

UNIVERSITY NAME

DOCTORAL THESIS

Thesis Title

Author:
John SMITH

Supervisor:
Dr. James SMITH

*A thesis submitted in fulfillment of the requirements
for the degree of Doctor of Philosophy*

in the

Research Group Name
Department or School Name

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

UNIVERSITY NAME

Abstract

Faculty Name

Department or School Name

Doctor of Philosophy

Thesis Title

by John SMITH

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

Abstract	ii
Acknowledgements	iii
1 Solución a la ecuación de Ornstein-Zernike usando redes neuronales	1
1.1 Parametrización de la función puente	1
1.2 Esquema de entrenamiento	2
1.2.1 Función de costo	2
1.2.2 Problema de optimización	2
1.2.3 Actualización de pesos	2
1.2.4 Solución a la ecuación de Ornstein-Zernike con redes neuronales	3
1.2.5 Convergencia del entrenamiento	3
1.3 Implementación	3
1.3.1 Elección de optimizador	3
1.3.2 Arquitectura de la red neuronal	4
1.3.3 Parámetros físicos	4
1.4 Resultados	5
1.4.1 Densidades bajas	5
1.4.2 Densidades altas	7
Bibliography	8

List of Figures

1.1	Esquema genérico de una red neuronal.	5
1.2	Funciones de distribución radial con redes neuronales.	6

List of Tables

For/Dedicated to/To my...

Chapter 1

Solución a la ecuación de Ornstein-Zernike usando redes neuronales

Neural networks can be used as *universal approximators* [HSW89; Hor91; Cyb89], which means that they effectively can be used as powerful interpolators for some specific types of architectures. In particular, it is expected of a neural network to be useful as a bridge function parametrization in the closure expression for the Ornstein-Zernike equation. With this, we avoid choosing a particular approximation for a given interaction potential, and we 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.

1.1 Parametrización de la función puente

La ecuación de Ornstein-Zernike está dada por

$$c(\mathbf{r}) = h(\mathbf{r}) + n \int_V c(\mathbf{r}') h(|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|) d\mathbf{r}'$$

$$c(\mathbf{r}) = \exp[-\beta u(\mathbf{r}) + \gamma(\mathbf{r}) + B(\mathbf{r})] - \gamma(\mathbf{r}) - 1$$

con la notación ya conocida para esta ecuación.

Sea $N_\theta(\mathbf{r})$ una red neuronal con pesos θ . Se propone que $N_\theta(\mathbf{r})$ reemplace a la función puente $B(\mathbf{r})$ en la ecuación anterior tal que ahora se tiene la siguiente expresión para la cerradura

$$c(\mathbf{r}) = \exp[-\beta u(\mathbf{r}) + \gamma(\mathbf{r}) + N_\theta(\mathbf{r})] - \gamma(\mathbf{r}) - 1, \quad (1.2)$$

y la ecuación de OZ queda de la misma forma. Se pretende trabajar a partir de esta hipótesis donde la función puente pueda tomar cualquier valor en particular que permita la solución de la ecuación de OZ.

1.2 Esquema de entrenamiento

Ahora que se tiene la parametrización, se debe desarrollar una forma para ajustar los pesos de la red neuronal $N_\theta(\mathbf{r})$, y que al mismo tiempo permita la solución de la ecuación de OZ.

1.2.1 Función de costo

Para crear un esquema de entrenamiento se requiere primero de una **función de costo** que sea utilizada para generar información del ajuste necesario de los pesos θ . Tomando en cuenta que el esquema iterativo de Piccard crea una sucesión de funciones estimadas $\{\gamma_1(\mathbf{r}), \gamma_2(\mathbf{r}), \dots, \gamma_n(\mathbf{r})\}$, se propone que la función de costo sea

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

donde $\gamma_n(\mathbf{r}; \theta)$ es la n -ésima función estimada de $\gamma(\mathbf{r})$ mediante el método iterativo. La notación $\gamma(\mathbf{r}; \theta)$ indica que depende implícitamente de los pesos de la red neuronal, como se puede ver en la ecuación (1.2). Esto significa que si los pesos de $N_\theta(\mathbf{r})$ cambian, entonces la función γ debe cambiar. Sin embargo, esto no significa que γ depende *directamente* de los pesos.

1.2.2 Problema de optimización

Usando la función de costo (1.3) ahora se puede plantear un problema de optimización que permita el ajuste de los pesos de $N_\theta(\mathbf{r})$.

El problema de optimización en este caso es *sin restricciones* y está definido de la siguiente forma

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

Esto significa que buscamos los parámetros óptimos θ^* que minimicen la diferencia entre las iteraciones calculadas de las funciones $\gamma(\mathbf{r}; \theta)$. Este problema de optimización se puede resolver de forma iterativa, al mismo tiempo que se resuelve la ecuación de OZ.

1.2.3 Actualización de pesos

El método iterativo empleado está basado en la técnica de *descenso de gradiente* para actualizar los pesos de la red neuronal. Esto significa que en general, una regla de actualización está dada por una expresión semejante a la siguiente

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

donde η se conoce como la *razón de aprendizaje*, y es un parámetro que controla el tamaño de paso del gradiente hacia la dirección de descenso.

