

Strojno učenje svojstava materijala na podacima različite točnosti

Fran Krčelić*

Prirodoslovno-matematički fakultet, Bijenička 32, Zagreb, Hrvatska

Mentor: dr. sc. Ivor Lončarić†

Institut Ruđer Bošković, Bijenička 54, Zagreb, Hrvatska

(Dated: 22. siječnja 2023.)

Predviđanje svojstva materijala iz njegove strukture je osnovni cilj fizike materijala. Cilj ovog rada je primijeniti strojno učenje na podacima različite točnosti kao alternativnu metodu te je usporediti s prijašnjim modelima baziranim na neuralnim mrežama. Pokazano je da dodavanjem velikog seta podataka (nešto manje točnosti) manjim i preciznijim setovima, vodi do smanjenja srednje apsolutne greške (MAE) modela u granicama od 22% do 45%.

I. UVOD

Fizika materijala je interdisciplinarna grana koje se proteže na velikom rasponu prostornih skala. Najosnovnija od njih je promatranje individualnih atoma te 3D struktura koje oni formiraju stvarajući kemijske veze. Precizan opis i razumijevanje, a konačno i manipuliranje atomskim strukturama centralni je problem fizike materijala. Često nas zanimaju energije sustava te sile na pojedine atome, stoga nam je korisna fizikalna veličina ploha potencijalne energije (eng. Potential Energy Surface (PES)). Ona ovisi isključivo o položajima atoma, a računamo ju rješavajući Schrödingerovu jednadžbu. Egzaktno rješenje ovakvog sustava nije moguće dobiti čak ni sa najsofisticiranijim računalima današnjice, stoga se već duže vrijeme koriste računalne simulacije na atomskim razinama kojima aproksimativno rješavamo problem; staknule su se dvije glavne grane pristupa. Jedna od njih je bazirana na tzv. funkcionalima gustoće (eng. Density-Functional Theory (DFT))¹. Ova metoda daje iznimne rezultate na skali do nekoliko stotina atoma, no njena složenost raste s trećom potencijom elektrona te je time čini nepraktičnom pri opisu većih sustava. Usprkos tome, koristeći se DFT-om identificirani su novi spojevi i prije nepoznate strukture koje su kasnije i eksperimentalno realizirane. S druge strane, ideja je parametrizirati međuatomske interakcije koristeći se generaliziranim potencijalom tzv. "poljem sile" (eng. "force fields"). Potencijal je opisan dobro poznatim jednostavnim članovima (harmonički doprinos, Coulombova integracija, angularni moment, itd) čije parametre onda prilagođavamo sustavu, te ga zovemo "empiričkim". Očekivano, ovim postupkom žrtvujemo dio preciznosti, no za uzvrat dobivamo model čija je složenost proporcionalna drugoj potenciji elektrona. Ove simulacije nam proširuju skalu sustava i do na stotine tisuća atoma.²

Kao i u mnogim drugim područjima posljednjih godina, strojno učenje (eng. Machine Learning (ML)) je našlo primjenu i u ovom. Postoje tri glavna tipa strojnog učenja:

- Nadzirano učenje (eng. supervised learning) je metoda treniranja modela na predviđenom setu podataka, a ishod je poznat. Ovakvo učenje se koristi kao forma regresije. Modelu je zadatak raditi predikcije bazirane na danim podacima koje se mjere pomoću "loss" funkcije. Treniranje je završeno kada su odstupanja predikcija od stvarnih rezultata zadovoljavajuće mala.
- Nenadzirano učenje (eng. unsupervised learning) je ono u kojem model trenira na setu podataka, no ishod nije "a priori" poznat. Cilj je pronaći "skriven" poveznice i uzorke u setu bez potrebe nekog specficiranog rezultata mreže.
- Učenje s potkrepljenjem (eng. reinforcement learning) je metoda u kojoj model interagira sa okruženjem i dobiva povratnu informaciju u formi pozitivog ili negativnog potkrepljenja. Ovakvo učenje se koristi u robotici i industriji videoigara. Cilj je naučiti mrežu da poduzima radnje koje će maksimizirati finalnu nagradu.

