-8500$, Aldrich) bileşenlerinin ortak çözücünde (saf su) çözünmesi ve daha sonra SA ve PEG çözeltilerinin uygun karışım oranlarında (10/90, 30/70, 50/50, 70/30 ve 90/10 SA/PEG) karıştırılması ile 0,1-0,5g/dL derişim aralığında seyreltme yöntemine göre hazırlanmıştır. Bu çalışmada yer alan bulanık sistemlere ait uygulamalar MATLAB ortamında yazılan bilgisayar programları ile gerçekleştirilmiştir.

3. SONUÇLAR VE TARTIŞMALAR (RESULTS AND DISCUSSIONS)

SA/PEG sulu çözelti karışımlarının bulanık karışabilirlik tahminleri için geliştirilen Mamdani ve Sugeno tipi bulanık sistemlerin eğitime/test aşamasında farklı derişim aralıkları (0,1-0,5 g/dL), kompozisyonlar (10/90, 30/70, 50/50, 70/30 ve 90/10 SA/PEG-4000 ve SA/PEG-8000) ve sıcaklıklar (30°C ve 50°C) için elde edilen α , Δn ve β klasik etkileşim parametreleri (Tablo 1) ile birlikte refraktif indeks (Şekil 1 ve Şekil 2) değerlerinden [15] yararlanılmıştır. Mamdani tipi sistemin girdileri α ve β etkileşim parametreleri olarak seçilmiş ve bu değişkenlere ait bulanık alt kümeler üçgen ve trapez üyelik fonksiyonları ile temsil edilirken (Şekil 3 ve

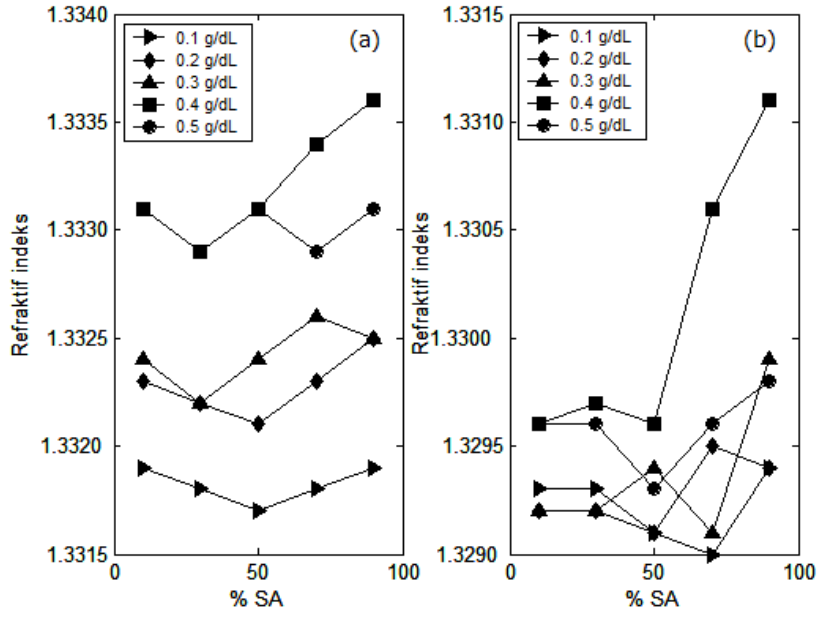


Şekil 1. Refraktif indeks değerlerinin SA/PEG-4000 karışımları için SA içeriği ile a) 30°C ve b) 50°C’de değişimi [15] (Variation of refractive index values of SA/PEG-4000 blends with the SA weight fraction at a) 30°C and b) 50°C [15])

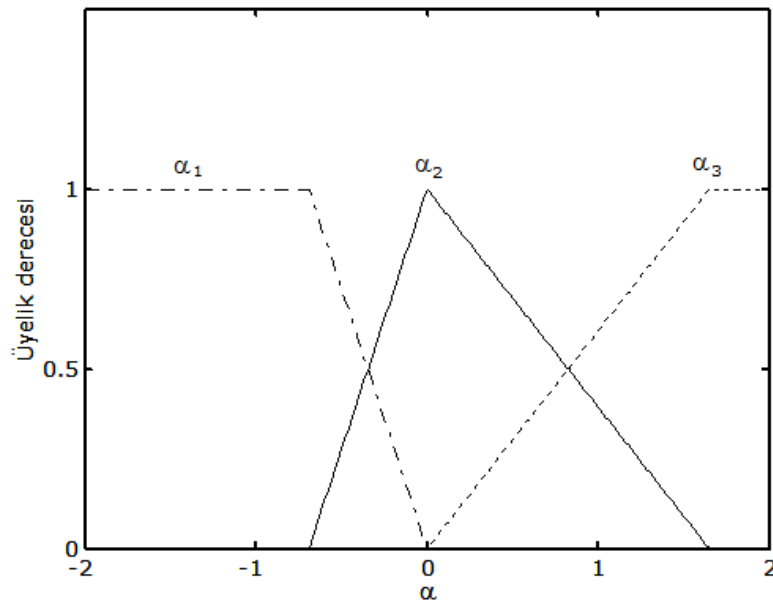
Şekil 4); KRZ (karışmaz) ve KR (karışabilir) bulanık alt kümeleri sistemin çıktısını (Şekil 5) karakterize etmişlerdir. Sistemin kural tabanını meydana getiren kurallar dizisi ise Eş. 8'deki gibi tanımlanmıştır:

- R^1 : eğer α_1 ve β_1 ise karışım KRZ dir veya
 R^2 : eğer α_1 ve β_2 ise karışım KRZ dir veya
 R^3 : eğer α_1 ve β_3 ise karışım KRZ dir veya (8)
 R^9 : eğer α_3 ve β_3 ise karışım KR dir.

