

ОТЗЫВ

официального оппонента на диссертационную работу

Балякина Ильи Александровича

«Потенциалы глубокого машинного обучения для неупорядоченных систем:

применимость, переносимость, предсказательная способность»,

представленную на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук
по специальности

1.3.8. – Физика конденсированного состояния

На сегодняшний день, методы суперкомпьютерного атомистического моделирования используются многими теоретическими группами для прогнозирования свойств материалов, и исследования процессов на атомном уровне. Точность прогнозов определяется выбором потенциала межатомного взаимодействия. Для систем со сложной структурой используются потенциалы машинного обучения. Качество данных потенциалов определяется невязкой между энергиями, силами и вириалами для атомных конфигураций, получаемыми в расчете, и подходом теории функционала электронной плотности. В диссертационной работе исследуется применимость потенциалов на основе искусственных нейронных сетей для различных систем: Bi-Ga, SiO₂, TiZrHfNbTa-H. Работа И. Балякина **актуальна**, поскольку разработанные потенциалы позволяют рассчитывать свойства и моделировать процессы, недоступные в рамках теории функционала электронной плотности из-за вычислительной сложности.

Диссертационная работа состоит из пяти глав, введения и заключения. **Во введении** обоснована актуальность исследования, сформулированы цели и задачи работы, положения, выносимые на защиту, обсуждаются новизна и значимость. В **первой главе** рассматриваются существующие потенциалы межатомного взаимодействия, приведены примеры их применения к количественному и качественному расчету свойств жидкостей и твердых тел. Изложены основные приближения квантовой химии: одноэлектронное приближение, теория функционала электронной плотности, приближение псевдопотенциала и приближение Борна-Оппенгеймера, позволяющее перейти к понятию адиабатического потенциала и поверхности потенциальной энергии (ППЭ). Рассмотрены многие примеры парных и многочастичных потенциалов. В заключительной части главы описываются потенциалы машинного обучения. В качестве примера приведен один из наиболее современных и гибких – DeePMD-потенциал.

Вторая глава включает в себя обзор методов и подходов, использующихся в диссертации: детали первопринципных расчетов в программном пакете VASP и их параметров (энергии обрезки плосковолнового базиса и размера k -сетки в обратном пространстве), теореме Гельмана-Фейнмана для квантово-механического вычисления сил, действующих на атомы, основные подходы к параметризации потенциалов машинного обучения, алгоритм активного обучения, реализованный в программе DPGEN, анализ роли тренировочной базы данных в параметризации потенциала, методика расчета потенциальной энергии в DeePMD-подходе и описан метод классической молекулярной динамики для получения атомных траекторий. В конце главы приведены детали по расчету радиальных функций распределения и

координационных чисел, угловой функции распределения, среднеквадратического смещения атомов, автокоррелятора скорости, вязкости и пр.

В **третьей главе** рассматривается бинарный расплав Bi-Ga. Рассматривается процедура активного обучения потенциала в DeepMD, проводится верификация по данным из *ab initio* расчетов в VASP по структурным и кинетическим характеристикам. Демонстрируется согласие с литературными данными по радиальным функциям распределения в чистых Bi и Ga, и температурной зависимости коэффициента диффузии и вязкости в чистых компонентах. Также исследуется процесс расслоения в расплавах системы Bi-Ga. Разработанный потенциал воспроизводит данное явление. Приводится сравнение координационной и топологической моделей для определения потенциальной энергии расплава. Последняя соответствует данным моделирования.

Четвертая глава посвящена расчетам свойств диоксида кремния SiO₂ в машинно-обученном потенциале. Созданный потенциал находится в согласии с *ab initio* структурными и кинетическими данными. Исследованы методические вопросы при обучении потенциала. Достигнута точность $\sigma_E = 5.77$ мэВ/атом при разбросе значений энергии 1 эВ/атом и $\sigma_F = 272$ мэВ/Å при диапазоне компонент сил в тренировочном наборе 30 эВ/Å. Рассмотрена переносимость потенциала по типу «жидкость-кристалл». Показано, потенциал воспроизводит для кристалла *ab initio* уравнения состояния, плотности колебательных состояний для кристаллических фаз. Используя эволюционный алгоритм USPEX, удалось получить ряд тетраэдрических (при 0 ГПа) и октаэдрических (при 10 ГПа) фаз, определяемых как стабильные, находящихся в соответствии с экспериментом.

В **пятой главе** машинно-обученный потенциал применяется к сплаву TiZrHfNbTa-H. Показано, что потенциал позволяет воспроизводить *ab initio* структурные и динамические свойства, близкие к известным в литературе. Рассчитана температурная зависимость коэффициента диффузии водорода и парциальных координационных чисел «водород – металл». Для объяснения аномально-высокого значения координационно-го числа «H – Ti» исследуется зависимость энергии системы TiZrHfNbTa + H в зависимости от окружения атома водорода в решетке. Автор приходит к выводу, что аддитивный подход не может быть использован при прогнозировании энергетического уровня водорода в том или ином междоузлии ВЭС. Наиболее низкая энергия системы наблюдается, когда атомы водорода помещены в междоузлия, обогащенные титаном, что качественно объясняет высокое значение координационного числа «H – Ti».

