

基于BP神经网络的儿童卧室内灰尘PAEs浓度预测

李柯秀, 孙婵娟*, 张佳玲, 邹志军, 黄晨
(上海理工大学, 上海 200093)

摘要:在实测数据的基础上,以邻苯二甲酸酯(PAEs)的各类影响因素为自变量,PAEs浓度为因变量,采用Back-propagation(BP)神经网络建立儿童卧室内PAEs浓度预测模型。结果表明,该模型的预测效果较理想,其中,STD比值均>0.5,NMB均接近0, E_{MR} 均<19%。以室内环境与儿童健康(CCHH)课题组天津地区的相关数据,对DEHP浓度进行预测,其实测值与预测值平均值的 E_{MR} 为7.7%,表明该模型预测精度较高。

关键词:邻苯二甲酸酯;反向传播神经网络;浓度预测;灰尘;儿童卧室

中图分类号:X513;TP183

文献标志码:B

文章编号:1006-2009(2022)01-0056-04

Prediction of PAEs Concentration in Dust in Children's Bedroom Based on BP Neural Network

LI Ke-xiu, SUN Chan-juan*, ZHANG Jia-ling, ZOU Zhi-jun, HUANG Chen
(University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China)

Abstract: Based on measured data, the prediction model of PAEs concentration in children's bedroom was established by back propagation (BP) neural network with various influencing factors of phthalates (PAEs) as independent variables and PAEs concentration as dependent variables. The results showed that the prediction effect of this model was ideal, the ratios of STD were all greater than 0.5, NMB were all close to 0 and E_{MR} were all less than 19%. According to the relevant data from a research of indoor environment and children's health in Tianjin, the concentration of DEHP was predicted. The E_{MR} between average measured value and average predicted value was 7.7%, indicating that the prediction accuracy of the model was high.

Key words: Phthalate; Back propagation neural network; Concentration prediction; Dust; Children's bedroom

近年来,邻苯二甲酸酯(PAEs)由于在室内的排放量增加而备受关注。PAEs被用作各种塑料制品的增塑剂,如玩具、个人护理产品、家装材料等^[1-2]。研究表明,室内灰尘是人体接触PAEs的重要来源^[3]。目前,室内PAEs浓度的主要测定方法是现场采样和实验室检测,该方法获取的样本量非常有限且耗时耗力^[4-6]。因此,建立室内PAEs浓度预测模型具有一定意义。

有研究表明,DEHP、BBzP和DNOP浓度与室内清灰频率显著相关^[7]。室内温度、通风量也是PAEs浓度的重要影响因素^[8-9]。基于PAEs浓度与其影响因素构建预测模型,可反映个体住宅内PAEs浓度水平。关于室内污染物浓度预测,虽有

研究建立了质量平衡方程^[10-12],但理想条件过多。多元线性回归法要求数据有线性特征且所建模型适用性较弱^[13],BP神经网络预测算法以其预测精度高、对数据本身限制少而备受青睐。今采用BP神经网络建立预测室内PAEs浓度的模型,结合PAEs的实测结果及其健康风险,以PAEs(DEHP、DiBP)作为预测目标,为住宅内尘相PAEs浓度的

收稿日期:2020-12-20;修订日期:2021-11-12

基金项目:国家自然科学基金资助项目(51708347, 81861138005);国家重点研发计划基金资助项目(2017YFC0702700);上海市自然科学基金资助项目(21ZR1444800)

作者简介:李柯秀(1995—),女,江苏徐州人,在读研究生,研究方向为住宅内邻苯二甲酸酯浓度的预测。

*通信作者:孙婵娟 E-mail: sunchanjuan@usst.edu.cn

预测提供一种新的思路。

1 试验

1.1 主要仪器与试剂

Trace1310-ISQ型气相色谱-质谱联用仪,赛默飞世尔科技(中国)有限公司;SK3300HP型超声波清洗机,上海科导超声仪器有限公司;DM0412型低速离心机,大龙兴创实验仪器(北京)有限公司。

正己烷(分析纯),国药集团化学试剂有限公司。

1.2 数据收集

2013年3月—2014年12月,CCHH课题组对454家儿童住宅进行了问卷调查和入室检测^[14-15]。用吸尘器采集了儿童卧室门、窗框及床下地板表面的灰尘样本。将灰尘样本过筛去除毛发等杂物后,通过超声波清洗机、低速离心机及气相色谱-质谱联用仪(GC-MS)分析得到PAEs浓度。根据PAEs检出及问卷填写情况,研究筛选出266个现场检测样本及其对应的调查问卷(见表1)。将PAEs浓度的影响因素分为3类:建筑特性(卧室体积、楼龄),室内环境表征(卧室内潮湿表征、卧室夜间通风量和卧室24h平均温度),生活

