

**Dự đoán một số tính chất nhiệt động học của các hợp kim
đất hiếm/kim loại chuyển tiếp bằng học sâu**

Phạm Tiến Lâm^{1, 2*}, Nguyễn Tiến Cường³, Nguyễn Văn Quyền¹

*¹Khoa Công nghệ Thông tin, Trường Đại học Phenikaa,
phường Yên Nghĩa, quận Hà Đông, Hà Nội, Việt Nam*

*²Viện Nghiên cứu Tiên tiến Phenikaa, Trường Đại học Phenikaa,
phường Yên Nghĩa, quận Hà Đông, Hà Nội, Việt Nam*

*³Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, Đại học Quốc gia Hà Nội, 334 Nguyễn Trãi,
phường Thanh Xuân Trung, quận Thanh Xuân, Hà Nội, Việt Nam*

Ngày nhận bài 25/7/2023; ngày chuyển phản biện 28/7/2023; ngày nhận phản biện
15/8/2023; ngày chấp nhận đăng 25/8/2023

Tóm tắt:

Việc ứng dụng các mô hình học máy, đặc biệt là học sâu vào giải quyết các bài toán trong khoa học vật liệu đã góp phần đẩy nhanh quá trình phát triển vật liệu mới và thu hút được sự quan tâm của nhiều nhà khoa học trên thế giới. Trong bài báo này, chúng tôi trình bày các kết quả nghiên cứu ứng dụng mạng nơ-ron nhân tạo để biểu diễn và dự đoán các thông số nhiệt động, bao gồm năng lượng hình thành, năng lượng phân ly dựa trên việc phân tích bao lồi của giản đồ pha và nhận diện các cấu trúc bền vững về mặt nhiệt động học. Chúng tôi sử dụng cách mô tả vật liệu mới tên là ma trận trường quỹ đạo (OFM) để xác định các vector đặc trưng cho vật liệu. Các bộ mô tả OFM được phát triển dựa trên thông tin về cấu hình điện tử hóa trị và thông tin về cấu trúc thông qua phân tích giản đồ Voronoi của hệ vật liệu. Các kết quả nghiên cứu cho thấy, việc ứng dụng mạng nơ-ron có thể dự đoán với sai số tuyệt đối trung bình khoảng 0,124 eV/nguyên tử với năng lượng hình thành và 0,105 eV/nguyên tử với năng lượng phân ly. Ngoài ra, mô hình mạng nơ-ron có khả năng nhận diện các cấu trúc bền vững hay kém bền với độ chính xác 92%.

*Tác giả liên hệ: Email: lam.phamtien@phenikaa-uni.edu.vn

Từ khóa: học sâu, hợp kim đất hiếm/kim loại chuyển tiếp, ma trận trường quỹ đạo (OFM), mạng nơ-ron nhân tạo, tính chất nhiệt động học.

Chỉ số phân loại: 1.2, 1.3, 1.4

**Prediction of thermodynamic properties of lanthanide/transition metal alloys
by deep learning**

Tien Lam Pham^{1, 2*}, Tien Cuong Nguyen³, Van Quyen Nguyen¹

¹Faculty of Computer Science, Phenikaa University,

Yen Nghia Ward, Ha Dong District, Hanoi, Vietnam

²Phenikaa Institute for Advanced Study, Phenikaa University,

Yen Nghia Ward, Ha Dong District, Hanoi, Vietnam

³University of Sciences, Vietnam National University - Hanoi, 334 Nguyen Trai Street,

Thanh Xuan Trung Ward, Thanh Xuan District, Hanoi, Vietnam

Received 25 July 2023; revised 15 August 2023; accepted 25 August 2023

Abstract:

The utilization of machine learning, especially deep learning, in solving materials science issues bring an opportunity to accelerate the development process of new materials and draw the attention of researchers all over the world. In this work, we present our study on applying deep neural networks to represent and predict thermodynamic quantities including formation energy, convex hull distance, and to recognize potential thermodynamical stable materials. We employ our novel material descriptor, named orbital field matrix (OFM), to determine the feature vectors for materials. The OFM descriptors were developed based on the information of valence electron configuration and the Voronoi analysis of the atomic structures of materials. Our experiments show that deep neural networks can accurately predict formation energy and convex hull distance with the mean absolute error around 0,124 eV/atom and 0,105 eV/atom, respectively. In addition, the classification neural network can yield an accuracy of 92% in distinguishing the stable and unstable materials.

