arXiv:2305.03792v1 [physics.flu-dyn] 5 May 2023

拉格朗日演化中的散射信息驱动微结构预测（SIMPLE）——一种用于模拟流动中复杂流体的数据驱动框架

CharlesD. Young[1], Patrick T.Corona[2], AnuktaDatta[2], MatthewE.Helgeson[2*], Michael D. Graham[1*]1威斯康星大学麦迪逊分校化学与生物工程系，美国威斯康星州麦迪逊，邮编53706。[2]加利福尼亚大学圣塔芭芭拉分校化学工程系，美国加利福尼亚州圣塔芭芭拉，邮编93106-5080。

*通讯作者。电子邮件：helgeson@ucsb.edu；mdgraham@wisc.edu；

摘要

流变学面临的一项重大挑战是，为缺乏准确第一性原理理论的复杂流体开发本构模型。另一项挑战是，大多数用于探究动态结构与流变学的实验仅在非常简单的流场中进行，而这类流场并不能代表材料在加工过程中所经历的复杂形变历史。近期开发的一种实验方法有望克服这一挑战：将流体四辊磨（FFoRM）集成到扫描小角X射线散射仪器（sSAXS）中 [Corona, P. T. 等人 *Sci. Rep.* **8**，15559（2018年）；Corona, P. T. 等人 *Phys. Rev. Mater* **6**，045603（2022年）]，以便沿多种拉格朗日流动历史快速生成复杂流体散射强度的大型数据集。为充分利用这些独特而丰富的 FFoRM-sSAXS 数据，我们提出一种机器学习框架，*Scattering-Informed MicrostructurePrediction under Lagrangian Evolution*（SIMPLE），该框架利用 FFoRM-sSAXS 数据学习散射强度的演化方程，以及与之相关的应力张量微分本构方程。该框架通过数据预处理实现材料坐标系无关性，并确保对任意旋转保持不变。我们使用自编码器为散射强度构建高效的降阶模型，并利用神经网络常微分方程预测模型坐标的时间演化。我们在一种稀释刚性棒状悬浮液的合成 FFoRM-sSAXS 数据集上验证了该框架。对于与训练数据所用流动显著不同的流动，该模型仍能准确预测微观结构演化和流变学。SIMPLE 与材料特定的约束或假设兼容，但并不依赖于它们。

关键词： 流变-散射、构成建模、物理信息驱动的机器学习、结构-性能关系

1 引言

迫切需要开发合理的设计方法，用于微结构流体和软材料的流动加工。尤其是，研究人员最近认识到，加工流动的复杂性在这些材料的开发过程中发挥着重要作用（Diao 等人，2013）。与典型流动（简单剪切或伸展）不同，后者的变形类型和速率在流场各处均匀，

大多数与工业相关的加工流动都涉及复杂的非均匀流场，其中流体微元在沿加工过程移动时，其变形类型和速率会发生显著变化。例如，在流延成膜工艺中，流体经过Diao 等人，2013所述的涂布刮刀时，会经历从低速率剪切到伸展，再到高速率剪切的转变。此类复杂流动会显著影响通过这些及其他工艺制得的薄膜的最终结构和性能。

尽管研究人员已开始利用这一认识来优化流动工艺，以获得目标结构，但大多数方法仍较为初级——通过经验性地搜索参数，直至实现最佳结构或性能。这是因为工艺-结构关系通常是根据离位测量结果建立的，并与独立指定的工艺参数相关联（例如，刮刀高度、基底速度等）。然而，这种方法针对特定工艺，因此无法预见新的流动工艺；而新工艺可能大幅拓展材料可实现的加工结构范围或优化空间。这已成为印刷电子（Qu 等，2016；Patel 和 Diao，2017）、光子学（Demir¨ors 等，2022年）和太阳能电池（Du 等，2022年）等重要技术领域中流动加工材料发展的重大瓶颈。

一种替代方案且强大得多的方法，是基于对流动-微观结构相互作用的详细建模，从而预测材料在任何可能的工艺流动中的表现。在这一框架下，研究重点不是对工艺进行参数化，而是对材料微元在工艺过程中移动时的流动历史进行参数化。描述此类流动历史的自然框架是拉格朗日参考系，它将任意流动（即速度的欧拉空间分布 $\boldsymbol{v}(\boldsymbol{x})$）映射为一组时间依赖轨迹，其中速度梯度 $\boldsymbol{\nabla v}(\mathcal{T})$ 发生变化； $\mathcal{T}$ 表示沿流线经过的时间。在这一参考系中，流动本身以及材料的结构演化，都可以通过 $\boldsymbol{\nabla v}$ 各分量随时间的变化来唯一确定，从而将所有可能的加工流动归并为这些低维变量中的一组拉格朗日偏移。要使这一方法发挥作用，需要：（1）测量这些拉格朗日轨迹上的微观结构和速度梯度；（2）建立一个建模框架，利用这些信息生成微观结构的演化方程，并最终得到应力张量。

近期开发的复杂流动空间分辨散射测量技术，为满足上述首项要求带来了巨大希望。具体而言，Helgeson 及其同事最近改造了“流体四辊轧机”（FFoRM）——这是 Mueller 及其同事基于 Taylor 的原始四辊轧机（Taylor，1934）开发的一种装置（Lee et al，2007）——使其适用于束线散射测量，包括高分辨率扫描小角X射线散射（sSAXS）（Corona et al，2018，2022）。这些流动中的速度场可以通过粒子跟踪测速（PTV）进行量化。与其他用于原位散射的流体器件不同（Eberle and Porcar，2012；Lopez et al，2015，2018；Lutz-Bueno et al，2015；Bent et al，2003；Donina et al，2021；Silva et al，2015；Poulos et al，2016；Martin et al，2016；Lutz-Bueno et al，2016），FFoRM 能够为各种流变复杂流体实现一系列准二维驻点流，从而可在同一器件中绘制出多种流动历史（及其对应的微观结构）（图 1）。因此，FFoRM-sSAXS 方法非常适合生成实现我们目标所需的大规模、多样化的流动—微观结构数据集。Helgeson 团队已经生成了大型数据集（Corona et al，2022），并开发了先进的散射模型，以从中获得物理学见解（Corona et al，2021，2023；Corona，2020）。例如，利用 FFoRM-sSAXS 研究棒状纳米颗粒悬浮液，可以区分颗粒间相互作用对流动诱导取向的影响（Corona et al，2022）。此外，尽管目前尚未开展这项工作，原则上可以采用变分数据同化方法（Asch et al，2016），利用测得的速度场推断颗粒对 stress 张量的贡献，详见第 2 节。

关于第二项要求，一种方法是从经典的基于物理学的方法入手，发展本构模型。这种方法已取得了一些明显的成功，例如在高度缠结的聚合物中（Bird 等，1987；Doi 和 Kuzuu，1980；Sato，2020）以及浓缩硬球布朗粒子悬浮液中（Morris，2009，2020a，b）。尽管取得了这些显著成果，第一性原理流变理论仍未能跟上材料种类不断扩大的步伐，而这些材料的流动加工对新兴技术至关重要。这是因为微观本构模型的开发进展缓慢，需要在理论与实验之间反复测试，才能提出并验证有关材料结构动力学的物理理论。此外，这种方法也存在偏倚，因为流变实验仅限于流体受到均匀变形类型和变形速率作用的情形。因此，模型在流变测量流动中可能表现准确，在更一般的流动中却可能表现很差。一个典型的例子

是细长（棒状、椭球状等）布朗粒子的浓悬浮液。尽管稀悬浮液的准确理论早已为人所知（Bird 等，1987），但由于取向动力学与多体相互作用之间存在复杂耦合，成功的浓悬浮液理论仍然缺失。涉及粒子间平均场相互作用假设和无限长径比假设、用于处理多体问题的动力学理论（Doi 和 Kuzuu，1980；Doi 和 Edwards，1986；Dhont 和 Briels，2003），即使在半稀释区间的稳态均匀剪切流中，也无法定量捕捉流动诱导取向和剪切变稀的特征（Lang 等，2019）。即使能够精确解析粒子的取向，这些系统的流变学理论（Batchelor，1970；Hinch 和 Leal，1972）也只能对线性均匀流动给出准确预测；而将其拓展到我们希望研究的复杂流动，仍是一个活跃的研究领域（F´erec 等，2022）。

鉴于 FFoRM-sSAXS 实验提供了极其丰富的数据，数据驱动建模提供了一种替代方案，有望大幅加快流动加工材料的预测性设计。在牛顿流体力学中，数据同化和机器学习方法已产生显著影响（Brunton 等，2019）。在开创性研究中，Ling 等人（Ling 等，2016b）利用湍流模拟、神经网络（NNs）以及受伽利略不变性约束的模型表示，计算雷诺应力张量的表达式（即闭合模型），以促进湍流的雷诺平均纳维–斯托克斯模拟。这些进展得益于大量数据集，这些数据集可通过直接数值模拟（DNS）或针对牛顿流体流动的时空分辨测速实验生成。

在流变学和非牛顿流体力学领域，机器学习的应用报道相对较少。一些研究利用流变测量数据，为给定的本构关系生成参数（Mahmoudabadbozchelou 和 Jamali，2021年；Mahmoudabadbozchelou 等，2021年；Marino 等，2022年；Saadat 等，2022年）。另一些研究则将广义上对流麦克斯韦模型中的非线性客观项表示为神经网络，并同样使用流变测量数据进行训练（Lennon 等，2022年）。相关研究还学习了一组构象张量的演化方程，并将其用作构象描述符（Lei 等，2020）。Thakur 等人（Thakur 等，2022）介绍了一种物理信息深度学习方法，该方法利用给定的速度场，从一组标准模型中选出拟合效果最佳的本构模型及其参数。尽管取得了这些进展，流变学和非牛顿流体力学领域仍未充分接纳、利用和发展用于建模与数据同化的数据驱动方法。

已有多种数据驱动方法，可利用 DFT模拟的原子坐标，实现具有从头算精度的高效、可扩展分子动力学模拟（Behler and Parrinello, 2007; Chmiela et al, 2017; Zhang et al, 2018a,b; Shireen et al, 2022）。这些方法本质上会生成准确且具有良好泛化能力的经验力场，并考虑平移和旋转等分子对称性。迄今为止，这些方法主要应用于小分子，但原则上也可用于大分子软物质系统。然而，这些方法并未进行降维，因此可能不适用于软物质模拟所需的空间延展区域和长时间尺度。Lei 等（Lei 等，2020）提出了一种针对非牛顿流体的模型，该模型基于福克-普朗克方程，发现粗粒化且与参考系无关的构型张量。该模型基于分子坐标找到恰当的粗粒化描述，因此可扩展至非线性链结构（Fang et al, 2022）。然而，除训练数据中体现的流体动力学相互作用外，该模型并未明确考虑分子内或分子间的流体动力学相互作用。另一种粗粒化方法是 Mori-Zwanzig形式主义，其挑战在于学习描述随机观测量的广义朗之万方程中的记忆核。已有多种数据驱动模型将这一方法用于小分子和稀聚合物溶液的动力学研究（Grogan et al, 2020; Ma et al, 2021; She et al, 2022; Russo et al, 2022）。

上述方法依赖于分子模拟数据，而对于感兴趣的新型材料，收集这类数据通常需要耗费极高的计算资源，尤其是在筛选材料库时。尽管目前正在开发计算方法以加快这一过程（Jackson 等，2019），但使用实验数据往往更为实际。这些数据通常以二维（2D）图像或散射图样的形式呈现，因此人们开始采用卷积神经网络（CNN）自编码器（AE）。这类方法已用于提取微观结构图像的特征，并对所得潜空间进行分类，如应用于合成数据（Lubbers 等，2017）、金属的电子显微镜图像（Ling 等，2017），以及剪切流停止后胶体玻璃弛豫的X射线光子相关谱数据（Horwath 等，2022）。Beltran-Villegas 等人（Beltran-Villegas 等人，2019）结合遗传算法与分子模拟，从小角散射图样中反演自组装两亲性聚合物溶液的实空间结构。Corona

