UNIVERSIDAD DE GUANAJUATO

MASTER'S THESIS

Using Computational Intelligence to solve the Ornstein-Zernike equation

Author:
Edwin Armando Bedolla Montiel

Supervisor:
Dr. James SMITH

A thesis submitted in fulfillment of the requirements
for the degree of Master in Science

in the

Soft Matter Group
Department of Physical Engineering

June 30, 2021

"*Thanks to my solid academic training, today I can write hundreds of words on virtually any topic without possessing a shred of information, which is how I got a good job in journalism.*"

Dave Barry

UNIVERSIDAD DE GUANAJUATO

Abstract

Science and Engineering Division
Department of Physical Engineering

Master in Science

Using Computational Intelligence to solve the Ornstein-Zernike equation

by Edwin Armando Bedolla Montiel

The Thesis Abstract is written here (and usually kept to just this page). The page is kept centered vertically so can expand into the blank space above the title too...

Acknowledgements

The acknowledgments and the people to thank go here, don't forget to include your project advisor…

Contents

List of Figures

List of Tables

For/Dedicated to/To my...

Chapter 1

Neural networks as an approximation for the bridge function

Neural networks can be used as *universal approximators* [HSW89; Hor91; Cyb89], in other words, they can take the form of any continuous function for some specific types of architectures. In particular, it is hypothesized that a neural network might be useful as a bridge function parametrization in the closure expression for the Ornstein-Zernike equation. If this is true, then choosing a particular approximation can be avoided for a given interaction potential, and leave the choice of the bridge function to the neural network itself, while simultaneously solving the Ornstein-Zernike equation.

In this chapter, we show in detail the methodology created to achieve such a task, and the mathematical structure with which a neural network can be used to solve the Ornstein-Zernike equation. These results are compared to those obtained from computer simulations to assess the quality of the solution. In the appendix, the detailed algorithm used to solve the Ornstein-Zernike equation is presented, along with a detailed computation of the gradients used for the training scheme. Here, we shall focus only on the main results and the algorithm structure in general.

1.1 Parametrization of the bridge function

The Ornstein-Zernike equation is given by the following expression

$$
\begin{aligned}
c(\mathbf{r}) &= h(\mathbf{r}) + n\int_V c(\mathbf{r}')h(|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|)d\mathbf{r}' \\
c(\mathbf{r}) &= \exp\left[-\beta u(\mathbf{r}) + \gamma(\mathbf{r}) + B(\mathbf{r})\right] - \gamma(\mathbf{r}) - 1
\end{aligned}
$$

with the already known notation for each quantity (Ref a marco teórico).

Let $N_\theta(\mathbf{r})$ be a neural network with weights θ. The main hypothesis of this chapter is that $N_\theta(\mathbf{r})$ can replace the bridge function $B(\mathbf{r})$ in the previous equation, which will yield the following expression for the closure relation

$$
c(\mathbf{r}) = \exp\left[-\beta u(\mathbf{r}) + \gamma(\mathbf{r}) + N_\theta(\mathbf{r})\right] - \gamma(\mathbf{r}) - 1. \tag{1.2}
$$

With this new expression, the main problem to solve is to find the weights of $N_\theta(\mathbf{r})$ that can successfully solve the Ornstein-Zernike equation for a given interaction potential, $\beta u(\mathbf{r})$.

1.2 Training scheme

Now that a parametrization is defined, a way to fit the weights of the neural network must be devised. This new numerical scheme must also be able to solve the OZ equation, while simultaneously finding the appropiate weights for $N_\theta(\mathbf{r})$.

1.2.1 Cost function

It was previously mentioned that the main problem to solve is to find the weights of $N_\theta(\mathbf{r})$ that can successfully solve the Ornstein-Zernike equation for a given interaction potential. To solve such problem, a **cost function** must be defined, and be used as part of a *minimization* problem.

To define such a function, we consider the successive approximations obtained from the iterative Piccard scheme to solve the OZ equation, $\{\gamma_1(\mathbf{r}), \gamma_2(\mathbf{r}), \ldots, \gamma_n(\mathbf{r})\}$. From the numerical algorithm, we expect to have found a solution when each approximation is close to the previous one. This can be translated into a cost function like the following expression

$$J(\theta) = \left[\gamma_n(\mathbf{r};\theta) - \gamma_{n-1}(\mathbf{r};\theta)\right]^2 \tag{1.3}$$

where $\gamma_n(\mathbf{r};\theta)$ is the $n-$th approximated function of the indirect correlation function, $\gamma(\mathbf{r})$. The notation $\gamma(\mathbf{r};\theta)$ indicates that the function depends implicitly on the weights of the neural network, as seen in equation (1.2). This means that, if the weights of $N_\theta(\mathbf{r})$ change, we should expect a change in the output from the γ function. Nevertheless, this does not mean that the indirect correlation function itself depends explicitly, nor directly, on the weights of $N_\theta(\mathbf{r})$.