U ovom radu se koristimo prvim tipom. Ideja je nalaženje PES-a koristeći se neuralnim mrežama (eng. Neural Network (NN)). Prvi ovakav pokušaj za velike sustave napravio je Smith 1999.³ Ideju su generalizirali Behler i Parinello 2007. na primjeru silicija.⁴ Proces je sličan onome sa poljima sile jer također radimo neke predikcije kao što su lokalnost i glatkoća funkcije potencijala. Ključna razlika je u tome što nema nikakvih pretpostavki o obliku interakcije, tj. ovisnosti potencijala o nekoj veličini (npr. poziciji atoma) na već predefimirani način. Jednom kada je potencijal prilagođen podacima, možemo predvidjeti energije i sile na velikim atomskim skalama bez potrebe novih informacija. Štoviše, poznavanjem PES-a imam pristup svim veličinama koje ovise

* fkrcljic.phy@pmf.hr

† Ivor.Loncarij@irb.hr

o njemu. Jedan primjer bi bio računanje toplinske vodljivosti iz poznatih sila i vibracijskih modova sustava (fona). Nedostatak ovog pristupa dolazi od istog razloga kao i njegove prednosti. Time što prilagođavamo potencijal nekim podacima imamo problem nepoznatog broja dovoljnih podataka da mreža daje zadovoljavajuće rezultate. Također, fizikalnost sustava nije "a priori" nametnuta, već sustav sam "uči" fiziku problema što može dovesti do besmislenih rezultata.

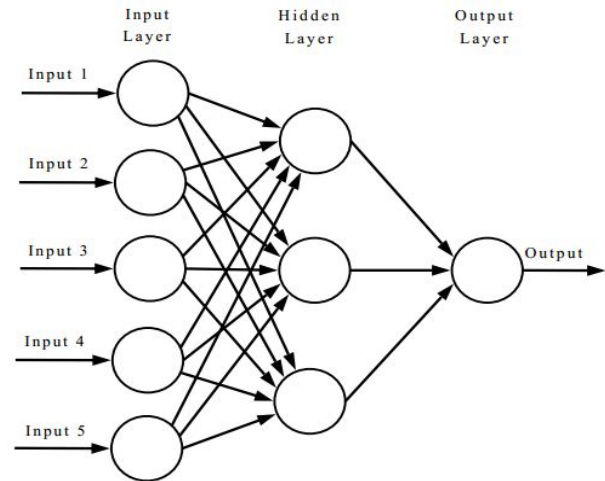
Kako bi neuralna mreža mogla "učiti", potrebne su joj referentne strukture za koje su prethodno poznate energije i sile na atome. Za najbolje rezultate, očekujemo da bi ovakvi podatci trebali biti što precizniji (npr. računati DFT-om) i u što većem broju. Nažalost, prikupljanje dovoljno takvih podataka za treniranje mreže predstavlja veliki problem. Druga opcija bi bili podatci dobiveni korištenjem grubljih aproksimacija. Iako neprecizniji, bili bi lakši za generirati što bi rezultiralo većim brojem referentnih struktura koje bi također mogle biti napravljene na većim skalama materijala. Združivanje ovih pristupa, odnosno treniranje neuralne mreže za skupu podataka različite točnosti (eng. multi-fidelity data) napravili su Chi Chen, Yunxing Zuo, Weike Ye, Xiangguo Li i Shyue Ping Ong 2021.⁵ Na raspolaganju imamo 5 različitih setova podataka te promatramo preciznost modela s obzirom na kombinacije korištenih setova. Nedostaci prijašnjih modela baziranih na podacima različite točnosti su većinom bili ograničeni na samo dva seta podataka ili su imali netrivialno povećane na više setova. "Multi-task" neuralne mreže mogle su udružiti više setova te su se linearno skalirale s njihovim brojem, no zahtjevale poznavanje svih podataka za svaki materijal što je rijetko slučaj u fizici materijala. Cilj ovog modela je generalizacija korištenja setova različitih točnosti podataka na kako i na uređenim, tako i na neuređenim strukturama materijala.