等人（Corona 等，2022）利用小角散射，对微流控四辊磨中混合剪切与旋转流作用下棒状悬浮液的形变进行指纹表征（Corona 等，2018）。Chen及其合作者在利用散射数据指纹表征非平衡动力学（Shen 等，2022）、推断平均力势（Chang 等，2022），以及反演微观分布函数（Huang 等，2019，2021）方面取得了重大进展。

除了从微观结构测量中获得物理学认识之外，在没有训练标签的情况下确定宏观力学响应仍然是一项重大挑战。Corona 等人（Corona 等人，2021年）采用贝叶斯估计，从小角散射测量中推断半稀释刚性棒状粒子悬浮液的取向概率分布函数（OPDF）。随后，利用该 OPDF 确定颗粒对 stress 的贡献。然而，这种方法难以推广至可变形材料，因为在这类材料中，基础微观分布函数并不位于球面上。

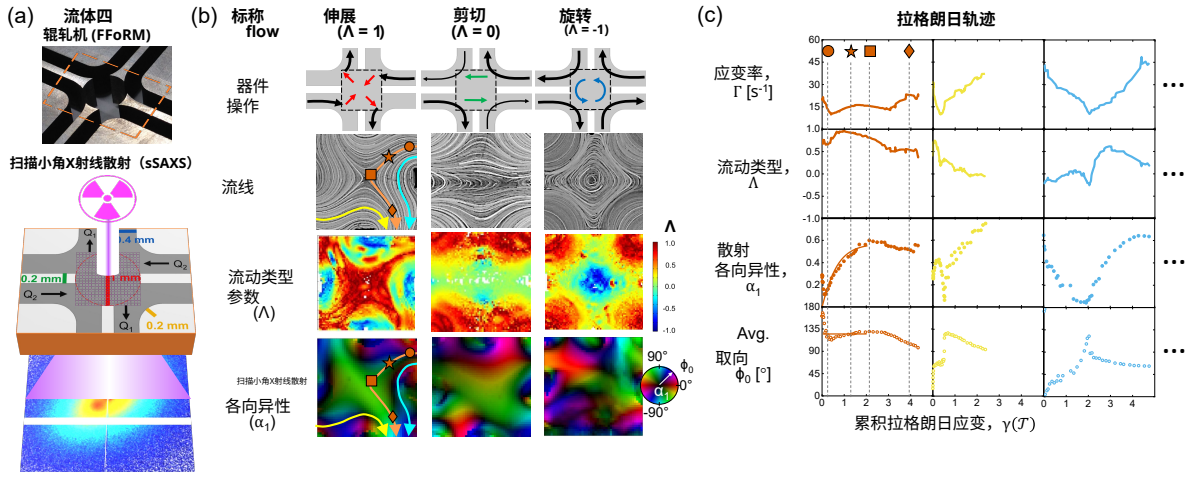

图 1 FFoRM-sSAXS 方法概览（改编自（Corona 等人，2022年））。(a) FFoRM 几何结构的照片及示意图，图中标出了扫描式 sSAXS 测量的尺寸。(b) FFoRM 在三个不同准二维流中的操作，由施加流率的方向和大小（黑色箭头）控制，并产生相应的多模态欧拉描述的 FFoRM-sSAXS 空间数据。(c) 沿着 (b) 中流线转换欧拉数据，可得到相应的流动和结构数据的拉格朗日轨迹。

在本研究中，我们提出了一个框架，称为“拉格朗日演化中的散射信息微观结构预测（SIMPLE）”，利用 FFoRM-sSAXS 生成的大规模高维数据集，开发一种全新能力——数据驱动工作流，可快速学习通用的客观本构模型，进而用于模拟该流体在任意二维流中的行为。SIMPLE 的整体结构如图 2 所示。本文将重点介绍数据驱动本构建模计算方法的开发，所用合成散射数据由以下对象的布朗动力学模拟确定：在由开源计算流体动力学代码 OpenFOAM 生成的 FFoRM 流场中流动的布朗刚性棒稀悬浮液（Graham，2018年）。未来的工作将探讨数据同化问题，即如何根据速度数据推断应力，以及如何利用复杂流体系统的真实实验散射数据开发模型。

本文其余部分将介绍 SIMPLE 方法。在第 2节中，我们将介绍该框架以及用于评估微观结构和流变学预测定量与定性准确性的数据集。在第 3.1节中，我们将量化模型在插值流动方案上的性能，这些方案未用于训练，但处于训练数据范围内。随后在第3.2节中，我们将测试训练好的模型对未见过的流动方案进行外推的能力。最后，在第 3.3 节中，我们将展示神经网络能够从散射强度中学习颗粒对 stress 的贡献。

2 方法论

数据驱动的SIMPLE框架旨在利用FFoRM-sSAXS数据，为复杂流体开发微观本构模型。该框架如图2所示，将根据速度推断应力信息

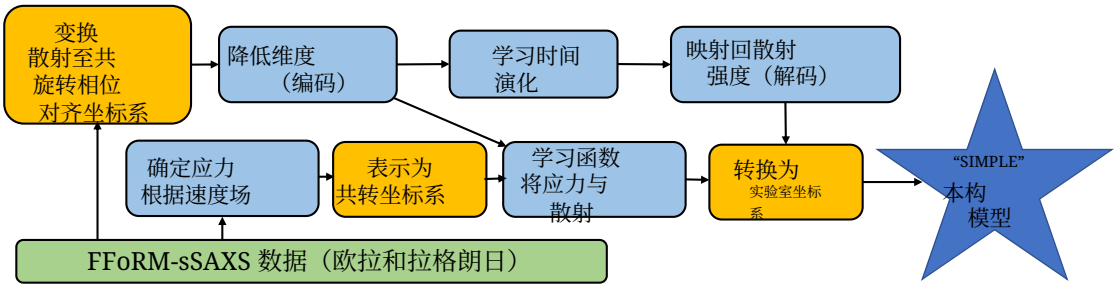

图 2 适用于 FFoRM-sSAXS 数据的 SIMPLE 本构方程学习框架。首先采集散射强度和速度测量数据，并将其转换到拉格朗日参考系（绿色框）。利用 FFoRM-sSAXS 获得的大型数据集训练降维和时间演化的数据驱动操作（蓝色框）。橙色框表示考虑框架无关性、相位对齐和材料对称性的已知操作。

数据（此处不讨论这一问题），从散射数据中提取关键的微观结构自由度，并利用沿流线获取的速度梯度和散射数据，确定微观结构和应力的演化方程。

2.1 初始数据分析

FFoRM-sSAXS实验的数据将包括稳态二维速度场 $\boldsymbol{v}(\boldsymbol{x})$ 和空间分辨散射图样 $I(\boldsymbol{q},\boldsymbol{x})$。对于每个速度场，通过在区域内选取点 X_0，并对 $d\mathrm{X}/d\mathcal{T} = \boldsymbol{v}(\mathrm{X}(\mathcal{T}))$ 进行积分，将生成大量拉格朗日粒子轨迹 $\mathrm{X}(\mathrm{X0},\mathcal{T})$。沿每条轨迹计算应变率 $\mathrm{E}(\mathrm{X}(\mathrm{X0},\mathcal{T}))$ 和涡量张量 $\Omega(\mathrm{X}(\mathrm{X0},\mathcal{T}))$。类似地，我们可以确定沿每条轨迹的散射图样，$I(\boldsymbol{q},\mathrm{X}(\mathrm{X}_0(\mathcal{T})))$。通常，我们会省略拉格朗日量对其位置 $\mathrm{X}(\mathrm{X0},\mathcal{T})$ 的依赖关系。请注意，在本研究中，我们使用的是布朗动力学模拟生成的合成数据：模拟对象是在计算流体力学（CFD）确定的流场中的轨迹，详见第 2.6 节，而非真实实验数据。

2.2 考虑　材料坐标系无关性和旋转等变性

即使对于纯数据驱动框架，也可以将数据所遵循的关键对称性融入降阶表示中。对于本构模型，关键对称性是材料坐标系无关性，它体现了这样一种物理理念：刚体旋转不应在微观结构内部引起任何相对运动。在本研究中，我们通过采用与流体微元共同旋转的参考系来实现这一点。纳入这一物理约束的重要性怎么强调都不为过——事实上，当前科学机器学习中一个普遍的主题，就是将对称性融入表示和架构中；否则，神经网络需要海量数据才能学会这些对称性，即便如此，学到的也只是近似结果。

为实现散射数据的这一处理，我们计算酉旋转矩阵$\mathbf{Q}$，该矩阵通过 $\boldsymbol{e}_i = \mathbf{Q}\cdot\boldsymbol{e}_i^R$ 将旋转坐标系的基向量 $\boldsymbol{e}_i^R$ 与静止的实验室坐标系基向量 $\boldsymbol{e}_i$ 联系起来。参考系的旋转由流动的涡量$\boldsymbol{\Omega} = (\boldsymbol{\nabla v} - \boldsymbol{\nabla v}^T)/2$ 确定，具体如下：

$$\frac{d\mathbf{Q}}{d\mathcal{T}} = \boldsymbol{\Omega}^T\cdot\mathbf{Q} \tag{1}$$

根据旋转矩阵，我们计算旋转角 $\theta_{\boldsymbol{\Omega}} = \mathrm{atan2}(\mathrm{Q}_{xy},\mathrm{Q}_{xx})$。利用该角度，在实验室坐标系下观测到的散射强度 $I(\boldsymbol{q})$ 与共旋坐标系下的散射强度 $I_{\boldsymbol{\Omega}}(\boldsymbol{q}) = \mathcal{R}(I(\boldsymbol{q})\ \theta_{\boldsymbol{\Omega}})$ 之间进行基变换，其中 $\mathcal{R}(\cdot,\theta)$ 为旋转操作。在本研究中，我们假设流动发生在 xy 平面内，散射强度则以均匀网格上的二维投影 $I(q_x,q_y)$ 形式观测。两个方向上的波矢范围和数量分别为 $q\in[0,0.1]$ $\mathrm{\AA}^{-1}$和 $n_q = 100$。这比许多散射实验的分辨率低（典型分辨率为：中子散射为 $n_q = 128$，保罗·谢errer研究所所用 PILATUS 2M探测器为 $n_q = 1475$，该探测器用于 Corona 等（2022）的研究；NSLS-II（布鲁克海文国家实验室）LiX 光束线为 $n_q = 1024$）。数据在径向上截断至 $r = \sqrt{q_x^2+q_y^2} < 0.1\ \mathrm{\AA}^{-1}$，以便旋转图像时不会丢失信息。图3展示了稳态剪切流中的这一旋转及其旋转矩阵示例。

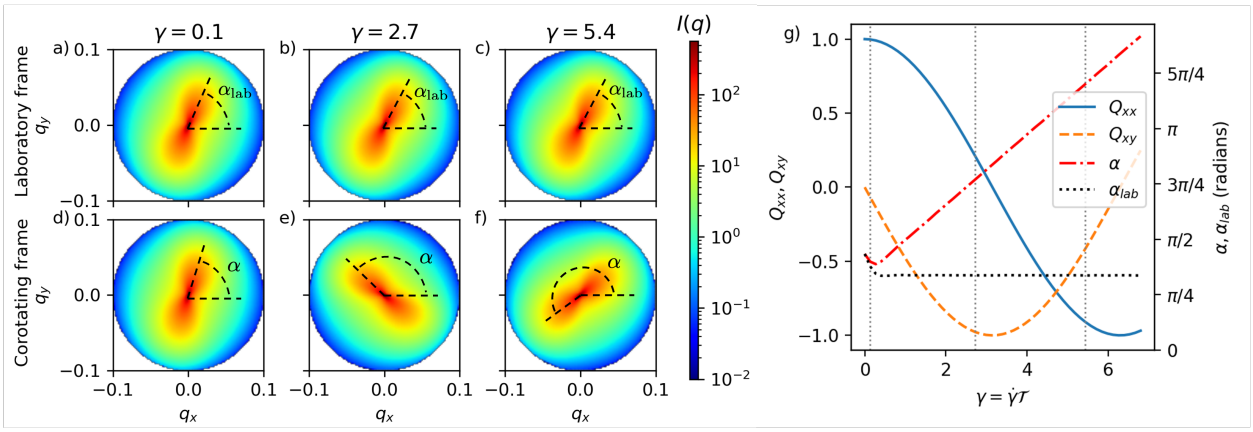

图 3 数据驱动操作之前对启动稳态剪切流（佩克莱数 $= 13.6$）数据的预处理。首先，利用由涡量张量 $\mathbf{\Omega}$确定的旋转矩阵 $\mathbf{Q}$，将实验室坐标系中的数据（a-c）转换到共旋坐标系中（d-f）。随后，根据数据中第一个方位角傅里叶模态的相位对数据进行对齐。g）相关旋转矩阵分量的时间演化以及共转坐标系相位 α。作为比较，我们还给出了实验室坐标系相位 α_{lab} 随时间的变化。竖直虚线表示快照时刻。