Bulanık ilişkilere ait üyelik fonksiyonları Larsen bulanık ilişki operatörü [16] ile belirlenmiştir. Mamdani tipi sistemin “nöro-bulanık” karşılığı olacak şekilde tasarlanan sıfırıncı mertebeden Sugeno tipi sistemin girdilerini α ve β etkileşim parametrelerinin değerleri (Tablo 1) çıktısını ise refraktif indeks ölçümlerine göre belirlenmiş (Şekil 1 ve Şekil 2) KRZ (karışmaz) veya KR (karışabilir) kategorileri oluşturmuştur. KRZ ve KR durumları üçgen üyelik fonksiyonları ile tanımlanmıştır (Şekil 6). Sisteme ait çıktının her iki bulanık alt kümeye ait üyelik dereceleri $\mu_{KRZ}(y_s)$ ve $\mu_{KR}(y_s)$ dikkate



Şekil 2. Refraktif indeks değerlerinin SA/PEG-8000 karışımları için SA içeriği ile a) 30°C ve b) 50°C'de değişimi [15]
 (Variation of refractive index values of SA/PEG-8000 blends with the SA weight fraction at a) 30°C and b) 50°C [15])



Şekil 3. α için bulanık alt kümeler (Fuzzy sub-sets for α)

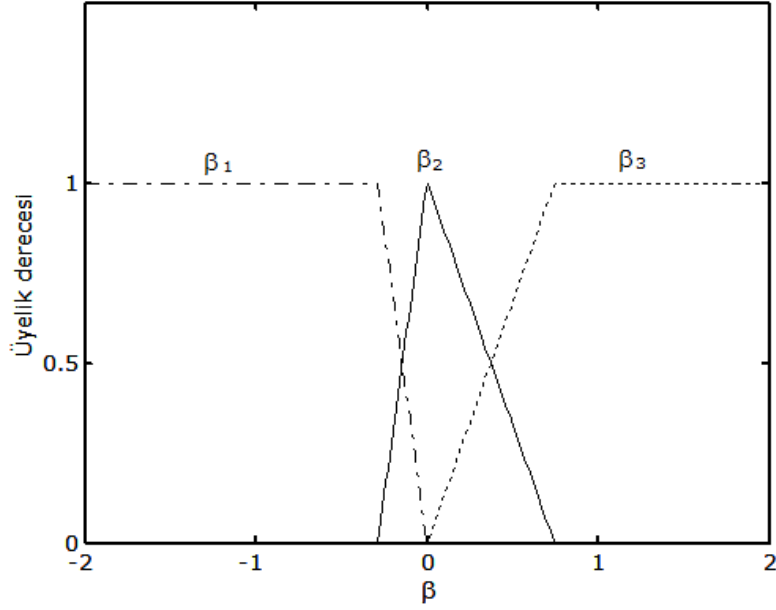
Tablo 1. SA/PEG karışımları için elde edilen etkileşim parametreleri [15]
(The values of interaction parameters for SA/PEG blends [15])

