arXiv:2302.01078v2 [cond-mat.mtrl-sci] 3 Jan 2024

通过计算发现具有最佳刚度-韧性权衡的微结构复合材料

Beichen Li[1,2],Bolei Deng[1,2,3], WanShou[1,2,4*], Tae-HyunOh[5], Yuanming Hu[1,2],Yiyue Luo[1,2], LiangShi[1,2], WojciechMatusik[1,2,3*]

[1]麻省理工学院计算机科学与人工智能实验室，美国马萨诸塞州剑桥市，邮编02139[2]麻省理工学院电气工程与计算机科学系，美国马萨诸塞州剑桥市，邮编02139[3]麻省理工学院机械工程系，美国马萨诸塞州剑桥市，邮编02139[4]阿肯色大学机械工程系，美国阿肯色州费耶特维尔市，邮编72701[5]浦项科技大学电气工程系与人工智能研究生院，韩国庆尚北道浦项市，邮编37673

*通信请联系：wanshou@mit.edu 或 wshou@uark.edu（W.S.）；wojciech@csail.mit.edu（W.M.）。

刚度与韧性之间的矛盾是工程材料设计中的一个根本问题。然而，由于仿真与现实之间存在差异，且缺乏对整个帕累托前沿进行数据高效探索的方法，迄今尚未实现对具有最优刚度-韧性权衡的微结构复合材料的系统性发现。我们提出了一种可泛化流程，整合物理实验、数值

模拟和人工神经网络，以应对这两项挑战。在不预先设定任何材料设计专家知识的情况下，我们的方法采用嵌套循环提案验证工作流，弥合仿真与现实之间的差距，并以高样本效率发现兼具高刚度与高韧性的微结构复合材料。对帕累托最优设计的进一步分析，使我们能够自动识别已有的韧性增强机制；这些机制此前是通过反复试错或仿生方法发现的。从更广泛的角度看，我们的方法为固体力学之外的多个研究领域提供了计算设计蓝图，例如高分子化学、流体力学、气象学和机器人学。

亮点：实验为具有最佳刚度-韧性权衡的微结构复合材料的计算发现提供了依据。

引言

刚度——抵抗外力所引起变形的能力，以及韧性——抵抗裂纹扩展的能力，是大多数工程材料的两项典型性能，因为这些材料在结构应用中必须抵抗不可恢复的变形，并防止在外部载荷作用下发生灾难性失效。遗憾的是，刚度与韧性往往相互排斥，因为材料要具有韧性，就必须有足够的延展性，能够容忍较长的裂纹，并在断裂前吸收更多能量（*1*）。尽管通过反复试验或仿生方法，人们已在少数微结构复合材料中发现了一些例外（*2–7*），但目前还没有系统设计和制造此类材料的方法。增材制造的最新发展使材料能够以组合方式在空间中排列，从而实现此前无法实际制造的设计，包括高性能结构材料（*8–10*）和功能物体（*7,11*）。此外，计算方法

（例如结构优化）借助数值模拟，能够在参数化设计空间内高效探索最优设计（*12–17*）。然而，所有可靠的计算探索都要求模拟模型在整个设计空间内准确匹配相应的实验测量结果。对于韧性预测而言，这仍然非常困难：尽管当前仿真采用了先进的断裂理论，却仍无法完整模拟结构化材料的断裂过程（*18–20*）。此外，发现兼具高刚度和高韧性的微结构复合材料这一计算过程也颇具挑战，因为两者相互冲突的特性意味着不存在单一的最佳解，而是一组帕累托最优 解。为了获得完整的帕累托前沿，从而能够在最优设计之间轻松做出权衡决策，现有结构优化算法通常会执行大量单目标优化程序，或采用进化策略（*21*）。这两种策略都会带来大量仿真。因此，使用这些方法寻找帕累托最优设计，对模拟器提出了相互矛盾的要求：模拟器既要模拟所有物理细节以保证准确性，又必须运行极快以降低计算成本。此类模拟器需要由该领域的专家精心设计，这通常并不现实，尤其是对于几何结构复杂、材料界面丰富的微结构复合材料。

在此，我们提出一种高效且无需专家知识的方法，可自动发现具有最佳刚度-韧性权衡的微结构复合材料设计（其中刚度以杨氏模量衡量），同时应对上述所有挑战。我们的方法采用三种评估器（图1A）：（1）进行物理测量的力学测试仪；（2）基于有限元法（FEM）的模拟器，以适中的复杂度进行虚拟力学测试；以及（3）基于卷积神经网络（CNN）的预测器，执行机器学习推断。所有评估器均以任意微结构设计为输入，并测量或预测其杨氏模量和

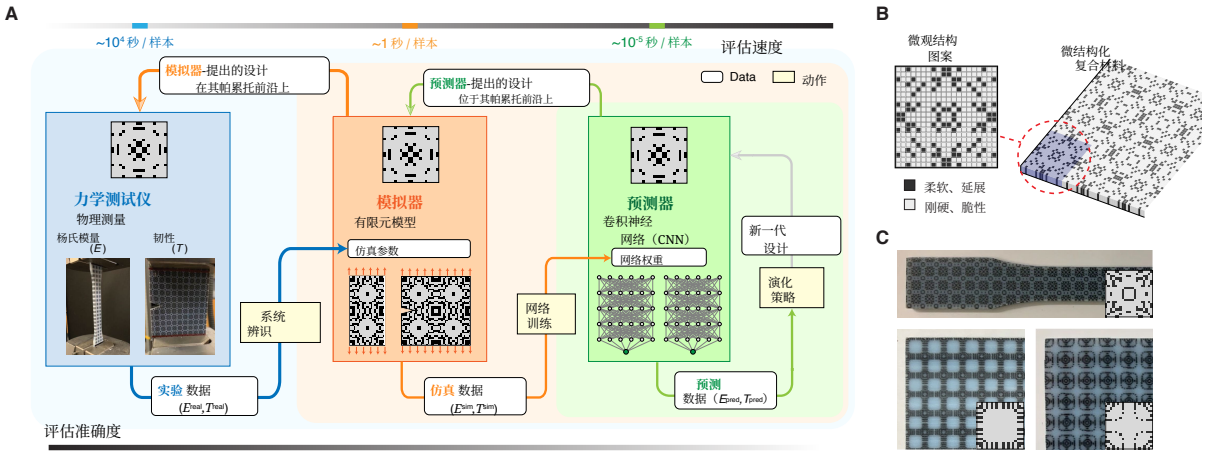


图1. 我们方法的示意图。(A) 所提出的嵌套循环流程的工作流程。我们的系统集成了三种区别性评估器：力学测试仪、基于有限元法的模拟器和基于卷积神经网络的预测器，它们在评估速度和准确性方面各不相同。数据流向由彩色箭头表示。从速度较慢、准确性较高的评估器指向速度较快、准确性较低的评估器的箭头，表示微结构性能数据的传递，以提高后者的准确性。反向箭头表示从速度较快的评估器传递给速度较慢的评估器、供其验证的帕累托最优设计。预测器上的自循环表示一种用于寻找其帕累托前沿的进化策略。**(B)** 微观结构及相应微结构复合材料的示意图。微观结构由一种二维图案定义，该图案展示了两种性质迥异的基材的空间排列。**(C)** 制成的微结构复合材料的样品照片，并标注了相应的微结构图案来源。

韧性作为输出，但评估速度和准确度各不相同。由于试样制备和测试需要大量人工，力学测试仪的运行速度很慢（$\sim 10^4$ 秒/样本），但它能提供微结构设计的真实性能值。与之相对的是预测器，其运行速度极快（$\sim 10^{-5}$ 秒/样本），但结果相对不准确。介于两者之间的是模拟器，鉴于其复杂度适中，运行速度较快（~ 1 秒/样本），准确度也处于中间水平。整个流程以嵌套循环的方式运行。较快的评估器作为代理模型，开展多目标结构优化，并向较慢的评估器提交帕累托前沿上的微结构设计（图1A上部，从右向左）。较慢的评估器准确度更高，因此会验证这些设计的性能，并将其用作额外的训练数据，以提高较快评估器的准确度（图1A下部，从左向右）。随着评估器速度加快

随着预测器在整个过程中变得越来越准确，它们能够为速度较慢的评估器提出质量更高的设计。总体而言，我们的嵌套循环流程有效提高了样本效率，能够发现刚度与韧性权衡最优的微结构设计。模拟器与预测器之间的内循环，与其他最先进的结构优化算法相比，将寻找模拟器帕累托前沿所需的数值模拟次数减少了一个数量级。力学测试仪与模拟器之间的外循环则同时缩小了仿真到现实的差距，并且仅基于几十次物理测量，就发现了经实验验证的帕累托最优微结构设计。值得注意的是，这一成果是借助基于物理的模拟器实现的，该模拟器并未纳入对材料非弹性或断裂的复杂或先进建模。尽管建模能力有限，模拟器仍能自主学习，使其对帕累托最优微结构行为的预测与物理实验相匹配。

结果

本研究中的微结构复合材料由两种丙烯酸基光聚合物构成，一种刚性，另一种柔性，它们在刚度和延展性方面存在差异（表 S2）。微结构的晶胞（我们称之为微结构图案，图1B和图 S1）通过 3D打印以数字方式将基材排列在 20×20规则网格中构建而成（图 1C）。通过拉伸力学测试，在制备试样上测量微结构的杨氏模量和韧性。为获得可靠且在水平和垂直方向上具有可比性的物理测量结果，我们将微结构图案中刚性材料的体积分数限制在 50% 至 85% 之间，并进一步要求其沿轴线和对角线对称（见注释 S1）。即使施加这些限制，微结构的设计空间仍然足够大，使穷举搜索方法难以实施。

作为我们方法的基础，基于有限元法的模拟器采用了简化的

试样几何形状和材料建模。有限元网格由三种类型的单元组成：柔性单元、刚性单元和界面单元（见图2A左侧）。为模拟微结构复合材料的力学测试，每种单元类型均由三个关键材料参数表征：杨氏模量、泊松比和最大应变能密度（即单元发生失效并转变为空隙时的能量密度）。此外，还加入了一个全局阻尼系数，用于捕捉能量耗散并抑制数值振荡，因此公开参数总数为10个。首先对这些公开参数进行优化，使其与基材的实验测量结果相匹配；这些基材分别是采用柔性、刚性和界面材料制备的均质复合材料（*22*）。为尽量减少所需的专家知识，模拟器省略了控制断裂行为的高级材料参数，例如强度面和临界能量释放率（*23–25*）。这避免了繁琐的实现工作，并显著提高了评估吞吐量。采用定制的高性能动态有限元分析显式求解器（见注 S3），在最大吞吐量下，每次杨氏模量评估耗时约0.015 s，每次韧性评估耗时0.2 s（图 S6）。

嵌套循环流程的内循环探索微结构复合材料的最大模拟性能范围（即模拟性能全域），并寻找模拟帕累托前沿上的设计。由于断裂的复杂且不连续的特性，若不进行穷举搜索，几乎不可能找到理论上的帕累托最优微观结构，因此内循环的目标是在有限次数的仿真中发现尽可能大的帕累托前沿。与仅使用模拟器进行结构优化的传统方法不同，我们的方法在内循环中采用基于卷积神经网络的预测器作为代理模型来引导优化过程（详情见注 S3），因此称为神经网络加速多目标优化（NMO）（图2A）。从包含 10 个随机微观结构的数据集（图 S15）开始，NMO 在 500 次迭代中重复以下步骤：

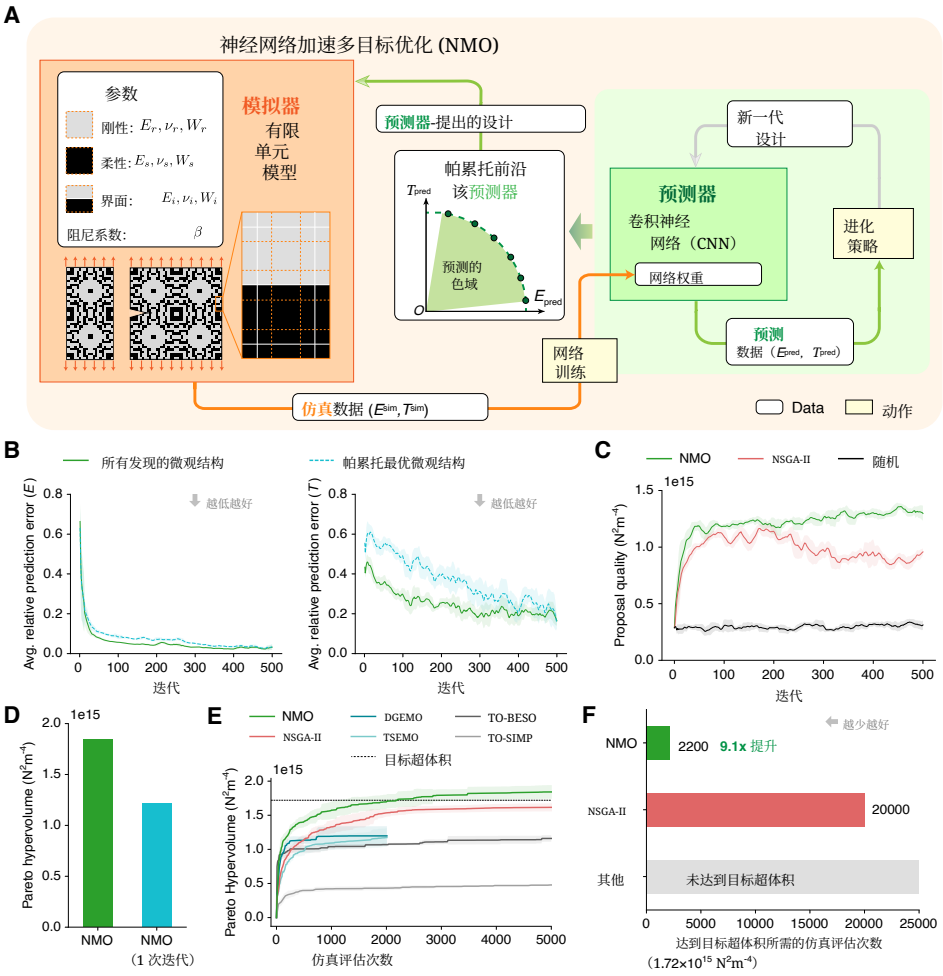


图2. 采用神经网络加速的多目标优化（NMO）所提出工作流程的内循环。（**A**）NMO 工作流程，以图 1A的放大快照示意。模拟器有 10 个公开参数，包括刚性、柔性和界面基材的材料模型参数，以及一个全局阻尼系数。（**B**）NMO 在 500 次迭代中对杨氏模量和韧性的平均预测误差，分别针对所有发现的微观结构以及模拟帕累托前沿上的微观结构计算。阴影区域表示根据相邻数据点估算的标准差。（**C**）在 500 次迭代中，设计提案质量的变化情况，以每次迭代提出的 10 个设计的帕累托超体积为衡量指标。将 NMO 与 NSGA-II 和随机采样策略进行比较。（**D**）比较 NMO 与其简化替代方案（NMO 单次迭代）的最终帕累托超体积；该替代方案仅使用 5,000 个随机设计训练预测器，并仅向模拟器提交一次设计。（**E**）在 5,000 次仿真评估的预算内，比较 NMO 与其他多目标优化算法的帕累托超体积增长。基线包括我们改进的 NSGA-II 算法、拓扑优化（TO）（例如 BESO（*26,27*）和 SIMP（*28*）），以及多目标贝叶斯优化（MOBO）（例如 DGEMO（*29*）和 TSEMO（*30*））。由于超过 24 小时的时间限制，MOBO 算法在 2,000 次仿真后停止。每条实线均为使用五个随机种子重复运行的平均值，每条曲线周围的彩色区域表示标准差。（**F**）NMO 和其他基线算法达到目标超体积所需的评估次数，目标超体积由（**E**）中的黑色虚线标示。

总计（图2A）。首先，使用当前数据集中所有微结构的模拟属性，训练预测器中的两个神经网络，一个用于预测杨氏模量，另一个用于预测韧性。随后，使用一种进化多目标优化算法计算训练后预测器的帕累托前沿（图2A右侧；在我们的研究中，我们使用改进的 NSGA-II 算法（*31*）；见材料与方法）。由于预测器的运行速度比模拟器快几个数量级，因此每次帕累托前沿计算所需的时间几乎可以忽略不计。最后，预测器向模拟器提出 10 个帕累托最优设计，以供验证。经过验证的设计用于扩充微结构数据集，并作为下一次迭代的额外训练数据。

在早期迭代中，由于训练数据有限，预测器的准确度很低。对帕累托最优设计的预测尤其不准确，因为这些设计与初始数据集中的微结构相距甚远。尽管如此，随着算法的推进，预测器通过不断从模拟器获取训练数据而变得更加准确。这一点可以从杨氏模量和韧性的预测误差随迭代次数增加而下降看出（图2B）。有趣的是，帕累托最优微结构的预测误差下降得更快（图2B中的蓝线），这表明重新训练后，预测器在模拟帕累托前沿附近的推断能力显著提高。

与此同时，自学习预测器能够向模拟器提出越来越优的微结构设计；我们通过每次 NMO 迭代中 10 个经验证设计的帕累托超体积（即由帕累托前沿围成的面积）对其进行量化（图2C）。与直接应用 NSGA-II 和随机采样相比，我们的方法在整个算法过程中始终表现出更高的设计提案质量。最终，反复进行的提案—验证工作流程使 NMO 在 500 次迭代后达到 1.84×10^{15} $\mathrm{N^2m^{-4}}$ 的帕累托超体积（不包括随机初始设计在内，共进行了 5,000 次仿真评估）。这显著优于仅通过 5,000 个随机样本训练预测器并验证一次帕累托最优设计（图2D 中的 NMO 一次迭代），后者仅达到我们所得超体积的 66.1%。

设计一次（图2D 中的 NMO 一次迭代），后者仅达到我们所得超体积的 66.1%。

最重要的是，在设计空间内的探索效率方面，NMO 优于当前最先进的优化算法，包括 NSGA-II（*31*）、拓扑优化（TO）（*27,32*）以及其他基于代理模型的算法，例如多目标贝叶斯优化（MOBO）（*29,30*）。如图2E所示，在 5,000 次仿真的预算内，NMO 覆盖的帕累托超体积最大，显著超过 TO 和 MOBO 算法。这表明 NMO 在解决涉及复杂非线性力学性能的结构设计问题方面前景广阔，而 TO 在此类问题上存在严重局限。为进一步比较 NMO 的样本效率，我们运行 NMO 和 NSGA-II，直至达到 $1.72\times10^{15}\ \mathrm{N^2m^{-4}}$ 的目标超体积，然后观察所需的仿真次数（图2F）。NMO 达到目标超体积所需的仿真评估次数少了一个数量级，显示出明显更高的样本效率。除了本研究中的改进的 NSGA-II 外，NMO 还兼容其他用于寻找预测器帕累托前沿的优化算法。实际应用中，建议根据问题特征选择合适的算法，以最大限度地发挥预测器的优势。

完成内循环后，我们从仿真帕累托前沿中选取 8 个帕累托最优微结构设计，制作试样并对其实际性能进行力学测试，由此结束外循环的第 0 轮。然而，由于我们的模拟器未纳入复杂的本构模型或先进的断裂力学，这些微结构设计的模拟属性与物理测量结果存在显著偏差。3D打印机引入的不可预测制造缺陷，以及由边界效应等因素导致的测量误差，进一步加剧了仿真到现实的差距。在这一阶段，精度较低的模拟器通常会倾向于高估其帕累托前沿上微结构的性能，因为优化算法试图利用仿真与现实之间的差异。因此，

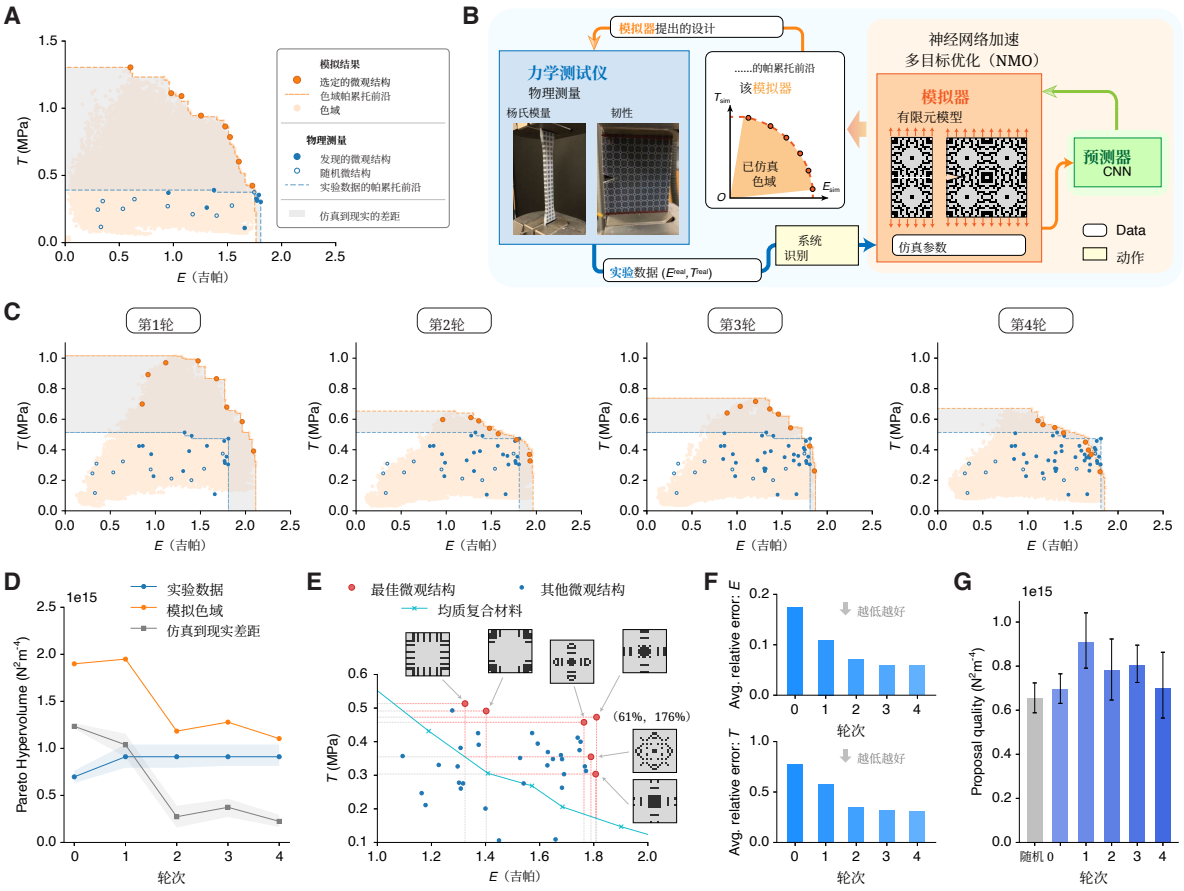


图3. 所提出工作流程的外循环。(A) 第 0 轮结束时发现的微观结构的实验数据和仿真色域。仿真到现实差距定义为实验帕累托前沿与模拟帕累托前沿的帕累托超体积之间的对称差。**(B)** 外循环工作流程示意图，根据图1A进行了简化。**(C)** 外循环四轮中实验数据和仿真色域的演变，仿真到现实差距大幅缩小。**(D)** 外循环四轮中实验数据和仿真色域的帕累托超体积，以及仿真到现实差距的面积。**(E)** 流程发现的具有最优权衡的代表性微观结构。括号中的数字表示，与具有不同刚性材料体积分数的均质复合材料相比，设计在杨氏模量和韧性方面的提升幅度。**(F)** 外循环每一轮中杨氏模量和韧性的平均相对仿真误差。该误差针对所有50种发现的微观结构计算，以展示仿真准确度的提升。**(G)** 整个外循环中模拟器提出的微结构设计质量。提案质量根据每轮提出的8种设计的实验帕累托超体积进行评估。第1轮之前随机选取的10种微观结构（随机）的质量用作参照。

所选微结构设计的实验帕累托前沿远小于模拟帕累托前沿（图3A）。

为弥合仿真到现实的差距，我们流程的外循环通过系统辨识提高模拟器的准确性（图3B）：优化模拟器的公开参数，使模拟输出与所有已发现微结构设计的物理测量结果相匹配（图S7）。我们没有直接依据基材的物理测量结果来设定仿真参数，而是计算出一组参数，使其整体上与多种微结构的属性相匹配。仿真到现实的差距实际上被视为一个黑箱；系统辨识会自动将所有误差来源吸收到模拟器的公开参数中，包括建模、制备和测量误差。这有效弥补了高级材料模型和断裂机制的缺失。我们选择贝叶斯优化（BO）作为系统辨识的求解器；该算法常用于优化具有许多局部最优的复杂非凸函数。为提高稳健性，我们使用多个随机种子实例化 BO 求解器。此外，通过为源微结构分配不同权重，我们能够优先匹配接近帕累托最优的设计，使模拟器能够更好地推广至其他性能出色的设计（见注 S3）。这样，模拟器就能提出更有可能扩展实验帕累托前沿的设计，而不是将建模能力耗费在远非最优的设计上。

外循环采用与内循环相同的提案-验证工作流程。在此，模拟器充当力学测试仪的代理模型，以高样本效率搜索实验帕累托最优微结构设计。第 0 轮之后，我们组装了一个包含 18 个已发现微结构的数据集，其中包括第 0 轮提出的 8 个帕累托最优设计，以及另外 10 个用于系统辨识正则化的随机设计（图3A中的空心蓝色标记）。在随后的每一轮中，我们的流程通过

系统辨识更新模拟器，通过内循环（NMO）搜索模拟帕累托前沿，向力学测试仪提出 8 个帕累托最优微结构设计（图3B），通过物理测量验证其性能，最后将其加入已发现微结构数据集。我们运行外循环 4 轮，并在图3C中展示实验数据和模拟色域的演变。作为定量比较，图3D展示了其帕累托超体积的提升。随着流程推进，实验数据的帕累托前沿逐渐趋近模拟帕累托前沿，仿真到现实差距最终缩小了一个数量级。在流程总计发现的 50 个微结构中，我们选取了实验帕累托前沿上或其附近的 6 个设计作为最佳示例，并在图3E中展示其图案。与在3D打印过程中按不同比例混合基材制备的均质复合材料相比，在杨氏模量相同的情况下，它们的韧性最高提升 175.6%；或在韧性相同的情况下，杨氏模量最高提升 61.0%，展现出明显更优的刚度与韧性权衡。

直观地说，外循环与内循环类似，都是针对模拟器的自动化自学习过程（*33–35*）。由于微结构数据集每轮新增8种微结构，随着时间推移，模拟器会变得更加准确，其相对于真实值物理测量的误差如图3F所示逐渐降低。随着准确度提高，模拟器能够在每轮提出越来越优的微结构设计，其经物理验证的性质所对应的帕累托超体积不断改善（图 3G）便体现了这一点。因此，即使我们使用的是相对简单的模拟器——省略了复杂且先进的建模技术——我们的流程仍能同时弥合仿真到现实差距，并发现具有实验验证的帕累托最优性能的微结构。

从方法论角度来看，我们的数据驱动的计算方法颠覆了标准设计流程：我们不再实施手工设计或仿生的增韧机制来制造合成复合材料（*4,6,36*），而是可以从这些机制中解读