Keywords: deep learning, deep neural networks, lanthanide/transition metal alloys, orbital field matrix (OFM), thermodynamic properties.

Classification numbers: 1.2, 1.3, 1.4

1. Mở đầu

Trong những năm gần đây việc ứng dụng trí tuệ nhân tạo, cụ thể hơn là học máy vào lĩnh vực khoa học vật liệu tính toán đã và đang thu hút được sự chú ý của nhiều nhà khoa học trong và ngoài nước. Việc ứng dụng học máy được kì vọng sẽ giúp tăng tốc quá trình nghiên cứu và phát triển các vật liệu tiên tiến cho các công nghệ mới.

Gần đây, dữ liệu từ các tính toán phiếm hàm mật độ (DFT) cho các hệ vật liệu có kích thước vừa và nhỏ đang tăng lên rất nhanh. Bên cạnh đó, dữ liệu thu được từ thực nghiệm trong nghiên cứu khoa học vật liệu cũng ngày càng lớn. Do đó, các phương pháp học máy hiện đại được kì vọng giúp các nhà khoa học có thể phân tích hiệu quả các dữ liệu lớn này giúp tăng tốc quá trình nghiên cứu và phát triển vật liệu mới. Ngày nay, chúng ta có thể truy cập đến các cơ sở dữ liệu về vật liệu một cách dễ dàng thông qua mạng internet, ví dụ như Materials Projects [1], Open Quantum Materials Database (OQMD) [2, 3], Atomwork [4], Nomad [5], Aflowlib [6]... Để khai thác hiệu quả các dữ liệu này, việc kết hợp giữa học máy và khoa học vật liệu đã tạo ra một lĩnh vực nghiên cứu mới đầy tiềm năng là tin học vật liệu. Tin học vật liệu là lĩnh vực nghiên cứu sử dụng các kỹ thuật tin học, đặc biệt là học máy và trí tuệ nhân tạo, để giải quyết các vấn đề trong khoa học vật liệu, với mục đích khai thác được những thông tin và tri thức ẩn từ những dữ liệu về vật liệu, từ đó có thể xây dựng các thuật toán và phương pháp thiết kế ra các vật liệu mới [7-15].

Trong những năm gần đây, nhiều nghiên cứu đã minh chứng hiệu quả của việc ứng dụng các phương pháp học máy vào khoa học vật liệu để tìm ra các thông tin ẩn trong các dữ liệu về vật liệu [10, 16, 17]. Các nghiên cứu tin học vật liệu giúp tính toán bề mặt thế năng một cách hiệu quả, cho phép mô phỏng nhiệt động lực học phân tử cho các hệ có kích thước lớn và phức tạp [8, 14, 15, 18]. Đặc biệt, các nghiên cứu này sẽ giúp dự đoán nhanh các tính chất của vật liệu nhằm tăng tốc quá trình khám phá và thiết kế vật liệu mới.