材料坐标系无关性是关于微观结构演化的物理假设所导致的结果。另一种适用范围更广的对称性，是旋转下的简单等变性。例如，沿 x方向拉伸的材料，其散射图样应当是沿 y方向拉伸的流体所对应图样的旋转结果。近似实现这种对称性的蛮力方法，是通过加入旋转后的表示来扩充训练数据，但这会大幅增加数据集的规模，而且仍只能近似满足对称关系。尽管现代神经网络架构正逐步通过设计来满足这些条件（Winter等，2022年），但在进一步处理之前先对数据应用这些对称群，通常更简单、更有效（Ling等，2016a；Linot 和 Graham，2020；Zeng 和 Graham，2021年）。遵循后一类方法，我们进一步对散射图像进行预处理，计算旋转相位角，然后将图像旋转至相同相位。我们计算散射强度的径向平均方位角依赖关系，其中 $\Theta = \text{atan2}(q_y,\ q_x)$（Walker 和 Wagner，1996；Bunk等，2009）。

$$I_{\mathbf{\Omega}}(m_r, n_\Theta) = \frac{1}{A_{m_r,n_\Theta}} \sum_{r\in R(m_r),\Theta\in\theta(n_\Theta)} I_{\mathbf{\Omega}}(r,\Theta). \tag{2}$$

A 是径向范围 R 和方位角范围 θ内一个分段中的像素数，m_r 和 n_Θ 分别是径向和方位角索引。我们使用 $N_\Theta = 128$ 个方位角分段，径向范围为$r \in [0.03, 0.05]$ $^{\circ}\text{A}^{-1}$。根据方位角平均值 $z = \mathcal{F}(I_{\mathbf{\Omega}}(n_\Theta))$的离散傅里叶变换的第一个模态，按 $\alpha = \text{atan2}(\text{Im}[z_1],\text{Re}[z_1])$计算相位。通过旋转$I_{\mathbf{\Omega},\alpha} = \mathcal{R}(I_{\mathbf{\Omega}}, \alpha)$生成相位对齐后的数据。因此，旋转演化由共旋坐标系相位 α表征，而形变图样则由相位对齐散射强度表征。图 3 比较了稳态剪切流下的共转相位与实验室坐标系相位。

2.3 降维

机器学习的任务现在是根据输入的形变，确定散射图样和相位的演化。然而，数据仍然具有很高的维度（$I(\boldsymbol{q}) \in \mathbb{R}^d$，$d = n_q^2 = 10^4$，以及上述光束线上采集的实验数据，最高可达 $d \approx 10^6$），这会大幅增加训练神经网络时间演化模型以及部署模型进行结构预测的计算开销。此外，我们认为表示材料的微观结构并不需要 n_q^2 个维度（Lubbers 等人，2017）。因此，我们希望获得数据的降阶表示，以克服这些问题。我们采用近期的方法，使用欠完备自编码器（AE）在混沌和湍流动力系统中发现数据所处的不变流形（Linot 和 Graham，2020，2023）。

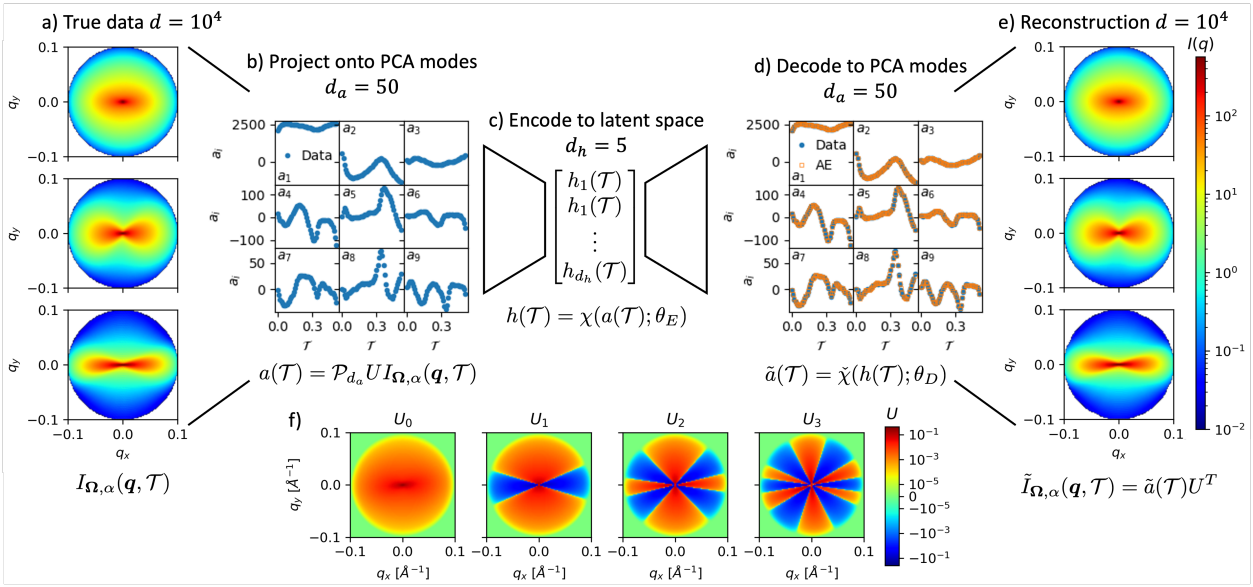

图 4 相位对齐数据的降维 $I_{\mathbf{\Omega},\alpha}(\boldsymbol{q}, \mathcal{T})$ 展示了测试数据中一条 FFoRM 流线上的情况（与图 5相同）。(a) 数据在 $\mathcal{T} = 0.01, \ldots, 52$ 时刻的快照。每个快照都投影到前 $d_a = 50$ 个 PCA 模态 U（b），然后使用深度自编码器编码到维度为 $d_h = 5$ 的潜空间（c）。使用解码器从潜空间重构 PCA 模态（d），最后重构散射强度（e）。(f) 展示了前 4 个 PCA 模态。

在将数据输入自编码器之前，我们使用主成分分析（PCA）进行初步的粗略降维。PCA 是一种常见的线性降维技术，它将数据变换到由数据协方差矩阵的特征向量定义的正交基上，并截断数据以保留方差（“能量”）较大的方向。在自编码器之前进行 PCA 有两个显著优势。首先，得到的 AE 输入维度较低，从而减少神经网络的训练开销。其次，PCA 模态的排序会将方差较低的涨落置于截断后靠后的模态中，从而减少实验不确定性或采样限制所导致的噪声。我们通过对 M 个散射强度快照进行奇异值分解，计算 PCA 基向量，$I(\boldsymbol{q}, \mathcal{T}) \in \mathbb{R}^{d \times M}$:

$$I_{\mathbf{\Omega},\alpha}(\boldsymbol{q}, \mathcal{T}) = U \Sigma V^T \tag{3}$$

其中，$U \in \mathbb{R}^{d \times d}$ 是由 PCA 基向量组成的方形正交矩阵，$\Sigma \in \mathbb{R}^{d \times M}$ 是奇异值对角矩阵，$V \in \mathbb{R}^{M \times M}$ 是右奇异向量的正交矩阵。通过将数据投影到前 d_a 个 PCA 基向量上来进行降维，表示为 $a = \mathcal{P}_{d_a} U I_{\mathbf{\Omega},\alpha}(\boldsymbol{q})$。原始数据通过 $\tilde{I}_{\mathbf{\Omega},\alpha}(\boldsymbol{q}) = aU^T$ 重构。我们设定保留 99% 能量的标准，从而将维度降至 $d_a = 50$。随后将数据的 PCA 模态 $a(\mathcal{T}) \in \mathbb{R}^{d_a \times M}$ 输入深度自编码器，该自编码器将维度编码为潜空间表示 $h = \chi(a; \theta_E) \in \mathbb{R}^{d_h}$，并解码为输入 $\tilde{a} = \check{\chi}(h; \theta_D)$，其中 θ_E 和 θ_D 分别为编码器和解码器的权重。在自编码器处理之前，我们减去每个 PCA 模态的均值，并除以最大标准差进行归一化，$\bar{a}_i = (a_i - |a_i|)/\max(\text{std}(a_i))$。自编码器通过最小化重构的均方误差 (MSE)

$$\mathcal{L}_{AE} = ||\bar{a} - \bar{\tilde{a}}||_2^2 \tag{4}$$

通过采用 Keras 实现的随机梯度下降来学习编码器和解码器权重（Chollet 等人，2015）。我们将潜空间维度设定在 $d_h = 3 - 20$ (Linot 和 Graham，2020）。均方误差随 d_h 下降，直至达到平台值 $d_h \approx 5$，我们将其选作潜空间维度。图 4 展示了一个 FFoRM 流线样本的降维过程（流动运动学见图5 ）。我们还展示了前 4 个主成分分析模态。

2.4 微观结构的时间演化

接下来，我们学习在流动下约化微观结构变量 h 和共转相位的时间演化，即

$$\begin{aligned}\frac{dh}{d\mathcal{T}} &= g_1(h, \sin\alpha, \cos\alpha, \mathbf{Q}^{\alpha T}\cdot\mathbf{Q}^T\cdot\mathbf{E}\cdot\mathbf{Q}^\alpha\cdot\mathbf{Q}; \theta_{g1})\\ \frac{d\alpha}{d\mathcal{T}} &= g_2(h, \sin\alpha, \cos\alpha, \mathbf{Q}^T\cdot\mathbf{E}\cdot\mathbf{Q}; \theta_{g2})\end{aligned} \tag{5}$$

其中， g_1 和 g_2 分别是表示控制潜空间演化和相位演化的向量场的神经网络。具有这种结构的演化方程有时称为神经常微分方程（NODE）（Chen 等人，2018年）。我们使用两个神经网络，因为自编码器的潜空间 h 在相位对齐的共转坐标系中演化，而相位则在共转坐标系中演化。我们仅输入应变率张量，而非速度梯度张量，因为流体微元的旋转由共转参考系处理。我们为共转相位演化选择输入变量时，依据了材料线在共转坐标系中的演化方程（Graham，2018年），具体说明见附录。类似地，对于图样演化，我们通过 $\mathbf{Q}^\alpha$ 将应变率张量从共转坐标系转换到相位对齐坐标系（详情见附录）。

最后，我们输入 $\sin\alpha$ 和 $\cos\alpha$，而不是 α，以实现连续的相位演化。相位被限制在 $\alpha\in[-\pi,\pi]$ 范围内，但当 α 越过 $\pm\pi$ 处的边界时，会发生不连续变化。每当训练数据中出现这种情况时，我们就加上或减去 π。这解决了不连续性，所得旋转保持不变，但当相位可能变得任意大时，也会在长时间尺度上引发问题。预测的 α 随后会超出训练数据的范围，而神经网络的表现会显著变差。使用 $\sin\alpha$ 和 $\cos\alpha$ 可将这些值映射回 $[-1,1]$ 范围，从而实现无限时长的时间演化。