In other word, the expression (1.3) is requiring for the two last approximations to be as equal as possible. This will enforce a change on the weights every time both approximations deviate between them.

1.2.2 Optimization problem

With a cost function at hand, an optimization problem can be defined such that the weights of $N_\theta(\mathbf{r})$ will be adjusted properly.

This optimization problem is in fact an *unconstrained optimization problem*, and it is defined simply as

$$\min_\theta \quad J(\theta) \quad . \tag{1.4}$$

With the formulation, a search for the best values for the weights need to be found such that the squared difference between successive approximations is minimized. This optimization problem can be solved iteratively, along with the solution of the OZ equation, which is also an iterative process.

1.2.3 Weight updates

The iterative method employed to adjust the weights of $N_\theta(\mathbf{r})$ is based on the *gradient descent* method [NW06]. The most general update rule for a method based on gradient descent reads

$$\theta_{n+1} = \theta_n - \eta \nabla_\theta J(\theta). \tag{1.5}$$

where η is known as the *learning rate*, and it is a hyperparameter that controls the step size at each iteration while moving toward the minimum of a cost function. As it is a hyperparameter, this value needs to be *tuned* accordingly, so that the method converges properly.

Regardless of the particular expression for the weight update rule, every method based of the gradient descent method *requires* the gradient information from the cost function with respect to the weights, $\nabla_\theta J(\theta)$. In this particular case, the detailed computation of the gradient is described in the appendix (Ref a apéndice). One this information is obtained, all that is left is to build an algorithm that can correctly use this training scheme and solve the OZ equation.

1.2.4 Solución a la ecuación de Ornstein-Zernike con redes neuronales

Con todos los elementos necesarios, se puede entonces definir el esquema general para la solución a la ecuación de Ornstein-Zernike usando redes neuronales.

Para resolver la ecuación de OZ con la parametrización (1.2) se tienen lo siguientes pasos:

1. Dado el potencial de interación $u(\mathbf{r})$, se emplea la ecuación (1.2) para obtener el valor de $c(\mathbf{r};\theta)$, la cual ahora depende implícitamente de los pesos de $N_\theta(\mathbf{r})$. En este paso también se requiere de un valor inicial para $\gamma_n(\mathbf{r})$, el cual se inicializa de acuerdo a la metodología de Ng de cinco puntos, descrita en el apéndice.

2. La función $c(\mathbf{r};\theta)$ se transforma mediante la transformada de Fourier, para obtener $\hat{c}(\mathbf{k};\theta)$.

3. Se transforma mediante la transformada de Fourier toda la ecuación de OZ, y se deja en términos de la función $\hat{\gamma}(\mathbf{k})$. Usando la información encontrada sobre la función $\hat{c}(\mathbf{k};\theta)$, se encuentra una nueva función $\hat{\gamma}_{n+1}(\mathbf{k};\theta)$.

4. Luego, se antitransforma la función $\hat{\gamma}_{n+1}(\mathbf{k};\theta)$ para obtener la nueva estimación, $\gamma_{n+1}(\mathbf{r};\theta)$.

5. Usando ambas estimaciones γ_n y γ_{n+1}, se evalúa la función de costo (1.3) y se realiza el cálculo del gradiente, $\nabla_\theta J(\theta)$.

6. Se actualizan los pesos usando la expresión (1.5), y se reinicia el proceso. En la siguiente iteración, la función inicial será ahora γ_{n+1}, para entonces obtener una nueva estimación γ_{n+2}, y así sucesivamente.

1.2.5 Convergencia del entrenamiento

El procedimiento descrito anteriormente se repite de forma indefinida hasta lograr la convergencia, dada por la siguiente expresión

$$|\gamma_{n+1} - \gamma_n|^2 \leq \epsilon \tag{1.6}$$

donde $|\cdot|$ indica el valor absoluto, y $\epsilon \in [0,1]$. En particular, la tolerancia en todos los experimentos realizados fue de $\epsilon = 1 \times 10^{-5}$. En otras palabras, se exige a la red neuronal ajustar sus pesos hasta que las estimaciones sucesivas de las funciones γ sean muy semejantes entre sí.