Chúng tôi đã phát triển một phương pháp biểu diễn vật liệu dựa trên các thông tin về điện tử hoá trị và cấu trúc hình học địa phương thông qua các phép phân tích giản đồ Voronoi của cấu trúc tinh thể ba chiều của vật liệu [9, 19]. Chúng tôi đặt tên phương pháp biểu diễn này là ma trận trường quỹ đạo OFM. Các kết quả nghiên cứu trước đây của chúng tôi cho thấy phương pháp biểu diễn này thể hiện sự hiệu quả trong việc dự đoán một số tính chất của vật liệu [9, 19] và dự đoán vật liệu mới [20]. Trong bài báo này, chúng tôi trình bày kết quả nghiên cứu sử dụng học sâu, cụ thể là mô hình mạng nơ-ron nhân tạo để nghiên cứu các tính chất nhiệt động học của các hệ hợp kim đất hiếm/kim loại chuyển tiếp. Nghiên cứu này chỉ ra rằng việc sử dụng mạng nơ-ron nhân tạo và biểu diễn OFM cho phép xây dựng được các mô hình học sâu có thể dự đoán độ bền nhiệt động của các hệ vật liệu.

2. Đối tượng và phương pháp nghiên cứu

2.1. Đối tượng

Mạng nơ-ron nhân tạo đầu tiên được xây dựng và phát triển bởi W.S. McCulloch và cs (1943) [21] để nghiên cứu tín hiệu xử lý của bộ não. F. Rosenblatt (1958) [22] được truyền cảm hứng từ tế bào thần kinh nhân tạo đã đưa ra mô hình mạng Perceptron bao gồm một hoặc nhiều đầu vào, một bộ xử lý cùng một đầu ra. Sau đó mô hình mạng nơ-ron tiếp tục được phát triển bởi M. Minsky và cs (2017) [23], S. Hihi và cs (2019) [24] để cải thiện các điểm yếu. Vào cuối những năm 1970 và 1980, một số phương pháp đã được phát triển để cải thiện độ chính xác và tin cậy của mạng nơ-ron nhân tạo, khiến chúng ngày càng được áp dụng rộng rãi trong nhiều lĩnh vực khác nhau như hoá học, sinh học, vật lý, khoa học dữ liệu...

Mạng nơ-ron nhân tạo có thể được coi là một mô hình toán học của mạng các nơ-ron trong hệ thần kinh của con người [25]. Mỗi nơ-ron sẽ tổng hợp các thông tin từ input, $x_i = (x_{i1}, x_{i2}, \dots, x_{id})$ dưới dạng tổng có trọng số (w) và giá trị tổng này sẽ được truyền vào một hàm phi tuyến được gọi là hàm hoạt hoá:

$$y_i = g(\sum_j w_j x_{ij} + b) \quad (1)$$

trong đó, x_{ij} là các thông tin đặc trưng (các features) được truyền vào một nơ-ron; w_j là trọng số gắn với đặc trưng thứ j ; g là hàm hoạt hoá; y_i là output của nơ-ron với input x_i

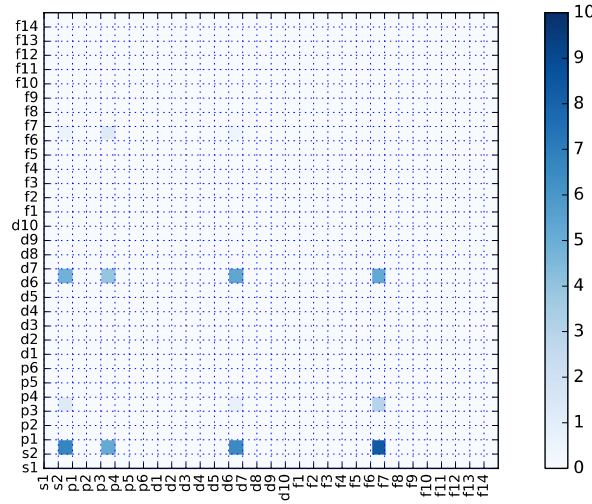
thứ i tương ứng. Khi chúng ta tập hợp các nơ-ron lại thành các lớp và output của lớp trước là input của lớp sau chúng ta được một mạng nơ-ron với các trọng số tương ứng. Các trọng số là đại lượng đặc trưng mô tả sự liên kết giữa các nơ-ron, nó thể hiện trọng số của sự đóng góp các thông tin vào một nơ-ron. Trong nghiên cứu này, chúng tôi sử dụng các hàm *Relu* [25], *Sigmoid* và *Tanh* cho các hàm hoạt hoá.