为训练神经常微分方程，我们使用四阶五阶 Runge-Kutta 积分器来预测潜空间和相位

$$\begin{aligned}\hat{h}(\mathcal{T}+\tau) &= h(\mathcal{T}) + \int_{\mathcal{T}}^{\mathcal{T}+\tau} g_1(h, \sin\alpha, \cos\alpha, \mathbf{Q}^{\alpha T}\mathbf{Q}^T\cdot\mathbf{E}\cdot\mathbf{Q}\cdot\mathbf{Q}^\alpha; \theta_{g1})d\tau\\ \hat{\alpha}(\mathcal{T}+\tau) &= \alpha(\mathcal{T}) + \int_{\mathcal{T}}^{\mathcal{T}+\tau} g_2(h, \sin\alpha, \cos\alpha, \mathbf{Q}^T\cdot\mathbf{E}\cdot\mathbf{Q}\cdot; \theta_{g2})d\tau\end{aligned} \tag{6}$$

该模型通过随机梯度下降进行训练，以最小化损失函数 $\mathcal{L}_g = ||h(\mathcal{T}+\tau) - \hat{}h(\mathcal{T}+\tau)||_2^2 + ||\alpha(\mathcal{T}+\tau) - \hat{}\alpha(\mathcal{T}+\tau)||_2^2$，并使用自动微分执行反向传播（Chen 等人，2018年；Linot 和 Graham，2022年）。我们采用训练预测时域 $\tau = 0.1/D_r$，其中 D_r 是棒状粒子的旋转扩散系数。最后，可将预测解码为完整状态的散射强度 $I_{\Omega,\alpha}(\boldsymbol{q},\mathcal{T}) = \check{}\chi(\hat{}h(\mathcal{T}))U^T$，并根据预测的相位和涡量张量将其旋转至实验室坐标系：$\hat{}I(\boldsymbol{q},\mathcal{T}) = \tilde{}\hat{}\mathcal{R}(\mathcal{R}(I_{\Omega,\alpha}(\boldsymbol{q},\mathcal{T}) - \hat{}\alpha(\mathcal{T})) - \theta_{\Omega}(\mathcal{T}))$。

2.5 应力

给定应力数据后，可以训练一个额外的神经网络，将微观结构的潜在表示映射到相位对齐应力场：

$$\tilde{\boldsymbol{\sigma}}_p^\alpha = F(h, \mathbf{Q}^{\alpha T}\cdot\mathbf{Q}^T\cdot\mathbf{E}\cdot\mathbf{Q}\cdot\mathbf{Q}^\alpha; \theta_F) \tag{7}$$

我们从每个应力分量中减去均值，并将其归一化为最大的标准差 $\bar{\sigma}_{p,\,ij}^\alpha = (\sigma_{p,\,ij}^\alpha - |\sigma_{p,\,ij}^\alpha|)\,/\max(\mathrm{std}(\sigma_{p,\,ij}^\alpha))$，并使用随机梯度下降来最小化损失函数 $L_F = ||\bar{\boldsymbol{\sigma}}_p^\alpha - \bar{\tilde{\boldsymbol{\sigma}}}_p^\alpha||_2^2$。随后，可以通过 $\boldsymbol{\sigma}_p = \mathbf{Q}^\alpha\cdot\mathbf{Q}\cdot\boldsymbol{\sigma}_p^\alpha\cdot\mathbf{Q}^T\cdot\mathbf{Q}^{\alpha T}$ 将相位对齐应力转换回实验室坐标系。该函数与微观结构的方程5共同给出了应力的演化——这是一个由 FFoRM-sSAXS 数据确定的张量型坐标系无关本构模型。

本文不打算探讨如何根据速度测量推断应力这一问题。不过，我们在此简要介绍一种可能的实现方法。对于粒子或聚合物在

黏度为 η_s 的牛顿溶剂中的溶液，若忽略惯性，动量方程为 $\boldsymbol{\nabla}\cdot\boldsymbol{\sigma}_p = -\eta_s\nabla^2\boldsymbol{v}$，其中 $\boldsymbol{\sigma}_p(\boldsymbol{x})$ 是待求的聚合物应力（必要时也可考虑惯性）（Batchelor，1970）。对于不可压缩流体，应力的各向同性部分是不确定的，因此我们可以令 $\boldsymbol{\sigma}_p$ 为无迹张量。为处理噪声，我们可以利用流动处于稳态这一事实，从多个时刻获取测速数据。要根据 $\boldsymbol{v}$ 的测量值确定 $\boldsymbol{\sigma}_p$，可以采用变分数据同化框架；该框架不需要对速度数据求导（Asch 等，2016）。在此，我们求解满足 $\boldsymbol{\nabla}\cdot\boldsymbol{\sigma}_p = -\eta_s\nabla^2\boldsymbol{v}$ 和 $\boldsymbol{\nabla}\cdot\boldsymbol{v} = 0$ 的应力与速度，使 $\mathbb{E}\{||\boldsymbol{v}-\boldsymbol{v}_e||^2\}$ 最小，其中 $\boldsymbol{v}_e$ 为实验测得的速度，$\mathbb{E}\{\cdot\}$ 为数据的期望值。或者，近期也有研究者提出使用物理信息神经网络（Karniadakis 等，2021年；Thakur 等，2022年）求解相关问题；这一方法也可能适用于当前问题。

2.6 合成训练数据

在本研究中，我们开发并验证了 SIMPLE，使用一个合成数据集来表示 FFoRM-sSAXS 实验中所用的刚性棒状纤维素纳米晶体（CNC）分散液，如 Corona 等人(2022年) 所述，不过我们进行了简化。有关器件几何结构的更多细节，请参阅这项先前研究。首先，我们通过 OpenFOAM 模拟，在模型 FFoRM 中生成拉格朗日流动轨迹，方法与Corona 等人(2018年) 的研究相同，并假设流体为牛顿流体。我们改变入口流率与出口流率 Q_1 之比 Q_2，其范围为 $Q_1/Q_2 = (-0.7,\ -0.6,\ 0.5,\ \ldots\ldots,\ 1.0)$，由此得到的流动在停滞点处从剪切变化至伸展，其特征由标称流动类型参数表征

$$\Lambda = \frac{|\mathbf{E}| - |\boldsymbol{\Omega}|}{|\mathbf{E}| + |\boldsymbol{\Omega}|} \tag{8}$$

其中 $|\boldsymbol{A}| = (\boldsymbol{A}:\boldsymbol{A}^T)^{1/2}$。平面流动的速度梯度张量可用流动类型参数和流动强度$G = |\boldsymbol{\nabla v}|/\sqrt{1+\Lambda^2}$ 表示，其中笛卡尔坐标轴与主应变率轴重合。

$$\boldsymbol{\nabla v} = \frac{G}{2}\begin{bmatrix} 1+\Lambda & 1-\Lambda & 0 \\ -(1-\Lambda) & -(1+\Lambda) & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \tag{9}$$

器件中心停滞区域内的流线会被采集，且 z平面内的速度梯度分量设为 0。在实验中，散射强度会沿器件深度取平均值，不过当通道高度足够大时，这些影响很小（Corona 等人，2018年）。

我们改变入口流量 $Q_1 \approx 0.025 - 0.5$mL/min；对于 CNC 悬浮液，这对应于无量纲旋转佩克莱数 Pe $= |\mathbf{E}|/D_r \approx 1-20$，其中 $D_r = 2s^{-1}$ 为旋转扩散常数，$\eta_s \approx 1$ Pa s 为溶剂黏度。我们将 OpenFOAM 模拟中的速度梯度和时间尺度无量纲化为 $\boldsymbol{\nabla v}^* = \boldsymbol{\nabla v}/D_r$ 和 $t^* = tD_r$。为方便表示，下文省略 $*$ 上标。对于每种流量和入口/出口比的组合，我们对穿过横流区域的 20 条流线进行采样，总计得到 ~ 2000 条流线。与实验 FFoRM-sSAXS 数据集中可用的流线分辨率相比，这属于显著的欠采样。未来的工作将研究流动类型范围、流动强度以及训练数据规模对 SIMPLE 性能的影响。

随后，利用速度梯度张量对稀相高长径比圆柱形棒状粒子进行布朗动力学模拟，如Tao 等人（2005b, a）所述。我们模拟 10^5 轨迹，以获得几乎无噪声的二阶和四阶取向张量矩测量值，$\langle\mathbf{uu}\rangle$ 以及 $\langle\mathbf{uuuu}\rangle$球坐标下的取向概率分布函数（OPDF）$N(\theta_{rod},\ \phi_{rod})$，以及散射强度 $I(\boldsymbol{q})$。

T散射强度计算假设为稀相圆柱形刚性棒状悬浮液

$$\overline{I(\boldsymbol{q})} = \phi(\Delta\rho)^2 V_p \overline{P(\boldsymbol{q})S(\boldsymbol{q})} + b \tag{10}$$

上划线表示对布朗动力学轨迹取系综平均，或者等价地，对稳态流动取时间平均。对于稀悬浮液，粒子间散射效应可以忽略不计，$P(\boldsymbol{q})S(\boldsymbol{q}) \approx P(\boldsymbol{q}$。模型参数根据对 Corona 等人 (2022年) 中 CNC 和溶剂的拟合选取，得到粒子长度 $L = 1680$ nm、半径 $R = 34$ nm、粒子体积分数 $\phi = 0.1$以及散射长度密度差

$\lvert I_{\Omega,\,\alpha} - \tilde{I}_{\Omega,\,\alpha}\rvert / \lvert I_{\Omega,\,\alpha}\rvert$	$\mathcal{L}_{AE}$	$\mathcal{L}_g$	$\mathcal{L}_F$
8.2×10^{-4}	1.2×10^{-6}	9.1×10^{-4}	7.1×10^{-4}

表1 数据驱动操作的测试误差。

粒子与溶剂之间的 $\Delta\rho = 3.2 \times 10^{-6}$ Å^2, 粒子体积 $V_p = \pi R^2 L$，以及非相干散射截面 $b = 1 \times 10^{-4}$ cm^{-1}。形状因子的计算参见 Corona 等人 (2021年)，该研究对取向概率分布函数上的单粒子散射进行积分，$N(\theta_{rod},\ \phi_{rod})$。利用取向张量矩和非相互作用粒子的 Batchelor表达式计算颗粒对 stress 的贡献（Batchelor，1970；Corona 等人，2021）。最后，每隔 0.01 个无量纲时间单位对所有量进行采样，得到 $\approx 2 \times 10^5$ 个数据点。其中，保留一半流率对应的数据作为测试数据，因此训练数据总量为 $M \approx 1 \times 10^5$。

3 结果与讨论

现在，我们根据上述数据评估 SIMPLE，首先对数据驱动操作进行训练，并在训练数据范围内进行插值。随后，我们将模型外推至启动稳态剪切和拉伸流方案。

3.1 训练与插值

在表1 中，我们报告了 SIMPLE 中数据驱动操作在 720 条 FFoRM流线上的误差。这些数据处于训练中使用的流率 Q_1+Q_2 和流动类型 Λ 范围内，但未被明确用于训练神经网络或执行奇异值分解。我们报告了从截断主成分分析基得到的相位对齐散射强度的归一化重构误差，$\lvert I_{\Omega,\,\alpha} - \tilde{I}_{\Omega,\,\alpha}\rvert / \lvert I_{\Omega,\,\alpha}\rvert$，以及自编码器、神经常微分方程和应力函数的神经网络损失函数。神经网络架构见附录。