1.3 Implementación

En esta sección se detallan los aspectos importantes de la implementación del método descrito en la sección anterior, como lo son la arquitectura de la red neuronal, el método de optimización,

y la elección de las funciones de activación, así como los parámetros utilizados para resolver la ecuación de OZ.

1.3.1 Elección de optimizador

La regla general de actualización de pesos (1.5) fue implementada para resolver el problema de optimización, sin embargo, problemas numéricos impedían la convergencia del entrenamiento.

Para resolver este problema se optó por utilizar el método *Adam* [KB17], el cual es un método de optimización adecuado para entrenamiento de redes neuronales, sobre todo cuando el gradiente puede ser *disperso*, i.e. que muchas de sus entradas sean cero. El método *Adam* emplea diversas reglas para ajustar la dirección de descenso del gradiente, así como los hiperparámetros asociados al método. En particular, este método utiliza dos hiperparámetros, β_1, que controla el promedio móvil del gradiente calculado; y β_2, que controla el cuadrado del gradiente. Ambas cantidades son necesarias para la convergencia óptima del algoritmo.

Las ecuaciones que definen al método de optimización son las siguientes

$$\begin{aligned} m &= \beta_1 m - (1-\beta_1)\nabla_\theta J(\theta) \\ s &= \beta_2 s + (1-\beta_2)\nabla_\theta J(\theta) \odot \nabla_\theta J(\theta) \\ \hat{m} &= \frac{m}{1-\beta_1^t} \\ \hat{s} &= \frac{s}{1-\beta_2^t} \\ \theta &= \theta + \eta \hat{m} \oslash \sqrt{\hat{s}+\varepsilon} \end{aligned} \tag{1.7}$$

donde $\odot$ significa multiplicación entrada por entrada, o producto de Hadamard; $\oslash$ significa división entrada por entrada, o división de Hadamard; y ε es un número de tolerancia que impide la división por cero.

En los resultados presentados en esta sección, se emplearon los hiperparámetros con sus valores estándar, $\beta_1 = 0.9$ y $\beta_2 = 0.999$.Es importante notar que este método de optimización utiliza sus propios mecanismos para controlar los gradientes, así como estos hiperparámetros. El valor de la *razón de aprendizaje*, η en la ecuación (1.5), utilizado en todos los experimentos fue de $\eta = 1 \times 10^{-4}$.

1.3.2 Arquitectura de la red neuronal

La arquitectura de la red neuronal empleada en todos los experimentos es aquella que se muestra en el esquema de la figura 1.1, excepto por el número de unidades en las capas ocultas. Es decir, la arquitectura es de *cuatro capas*, una capa de *entrada* con una unidad, dos capas ocultas con 1024 unidades cada una, y por último una capa de *salida* con una sola unidad.

La función de activación que se empleó fue la función *ReLU* [GBB11], la cual está definida con la siguiente expresión

$$\mathrm{ReLU}(x) = \max(0, x).$$

Esta función de activación se aplica a todas las capas a excepción de la capa de entrada. Se escogió esta función de activación debido a que todas las más comunes (tanh, softmax, etc.), provocaban inconsistencias numéricas.

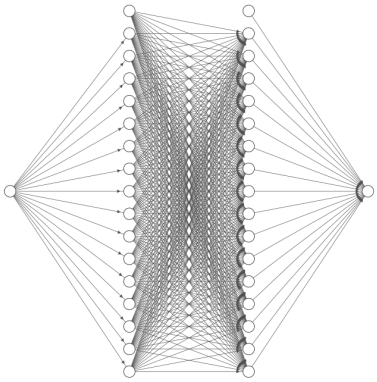

FIGURE 1.1: Esquema genérico de una red neuronal multicapa completamente conectada. Es importante notar la forma de la red, donde se tienen dos capas escondidas. Los círculos representan *unidades* o *nodos*, que están siendo evaluados por una función de activación. Los nodos que se ven separados de las capas (aquellos que están en la parte superior del esquema) son los *sesgos* de las capas penúltima y última, respectivamente. La arquitectura usada en los resultados de este capítulo es diferente y más grande, pero tiene la misma estructura.

1.3.3 Parámetros físicos

Para resolver la ecuación de OZ se empleó un radio de corte $r_c = 7\sigma$, donde σ es el diámetro de las partículas y tiene por valor $\sigma = 1$. El potencial empleado fue el de pseudo-esferas duras (Ref), tanto para la solución de la ecuación de OZ como para los resultados obtenidos de simulación por computadora.