表1 相关影响因素的问卷调查

Table 1 Questionnaire survey of relevant influencing factors

影响因素	问题	情况选择
儿童卧室潮湿表征 ^①	儿童卧室内墙是否有可见的霉斑	$a=0$,无; $b=1$,有
	儿童卧室窗玻璃上是否有凝露	$a=0$,无; $b=1$,有
	儿童卧室内墙墙纸是否有剥落	$a=0$,无; $b=1$,有
室内清灰频率	多久擦1次桌子和橱柜顶部、地板或使用真空吸尘器打扫孩子的卧室	$a=1$,每天; $b=2$,1周2次; $c=3$,1周1次
化学品暴露 ^②	多久使用1次蚊香	$a=0$,从不; $b=1$,有,有时; $c=2$,有,经常
	多久使用1次电蚊香液	$a=0$,从不; $b=1$,有,有时; $c=2$,有,经常
电子产品暴露	儿童卧室内是否有电脑	$a=0$,没有; $b=1$,有
楼龄	该住宅楼的建设年代	$a=1$,1995年之前; $b=2$,1996—2000年; $c=3$,2001—2005年; $d=4$,2006年之后

①有1项符合即被认为潮湿,取值为所有情况的总和,可分为0、1、2、3;②有1项符合即被认为有暴露,取值为所有情况的总和,可分为0、1、2、3、4。

方式(化学品使用、卧室内清洁习惯和电子产品使用)。其中,24h平均温度为每小时测量2次所得的24h平均气温;夜间通风量是采用CO₂示踪气体法计算所得;对测得的PAEs浓度值进行对数化处理;温度及通风量以外的其他影响因素取值均通过问卷调查得到。该研究中多数家庭使用木地板或瓷砖,非PVC地板,因而未考虑地板材料的影响。

1.3 关联性分析

研究表明,室内温度和通风量、室内清洁习惯、化学品和电子产品使用等因素与室内PAEs浓度存在相关性^[8-12]。而卧室体积、楼龄和卧室潮湿表征在以往研究中未涉及,故须评估上述三因素与PAEs浓度间的关联性。首先用正态分布检验(SPSS 20.0)明确PAEs浓度和影响因素取值的分布特征为非正态,进而采用非参数检验中的Kruskal-Wallis检验来确定PAEs浓度与三因素的关联,结果见表2。由表2可知,卧室潮湿表征与PAEs浓度显著相关($P<0.05$)。虽然室内相对湿度对PAEs排放的影响尚不清楚,但已证实源材料中的水分促进了DEHP在聚合物内的迁移^[5]。PAEs浓度与卧室体积、楼龄无显著关联,故将这2个影响因素剔除,剩余影响因素作为输入变量建立预测模型。

表2 影响因素与PAEs浓度的相关性分析

Table 2 Correlation analysis between influencing factors and PAEs concentration

影响因素	P值	
	DEHP	DiBP
卧室体积	0.094	0.405
楼龄	0.892	0.159
卧室内潮湿表征	0.014 ^①	0.030 ^①
温度	0.086	0.093
卧室夜间通风量	0.512	0.305
室内清洁习惯	0.949	0.025 ^①
化学品使用情况	0.127	0.002 ^②
电子产品使用情况	0.522	0.399

①列为P值<0.05;②列为P值<0.01。

2 结果与讨论

2.1 BP神经网络预测模型的搭建

人工神经网络是模拟人脑神经元信号传输的模型^[16],是对生物神经网络的一种模仿、简化和表达。BP算法在误差反向传播过程中,使用梯度下

降法修改网络连接的权值(ω)和阈值(b),使得网络的输出值不断修正,直至达到预期值。网络结构分为3层,即输入层(X)、隐含层(R)和输出层(Y)。输入变量为PAEs浓度的影响因素,其个数等于输入层神经元的数目,输出变量为PAEs浓度值。输入变量 $X = \{x_1, x_2, \dots, x_k\}$ 在输入层, j 为隐含层的神经元数, i 为输出层的神经元数,通过逐层计算,最终得到输出值。BP神经网络结构见图1。

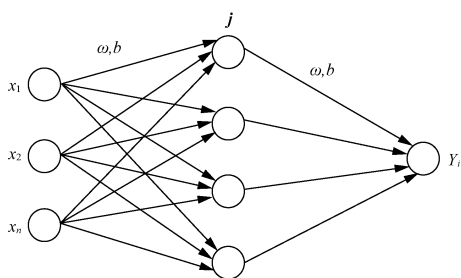


图1 BP神经网络结构

Fig. 1 BP neural network structure

预测模型训练过程主要有以下几个步骤:

(1) 设置整个网络的初始参数,包括网络层数及节点数、权值及阈值、激活和训练函数,误差限值和最大学习次数等。公式(1)通常用于给出隐含层节点数目的范围。

$$m = \sqrt{n + q} + a \quad (1)$$

式中: m 是隐含层中的节点数; n 和 q 分别是输入层和输出层中的节点数; a 是从0~10的任意整数。

(2) 计算隐含层 R 和输出层 Y 中神经元的值。

(3) 为了降低反向传播过程中的误差,需在训练中不断调整权值和阈值、激活及训练函数等,直至网络误差在一定精度的预设范围内,且网络学习的频率大于设定的最大频率。

机器学习效率取0.5,最大训练步数为10 000,最大允许误差为 10^{-5} 。在构建过程中,约80%的有效试验数据用来训练神经网络,剩余20%的数据作为检测样本对其进行评估。

2.2 BP神经网络模型训练样本的预测效果

将PAEs浓度预测值与实测数据进行比较,以评价训练模型的准确性。模型的预测性能常用标准偏差STD的比值、标准化平均偏差NMB、可决系数 R^2 、平均相对误差 E_{MR} 、均方根误差 E_{RMS} 来衡量预测值与实测值之间的偏差^[17]。其中,STD比值、 R^2 越接近1,说明预测值和实测值的平均值、标准偏差越接近,NMB、 E_{MR} 、 E_{RMS} 越小,预测结果越理想。预测结果见表3。由表3可知,训练样本中,DEHP和DiBP浓度预测值的STD比值和 R^2 均接近1,且 E_{MR} 均 $< 19\%$ 。DiBP的 E_{MR} 为6.6%, E_{RMS} 接近0。DEHP、DiBP和DBP的预测值的拟合情况表明,这2类PAEs的相对误差绝大部分在 $\pm 30\%$ 误差范围内^[18],预测的浓度值显然具有较高的准确性。

表3 训练和检测样本中2类PAEs浓度的预测精度

Table 3 Concentration prediction accuracy of two PAEs in training and testing samples

PAEs	STD 比值		NMB		R^2		$E_{MR}/\%$		E_{RMS}	
	训练	检测	训练	检测	训练	检测	训练	检测	训练	检测
DEHP	0.71	0.84	0.39	-1.88	0.83	0.48	11.2	14.6	0.32	0.41
DiBP	0.87	0.78	0.64	-0.91	0.95	0.32	6.6	15.1	0.16	0.46

2.3 BP神经网络预测模型的验证

为验证训练后的BP神经网络模型的可重复利用性,以剩余20%的实测数据作为检测样本。预测浓度与试验检测的拟合情况表明,STD比值都接近1, E_{RMS} 均 < 0.5 , E_{MR} 均 $< 15.5\%$,预测值的相对误差几乎均在 $\pm 30\%$ 内,说明PAEs浓度的预测值与实验值的拟合度较高。为了再次验证预测模型的适用性,从CCHH天津地区的研究中收集数据^[19-22],以DEHP浓度作为预测目标,将其对应的

影响因素导入上述搭建好的浓度预测模型,结果见表4。

由表4可知,浓度均值对应的 E_{MR} 仅为7.7%,中值对应的 E_{MR} 为15.7%,预测效果较好,说明该研究中的浓度预测模型具有良好的适用性。

BP神经网络算法存在易陷入局部最优的缺陷,故该预测模型依然存在不确定性。PAEs浓度除了受上述因素的影响外,还受地板及其他装修材料、距交通干线的远近、儿童卧室的布置等

很多因素的影响,故该预测模型还需要一定的拓展研究。

表4 CCHH天津地区DEHP的预测精度

Table 4 Prediction accuracy of DEHP from a research of CCHH in Tianjin

DEHP值四分位数	实测值对数	预测值对数	$E_{MR}/\%$
均值	2.69	2.48	7.7
25%位置	1.60	2.18	35.9
50%位置	2.10	2.44	15.7
75%位置	2.55	2.18	8.8

3 结语

采用BP神经网络算法建立了儿童卧室内PAEs浓度预测模型,通过精度评价标准,表明该模型的预测效果较理想。利用天津地区的实测数据验证其适用性,预测精度仍然较高,可以为控制儿童卧室内PAEs浓度提供一定的数据支持。

[参考文献]