SA İçeriği	Sıra No	C (g/dL)	30°C			Sıra No	50°C			
			α	$\Delta\eta$	β		α	$\Delta\eta$	β	
SA/PEG4000	1*	0,1	1,114	5,023	0,4845	51*	1,753	3,802	0,691	
	2	0,2	0,455	4,765	0,2207	52	1,005	3,526	0,470	
	10/90	3	0,3	0,253	4,501	0,1281	53	0,426	3,347	0,212
	4	0,4	0,201	4,183	0,0994	54	0,331	2,988	0,167	
	5*	0,5	0,101	3,582	0,0471	55	0,163	2,481	0,082	
	6	0,1	1,606	7,120	0,7359	56	1,380	7,050	0,675	
	7*	0,2	0,701	6,440	0,2783	57*	0,588	6,324	0,248	
	30/70	8	0,3	0,457	5,583	0,1445	58	0,389	5,774	0,142
	9*	0,4	0,213	4,648	0,0549	59*	0,204	4,734	0,058	
	10	0,5	0,105	3,024	0,0217	60*	0,087	3,622	0,022	
	11	0,1	-0,014	14,113	-0,0018	61	0,045	11,493	0,032	
	12*	0,2	-0,005	13,011	-0,0030	62*	0,041	10,319	0,010	
	50/50	13*	0,3	0,000	11,561	-0,0025	63	0,023	9,397	0,002
	14	0,4	-0,002	10,010	-0,0023	64	0,014	7,676	-0,001	
	15*	0,5	-0,001	7,363	-0,0014	65	0,001	5,959	-0,002	
	16	0,1	-0,095	18,392	-0,0139	66*	0,079	14,318	0,028	
	17*	0,2	-0,045	16,867	-0,0066	67	0,077	12,694	0,010	
	70/30	18	0,3	-0,022	14,824	-0,0032	68	0,044	11,400	0,003
	19*	0,4	-0,013	12,657	-0,0019	69	0,017	8,999	0,000	
	20	0,5	-0,006	8,987	-0,0010	70	0,005	6,677	-0,001	
	21*	0,1	-0,051	21,223	-0,0019	71	-0,183	18,429	-0,006	
	22	0,2	-0,022	19,275	-0,0011	72*	-0,069	16,356	-0,003	
	90/10	23	0,3	-0,009	16,639	-0,0006	73	-0,039	14,691	-0,002
	24	0,4	-0,006	13,856	-0,0004	74*	-0,019	11,610	-0,001	
	25*	0,5	-0,003	9,163	-0,0002	75	-0,012	8,682	-0,001	
SA/PEG8000	26	0,1	1,292	5,855	0,5686	76*	0,909	3,984	0,3818	
	27	0,2	0,799	5,557	0,3920	77*	0,576	3,812	0,3162	
	10/90	28*	0,3	0,384	5,233	0,2020	78*	0,281	3,604	0,1748
	29*	0,4	0,129	4,832	0,0720	79*	0,079	3,193	0,0623	
	30	0,5	0,119	4,301	0,0610	80*	0,076	2,640	0,0521	
	31*	0,1	-1,187	12,582	-0,5524	81	0,421	6,804	0,1985	
	32*	0,2	-0,574	11,870	-0,2428	82	0,349	6,160	0,1263	
	30/70	33	0,3	-0,408	10,967	-0,1483	83	0,094	5,586	0,0186
	34*	0,4	-0,223	9,968	-0,0738	84	0,060	4,506	0,0063	
	35	0,5	-0,143	8,399	-0,0389	85	0,042	3,359	0,0048	
	36	0,1	-0,040	14,717	-0,0210	86*	-0,163	12,340	-0,0732	
	37*	0,2	-0,030	13,592	-0,0151	87	-0,071	11,223	-0,0379	
	50/50	38*	0,3	-0,014	12,109	-0,0083	88	-0,048	10,285	-0,0255
	39	0,4	-0,008	10,513	-0,0051	89	-0,023	8,536	-0,0135	
	40*	0,5	-0,004	7,905	-0,0029	90	-0,015	6,793	-0,0083	
	41	0,1	-0,050	18,365	-0,0147	91*	0,880	13,493	0,1632	
	42	0,2	-0,024	16,826	-0,0081	92	0,282	11,904	0,0226	
	70/30	43	0,3	-0,013	14,764	-0,0045	93*	0,114	10,600	0,0023
	44*	0,4	-0,008	12,569	-0,0027	94*	0,074	8,182	0,0004	
	45	0,5	-0,003	8,923	-0,0014	95	0,048	5,845	0,0003	
	46	0,1	-0,081	21,966	-0,0063	96	0,839	15,031	0,0469	
	47*	0,2	-0,038	20,014	-0,0030	97	0,319	12,969	0,0074	
	90/10	48	0,3	-0,018	17,372	-0,0015	98	0,152	11,301	0,0015
	49	0,4	-0,010	14,580	-0,0008	99*	0,083	8,214	0,0002	
	50	0,5	-0,005	9,895	-0,0004	100*	0,041	5,282	-0,0001	

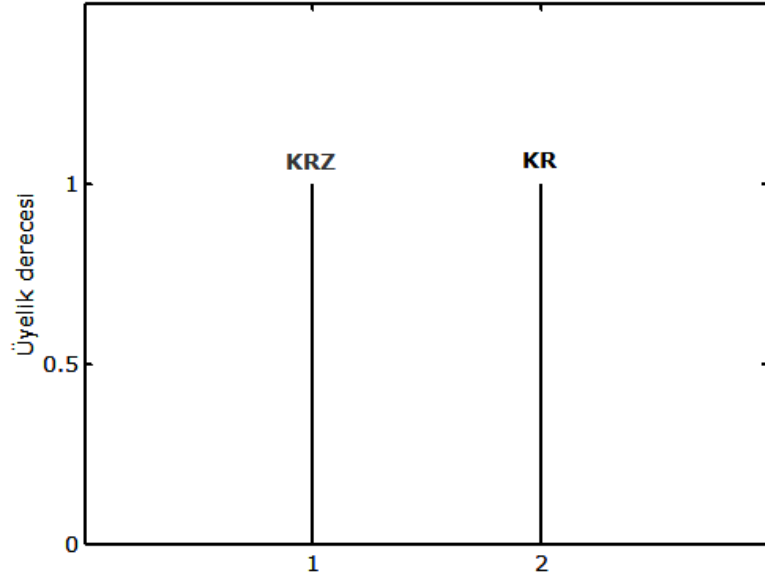
(*) Test veri kümesine ait veriler.

alınarak çıktının KRZ ($\mu_{KRZ}(y_s) > \mu_{KR}(y_s)$) ve KR ($\mu_{KRZ}(y_s) < \mu_{KR}(y_s)$) sınıflarından hangisi içinde yer alacağına karar verilmiştir. Tablo 1'de verilen veri

kümesinin %60'ı eğitime kalan kısmı ise test aşamasında kullanılmış olup sisteme ait ağırlık faktörlerinin (fonksiyon sabitleri ve üyelik fonksiyonlarına ait parametreler) uygun



