

Tvorba meziatomárního potenciálu pro křemík pomocí strojového učení

Petr Jaroš¹

¹Department of Solid State Engineering, Faculty of Nuclear Sciences and Physical Engineering, Czech Technical University in Prague
jarospe7@fjfi.cvut.cz (optional)

Abstrakt

Kvalita simulací molekulární dynamikou je zásadně ovlivněna kvalitou potenciálu, který určuje meziatomární interakce. Volba tohoto potenciálu určuje kvalitu a spolehlivost získaných dat. Meziatomární potenciály jsou v současné době většinou vytvářeny pomocí analytických funkcí, které mohou přinášet kvalitní výsledky u partikulárních problémů, nicméně v obecných problémech často selhávají. Neuronové sítě nám nabízejí možnost vytvořit potenciály zcela novým, více univerzálním způsobem. V článku bude představen nově vytvořený potenciál pomocí metod strojového učení pro monokrystal křemíku a jeho základní charakteristiky.

Klíčová slova: Strojové učení, Molekulární dynamika, Křemík, Atomární potenciály

Úvod

Současné výpočetní kapacity nám začínají nabízet možnost tvořit kvalitní meziškálové modely pro simulace v pevných látkách. Zatímco v nedávné minulosti se pro simulace v pevných látkách či periodických systémech používaly buď modely založené na Density functional theory (DFT) nebo modely využívající principy molekulární dynamiky. V současné době se objevují metody využívající strojového učení, které dokážou využít to nejlepší z obou metod.

Metoda DFT je založena na iterativním řešení mnohačástečkové Schrödingerovy rovnice, tato metoda nám dokáže určit velmi přesně například základní stav systému, nicméně výpočty jsou časově náročné a neumožňují nám počítat větší systémy atomů (řádově tisíce atomů), co víc, výpočet časového vývoje systému v řádu pikosekund je téměř nemožný.

Naopak, metoda molekulární dynamiky je určena pro simulace časového vývoje systému, je schopna provádět simulace řádově ve stovkách nanosekund pro systémy o velikosti stovek tisíců atomů. Tyto možnosti jsou ovšem vykoupeny značnou nepřesností způsobenou aproximací meziatomárních interakcí. Pro DFT výpočty je interakce jasně určena řešením Schrödingerovy rovnice, kdežto v molekulární dynamice je interakce nahrazena analytickým vzorcem s mnoha parametry, jejichž hodnota je určena fitováním jak DFT výpočtů tak pomocí experimentálně naměřených dat. Takto určené analytické funkce mohou poměrně dobře reprezentovat meziatomární interakce pro partikulární situace, nicméně selhávají ve své obecnosti.

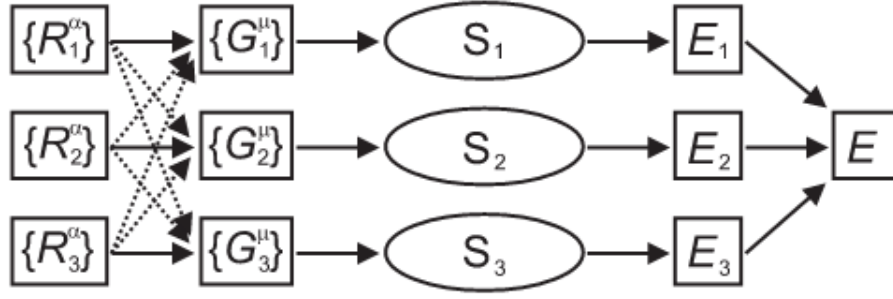
Jedním ze způsobů jak přenést kvalitu DFT výpočtů do molekulární dynamiky je využití strojového učení, a to konkrétně pomocí neuronových sítí. V tomto článku bude

představena metoda vysokodimenzionálních neuronových sítí (HDNNP) [1, 7, 4]. V této metodě vytvoříme dataset atomárních konfigurací, pomocí DFT určíme energie a působící síly na atomy v těchto konfiguracích. Na takto vytvořeném datasetu naučíme neuronovou síť predikovat působící síly na atom v závislosti na atomárním okolí a predikované síly a energie poté využijeme v molekulární dynamice. Tato metoda bude demonstrována na jednoduchém příkladu simulace monokrystalu křemíku a budou prezentovány základní charakteristiky nově vytvořeného potenciálu.