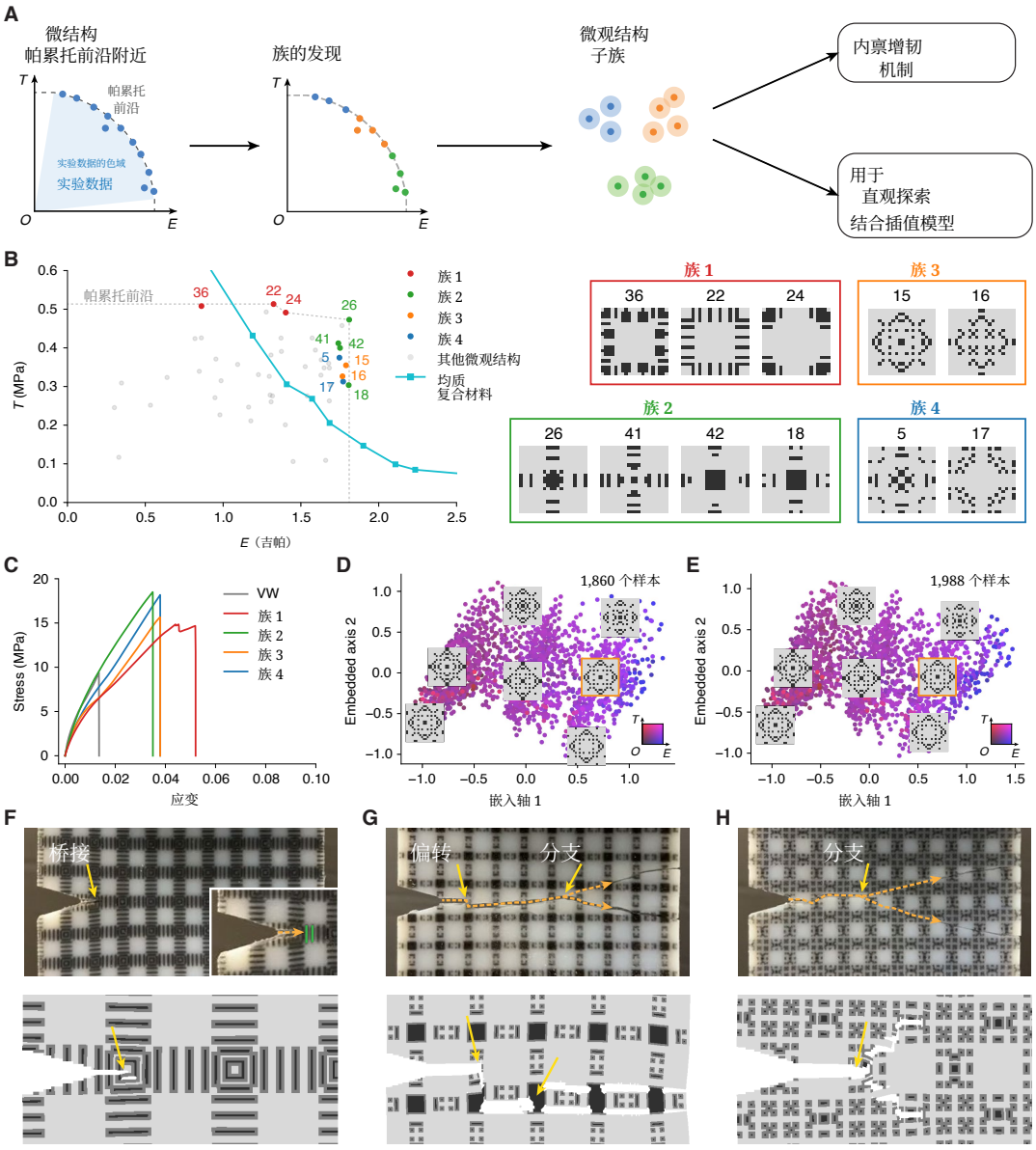


图4. 利用发现的帕累托最优微结构分析族及其内禀增韧机制。(A) 分析流程示意图。将帕累托前沿附近的微结构分组为族，并进一步划分为子族（见注释 S4 和图 S17）。验证各族的力学性能，同时在低维嵌入空间中研究各子族的图案变化。**(B)** 四个族的种子微结构及其与均质复合材料相比的力学性能。**(C)** 从力学测试中收集的各族微结构的代表性应力-应变曲线。**(D 和E)** 示例子族在插值之前**(D)**和之后**(E)**的 Isomap嵌入空间。图中展示了一些代表性图案。微观结构性质以颜色编码（杨氏模量：蓝色通道；韧性：红色通道）。种子图案以橙色方框标出。**(F-H)** 实验和仿真中观察到的增韧机制：桥接、偏转和分支。快照取自族 1 **(F)**、族 2 **(G)** 和族 3 **(H)** 中的验证微结构。

即使没有任何先验知识，也能自动发现帕累托最优设计（图4A）。为此，我们首先注意到，靠近实验帕累托前沿的微结构可以聚类为四个主要族，同一族中的设计在结构上相似（*13*）（图4B）。每个族的代表性应力-应变曲线表明，与刚性基材相比，这些设计在保持杨氏模量相当的同时，显著提高了抗断裂性，从而实现了最佳的刚度-韧性权衡（图4C）。因此，微观结构族使我们能够按组而非针对单个设计提取并阐释增韧机制。为验证这些已发现的族，我们将实测微结构视为种子，并通过密集采样为每个族生成局部性能范围，从中选取每个族中靠近帕累托前沿的三个验证样本，并使用力学测试仪进行验证（图 S16 和表 S13）。此外，为直观地探索外观和性能相似的微结构，我们利用训练充分的模拟器，为实验帕累托前沿附近的每个种子设计生成局部形态空间，并使用 Isomap（*37*）计算低维嵌入空间（图4D）。我们还为嵌入空间中相邻的图案建立插值模型（见注释 S4 和图 S16），以生成密集采样中可能遗漏的图案，最终完善嵌入空间（图4E）。

通过分析测试试样和模拟视频，发现的微观结构族使我们能够成功识别一些广为人知的韧性增强机制，例如桥接、偏转和分支（*18,38–41*）（图4F-H）。这些机制能够抵抗裂纹扩展，并防止形成均质复合材料中观察到的洁净断裂（图 S33）。其显著程度因软材料的分布而异。桥接主要见于族 1，其中软材料平行条带通过弹性变形吸收更多能量，并通过裂纹钝化引入额外的抗应力能力，从而减缓裂纹扩展（图4F和图 S22）。族 1 和族 2 中均可观察到偏转，因为

它们由能够承受较大应变并扰乱裂纹的软材料块构成（图4G和图 S22-23）。相反，分支效应在族 3 和族 4 中占主导地位，这些族的特点是软材料元素分散分布。在这种情况下，由于软材料的捕获效应，裂纹的传播能以分支裂纹的形式耗散（*42*）（图4H和图 S24-25）。此外，我们还观察到其他不明显归属于三种主要类别的增韧机制。例如，一些孤立的软材料元素被布置在微结构图案的边缘（图 S24），位置可能靠近缺口尖端，也可能位于裂纹扩展路径上。尽管这些元素没有排列成条形结构或圆形等形状，仍能有效耗散能量并延缓裂纹扩展（*1*）。总体而言，在已发现的各族中，软材料元素通常通过裂纹钝化增强韧性，而刚性材料元素则相互连接，以维持杨氏模量（见注释 S4）。最重要的是，我们的流程能够自动发现有助于平衡杨氏模量与韧性的关键软、刚性元素，而无需预先掌握现有增韧机制。这些结构特征是通过完全计算的方法生成的，而非仿生设计或实验试错。因此，它们或可为新的物理见解开辟道路，前提是断裂力学专家进一步开展表征与分析。

此外，我们的计算流程具有足够的可扩展性，能够解决更高设计分辨率下的帕累托最优微结构发现问题。例如，我们运用该流程，发现了各向同性多孔材料中刚度与孔隙率之间的帕累托前沿（制备、实验和仿真的详细信息见注释 S5）。本案例中的微观结构图案由 182×104 网格表示，构成了大得多的设计空间。尽管如此，我们的流程在发现帕累托前沿时仍保持出色的样本效率（图 S29）。此外，我们的方法还能识别出性能在理论上达到 Hashin-Shtrikman 上界（*43,44*）所规定最优值的设计（图 S28）。

讨论

总之，我们提出了一种通用、可扩展且高效的计算方法，无需专家知识即可自动发现刚度与韧性之间具有最优权衡的微结构化复合材料。我们在数据驱动的提案验证框架中整合了三种不同的评估方法——实验测量、数值模拟和机器学习推断。我们方法的核心是一种嵌套循环工作流程：利用快速、近似的评估器作为代理模型，并逐步提高其准确性，从而提升缓慢但精确的评估器的样本效率。在发现模拟帕累托前沿时，我们的流程实现了更高的样本效率，所需仿真次数比其他最先进的结构优化算法少一个数量级。借助数据驱动的自学习模拟器，我们仅用几十次物理测量就发现了杨氏模量与韧性的实验帕累托前沿。此外，我们的自动化策略能够识别出占主导地位的增韧机制；这些机制最初是由领域专家基于直觉或仿生，并通过反复试验发现的。这颠覆了传统的复合材料设计方法，因为增韧机制源自帕累托最优设计。最重要的是，我们的流程避免了开发先进仿真模型所需的耗时费力的工作，也消除了对韧性增强方面任何先验知识的需求。因此，我们的流程可直接应用于远超固体力学领域的各种权衡问题，尤其适用于仿真难以准确反映现实的领域，例如高分子化学（*45*）、计算生物学（*46, 47*）、流体力学（*48, 49*）、气象学（*50,51*）和机器人学（*52*）。

材料与方法

试样制造

所有均质复合材料和微结构复合材料均使用 Stratasys Object 260 Connex 多材料 3D打印机制造，其在 x、 y 和 z 方向上的标称分辨率分别为 300 dpi、600 dpi 和 800 dpi。VeroWhitePlus (VW+) 和 TangoBlackPlus (TB+) 这两种丙烯酸基光聚合物用作基材。模型的朝向通过图 S2中的坐标轴示意。具体而言，微结构图案位于 x-y平面上，并沿 z 方向延伸，其中模型的最长尺寸与 y 方向对齐。就打印试样的尺度而言，微结构图案中的每个像素计算为边长为 260 μm 的正方形，这是对 x 和 y 方向上液滴尺寸最小公倍数的合理近似。

为实现液滴级控制，我们采用了打印机支持的体素打印方法。在体素打印模式下，液滴配置在本地预先计算，并实时发送至打印机。这使得打印机能够按给定比例混合基材，打印均质复合材料。对于任意体积分数的刚性基材（记为 ϕ），我们通过概率性地将基材分配给液滴来创建打印模型，其中每个液滴以 ϕ的概率被分配为刚性材料。由于基材可相互混溶，打印时通过混合液滴来打印均质复合材料。我们打印了 ϕ = 0.5、0.6、0.65、0.7、0.75、0.8、0.85 和 0.9 体积分数的均质复合材料作为基准。

物理测量

进行杨氏模量测量时，所有测试试样均按照 ASTM D638 推荐的尺寸打印。由于非均质复合材料没有韧性测量的标准参考，我们设计了图 S2 所示的试样。韧性

试样的尺寸为 104×52×3.2 mm。打印了一个长度为 10.4 mm 的缺口，相当于试样宽度的 20%。随后，使用铣床切出一个深度为 7.8 mm 的三角形切口，相当于试样宽度的 15%。两侧夹持区的长度均为 25 mm，中间留出 54 mm 的标距区。

打印完成后，仔细清洁所有试样以去除支撑材料，并在室温下晾干。随后使用紫外光后固化工艺对样本的顶面和底面进行处理，以实现更均匀的固化。此步骤在 Fusion UV 系统中进行，传送带速度保持恒定，约为 2 cm/s。此外，使用一把新的剃刀片清理每个韧性试样上打印出的缺口，以避免缺口尖端残留的支撑材料造成影响。

所有试样均使用最大载荷为 150 kN 的 Instron 5984 万能试验机进行测试。杨氏模量测量的拉伸试验按照 ASTM D638 进行。每种复合材料测试四个试样，并对结果取平均值。在韧性测试方面，目前没有针对非均质复合材料的现行标准。因此，我们采用了以下拉伸试验方法：以 2 mm/min 的速度拉伸试样。一旦裂纹贯穿整个试样，便停止数据采集。由于微结构复合材料中的裂纹扩展呈非线性，韧性定义为单位体积吸收和耗散的能量，即应力-应变曲线下的面积（*2*）。每种复合材料至少测试四个试样，其中至少三个表现出最常见且一致断裂行为的试样被视为有效试样。对这些有效试样的韧性测量结果取平均值，并据此选取一条具有代表性的应力-应变曲线。为保持一致性，测试均质复合材料时也遵循相同的流程。图 S8 展示了若干代表性微结构在韧性测试中的实测应力-应变曲线。每种微结构设计均制作并测量四个试样（以颜色区分）。相同

微结构图案的应力-应变曲线总体上具有一致性；杨氏模量的标准差始终低于均值的 5 %，而韧性的标准差低于均值的 20%。

界面工程

刚性和柔性基材之间的界面通过在界面区域应用精心设计的液滴图案进行工程化处理，即在相邻像素的共享边和顶点周围设置宽度为半个像素的区域（图 S3）。液滴图案近似于基材的 50/50 混合物，并根据共享边的方向而变化。基于图 S3 中定义的坐标，沿 x 方向的边（包括顶点）采用交替列排列液滴，而沿 y 方向的边（不包括顶点）采用交替行排列液滴（见注 S1）。在 3D打印过程中，液滴图案在 z 方向保持一致。图 S4 比较了采用工程化界面、非工程化界面和打印机默认界面制造的 5 个随机微结构的性能。结果表明，我们的界面工程方法在打印试样的杨氏模量与韧性之间实现了最佳权衡。此外，在仿真中，工程化界面采用界面材料进行建模，并计为第三种基材。

仿真

该模拟器包含一对基于有限元法（FEM）的虚拟测试器，可根据微结构图案预-测杨氏模量、韧性和非线性应力-应变响应。所有三种基材（VW+、TB+ 和界面材料）均采用 Neo-Hookean 材料模型，并置于二维设置中（详情见补充材料）。有限元网格表示制造试样的简化几何结构。为模拟刚性材料与柔性材料之间的界面，有限元网格中的微观结构单元被上采样两倍，并将位于界面处的单元指定为界面材料（图 S5）。狄利克雷边界

条件施加于拉伸方向上的位移。时间积分采用显式求解器，因为它通常更适用于动态模拟，且实现简单。材料黏度通过数值阻尼建模，并由全局阻尼系-数控制。对于韧性，通过对新胡克模型推导出的各单元应变能密度设定阈值，来模拟裂纹萌生和扩展；当应变能密度超过特定材料的应变能密度阈值时，该单元即被移除。当标距应力降至极限强度的 20% 以下时，仿真停止，并通过应力-应变曲线下方的面积计算韧性。对于杨氏模量，施加较小的恒定应变，并使网格在固定数量的时间步内达到平衡态。随后根据测得的标距应力计算杨氏模量。虚拟测试器的算法细节和参数值见补充材料。

我们的模拟器采用高性能 Taichi 编程语言（*53*）实现，以充分利用图形处理器（GPU）的强大加速能力。为进一步提高吞吐量，我们将多个微结构批量处理并同时进行模拟，从而最大限度地提高图形处理器利用率（图 S6）。

系统辨识

微观结构的模拟行为取决于模拟器中的若干可调参数，包括基材的杨氏模量、泊松比和应变能密度阈值，以及全局阻尼系数。通过系统辨识优化这些参数，使模拟输出与物理测量尽可能吻合。在此，目标函数考虑了多种误差来源，包括建模误差（Neo-Hookean 本构模型和简化的断裂机制）、制备误差（来自 3D打印和试样制备）以及测量误差（设备的不准确性和环境中的其他随机影响）。对于杨氏模量，在一组复合材料上最小化平均相对预测误-

差，这组复合材料称为系统辨识数据集。对于韧性，最小化目标是韧性值和应力-应变曲线的平均相对预测误差的组合，其中曲线的相对误差定义为模拟与实验应力-应变曲线之间的面积除以实验韧性。为充分利用虚拟测试器的建模能力，我们将杨氏模量模拟与韧性模拟的参数值分开设置。此外，对数据集中的微结构赋予不同权重，以反映其在系统辨识中的优先级（图 S9）。首先，越接近实验帕累托前沿的微结构权重越大，因为我们主要关注接近帕累托最优的设计。其次，为减轻数据集中性能分布不均可能造成的偏差，对物理测量值彼此过于接近的微结构簇施加权重惩罚。系统辨识更详细的数学表述见补充材料。我们采用批量贝叶斯优化（贝叶斯优化）求解该最小化问题，因为它具有出色的数据效率，并且适用于我们的批量模拟机制。贝叶斯优化算法使用不同的随机种子重复运行 5 次，随后选取最佳解（实现细节见注释 3）。

神经网络加速多目标优化（NMO）

我们开发了 NMO算法，以探索微观结构的设计空间，并以高样本效率发现帕累托最优样本。探索从作为第一代的随机生成微观结构开始。不同于通过变异和交叉操作计算子代的 NSGA-II算法，NMO 采用预测器——其中包含一对残差卷积神经网络（*54*）——作为代理模型，以引导下一代的提出（详见补充材料）。两个网络均由相同的架构模板实例化而成，但用于韧性的网络要大得多（图 S10）。这使其具有更强的

学习能力，能够捕捉从微结构图案到韧性的复杂映射关系。在每次迭代中，网络均基于所有已发现微观结构的模拟结果进行训练。根据其预测，运行改进的 NSGA-II 算法，以提出可能扩展当前色域超体积的帕累托最优样本。所提出的样本在其性能经模拟器验证后，便成为下一代微观结构。

NMO中的改进的 NSGA-II 算法具有自定义变异算子和额外的基于哈希表的去重机制。该自定义变异算子在子代生成中替代了原有的变异算子和交叉算子。它以概率方式在不同尺度上改变微结构图案，包括翻转单个像素、绘制栅格化线条，或覆盖一个矩形像素区域。随后，对变异后的图案施加对称性和结构约束。基于哈希表的去重机制可防止已被发现的微结构被加入下一代，并且比在现有图案中进行穷举匹配更快。NMO算法将发现的微结构存储在全局哈希表中，而改进的 NSGA-II 算法的每次独立运行则使用单独的哈希表。更多实现细节见补充材料。

需要指出的是，内循环和外循环的验证是分别进行的。图2中评估了 NMO 在内循环中的表现，而对于外循环，我们直接采用改进的 NSGA-II 进行验证，并生成图3中的结果。尽管 NMO 是独立评估的，但由于我们的模块化实现可以非常轻松地切换优化算法，因此 NMO 很容易应用于计算发现流程。

物理验证的样本选择

在外循环的每一轮中，我们都会选取若干接近模拟帕累托前沿的微结构进行物理验证（图 S14）。选择算法分为两个阶段。首先，为了找出足够接近帕累托前沿的微结构，我们根据帕累托支配关系为每个微结构赋予一个等级。按照我们的定义，第 1 级包含整个色域帕累托前沿上的微结构，而第 i 级则包含在排除较高等级微结构后的部分色域帕累托前沿上的微结构。若某个微结构满足以下三个条件，则将其列为筛选候选项：（1）等级为第 3 级或更高；（2）其模拟性能权衡优于均质复合材料的实际性能权衡；（3）其韧性高于色域中杨氏模量最大的微结构。其次，我们从候选算法中选出 8 个微结构，以覆盖宽广的力学性能范围，并提高发现的微观结构的多样性。为此，我们根据候选微结构的归一化力学性能，将其划分为 8 个径向分箱。随后，我们求解一个组合优化问题：在每个分箱中选出一个微结构，使选定的微观结构与已发现的微观结构彼此之间尽可能不同。我们采用束搜索算法求解该优化问题，该算法能在几秒内找到近似最优解。在补充材料中，我们对选择算法进行了更详细的说明，包括组合优化问题的数学表述。

A微观结构族与增韧机制分析 s

嵌套循环流程终止后，将实验杨氏模量与韧性之间具有近最优权衡的11种微结构归为四个族（图4B）。我们将这些微结构称为种子微结构。它们被用于生成

每个族中更多的图案变体，并验证其力学性能的相似性是否得以保持。该过程分为以下几个步骤。首先，通过对所有近帕累托最优微结构进行系统辨识，在每个族中获得一个家族特定模拟器。在这种情况下，为正则化起见，赋予种子微结构较大的相同权重，而赋予族外的其他微结构较小的相同权重。与第4轮的全局模拟器相比，这类家族特定模拟器对该族种子微结构的预测误差要低得多（表 S7）。随后，根据家族特定模拟器的模拟结果，我们围绕种子微结构运行密集的进化采样算法，为每个族生成一个局部形态空间。该采样算法类似于改进的 NSGA-II 算法，但将变异后的图案限制在与种子微结构最多相差16个像素的范围内。该过程既不通过锦标赛选择父代，也不在种群中进行竞争，因此目标仅仅是尽可能密集地生成一个色域。最后，从所得局部形态空间中选出三种近帕累托最优微结构进行物理验证（图 S16）；其物理测量结果表明，它们与种子微结构相当（表 S13）。因此，我们确认，所发现的族中包含图案和力学性能相似的微结构。

为了直观展示各微结构家族中的图案变化，我们将每个家族划分为若干子族：从每个种子微结构周围 16 像素半径内提取微结构，因此同一个微结构可以出现在多个子族中。对于每个子族，我们使用 Isomap（*37*）为所有微结构图案计算二维嵌入空间。我们采用一阶Wasserstein距离（*55*），即推土机距离（EMD），而非欧几里得距离，作为微结构图案之间的距离度量（图 S18），因为 EMD 会考虑微结构图案中的像素分布，能更好地反映几何形状的差异。图S17和B1展示了 4 个族中 11个子家族的嵌入空间可视化结果

此外，我们为 Isomap 嵌入空间中相邻的微结构建立了插值模型，以生成密集采样中可能缺失的更多微结构（图 S17）。我们的方法基于最优传输理论中的 Wasserstein 重心（*56,57*），该方法已被证明是一种适用于体素化形状的稳健且直观的插值方案（*58*）。通过这种方式，我们平均为每个子族生成了约 5% 更多的微结构图案，并利用这些图案优化 Isomap 嵌入空间。图 S21、S31 和 S32 展示了插值前后嵌入空间的对比。EMD 和我们所用插值方案的数学公式见注释 S4。

微观结构族的识别简化了对内禀增韧机制的分析，这些机制可实现杨氏模量与韧性之间的近最优权衡。由于每个族中的微观结构具有相似的图案和性能，它们通常具有共同的结构特征，从而增强抗断裂性。因此，我们利用各族中种子微结构和验证微结构的视频记录，观察并解读几种主要的增韧机制。对于每种微观结构，我们都将家族特定模拟器生成的仿真视频与力学测试的实际影像进行验证，以确认模拟器正确捕捉了这些机制。补充材料中详细讨论了各微观结构族的代表性机制。

参考文献与注释

1. R. O. Ritchie，强度与韧性之间的矛盾。《自然·材料》**10**，817–822（2011）。

2. G. Mayer，刚性生物系统作为合成复合材料的模型。《科学》**310**，1144– 1147（2005）。

3. C. Sanchez，H. Arribart，M. M. G. Guille，仿生学与生物启发：设计创新材料与系统的工具。《自然·材料》**4**，277–288（2005）。

4. L. S. Dimas, G. H. Bratzel, I. Eylon, M. J. Buehler，受矿化天然材料启发的韧性复合材料：计算、3D打印与测试。《先进功能材料》**23**，4629–4638（2013年）。

5. M. A. Meyers, J. McKittrick, P.-Y. Chen，结构生物材料：力学与材料关联的关键作用。《科学》**339**，773–779（2013年）。

6. Z. Yin, F. Hannard, F. Barthelat，抗冲击珍珠层仿生透明材料。《科学》**364**，1260–1263（2019年）。

7. N. A. Dudukovic, E. J. Fong, H. B. Gemeda, J. R. DeOtte, M. R. Cer´on, B. D. Moran, J. T. Davis, S. E. Baker, E. B. Duoss，细胞流体学。《自然》**595**，58–65（2021年）。

8. T.A.Schaedler, A. J. Jacobsen, A. Torrents, A. E. Sorensen, J. Lian, J. R. Greer, L. Valdevit, W. B. Carter，《超轻金属微晶格》。《科学》《科学》**334**，962–965（2011）。

9. X. Zheng, H. Lee, T. H. Weisgraber, M. Shusteff, J. DeOtte, E. B. Duoss, J. D. Kuntz, M. M. Biener, Q. Ge, J. A. Jackson，等，《超轻超刚机械超材料》。*344*，1373–1377（2014）。

10. M.-S. Pham, C. Liu, I. Todd, J. Lertthanasarn，《受晶体微观结构启发的耐损伤架构材料》。《自然》《自然》**565**，305–311（2019）。

11. M. Wehner, R. L.Truby, D. J. Fitzgerald, B. Mosadegh, G. M. Whitesides, J. A. Lewis, R. J. Wood，面向全柔性自主机器人的集成设计与制造策略。《自然》**536**，451–455（2016年）。

12. N. Aage, E. Andreassen, B. S. Lazarov, O. Sigmund，面向结构设计的十亿体素计算形态生成。《自然》**550**，84–86（2017年）。

13. D. Chen, M. Skouras, B. Zhu, W. Matusik，极值微结构族的计算发现。《科学进展》**4**，eaao7005（2018年）。

14. K. T. Butler, D. W. Davies, H. Cartwright, O. Isayev, A. Walsh，分子与材料科学中的机器学习。《自然》**559**，547–555（2018年）。

15. G. X. Gu, C.-T. Chen, D. J. Richmond, M. J. Buehler，利用机器学习进行仿生层级复合材料设计：仿真、增材制造与实验。《材料视野》**5**，939–945（2018年）。

16. O. Sigmund, K. Maute，拓扑优化方法。《结构与多学科优化》**48**，1031–1055（2013年）。

17. J. Wu, O. Sigmund, J. P. Groen，多尺度结构的拓扑优化：综述。《结构与多学科优化》**63**，1455–1480（2021年）。

18. Y. Yang, Z. Song, G. Lu, Q. Zhang, B. Zhang, B. Ni, C. Wang, X. Li, L. Gu, X. Xie，等，六方氮化硼中的内禀增韧和稳定裂纹扩展。《自然》**594**，57–61（2021年）。

19. A. J. D. Shaikeea, H. Cui, M. O’Masta, X. R. Zheng, V. S. Deshpande，力学超材料的韧性。《自然·材料》第1–8页（2022年）。

20. J. U. Surjadi, Y. Lu，高韧性超材料的设计准则。《自然·材料》第1–2页（2022年）。

21. G. R. Zavala, A. J. Nebro, F. Luna, C. A. Coello Coello，应用于结构优化的多目标元启发式算法综述。结构与多学科优化**49**，537–558（2014年）。

22. M. Hossain, C.-J. Hsueh, B. Bourdin, K. Bhattacharya，非均质介质的有效韧性。《力学与固体物理学杂志》**71**，15–32（2014）。

23. A. Kumar, O. Lopez-Pamies，弹性体自愈合断裂的相场方法：一种能够充分考虑断裂起始的模型，并应用于一类引人注目的实验。《理论与应用断裂力学》**107**，102550（2020）。

24. B. Bourdin, G. A. Francfort, J.-J. Marigo，断裂变分方法。《弹性学杂志》**91**，5–148（2008）。

25. Y. Jia, O. Lopez-Pamies, X. S. Zhang，通过拓扑优化控制结构的断裂响应：从延缓断裂起始到最大化韧性。《力学与固体物理学杂志》**173**，105227（2023）。

26. O. M. Querin, G. P. Steven, Y. M. Xie，使用双向算法的进化结构优化（eso）。《工程计算》（1998）。

27. X. Huang, Y. Xie，位移荷载下非线性结构的拓扑优化。《工程结构》**30**，2057–2068（2008）。

28. M. P. Bendsøe，作为材料分布问题的最优形状设计。结构优化**1**，193–202（1989）。

29. M. K. Lukovic，Y. Tian，W. Matusik，基于多样性引导、采用批量评估的多目标贝叶斯优化。第*34*届神经信息处理系统大会（*NeurIPS 2020*）（2020）。

30. E. Bradford、A. M. Schweidtmann、A. Lapkin，采用高斯过程、谱采样和遗传算法的高效多目标优化。《全球优化杂志》**71**，407–438（2018年）。

31. K. Deb、A. Pratap、S. Agarwal、T. Meyarivan，一种快速且精英式的多目标遗传算法：NSGA-II。IEEE《进化计算汇刊》**6**，182–197（2002）。

32. O. Sigmund，用 MATLAB 编写的 99 行拓扑优化代码。《结构与多学科优化》**21**，120–127（2001）。

33. M. Schmidt、H. Lipson，从实验数据中提炼自由形式的自然定律。《科学》**324**，81–85（2009）。

34. S. Shalev-Shwartz、等，在线学习与在线凸优化。《机器学习基础与趋势》**4**，107–194（2011）。

35. Q.Xie, M.-T. Luong, E. Hovy, Q. V. Le, 《*IEEE/CVF*计算机视觉与模式识别会议论文集》(2020), 第 10687–10698 页。

36. U. G. Wegst, H. Bai, E. Saiz, A. P. Tomsia, R. O. Ritchie，仿生结构材料。《自然·材料》**14**，23–36（2015）。

37. M. Balasubramanian, E. L. Schwartz, J. B. Tenenbaum, V. de Silva, J. C. Langford，Isomap算法与拓扑稳定性。《科学》**295**，7–7（2002）。