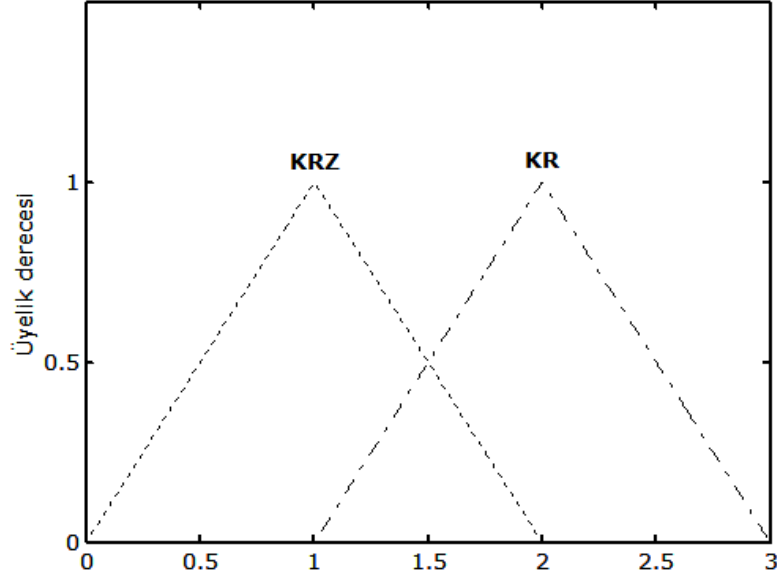
Şekil 4. β için bulanık alt kümeler (Fuzzy sub-sets for β)



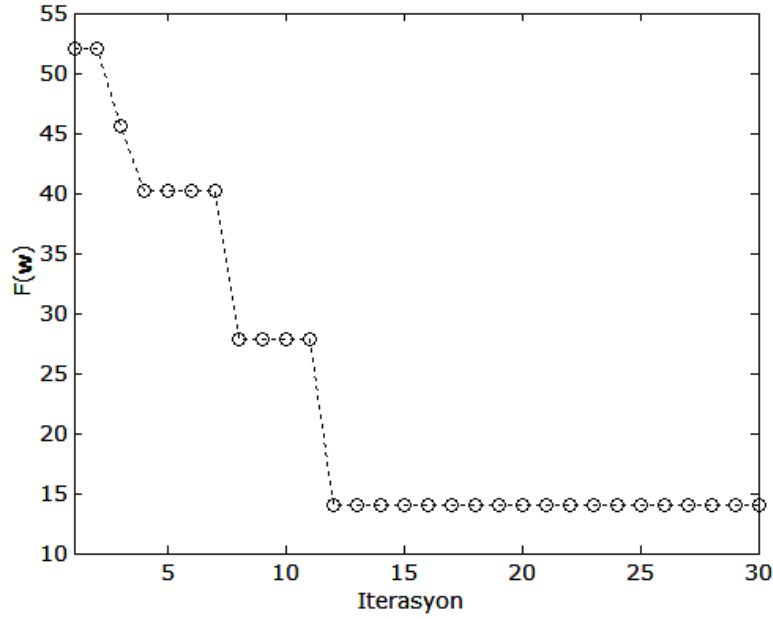
Şekil 5. Mamdani tipi bulanık sistemin çıktısına ait bulanık alt kümeler (Fuzzy sub-sets for output of Mamdani type fuzzy system)

değerleri LM yöntemiyle gerçekleştirilen eğitime aşaması (Şekil 7) sonucunda elde edilmiştir. Öğrenme parametresi γ için başlangıç değeri 0,001 alınarak γ 'nın küçük değerleri ($\gamma \approx 0$) için Gauss-Newton [14]; büyük değerleri için ise gradyen azalma [14] yöntemlerine yaklaşan Levenberg-Marquardt algoritmasının, Gauss-Newton yönteminin daha hızlı ve kesin çözüm üretme yeteneğini olabildiğince çabuk kullanması amaçlanmıştır. Sisteme ait girdilerin öğrenme sonucunda düzeltilmiş üyelik fonksiyonları Şekil 8 ve Şekil 9'da verilmiştir. Eğitime aşaması için ortalama karesel hatanın karekökü (OKHK) ile sınıflandırma hatası oranı (SHO) sırasıyla 0,483 ve 0,23 olarak kaydedilmiş olup

$OKHK = (\sum_{i=1}^N (tahmin_i - gercek_i)^2 / N)^{1/2}$ ve olarak tanımlanmıştır. Sugeno tipi sistemin test aşamasın (SHO=(yanlış karar sayısı)/(toplam karar sayısı))a ait sonuçlar ise Mamdani tipi sistem ve klasik etkileşim parametreleri (α , β ve $\Delta\eta$) ile refraktif indeks yöntemleriyle karşılaştırmalı olarak Tablo 2'de verilmiştir. Test aşamasına ait ortalama karesel hatanın karekökü ve sınıflandırma hatası oranları Sugeno ve Mamdani tipi sistemler için sırasıyla 0,387, 0,524 ve 0,15, 0,27 olarak elde edilmiştir. Çalışmanın ortaya koyduğu bulgular aşağıda kısaca özetlenmiştir: Refraktif indeks yöntemiyle alınan kararlar(KRZ veya KR) dikkate alındığında Sugeno tipi modelin Mamdani tipi