В **заключении** приведены основные результаты работы, предложены рекомендации по дальнейшей разработке темы.

Научная новизна диссертационной работы Ильи Балякина состоит в разработке межчастичных нейросетевых потенциалов для различных систем: Bi-Ga, SiO₂, TiZrHfNbTa-H, способных воспроизводить структурные и динамические свойства почти с первопринципной точностью. Показана принципиальная возможность прогнозирования расслоения в бинарных металлических расплавах на примере Bi-Ga. Получено, что для корректного установления связи между энергией и структурой расплава в данной системе необходим учет топологии многогранников Вороного. Продемонстрировано, потенциал, обученный только на неупорядоченных

конфигурациях, способен прогнозировать уравнения состояния и плотности колебательных состояний кристаллических фаз, а также стабильные кристаллические структуры SiO_2 . Рассчитана температурная зависимость коэффициента диффузии водорода в ОЦК-TiZrHfNbTa, показано, что в ОЦК-TiZrHfNbTa имеется широкое распределение энергетических уровней водорода в различных междоузлиях.

Достоверность и обоснованность утверждений полученных результатов обеспечивается их сравнением с экспериментальными и теоретическими данными, полученными в других работах. Все результаты получены в апробированных программных пакетах, используемых повсеместно в данной области, а также продвинутых методик, включающих в себя машинное обучение, теорию функционала плотности, классическую молекулярную динамику, формулу Грина-Кубо, генетический алгоритм.

Диссертационная работа Ильи Балякина имеет **теоретическую значимость**, поскольку в ней созданы новые межатомные потенциалы для систем Bi-Ga, SiO_2 , TiZrHfNbTa-H, которые будут использованы в будущем другими группами авторов. Также установлена возможность прогнозирования расслоения в бинарных металлических расплавах. Показана возможность предсказывать стабильные кристаллические структуры, обладая информацией только о локальной структуре жидкости, на примере SiO_2 . **Практическая значимость** заключается в точном вычислении теплофизических свойств для практически важных систем: коэффициенты самодиффузии в жидких Bi, Ga, TiZrHfNbTa; температурные зависимости для чистых Bi и Ga; рассчитана температурная зависимость модуля всестороннего сжатия для TiZrHfNbTa и температурная зависимость коэффициента диффузии растворенного в решетке водорода.

Исследование **апробировано** на всероссийских и международных конференциях, результаты по теме диссертации опубликованы в 10 статьях, проиндексированных международными системами цитирования Scopus и Web of Science.

Диссертация и автореферат оформлены грамотно и логично структурированы.

Вопросы и замечания:

1. В работе делается упор на предсказательную способность разрабатываемых потенциалов. Автор приводит сравнение температурной зависимости коэффициентов диффузии Bi и Ga с результатами других вычислительных работ и экспериментами. Какие причины отклонения от экспериментальных данных и вычислительной работы Белашенко, в которой точность не уступает разработанному в диссертации потенциалу?

2. На зависимости вязкости от обратной температуры для галлия наблюдается большой разброс экспериментальных данных. Для обсуждения точности подхода необходимо нанести погрешности измерений. Какая точность результатов экспериментов? Какая точность расчета у автора диссертации? Почему бы не провести расчет концентрационной зависимости вязкости, которая бы верифицировала взаимодействие галлий-висмут?

3. Интересной и перспективной кажется возможность прогнозирования кристаллических фаз, исходя из обучения потенциала на разупорядоченных

конфигурациях. Работа [В. Moserrat, et al. // Nat Commun 11, 5757 (2020)] демонстрирует такую возможность для воды. Насколько по мнению автора диссертации данный подход применим для многокомпонентных систем?

Сделанные замечания не снижают ценности основных результатов работы. Диссертационная работа Балякина Ильи «Потенциалы глубокого машинного обучения для неупорядоченных систем: применимость, переносимость, предсказательная способность» является завершённым научным трудом, который полностью удовлетворяет требованиям п. 9 Положения о присуждении ученых степеней в УрФУ, предъявляемых к кандидатским диссертациям, а её автор Балякин Илья заслуживает присуждения ученой степени кандидат физико-математических наук по специальности 1.3.8 – Физика конденсированного состояния.

Официальный оппонент,
Кондратюк Николай Дмитриевич
кандидат физико-математических наук по специальности 1.3.8 («Физика конденсированного состояния»)
заведующий лабораторией многомасштабного моделирования в физике мягкой материи, Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования Московский физико-технический институт (национальный исследовательский университет),
141701, Московская область, г. Долгопрудный, Институтский переулок, д.9.
тел: +7 (498) 713-91-71
e-mail: kondratyuk.nd@mipt.ru

Кондратюк Николай Дмитриевич

18 сентября 2023 г.

Подпись руки
ЗАВЕРЯЮ: *Кондратюк*
АДМИНИСТРАТОР КАНЦЕЛЯРИИ
АДМИНИСТРАТИВНОГО ОТДЕЛА
О. А. КОРАБЛЕВА