Vysokodimenzionální neuronové sítě

Neuronové sítě jsou jeden z mnoha nástrojů strojového učení. Tato metoda je inspirovaná šířením signálu v mozku. Neuronová síť se skládá z navzájem propojených lineárních funkcí, které jsou navzájem vnořené do takzvaných aktivačních funkcí, které zajišťují spojitost a derivovatelnost. Neuronová síť se skládá z vstupní vrstvy, libovolného počtu skrytých vrstev a vrstvy výstupní. V našem případě bychom chtěli do vstupní vrstvy zadat polohy atomů a ve výstupní vrstvě získat energii a působící síly na atom. Pro využití této metodiky v molekulární dynamice je zásadní překonat dva problémy. Prvním je způsob jak efektivně popsat okolí atomů tak, aby bylo použitelné pro neuronovou síť. Kartézské souřadnice bohužel nejsou pro tento účel vhodné. Pokud si představíme izolovaný systém dvou atomů v kartézském souřadném systému a provedeme translaci či rotaci, fyzikálně se nám systém nezmění, nicméně polohy atomů budou popsány jinou množinou kartézských souřadnic. Tento jiný popis by znamenal pro naši neuronovou síť jiné vstupní parametry a tudíž jiný výsledek i přes fakt, že systém se nám fyzikálně nezměnil.

Pro překonání této svízele lze kartézské souřadnice převést to množiny takzvaných atomisticky centrovaných symetrických funkcí. Tyto funkce byly představeny v [2] a zajišťují invariantnost vůči translaci, rotaci a prohození stejných elementů. Popisem tedy přecházíme z popisu bodu v prostoru na množinu funkcí, které popisují celé okolí atomu do volené maximální vzdálenosti. Další problém, který je třeba překonat je omezení velikosti systému. Pro použití neuronové sítě potřebujeme zajistit konstantní velikost vstupní vrstvy. Při popisu v kartézských souřadnicích je velikost vstupní vrstvy produktem počtu atomů v systému se souřadnicemi x , y , z . Pokud bychom přidali jeden atom, velikost vstupní vrstvy se nám zvětší respektive zmenší pokud bychom atom odebrali. Změna velikosti vstupní vrstvy znamená, že bychom museli celou neuronovou síť natrénovat od začátku, což v praxi není použitelný postup z důvodu výpočetní náročnosti. Proto bylo v [1] představen způsob jak tento problém překonat. Díky popisu symetrickými funkcemi, není každý atom popsán pozicí, ale okolím, tím pádem naše síť není trénována na celou konfiguraci atomů v systému, ale pouze na okolí atomu. To nám umožňuje použít natrénovanou síť na každý atom v systému a určit energii a působící síly v závislosti na okolí. V praxi si tedy během simulace v molekulární dynamice převedeme pro každý atom jeho okolí do množiny symetrických funkcí a pak pro každý atom zvlášť vyhodnotíme neuronovou síť. Tímto můžeme elegantně do systému přidávat nebo odebírat libovolné množství atomů. Celá konstrukce je zobrazena na schématickém Obrázku 1, kde R představuje kartézské souřadnice daného atomu, G představuje množinu symetrických funkcí, S je model neuronové sítě, E_i je predikce energie pro i -tý atom na základě jeho okolí a E je celková energie systému jakožto suma energií E_i .



Obrázek 1: Schématické znázornění konstrukce neuronové sítě pro molekulární dynamiku založené na principu symetrických funkcí. Obrázek převzat z [1].