Se exploraron siete densidades diferentes en un rango de $\phi \in [0.15, 0.45]$, con $\Delta\phi = 0.05$. Por cada valor de la densidad se utilizó una partición de la densidad de 70 puntos para lograr la convergencia del método iterativo cuando se resolvió la ecuación de OZ. En el caso de las simulaciones por computadora, no se necesita esta partición.

1.4 Resultados

Con todos los elementos descritos en las secciones anteriores, los resultados obtenidos en esta sección se muestran en la figura 1.2, que corresponden a las funciones de distribución radial, $g(r^*)$, de las densidades del líquido estudiadas. Estas funciones describen la estructura del líquido, y son el tema central de estudio de la metodología descrita en este capítulo.

1.4.1 Densidades bajas

Primero se analizarán y discutirán las densidades bajas $\phi = 0.15 and 0.25$, las cuales corresponden a las gráficas (a) y (b) en la figura 1.2. Los resultados que se observan es que, a densidades bajas, las aproximaciones HNC y redes neuronales son más precisas que Percus-Yevick y Verlet modificada, sin embargo ninguna de estas cuatro aproximaciones logra obtener resultados comparables a aquellos de la simulación por computadora. En especial, es importante observar

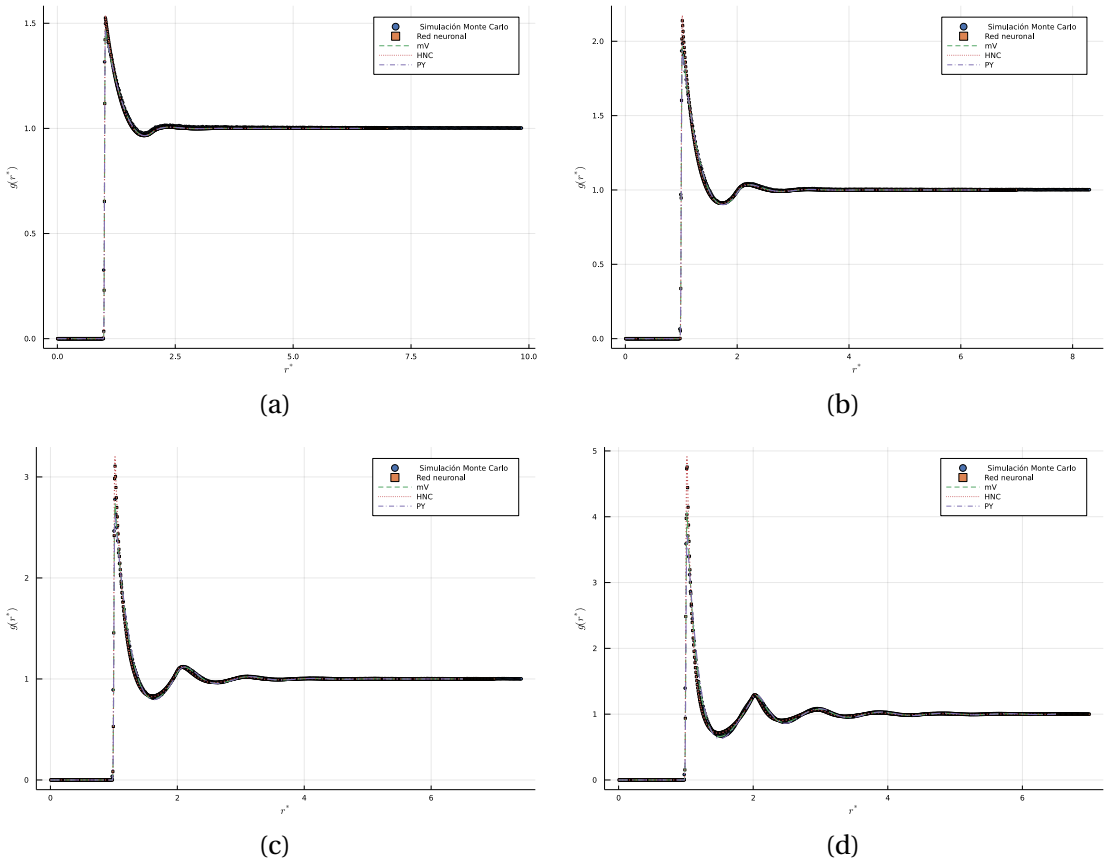

FIGURE 1.2: Funciones de distribución radial obtenidas con simulación por computadora y mediante el uso de la metodología descrita en este capítulo, usando redes neuronales. Se presentan cuatro densidades: (a) $\phi = 0.15$, (b) $\phi = 0.25$, (c) $\phi = 0.35$, (d) $\phi = 0.45$. En cada una, se muestran las comparaciones con tres diferentes aproximaciones para la función puente: *mV*, Verlet modificada; *PY*, Percus-Yevick; y *HNC*, Hypernetted Chain.

que la aproximación de redes neuronales es un poco más precisa que la HNC, aunque sigue sobreestimando el pico principal que se encuentra en $r^* = \sigma$. Por otro lado, las aproximaciones de Percus-Yevick y Verlet modificada subestiman el pico principal para ambas densidades.