- [1] 张文娟,王利军,苏少林,等. 西安市表层土壤中邻苯二甲酸酯(PAEs)含量与构成[J]. 环境监测管理与技术,2020,32(2):37-41.
- [2] YU A B,ATSUKO A,TOSHIO K,et al. Associations of phthalate concentrations in floor dust and multi-surface dust with the interior materials in Japanese dwellings[J]. Science of the Total Environment,2014,468/469:147-157.
- [3] KAVLOCK R,BOEKELHEIDE K,CHAPIN R,et al. NTP center for the evaluation of risks to human reproduction: phthalates expert panel report on the reproductive and developmental toxicity of di-n-butyl phthalate [J]. Reproductive Toxicology,2002,16(5):489-527.
- [4] PEI X Q,SONG M,GUO M,et al. Concentration and risk assessment of phthalates present in indoor air from newly decorated apartments[J]. Atmospheric Environment,2013,68:17-23.
- [5] KASHYAP D,AGARWAL T. Concentration and factors affecting the distribution of phthalates in the air and dust:A global scenario[J]. Science of the Total Environment,2018,635:817-827.
- [6] 杨小妮,尚旭光,徐扬帆,等. 通风速率及源项特性对室内甲醛扩散规律的影响[J]. 环境监测管理与技术,2020,32(2):17-21.
- [7] KOLARIK B,BORNEHAG C G,NAYDENOV K,et al. The concentrations of phthalates in settled dust in Bulgarian homes in relation to building characteristic and cleaning habits in the family [J]. Atmospheric Environment,2008,42(37):8553-8559.
- [8] LIANG Y R,XU Y. The influence of surface sorption and air flow rate on phthalate emissions from vinyl flooring:Measurement and modeling[J]. Atmospheric Environment,2015,103:147-155.
- [9] LIANG Y R,XU Y. Emission of phthalates and phthalate alternatives from vinyl flooring and crib mattress covers:The influence of temperature[J]. Environment Science & Technology,2014,48(24):14228-14237.
- [10] HU K,CHEN Q. Ventilation optimization for reduction of indoor semi-volatile organic compound concentration based on the variational principle[J]. Building and Environment,2015,94(1):676-682.
- [11] WEI W J,CORINNE M,OLIVIER B,et al. Temperature dependence of the particle/gas partition coefficient:An application to predict indoor gas-phase concentrations of semi-volatile organic compounds[J]. Science of the Total Environment,2016,563/564:506-512.
- [12] PEI J J,SUN Y H,YIN Y H. The effect of air change rate and temperature on phthalate concentration in house dust[J]. Science of the Total Environment,2018,639:760-768.
- [13] NURUL A G,NOR A R,AHMAD S Y,et al. Transformation of nitrogen dioxide into ozone and prediction of ozone concentrations using multiple linear regression techniques[J]. Environment Monitoring and Assessment,2010,165(1):475-489.
- [14] SHI W M,LIN Z J,LIAO C X,et al. Urinary phthalate metabolites in relation to childhood asthmatic and allergic symptoms in Shanghai[J]. Environment International,2018,121:276-286.
- [15] LIAO C X,LIU W,ZHANG J L,et al. Associations of urinary phthalate metabolites with residential characteristics, lifestyles, and dietary habits among young children in Shanghai,China[J]. Science of the Total Environment,2018,616/617:1288-1297.
- [16] LIANG W,WANG G W,NING X J,et al. Application of BP neural network to the prediction of coal ash melting characteristic temperature[J]. Fuel,2020,260:116-124.
- [17] 孙宝磊,孙磊,张朝能,等. 基于BP神经网络的大气污染物浓度预测[J]. 环境科学学报,2017,37(5):1864-1871.
- [18] 黄晨,卿湛媛,刘炜,等. 基于住宅特性的上海地区冬季夜间卧室渗透风换气次数分析[J]. 能源研究与信息,2018,34(1):35-42.
- [19] SUN Y X,ZHANG Q N,HOU J,et al. Exposure of phthalates in residential buildings and its health effects [J]. Procedia Engineering,2017,205:1901-1904.
- [20] HOU J,ZHANG Y F,SUN Y X,et al. Air change rates in residential buildings in Tianjin, China [J]. Procedia Engineering,2017,205:2254-2258.
- [21] SUN Y X,HOU J,CHENG R S,et al. Indoor air quality,ventilation and their associations with sick building syndrome in Chinese homes[J]. Energy and Building,2019,197:112-119.
- [22] ZHANG Q H,SUN Y X,ZHANG Q N,et al. Phthalate exposure in Chinese homes and its association with household consumer products [J]. Science of the Total Environment,2020,719:136965-136968.