Model potenciálu Si

Dataset jsme vytvořili z 1098 různě deformovaných struktur konvenční buňky křemíku v FCC diamantové struktuře, včetně izolovaného atomu křemíku. Struktury byly vytvořeny v programu VESTA [11]. Působící síly a energii základního stavu jsme vypočítali pomocí programu VASP [8], který je založený na *Density functional theory*. Neuronovou síť jsme vytvořili a natrénovali pomocí balíku n2p2 [6], který zároveň zajišťuje implementaci neuronové sítě do programu pro molekulární dynamiku LAMMPS [9]. Pro popis okolí byly použity tři druhy symetrických funkcí

$$G_i^2 = \sum_j e^{\eta(R_{ij}-R_s)^2} f_c(R_{ij}) \quad (1)$$

$$G_i^4 = 2^{1-\zeta} \sum_{j,k \neq i} (1 + \lambda \cos(\Theta_{ijk}))^\zeta e^{-\eta((R_{ij}-R_s)^2 + (R_{ik}-R_s)^2 + (R_{jk}-R_s)^2)} f_c(R_{ij}) f_c(R_{ik}) f_c(R_{jk}) \quad (2)$$

$$G_i^5 = 2^{1-\zeta} \sum_{j,k \neq i} (1 + \lambda \cos(\Theta_{ijk}))^\zeta e^{-\eta((R_{ij}-R_s)^2 + (R_{ik}-R_s)^2)} f_c(R_{ij}) f_c(R_{ik}) \quad (3)$$

Všechny funkce měly nastaveny stejný cutoff $R_c = 6.0$. Pro funkci G^2 jsme volili hodnotu $\eta = 2.0$ a parametr R_s nabýval hodnot 0.5, 0.75, 1.0, 1.25, 1.5, 2.0, 2.5, 3.0 3.5, 4.0, 4.5, 5.0, 5.5, 6.0. Parametr Θ_{ijk} určuje úhel mezi třemi atomy. Parametry funkcí G^4 a G^5 jsme volili shodně, hodnoty jsou zobrazeny v Tabulce 1. Velikost okolí byla určena pomocí takzvané *cutoff* funkce, která byla definovaná jako

$$f_c(R_{ij}) = 0.5 \left(\cos \left(\frac{\pi R_{ij}}{R_c} \right) + 1 \right) \quad R_{ij} \leq R_c \quad (4)$$

$$f_c(R_{ij}) = 0 \quad R_{ij} > R_c \quad (5)$$

Tato množina symetrických funkcí nám tvořila vstupní vrstvu neuronové sítě, která nadále měla dvě skryté vrstvy, každá po dvou neuronech. Aktivační funkce na neuronech měla tvar hyperbolického tangentu, v poslední vrstvě byla volena lineární aktivační funkce $f(x) = x$.

Tabulka 1: Hodnoty parametrů použitých pro symetrické funkce G^4 a G^5 . Parametr R_s je roven nule.

η	λ	ζ	η	λ	ζ
0.2222	-1.0	1.0	0.04082	-1.0	6.0
0.2222	1.0	1.0	0.04082	1.0	6.0
0.2222	-1.0	6.0	0.01653	-1.0	1.0
0.2222	1.0	6.0	0.01653	1.0	1.0
0.04082	-1.0	1.0	0.01653	-1.0	6.0
0.04082	1.0	1.0	0.01653	1.0	6.0

Parametr kontrolující kvalitu natrénování sítě byl *root mean squared error* (RMSE), který je obecně určen jako

$$RMSE = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N (x_i - \hat{x}_i)^2}{N}} \quad (6)$$

kde N je počet vstupů, x_i je skutečná hodnota a \hat{x}_i je hodnota určená modelem. Síť byla trénovaná na 100 epoch.