También es importante observar la forma funcional de $g(r^*)$. Para el caso de HNC y redes neuronales, parece ser que la forma es muy semejante entre ambas aproximaciones, e incluso pudiera ser la misma. Esto implica que, de alguna forma, los pesos de la red neuronal se ajustaron lo suficiente tal que la aproximación resulta ser HNC, o algo semejante. Dicho de otra forma, los pesos son muy cercanos a cero tal que al ser evaluada la red neuronal, la aproximación es muy semajante a HNC. Otro factor importante a observar es que esta forma también es ligeramente diferente a la encontrada con las simulaciones por computadora, pues las aproximaciones de Percus-Yevick y Verlet modificada son más precisas en este aspecto.

1.4.2 Densidades altas

Ahora se discutirán los resultados para las densidades altas $\phi = 0.35 and 0.45$, las cuales corresponden a las gráficas (c) y (d) en la figura 1.2. De la misma forma que para las densidades bajas, las aproximaciones HNC y redes neuronales para las densidades altas no son muy precisas. Ahora, y como era de esperarse, las aproximaciones Percus-Yevick y Verlet modificada son las más precisas, siendo Verlet modificada la más precisa de todas. Esto se puede observar en la figura 1.2 al ver que el pico principal está muy bien estimado por la aproximación Verlet modificada, mientras que las aproximaciones HNC y redes neuronales sobreestiman por mucho este valor.

Por otro lado, y semejante al caso para densidades bajas, la forma funcional de $g(r^*)$ es diferente entre la obtenida con simulación por computadora de aquella utilizando la aproximación de redes neuronales. De hecho, al igual que antes, el resultado es muy semejante al obtenido con la aproximación HNC. Esto es algo importante de observar, y sustenta la hipótesis de que la aproximación de red neuronal se reduce a la aproximación HNC. Esto implica que la red neuronal en realidad está aproximando una función puente $B(\mathbf{r}) \approx 0$. Si se observan las aproximaciones de Percus-Yevick y Verlet modificada, volvemos a observar que la aproximación de Verlet modificada es la más precisa, pues la forma funcional de $g(r^*)$ es muy semejante a la obtenida con simulación por computadora.

Bibliography

[Cyb89] G. Cybenko. “Approximation by Superpositions of a Sigmoidal Function”. en. In: *Mathematics of Control, Signals and Systems* 2.4 (Dec. 1989), pp. 303–314. ISSN: 1435-568X. DOI: 10.1007/BF02551274.

[GBB11] Xavier Glorot, Antoine Bordes, and Yoshua Bengio. “Deep Sparse Rectifier Neural Networks”. en. In: *Proceedings of the Fourteenth International Conference on Artificial Intelligence and Statistics*. JMLR Workshop and Conference Proceedings, June 2011, pp. 315–323.

[Hor91] Kurt Hornik. “Approximation Capabilities of Multilayer Feedforward Networks”. en. In: *Neural Networks* 4.2 (Jan. 1991), pp. 251–257. ISSN: 0893-6080. DOI: 10.1016/0893-6080(91)90009-T.

[HSW89] Kurt Hornik, Maxwell Stinchcombe, and Halbert White. “Multilayer Feedforward Networks Are Universal Approximators”. en. In: *Neural Networks* 2.5 (Jan. 1989), pp. 359–366. ISSN: 0893-6080. DOI: 10.1016/0893-6080(89)90020-8.

[KB17] Diederik P. Kingma and Jimmy Ba. “Adam: A Method for Stochastic Optimization”. In: *arXiv:1412.6980 [cs]* (Jan. 2017). arXiv: 1412.6980 [cs].

[NW06] Jorge Nocedal and S. Wright. *Numerical Optimization*. en. Second. Springer Series in Operations Research and Financial Engineering. New York: Springer-Verlag, 2006. ISBN: 978-0-387-30303-1. DOI: 10.1007/978-0-387-40065-5.