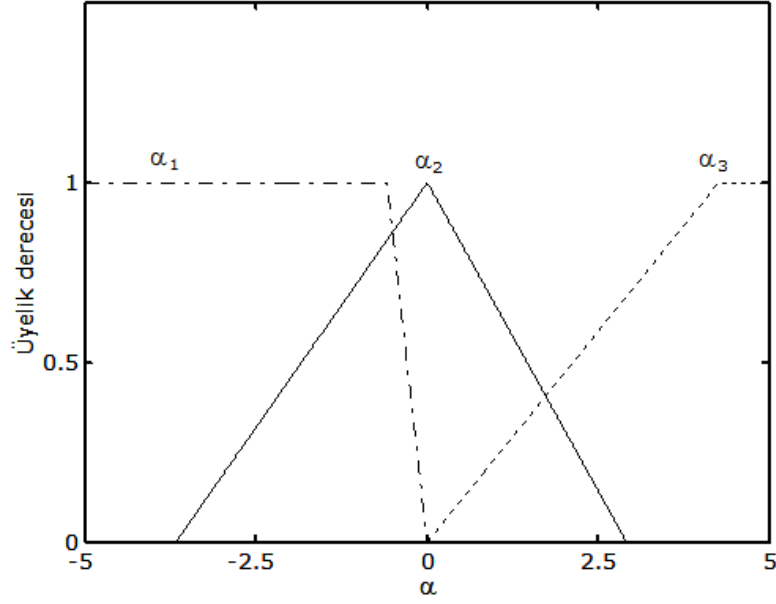
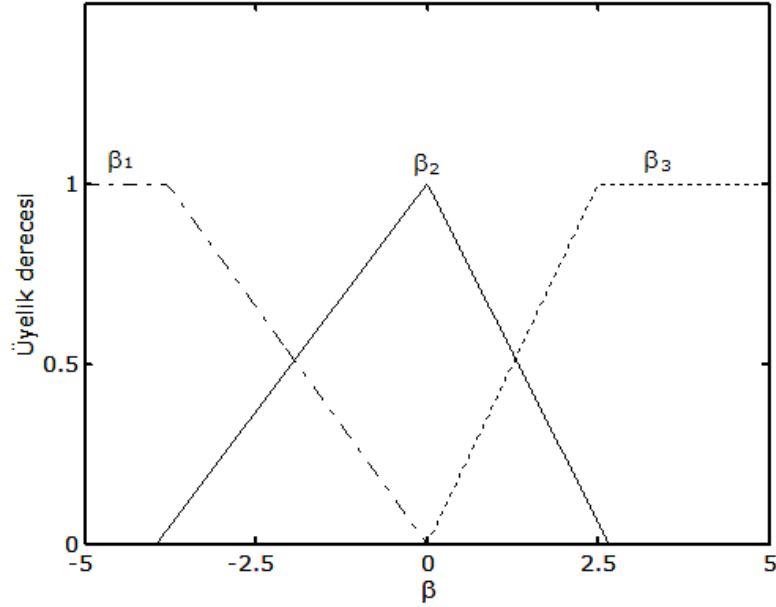
Şekil 6. Sugeno tipi bulanık sistemin çıktısına ait bulanık alt kümeler (Fuzzy sub-sets for output of Sugeno type fuzzy system)



Şekil 7. Sugeno tipi bulanık sistem için amaç fonksiyonunun iterasyon sayısına bağlı değişimi (Objective function values versus iteration number for Sugeno type fuzzy system)

sisteme kıyasla daha başarılı olduğu söylenebilir: Sugeno tipi sistem için doğru sınıflandırma (karar) oranı %85 iken bu değer Mamdani tipi sistem için %73 olarak elde edilmiştir. Mamdani tipi sistemle elde edilen KR durumuna ait üyelik (olabilirlik) derecelerinin genel olarak sıfıra yakın değerler alması modelin karar almada, Sugeno modeline kıyasla, yeterince esnek bir davranış sergilemediğini göstermektedir. Mamdani tipi modelin denetimsiz (eğitilmeyen) bir model olması ve üyelik fonksiyonlarının/kural tabanının öznel bir şekilde oluşturulması bu durumun nedeni olarak görülebilir. Bu sonuç, denetimsiz bulanık sistemlerle modellemenin temel zorluklarını da göstermektedir. Denetimli (eğitilen)

Sugeno tipi modelin aynı bulanık tabanı kullanmasına karşın daha başarılı ve esnek bir davranış göstermesi veri tabanlı (nöro-bulanık) bir sistem olması ve parametrelerinin (üyelik fonksiyonları ve fonksiyon sabitleri) eğitime aşaması içerisinde düzeltilmiş olmasıyla açıklanabilir. Bu durum denetimli ve denetimsiz yapay zekâ teknikleri arasındaki genel davranışın da beklenen bir sonucu olarak görülebilir. Sugeno tipi bulanık sistemle 60, 28, 51, 29, 62 ve 79 numaralı girdi verileri için yapılan KRZ/KR tahminlerinin refraktif indeks verilerine göre alınan kararlarla çeliştiği görülmektedir (Tablo 2). Ancak, burada kesinlikler üzerine kurulan klasik yaklaşıma kıyasla bulanık sistemlerin