Pro simulace v molekulární dynamice jsme použili hodnoty parametrů z 93 epochy, kde jsme dosáhli chyby na trénovacích datech 0.32875 eV/atom a na datech testovacích 0.39375 eV/atom. Testovacími daty rozumíme, pro neuronovou síť, zcela neznámá data, v našem případě struktury konvenční buňky křemíku. Testovací dataset byl tvořen desíti procenty celkového počtu vytvořených struktur, struktury byly vybrány náhodně.

1 Charakteristika potenciálu

Elastické konstanty

Tensor elastických konstant byl vypočítán pomocí programu LAMMPS [9]. Výpočty byly vedeny při absolutní nule. Křemík patří do prostorové grupy 227 (Fd-3m) a díky tomu má tensor nezávislé prvky $C_{11} = C_{22} = C_{33}$, $C_{12} = C_{21} = C_{31} = C_{32} = C_{13} = C_{23}$ a $C_{44} = C_{55} = C_{66}$, zbylé prvky jsou nulové.

$$\begin{pmatrix} 165.7 & 63.9 & 63.9 & 0 & 0 & 0 \\ 63.9 & 165.7 & 63.9 & 0 & 0 & 0 \\ 63.9 & 63.9 & 165.7 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 79.6 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 79.6 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 79.6 \end{pmatrix} \quad (7)$$

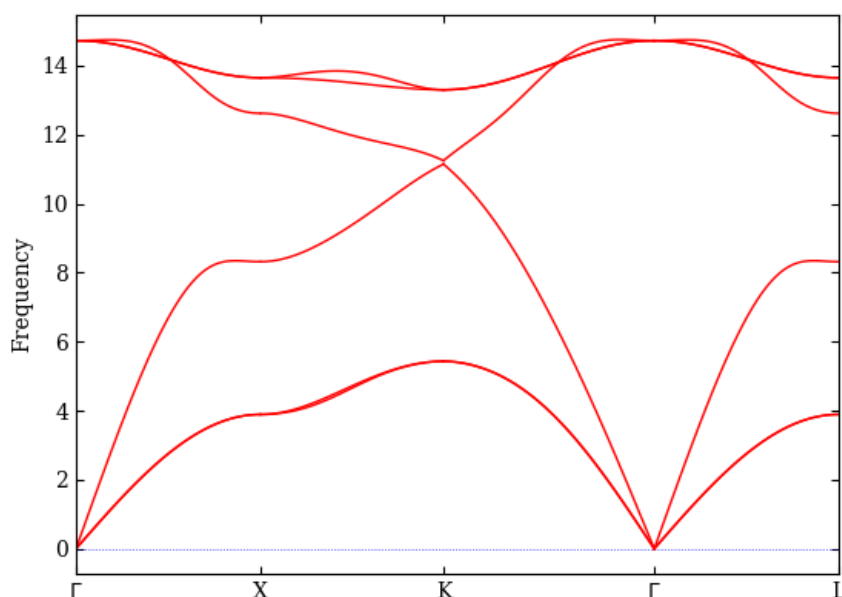
Teoretický tensor je zobrazen v matici (7), hodnoty prvků jsou v GPa. [12]

$$\begin{pmatrix} 146.695 & 87.973 & 87.972 & 0 & 0 & 0 \\ 87.972 & 146.695 & 87.972 & 0 & 0 & 0 \\ 87.972 & 87.972 & 146.695 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 53.493 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 53.493 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 53.493 \end{pmatrix} \quad (8)$$

Námi vypočítaný tenzor je zobrazen v matici (8), hodnoty prvků jsou opět v GPa. Z výpočtu nám nevyšel ani jeden nulový prvek, nicméně hodnoty se pohybovali v řádech 10^{-8} , tudíž jsem se hodnoty rozhodli zanedbat. Námi vytvořený potenciál zachovává potřebnou symetrii, na druhou stranu elastické konstanty se neshodují.