II. METODE

Neuralne mreže

Neuralna mreža je tip strojnog učenja inspiriran načinom rada mozga. Bazična jedinica mreže je "neuron" koji uzima informaciju, obrađuje je i zatim šalje dalje. Račun koje izvršava neuron određen je njegovim "težinama" koje su podesivi parametri koji određuju snagu veza među neuronima. Pod izrazom "treniranje" mreže podrazumijevamo modificiranje težina na način koji rezultira najboljim finalnim modelom. Taj uvijet je nametnut minimiziranjem funkcije srednjih apsolutnih grešaka (eng. Mean Absolute Errors (MAE)) u odstupanju modela od već poznatih vrijednosti. Kako je MAE direktno povezan s težinama, njihovim mjenjanjem prilagođavamo neuralnu mrežimo i kažemo da ona "uči" svojstva materijala.

Neuroni su grupirani u slojeve koji čine skup neurona koji međusobno ne "komuniciraju", ali interagiraju sa susjednim slojevima. Time output jednog sloja neurona postaje input za sljedeći. Slojeve dijelimo u tri skupine, ulazni, skriveni i izlazni (eng. input, hidden and output layer) (slika 1). Ulazni sloj dobiva neobrađene podatke, dok izlazni sloj izbacuje finalni rezultat. Za razliku od njih, možemo imati više od jednog skrivenog sloja što je većinom i slučaj. Oni su zaslužni za računalnu sposobnost mreže.