作为一个直观示例，我们展示了经过训练的 SIMPLE 模型对 FFoRM 测试数据中某条特定流线的预测能力。具体而言，我们选择运行条件 $Q_1/Q_2 = -0.7$ 和佩克莱数 ≈ 20，在此条件下，流场在 Λ 和 G中表现出显著的空间波动和较大的拉格朗日偏移。我们从 $I(\mathcal{T}=0)$开始，在指定形变 $\boldsymbol{\nabla v}(\mathcal{T})$下对微观结构进行时间演化，该位置对应于光束区域的起点（图5a，星形符号）。具体而言，我们将初始条件旋转至相位对齐参考系 $I_{\Omega,\,\alpha}(\mathcal{T}=0) = \mathcal{R}(\mathcal{R}(I(\mathcal{T}=0)\ \theta_{\boldsymbol{\Omega}}(\mathcal{T}=0))\ \alpha(\mathcal{T}=0))$，投影到截断主成分分析基上，并编码至潜空间 $h(\mathcal{T}=0) = \chi(\mathcal{P}_{d_a} U I_{\boldsymbol{\Omega},\alpha}(\mathcal{T}=0);\ \theta_E)$。随后，我们使用方程 5 中经过训练的神经网络对潜空间和相位进行时间演化，得到 $h(\mathcal{T})$ 和 $\hat{\alpha}(\mathcal{T})$。我们将潜空间预测解码为散射强度 $\hat{I}_{\Omega,\,\alpha}(\mathcal{T}) = \check{\chi}(\hat{h}(\mathcal{T});\ \theta_D)$ U^T，最后使用预测相位 $\hat{I}(\mathcal{T}) = \mathcal{R}(\mathcal{R}(\hat{I}_{\boldsymbol{\Omega},\alpha}(\mathcal{T})\ -\hat{\alpha}(\mathcal{T}))\ -\theta_{\boldsymbol{\Omega}}(\mathcal{T}))$ 将其旋转至实验室参考系。

我们发现，SIMPLE 模型能够成功追踪散射图样和相位，而自编码器解码到全空间时的误差较低，通常为百分之几。由于入口处的流动强度 Pe 较高，误差在此处最大 $\approx 15-20$。这些流动属于训练数据中最强的流动之一，也是最难预测的流动，正如我们将在下文进一步讨论的那样。通过将微观结构的初始条件设定为入口剪切速率下的稳态，可以降低这一误差。在 $\mathcal{T} \approx 0.25$ 处，误差再次增大，这是因为散射强度在剪切流转变为旋转流、随后又转回剪切流的过程中发生了快速重新取向。主要的神经常微分方程（NODE）误差来自对相位的预测，但在经历这一较大的流动梯度后，NODE 追踪再次成功重现了真实轨迹。正如第 3.3 节（图 9）所讨论的，对于这条流线，SIMPLE 根据随时间演化的潜空间预测应力时产生的误差也较低。

接下来，我们量化模型在测试 FFoRM 流线上预测的集成误差。通常，流线时间$\mathcal{T}_{max}$ 会随起始位置 $\mathbf{X}_0$ 和运行条件而变化，因此我们将每条流线的时间除以其最大持续时间进行归一化，$\mathcal{T}/\mathcal{T}_{max}$，并报告集成平均误差。图 h 6a 展示了潜空间变量 α 和共旋相位的预测误差。图6b 展示了实验室坐标系下的散射强度误差；该强度是将潜空间预测解码为相位对齐强度后，再使用预测相位旋转回实验室坐标系得到的。预测误差在 $\mathcal{T}/\mathcal{T}_{max} \approx 0$

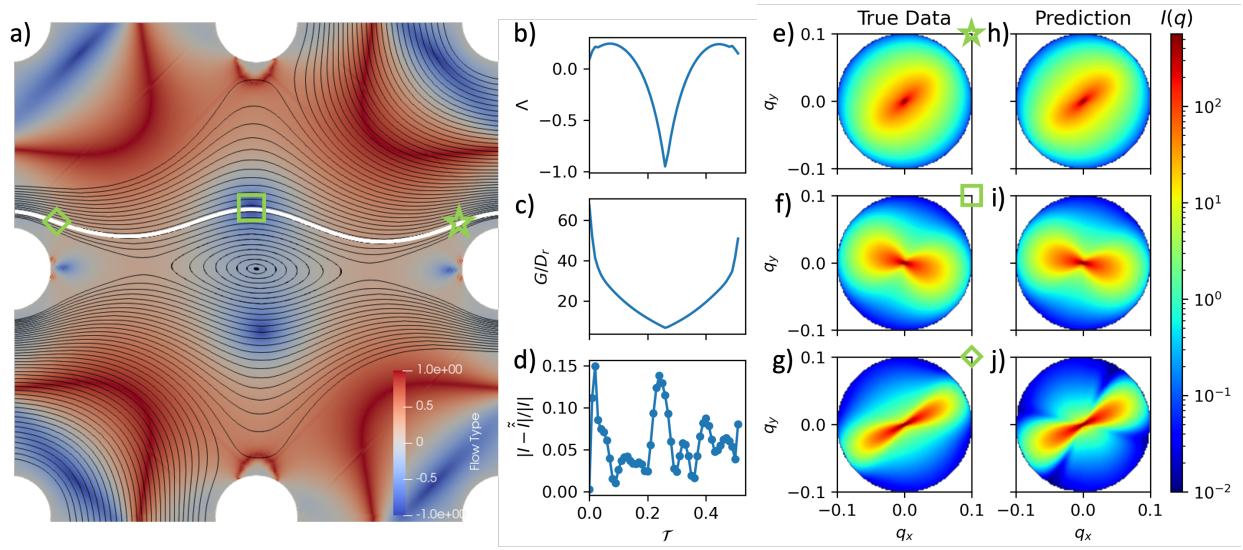

图5 FFoRM 中沿拉格朗日流线的微观结构演化预测。a) FFoRM 中的流线（黑色；白线为选定的流线），以及 (h-j) 中样本预测的快照位置（绿色符号）；b) 流动类型参数 Λ；c) 流动强度 G；d) 预测误差随拉格朗日时间的变化 $\mathcal{T}$。e-g) 布朗动力学模拟的真实数据。h-j) 如正文所述，以初始条件 $I(\mathcal{T}=0)$ 和输入 $\nabla \boldsymbol{v}(\mathcal{T})$ 演化得到的 SIMPLE 预测。快照时间为 $\mathcal{T}=0.01$（星形）、$\mathcal{T}=0.24$（方形）和 $\mathcal{T}=0.52$（菱形）。

以及 $\mathcal{T}/\mathcal{T}_{max} \approx 1$ 由于停滞区起点和终点处的流动梯度较大。在器件中心、靠近停滞点的位置，流动相对均匀，误差保持不变。

3.2 外推

我们已证明，SIMPLE 方法能够成功预测 FFoRM 测试数据中不同形变历史下的微观结构演化。更大的挑战在于，将模型预测扩展到与训练所用数据显著不同的形变输入和历史。我们将通过三种方式展示 SIMPLE 方法的外推能力：1) 稳态剪切流的启动，这种情况未在 FFoRM 数据中明确包含；2) 沿 FFoRM 中未出现过的伸展轴启动稳态平面拉伸流；3) 将流动强度佩克莱数（Pe）改变至超出训练数据范围。

我们使用由方程 9 给出的恒定速度梯度张量生成布朗动力学模拟中的散射强度模式，其中 $\Lambda=0$ 用于剪切流，$\Lambda=1$ 用于拉伸流。初始条件为各向同性悬浮液。在 FFoRM 训练数据集中，不存在流体在较长时间内经历简单剪切形变的流线。其中存在与启动平面拉伸流相当的流线，如图 1b、c（左列）所示，但伸展轴与 $45°$ 轴的夹角为 x，而当前情况下伸展沿 x轴对齐。我们改变流动强度 $G/D_r=0.1-50.0$，相比之下，训练数据范围为佩克莱数 $\approx 1-20$。

使用与布朗动力学模拟相同的速度梯度张量 $\nabla \boldsymbol{v}(\mathcal{T})$，我们根据第 3.1 节所述，从初始各向同性散射强度出发进行 SIMPLE 预测。图 7 对 SIMPLE 预测与布朗动力学模拟进行了定性对比。总体而言，SIMPLE 能准确预测定性的散射图样和长时间稳态行为。随着流动强度增加，预测误差也随之增大。我们主要将此归因于训练数据的范围，即佩克莱数 $\approx 1-20$。对于纯数据驱动框架，我们预期模型在未经训练的区域表现不佳。可以采用基于物理信息的时间演化方法（Mahmoudabadbozchelou 等人，2022年），或采用多保真度建模，以不完善模型生成的高佩克莱数数据补充 FFoRM 数据（Mahmoudabadbozchelou 和 Jamali，2021年；Mahmoudabadbozchelou 等人，2021年）。伸展流动和佩克莱数 >20 条件下 SIMPLE 预测中的白色区域对应散射强度的负值，这显然是不符合物理实际的结果。这些区域源于 PCA 模态重构预测中的误差，因为重构值可能为负。不过，这种情况只会出现在超出训练数据范围的散射图样中。可以通过约束 PCA 模态的重构值为正来解决这一问题。

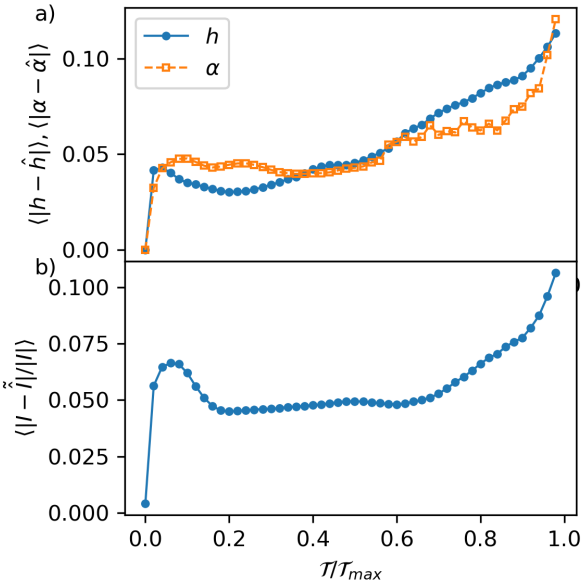

图 6 SIMPLE预测在测试 FFoRM 流线上评估的集成平均误差随停留时间的变化：a) 神经常微分方程预测的潜变量和相位的预报误差；b) 预报、解码及旋转至实验室坐标系的综合误差。

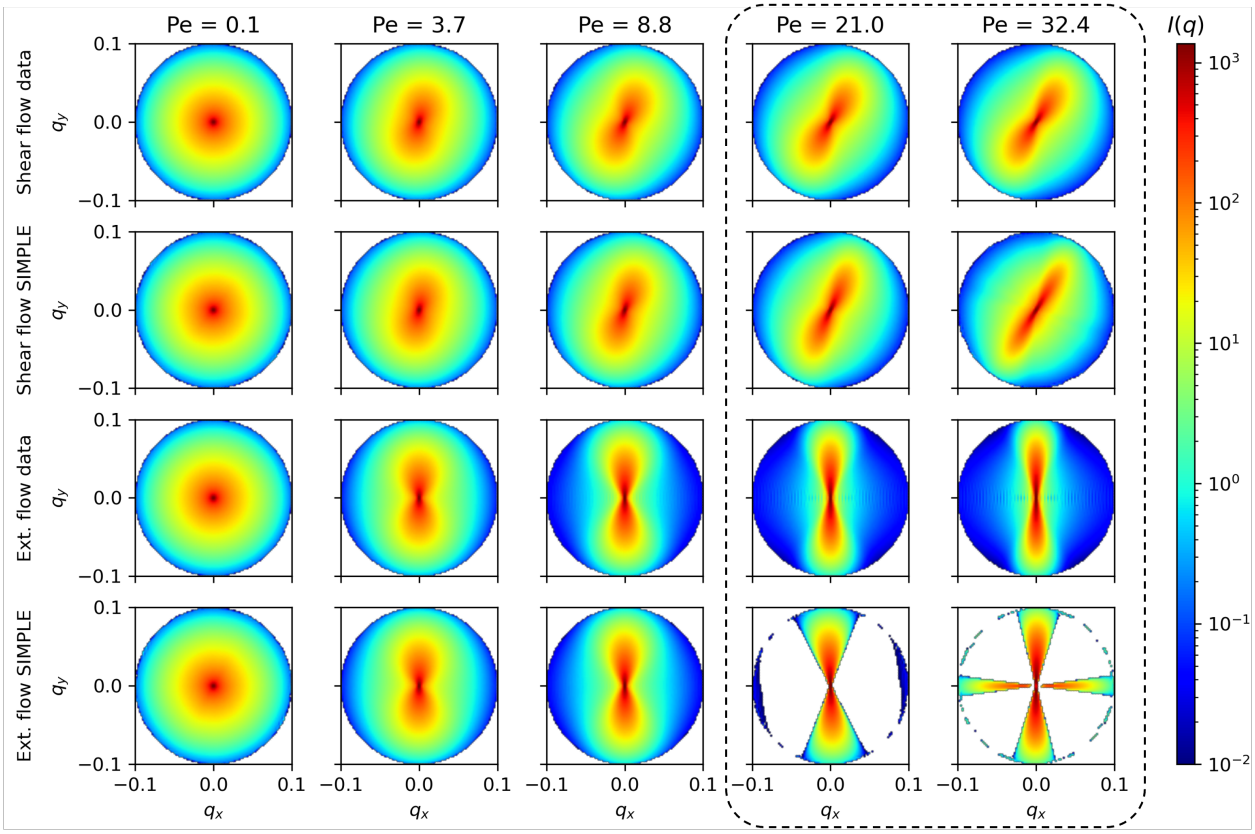

图 7 佩克莱数逐渐增大时，剪切流和拉伸流下布朗动力学模拟与SIMPLE预测得到的稳态散射强度；从左至右分别为 Pe $= \dot{\gamma}/D_r$ 和 $Pe = \dot{\epsilon}/D_r$。第一行：布朗动力学模拟的剪切流。第二行：SIMPLE预测的剪切流。第三行：布朗动力学模拟的拉伸流。第四行：SIMPLE预测的拉伸流。虚线框标示的流动条件超出了训练数据的佩克莱数范围 Pe $= 1 - 20$。底行最右侧两个散射图样中的白色区域表示预测出了虚假的负强度。