38. G. Bao, Z. Suo，关于裂纹桥接概念的评论。《应用力学评论》**45**, 355-366 (1992).

39. G. X. Gu, M. Takaffoli, M. J. Buehler，仿生复合材料的层级增强抗冲击性。《先进材料》**29**, 1700060 (2017年).

40. S. Suresh，过载后疲劳裂纹扩展迟滞的微观机制。《工程断裂力学》*En-gineering Fracture Mechanics***18**，577–593（1983）。

41. K. M. Flores，R. H. Dauskardt，块体金属玻璃中稳定裂纹尖端损伤区导致的韧性增强。《材料学报》*Scripta materialia***41**，937–943（1999）。

42. M. Ramulu，A. Kobayashi，裂纹曲折与分支的力学——动态断裂分析。《动态断裂》*Dynamic fracture*，第61–75页（1985）。

43. Z. Hashin，《非均质介质力学行为理论》*Theory of Mechanical Behavior ofHeterogeneous Media*（宾夕法尼亚大学土木与机械工程学院，1963年）。

44. Z. Hashin，S. Shtrikman，多相材料弹性行为理论的变分方法。《力学与固体物理学杂志》*Journal of the Mechanics and PhysicsofSolids* **11**，127–140（1963）。

45. B. J. Shields, J. Stevens, J. Li, M. Parasram, F. Damani, J. I. M. Alvarado, J. M. Janey, R. P. Adams, A. G. Doyle，贝叶斯反应优化作为化学合成的工具。《自然》**590**，89–96（2021年）。

46. J. Jumper, R. Evans, A. Pritzel, T. Green, M. Figurnov, O. Ronneberger, K. Tunyasuvu- ˇ nakool, R. Bates, A. Z´ıdek, A. Potapenko，等，利用 AlphaFold 高精度预测蛋白质结构。《自然》**596**，583–589（2021年）。

47. M. Baek, F. DiMaio, I. Anishchenko, J. Dauparas, S. Ovchinnikov, G. R. Lee, J. Wang, Q. Cong, L. N. Kinch, R. D. Schaeffer，等，使用三轨神经网络准确预测蛋白质结构和相互作用。《科学》**373**，871–876（2021年）。

48. D. Kochkov, J. A. Smith, A. Alieva, Q. Wang, M. P. Brenner, S. Hoyer，机器学习加速的计算流体动力学。《美国国家科学院院刊》**118**（2021年）。

49. M. Raissi, A. Yazdani, G. E. Karniadakis，隐藏流体力学：从流动可视化中学习速度场和压力场。《科学》**367**, 1026–1030 (2020).

50. P. Bauer, A. Thorpe, G. Brunet，数值天气预报的静悄悄革命。《自 然》**525**, 47–55 (2015).

51. T. Schneider, J.Teixeira, C. S. Bretherton, F. Brient, K. G. Pressel, C. Sch¨ar, A. P. Siebesma，气候目标与云的未来计算。《自然·气候变化》**7**, 3–5 (2017年).

52. J. Hwangbo, J. Lee, A. Dosovitskiy, D. Bellicoso, V. Tsounis, V. Koltun, M. Hutter, 为足式机器人学习敏捷、动态的运动技能。《科学·机器人学》**4**, eaau5872(2019).

53. Y. Hu, T.-M. Li, L. Anderson, J. Ragan-Kelley, F. Durand，Taichi：一种用于空间稀疏数据结构高性能计算的语言。*ACM*图形学汇刊（*TOG*）**38**，1–16（2019）。

54. K. He, X. Zhang, S. Ren, J. Sun，*IEEE*计算机视觉与模式识别会议论文集（2016），第770–778页。

55. C. Villani，最优传输专题，第58卷（美国数学学会，2003）。

56. M. Agueh, G. Carlier，Wasserstein空间中的重心。*SIAM*数学分析杂志**43**，904–924（2011）。

57. L. V. Kantorovich，苏联科学院学报（新系列）（1942），第 37 卷，第 199–201 页。

58. J. Solomon、F. De Goes、G. Peyr´e、M. Cuturi、A. Butscher、A. Nguyen、T. Du、L. Guibas，卷积 Wasserstein 距离：几何域上的高效最优传输。*ACM* 图形学汇刊（*TOG*）**34**，1–11（2015）。

59. G. X. Gu、F. Libonati、S. D. Wettermark、M. J. Buehler，《印刷自然：揭示珍珠层矿物桥的作用》。《生物医学材料力学行为杂志》**76**，135–144（2017年）。

60. M. Mirzaali、A. H. de la Nava、D. Gunashekar、M. Nouri-Goushki、R. Veeger、Q. Gross- man、L. Angeloni、M. Ghatkesar、L. Fratila-Apachitei、D. Ruffoni、等，《通过多材料 3D 打印制备的仿生功能梯度软硬复合材料的力学性能》。《复合材料结构》**237**，111867（2020）。

61. E. Sifakis、J. Barbic，《三维可变形固体的有限元模拟：理论、离散化与模型降阶实用指南》。*ACM SIGGRAPH 2012* 课程 （2012），第 1–50 页。

62. P. Kelly，《固体力学第一部分：固体力学导论》。固体力学讲义第 241–324 页（2013年）。

63. J. Gonz´alez, Z. Dai, P. Hennig, N. Lawrence，人工智能与统计学 （PMLR, 2016），第 648–657 页。

64. M. P. Bendsøe, N. Kikuchi，使用均匀化方法生成结构设计中的最优拓扑。《计算机辅助应用力学与工程方法》**71**，197–224（1988）。

65. M. P. Bendsoe、O. Sigmund，《拓扑优化：理论、方法与应用》（Springer Science & Business Media，2003）。

66. J. Knowles，Parego：一种用于昂贵多目标优化问题的在线景观近似混合算法。《style id='1'>IEEE Transactions on Evolutionary Computa- tion**10**，50–66（2006）。

67. D. P. Kingma, J. Ba，《Adam：一种随机优化方法》。*arXiv* 预印本 *arXiv:1412.6980*（2014）。

68. A. Dosovitskiy, L. Beyer, A. Kolesnikov, D. Weissenborn, X. Zhai, T. Unterthiner, M. De- hghani, M. Minderer, G. Heigold, S. Gelly，等，《一张图像胜过 16×16 个词：用于大规模图像识别的 Transformer》。*arXiv* 预印本 *arXiv:2010.11929*（2020）。

69. L. Xia, D.Da, J.Yvonnet，《用于最大化准脆性复合材料抗断裂性的拓扑优化》。《计算机辅助应用力学与工程方法》**332**，234–254（2018年）。

70. J. B. Russ, H. Waisman，《脆性断裂抗力的拓扑优化》。《计算机辅助应用力学与工程方法》**347**，238–263（2019）。

71. Y. Hu, L. Anderson, T.-M. Li, Q. Sun, N. Carr, J. Ragan-Kelley, F. Durand, DiffTaichi：用于物理仿真的可微编程。*arXiv*预印本 *arXiv:1910.00935*（2019年）。

72. L. Xia, F. Fritzen, P. Breitkopf，弹塑性结构的进化拓扑优化。《结构与多学科优化》**55**，569–581（2017年）。

73. Y. Mao, Q. He, X. Zhao，利用生成对抗网络设计复杂结构化材料。《科学进展》**6**，eaaz4169（2020）。

致谢：作者感谢来自巴斯夫的 B. von Vacano、R. Konradi、K. Stoll、H. H. Goetzke、R. de Oliveira、L.Chen 和 F. Zhang，来自马萨诸塞大学阿默斯特分校的 A. Lesser，来自缅因大学的 Y. C. Yang，来自东北大学的 R. Bai，以及 Y. Mao

以及来自麻省理工学院的 S. Lin 参与讨论。我们感谢来自达特茅斯学院的 B. Zhu、来自 Inkbit 的 D. Chen，以及来自麻省理工学院的 M. Foshey、L. Makatura、M. Guo 和 R. Su 参与讨论并校对。我们感谢来自麻省理工学院的 S. Hudson 提供机械测试设备方面的支持。我们感谢来自麻省理工学院的 M. K. Lukovi´c 和 Y. Tian 实现 DGEMO 算法。我们还感谢 R. White 和 F. Raton 负责项目管理。

经费支持： B.L.、W.S. 和 Y.H. 获得了巴斯夫的经费支持。

作者贡献： B.L.、W.S.、B.D. 和 W.M. 提出了这一构想。B.L. 搭建了所提出的框架，处理了实验数据，进行了与算法相关的评估，并对帕累托最优设计进行了计算分析。W.S. 制作了测试样品，进行了物理测量，并阐释了帕累托最优微观结构族中的增韧机制。Y.H. 制作了有限元模拟器原型。T.-H.O.、Y.L. 和 L.S. 协助设计了所提出的框架。B.L. 和 B.D. 开展了刚度-孔隙率权衡案例研究，其中涉及额外的计算基础设施、样品制备和物理测量。B.L. 和 B.D. 主导了稿件撰写。W.M. 负责监督这项工作。所有作者均参与讨论、编辑和审阅稿件。

利益冲突： W.S.、B.L. 和 W.M. 是一项与本研究相关的待批专利的发明人，该专利由麻省理工学院于2022年5月20日提交（编号：US20220374569A1），并于2022年11月24日公布。作者声明不存在其他利益冲突。

数据与材料可用性： 评估论文结论所需的所有数据均包含在论文和/或补充材料中。

补充材料

此 PDF 文件包含：

注释 S1-S5

图 S1-S33

表 S1-S15

arXiv:2302.01078v2 [cond-mat.mtrl-sci] 3 Jan 2024

《“微结构化复合材料的计算发现：实现最优刚度-韧性权衡”的补充信息》

Beichen Li[1,2], BoleiDeng[1,2,3], Wan Shou[1,2,4,*],Tae-HyunOh[5],Yuanming Hu[1,2],Yiyue Luo[1,2], LiangShi[1,2], 和 Wojciech Matusik[1,2,3,*]

[1]麻省理工学院计算机科学与人工智能实验室，美国马萨诸塞州剑桥[2]麻省理工学院电气工程与计算机科学系，美国马萨诸塞州剑桥[3]麻省理工学院机械工程系，美国马萨诸塞州剑桥[4]阿肯色大学机械工程系，美国阿肯色州费耶特维尔[5]浦项科技大学电气工程系和人工智能研究生院，韩国浦项*通讯作者：wanshou@mit.edu 或 wshou@uark.edu（W. S.）；wojciech@csail.mit.edu（W. M.）

注释 S1 微结构的定义

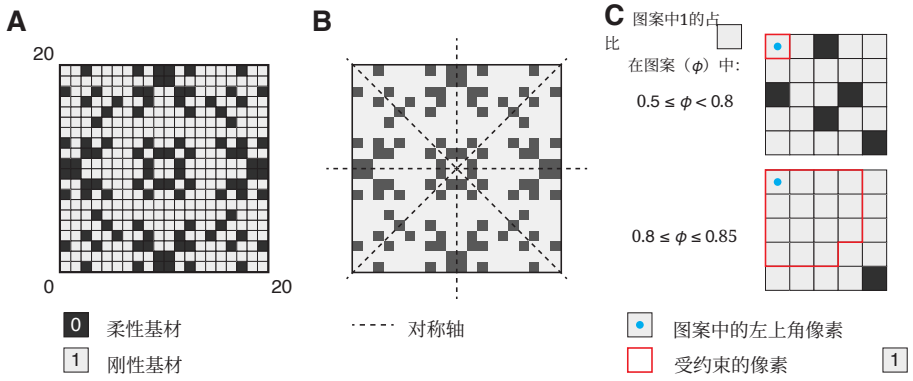


图 S1. 微结构的定义。 **(A)** 微结构示例。**(B)**微结构图案的对称性约束。**(C)** 根据刚性基材体积分数对微结构图案施加的结构约束。

作为本文中微结构复合材料的结构单元，微结构以数字形式表示为 20×20二值矩阵，该矩阵唯一确定复合材料中两种基材的空间排列（图 S1A）。该矩阵也称为 微结构图案。微结构图案中，柔性基材以数值 0 表示，而刚性材料对应数值 1。由于微结构图案在概念上类似于图像，为避免与有限元法（FEM）中的元素混淆，我们将其元素称为 像素 。

为了构建用于计算探索的设计空间，我们还对微结构图案施加两类约束。对称性约束（图 S1B）要求所有微结构在反射和 90度旋转下保持不变，从而使其在水平方向和垂直方向上具有相同的力学性能。结构约束（图 S1C）将刚性材料的体积分数限制在 0.5 至 0.85 之间，记为 ϕ。此外，根据 ϕ，图案角部周围的像素被限制为 1。如果 $0.5 \le \phi < 0.8$，则仅限制角部像素；否则（$0.8 \le \phi \le 0.85$），该规则适用于中心位于距角点顶点 4 像素宽半径范围内的所有像素。上限 $\phi \le 0.85$ 可确保机械测试中的韧性测量可靠且一致，因为极为刚硬的微结构（$\phi > 0.85$）的断裂行为往往具有高度随机性，导致韧性较低（*59*）。下限 $\phi \ge 0.5$ 则排除了因柔性材料占主导而导致杨氏模量和韧性较差的设计。综合所有约束，微结构设计空间包含超过 10^{16} 种可能性。

我们对图案方案的选择主要受 3D打印机 的限制。测试试样必须包含足够数量的微观结构单元，以实现适当的均匀化并最大限度地减小边界效应（图 S27B）。如果分辨率过

高，微结构图案的精细特征在 3D打印 过程中会完全模糊，因为每个像素的尺寸会变得与材料液滴相当。然而，如果分辨率过低，则需要大量微观结构单元才能实现这种均匀化（否则，基材之间较大的界面会成为缺陷，削弱力学性能）。这会使最终的试样几乎无法与单相材料区分。因此，我们采用了 20×20 分辨率，像素尺寸为 260 μm，从而在构建有意义的设计空间的同时，保留打印试样中清晰可见的像素边界。

注释 S2 界面工程

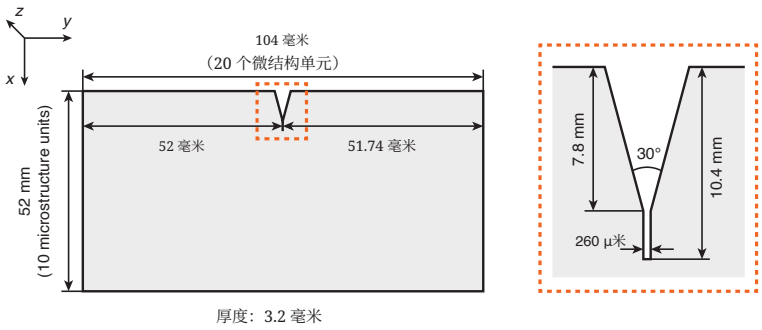


图 S2. 韧性试样的尺寸，放大显示缺口周围区域。坐标轴表示试样在 3D打印中的方向。

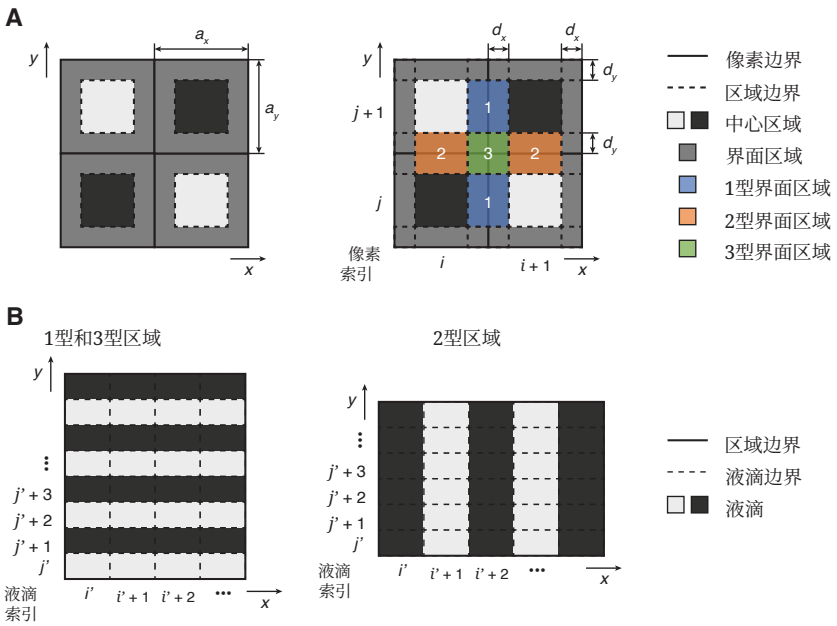


图 S3. 界面工程示意图。 **(A)** 界面区域的定义与分类。**(B)** 界面区域中的液滴排列。所有坐标轴均遵循图 S2中的定义。

检查打印试样后，我们注意到，基材之间的界面相当牢固，但在裂纹扩展过程中仍可能成为最薄弱的部位 (60)。因此，我们对界面进行设计，以增强其强度并提高微结构的韧性。具体做法是在界面区域应用人工设计的液滴图案。如图 S3 所示，界面区域位于相邻像素的共享边或顶点附近，即一种基材过渡到另一种基材的位置。界面区域总共分为三种类型。设 (i, j) 为整个试样模型中一个像素的 x 和 y 索引。1型区域沿 x 方向（即裂纹扩展方向）连接两个相邻像素 (i, j) 和 (i + 1, j)。2型区域沿 y 方向（即拉伸测试中的拉伸方向）连接两个相邻像素 (i, j) 和 (i, j + 1)。

像素尺寸		中心区域		界面区域	
x (a_x)	y (a_y)	x	y	x (d_x)	y (d_y)
3	5	1	3	1	1
3	6	1	2	1	2
4	5	2	3	1	1
4	6	2	2	1	2

表 S1. 像素及其细分区域经量化为液滴后用于体素打印时的可能尺寸。所有单位均为液滴。

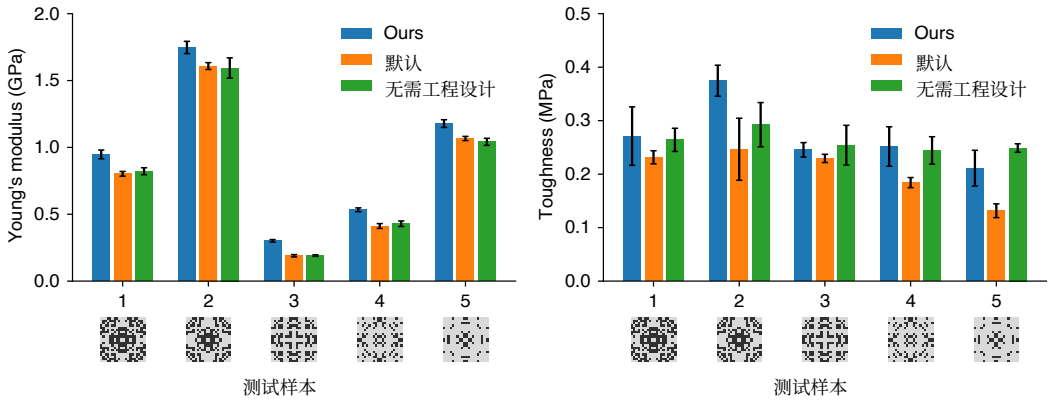


图 S4. 不同界面配置下微观结构性质的比较。 测试的配置包括：打印机默认配置（默认）、未经过工程设计（无需工程设计）以及经过工程设计（我们的方法）。多次测量的标准差通过误差条表示。

3型区域连接周围的全部四个像素。当一个界面区域覆盖了材料分配不同的两个像素时，该区域中的液滴会经过特殊排列，使两种基材的比例近似为 50/50。同样，设 (i', j') 为试样模型中一个液滴的 x 和 y 索引。在1型和3型区域中，液滴按交替行排列，其中每个液滴 (i', j') 的排列遵循 $i + j'$ 的奇偶性。相较之下，2型区域中的液滴按交替列排列，各自遵循 $j + i'$ 的奇偶性。这些图案在 z 方向上保持不变。

在体素打印中，一个像素经量化后可能包含 3×5、 3×6、 4×5或 4×6 个液滴。表S1 给出了根据像素尺寸量化后的像素内部区域尺寸。界面区域的量化尺寸则根据其相交的像素推导得出。1型和3型区域可能包含 2×2 或 2×3 个液滴，而2型区域的尺寸则可能包含 1×2、 1×3、 2×2或 2×3 个液滴。

我们将设计基材之间界面的方法与两种基准方法进行了比较。默认情况下，3D打印机会在用户不可见的界面区域应用指定的液滴配置。相反，在体素打印模式下，界面完全由用户指定。因此，可以不进行任何工程设计，并使像素边界处的过渡尽可能锐利。为测试这些界面选项，我们从具有$0.5 \leq \phi \leq 0.75$ 的微观结构中随机抽取了 5 个样本，并比较了其打印试样的力学性能（图 S4）。

注 S3 计算流程

3.1 仿真

模拟器无需进行物理测量，即可估算微观结构的性能。给定输入的微结构图案，模拟器使用有限元法对打印试样进行实际力学测试过程的仿真。随后，根据记录的应力-应变数据计算杨氏模量和韧性。模拟器中的两个虚拟测试器采用相同的材料模型，但在实现细节和参数设置上有所不同。

基材的非线性应力-应变响应采用二维 Neo-Hookean 模型进行近似。我们沿用了 Sifakis 等人 (*61*) 中的应变能密度函数：

$$W = \frac{\mu}{2}(I_1 - 2 - \ln J) + \frac{\lambda}{2}(\ln J)^2, \tag{1}$$

其中， μ 和 λ 为拉梅参数，$J = \det(F)$ 是变形梯度 (F) 的行列式，而 $I_1 = \mathrm{tr}(C)$ 是右柯西-格林变形张量 ($C = F^{\mathrm{T}}F$) 的第一不变量。 μ 和 λ 由杨氏模量 (E) 和泊松比 (ν) 按如下方式推导

$$\mu = \frac{E'}{2(1+\nu')},$$
$$\lambda = \frac{E'\nu'}{(1+\nu')(1-2\nu')}, \tag{2}$$

其中E' 和 ν' 由E 和 ν 按如下方式转换（62）

$$\nu' = \frac{\nu}{1+\nu},$$
$$E' = \frac{E(1+2\nu)}{(1+\nu)^2}. \tag{3}$$

基材的杨氏模量和泊松比被视为系统辨识（第 3.2节）中的可优化参数。

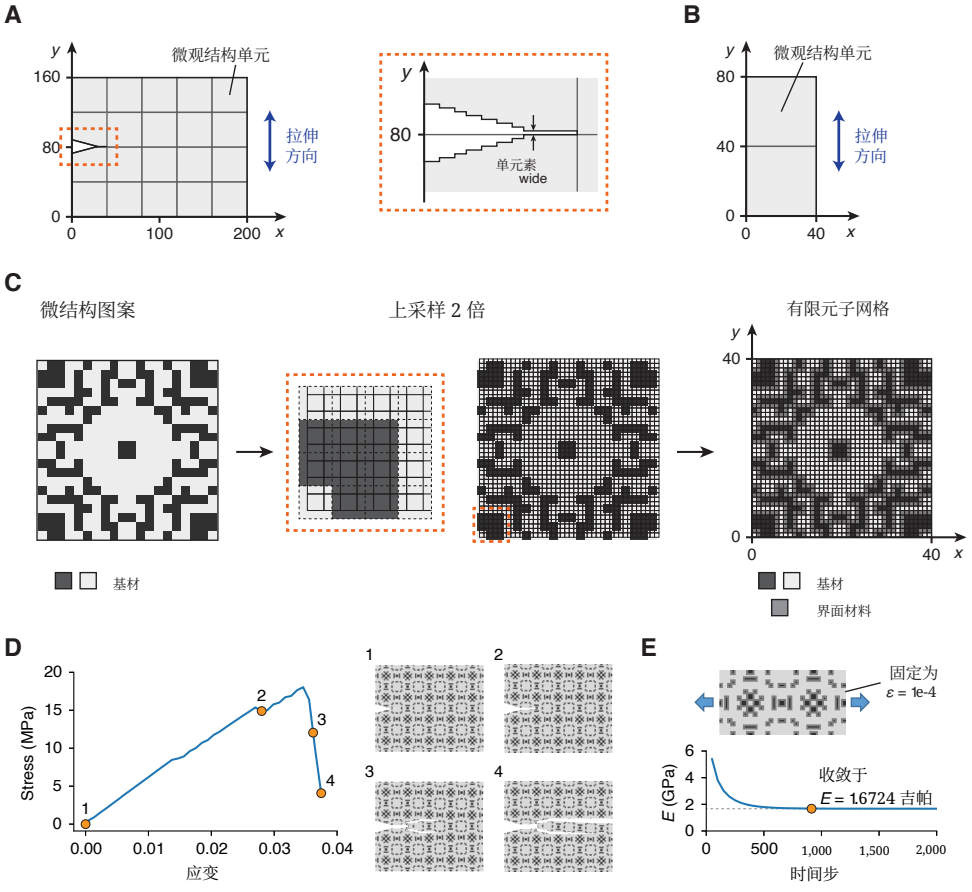


图 S5。 有限元法模拟器的配置。 （**A**）韧性虚拟测试器中有限元网格的尺寸。（**B**）杨氏模量虚拟测试仪中有限元网格的尺寸。（**C**）将微结构图案上采样至 40×40有限元子网格。（**D**）韧性虚拟测试器的仿真过程示例。（**E**）杨氏模量虚拟测试仪的仿真过程示例。

韧性虚拟测试器基于规则网格运行，网格由 200×160 四边形有限元组成（图 S5A），每个节点有四个自由度。网格包含 5×4 个微结构单元区块，每个单元覆盖一个 40×40子网格。值得注意的是，由于对基材之间的界面进行建模，一个微结构单元会使图案的分辨率加倍。