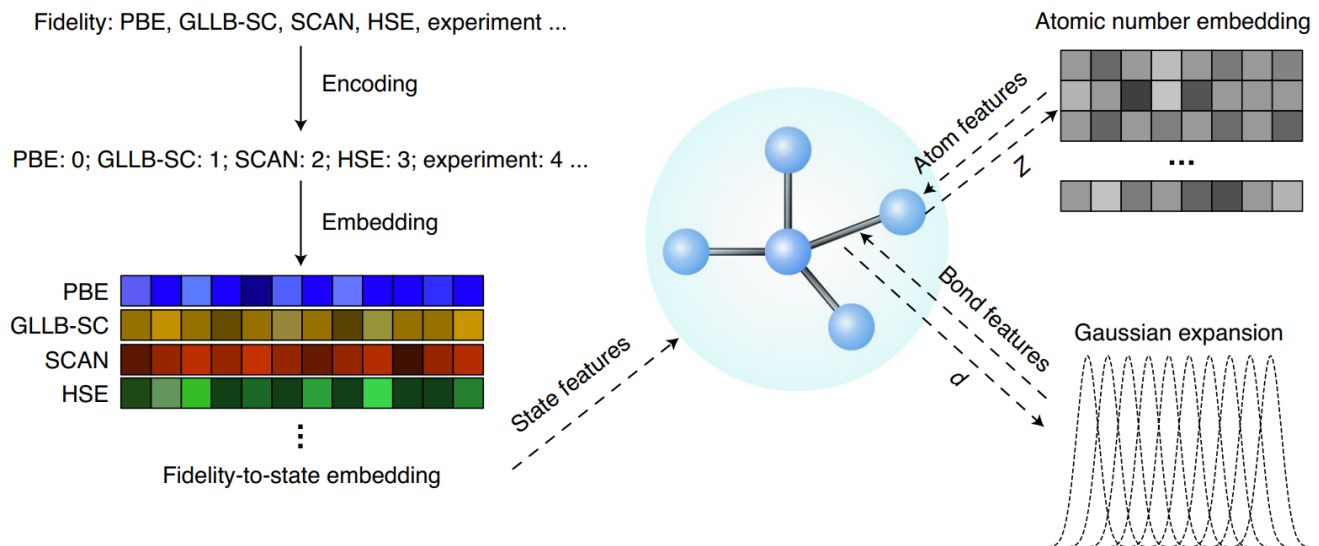


Slika 1. Shematski prikaz neuralne mreže⁶

Setovi podataka za treniranje mreže

Kao što smo već prije spomenuli, imamo 5 setova podataka na raspolaganju, a potrebne su nam strukture kristala te njihovi energetske procijepi. Prvi, i ujedno najveći od njih je PBE⁷ sastavljen od 52,348 kristalnih struktura. Energije su dobivene iz rada "material Project"⁸ 2019. koristeći se "pymatgen"⁹ paketom u Pythonu. Energije seta GLLB-SC iz Castelli et al.¹⁰ su dobivene koristeći MPCContribs¹¹. Ukupan broj energija, nakon izbacivanja struktura koje nisu pogodne (npr. preduge veze ($> 5\text{\AA}$)), je 2290. Treći set podataka SCAN28¹² je uzet iz prijašnjeg istraživanja Borlido et al.¹³ te sadrži 472 energije. Četvrti set HSE je preuzet sa stranice MaterialGo¹⁴, sastoji se od 6030 struktura. Posljednji set eksperimentalnih vrijednosti procijepa je uzet iz rada Zhuo-a i suradnika¹⁵ te broji 2703 strukture. Svi setovi podataka su javno dostupni.¹⁶

Podatci svakog seta nasumično su podjeljeni u tri dijela sa omjerom 8:1:1. Najveća porcija se koristi za treniranje neuralne mreže, prva desetina za validaciju, a druga za finalno testiranje. Iznimka je PBE set kojeg smo kolpлетno izbacili iz seta za validaciju, razlog je njegova veličina.



Slika 2. Shematski prikaz zapisivanja parametara strukture⁵

Zbog puno veće količine podataka u tom setu, mreža bi mogla biti pristrana na način da se prilagodi tim energijama zanemarujući ostale.

Pri treniranju, maksimalni broj epoha je ograničen na 1500. MAE je računat nakon svake epohe koristeći se setom validacije. Ukoliko se MAE smanjio, pripadne težine neurona su ažurirane. Uzeto je da je prilagodba konvergirala ako se MAE nije smanjila nakon 500 uzastopnih koraka. Modeli su konstruirani koristeći se python-ovim paketom Tensorflow¹⁷. Funkcije ažuriranja u svakom konvolucijskom sloju grafa su višeslojne sa [64, 64, 32] skrivenih slojeva te s $\ln(e^x + 1) - \ln(2)$ kao nelinearnom aktivacijskom funkcijom. Ona je "odlučuje" hoće li neuron biti aktiviran ili ne. Drugim riječima, opisuje je li doprinos određenog neurona bitan pri treniranju mreže.

Konstrukcija mreže grafova materijala

Kako bi neuralna mreža trenirala na strukturama, one moraju biti zapisane u prikladnom formatu. Mreži ne možemo samo dati vektor položaja (u 3D) svakog elementa kristala te njihove međusobne veze. Podatci se zapisuju pomoću neusmjerenih grafova. Atomi su prikazani vrhovima grafa (V), a njihove veze s bridovima (E). Sada je ideja prikazati određeni element strukture sa pripadajućim vektorom u apstraktnom prostoru. Za svaki novi element koji se pojavljuje, prostoru dodajemo još jednu dimenziju. Često je poželjno dodatno povisiti dimenziju tog prostora što daje mreži dodatne parametre pri treniranju i time povećava njenu fleksibilnost. U ovom slučaju, prostor \mathbb{R}^{16} se pokazao kao najbolji izbor. Veze ćemo prikazati preko seta "Gaussovih ekspanzija udaljenosti" (eng. Gaussian-expanded distances). Za k -tu vezu u strukturi, m -ti član ekspanzije glasi:

$$e_{k,m} = \exp - \frac{(d_k - \mu_m)^2}{\sigma}, \forall d_k \leq R_c \quad (1)$$

gdje je d_k duljina veze k između atoma s indeksima r_k i s_k . R_c je granični radius (eng. cutoff radius) unutar kojeg promatramo veze atoma. Ukoliko je veza duža od njega, tu interakciju zanemarujemo. Koeficijent μ_m je definiran kao:

$$\mu_m = \frac{m}{n_{\text{bf}} - 1} \mu_{\text{max}} \quad (2)$$

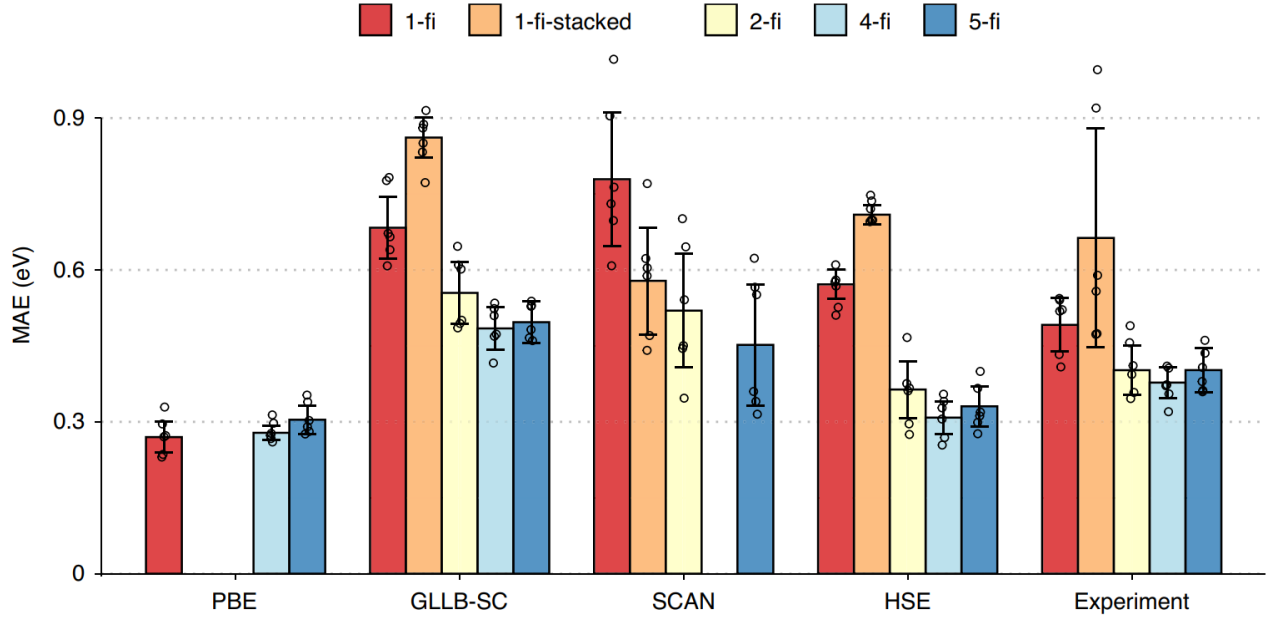
za $m = \{0, 1, 2, \dots, n_{\text{bf}} - 1\}$. Koeficijent n_{bf} predstavlja ukupan broj članova Gaussove ekspanzije. U ovom radu, uzeto je $R_c = 5\text{\AA}$, $\mu_{\text{max}} = 6\text{\AA}$ i $n_{\text{bf}} = 100$. Time je dan opis bridova grafa kao $E = \{(\mathbf{e}_k, r_k, s_k)\}$ (slika 2). Informaciju kojem setu (tošnosti) podataka pripada uzorak također opisujemo pomoću vektora, nazovimo ga \mathbf{u} . Ove vektore, i prije spomenute vektore koji određuju element, stavljamo u matrice koje neurana mreža "trenira". Iako te matrice samo prikazuju zapis strukture kojeg mreža može "razumijeti", način na koji je on prikazan također utječe na preciznost finalnog modela tako da je potrebno i ovaj korak optimizirati.

U svakom sloju konvolucije grafa, atributi mreže se propagiraju:

- Svaka veza k je ažurirana na način:

$$\mathbf{e}'_k = \phi_e(\mathbf{v}_{s_k} \oplus \mathbf{v}_{r_k} \oplus \mathbf{e}_k \oplus \mathbf{u}) \quad (3)$$

gdje je ϕ_e funkcija ažuriranja veze, a \mathbf{v}_{s_k} i \mathbf{v}_{r_k} atributi atoma koji čine vezu k .