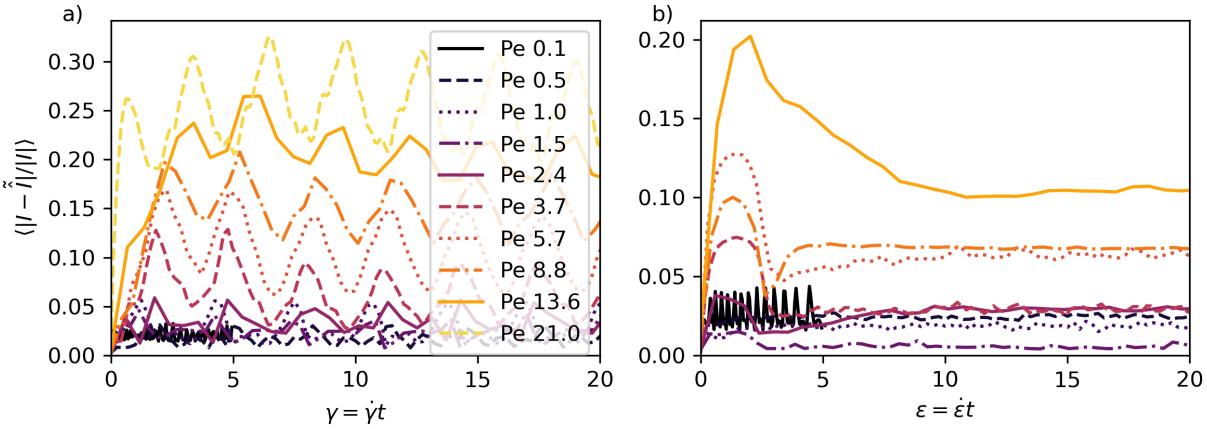

图 8 在启动 a) 剪切流和 b) 拉伸流时，随着流动强度增加，SIMPLE 预测误差随累积应变的变化。

我们在图 8中量化了这些外推流动方案中的预测误差。我们观察到，在低佩克莱数下，剪切流和拉伸流的预测均出现振荡。这是由于预测相位与真实相位之间存在滞后所致 α （附录图 11）。由于相位神经网络在以共旋应变率张量为输入的条件下演化，恒定涡量流中的任何相位滞后都会表现为振荡，随后通过将应变率张量旋转至相位对齐的参考系，传递到潜空间中的预测 h。此外，平衡相位未定义，这给数据驱动建模带来了挑战（Linot 和 Graham，2020），并导致拉伸流预测中出现低佩克莱数振荡。未来的工作中，我们计划采用具有物理信息的神经网络来解决这一问题，其形式为 $d\alpha/d\mathcal{T} = f(\mathbf{\Omega}(\mathcal{T})) + g_2(h,$ 正弦 $\alpha,$ 余弦 $\alpha,$ $\mathbf{E};$ $\theta_{g2})$ ，其中，第一项可通过涡量张量作用下的共旋坐标系演化得到。

3.3 流变学预测

最后，我们展示了神经网络从图中的潜在空间散射数据中学习颗粒应力的能力。10。如上所述，我们考虑一种理想情况：应力的训练数据可由布朗动力学模拟获得。为了预测应力，我们将给定初始条件和形变下随时间演化的潜空间及相位（如第3.1节所述）输入应力函数$\hat{\hat{\boldsymbol{\sigma}}}_p^{\alpha} = F(\hat{h}、\mathbf{Q}^{\hat{\alpha}T} \cdot \mathbf{Q}^T \cdot \mathbf{E} \cdot \mathbf{Q} \cdot \mathbf{Q}^{\hat{\alpha}};\ \theta_F)$ 。图9 展示了 FFoRM测试流线（见图5）上的 SIMPLE预测。我们发现，即使在 $\mathcal{T} \approx 0.25$ 散射强度的预测误差相对较高时，SIMPLE 仍能准确再现真实应力。

接下来，我们使用第3.2节的 SIMPLE 结果，预测稳态剪切流和拉伸流中的应力。计算稳态剪切黏度和拉伸黏度前，我们剔除数据中最初的 10 个应变单位。图10 将这些预测结果（绿色叉号）与 BD模拟结果（蓝色圆圈）进行了比较。在训练数据范围内，模型能够准确预测剪切黏度，佩克莱数 $\mathrm{Pe} = 1 - 20$时尤为如此。对于 $\mathrm{Pe} = 0.1$时预测效果较差的问题，即使使用布朗动力学模拟，计算低 Pe 下的剪切黏度也颇具挑战，因为该区间的信噪比不理想。SIMPLE 能够准确预测 $\mathrm{Pe} \approx 20$以内的拉伸黏度。对于更强的流动，由于时间演化误差导致粒子沿压缩方向出现虚假取向，SIMPLE 会预测出负拉伸黏度；这一现象在图7右下角面板中清晰可见。如何将数据驱动建模与渐近方法相结合，以处理 $\mathrm{Pe} \to 0$ 和 $\mathrm{Pe} \to \infty$ 等极限情况，将是未来的研究主题。

为了评估应力函数在没有时间演化误差时的准确性，我们还考察了给定真实散射强度图样时的应力预测（图10中的橙色方块）。我们将真实散射强度旋转至相位对齐参考系 $I_{\mathbf{\Omega},\ \alpha}(\mathcal{T}) = \mathcal{R}(\mathcal{R}(I(\mathcal{T})\ \theta_{\mathbf{\Omega}}(\mathcal{T}))\ \alpha(\mathcal{T}))$，编码到潜空间 $h(\mathcal{T}) = \chi(\mathcal{P}_{d_a} U I_{\mathbf{\Omega},\ \alpha}(\mathcal{T});\ \theta_E)$，并进行应力预测 $\tilde{\boldsymbol{\sigma}}_p^{\alpha} = F(h, \mathbf{Q}^{\alpha T} \cdot \mathbf{Q}^T \cdot \mathbf{E} \cdot \mathbf{Q} \cdot \mathbf{Q}^{\alpha};\ \theta_F)$。我们发现，在低佩克莱数下，应力函数能够准确预测剪切黏度和拉伸黏度，这表明

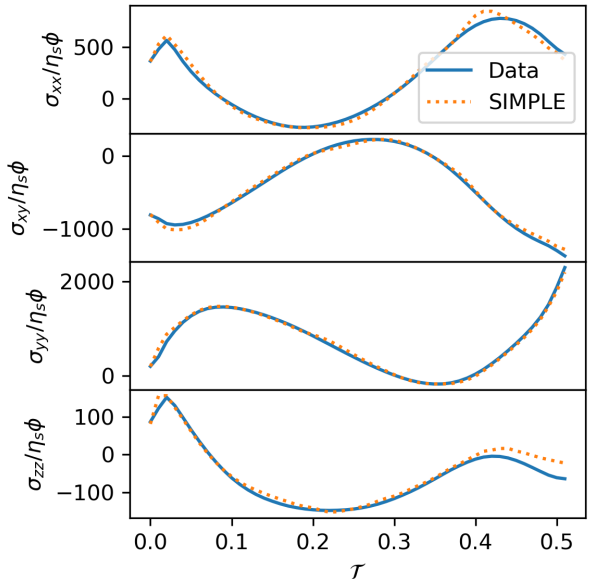

图9 图中所示 FFoRM测试流线的应力SIMPLE预测。5。

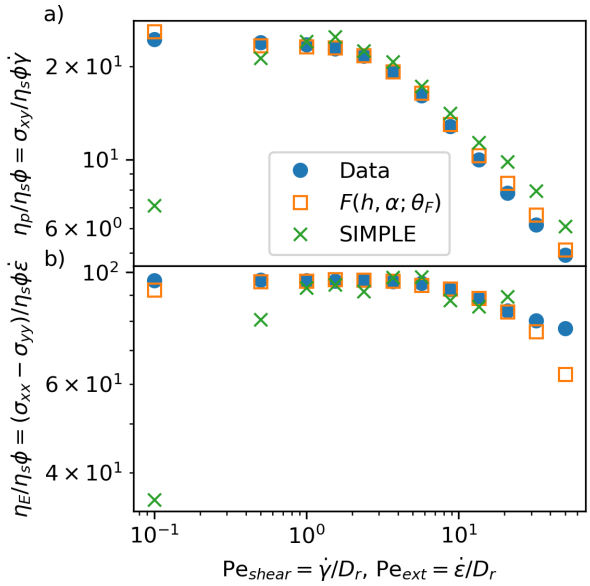

图10 在 a) 稳态剪切流和 b) 稳态拉伸流中，颗粒对黏度的贡献：BD模拟结果（蓝色圆圈）、SIMPLE预测（绿色 x）以及基于真实散射强度 $F(h,\ \alpha)$ 的应力函数预测（橙色方块）。

完整SIMPLE模型中的误差主要源于模型的时间演化部分，而非降维。

4 结论

最初由 Corona 等人 (2022年) 展示的 FFoRM-sSAXS 实验，为流动中的复杂流体提供了获取微观结构信息的非凡途径。本研究展示了如何利用这些信息，在附着于流动中大量流线的拉格朗日参考系中进行开发

用于微观结构演化的高效、准确低维模型。我们开发的方法称为“拉格朗日演化中的散射信息驱动微结构预测（SIMPLE）”，它提供了一种数据驱动工作流，可快速开发通用的框架无关演化方程，进而用于模拟流体在任意流动中的行为。本文介绍了这一基础数据驱动框架，采用高效的数据增强方法充分利用可用数据，并使用共转参考系，使微观结构演化模型遵循材料坐标系无关性这一关键物理原理。目前的结果十分有希望：既能对 FFoRM 中未纳入训练数据的流线上的演化进行“插值”预测，也能对与训练数据中流动历史迥异的情形进行“外推”预测。尤其是，利用拉格朗日数据，我们能够重建简单剪切和平面拉伸启动过程中的正确演化。

仍有必要进一步改进 SIMPLE 框架的方法。需要减少较小的相位误差；当然，也必须解决从速度场中提取应力这一更大的问题；我们已经介绍了可能的解决方法。目前 SIMPLE 框架可能存在一个值得关注的问题：微观结构神经网络模型是通过降阶后的散射信息构建的，而非直接利用微观结构描述符，因此降阶描述的可解释性有所不足。我们指出，已有准确且通用的方法，可将散射信息直接转换为实空间信息，例如 OPDF 及其矩（Corona 等人(2021年，2023））， 因此，本文采用的基于机器学习的降维方法之外，另一种选择是明确指定用于算法动态建模部分的、具有物理意义的描述符。这种方法可能会以效率换取可解释性，因为基于机器学习的方法通过优化过程来确定潜在表示。