Independientemente de la expresión de la actualización de los pesos, este cálculo requiere de la información del gradiente de la función de costo respecto a los pesos, $\nabla_{\theta} J(\theta)$. Para este caso en particular, el cálculo detallado del gradiente se describe en el apéndice. Una vez que se tiene esta información, lo que resta es construir un algoritmo que use este esquema de entrenamiento y que resuelva la ecuación de OZ.

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 los siguientes pasos:

1. Dado el potencial de interacción $u(\mathbf{r})$, 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

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

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

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

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.

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

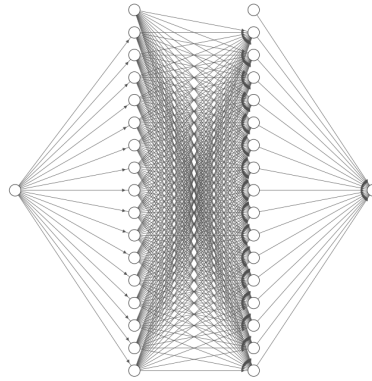


FIGURE 1.1: Esquema genérico de una red neuronal multicapa completamente conectada. Es importante notar la forma de la red, donde se tienen dos capas escondidas. Los círculos representan *unidades* o *nodos*, que están siendo evaluados por una función de activación. Los nodos que se ven separados de las capas (aquellos que están en la parte superior del esquema) son los *sesos* 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.

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 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

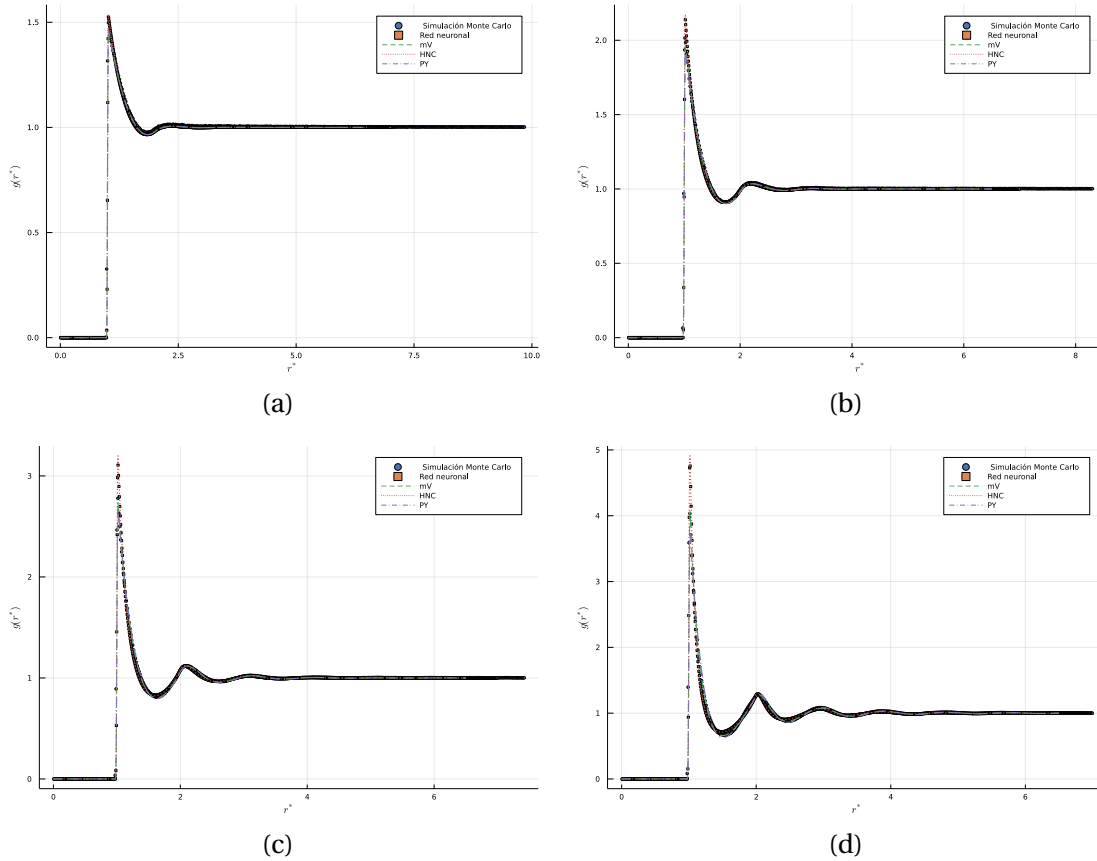


FIGURE 1.2: Funciones de distribución radial obtenidas con simulación por computadora y mediante el uso de la metodología descrita en este capítulo, usando redes neuronales. Se presentan cuatro densidades: (a) $\phi = 0.15$, (b) $\phi = 0.25$, (c) $\phi = 0.35$, (d) $\phi = 0.45$. En cada una, se muestran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

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](https://doi.org/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](https://doi.org/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](https://doi.org/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 \[cs\]](https://arxiv.org/abs/1412.6980).