界面被建模为第三种均质材料，称为 界面材料。界面材料和基材的有限元尺寸相同。我们对打印试样进行的显微观察证实了这一点：界面宽度通常约为 100 μm，与像素尺寸的一半相当。在子网格中进行材料分配的计算方式类似于图像上采样。如图 S5C 所示，有限元子网格叠加在原始图案上，左下角单元的中心与左下角像素的中心对齐。如果一个单元完全位于某个像素内，则继承该像素值；否则，其材料分配方式与界面工程相同，取决于周围像素的值。为模拟真实试样的预开裂，在网格位置 (0,80)处设置了宽度为一个单元的缺口和一个三角形切口。“移除”的单元被赋予空材料，在变形过程中不会产生节点力。总体而言，尽管为降低计算成本采用了较简单的几何形状，这种配置仍与打印试样高度相关。测试期间，在 y方向的位移上施加狄利克雷边界条件。每个单元的节点力通过新胡克模型和四个高斯求积点计算得出。随后通过显式时间积分求得节点速度和位移。裂纹萌生与扩展按单元进行建模。为此，在计算节点力贡献的同时，还计算了求积点处的应变能密度。当求积点处的最大应变能密度超过各材料特定的阈值时，该单元即被视为失效，并重新赋予空材料。当全局应变超过 0.3 或测量应力低于极限抗拉强度的 20% 时，仿真终止；唯一的例外是柔性材料，其最大应变不受限制。最后，通过对应力-应变曲线积分计算韧性。

虽然可以使用隐式求解器计算节点速度和位移，但我们选择了显式求解器，因为对于涉及动态失效的非线性有限元模拟，通常更倾向于使用显式求解器。具体而言，虚拟测试器必须采用足够小的时间步（约为 10^{-7} s），才能精确捕捉微结构中的裂纹扩展并保持数值稳定性。在如此严格的要求下，显式求解器因实现更简单且与图形计算单元（GPU）等众核硬件加速器兼容性更好，效率更高。然而，我们发现，若采用与实际力学测试相匹配的应变率，虚拟测试器的运行速度过慢。在这种情况下，将微结构仿真至假定的 0.02 失效应变，需要 1.62×10^{8} 个时间步；在 NVIDIA Tesla V100 GPU 上以最大吞吐量运行，几乎需要一小时才能完成。对于我们的计算流程而言，这样的运行时间并不切实际，因为仿真预算会过于紧张，无法充分探索组合设计空间。为解决这一问题，我们采用了大得多的应变率（等于 20）来加速仿真，同时引入全系统数值阻尼来模拟材料黏度。每个时间步更新速度场后，节点速度 $v_{i,j}$ 使用一个定义如下的 3×3 滤波器进行平滑

$$v'_{i,j} = (1-\alpha)v_{i,j} + \frac{\alpha}{9}\sum_{k=-1}^{1}\sum_{l=-1}^{1} v_{i+k,j+l}, \tag{4}$$

其中，$\alpha = \gamma\Delta t$ 是时间步长 Δt 与常数阻尼系数 γ的乘积。假设所有节点的质量相同，这一步实际上是在每个节点的动量与其 3×3邻域内的平均动量之间进行插值。较大的 γ 会产生更强的阻尼效应，并可能反映更多材料黏弹性。我们的观察表明，较大的 γ值更适用于较硬的微结构，有助于抑制振荡。由于没有简单的方法可以确定所有微结构对应的 γ值，因此我们在系统辨识中对 γ进行了优化。

用于测量杨氏模量的虚拟测试器采用了更小的网格，其中包含 80×40 个四边形单元，由 2×1个微结构单元组成（图S5B）。采用相同的图像上采样方法计算元素的材料分配，且未添加缺口或三角形切口。该配置在定性上与 ASTM D638 1型试样的标距区相符。在 y 方向施加恒定位移边界条件，使全局应变保持在 10^{-4}。节点力根据上述新胡克模型计算。采用显式时间积分更新速度和位移。对速度场施加负指数阻尼，如下所示

$$v'_{i,j} = v_{i,j}e^{-\gamma\Delta t}, \tag{5}$$

其中，$\Delta t \approx 10^{-7}$ s 用作时间步，阻尼系数 γ则通过系统辨识进行优化。求解器在 10^{4} 个时间步内达到静力平衡，随后根据标距应力计算杨氏模量。尽管通常会使用隐式线弹性求解器来虚拟测量杨氏模量，但为求简便，我们直接复用了韧性模拟器中的显式求解器。请注意，杨氏模量虚拟测试仪并非整个仿真的瓶颈。

为追求最高的计算效率，我们使用 Taichi 编程语言（*53*）实现了定制模拟器。Taichi 是一种新兴的高性能编程语言，专为计算机图形学应用（包括基于物理的模拟）量身打造。Taichi 会将我们以 Python 语法编写的源代码编译为优化后的机器程序；这些程序

执行时可充分利用图形处理器的强大并行计算能力。然而，我们发现，按顺序仿真微结构会因工作负载不足而导致图形处理器利用率偏低。为此，我们引入了批处理机制，以便并发仿真多个微结构；每个微结构都可以使用一组独特的可优化参数进行评估。如此一来，无论图形处理器的性能如何，都能最大限度地加以利用，从而显著提高吞吐量。

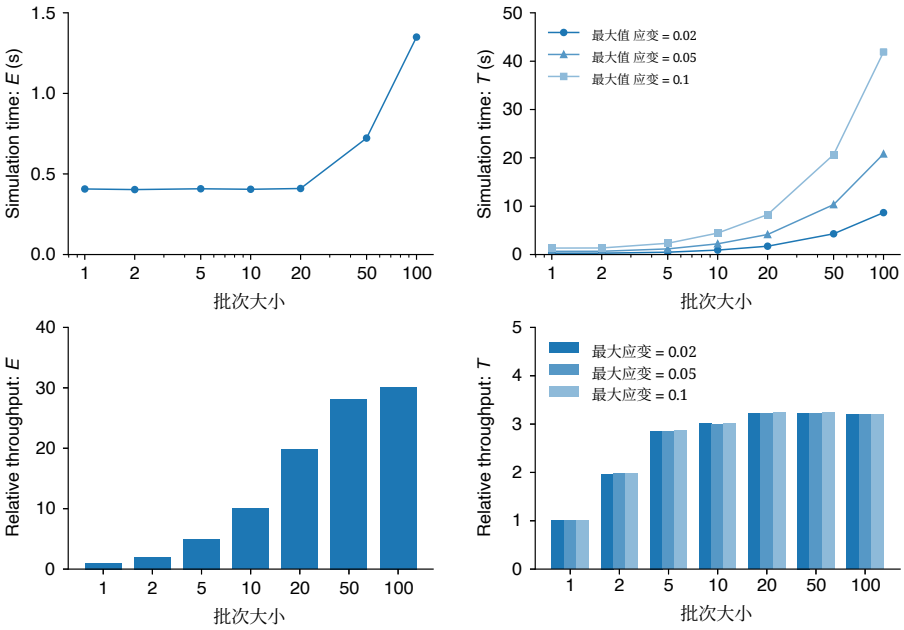


图 S6. 模拟器在不同输入批次大小下的耗时和吞吐量。 左侧列展示杨氏模量的结果，右侧列展示韧性的结果。韧性虚拟测试器在三种应变限值下进行了评估：0.02、0.05 和 0.1。

我们通过测量模拟器在不同批次大小和应变限值下的运行时间来评估仿真速度。所有性能数据均在一台配备 8 个 CPU 核心和 NVIDIA Tesla V100 GPU 的机器上采集，并取连续运行 5 次的平均值。结果见图 S6。对于杨氏模量，只有当批量处理的微结构数量达到至少 20 个时，仿真才会变慢。尽管超过这一数量后，批次大小的增加会导致仿真时间大幅延长，但吞吐量仍持续提高，这表明 GPU 利用率仍在接近最大值。批次大小需达到 100，才能达到峰值吞吐量，即每个样本耗时不到 0.015 秒。对于韧性，批次大小为 20 时吞吐量最高，此时将一个样本拉伸至 $\varepsilon = 0.05$ 所需时间不到 0.2 秒。与顺序设置相比，无论应变限值如何，我们的批处理机制都能使杨氏模量的吞吐量提高 $30\times$，使韧性的吞吐量提高超过 $3\times$。

3.2 系统辨识

系统辨识旨在寻找模拟器的最优参数设置，使模拟结果与物理测量相匹配（图 S7）。在正式描述问题之前，我们先定义一些数学符号。对于任意微观结构 x，令 $\mathrm{f}(\mathrm{x}\ \theta) : \mathrm{X} \times \mathrm{P} \to \mathbb{R}$ 表示用于测量杨氏模量的虚拟测试器，其参数设置为 θ，其中 $\mathrm{X} \subset \{0,1\}^{20\times 20}$ 是微结构的设计空间，$\mathrm{P} \subset \mathbb{R}^7$ 是 θ 的可行集。x 的杨氏模量估计值可直接由 $\hat{\mathrm{E}} = \mathrm{f}(\mathrm{x}\ \theta)$ 得出。类似地，令 $\mathrm{g}(\mathrm{x}\ \eta) : \mathrm{X} \times \mathrm{Q} \to \mathrm{C}[0,\infty)$ 表示用于测量韧性的虚拟测试器，其采用另一组参数设置 η，其中 $\mathrm{Q} \subset \mathbb{R}^{10}$ 是 η 的可行集。输出 g 并非单个数值，而是一条应力-应变曲线 $\hat{\sigma}(\varepsilon)$，定义为关于非负应变的连续函数。因此，通过计算以下积分来估计 x 的韧性

$$\hat{T} = I[\hat{\sigma}] = \int_0^{\infty} \hat{\sigma}(\varepsilon)\, d\varepsilon. \tag{6}$$

θ 和 η 均为可优化的仿真参数元组，包括

- 基材（记为 TB 和 VW）及界面材料（记为 IF）的参考杨氏模量：ETB，EVW，EIF；
- 参考泊松比：νTB νVW νIF；

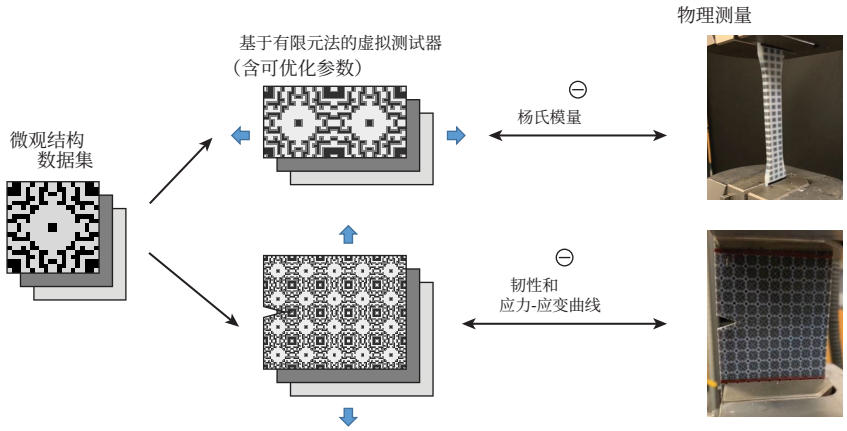


图 S7. 系统辨识问题示意图。 每个虚拟测试器都有一组独立的可优化参数。'⊖'表示通过参数优化实现误差最小化。

- 应变能密度的失效阈值：W_{TB}，W_{VW}，W_{IF}；
- 系统级阻尼系数： γ。

由于预测杨氏模量时不涉及断裂模拟，因此我们有

$$\begin{aligned}\theta &= (E_{TB}, E_{VW}, E_{IF}, \nu_{TB}, \nu_{VW}, \nu_{IF}, \gamma)\\ \eta &= (E_{TB}, E_{VW}, E_{IF}, \nu_{TB}, \nu_{VW}, \nu_{IF}, W_{TB}, W_{VW}, W_{IF}, \gamma).\end{aligned} \tag{7}$$

基于可优化参数，在一组微结构$X_c = \{x_i \,|\, i = 1, 2, \cdots, N\}$上最小化虚拟测试器的预测误差，这组微结构称为系统辨识数据集。优化过程求解了以下问题

$$\begin{aligned}\theta^* &= \underset{\theta}{\operatorname{argmin}} \sum_{i=1}^{N} w_i \frac{\left|\hat{E}_i - E_i\right|}{E_i}\\ \eta^* &= \underset{\eta}{\operatorname{argmin}} \sum_{i=1}^{N} w_i \frac{\left|\hat{T}_i - T_i\right| + \tilde{\lambda} I\left[\left|\hat{\sigma}_i - \sigma_i\right|\right]}{T_i},\end{aligned} \tag{8}$$

其中，$\hat{E}_i$，$\hat{T}_i$，$\hat{\sigma}_i$ 分别是对每种微结构x_i的杨氏模量、韧性和应力-应变曲线的预测值；E_i，T_i，σ_i 则是相应的物理测量值。对于杨氏模量，目标函数只是数据集上的平均相对预测误差。对于韧性，目标函数则结合了韧性值和应力-应变曲线两方面的误差。由于应力-应变曲线是函数，两条曲线之间的误差通过对其绝对差值积分来计算。从几何上看，这$\tilde{}$表示曲线下方面积的对称差。两个误差项通过乘数 $\lambda = 1$进行平衡。

此外，由于可优化参数的数量少于数据集中的微结构数量，我们推测模拟模型的容量可能不足以捕捉实验数据的变化。因此，每种微结构 x_i 都赋予权重 $\mathrm{w}_i \in [0,1]$ 以体现其优先级。该权重由两个部分 $\mathrm{w}_i = \mathrm{w}_{1i}\mathrm{w}_{2i}$ 相乘得到，分别体现两项直观原则。首先，为了提高预测准确性，应优先考虑力学性能更好的微结构，因为我们的关注重点是帕累托最优微观结构。为此，将数据集中微结构的物理测量值 $\mathrm{y} = (\mathrm{E}, \mathrm{T})$归一化为单位正方形内的 $\tilde{\mathrm{y}} = (\tilde{\mathrm{E}}\ \tilde{\mathrm{T}})$，并在归一化性能空间中计算分段线性帕累托前沿。随后，根据 $\tilde{\mathrm{y}}_i$ 与帕累托前沿之间的欧几里得距离 d_i，通过以下函数推导出微结构 x_i 的权重部分 w_{1i} （图 S9A）

$$w_1(d) = \begin{cases} 1 & 0 \le d < 0.2 \\ 1.4 - 2d & 0.2 \le d < 0.6 \\ 0.2 & d \ge 0.6 \end{cases}. \tag{9}$$

其次，为避免性能空间中不均匀的样本分布造成偏差，我们引入w_{2i}，作为对分布过于密集的微结构的惩罚项。我们通过归一化后的密度热图 $\rho(\tilde{y})$来估计分布

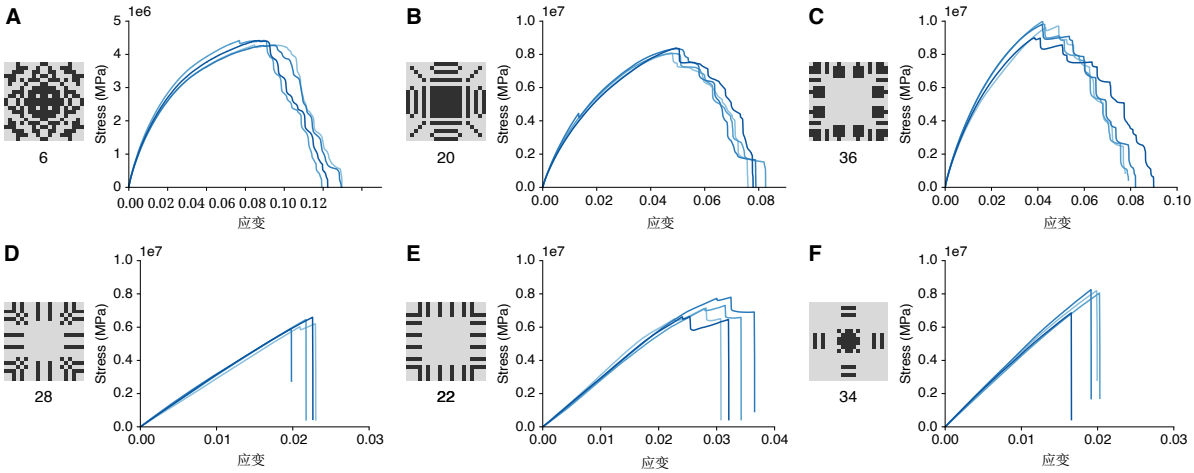


图 S8. 通过我们的流程发现的六种微结构的韧性测试实测应力-应变曲线。 这些微结构（**A-F**）通过随机分层抽样选出，以覆盖广泛的 ϕ。我们展示了每种设计中所有受测试样（以不同颜色区分）的应力-应变曲线。

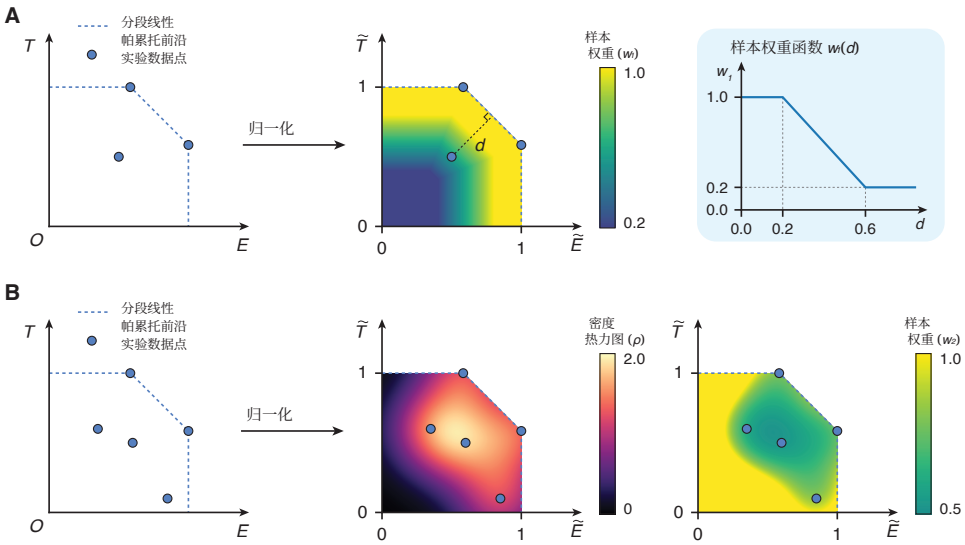


图 S9. 系统辨识中的样本权重计算。 （**A**）使用三个数据点推导系统辨识中第一个样本权重分量w_1, 的示例。（**B**）使用五个数据点推导第二个样本权重分量w_2, 的示例。

性能空间（图 S9B）。密度热图由高斯混合模型推导得到

$$\rho(\tilde{y}) = \sum_{i=1}^{N} \exp(-\gamma_d \|\tilde{y}_i - \tilde{y}\|_2^2) \tag{10}$$

其中， γ_d 是控制每个高斯函数扩散范围的参数。定量而言， $\rho(\tilde{y})$估计任意位置 $\tilde{y}$附近的微结构数量，并在相邻样本之间平滑变化。随后，将w_{2i} 定义为对每个密度值超过特定阈值 ρ_0的样本x_i 施加的权重折扣。

$$w_2(\tilde{y}) = \min\left\{\frac{\rho_0}{\rho(\tilde{y})}, 1\right\} \tag{11}$$

在本研究中，我们发现 $\gamma_d = 200$ 和 $\rho_0 = 2$ 是理想的参数设置。值得注意的是，样本权重的设计原则可推广到其他问题领域。当我们将这种方法重新用于其他计算设计问题时，可以进行适当的调整。

我们使用批量贝叶斯优化（贝叶斯优化）作为 θ 和 η的优化器。该算法经过 200 次迭代后输出最佳解，每次迭代进行 3 次评估，因此最多执行 600 次N 仿真。手动指定的仿真参数可行范围列于表 S9 和S10中。该算法使用五个不同的随机种子重复运行，并选取损失值最小的解。为充分利用模拟器的高吞吐量，我们使用 GPyOpt 库（*63*）实现该算法，并将一次贝叶斯优化迭代中的全部 3 次N 仿真合并为一次模拟器运行。

样本	E (吉帕)		Err.	T (兆帕)		Err.
	Exp.	Sim.	(%)	Exp.	Sim.	(%)
TB	1.0094e-3	1.0091e-3	0.031	5.4335e-2	5.4271e-2	0.118
VW	2.6613	2.6613	0.0002	7.4217e-2	7.4484e-2	0.360
IF	0.5642	0.5642	0.003	0.8274	0.8193	0.984

表 S2. 分别对每种基体材料进行系统辨识后的仿真准确度。 准确度通过模拟预测 (Sim.) 与物理测量 (实验) 之间的相对误差 (Err.) 衡量

轮次	N	相对误差：E (%)				相对误差：T (%)			
		参考		之后		参考		之后	
		Avg.	Max.	Avg.	Max.	Avg.	Max.	Avg.	Max.
1	18	31.09	93.15	**6.53**	22.95	135.59	767.44	**22.85**	62.23
2	26	25.19	93.15	**6.29**	20.40	108.26	767.44	**23.92**	100.53
3	34	21.11	93.15	**6.32**	22.75	93.09	767.44	**24.68**	84.30
4	42	18.95	93.15	**6.50**	25.40	82.38	767.44	**27.10**	88.87

表 S3. 自第1轮起，各外循环轮次进行系统辨识后的仿真精度。 系统辨识后的更新模型的仿真误差与参考模型（第 0 轮）进行比较。N 表示系统辨识数据集中微结构的数量。与图 3F 不同，每轮的误差仅使用数据集中的微结构计算。

在第 0 轮中，我们通过系统辨识将仿真拟合到基材上，从而获得参考仿真模型。该模型的准确度几乎完美，杨氏模量预测值与测量值的偏差在 0.1% 以内，韧性预测误差低于 1%（表 S2）。然而，每轮系统辨识后，更新后的模型对微结构力学性能的预测误差都远小于参考模型（表 S3）。从理论角度来看，一种可能的解释是，由于微结构中的布局方式，基材的局部力学性能可能与块体性质不同。因此，使用块体试样的物理测量结果来模拟微结构中的基材，可能会导致更大的仿真误差。

为便于完整查阅，表 S11 和 S12 列出了我们的计算方法在外循环的每一轮中发现的所有微结构的物理测量结果、仿真预测结果和相对误差。

3.3 NMO - 内循环

在系统辨识步骤之后，我们探索了模拟杨氏模量与韧性之间具有最优权衡的微观结构。在此，我们在微结构设计空间中求解一个多目标优化（MOO）问题。由于逐像素材料分配是离散变量，因此可以使用 NSGA-II 等遗传算法来求解 MOO 问题（*31*）。然而，朴素的 NSGA-II 实现往往因缺乏信息量的随机变异和交叉操作而导致样本效率较低。另一种方法是采用拓扑优化（TO）方法（*16, 28, 64, 65*），将 MOO 问题表述为连续优化，其中有限元的基体材料属性由连续材料分配变量参数化。虽然这种连续表述可以推导关于材料分配的梯度，但 TO 算法容易陷入局部最优，且难以扩展到多个目标。特别是，如果希望获得完整的帕累托前沿，而非单个帕累托最优解，TO 就必须利用多个起始点和目标加权组合，才能充分探索设计空间。另一种潜在选择是多目标贝叶斯优化（MOBO），它能够比 NSGA-II 更有针对性地探索设计空间（*29, 30, 66*）。大多数 MOBO 算法采用基于高斯过程（GP）的代理模型，以快速、近似地预测性能，从而大幅减少所需的仿真次数。然而，这些代理模型受到高斯先验的严格限制，而且

在近似复杂的离散映射时可能表现不佳。此外，由于拟合高斯过程的计算成本与数据点数量的三次方成正比，实际应用中的数据集通常仅包含几百个数据点，这远不足以建模微观结构图案与韧性之间的复杂关系。

受 MOBO 启发，我们开发了一种神经网络加速的多目标优化算法（NMO），专门针对微结构图案的设计空间进行定制，并充分利用深度学习的强大能力。NMO 工作流程如图2a所示。首先，从设计空间中随机抽取 10 个微观结构并进行仿真，以获得其性能，构成初始数据集。在每次迭代中，使用该数据集训练预测器，后者充当模拟器的代理模型。随后，通过求解代理多目标优化问题，计算出 10 个预测的帕累托最优样本；在该问题中，模拟器被代理模型所取代。由于代理模型的评估成本低得多，我们采用 NSGA-II 求解代理问题，其运行 200 代，种群规模为 100。然后，在将预测的最佳微观结构添加到数据集以进行下一次迭代之前，先通过仿真对其进行验证。按照预先设定的 5,000 次仿真预算，该算法持续运行 500 次迭代。由于其迭代特性，NMO 转化为我们流程的内循环，其中仿真数据和提出的设计交替在模拟器与预测器之间流动。

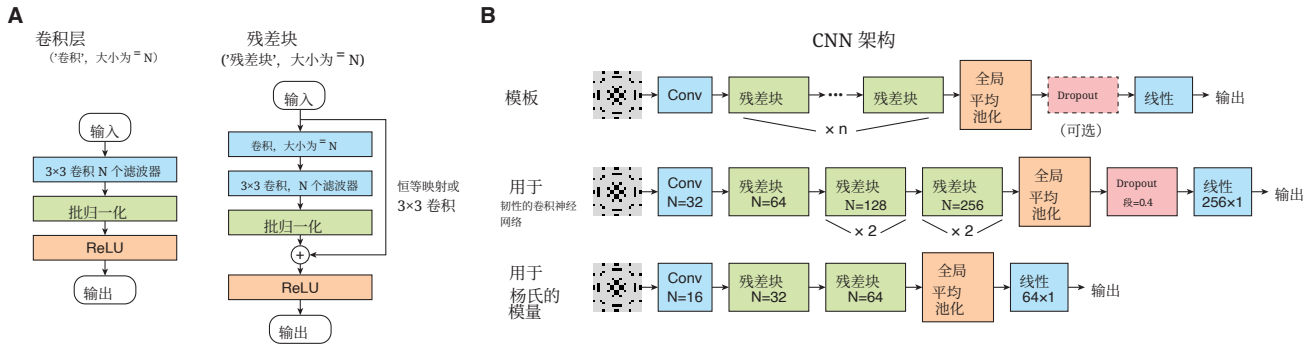


图 S10。预测器中使用的 CNN 架构。（**A**）CNN 的架构单元定义。（**B**）基于架构模板构建的杨氏模量和韧性预测网络。

NMO 相较于 MOBO 有几项重大改进。最重要的是，代理模型采用专用于基于图像的推理的卷积神经网络（CNN），而非高斯过程。我们使用两个独立的残差网络对韧性和杨氏模量进行建模（*54*）。两个网络均基于图 S10 所示的同一架构模板构建。该模板由一个主干卷积层、一个或多个残差块、一个全局平均池化层、一个可选的丢弃层以及一个全连接层串接而成。韧性预测网络的容量相对较大，包含 5 个残差块，并在倒数第二层设置了一个用于正则化的丢弃层。杨氏模量预测网络则小得多，仅包含 2 个残差块。网络在算法发现的微结构数据集上逐步训练，使用 Adam 优化器（*67*），学习率为 1e-3。韧性预测网络训练了 300 轮，而杨氏模量预测网络训练了 100 轮。最大批次大小为 2,048。为减轻小型数据集上的过拟合，两个网络分别采用 1e-2 和 1e-6 的权重衰减系数进行惩罚。另需指出的是，在将我们的计算流程应用于其他设计问题时，用户可以采用更复杂的网络架构，例如视觉 Transformer（ViTs）（*68*），以加速内循环。我们的工作采用 CNN，因为在数据高效场景中，CNN 的表现通常优于 ViTs，而且针对微结构图案，无需具备关于高级神经网络模型的丰富专家知识。

下一项改进是为微结构图案特别设计的 NSGA-II 定制变异算子。通常，NSGA-II 会利用变异算子和交叉算子，在设计空间的利用与探索之间取得平衡。在我们的方案中，我们省略了交叉步骤，但改进了变异算子以强化探索。定制变异算子会以概率方式执行以下选项之一。