更有意思的是，从软物质物理学的角度来看，SIMPLE 框架还可以与基于物理的微观结构演化方程相结合，而非像本文所讨论的那样采用数据驱动方程；后者唯一的物理输入是框架无关性约束。例如，SIMPLE 形式体系还为结合基于物理和数据驱动的建模提供了契机，可用于推进闭合模型的发展。对于取向为$\mathbf{u}$的刚性杆悬浮液，取向概率分布函数的二阶矩演化方程 $\langle \mathbf{uu} \rangle$取决于四阶矩 $\langle \mathbf{uuuu} \rangle$ ，依此类推。即使对于这种最简单的复杂流体，目前也不存在完全令人满意的闭合模型——例如，没有一种模型能正确预测黏度的剪切变稀标度关系 Corona 等人(2023)。如上文提到的 Ling 等人关于湍流闭合的工作（Ling 等人，2016b）所示，可以利用数据和对称性来寻找数据驱动的闭合模型。对于非稀释体系，一个关键挑战是将粒子间相互作用纳入取向分布函数的演化方程。原则上，描述这些效应的一般理论框架已经存在（Dhont 和 Briels，2003；Lang 等人，2019），但相互作用项的函数形式尚未得到充分理解。一种可能的方法是结合机器学习与数据同化：假定演化方程的形式已知，同时将各种函数贡献表示为神经网络（或其他函数表示形式），并利用 FFoRM-sSAXS 数据学习其参数。更广泛地说，实践中最有效的模型或许是以基于物理的模型为基线，并由数据驱动模型学习基于物理的模型与数据之间的差异。

最后，真实的加工流动几乎从来都不是黏度计流动，而大多数流变数据都来自黏度计流动。因此，建立一种结合实验与建模的框架，使其能够直接利用瞬态、非黏度计数据集开发完全张量化的本构模型，其重要性再怎么强调也不为过。FFoRM-sSAXS 与 SIMPLE 的结合，是朝这一目标迈出的重要一步。

声明

资金支持

MDG 和 CY 感谢美国海军研究办公室（ONR）N00014-18-1-2865 项目（Vannevar Bush 教授学者计划）的支持。MEH、PTC 和 AD 感谢美国能源部项目的支持，资助编号为 DE-SC0020988。

利益冲突/竞争利益

所有作者均声明，他们与本文讨论的主题或材料不存在任何关联，也未参与其中，且不持有任何财务或非财务利益。

附录

神经网络架构

神经网络架构和激活函数见表 2。我们通过经验逐步增加深度和宽度，直至测试损失函数的改善趋于平稳。所有模型均使用 PyTorch 中的 Adam 优化器进行训练。我们使用 PyTorch 软件包 torchdiffeq（Chen 等人，2018年）训练神经常微分方程。

函数	形状	激活
χ	$d_a : 64 : 128 : 64 : \ d_h$	ReLU:ReLU:ReLU:Linear
$\check{\chi}$	$d_h : 64 : 128 : 64 : \ d_a$	ReLU:ReLU:ReLU:Linear
g_1	$d_h + 11 : 128 : 256 : 256 : 128 : \ d_h$	ReLU:ReLU:ReLU:ReLU:线性
g_2	$d_h + 11 : 32 : 64 : 32 : 1$	ReLU:ReLU:ReLU:Linear
F	<escape>$d_h + 9 : 128 : 128 : 9$</escape>	ReLU:ReLU:Linear

表 2 神经网络架构。时间演化模型 g_1 和 g_2 的另外 11 个输入对应于应变率张量 $\mathbf{E}$ 和相位（$\sin\alpha$，$\cos\alpha$）。应力模型 F 的另外 9 个输入对应于应变率张量。在当前针对稀释刚性棒状悬浮液的应用中，$d_a = 50$，以及 $d_h = 5$。

共旋坐标系中的演化

原则上，实验室坐标系中的应变率张量 $\mathbf{E}$ 和旋转矩阵 $\mathbf{Q}$ 足以使 SIMPLE 在共旋坐标系中进行时间演化。不过，正如我们在方程5-7中所做的那样，在适当的参考系中输入应变率张量可以提高准确性并减少所需的训练数据量。为说明 $\mathbf{E}$ 在共转坐标系中的正确变换，我们在此考虑一个无穷小材料线演化的简单情形。在拉格朗日但非旋转的参考系中，

$$\frac{d\mathbf{u}}{d\mathcal{T}} = (\boldsymbol{\nabla}\boldsymbol{v}^T)\cdot\mathbf{u} \tag{11}$$

共旋坐标系中的取向与非旋转坐标系中的取向之间的关系为 $\mathbf{u} = \mathbf{Q}\cdot\mathbf{u}^R$ 其中 $\mathbf{Q} = [\boldsymbol{e}_1^R, \boldsymbol{e}_2^R]$ 是酉旋转矩阵，其演化遵循方程 1，而 $\mathbf{u}^R$ 的各元素是 $\mathbf{u}$ 在由 $\boldsymbol{e}_1^R$ 和 $\boldsymbol{e}_2^R$ 给出的共旋基底中的分量。这导致

$$\frac{d\mathbf{u}}{d\mathcal{T}} = \frac{d\mathbf{Q}\cdot\mathbf{u}^R}{d\mathcal{T}} = \frac{d\mathbf{Q}}{d\mathcal{T}}\cdot\mathbf{u}^R + \mathbf{Q}\cdot\frac{d\mathbf{u}^R}{d\mathcal{T}} = (\mathbf{E}+\boldsymbol{\Omega}^T)\cdot\mathbf{Q}\cdot\mathbf{u}^R \tag{12}$$

应用式 1，左乘 $\mathbf{Q}^T$，并注意到 $\mathbf{Q}^T\cdot\mathbf{Q} = \boldsymbol{\delta}$，含有 $\boldsymbol{\Omega}^T$ 的项相互抵消，得到

$$\frac{d\mathbf{u}^R}{d\mathcal{T}} = \mathbf{Q}^T\cdot\mathbf{E}\cdot\mathbf{Q}\cdot\mathbf{u}^R \tag{13}$$

因此，$\mathbf{Q}^T\cdot\mathbf{E}\cdot\mathbf{Q}$ 是速度梯度经过适当变换后的表示。类似地，对于从共旋坐标系到相位对齐坐标系的变换，我们有

$$\mathbf{u}^R = \mathbf{Q}^\alpha\cdot\mathbf{u}^\alpha \tag{14}$$

$$\mathbf{Q}^\alpha = \begin{bmatrix}\cos(\alpha) & -\sin(\alpha)\\ \sin(\alpha) & \cos(\alpha)\end{bmatrix} \tag{15}$$

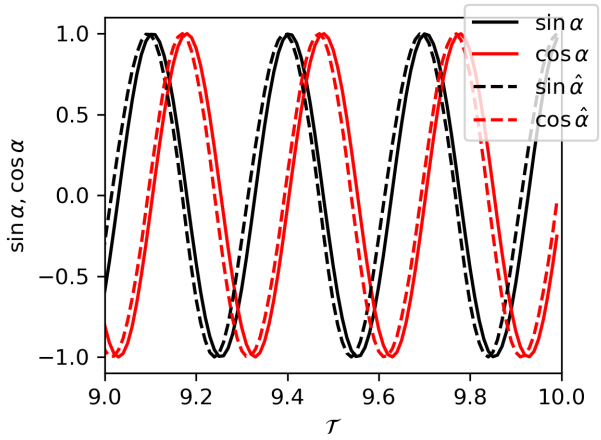

图 11 稳态剪切流中 Pe $= 21.0$ 对应的真实值和预测值 $\sin\alpha$ 与 $\cos\ \alpha$。

经过类似的处理，简化后我们得到

$$\frac{d\mathbf{u}^{\alpha}}{d\mathcal{T}} = \left(\mathbf{Q}^{\alpha T}\cdot\mathbf{Q}^{T}\cdot\mathbf{E}\cdot\mathbf{Q}\cdot\mathbf{Q}^{\alpha} - \begin{bmatrix} 0 & -\alpha_t \\ \alpha_t & 0 \end{bmatrix}\right)\cdot\mathbf{u}^{\alpha} \tag{16}$$

其中 $\alpha_t = d\alpha/d\mathcal{T}$。这为相位对齐散射图样的神经常微分方程演化提供了输入。 .

相位预测滞后

在图 11中，我们展示了在佩克莱数 $= 21.0$ 下稳态剪切流中共旋相位时间演化的示例。我们观察到真实相位与预测相位之间存在滞后，这导致了图 8 中的误差振荡。该误差在预测开始后不久出现，此后随时间保持不变。这一现象在佩克莱数 $= 1 - 50$ 的范围内均一致。

参考文献

Asch M, Bocquet M, Nodet M（2016）《数据同化：方法、算法与应用》。SIAM，费城，网址 https://doi-org.ezproxy.library.wisc.edu/10.1137/1.9781611974546

Batchelor G（1970）无外力粒子悬浮液中的应力系统。《流体力学杂志》41(3):545–570

Behler J, Parrinello M（2007）高维势能面的广义神经网络表示。Physical Review Letters 98(14):146401

Beltran-Villegas DJ、Wessels MG、Lee JY 等（2019）两亲性嵌段聚合物溶液散射实验的计算逆向工程分析。《美国化学会志》141(37)：14916–14930。

Bent J、Hutchings L、Richards R 等（2003）中子映射聚合物流动：散射、流动可视化与分子理论。《科学》301(5640):1691–1695

Bird RB、Curtiss CF、Armstrong RC 等人（1987）《聚合物液体动力学》，第 2 卷：动力学理论。Wiley

Brunton SL, Noack BR,Koumoutsakos P（2019）流体力学机器学习。《Annual Review of Fluid Mechanics》52(1):1–32。https://doi.org/10.1146/annurev-fluid-010719-060214，1905.11075

Bunk O, Bech M, Jensen TH 等（2009）多模态X射线散射成像。新物理学杂志 11(12):123016。https://doi.org/10.1088/1367-2630/11/12/123016，网址 https://iopscience.iop.org/article/10.1088/1367-2630/11/12/123016

Chang MC、Tung CH、Chang SY 等（2022年）一种用于根据散射确定相互作用的机器学习反演方案。《通讯物理》5(1):46

Chen RT, Rubanova Y,Bettencourt J, 等 (2018年) 神经常微分方程。《神经信息处理系统进展》第31卷

Chmiela S、Tkatchenko A、Sauceda H E 等（2017）机器学习构建高精度、能量守恒的分子力场。《科学进展》3(5)：e1603015

Chollet F 等（2015）Keras。网址 https://github.com/fchollet/keras

Corona PT（2020）利用小角散射探测复杂流动历程中复杂流体的纳米结构和流变学。博士论文，加利福尼亚大学圣塔芭芭拉分校

Corona PT、Ruocco N、Weigandt KM 等（2018年）使用流体四辊磨（FFoRM）探测任意二维流动中的复杂流体流动诱导纳米结构。《Scientific Reports》8(1):15559。https://doi.org/10.1038/s41598-018-33514-8，URL https://www.nature.com/articles/s41598-018-33514-8，期号：1 出版商：Nature Publishing Group

Corona PT, Silmore KS, Adkins R, 等（2021年）利用小角散射进行取向分布函数的贝叶斯估计，从而能够直接预测各向异性材料中的机械应力。物理评论：材料 5(6):065601。https://doi.org/10.1103/PhysRevMaterials.5.065601，网址https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevMaterials.5.065601，出版商：美国物理学会

Corona PT, Berke B, Guizar-Sicairos M, 等（2022年）描绘软物质纳米结构对复杂流动历程的响应特征。物理评论：材料 6(4):045603。https://doi.org/10.1103/PhysRevMaterials.6.045603，网址 https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevMaterials.6.045603，出版商：美国物理学会

Corona PT, Dai K, Helgeson ME, 等（2023年）使用 Rheo-SANS 检验稀悬浮液和浓悬浮液中的取向闭合近似。《非牛顿流体力学杂志》 p105014