Slika 3. Preformanse neuralne mreže s obzirom na različite setove podataka⁵

- Zatim je svaki atom i je ažuriran sa:

$$\mathbf{v}'_i = \phi_\nu(\bar{\mathbf{v}}_i^e \oplus \mathbf{v}_i \oplus \mathbf{u}) \quad (4)$$

gdje je ϕ_ν funkcija ažuriranja atoma, a $\bar{\mathbf{v}}_i^e = \text{avg}_k(\mathbf{e}'_k)$, $\forall r_k = i$ srednja vrijednost atributa veza s i -tim atomom.

- Konačno, atribut stanja \mathbf{u} se ažurira kao:

$$\mathbf{v}' = \phi_u(\bar{\mathbf{u}}^e \oplus \bar{\mathbf{u}}^\nu \oplus \mathbf{u}) \quad (5)$$

gdje je ϕ_u funkcija ažuriranja stanja, a $\bar{\mathbf{u}}^e = \text{avg}_k(\mathbf{e}'_k)$ i $\bar{\mathbf{u}}^\nu = \text{avg}_i(\mathbf{v}'_i)$ srednje vrijednosti atributa svih atoma i veza.

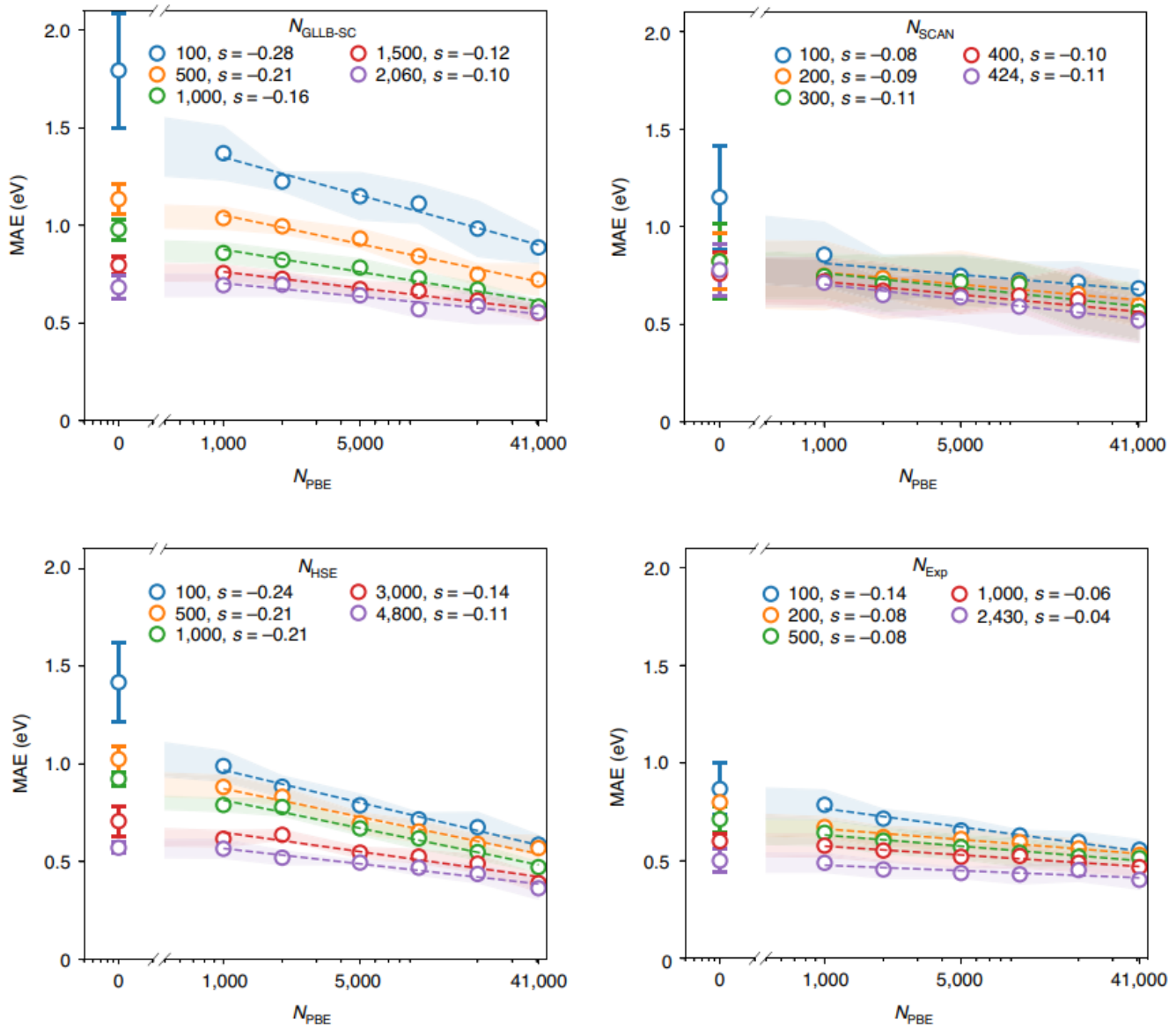
III. REZULTATI

Predmet promatranja je bilo energetski procijep kristala. Na slici 3 je prikazan MAE u ovisnosti o korištenim setovima pri treniranju te pri testiranju mreže. Crni stupci prikazuju odstupanje od jedne sigme, a točke greške individualnog modela.

Za početak su stvoreni modeli pri treniranju na zasebnim setovima (eng. single fidelity, 1-fi). U ovom režimu rada, MAE je povezan sa veličinom seta, ali i srednjom apsolutnom devijacijom podataka unutar svakog seta. Uspoređujući MAE za setove, vidimo da vrijedi PBE