- 以 $p_1 = 0.86$ 的概率，翻转一个随机像素；
- 以 $p_2 = 0.11$ 的概率，将一条栅格化线条上的像素重写为统一的随机值 0 或 1，起始位置和结束位置均随机选取；
- 使用$p_3 = 0.03$，随机选择一个像素作为左上角，然后用左上角像素的补值重写一个正方形区域内的像素（正方形的大小随机指定）。

之后，通过将更改镜像到整个图案中，恢复对称性。请注意，变异后的图案可能违反设计空间中的结构约束。因此，我们通过以下步骤解决潜在的违规情况

1. 如果变异后得到的 ϕ 低于 0.5，则翻转图案，并将四个角上的像素重新设为刚性材料。

2. 如果仍存在其他违规情况，算子会继续尝试新的变异，不撤销任何更改，直到违规情况消除。

我们的变异算子实现考虑到，微观结构的韧性会直接受到图案中结构特征的影响，例如柔性材料的像素、梁和块状结构。该算子通过以概率方式在多个尺度上修改这些结构特征，在利用与探索之间取得平衡。

最后一项改进是采用哈希表实现的去重机制。它可以防止算法在后续迭代中重新发现先前的样本，并使算法在探索过程中跳出局部最优。通常，单像素变异产生的变化有限，很容易导致图案重复。然而，借助哈希表，当相邻图案对应的哈希表条目已填满时，变异算子会自动转而采用幅度更大的扰动。随后，探索会继续在设计空间的其他区域进行。在我们的定义中，微结构图案的哈希值（将其视为二进制数组展平后的结果 $x = (b_1, b2, \cdots, b_{400})$）计算如下：

$$\mathrm{hash}(x) = \left(\sum_{i=1}^{400} b_i k^{i-1} \right) \bmod m \tag{12}$$

其中 $k = 99,\ 997$ 和 $m = 100,\ 000,\ 007$ 是质数。每个哈希表有 m 个条目。NMO 使用一个全局哈希表，而代理问题求解器的每次运行都使用单独的哈希表。改进的 NSGA-II 算法结束后，预测得到的帕累托最优微观结构按非支配排序排列，并在全局哈希表中检查是否存在哈希冲突。前 10 个无冲突样本由模拟器进行验证。

通过在 5,000 次仿真预算内的帕累托超体积增长，评估了 NMO 的探索效率。我们也对改进的 NSGA-II 算法进行了评估。与 NMO 相比，尽管没有代理模型，它仍能受益于定制的变异算子和哈希表。作为参考，我们纳入了基线 NSGA-II 实现，其分别以 0.1 和 0.8 的概率执行单像素变异和单点交叉。任何违反设计约束的交叉或变异尝试都会被撤销，然后再尝试下一次。因此，NSGA-II 基线在探索中通常更加保守。

对于 TO，我们选择双向进化结构优化（BESO）（*26, 27*）和带惩罚的各向同性实体材料（SIMP）（*28*）作为代表方法，因为以往的研究已采用这两种策略进行韧性复合材料设计（*69, 70*）。鉴于这两种方法按定义都只能优化单一目标，我们通过随机采样归一化杨氏模量和韧性的多个加权组合，将其扩展为寻找帕累托前沿。为加强探索，我们使用多个随机初始解运行 BESO，并为 SIMP 设置多个随机目标体积分数。这样，两种算法都能在不利用任何关于杨氏模量或韧性的专家知识的情况下，平衡利用与探索，从而与我们的方法进行公平比较。在实现方面，我们扩展了有限元模拟器，使其支持通过自动微分进行梯度计算（*71*）。我们采用了文献（*72*）中的扩展 BESO 方法，并使用移动渐近线法（MMA）求解 SIMP。对于 MOBO 算法，我们评估了 DGEMO（*29*）和 TSEMO（*30*）作为基线方法。DGEMO 在若干合成多目标优化基准上表现出当前最先进的性能，而 TSEMO 则应用得更为广泛。

这里，我们进一步介绍 TO-SIMP 的详细优化设置，其中 MMA 求解器通过最大化杨氏模量与韧性的归一化加权组合来进行优化。刚性基材的体积分数受到主动约束（ϕ）。下面以数学符号给出优化问题。令 $\rho \in [0,1]^{20\times 20}$ 表示微观结构单元的密度场。SIMP 将单元杨氏模量 E_e 定义为

$$E_e(\rho_e) = \rho_e^p E_{\mathrm{rigid}} + (1 - \rho_e^p) E_{\mathrm{soft}} \tag{13}$$

其中，ρ_e 表示单元 e 的密度；p 表示 SIMP 惩罚指数；E^{rigid} 和 E_{soft} 分别表示刚性和柔性基材的杨氏模量。令 $\tilde{E}(\rho)$ 为杨氏模量模拟器给出的归一化杨氏模量，$\tilde{T}(\rho)$ 为韧性模拟器给出的归一化韧性。使用 MMA 求解以下问题：

$$\begin{aligned} \max_{\rho} \quad & w_1 \tilde{E}(\rho) + w_2 \tilde{T}(\rho) \\ s.t. \quad & \int_{\Omega} \rho \, d\Omega \le \phi_{\max} \\ & \rho \text{ obeys } p4m \text{ symmetry} \end{aligned} \tag{14}$$

由于优化器每次只能收敛到一种微结构设计，我们通过随机采样w_1,w_2, 和 $\phi_{\max}$，重复这一过程，以探索设计空间中的不同方向。所有情况下均采用恒定的 SIMP 惩罚$p = 8$，不使用延续法。

在评估方法方面，除不按代划分的 TO 外，所有算法每次迭代均仿真 10 个微观结构。NMO 和 NSGA-II 运行了 500 次迭代。为保证耗时可接受，MOBO 算法最多运行 200 次迭代，因为随着样本数达到数百个，拟合高斯过程会变得极其缓慢。对于 TO 算法，我们将随机元目标与初始设计（或目标体积分数）配对，组成优化任务，并允许算法在耗尽评估预算前尽可能多地执行优化任务。所有算法均使用相同的五个随机种子重复运行，因此起始样本完全相同。最终得到的帕累托超体积增长曲线取了平均值。

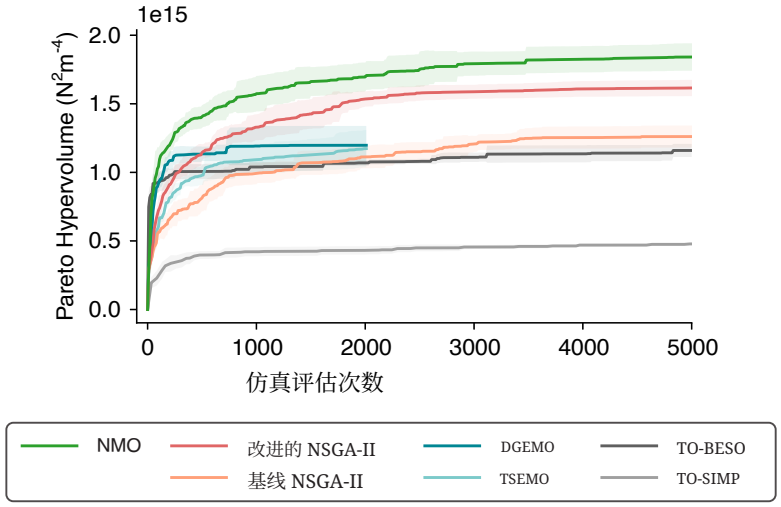


图 S11。 第 0 轮中使用各种优化算法得到的色域帕累托超体积增长。 候选算法包括 NMO、NSGA-II、TO 和 MOBO 算法。实线表示平均值。彩色区域表示标准差。

轮次	帕累托超体积		改进。(%)	$V_{\text{目标值}}$	达到目标所需的样本数V_{target}		改进程度 (×)
	NSGA-II	Ours			NSGA-II	Ours	
0	1.6154	**1.8412**	13.98	1.7202	20000	**2200**	9.10
1	1.6012	**1.8835**	17.63	1.8225	20000	**4190**	4.78
2	0.9956	**1.0904**	9.52	1.0776	19760	**3240**	6.10
3	1.0406	**1.2016**	15.47	1.0911	19950	**1830**	10.90
4	0.9457	**1.0078**	6.57	1.0078	17140	**4990**	3.44

表 S4。 每个外循环轮次中 NMO 与我们改进的 NSGA-II 在探索效率方面的比较。探索效率通过以下指标衡量：（1）在 5,000 次仿真中发现的帕累托超体积（单位：$10^{15}\text{N}^2\text{m}^{-4}$）；（2）达到目标帕累托超体积前的模拟样本数，记为V_{target}。V_{target} 默认等于 NSGA-II 在 20,000 次仿真时的帕累托超体积。如果 NMO 在 5,000 次仿真内未达到该超体积，则将V_{target} 改为 NMO 在 5,000 次仿真时的超体积。

图 S11 展示了第 0 轮中各算法的帕累托超体积增长情况。NMO 凭借最快的增长速度和最大的最终超体积胜出。改进的 NSGA-II 算法在超体积增长方面也显著领先于基线 NSGA-II。相比之下，尽管完成了数十项优化任务，TO 变体仍未能覆盖足够大的帕累托超体积。它们不仅陷入局部最优，还不得不将大部分预算用于优化轨迹上的中间解，从而严重降低了样本效率。由于前述高斯过程的弱点，两种 MOBO 算法的表现也远不理想。此外，即使与改进的 NSGA-II 相比，NMO 达到相同帕累托超体积所需的仿真次数也最多少了一个数量级（表 S4）。这些结果表明，与其他最先进的结构优化或通用多目标优化算法相比，NMO 的样本效率显然更高。此外，我们还想指出，NMO 兼容任何多目标优化

求解代理问题时使用的算法。建议选择能够充分适配设计任务的算法，以便在实际应用中获得理想的探索效率。

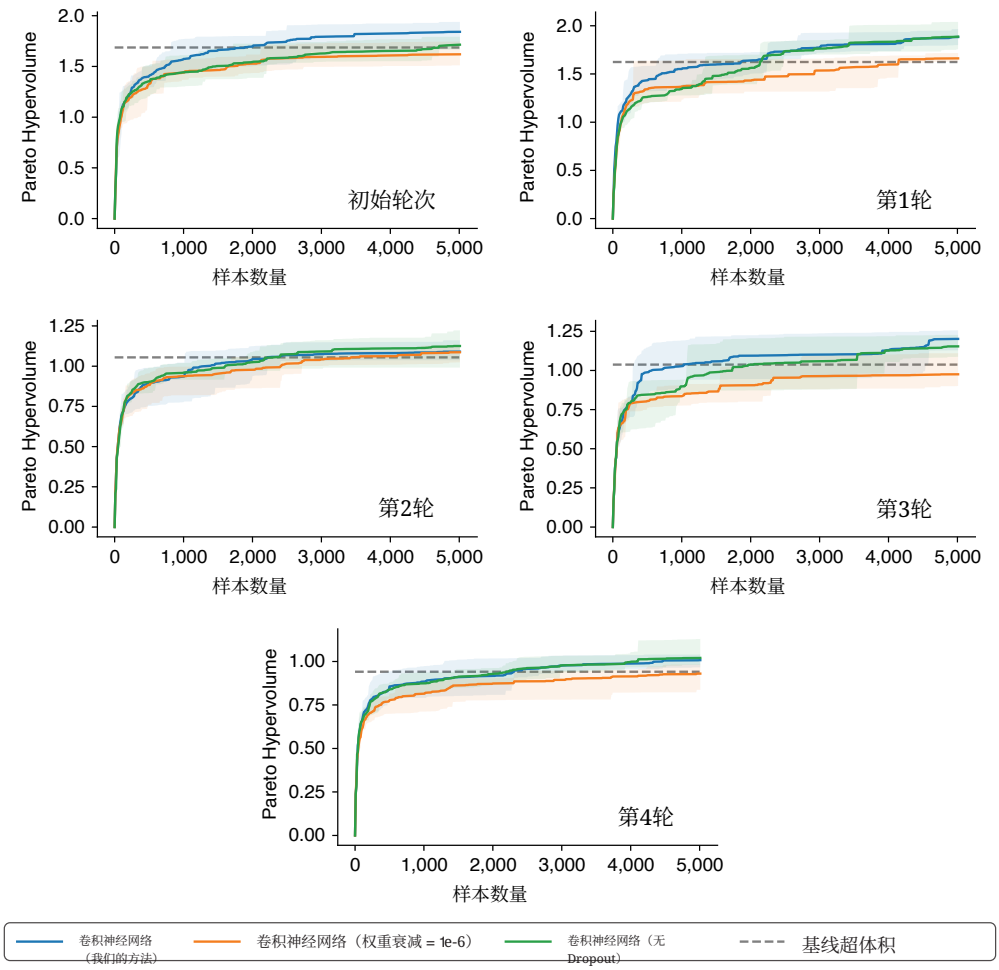


图 S12. 网络正则化对 NMO 所有外循环轮次中帕累托超体积增长的影响。 “我们的方法”指我们的超参数设置，其中包括较大的 1e-2 权重衰减以及一个倒数第二层丢弃层。超体积的单位为 $10^{15}\mathrm{N}^2\mathrm{m}^{-4}$。

通过调整卷积神经网络的超参数，我们发现网络正则化在加速超体积增长方面发挥着重要作用。在本次实验中，我们将卷积神经网络与两个正则化程度较低的变体进行了比较：一个采用较小的权重衰减（1e-6），另一个则在全连接层之前不使用 Dropout。如图 S12所示，我们的网络优于正则化程度较低的版本，并在大多数测试案例中实现了更好的超体积增长。尽管不使用 Dropout 的变体在第 2 轮和第 4 轮略有胜出，但采用较小权重衰减的变体始终落后。考虑到训练数据量相对较少，一种合理的解释是，正则化可以防止网络过拟合，并提升其对未见样本的泛化能力。因此，经过适当正则化的网络能够更好地在仿真中发现性能优异的样本。

作为一项补充测试，我们评估了 NMO 最后一次迭代中卷积神经网络在训练数据集上的预测准确度（图 S13）。用于预测杨氏模量的网络准确度很高，平均相对误差小于 2%。相比之下，用于预测韧性的网络误差较大，分别为 16.7% 和 13.6%。尽管如此，在本例中并不需要达到完美准确度，因为改进的 NSGA-II 中用于仿真验证的微结构是依据帕累托支配而非性能数值选出的。因此，只需正确预测性能排序即可，而这可通过预测值与真实值之间的相关系数（r）来衡量。此处，我们的韧性预测网络达到了$r > 0.97$，并且其超体积增长速度明显快于其他进化算法。顺便指出，寻找最佳网络架构或超参数设置不在本研究范围之内，因此留待未来研究。

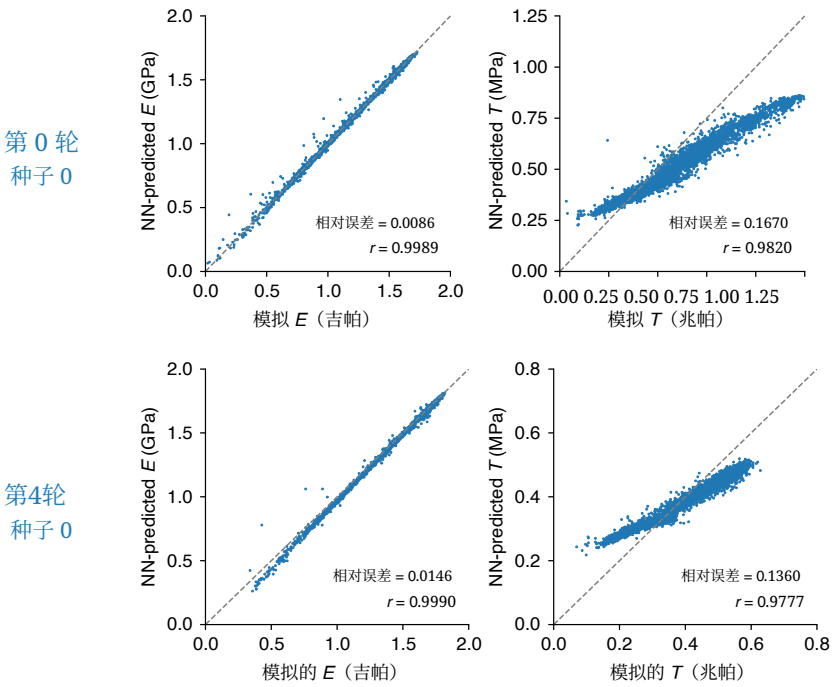


图 S13。 NMO 最后一次迭代中的卷积神经网络预测精度。所示示例为随机种子为 0 的第 0 轮和第4轮。模拟结果被视为真实值。*r* 表示相关系数。

3.4 验证样本选择

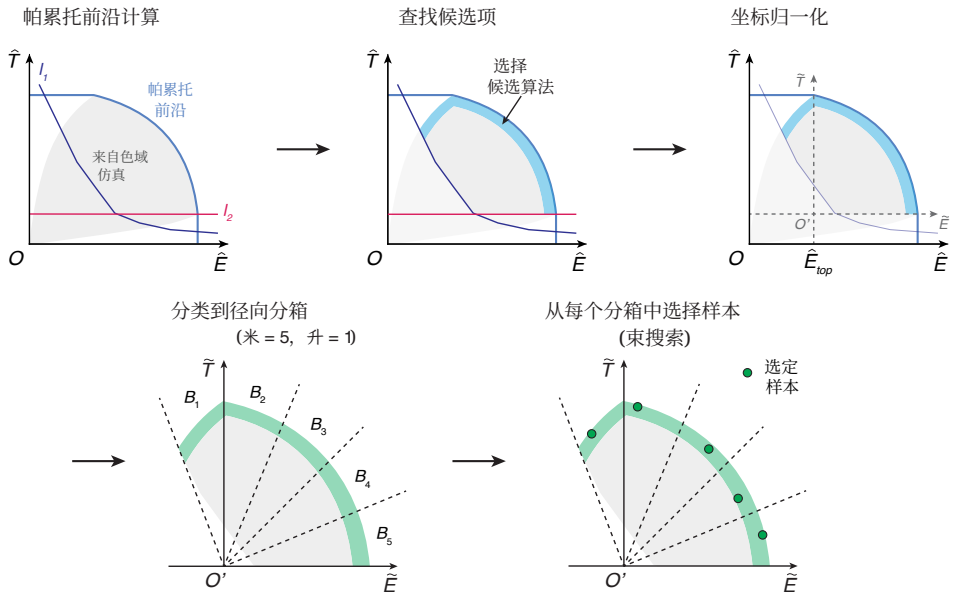


图 S14。帕累托前沿附近验证微结构的选择过程。$M = 5$ 和$L = 1$ 为简明起见，用于此图示。

NMO 发现的模拟色域通常包含大量微结构，而由于实验预算有限，只会选取少量样本进行物理验证。总体而言，选定样本应覆盖宽广的性能

范围内，并且外观上能够与现有样本区分开来。为满足这些要求，我们提出了一种两阶段筛选方法，如图所示。S14。

第一阶段筛选出最接近色域边界的样本。根据色域的形状，可以采用多种方法完成这一步。我们采用了一种简单的方法，按照帕累托支配关系对色域内的样本进行排序。根据定义，整个色域中的帕累托最优样本位于第1级，而第i级包含部分色域的帕累托前沿上的微结构，其中更高级别中的微结构已被移除。我们将截至第3级的样本视为靠近边界的样本。同时，色域被两条基准线l_1和l_2相交。l_1是一条连接均质复合材料物理测量值的折线。l_2是一条水平线，经过仿真中杨氏模量最大的样本。既靠近边界又位于基准线上方的样本被视为筛选候选对象。

在下一阶段，候选样本 S ⊂X 被划分为两组径向分箱：$B_1, B2, \cdots$、B_L和 B_{L+1}、$B_{L+2}, \cdots$、B_M。M 表示要选取的样本总数，L 表示要从第一组中选取的样本数量，且 $0 \le L < M$。为此，我们将 S 中样本的属性映射到$[-1,1] \times [0,1]$中的归一化性能空间。杨氏模量和韧性都经过线性映射，但杨氏模量有两种特殊情况。如图 S14 所示，韧性最高样本的杨氏模量 $\hat{E}^{top}$ 默认映射为零。然而，如果 $\hat{E}^{top}$ 超过杨氏模量范围的中点，映射结果将无法落入$[-1,1]$，因此在这种情况下将中点映射为零。在归一化性能空间中，径向分箱由从原点发出的 M +1条射线划分，记作 $r_1, r2, \cdots$、r_{M+1}。无论 L 如何变化，r_{L+1}和 r_{M+1}始终与坐标轴重合。如果 $L > 0$，则 r_1 经过 S 中方向角最大的样本（方向角从水平正方向起算），φ_{max}。第 i 个径向分箱 B_i指 r_i与 r_{i+1}之间的区域，我们用 S_i表示划分至 B_i的 S 的子集。$B_1, B2, \cdots$、B_L 大小相同，且位于第二象限；其余分箱大小相同，且位于第一象限。L 的取值根据 φ_{max} 按照以下规则确定

$$L = \begin{cases} 0 & \varphi_{max} < \dfrac{\pi}{2} + \varphi_{th} \\ \left\lceil \left(1 - \dfrac{\pi}{2\varphi_{max}}\right) M \right\rceil & \varphi_{max} \ge \dfrac{\pi}{2} + \varphi_{th} \end{cases}, \tag{15}$$

其中 $\varphi_{th} = \pi/36$ （即 5°）。实际上，当 φ_{max} 至少为 95°时，L 是一个最小值，使第二象限中的区间不大于第一象限中的区间。

随后求解了以下组合优化问题，以搜索一组与物理测量结果差异最大的微结构图案。令 R 表示计算流程发现的微观结构集合，并令 $\Omega = (x_1, x2, \cdots, x_M)$（其中，对于 $i = 1, 2, \cdots, M$，$x_i \in S_i$）表示一种可能的选择。目标是最大化每个 x_i与 $R \cup \Omega$中其余样本之间的平均 L1距离。

$$\Omega^* = \underset{\Omega}{\operatorname{argmax}} \frac{1}{M} \sum_{i=1}^{M} \min_{u \in R \cup \Omega \setminus \{x_i\}} \|x_i - u\|_1 . \tag{16}$$

当 S 包含超过 100 个样本时，该问题很可能无法通过枚举求解，因此我们使用束搜索算法寻找近似解。束宽设为 100，以便在可接受的计算成本下保持解的质量。

3.5 外循环

外循环在力学测试仪与模拟器之间按如下方式进行。第 0 轮中，力学测试仪对基材（刚性材料、柔性材料以及界面材料）进行了物理测量。随后，我们的系统通过系统辨识使仿真结果与实验结果相匹配。每种材料分别进行独立的系统辨识过程，该过程仅优化与该材料相关的仿真参数，包括杨氏模量、泊松比、能量密度阈值和阻尼系数。由此得到阻尼系数的三个优化值，并选取其中位数。使用校准后的模拟器，我们的系统运行内循环，在仿真中寻找杨氏模量与韧性之间最优权衡的微结构。如前所述，我们使用改进的 NSGA-II 算法计算模拟帕累托前沿，并将 NMO算法留作与其他优化算法的单独比较。NSGA-II算法在五个不同的随机种子下运行，仿真预算为 2×10^4 个样本。随后，将得到的性能范围合并为一个包含约 10^5 个样本的性能范围，并在帕累托前沿附近选取 8 个验证微结构，送回力学测试仪进行验证。

从第1轮开始，我们的系统维护了一个包含经物理测量的微观结构的数据集，起初有18个设计。除了第0轮提出的设计外，该数据集还包括通过分层抽样抽取的10个随机微观结构，抽样依据为 ϕ (表 S5)。每个 ϕ 区间内的微观结构图案通过随机指定一个ϕ 值，并在零矩阵中填入相应数量的1来生成。这些随机微观结构有助于正则化系统

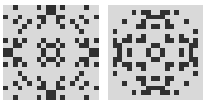
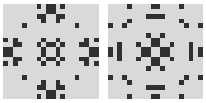
ϕ 区间	图案
$0.5 \leq \phi < 0.6$	
$0.6 \leq \phi < 0.7$	
$0.7 \leq \phi < 0.8$	
$0.8 \leq \phi \leq 0.85$	

表 S5. 按 ϕ 分类的系统辨识数据集中的随机微结构设计。

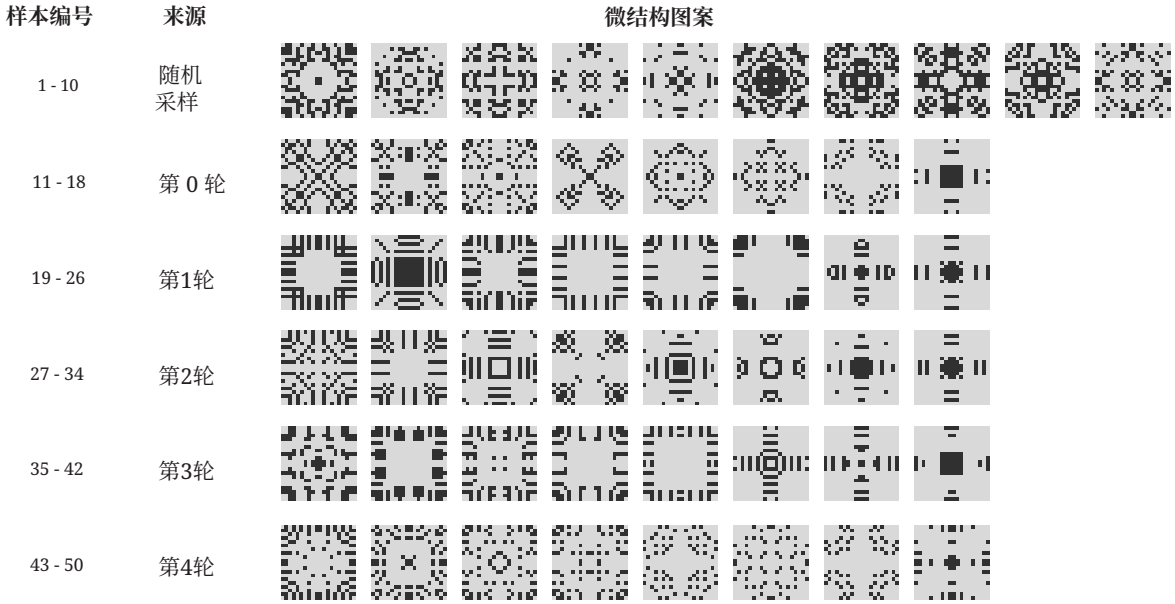


图 S15. 计算流程发现的微观结构。 第一行由系统辨识数据集中的 10 个随机图案组成。后续各行是外循环轮次中提出的图案。

辨识，尤其是在数据集较小的外循环早期轮次。如图3b所示，力学测试仪向模拟器提供了数据集中所有微观结构的物理测量结果，以通过系统辨识提高模拟器的准确性。不同于第0轮，系统辨识仅使用微观结构的实验数据进行。随后，模拟器计算其色域，并向力学测试仪提出8个帕累托最优设计以供验证。之后，这些设计被添加到微结构数据集中。因此，在第$n+18$轮结束时，系统辨识数据集包含8个微观结构（$n \geq 0$）。外循环在$n = 4$时停止。

外循环中发现的微结构复合材料（图 S15）与均质复合材料进行了比较。在性能权衡优于对应均质材料的微结构中，我们选取了帕累托前沿附近且韧性提升超过 1 的五个最佳样本。5×基准线（表 S6）以上的韧性提升。样本 2 的杨氏模量和韧性提升幅度均为最大，分别为 1。61×和 2。76×。样本 1 和 3 的韧性提升也超过 2×。这些结果充分证明，与均质复合材料相比，计算设计的微结构复合材料在杨氏模量和韧性之间实现了优越得多的权衡。我们还