Demir¨ors AF, Poloni E,Chiesa M, 等（2022年）将光子胶体玻璃三维打印成具有各向同性结构色的物体。《自然通讯》13(1):4397

Dhont JK, Briels WJ（2003）长刚性棒悬浮液的黏弹性。《胶体与表面 A：物理化学与工程方面》213(2-3):131–156

Diao Y, Tee BC, Giri G, 等（2013）通过溶液涂布制备具有取向单晶畴的大面积有机半导体薄膜。《自然材料》12(7):665–671

Doi M, Edwards SF（1986）《聚合物动力学理论》。牛津大学出版社，牛津大学出版社

Doi M,Kuzuu NY（1980）浓溶液和熔体中星形聚合物的流变学。《聚合物科学杂志：聚合物快报版》18(12):775–780

Donina L，Rafique A，Khodaparast S 等（2021年）通过微流控小角中子散射和偏振显微镜观察研究 SDS/辛醇/盐水体系中层状结构向多层囊泡的转变。《Soft Matter》17(44)：10053–10062

Du G, Wang Z, Zhai T, 等（2022年）流动增强柔性微梳印刷有机太阳能电池。《ACS应用材料与界面》14(11):13572–13583

Eberle AP, Porcar L（2012）将 Flow-sans 和 Rheo-SANS 应用于软物质。《胶体与界面科学观点》17(1):33–43 Fang L, Ge P, Zhang L, 等（2022年）DeePN$ˆ2$：一种基于深度学习的非牛顿流体动力学模型。https://doi.org/10.48550/arXiv.2112.14798，网址http://arxiv.org/abs/2112.14798，arXiv:2112.14798[物理学]F´erec J, Bertevas E, Ausias G, 等（2022年）流动过程中纤维取向演变的宏观建模。载于：《复合材料中的流致取向》。爱思唯尔，第77–121页 Graham MD（2018年）《微观流体动力学、布朗运动与复杂流体》，第1版。剑桥大学出版社，剑桥大学出版社，https://doi.org/https://doi.org/10.1017/9781139175876，网址
h
t
t
ps://
www.cambridge.org/core/books/microhydrodynamics-brownian-motion-and-complex-fluids/4D94EAA69E07432101EFEE7D60E4C7EF#Grogan F, Lei H, Li X, 等（2020）利用广义朗之万方程进行数据驱动的分子建模。《计算物理学杂志》418:109633 Hinch E, Leal L（1972）布朗运动对非球形粒子悬浮液流变特性的影响。《流体力学杂志》52(4):683–712 Horwath JP, Lin XM, He H, 等（2022年）通过人工智能辅助的X射线光子相关谱学阐明平衡态之外的弛豫动力学。arXiv预印本 arXiv:221203984 Huang GR, Wang Y, Do C, 等（2019）根据散射特征确定取向排列的细长分子与颗粒物的取向分布函数。《ACS大分子快报》8(10):1257–1262 Huang GR, Carrillo JM, Wang Y, 等（2021年）利用小角散射提取取向有序的精确反演方法。《物理化学化学物理》23(7):4120–4132 Jackson NE, Webb MA, de Pablo JJ（2019）机器学习在多尺度软材料设计领域的最新进展。《化学工程观点》23:106–114。https://doi.org/10.1016/j.coche.2019.03.005，网址https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S2211339819300036Karniadakis GE, Kevrekidis IG, Lu L, 等（2021年）物理信息机器学习。《自然综述：物理》3(6):422–440。https://doi.org/10.1038/s42254-021-00314-5Lang C, Kohlbrecher J, Porcar L, 等（2019）半稀胶体棒中长度和刚度依赖的剪切变稀的微观结构理解。《大分子》52(24):9604–9612 Lee JS, Dylla-Spears R, Teclemariam NP, 等（2007）适用于所有流动类型的微流控四辊磨。《应用物理快报》90(7):074103 Lei H, Wu L, E W（2020）具有分子保真度的机器学习非牛顿流体模型。Physical Review E 102(4):043309。https://doi.org/10.1103/PhysRevE.102.043309，网址https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevE.102.043309Lennon KR, McKinley GH, Swan JW（2022年）用于复杂流体建模与模拟的科学机器学习。arXiv https://doi.org/10.48550/arxiv.2210.04431，2210.04431Ling J, Jones R, Templeton J（2016a）具有不变性特征的系统的机器学习策略。《计算物理学杂志》318:22–35 Ling J, Kurzawski A, Templeton J（2016b）利用具有嵌入式不变性的深度神经网络进行雷诺平均湍流建模。《流体力学杂志》807:155–166。https://doi.org/10.1017/jfm.2016.615

Ling J, Hutchinson M, Antono E, et al (2017) Building data-driven models with microstructural images：泛化与可解释性。《Materials Discovery》10:19–28 Linot AJ, Graham MD (2020) 深度学习用于发现和预测惯性流形上的动力学。Physical Review E 101(6):062209 Linot AJ, Graham MD (2022) 利用神经常微分方程对时空混沌进行数据驱动降阶建模。《Chaos：An Interdisciplinary Journal of Nonlinear Science》32(7):073110 Linot AJ, Graham MD (2023) 数据驱动的湍流最小库埃特流低维模型的动力学。arXiv 预印本 arXiv:230104638 Lopez CG, Watanabe T, Martel A, 等 (2015) 微流控小角中子散射：复杂流体的流动处理。《Scientific Reports》5(1):1–7 Lopez CG, Watanabe T, Adamo M, 等 (2018) 用于小角中子散射的微流控器件。《Journal of Applied Crystallography》51(3):570–583 Lubbers N, Lookman T, Barros K (2017) 利用卷积神经网络推断低维微观结构表征。Physical Review E 96(5):052111 Lutz-Bueno V, Kohlbrecher J, Fischer P (2015) 收缩狭缝流中的胶束溶液：通过小角中子散射绘制取向图。非牛顿流体力学杂志 215:8–18 Lutz-Bueno V, Zhao J, Mezzenga R, 等 (2016) 微流控流动的扫描小角X射线散射：软物质的纳米结构映射。《Lab on a Chip》16(20):4028–4035 Ma Z, Wang S, Kim M, 等 (2021) 记忆核迁移学习：实现聚合物动力学的可迁移粗粒化。《Soft Matter》17(24):5864–5877。 https://doi.org/10.1039/D1SM00364J，网址 https://pubs.rsc.org/en/content/articlelanding/2021/sm/d1sm00364j，出版商：英国皇家化学学会 Mahmoudabadbozchelou M, Jamali S (2021) 流变学信息神经网络（RhINNs）：复杂流体正向与逆向元建模。《Scientific Reports》页码 1 – 13。 https://doi.org/10.1038/s41598-021-91518-3Mahmoudabadbozchelou M, Caggioni M, Shahsavari S, 等 (2021) 复杂流体的数据驱动、物理信息本构元建模：多保真神经网络（MFNN）框架。《Journal of Rheology》65(2):179 – 198。https://doi.org/10.1122/8.0000138Mahmoudabadbozchelou M, Em. Karniadakis G, Jamali S (2022) nn-PINNs：用于复杂流体建模的非牛顿物理信息神经网络。《Soft Matter》18(1):172–185。https://doi.org/10.1039/D1SM01298C，网址 https://pubs.rsc.org/en/content/articlelanding/2022/sm/d1sm01298c，出版商：英国皇家化学学会 Marino E, Flaschel M, Kumar S, 等 (2022) 利用 EUCLID 自动识别线性黏弹性本构定律。arXiv 预印本 arXiv:221210969 Martin HP, Brooks NJ, Seddon JM, 等 (2016) 浓缩表面活性剂混合物的微流控处理：在线小角X射线散射、显微镜观察与流变学。《Soft Matter》12(6):1750–1758 Morris JF (2009) 浓悬浮液中微观结构及其对流变学和体相流动影响的综述。《Rheologica Acta》48:909–923 Morris JF (2020a) 浓悬浮液的剪切增稠：最新进展及其与其他现象的关系。《Annual Review of Fluid Mechanics》52:121–144

Morris JF (2 020b) T oward a fluid mechanics of 悬浮液 ions. Physical Review Fluids 5(11) 110519
: Patel BB, Diao Y (2017) 溶液加工有机电子器件的多尺度组装：限域、流体流动和界面的关键作用。《纳米技术》29(4):044004 Poulos AS, Nania M, Lapham P, et al (2016) 采用微流控小角X射线散射研究具有固有异构体分布的线性烷基苯磺酸钠表面活性剂的层状相和多层囊泡相。《朗缪尔》32(23):5852–5861 Qu G, Kwok JJ, Diao Y (2016) 印刷电子的流动定向结晶。《化学研究述评》49(12):2756–2764 Russo A, Dur´an-Olivencia MA, Kevrekidis IG, et al (2022年) 作为非马尔可夫随机过程闭合的机器学习记忆核。《IEEE神经网络与学习系统汇刊》pp 1–13. https://doi.org/10.1109/TNNLS.2022.3210695, 会议名称：《IEEE神经网络与学习系统汇刊》Saadat M, Mahmoudabadbozchelou M, Jamali S (2022年) 通过流变学信息神经网络（RhINNs）数据驱动选择本构模型。《Rheologica Acta》61(10):721–732. https://doi.org/10.1007/s00397-022-01357-w,URL https://doi.org/10.1007/s00397-022-01357-wSato T (2020) 缠结聚合物液体传输现象综述。《日本流变学会志》48(1):1–14 She Z, Ge P, Lei H (2022年) 编码非马尔可夫特征的随机约化动力学的数据驱动构建。arXiv预印本 arXiv:221005814 Shen Z, Carrillo JMY, Sumpter BG, et al (2022年) 流动中的聚合物布朗运动的指纹特征。Physical Review Letters 129(5):057801 Shireen Z, Weeratunge H,Menzel A, et al (2022年) 一种用于模型聚合物高效粗粒化的机器学习混合优化框架。《npj计算材料》8(1):1–11. https://doi.org/10.1038/s41524-022-00914-4, URL https://www.nature.com/articles/s41524-022-00914-4, 编号：1 出版商：自然出版集团 Silva BF, Zepeda-Rosales M, Venkateswaran N, et al (2015) 流动下固液界面的向列相指向矢重取向：微流控器件中的小角X射线散射研究。《朗缪尔》31(14):4361–4371 Tao YG, den Otter WK, Briels WJ (2005a) 剪切流中棒状粒子的皮划艇式运动与摆动。Physical Review Letters 95(23):237802 Tao YG, den Otter WK, Padding J, et al (2005b) 刚性细长棒自转与集体转动扩散系数的布朗动力学模拟。The Journal of Chemical Physics 122(24):244903 Taylor GI (1934) 可定义流场中乳液的形成。《伦敦皇家学会会刊A辑》146(858):501–523 Thakur S, Raissi M, Ardekani AM (2022年) ViscoelasticNet：一种用于应力发现和模型选择的物理信息神经网络框架。arXiv https://doi.org/10.48550/arxiv.2209.06972, 2209.06972Walker LM, Wagner NJ (1996) 剪切作用下及弛豫期间聚（γ-苄基-L-谷氨酸）/氘代二甲基甲酰胺（PBLG/D-DMF）的分子有序性小角中子散射分析。《大分子》29(6):2298–2301 Winter R, Bertolini M, Le T, et al (2022年) 群不变等变表示的无监督学习。arXiv预印本 arXiv:220207559

Zeng K, Graham MD（2021年）用于混沌时空动力学主动控制的深度强化学习对称性约化。Physical Review E 104(1):014210 Zhang L, Han J, Wang H 等（2018a）深度势分子动力学：一种具有量子力学精度的可扩展模型。Physical Review Letters 120(14):143001。https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.120.143001，网址 https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.120.143001，出版商：美国物理学会 Zhang L, Han J, Wang H 等（2018b）DeePCG：通过深度神经网络构建粗粒化模型。The Journal of Chemical Physics 149(3):034101。https://doi.org/10.1063/1.5027645，网址 https://aip.scitation.org/doi/full/10.1063/1.5027645，出版商：美国物理学会