Şekil 8. α için düzeltilmiş bulanık alt kümeler (Modified fuzzy sub-sets for α)Şekil 9. β için düzeltilmiş bulanık alt kümeler (Modified fuzzy sub-sets for β)

polimer-polimer karışımların KRZ/KR durumlarına ait olabilirlik derecelerini aynı anda değerlendirme olanağı sağladığı göz önüne alınmalıdır: Örneğin, 60 ve 62 numaralı girdi verileri için Sugeno tip sisteme göre KRZ ($\mu_{KRZ} > \mu_{KR}$) kararı verilmesine karşın her iki durum için üyelik derecelerinin bir birine yakın değer aldığı; alınan kararın KRZ'nin KR'ye kıyasla daha olası anlamına geldiği; ancak bu kararın KR durumunun olabilirliğini de, daha az olası olmakla birlikte, içerdiği/dışlamadığı dikkate alınmalıdır. Benzer durum 29 ve 79 numaralı girdilere karşılık alınan kararlar için de geçerli olup 28 ve 51 numaralı girdiler için alınan KRZ/KR kararlarının karşıt durumları için küçük

olabilirlik (üyelik) dereceleri elde edilmiştir. Bu durum bulanık sistemler yardımıyla bulanıklaştırılmış karar verme sürecinin avantajlarını göstermekle birlikte her iki modelin geliştirilmesine duyulan ihtiyacı da göstermektedir.

Klasik etkileşim parametreleri α , β ve $\Delta\eta$ değerlerine göre doğru sınıflandırma oranları sırasıyla %77,5, 82,5 ve 65 olarak elde edilmesine karşın bu yöntemlerin birbiriyle uyumlu olmayan kararlara neden olduğu görülmektedir. Örneğin, 13 ve 100 numaralı örnekler dikkate alındığında α ve β parametreleri ile verilen kararların (KR/KRZ) birbirinden farklı olduğu; $\Delta\eta$ ile alınan kararların ise tüm test

Tablo 2. Bulanık sistemler, etkileşim parametreleri ve refraktif indeks yöntemleriyle elde edilen karışabilirlik/karışmazlık durumları (Decisions about miscibility/immiscibility obtained by fuzzy systems, interaction parameters and refractive index methods)

Sıra No	α	β	$\Delta\eta$	Mamdani tipi sistem			Sugeno tipi sistem			Refraktif indeks
				μ_{KRZ}	μ_{KR}	Karar	μ_{KRZ}	μ_{KR}	Karar	
77	KR	KR	KRZ	0,575	0,348	KRZ	0,148	0,851	KR	KR
80	KR	KR	KRZ	0,930	0,046	KRZ	0,443	0,556	KR	KR
74	KRZ	KRZ	KRZ	0,972	0	KRZ	0,592	0,407	KRZ	KRZ
15	KRZ	KRZ	KRZ	0,995	0	KRZ	0,539	0,460	KRZ	KRZ
31	KRZ	KRZ	KRZ	1,000	0	KRZ	0,594	0	KRZ	KRZ
93	KR	KR	KRZ	0,930	0,003	KRZ	0,555	0,444	KRZ	KRZ
76	KR	KR	KRZ	0,487	0,512	KR	0,256	0,743	KR	KR
78	KR	KR	KRZ	0,765	0,170	KRZ	0,260	0,739	KR	KR
60	KR	KR	KRZ	0,947	0,029	KRZ	0,509	0,490	KRZ	KR
28	KR	KR	KRZ	0,728	0,232	KRZ	0,249	0,750	KR	KRZ
99	KR	KR	KRZ	0,949	0	KRZ	0,554	0,445	KRZ	KRZ
17	KRZ	KRZ	KRZ	0,934	0	KRZ	0,652	0,347	KRZ	KRZ
9	KR	KR	KRZ	0,870	0,073	KRZ	0,470	0,529	KR	KR
51	KR	KR	KRZ	0,072	0,927	KR	0,834	0,165	KRZ	KR
7	KR	KR	KRZ	0,575	0,373	KRZ	0,271	0,728	KR	KR
29	KR	KR	KRZ	0,903	0,078	KRZ	0,415	0,584	KR	KRZ
13	KR	KRZ	KRZ	0,991	0	KRZ	0,534	0,465	KRZ	KRZ
47	KRZ	KRZ	KRZ	0,945	0	KRZ	0,640	0,359	KRZ	KRZ
66	KR	KR	KRZ	0,952	0,037	KRZ	0,495	0,504	KR	KR
37	KRZ	KRZ	KRZ	0,947	0	KRZ	0,594	0,405	KRZ	KRZ
25	KRZ	KRZ	KRZ	0,995	0	KRZ	0,548	0,451	KRZ	KRZ
5	KR	KR	KRZ	0,936	0,061	KRZ	0,460	0,539	KR	KR
38	KRZ	KRZ	KRZ	0,971	0	KRZ	0,562	0,437	KRZ	KRZ
59	KR	KR	KRZ	0,876	0,077	KRZ	0,462	0,537	KR	KR
91	KR	KR	KRZ	0,533	0,219	KRZ	0,509	0,490	KRZ	KRZ
86	KRZ	KRZ	KRZ	0,746	0	KRZ	0,823	0,176	KRZ	KRZ
94	KR	KR	KRZ	0,955	0	KRZ	0,552	0,447	KRZ	KRZ
44	KRZ	KRZ	KRZ	0,988	0	KRZ	0,557	0,442	KRZ	KRZ
21	KRZ	KRZ	KRZ	0,926	0	KRZ	0,677	0,322	KRZ	KRZ
72	KRZ	KRZ	KRZ	0,900	0	KRZ	0,720	0,279	KRZ	KRZ
40	KRZ	KRZ	KRZ	0,989	0	KRZ	0,545	0,454	KRZ	KRZ
32	KRZ	KRZ	KRZ	0,829	0	KRZ	0,646	0	KRZ	KRZ
62	KR	KR	KRZ	0,975	0,013	KRZ	0,525	0,474	KRZ	KR
12	KRZ	KRZ	KRZ	0,989	0	KRZ	0,547	0,452	KRZ	KRZ
19	KRZ	KRZ	KRZ	0,981	0	KRZ	0,573	0,426	KRZ	KRZ
57	KR	KR	KRZ	0,643	0,332	KRZ	0,261	0,738	KR	KR
1	KR	KR	KRZ	0,349	0,650	KR	0,296	0,703	KR	KR
34	KRZ	KRZ	KRZ	0,677	0	KRZ	0,946	0,053	KRZ	KRZ
79	KR	KR	KRZ	0,916	0,047	KRZ	0,423	0,576	KR	KRZ
100	KR	KRZ	KRZ	0,975	0	KRZ	0,546	0,453	KRZ	KRZ