< HSE < GLLB-SC < SCAN, što je upravo obrnuto proporcionalno broju struktura tih setova. Jedina vrijednost koja odstupa je za eksperimentalni set koji ima niži MAE od HSE-a iako je manje veličine. Jedan od mogućih razloga je veliki broj metalnih struktura u eksperimentalnom setu. Kako je njihov energetski procijep jednak nuli, to smanjuje MAD te time i MAE. Usporedimo li to sa 5-fi modelima, gdje su korištene sve raspoložive strukture pri treniranju mreže, vidimo znatno smanjenje u svim područjima, osim za PBE. Za usporedbu su napravljeni i 2-fi modeli koji uključuju dani set uz PBE te 4-fi modeli koji uključuju sve setove osim SCAN-a. Vidimo da se za 2-fi modele MAE smanjio u odnosu na 1-fi. Dodavanjem PBE seta smo poboljšali model, no manje nego uključivanjem svih podataka. Najbolji model je ispao za 4-fi, tj. izostavljanjem SCAN seta iz podataka. Zaključujemo da je vjerojatno loša kvaliteta SCAN seta narušila preciznost modela. Redukcija MAE-a korištenjem 4-fi u usporedbi s 1-fi je u rasponu od $\approx 22\%$ za eksperimentalne podatke pa čak i do $\approx 45\%$ za HSE set. Također, povećanjem broja seta podataka smanjuje standardnu devijaciju MAE-a. Promotren je još jedan alternativni pristup združivanja 1-fi modela (eng. 1-fi stacked) gdje je linearni model podataka veće točnosti prilagođen optimiziranom 1-fi modelu nad PBE setom. Ovo je sukladno prijašnjim pristupima korištenja podataka različite točnosti u modelu. U odnosu na ovu metodu, 4-fi metode su smanjile MAE za oko 40%.