样本	ϕ	属性		提升（均质）		提升（基准）
		E (吉帕)	T (兆帕)	E (×)	T (×)	T (×)
1	0.79	1.402	0.491	1.35	2.00	**7.01**
2	0.85	1.810	0.473	**1.61**	**2.76**	6.75
3	0.85	1.764	0.458	1.54	2.48	6.53
4	0.84	1.790	0.355	1.27	1.76	5.07
5	0.85	1.807	0.304	1.28	1.59	4.33

表 S6. 我们的方法发现的五种最佳微观结构的性能。 其改进倍数是相对于均质复合材料和基材计算的。对于均质复合材料，在假设另一项性能相同的情况下计算某项性能的改进幅度。最大改进倍数以粗体标出。

计算了.....的提升　　在韧性方面，跨基材表现最佳的样本（VW+ 的韧性高出 0.070 M Pa，高于 TB+），而样品 1 的韧性比 VW+高出 7.01×。

注释 S4 关于帕累托最优微观结构的分析

4.1 微观结构族的发现

通过嵌套循环流程，从杨氏模量与韧性之间具有近似最优权衡的微结构中发现了微观结构族。在此，我们根据图案和力学性能，将 11 个近似帕累托最优微观结构归为 4 个族（图4b）。这些微结构被称为种子微结构，并用于生成各族中的图案变体。随后，我们通过确认生成的微结构具有与种子微结构相似的性能，验证了发现的这些族。具体步骤如下。

族	N	相对误差：E (%)				相对误差：T (%)			
		R4		FS		R4		FS	
		Avg.	Max.	Avg.	Max.	Avg.	Max.	Avg.	Max.
1	3	10.77	19.98	**6.25**	12.56	40.17	48.25	**4.55**	8.28
2	4	2.99	5.45	**1.22**	3.45	41.61	56.81	**11.32**	21.29
3	2	7.69	9.64	**2.13**	4.22	47.42	62.99	**2.69**	5.35
4	2	3.96	5.76	**2.16**	4.29	33.03	43.64	**0.45**	0.73

表 S7。 系统辨识后各微结构族中模拟器的预测误差。 利用各族中种子微结构的性能，将家族特定模拟器 (FS) 与第4轮 (R4) 中的模拟器进行比较。 N 表示样本数量。较优值以粗体标示。物理测量值及其对应的预测值见表 S14 和S15。

首先，我们在每个族中进行系统辨识，以获得家族特定模拟器。系统辨识涵盖所有接近帕累托最优的样本，但为其分配了不同的权重。族内样本的权重恒为 1，而其他样本的权重为 0.1，以实现正则化。正如表S7所示，这种家族特定的系统辨识能够提升族内的拟合质量。由于仅使用种子微结构和其他帕累托最优微观结构，因此，与第4轮中的模拟器相比，模拟预测与物理测量之间的匹配更为接近。在韧性预测中，预测误差的差异尤为明显：家族特定 (FS) 模拟器在三个族中的相对误差小了一个数量级。

为生成微结构图案的变体，我们围绕种子微结构进行了密集的进化采样。与 NSGA-II 类似，采样算法以该族中的种子微结构为起点，并使用我们改进的变异算子迭代生成其他微结构。不过，算法不会对亲代进行锦标赛选择，也不会在种群中进行竞争；如果某次变异尝试导致违反设计约束，就会直接舍弃。在每次迭代中，算法会持续生成变异后的微结构，直到找到 10 个尚不存在的微结构，然后使用家族特定模拟器对其进行评估。变异后的微结构与最近的种子微结构之间，图案差异最多限制为 16 个像素（占全部像素的 4%）。第3.3节中的哈希表用于去重。随着哈希表条目迅速填满，生成新的微结构也变得越来越困难。因此，算法限制每次最多可提出 3×10^5 个微结构

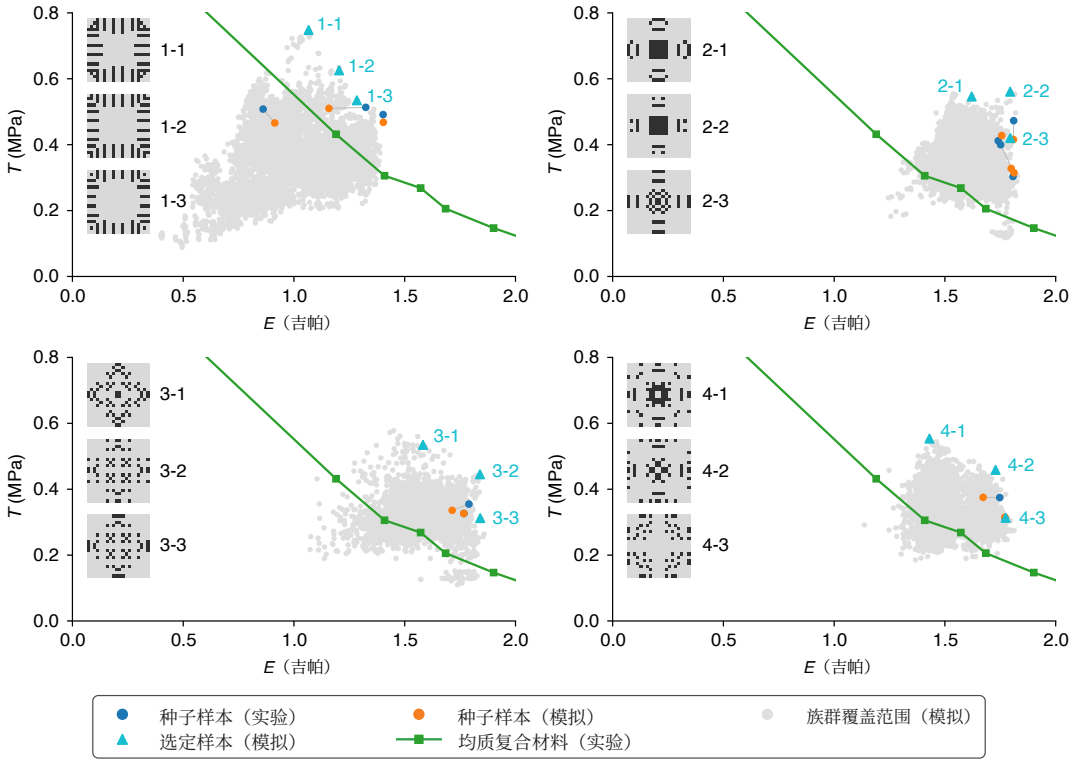


图 S16. 每个微结构家族在密集采样后的色域，以及用于验证的帕累托前沿附近的选定样本。 每个族包含约 7,000 到 9,000 个样本。“实验”是物理测量的简称，“模拟”是模拟预测的简称。种子微结构的测量值和预测值以连线相连，用以表示误差。

每次迭代；如果未能在限定时间内完成一次迭代，算法就会终止。我们的算法为全部四个族生成了局部覆盖范围，如图 S16所示。

最后，我们对局部形态空间中三个具有近帕累托最优预测性能的微结构进行了物理测量。样本采用第 3.4 节中的算法选取（图 S16）。实验结果显示，它们的性能与种子微结构相当（表 S13），从而验证了密集采样后，同一族中微结构之间的性能相似性得以保留。

4.2 子族中的降维

为了进行更深入的分析，我们根据与种子微结构的相似性，将每个微结构家族划分为多个子族；每个子族由一个种子微结构及密集采样中规定的 16 像素半径范围内的其他微结构组成。我们在每个子族中运行 Isomap，将 400 维微结构图案降至二维嵌入空间（邻域大小为 10），如图 S17 所示。图中以颜色编码表示微观结构性质。红色通道的强度越高，表示韧性越好；蓝色通道则表示杨氏模量。我们的密集采样算法能够从种子微结构生成多样的变体。这些变体中可以看到新的形状特征，例如单个像素、梁、弧线和小块软材料。

关于 Isomap 的距离度量，我们使用推土机距离（EMD），而不是欧几里得距离。EMD，也称为一阶瓦瑟斯坦距离（*55*），是最优传输理论（*57*）中最初定义的一种概率分布间的度量。直观地说，它衡量的是将一堆土重新分配成另一堆土所需的最小功（定义为质量乘以距离）。与欧几里得距离相比，EMD 能更好地反映微结构图案之间的形状差异，因为它同时考虑了像素值和位置。由于 EMD 的原始定义无法直接用于微结构图案，我们将图案转换为四分之一尺寸的归一化直方图，以表示离散概率分布。如图 S18所示，转换规则将软材料的像素视为形状特征，并为输出直方图中相应的单元赋予非零值。相反，与刚性材料对应的其他单元则设为零。因此，两个微结构 x_a 和 x_b 之间的 EMD 使用一阶瓦瑟斯坦距离计算

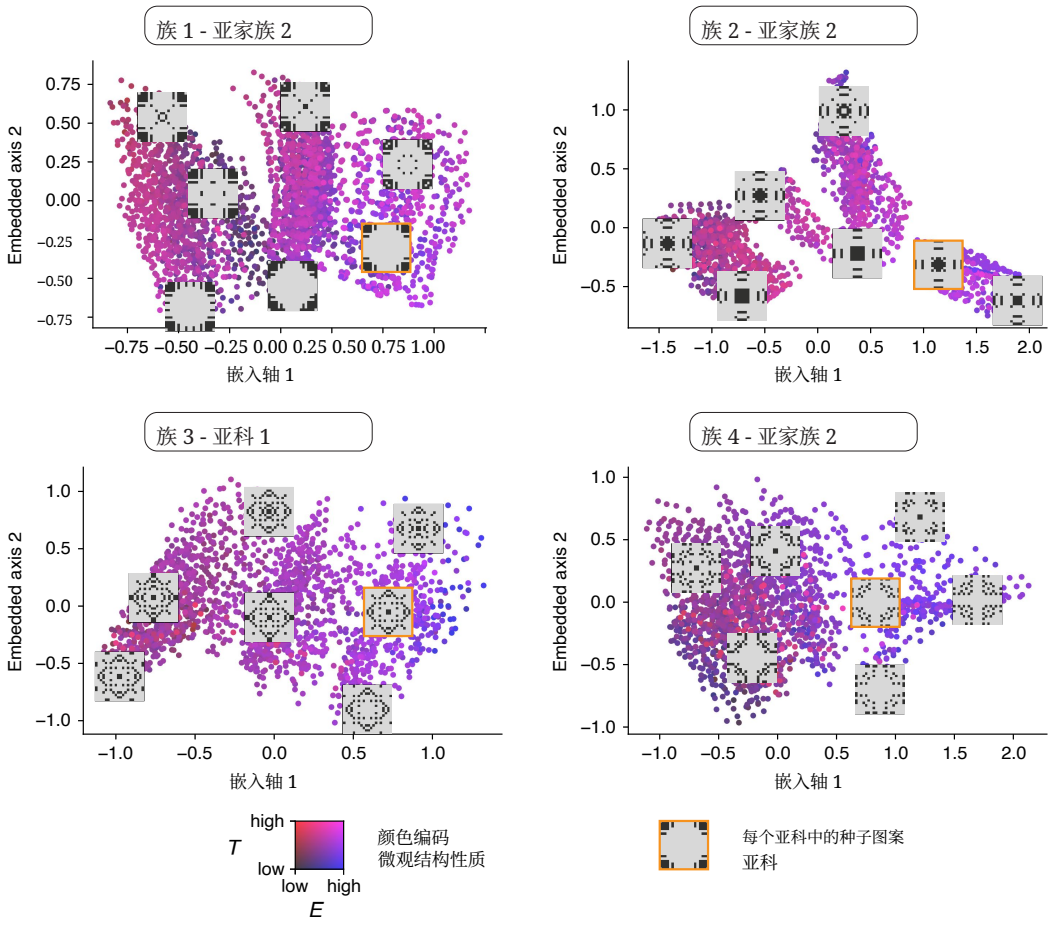


图 S17。 四个子族的 Isomap嵌入空间，并标注了示例图案。 每个子族包含约 2,000 至 3,000 个微观结构，其中一部分以可视化形式展示。机械性能通过颜色编码（E：蓝色通道；T：红色通道）。种子模式以橙色方框突出显示。

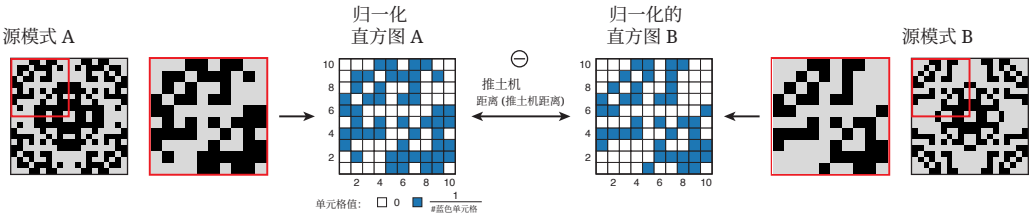


图 S18。两个微结构图案之间的推土机距离（EMD）计算。

通过其归一化直方图 h_a 和 h_b（h_a，$h_b \in [0,1]^{100}$）计算。

$$\begin{aligned} \mathrm{EMD}(x_a, x_b) &= W_1(h_a, h_b) \\ &= \min_{\pi \in \Pi(h_a, h_b)} \pi \otimes D, \end{aligned} \tag{17}$$

其中，$\Pi(h_a, h_b)$ 是从 h_a 到 h_b 的运输方案集合 π，定义为

$$\Pi(h_a, h_b) = \left\{ \pi \in \mathbb{R}^{100\times 100} \,\middle|\, \pi \geq 0, \pi \mathbf{1} = h_a, \text{and } \pi^{\mathrm{T}} \mathbf{1} = h_b \right\}. \tag{18}$$

在土方搬运的类比中，π 列出了从一个单元格转移到另一个单元格的土方量。D 是直方图单元格之间的欧几里得距离矩阵。$A \otimes B = \langle A, B \rangle_{\mathrm{F}} = \mathrm{tr}(A^{\mathrm{T}} B)$ 是两个形状相同矩阵的弗罗贝尼乌斯内积。

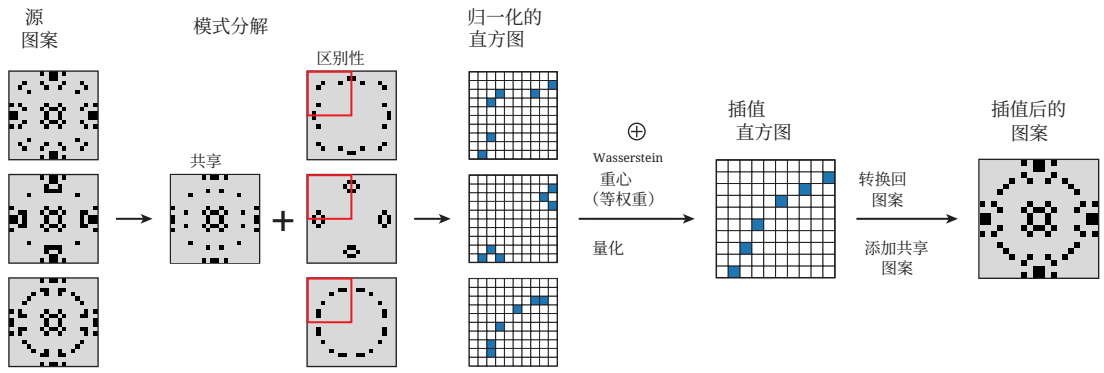


图 S19. 基于 Wasserstein 重心，在 Isomap嵌入空间中对相邻微结构图案进行插值。

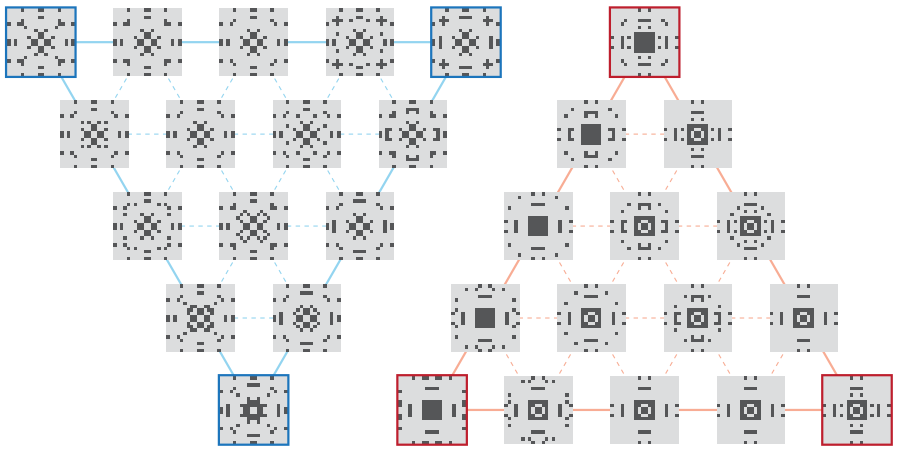


Fig. S20. 同一亚科中三个微观结构之间插值的示例。

亚科的 Isomap嵌入空间可通过密集采样未覆盖的样本进一步细化。为生成这些样本，我们基于 Wasserstein 重心（K个相邻微结构图案 $x_1, x2, \cdots, x_K$）构建了插值模型；该方法广泛用于形状插值（*56*）。插值算法如图 *58*所示。每个源模式都被分解为两部分：包含共享形状特征的共有部分，以及包含区别性特征的专属部分。专属部分被转换为四分之一尺寸归一化直方图，记为 $\mathrm{h}_1, h2, \cdots, h_K$。我们的模型通过计算这些直方图的 Wasserstein 重心 h，在权重赋值 $w_1, w2, \cdots, w_K$ 下对其进行插值，定义如下

$$\bar{h} = \underset{h}{\operatorname{argmin}} \sum_{i=1}^{K} w_i W_2(h_i, h). \tag{19}$$

$W_2(\cdot,\cdot)$ 表示二阶 Wasserstein 距离，

$$W_2(h_a, h_b) = \min_{\pi \in \Pi(h_a, h_b)} \pi \otimes D_2, \tag{20}$$

其中 $D_2 = D \circ D$ 是成对平方距离矩阵（$\circ$ 表示 Hadamard 积）。通过求解以下等价的线性规划问题（*56*），得到从每个

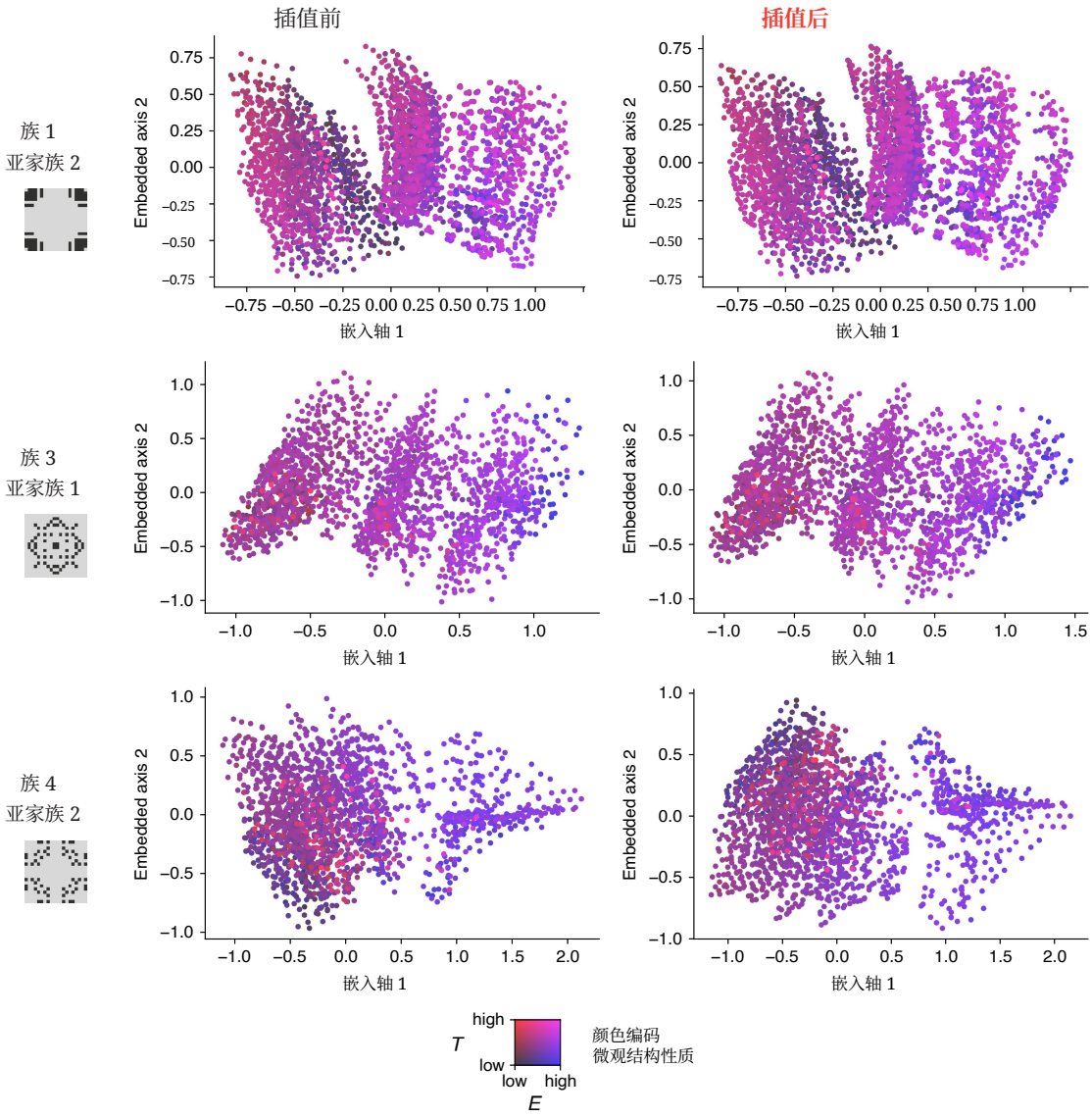


图 S21. 使用插值细化前后三个子族的 Isomap 嵌入空间。微观结构性质以颜色编码。

$\bar{h}_i$到 $h(i=1,\ 2,\ \cdots,\ K)$的最优运输方案。

$$\begin{aligned} \min_{\{\pi_i\}} \ & w_i\left(\pi_i \otimes D_2\right) \\ s.t. \quad & \pi_i \geq 0, \quad \forall i = 1,2,\cdots,K \\ & \pi_i \mathbf{1} = h_i, \quad \forall i = 1,2,\cdots,K \\ & \pi_i^{\mathrm{T}} \mathbf{1} = \pi_1^{\mathrm{T}} \mathbf{1}, \quad \forall i = 2,3,\cdots,K \end{aligned} \tag{21}$$

之后，$\bar{h}$通过 $\bar{h} = (\pi_1^*)^{\mathrm{T}} \mathbf{1}$得到。为了将插值直方图转换回微结构图案，$\bar{h}$被量化为一个二值矩阵，用于指示所得图案左上四分之一部分的材料分配。设 c_i 为 h_i 中所有非零单元格的统一值，$c = \left(\sum_{i=1}^{K} c_i\right)/K$。若 $\bar{h}$中的单元格不小于 c，则将其转换为软材料；否则转换为刚性材料。微结构图案插值示例见图 S20。

在实际操作中，我们在二维嵌入空间中进行了德劳内三角剖分，以确定相邻的微结构，即$K = 3$。最长边长度介于族直径（即嵌入空间中相距最远的两点之间的距离）的 4% 至 40% 之间的邻域被标记为候选。随后，在这些候选邻域中

族	1			2				3		4		总计
亚科	1	2	3	1	2	3	4	1	2	1	2	
之前	3,251	2,959	3,313	1,862	1,861	1,917	1,859	1,860	1,862	1,997	1,915	24,656
之后	3,328	3,164	3,371	1,939	1,904	2,054	1,903	1,988	1,964	2,112	2,044	25,771
增幅（%）	2.37	6.97	1.75	4.14	2.31	7.15	2.37	6.88	5.48	5.76	6.74	4.52

表 S8. 插值导致子族规模的增加。

通过均匀网格插值生成新的微结构；若它们距种子微结构的距离在 16 像素半径内，且不违反任何结构约束，则将其加入亚科。最后，使用 Isomap 重新计算细化后的嵌入空间。我们的插值算法使每个亚科的样本平均增加了约 5%（表S8）。图 S21对比展示了插值前后的 Isomap 嵌入空间。

4.3 增韧机制

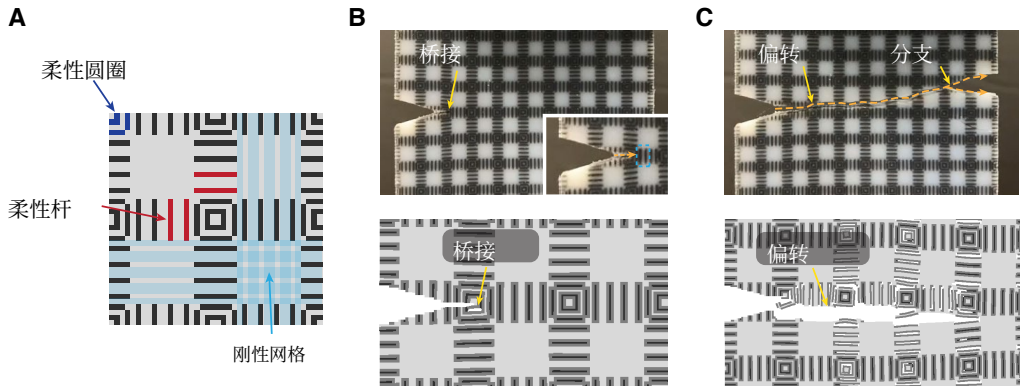


图 S22. 族 1 中微观结构的主要形状特征（A）和增韧机制（B、C）。

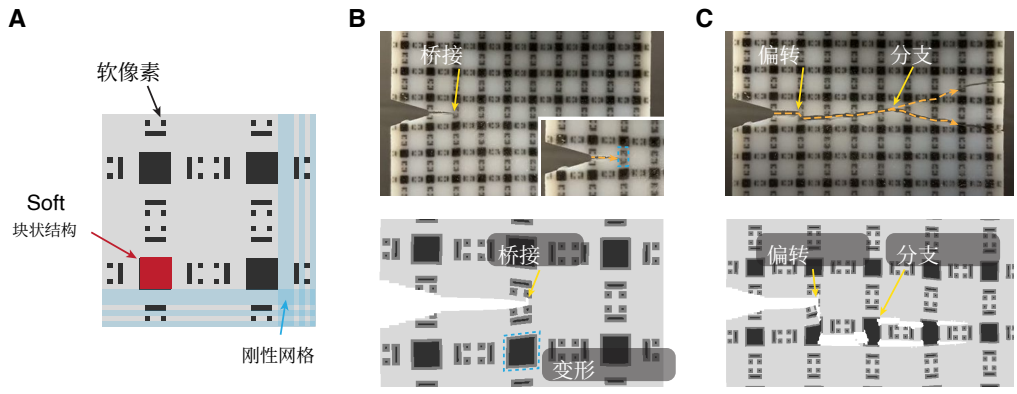


图 S23. 族 2 中微观结构的主要形状特征（A）和增韧机制（B、C）。

通过分析力学测试和仿真期间验证样本的视频记录，研究了各微观结构族的内禀增韧机制。我们总结了每个族最具代表性的机制，并将其与微结构图案中的形状特征联系起来，如下所示。