kümesi için KRZ olduğu görülmektedir. Bu durum pratikte sık karşılaşılan sorunlardan biri olup hangi yöntemin kullanılacağına karar vermenin zor olduğu söylenebilir. Bu nedenle, pratikte yaygın olarak çok sayıda etkileşim parametresi kullanılmakta veya refraktif indeks, yoğunluk ölçümü gibi ilave yöntemlere başvurulmaktadır. Bu durum da karar vermede sorunlara ve zaman kaybına neden olabilmektedir. Bu nedenle daha esnek ve kolay karar vermeyi sağlayabilecek yeni yaklaşımlara ihtiyaç duyulmaktadır. Bu çalışmada, klasik yaklaşımla aynı etkileşim parametreleri kullanılmasına karşın bu parametrelerin bulanıklaştırılması ve bulanık yolla işlenmesinin faydalı olacağı görülmektedir. Elde edilen

sonuçlar, polimer-polimer karışımların karışabilirlik tahminine yönelik olarak geliştirilen bulanık sistemlerin klasik viskozimetrik yöntemlerin sakıncalarını azaltma ve pratikte uygulanabilirlik potansiyelini ortaya koymuştur.

Bu çalışma, polimer-polimer karışımların karışabilirlik tahmini için genel bir bulanık metodoloji sunmamış; Koç ve Koç [4] tarafından önerilen yaklaşımı (bulanıklık altında karışabilirlik analizi) alternatif yollarla zenginleştirme amacına odaklanmıştır. Örneğin, Koç ve Koç [4] yöntem olarak kesin viskozimetrik verilere dayanarak bulanık regresyon yoluyla elde edilen bulanık viskozimetrik parametrelerle bulanık termodinamik etkileşim

parametrelerinin hesabı ve ardından karışabilirlik / karışmazlık için olabilirlik / zorunluluk derecelerini dikkate alarak karar almayı önerirken; bu çalışma, girdisi bulanık termodinamik etkileşim parametreleri çıktısı ise karışabilirlik/karışmazlık durumları için üyelik (olabilirlik) dereceleri olan denetimli ve denetimsiz bulanık sistemleri yöntem olarak seçmiştir. Her iki çalışma kullandıkları yöntemler açısından karşılaştırıldığında; Mamdani tipi bulanık sistemlerin sezgisel uzman bilgisini yansıtacak şekilde öznel bir tasarıma sahip ve denetimsiz olmasının önemli bir avantaj sağladığı; bu nedenle daha kolay uygulanabilir olduğu söylenebilir. Mamdani tipi bulanık sistemlerin düşük tahmin performansı göstermesi halinde kolaylıkla denetimli Sugeno tipi bulanık sisteme dönüştürülebileceği ve bu tekniğin, yapay sinir ağlarının popüler yapay zekâ teknikleri olması da dikkate alındığında, bir eğitime algoritması ile kolayca eğitilebilmesi mümkün görünmektedir. Bulanık regresyon tekniklerinin veya olabilirlik teorisinin henüz diğer yapay zekâ teknikleri (bulanık sistemler, yapay sinir ağları, nöro-bulanık sistemler) kadar yaygın kullanılan teknikler olmadığı ve bulanıklık altında polimer-polimer karışabilirlik/karışmazlık tahminine diğer yöntemlere kıyasla daha az kolay uygulanabilir ya da hesaba dayalı maliyeti yüksek bir yol sunduğu göz önüne alınmalıdır. Sonuç olarak, bu çalışma ile bulanık modellemenin karışabilirlik analizi açısından faydaları alternatif yollarla ortaya konulmuştur. Burada, bahsedilen tekniklerin/yöntemlerin geliştirilme imkânları gelecekteki çalışmaların konusu olup hangi yöntemin/yöntemlerin daha uygun olacağı hakkında genel bir kaniya bu alandaki literatürün zenginleşmesi halinde varılabilecektir.