U članku⁵ je također promotrena ovisnost MAE-a za 2-fi modele u ovisnosti količine podataka iz svakog od njih (slika 4). Prisjetimo se, u ovim modelima su kombinirani



Slika 4. Usporedbe 2-fi modela u ovisnosti o količini podataka iz pojedinih setova⁵

podatci visoke točnosti sa PBE setom. Vidimo da se greške u svim modelima smanjuju dodavanjem podataka visoke točnosti. Zasjenjeni dio na grafovima prikazuje jednu standardnu devijaciju MAE. Indeks s predstavlja nagib pravca pri linearnoj prilagodbi MAE vrijednostima $\log_{10} N_{PBE}$.

IV. ZAKLJUČAK

Razumijevanje i manipuliranje kristalnim strukturama glavni su interesi fizike materijala. Sustavi koje želimo promatrati se većinom sastoje od nekoliko tisuća atoma što čini njihov opis "ab initio" metodama (npr. DFT)

neuspješan. Rješenje nalazimo koristeći se neuralnim mrežama te sada problem postaje nalaženje dovoljnih količina preciznih podataka na kojima ih možemo trenirati model. Preloženo je strojno učenje svojstava materijala na podacima različite točnosti⁵ gdje mrežu istovremeno treniramo na više setova podataka. Pokazalo se da ovaj pristup smanjuje srednju apsolutnu grešku (MAE) u rasponu od 22% do 45% u usporedbi s modelima treniranim na setu podataka iste točnosti. Još je pokazano i da dodavanjem samo jednog većeg, no nešto manje preciznog seta podataka točnijim setovima preciznost pri treniranju neuralne mreže se proporcionalno povećava broju dodanih struktura.

-
- ¹ R. Dronskowski, *Computational Chemistry of Solid State Materials* (Wiley-VCH, 2005).
- ² R. L. C. Vink, G. T. Barkema, M. A. Stijnman, and R. H. Bisseling, *Physics Review B* (2001).
- ³ S. Hobday, R. Smith, and J. Belbruno, *Applications of neural networks to fitting interatomic potential functions* (Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering 7, 1999).
- ⁴ J. Behler and M. Parrinello, *Generalized neural-network representation of high-dimensional potential-energy surfaces* (Physical review letters 98, 2007).
- ⁵ C. Chen, Y. Zuo, W. Ye, X. Li, and S. P. Ong, *Learning properties of ordered and disordered materials from multi-fidelity data* (Nature, 2021).
- ⁶ <https://tex.stackexchange.com/questions/132444/diagram-of-an-artificial-neural-network>.
- ⁷ J. P. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof, *Generalized gradient approximation made simple* (Physical Review Letters 77, 1996).
- ⁸ A. Jain *et al.*, *Commentary: the materials project: a materials genome approach to accelerating materials innovation* (APL Mathematics 1, 2013).
- ⁹ S. P. Ong *et al.*, *Python Materials Genomics (pymatgen): a robust, open-source python library for materials analysis* (Computer Mathematical Science 68, 2013).
- ¹⁰ I. E. Castelli *et al.*, *New light-harvesting materials using accurate and efficient bandgap calculations* (Adv. Energy Mat. 5, 2015).
- ¹¹ P. Huck, A. Jain, D. Gunter, D. Winston, and K. Persson, *A community contribution framework for sharing materials data with materials project* (2015).
- ¹² J. Sun, A. Ruzsinszky, and J. P. Perdew, *Strongly constrained and appropriately normed semilocal density functional* (Physics Review Letters 115, 2015).
- ¹³ P. Borlido *et al.*, *Large-scale benchmark of exchange-correlation functionals for the determination of electronic band gaps of solids* (J. Chem. Theory Comput. 15, 2019).
- ¹⁴ J. Jie *et al.*, *A new MaterialGo database and its comparison with other high-throughput electronic structure databases for their predicted energy band gaps* (Sci. China Technol. Sci. 62, 2019).
- ¹⁵ Y. Zhuo, A. M. Tehrani, and J. Brgoch, *Predicting the band gaps of inorganic solids by machine learning* (J. Physical Chemistry Letters 9, 2018).
- ¹⁶ https://figshare.com/articles/dataset/Learning_Properties_of_Ordered_fidelity_Data/13040330.
- ¹⁷ <https://www.tensorflow.org/>.