族 1 保持相对较高比例的软像素，呈条形结构或块状结构，如图 S22A 所示。该族位于性能范围的左侧，此处杨氏模量相对较小。为保持适当的

刚度，连续的刚性材料区域形成水平和垂直网格（图 S22A 中的刚性网格）。该族的一个区别性特征是软材料形成的平行条带，其优点有二。当平行条带垂直于拉伸方向时，它们通过弹性变形增强抗应力能力；而当其与拉伸方向平行，或直接面对裂纹扩展时，则能有效吸收能量并减缓裂纹扩展。桥接和偏转效应是最显著的增韧机制（图 S22B 和 S22C）。断裂过程中可观察到锯齿状裂纹路径，从而产生高韧性。在软材料的捕获效应下，传播能不断积累，并通过分支裂纹耗散（*42*）。

与族 1 不同，族 2 将软像素集中在单元中心的十字形带中（图 S23A）。微结构通过软材料块的弹性变形承受更大的应变，如图 S23B 中的红色方框所示。值得注意的是，仿真准确地反映了这种变形。刚性网格也有助于提高杨氏模量。桥接、偏转和分支（图 S23B 和 S23C）是该族中重要的抗裂纹机制。

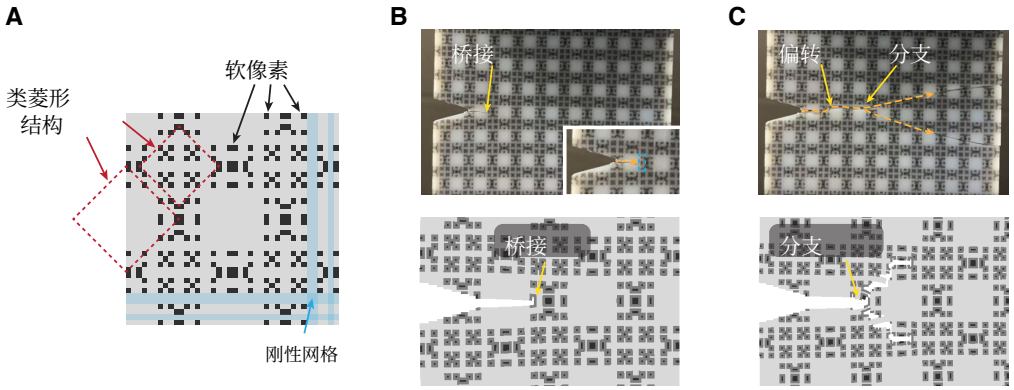


图 S24。主要 族 3 中微结构的形状特征（A）和增韧机制（B、C）。

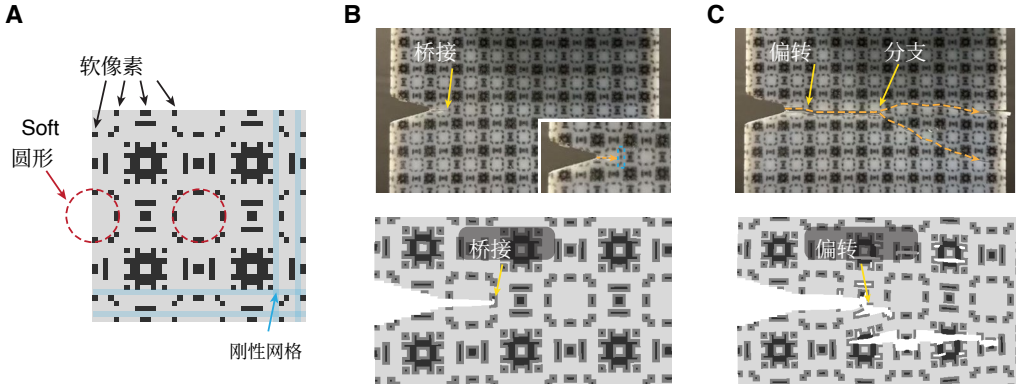


图 S25。主要 族 4 中微结构的形状特征（A）和增韧机制（B、C）。

虽然上述两个族中的软像素分布较为集中，但在族 3 中，软像素大多分散分布。离散的软像素在角落处形成类菱形结构的四分之一，并在中心形成另一个类菱形结构（图 S24A）。与此同时，一些软像素位于边缘以及缺口尖端前方。这些像素通常位于裂纹扩展路径上，形成能量耗散区，从而延缓裂纹扩展。由于界面比软材料更坚固，软像素会作为缺陷引导裂纹扩展。这种偏转效应能够显著增加裂纹长度并耗散更多能量。密集采样过程中引入的额外软像素不仅丰富了该族的多样性，还提高了整体抗应力能力。

对于族 4，角落周围离散的柔性像素大致形成圆形轮廓的四分之一（图S25A）。与族 3 类似，一些柔性像素被布置在边缘处，通过减缓裂纹扩展速度并通过弹性变形耗散能量来延缓裂纹扩展。刚性网格等基本特征得以保留，以维持杨氏模量。

在该族中也观察到了相同的抗开裂机制，例如桥接、偏转和分支（图 S25B 和S25C）。由于族 3 和族 4 的结构存在一定相似性，我们观察到它们表现出相当的力学性能。由于刚性材料占主导地位， $0.8 \leq \phi \leq 0.85$两个族的微结构往往具有更高的杨氏模量，但会在相对较小的应变下断裂。

注释 S5 案例研究：刚度-孔隙率权衡

通过精心设计几何结构，多孔结构可以实现轻质且坚固的材料。在许多工程应用中，人们希望设计出兼具高刚度（杨氏模量大）和轻质特性（孔隙率高）的微结构。然而，孔隙率与刚度往往相互矛盾，因为孔隙率越高，通常支撑外力的材料就越少，材料也就越弱。鉴于刚度-孔隙率权衡对工程领域影响重大，固体力学和拓扑优化领域已对此进行了广泛研究。本节直接应用我们的优化流程，确定多孔微结构设计中刚度与孔隙率之间的帕累托前沿。我们表明，该流程不仅能有效发现帕累托前沿，而且具备足够的可扩展性，能够高效探索规模更大的组合设计空间。

5.1 问题设定

设计空间。 我们考虑由单一材料构成的周期性多孔结构，其中每个单元由规则网格182×104 个元素组成（图 S26A）。每个元素可以是空隙，也可以填充固体材料。由此形成的设计空间远大于我们在刚度-韧性权衡中考虑的 20×20 图案。然而，有效的微结构设计必须包含单连通固相，才能表现出非零刚度。因此，我们采用文献（*73*）中介绍的拓扑生成算法来生成有效的随机设计。同时，我们将孔隙率范围限定在 0.1 至 0.75，以排除材料过多或过少、缺乏实用性的设计。为进一步确保生成的设计具有各向同性，我们要求所有微结构图案都具有*p6m* 对称性。

制造与测量。 测试样品制备于厚度为 1.6 mm 的丙烯酸板上（McMaster-Carr 8560K172）。通过激光切割（Universal Laser Systems VLS6.75）在丙烯酸板上刻制微结构图案。具体而言，对激光进行编程，使其沿材料与空隙之间的界面切割，从而形成设计好的多孔结构（图 S26B）。每个晶胞的尺寸为宽 15 mm、高 26 mm，因此像素尺寸为 0.14 mm。由于激光切割机的分辨率低于 0.05 mm，该制造方法具有足够高的精度。每个样本由 3×5 个晶胞组成，总尺寸为宽 75 mm、高 78 mm。此外，在微结构两端各连接一个高度为 50 mm 的矩形夹持区域。

我们使用拉伸试验机（配备 500N 负荷传感器的 Instron，见图 S27A）测量微结构设计的有效杨氏模量。测试样本通过两个气动夹具固定在 Instron 上（压力为每平方英寸 100 磅）。在拉伸试验过程中，Instron 以 1 mm/分钟的速率将每个样本拉伸至 0.1 mm。随后，根据测得的力-位移曲线斜率和样本尺寸计算样本的有效杨氏模量。为证明由 3×5 个晶胞组成的样本边界效应可以忽略不计，我们使用不同尺寸的样本测量了有效杨氏模量：2×4、2。5×4以及 3×5 个晶胞。根据图 S27B，杨氏模量在我们指定的样本尺寸处趋于收敛，表明 3×5 个晶胞的尺寸已经足以减小边界效应。此外，我们沿多个方向测量了同一微结构的多个杨氏模量，以验证其各向同性。具体做法是制备带有倾斜微结构的样本。如图 S27C 所示，该微结构设计在不同方向上的杨氏模量几乎相同。在所有实验中，我们对每个测试样本测量 4 次，并报告杨氏模量的平均值和标准差。由于激光切割机具有足够高的分辨率，且丙烯酸板相对较薄（3 mm），因此这些测量结果具有一致性。尽管如此，我们仍额外制备了三个具有固定微结构设计的样本，测得的杨氏模量差异小于 1%。因此，为节省时间和能量，在本案例研究中，我们对每种微结构设计仅制备一个样本。

仿真。 我们针对本研究开发了一个有限元模拟器，用于计算多孔微结构的均匀化杨氏模量。有限元网格的尺寸与微观结构单元相同（即 180×104 个元素）。由于刚度计算属于线性问题，我们采用线弹性模型描述基体材料。该模型由两个公开参数表征：基体材料的杨氏模量 E_{base} 和泊松比 ν_{base}。每个有限元均以材料密度参数化，该密度是介于 0 和 1 之间的连续变量。密度为 1 表示基体材料，密度为 0 则表示空隙。基于均匀化理论，我们利用周期性边界条件计算微观结构的均匀化刚度张量，并据此推导出多个方向上的均匀化杨氏模量。为确保材料各向同性，我们选取最小杨氏模量作为结构优化的目标。此外，我们还在模拟器中实现了梯度计算和 SIMP，以便将我们的流程与利用灵敏度信息的现有拓扑优化算法进行比较。

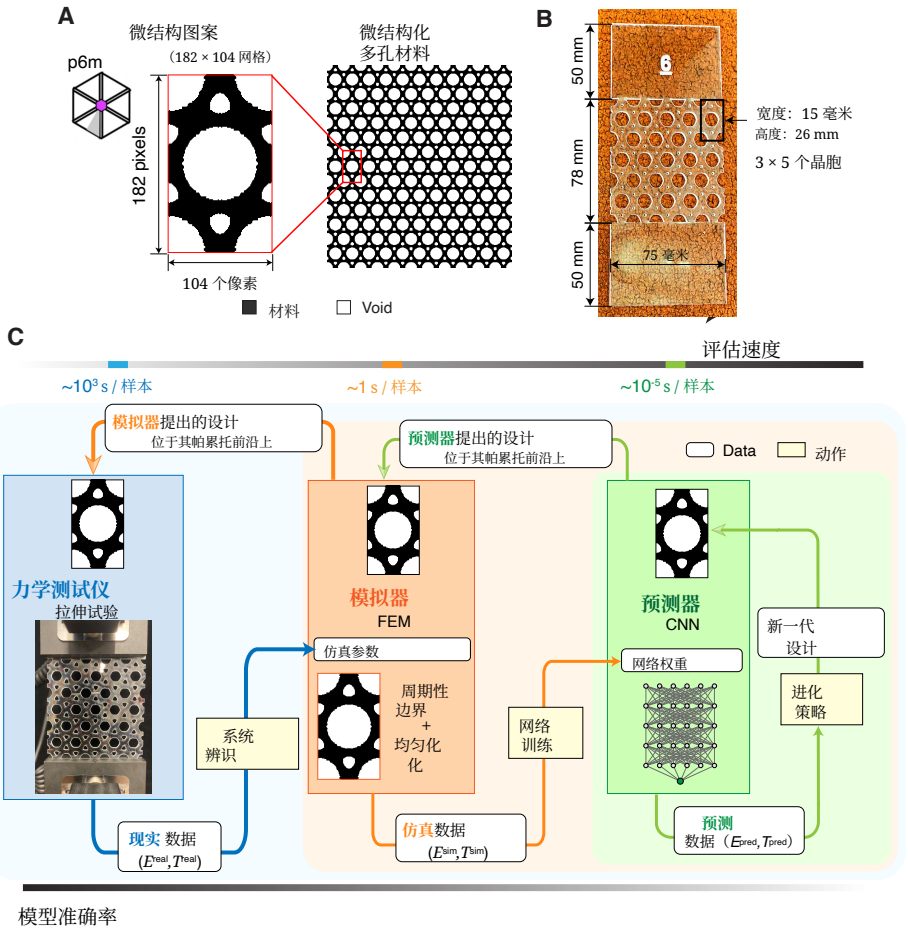


图 S26. 运用我们的方法发现具有最佳刚度-孔隙率权衡的多孔微结构。 **(A)** 多孔微结构由定义在 182×104 规则网格上的周期性晶胞构成，其中每个单元代表材料或空隙。我们对微结构设计施加 p6m 对称性，以实现各向同性。**(B)** 制备完成的多孔微结构样本照片。该样本通过激光切割透明丙烯酸板制成。**(C)** 我们用于发现刚度-孔隙率帕累托前沿的流程。

5.2 结果

在初始轮次中，模拟器的公开参数 E_{base} 和 ν_{base}由丙烯酸板的杨氏模量和泊松比确定。由于供应商仅提供 2.76 吉帕的弯曲模量，未提供其泊松比，因此我们初步估计 $E_{\text{base}} = 2.76$ 吉帕和 $\nu_{\text{base}} = 0.33$。

我们运行了流程（NMO）的内循环，以找到模拟器的帕累托前沿，并从中选出 10 个设计进行实验验证（见图 S28中的橙色虚线和标记）。正如预期，实验帕累托前沿（蓝色）与模拟帕累托前沿（橙色）之间存在明显差距，因为基体材料的确切属性未知。在第1轮开始时，我们的流程通过调整 E_{base} 和 ν_{base} 的取值，对已发现的设计进行了系统辨识。随后，我们再次运行内循环（NMO），并在模拟帕累托前沿上发现了另外 10 个设计。对这些设计进行实物测量并测定其杨氏模量后，我们发现测量结果与模拟预测几乎完全一致（见图 S28 中的第1轮）。与刚度-韧性问题相比，我们的流程仅用一轮就能够弥合仿真到现实的差距。快速取得进展的原因包括：1）刚度是线性属性；2）测试样品的制造过程精确；3）样品的实验行为非常一致；4）模拟器只有两个公开参数。

Hashin-Shtrikman 上界。 我们的流程完成后，我们验证了在实验

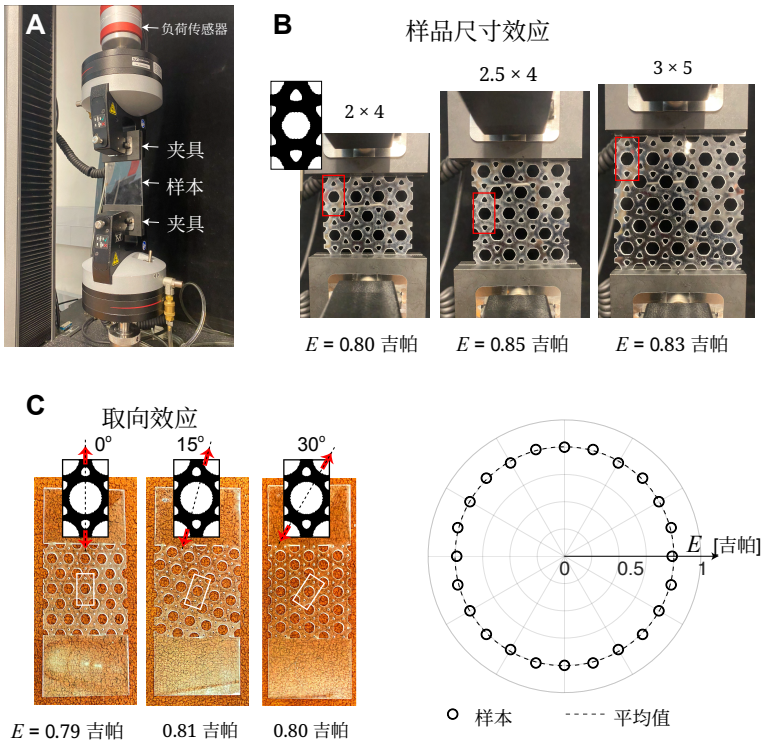


图 S27。 杨氏模量的实验测量。 (A) Instron 在微结构区域外夹持样本的两端。随后，Instron 以每分钟 1 毫米的速率将样本拉伸 0.1 毫米。根据测得的力-位移曲线斜率计算有效杨氏模量。**(B)** 由不同数量单元构成的样本的有效杨氏模量测量值。随着样本尺寸增大，杨氏模量几乎没有变化，这表明 3×5 样本的边界效应足够小。**(C)** 通过微观结构旋转后的样本测得的不同方向上的有效杨氏模量。由于微观结构图案具有*p6m* 对称性，微观结构最多只需旋转至 30°。结果证明，测得的设计具有各向同性的弹性响应。

帕累托前沿上发现的设计在理论上是最优解。1963 年，Hashin 和 Shtrikman 推导出了不同孔隙率下各向同性材料杨氏模量的理论上界，如（*43, 44, 73*），

$$E_{\mathrm{HS}} = E_{\mathrm{base}}(1-\phi)/(1+2\phi), \tag{22}$$

其中，E_{base} 是基体材料的杨氏模量，ϕ 是孔隙率，而E_{base} 表示 Hashin-Shrikman（HS）上界。因此，对于孔隙率为 ϕ的任何多孔材料，其各向同性杨氏模量$E \leq E_{\mathrm{HS}}(\phi)$。方程（22）定义了杨氏模量与孔隙率帕累托前沿的理论上界，为结构优化算法提供了基准。在图 S28中，我们将流程发现的帕累托最优设计的实验和模拟结果与 HS上界（黑线）进行了比较。我们发现，结果与理论上界高度吻合。这证明我们的流程能够找到刚度-孔隙率问题的理论最优解。

5.3 样本效率

本节比较 NMO、改进的 NSGA-II 和 TO 在发现模拟帕累托前沿时的样本效率。这里，改进的 NSGA-II 算法采用了精心设计的变异算子。该变异算子以概率方式添加/移除一组随机选取的边界像素，添加/移除具有随机形状和方向的椭圆，或添加具有随机厚度和方向的线条。控制变异幅度的每个随机数均取自由其速率参数 λ 控制的指数分布。TO 算法实现 SIMP，并使用移动渐近线法（MMA）进行连续梯度优化。根据设计空间的有效孔隙率范围，我们将体积分数约束（$V_{\max} = 1-\phi$）设定在 0.25 到 0.9 之间，并最大化均匀化杨氏模量，以发现接近 HS上界的多孔微结构。鉴于 TO 每次只能生成一个设计，我们针对均匀采样的$V_{\max}$ 开展一系列优化任务，并使用贪心策略安排其顺序，以加快超体积增长。更具体地说，我们选择后续任务，使其在假设达到 HS上界的情况下最大化预期的

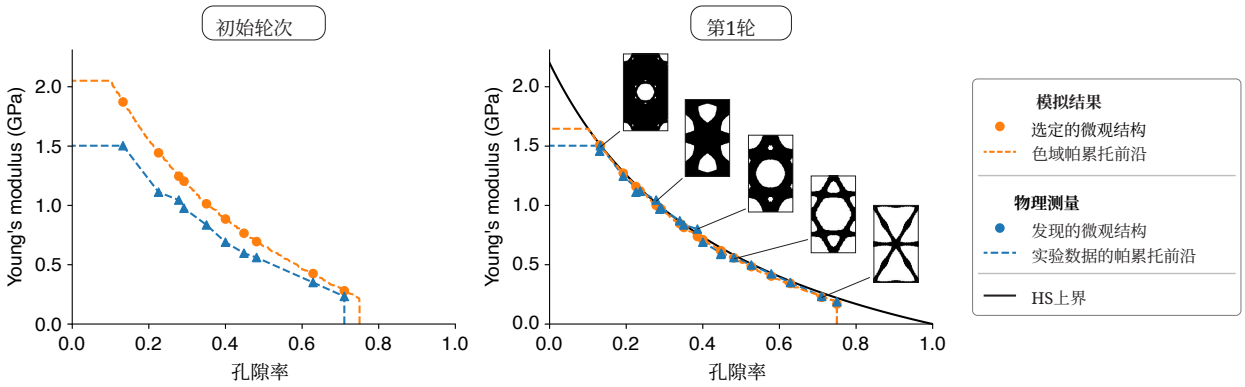


图 S28。 外循环期间实验帕累托前沿和仿真帕累托前沿的演化。 经过一轮后，仿真到现实的差距得以消除。发现的微观结构通过与 HS上界（黑线）进行对比得到验证。我们提供了 HS上界上几个代表性设计的快照。

由已发现设计带来的帕累托超体积改进。如果所得设计在量化后违反体积分数约束，则将其舍弃。

图 S29 展示了对于 NMO、NSGA-II 和 TO-SIMP（使用 MMA 求解器），帕累托超体积如何随仿真评估次数增加而增长。鉴于 TO 每次只能生成一个最优设计，我们使用不同的属性加权组合和有效约束进行一系列优化。根据 HS上界，将这些组合的顺序按照能够最大化理论超体积提升的贪心策略进行排列。同样，NMO 展现出了最高的样本效率，尤其是在优化早期、评估样本少于 1,000 个时（图 S29A）。NMO 仅需 400 次仿真即可达到理论 HS上界 90% 的超体积，NSGA-II 需要 900 次仿真，而 TO 则几乎需要 4,000 次仿真（图 S29C）。这是因为 NMO 内部的神经网络能够快速探索整个设计空间，并在优化开始后向模拟器提出有价值的设计。由于刚度测量是一个线性问题，卷积神经网络只需少量训练数据，就能较好地学习预测杨氏模量。这使得 NMO 能够快速扩展其帕累托超体积。相比之下，TO 必须遵循一系列优化轨迹才能达到整个 HS上界，尽管使用了 MMA，仍会消耗大量中间评估。

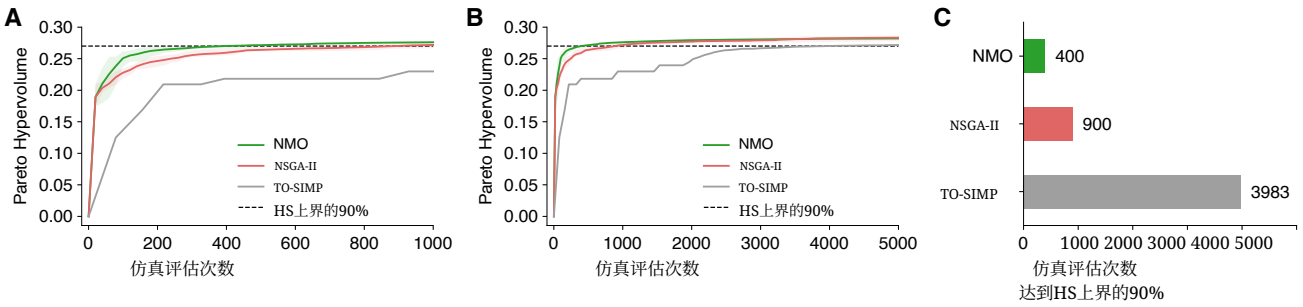


图 S29. NMO 与其他多目标优化算法在帕累托超体积增长方面的比较。比较是在以下预算内进行的：**(A)** 1,000 次仿真评估和 **(B)** 5,000 次仿真评估。**(C)** NMO 和其他基线算法达到理论最大超体积 90% 所需的评估次数。

我们注意到，随着帕累托超体积接近 HS上界，NSGA-II 的表现超过了 NMO（图 S29B）。这主要是因为在优化后期，帕累托超体积增长的空间逐渐缩小。尽管神经网络最初加快了对设计空间的探索，但最终，为接近 HS上界的剩余设计提供准确预测会变得更加优先。因此，当网络尝试改进对那些表现最佳设计的预测时，NMO 的超体积增长会放缓。然而，稿件中介绍的刚度-韧性权衡具有极其非光滑的景观，且其理论上界未知。在这种情况下，在仿真预算紧张时，使用 NMO 探索设计空间以加快超体积增长始终更可取。

A 表格

杨氏模量			韧性		
Name	Min.	Max.	Name	Min.	Max.
E_{TB}	8.08e5	1.21e6	E_{TB}	1e5	2e6
E_{VW}	2.13e9	3.19e9	E_{VW}	1e7	1e9
E_{IF}	4.51e8	6.77e8	E_{IF}	1e7	1e9
ν_{TB}	0.4	0.5	ν_{TB}	0.4	0.5
ν_{VW}	0.2	0.4	ν_{VW}	0.2	0.4
ν_{IF}	0.3	0.4	ν_{IF}	0.3	0.4
-	-	-	W_{TB}	5e4	1e6
-	-	-	W_{VW}	5e4	1e7
-	-	-	W_{IF}	1e6	1e8
γ	2e4	2e6	γ	2e4	4e6

表 S9. 对基材的物理测量进行拟合时，系统辨识所用仿真参数的取值范围。

杨氏模量			韧性		
Name	Min.	Max.	Name	Min.	Max.
E_{TB}	8e5	1.2e6	E_{TB}	5e5	5e8
E_{VW}	2.08e9	3.12e9	E_{VW}	5e7	1e9
E_{IF}	4.48e8	6.72e8	E_{IF}	1e7	5e8
ν_{TB}	0.4	0.5	ν_{TB}	0.4	0.5
ν_{VW}	0.2	0.4	ν_{VW}	0.2	0.4
ν_{IF}	0.3	0.4	ν_{IF}	0.3	0.4
-	-	-	W_{TB}	5e4	1e6
-	-	-	W_{VW}	5e5	1e7
-	-	-	W_{IF}	1e6	1e8
γ	2e4	2e6	γ	2e4	4e6