4. SİMGELER (SYMBOLS)

A_i^k	: k. bulanık kural için i. değişkene ait bulanık alt küme
B^k	: k. kural için çıktıya ait bulanık alt küme
a_0^k	: Fonksiyon sabiti
b_i^k	: Fonksiyon sabiti
e	: Hata vektörü
F	: Amaç fonksiyonu
I	: Birim matris
J	: Jacobian matris
M_n	: Sayıca-ortalama molekül ağırlığı
OKHK	: Ortalama karesel hatanın karekökü
SHO	: Sınıflandırma hatası oranı
R	: Genelleştirilmiş bulanık ilişki
R_b	: Bulanık kural tabanı
R^k	: k. bulanık kural
w	: Ağırlık faktörleri vektörü
x	: Sözel değişken
y	: Sözel değişken
y_s	: Sugeno tip bulanık sisteme ait çıktı
$\mu_{A_i^k}$: k. bulanık kural için i. değişkene ait üyelik fonksiyonu
μ_{B^k}	: k. bulanık kural için çıktıya ait üyelik fonksiyonu
μ_{R^k}	: k. kurala ait bulanık ilişki için üyelik fonksiyonu
\emptyset	: Bulanık ilişki operatörü

γ : Öğrenme parametresi

5. SONUÇLAR (CONCLUSIONS)

Bu çalışma iki farklı yapay zekâ tekniğini (Sugeno ve Mamdani tipi bulanık sistemler) polimer-polimer karışımların karışabilirlik/karışmazlık tahminine SA/PEG karışımlar örneğinde uygulamıştır. Elde edilen sonuçlar Sugeno ve Mamdani tipi bulanık sistemler aracılığıyla klasik (viskozimetrik) tahmin yöntemlerinin bulanıklık altında ve bulanıklığın işlenmesi yoluyla iyileştirilebileceğini ve bunun karar almayı kolaylaştırabileceğini göstermiştir. Çalışmadan elde edilen sonuçlar aynı zamanda Koç ve Koç [4] tarafından ortaya konulan sonuçları destekler nitelikte olup bu alanda yapılacak çalışmaların henüz yeni olduğu ve gelişmeye ihtiyaç duyduğu söylenebilir. Bundan sonra yapılacak çalışmalar ortaya konulan yaklaşımın eksik/yetersiz kalan yanlarını farklı yöntemlerle iyileştirmeyi amaçlamaktadır.

TEŞEKKÜR (ACKNOWLEDGEMENT)

Bu çalışmada kullanılan viskozimetrik ve refraktometrik veriler, Cumhuriyet Üniversitesi tarafından desteklenen M-634 nolu projeden alınmıştır. Yazarlar, Cumhuriyet Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Birimine teşekkür ederler.

KAYNAKLAR (REFERENCES)

1. Sun Z.H., Wang W., Feng Z.L., Criterion of polymer-polymer miscibility determined by viscometry, *European Polymer Journal* 28, 1259-1261, 1992.
2. Garcia R., Melad O., Gomez C.M., Figueruelo J.E., A. Campos, Viscometric study on the compatibility of polymer-polymer mixtures in solution. *European Polymer Journal* 35, 47-55, 1999.
3. Jiang W.H., Han S.J., A new criterion of polymer-polymer miscibility detected by viscometry, *European Polymer Journal* 34, 1579-1584, 1998.
4. Koç D.İ., Koç M.L., Fuzzy viscometric analysis of polymer-polymer miscibility based on fuzzy regression, *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems* 157, 58-66, 2016.
5. Mamdani E.H., Application of fuzzy logic to approximate reasoning using linguistic systems, *Fuzzy Sets and Systems* 26, 1182-1191, 1977.
6. Takagi T., Sugeno M., Fuzzy identification of systems and its applications to modeling and control, *IEEE Transactions on Systems, Man and Cybernetics* 15 (1), 116-132, 1985.
7. Khosravian R., Sabah M., Wood D.A., Shahryari, A., Weight on drill bit prediction models: Sugeno-type and Mamdani-type fuzzy inference systems compared, *Journal of Natural Gas Science and Engineering*, 36, 280-297, 2016.
8. Pani A.K., Mohanta H.K., Online monitoring of cement clinker quality using multivariate statistics and Takagi-Sugeno fuzzy-inference technique, *Control Engineering Practice*, 57, 1-17, 2016.

9. Žarković M., Stojković Z., Analysis of artificial intelligence expert systems for power transformer condition monitoring and diagnostics, *Electric Power Systems Research*, 149, 125-136, 2017.
10. Balas C.E., Koc L., Tür R., Artificial neural networks based on principal component analysis, fuzzy systems and fuzzy neural networks for preliminary design of rubble mound breakwaters, *Applied Ocean Research* 32, 425-433, 2010.
11. Ross T.J., *Fuzzy Logic with Engineering Applications*, McGraw Hill Book Publishing Company, USA., 1995.
12. Liu J., Chung F.I., Wang S., Bayesian zero-order TSK fuzzy system modeling, *Applied Soft Computing* 55, 253-264, 2017.
13. Koç M.L., Balas C.E., Genetic algorithms based logic-driven fuzzy neural networks for stability assessment of rubble-mound breakwaters, *Applied Ocean Research* 37, 211-219, 2012.
14. Golden R.M., *Mathematical Methods for Neural Network Analysis and Design*, Massachusetts Institute of Technology Press., USA., 1996.