Fononové spektrum

Fononová spektra byla vypočítána pomocí program LAMMPS a balíku PhonoLAMMPS a Phonopy [14, 15]. Z fononových spekter je vidět, že náš potenciál nevytváří záporné



Obrázek 2: Fononová spektra vypočítaná námi vytvořeným potenciálem v balíku Phonopy. Na ose y jsou frekvence v jednotkách THz.

větvě, což by značilo nestabilitu struktury. Také se pohybujeme v intervalu frekvencí od 0 do 15 THz, což odpovídá teoretickým hodnotám např. v [13].

Závěr

V článku byl představen potenciál vytvořený pomocí metod strojového učení, byly představeny základní charakteristiky, jako tenzor elastických konstant a fononová spektra. Kvalita predikce neuronové sítě je 0.39375 eV/atom, což je vyšší hodnota, nicméně odráží velikost a kvalitu datasetu a celkovou topologii sítě. I přes vyšší chybu v predikci se model pohybuje ve fyzikálních hranicích. Jak tenzor elastických konstant tak fononové spektra dosahují srovnatelných výsledků s publikovanými daty. Lepší přiblížení k experimentálním a teoretickým výpočtům bude subjektem dalšího bádání.

Reference

- [1] Behler, J., Parrinello, M. (2007). Generalized neural-network representation of high-dimensional potential-energy surfaces. *Physical Review Letters*, 98(14), 1–4.
- [2] Behler, J. ‘Atom-Centered Symmetry Functions for Constructing High-Dimensional Neural Network Potentials’. *Journal of Chemical Physics* 134, no. 7 (2011)
- [3] Behler, J. (2011). Neural network potential-energy surfaces in chemistry: A tool for large-scale simulations. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 13(40), 17930–17955.
- [4] Behler, J. (2015). Constructing high-dimensional neural network potentials: A tutorial review. *International Journal of Quantum Chemistry*, 115(16), 1032–1050.
- [5] Ian Goodfellow, Yoshua Bengio, Aaron Courville. (2016) *Deep Learning*. MIT press, <http://www.deeplearningbook.org>
- [6] Singraber, A., Behler, J., Dellago, C. (2019). Library-Based LAMMPS Implementation of High-Dimensional Neural Network Potentials. *Journal of Chemical Theory and Computation*, 15(3), 1827–1840.
- [7] Behler, J. (2011). Atom-centered symmetry functions for constructing high-dimensional neural network potentials. *Journal of Chemical Physics*, 134(7).
- [8] VASP. 2022. <https://www.vasp.at/>
- [9] Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator (LAMMPS). 2021. <https://lammps.sandia.gov/>
- [10] A. Stukowski, Visualization and analysis of atomistic simulation data with OVITO – the Open Visualization Tool Modelling Simul. Mater. Sci. Eng. 18 (2010), 015012
- [11] K. Momma and F. Izumi, ”VESTA 3 for three-dimensional visualization of crystal, volumetric and morphology data,” *J. Appl. Crystallogr.*, 44, 1272-1276 (2011).
- [12] B. M. Askerov, *Electron Transport Phenomena in Semiconductors*, World Scientific (1994)
- [13] Davis, Bruce L. and Hussein, Mahmoud I., Thermal characterization of nanoscale phononic crystals using supercell lattice dynamics, *AIP Advances*, 041701, 2011
- [14] Atsushi Togo, Laurent Chaput, Terumasa Tadano, and Isao Tanaka, Implementation strategies in phonopy and phono3py , *J. Phys. Condens. Matter* 35, 353001-1-22 (2023)
- [15] Atsushi Togo, First-principles Phonon Calculations with Phonopy and Phono3py, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 92, 012001-1-21 (2023)

Acknowledgement

This work was supported by the Grant Agency of the Czech Technical University in Prague, grant No. SGS13/219/OHK4/3T/14, and Czech Science Foundation, grant No. 14-36566G.