表 S10. 对微结构的物理测量进行拟合时，系统辨识所用仿真参数的取值范围。

轮次	No.	ϕ	Exp.	Sim. (R0)	Rel. err.	Sim. (R1)	Rel. err.	Sim. (R2)	Rel. err.	Sim. (R3)	Rel. err.	Sim. (R4)	Rel. err.
0	1	0.61	0.640	0.402	0.372	0.653	0.020	0.633	0.011	0.632	0.013	0.637	0.004
	2	0.76	1.400	0.980	0.300	1.281	0.085	1.216	0.131	1.185	0.153	1.185	0.154
	3	0.67	0.948	0.663	0.301	0.931	0.018	0.889	0.062	0.878	0.074	0.881	0.070
	4	0.83	1.541	1.333	0.135	1.646	0.068	1.559	0.012	1.510	0.020	1.505	0.023
	5	0.84	1.747	1.509	0.136	1.826	0.045	1.718	0.017	1.654	0.053	1.647	0.058
	6	0.51	0.347	0.118	0.659	0.346	0.002	0.340	0.020	0.349	0.005	0.357	0.029
	7	0.51	0.301	0.133	0.560	0.370	0.229	0.363	0.204	0.370	0.228	0.378	0.254
	8	0.54	0.330	0.023	0.932	0.347	0.053	0.342	0.037	0.356	0.080	0.368	0.115
	9	0.60	0.533	0.261	0.511	0.526	0.013	0.511	0.041	0.515	0.034	0.523	0.020
	10	0.75	1.178	0.986	0.163	1.231	0.045	1.180	0.002	1.155	0.020	1.153	0.021
	11	0.66	0.954	0.603	0.368	0.801	0.160	0.784	0.178	0.778	0.185	0.780	0.182
	12	0.74	1.308	0.980	0.251	1.232	0.059	1.171	0.105	1.142	0.127	1.140	0.128
	13	0.76	1.375	1.075	0.218	1.330	0.033	1.264	0.080	1.231	0.104	1.228	0.107
	14	0.82	1.659	1.255	0.243	1.539	0.072	1.470	0.114	1.424	0.141	1.420	0.144
	15	0.84	1.790	1.479	0.174	1.775	0.008	1.681	0.061	1.625	0.092	1.617	0.096
	16	0.85	1.767	1.523	0.138	1.827	0.034	1.729	0.021	1.674	0.053	1.666	0.057
	17	0.85	1.771	1.604	0.094	1.915	0.081	1.807	0.020	1.742	0.016	1.733	0.022
	18	0.85	1.807	1.729	0.043	2.080	0.151	1.934	0.070	1.844	0.020	1.833	0.014
1	19	0.64	0.819	0.605	0.261	0.854	0.042	0.810	0.012	0.793	0.032	0.796	0.028
	20	0.58	0.860	0.736	0.144	0.919	0.068	0.876	0.018	0.854	0.007	0.853	0.008
	21	0.67	0.980	0.874	0.108	1.115	0.139	1.054	0.076	1.021	0.042	1.019	0.041
	22	0.77	1.324	1.162	0.123	1.474	0.113	1.378	0.041	1.328	0.003	1.325	0.001
	23	0.79	1.572	1.356	0.138	1.678	0.067	1.566	0.004	1.502	0.045	1.496	0.049
	24	0.79	1.402	1.479	0.054	1.792	0.278	1.661	0.185	1.583	0.129	1.574	0.123
	25	0.85	1.764	1.613	0.086	1.963	0.113	1.838	0.042	1.760	0.002	1.751	0.007
	26	0.85	1.810	1.738	0.040	2.089	0.154	1.945	0.074	1.856	0.025	1.845	0.019
2	27	0.68	0.987	0.774	0.215			0.961	0.026	0.944	0.044	0.944	0.043
	28	0.74	1.227	1.056	0.140			1.273	0.038	1.232	0.004	1.230	0.002
	29	0.75	1.277	1.166	0.087			1.361	0.066	1.313	0.028	1.309	0.025
	30	0.79	1.308	1.281	0.021			1.480	0.132	1.432	0.095	1.427	0.091
	31	0.80	1.450	1.355	0.065			1.577	0.088	1.516	0.046	1.510	0.042
	32	0.85	1.630	1.541	0.055			1.782	0.093	1.709	0.048	1.702	0.044
	33	0.85	1.690	1.723	0.019			1.923	0.138	1.833	0.085	1.822	0.078
	34	0.85	1.679	1.724	0.027			1.930	0.150	1.841	0.097	1.831	0.091
3	35	0.68	0.847	0.724	0.145					0.890	0.051	0.891	0.052
	36	0.66	0.861	0.904	0.050					1.035	0.203	1.033	0.200
	37	0.74	1.317	1.033	0.216					1.206	0.084	1.204	0.086
	38	0.76	1.302	1.207	0.073					1.362	0.047	1.358	0.043
	39	0.79	1.528	1.305	0.146					1.459	0.045	1.454	0.048
	40	0.82	1.629	1.443	0.114					1.594	0.021	1.587	0.025
	41	0.85	1.741	1.673	0.039					1.805	0.037	1.796	0.032
	42	0.85	1.751	1.749	0.001					1.858	0.061	1.847	0.054
4	43	0.70	1.093	0.968	0.115							1.112	0.017
	44	0.74	1.164	1.015	0.128							1.167	0.003
	45	0.77	1.297	1.151	0.112							1.299	0.002
	46	0.79	1.372	1.248	0.090							1.396	0.017
	47	0.84	1.683	1.505	0.105							1.639	0.026
	48	0.85	1.683	1.538	0.086							1.672	0.006
	49	0.85	1.649	1.561	0.053							1.701	0.032
	50	0.85	1.593	1.680	0.055							1.801	0.130

表 S11。我们的方法发现的所有微结构的实验杨氏模量、模拟预测及相对误差。第i = 轮次i。蓝色文字表示下一轮的预测结果。杨氏模量的单位为吉帕。

轮次	No.	ϕ	Exp.	Sim. (R0)	Rel. err.	Sim. (R1)	Rel. err.	Sim. (R2)	Rel. err.	Sim. (R3)	Rel. err.	Sim. (R4)	Rel. err.
0	1	0.61	0.323	0.528	0.633	0.361	0.116	0.254	0.214	0.239	0.261	0.309	0.045
	2	0.76	0.201	0.329	0.637	0.227	0.131	0.236	0.173	0.143	0.290	0.221	0.102
	3	0.67	0.271	0.398	0.470	0.395	0.458	0.327	0.207	0.286	0.056	0.273	0.009
	4	0.83	0.276	0.307	0.114	0.274	0.007	0.246	0.109	0.190	0.310	0.203	0.264
	5	0.84	0.375	0.277	0.261	0.310	0.171	0.282	0.247	0.214	0.429	0.211	0.436
	6	0.51	0.309	0.487	0.574	0.255	0.177	0.275	0.110	0.190	0.387	0.275	0.110
	7	0.51	0.245	0.231	0.057	0.270	0.099	0.132	0.461	0.141	0.425	0.221	0.098
	8	0.54	0.117	0.022	0.809	0.102	0.126	0.078	0.329	0.102	0.124	0.143	0.226
	9	0.60	0.252	0.222	0.119	0.344	0.365	0.194	0.227	0.204	0.188	0.244	0.029
	10	0.75	0.211	0.482	1.283	0.343	0.622	0.263	0.248	0.227	0.073	0.343	0.624
	11	0.66	0.371	1.304	2.515	0.410	0.105	0.359	0.031	0.310	0.165	0.386	0.039
	12	0.74	0.261	1.112	3.268	0.407	0.564	0.413	0.586	0.218	0.162	0.394	0.514
	13	0.76	0.391	1.091	1.791	0.398	0.018	0.294	0.247	0.303	0.225	0.420	0.074
	14	0.82	0.109	0.945	7.674	0.159	0.457	0.120	0.104	0.110	0.012	0.099	0.095
	15	0.84	0.355	0.865	1.436	0.236	0.335	0.278	0.218	0.179	0.495	0.131	0.630
	16	0.85	0.326	0.786	1.407	0.342	0.048	0.315	0.035	0.276	0.154	0.222	0.319
	17	0.85	0.313	0.603	0.927	0.291	0.069	0.222	0.292	0.223	0.289	0.243	0.224
	18	0.85	0.304	0.424	0.395	0.378	0.244	0.324	0.067	0.305	0.005	0.271	0.108
1	19	0.64	0.424	0.295	0.304	0.700	0.650	0.295	0.304	0.540	0.275	0.448	0.056
	20	0.58	0.426	0.553	0.300	0.892	1.095	0.355	0.166	0.345	0.189	0.458	0.075
	21	0.67	0.227	0.669	1.950	0.970	3.277	0.455	1.005	0.418	0.843	0.428	0.889
	22	0.77	0.513	0.554	0.079	0.982	0.913	0.449	0.125	0.526	0.024	0.346	0.326
	23	0.79	0.426	0.452	0.062	0.865	1.033	0.452	0.063	0.494	0.161	0.343	0.193
	24	0.79	0.491	0.315	0.359	0.680	0.383	0.371	0.245	0.447	0.089	0.254	0.482
	25	0.85	0.458	0.280	0.389	0.584	0.276	0.431	0.058	0.374	0.182	0.266	0.418
	26	0.85	0.473	0.314	0.336	0.391	0.172	0.309	0.346	0.315	0.333	0.206	0.564
2	27	0.68	0.315	0.612	0.943			0.598	0.897	0.338	0.074	0.467	0.483
	28	0.74	0.331	0.395	0.195			0.611	0.847	0.340	0.029	0.304	0.081
	29	0.75	0.493	0.423	0.141			0.589	0.196	0.530	0.075	0.390	0.209
	30	0.79	0.381	0.364	0.045			0.541	0.417	0.269	0.295	0.394	0.034
	31	0.80	0.106	0.304	1.865			0.505	3.761	0.175	0.648	0.172	0.620
	32	0.85	0.369	0.349	0.053			0.466	0.263	0.330	0.105	0.289	0.216
	33	0.85	0.303	0.266	0.122			0.369	0.218	0.151	0.501	0.260	0.143
	34	0.85	0.360	0.310	0.139			0.327	0.092	0.172	0.521	0.218	0.394
3	35	0.68	0.339	0.504	0.485					0.641	0.888	0.291	0.142
	36	0.66	0.508	0.363	0.286					0.684	0.347	0.306	0.397
	37	0.74	0.276	0.389	0.412					0.716	1.598	0.360	0.307
	38	0.76	0.278	0.386	0.388					0.667	1.401	0.308	0.108
	39	0.79	0.351	0.434	0.235					0.633	0.802	0.312	0.111
	40	0.82	0.329	0.479	0.453					0.544	0.650	0.265	0.196
	41	0.85	0.412	0.294	0.287					0.424	0.030	0.237	0.424
	42	0.85	0.400	0.239	0.403					0.261	0.346	0.173	0.568
4	43	0.70	0.357	0.713	0.997							0.590	0.653
	44	0.74	0.247	0.640	1.593							0.564	1.287
	45	0.77	0.326	0.544	0.669							0.546	0.672
	46	0.79	0.425	0.516	0.213							0.510	0.200
	47	0.84	0.263	0.361	0.374							0.450	0.712
	48	0.85	0.348	0.398	0.144							0.398	0.144
	49	0.85	0.348	0.419	0.203							0.369	0.060
	50	0.85	0.394	0.302	0.233							0.256	0.350

表 S12。我们的方法发现的所有微结构的实验韧性、模拟预测和相对误差。第i = 轮次i。蓝色文字表示对下一轮的预测。韧性的单位为兆帕。

族	1		2		3		4	
	No.	E (吉帕)	No.	E (吉帕)	No.	E (吉帕)	No.	E (吉帕)
Seed 微结构	22	1.324	18	1.807	15	1.790	5	1.747
	24	1.402	26	1.810	16	1.767	17	1.771
	36	0.861	41	1.741				
			42	1.751				
验证微结构	1-1	1.253	2-1	1.541	3-1	1.470	4-1	1.447
	1-2	1.329	2-2	1.779	3-2	1.703	4-2	1.679
	1-3	1.485	2-3	1.703	3-3	1.689	4-3	1.621

族	1		2		3		4	
	No.	T (兆帕)	No.	T (兆帕)	No.	T (兆帕)	No.	T (兆帕)
Seed 微结构	22	0.513	18	0.304	15	0.355	5	0.375
	24	0.491	26	0.473	16	0.326	17	0.313
	36	0.508	41	0.412				
			42	0.400				
验证微结构	1-1	0.369	2-1	0.343	3-1	0.330	4-1	0.381
	1-2	0.447	2-2	0.388	3-2	0.269	4-2	0.347
	1-3	0.420	2-3	0.458	3-3	0.350	4-3	0.433

表 S13. 各族中种子微结构与验证微结构的物理测量对比。同一族的微结构具有相近的杨氏模量和韧性。

种子微结构

族	No	ϕ	Exp.	Sim. (R4)	Rel. err.	Sim. (FS)	Rel. err.
1	22	0.77	1.324	1.325	0.001	1.158	0.126
	24	0.79	1.402	1.574	0.123	1.403	0.001
	36	0.66	0.861	1.033	0.200	0.913	0.061
2	18	0.85	1.807	1.833	0.014	1.799	0.004
	26	0.85	1.810	1.845	0.019	1.809	0.001
	41	0.85	1.741	1.796	0.032	1.756	0.009
	42	0.85	1.751	1.847	0.054	1.812	0.034
3	15	0.84	1.790	1.617	0.096	1.714	0.042
	16	0.85	1.767	1.666	0.057	1.767	0.000
4	5	0.84	1.747	1.647	0.058	1.672	0.043
	17	0.85	1.771	1.733	0.022	1.771	0.000

验证微结构

族	No	ϕ	Exp.	Sim. (R4)	Rel. err.	Sim. (FS)	Rel. err.
1	F1-1	0.73	1.253	1.222	0.024	1.066	0.149
	F1-2	0.75	1.329	1.359	0.022	1.204	0.094
	F1-3	0.79	1.485	1.451	0.022	1.284	0.135
2	F2-1	0.81	1.541	1.654	0.073	1.621	0.052
	F2-2	0.85	1.779	1.825	0.026	1.794	0.009
	F2-3	0.85	1.703	1.827	0.073	1.795	0.054
3	F3-1	0.83	1.470	1.510	0.027	1.582	0.076
	F3-2	0.85	1.703	1.725	0.013	1.840	0.081
	F3-3	0.85	1.689	1.724	0.021	1.841	0.090
4	F4-1	0.80	1.447	1.426	0.015	1.430	0.012
	F4-2	0.84	1.679	1.699	0.012	1.728	0.030
	F4-3	0.85	1.621	1.736	0.071	1.774	0.094

表 S14. 各族中种子微结构和验证微结构的实验杨氏模量、仿真预测及相对误差。“R4”指第4轮中的虚拟测试器。“FS”表示特定族的虚拟测试器。杨氏模量的单位为吉帕。

种子微结构

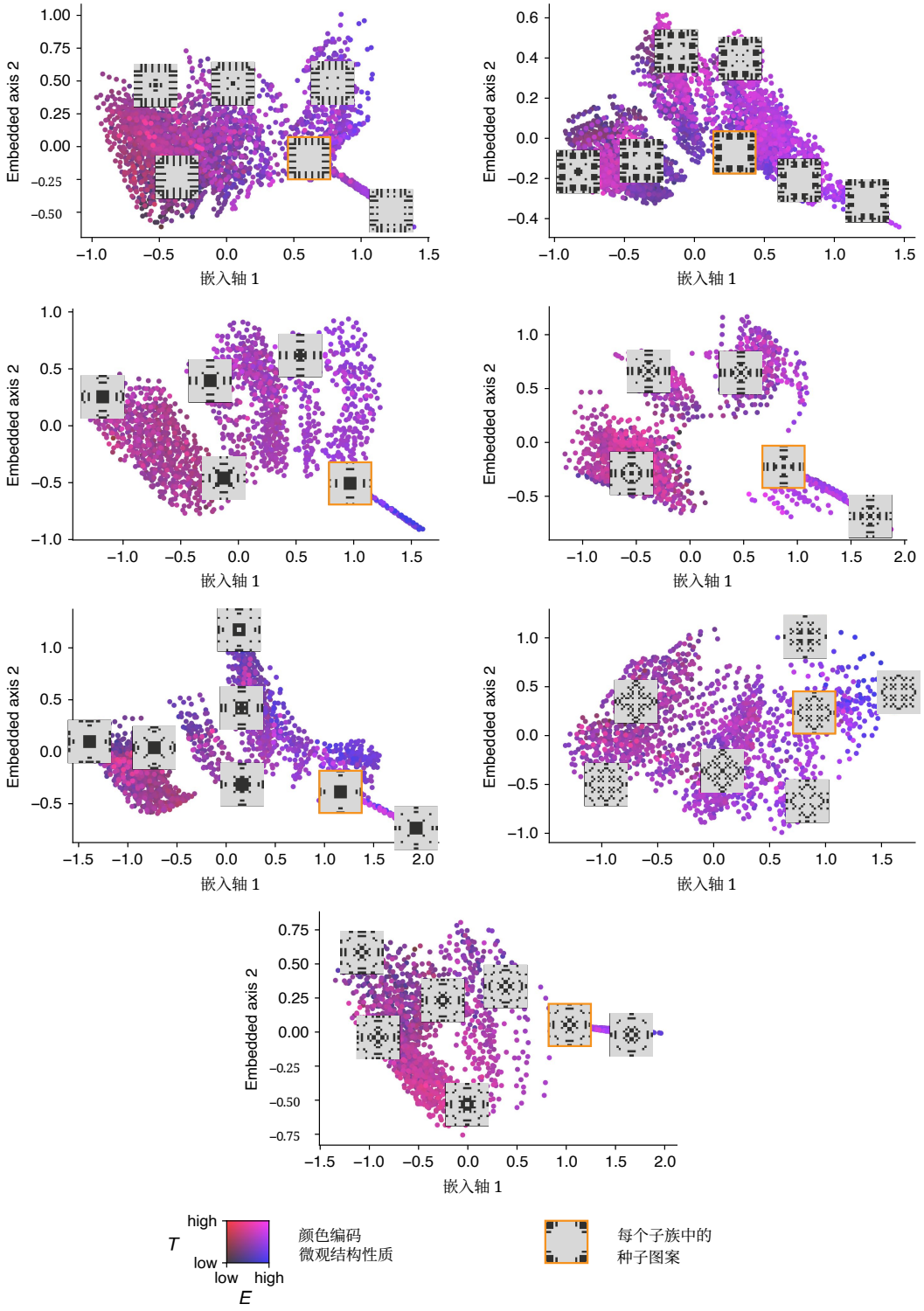
族	No	ϕ	Exp.	Sim. (R4)	Rel. err.	Sim. (FS)	Rel. err.
1	22	0.77	0.513	0.346	0.326	0.510	0.006
	24	0.79	0.491	0.254	0.482	0.468	0.048
	36	0.66	0.508	0.306	0.397	0.466	0.083
2	18	0.85	0.304	0.271	0.108	0.328	0.080
	26	0.85	0.473	0.206	0.564	0.416	0.121
	41	0.85	0.412	0.237	0.424	0.428	0.039
	42	0.85	0.400	0.173	0.568	0.315	0.213
3	15	0.84	0.355	0.131	0.630	0.336	0.054
	16	0.85	0.326	0.222	0.319	0.326	0.000
4	5	0.84	0.375	0.211	0.436	0.375	0.002
	17	0.85	0.313	0.243	0.224	0.315	0.007

验证微结构

族	No	ϕ	Exp.	Sim. (R4)	Rel. err.	Sim. (FS)	Rel. err.
1	F1-1	0.73	0.369	0.375	0.017	0.748	1.028
	F1-2	0.75	0.447	0.386	0.136	0.626	0.399
	F1-3	0.79	0.420	0.305	0.275	0.535	0.272
2	F2-1	0.81	0.343	0.273	0.204	0.546	0.593
	F2-2	0.85	0.388	0.115	0.703	0.561	0.446
	F2-3	0.85	0.458	0.209	0.544	0.420	0.083
3	F3-1	0.83	0.330	0.281	0.147	0.535	0.623
	F3-2	0.85	0.269	0.197	0.271	0.445	0.653
	F3-3	0.85	0.350	0.169	0.516	0.312	0.106
4	F4-1	0.80	0.381	0.258	0.321	0.554	0.455
	F4-2	0.84	0.347	0.252	0.274	0.459	0.322
	F4-3	0.85	0.433	0.241	0.444	0.313	0.277

表 S15。各族中种子微结构和验证微结构的实验韧性、仿真预测及相对误差。“R4”指第4轮中的虚拟测试器。“FS”表示特定家族虚拟测试器。韧性的单位为兆帕。

B图



图S30。 图中未展示的子族的 Isomap嵌入空间。 S17。 每个嵌入空间包含约 2,000 至 3,000 个样本，其中少数样本以可视化形式呈现。微观结构性质以颜色编码（*E*：蓝色通道；*T*：红色通道）。种子图案以橙色方框标记。

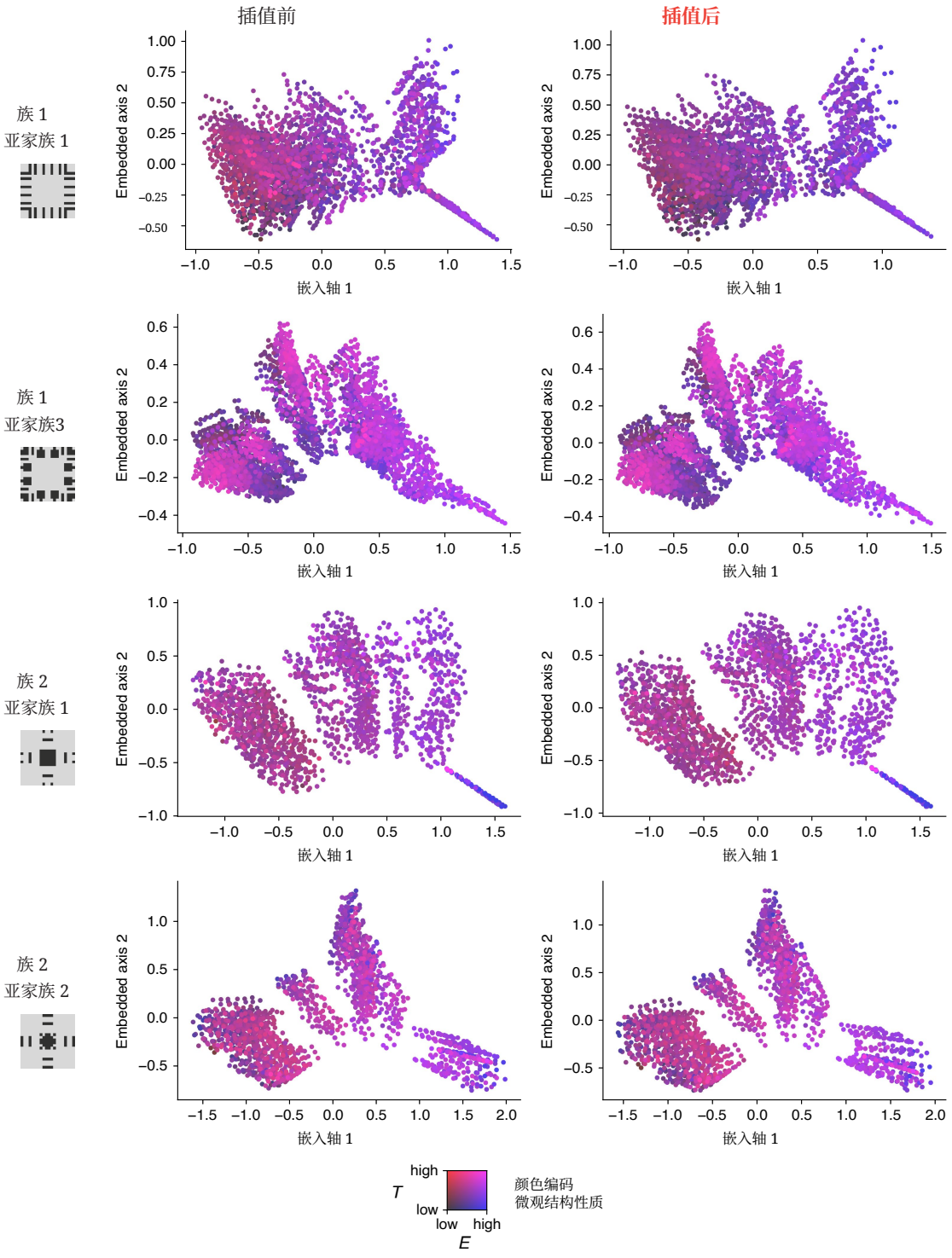


图 S31. 更多子族在使用插值进行细化之前和之后的 Isomap嵌入空间（第 1 部分）。微观结构性质以颜色编码。

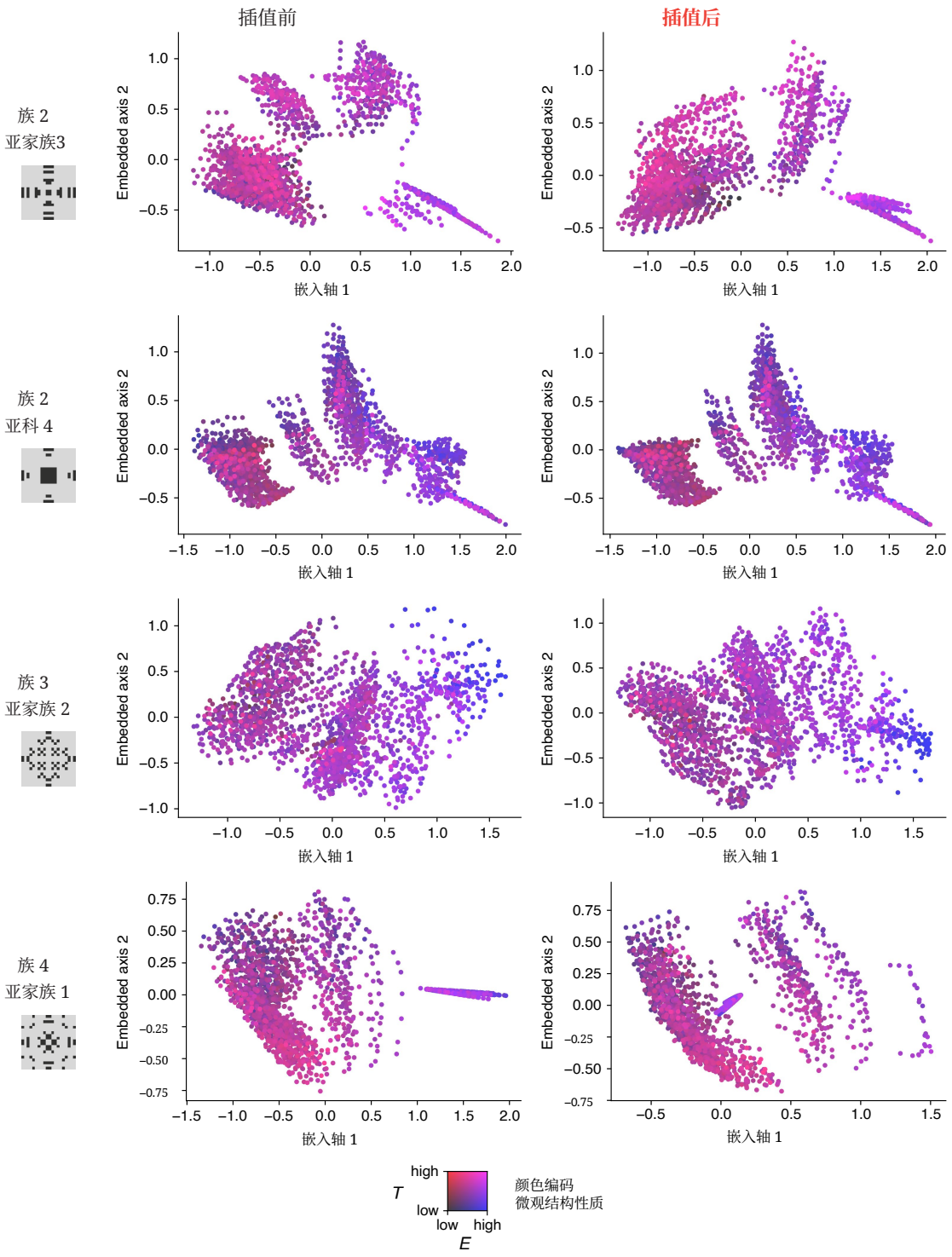
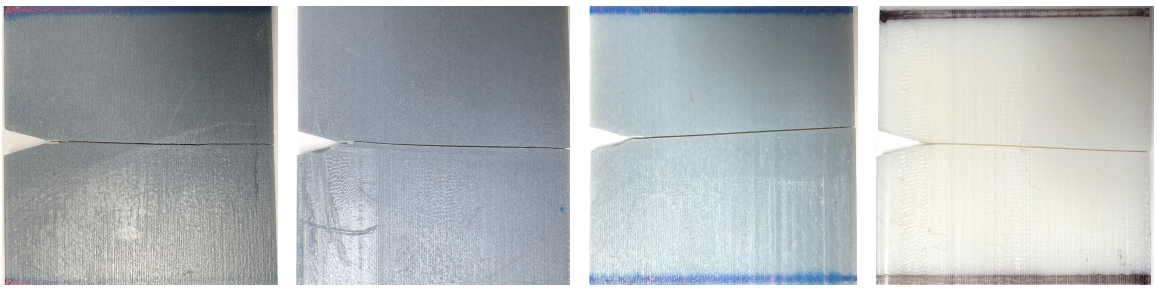


图 S32. 使用插值细化前后更多子族的 Isomap 嵌入空间（第 2 部分）。微观结构性质以颜色编码。



$\phi = 0.65$ $\phi = 0.8$ $\phi = 0.9$ $\phi = 1$

图 S33. 在刚性材料比例不同的均质复合材料中，裂纹扩展后可观察到洁净断裂。