Việc huấn luyện mô hình được thực hiện qua các vòng lặp để giảm sai số của dữ liệu đầu ra so với tập dữ liệu đã biết thông qua việc tối thiểu hàm mất mát, từ đó các trọng số trên các nơ-ron tương ứng được cập nhật qua từng vòng lặp. Có nhiều thuật toán tối ưu có thể được sử dụng để xác định các trọng số của mô hình, ví dụ như truyền ngược [9, 13] hay thuật toán Levenberg Marquardt [14]. Trong quá trình lặp, một số đại lượng có thể được tính toán để theo dõi độ chính xác của các mô hình như sai số tuyệt đối trung bình, sai số bình phương trung bình và hệ số R^2 . Có nhiều yếu tố có thể ảnh hưởng tới việc huấn luyện mô hình như kích cỡ của mạng nơ-ron hoặc việc chia tập dữ liệu để huấn luyện và kiểm tra. Kích cỡ của mạng nơ-ron quá lớn có thể làm tăng thời gian tính toán dẫn tới kém hiệu quả. Ngược lại, kích cỡ của mạng quá nhỏ có thể làm mất đi những đặc trưng cần có của dữ liệu.

2.2. Phương pháp nghiên cứu

Để xây dựng các mô hình học máy có thể khái quát hoá các tri thức hoá lý ẩn chứa trong dữ liệu về cấu trúc và tính chất của vật liệu, chúng ta phải xây dựng các thông tin của vật liệu dưới dạng một vector với số chiều xác định, được gọi là vector đặc trưng. Gần đây, chúng tôi đã phát triển một phương pháp biểu diễn vật liệu dựa trên việc phân tích giản đồ Voronoi cấu trúc nguyên tử của vật liệu và thông tin về điện tử hoá trị của các nguyên tử. Cụ thể, với mỗi vật liệu chúng tôi sẽ chia nhỏ thành các cấu trúc địa phương. Mỗi cấu trúc địa phương bao gồm một nguyên tử trung tâm và các nguyên tử lân cận được xác định bằng việc phân tích giản đồ Voronoi [9, 19]. Cấu trúc địa phương sau đó được biểu diễn bằng một ma trận các thành phần của nó. X_{ij} biểu diễn thông tin liên quan đến số lượng các orbital nguyên tử j bao quanh orbital của nguyên tử i . Trong đó i, j là các subshell orbital trong tập hợp $D = \{s^1, s^2, p^1, \dots, p^6, d^1, \dots, d^{10}, f^1, \dots, f^{14}\}$. Hình 1 biểu diễn một OFM

của Sm trong $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$, trong đó chiều ngang là mô tả các subshell orbitals của nguyên tử Sm, và chiều đứng biểu diễn các subshell orbitals của các nguyên tử lân cận.



Hình 1. OFM của nguyên tử Sm trong $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ với thang màu biểu thị số lượng subshell orbitals của môi trường bao quanh nguyên tử Sm.

Để xây dựng các OFM chúng tôi sử dụng kỹ thuật one-hot encoding để biểu diễn các nguyên tử. Các nguyên tử sẽ được biểu diễn bằng một vector với chủ yếu các thành phần là 0 và các thành phần tương ứng với cấu hình điện tử hoá trị của nguyên tử được biểu diễn là 1. Ví dụ, Fe có cấu hình điện tử là: $[\text{Ar}]3d^64s^2$ sẽ được biểu diễn bằng một vector 32 chiều với các thành phần là 0 trừ thành phần số 2 và số 14 tương ứng với orbital s^2 và d^6 sẽ được biểu diễn là 1. Từ đó, chúng tôi có thể xây dựng được vector biểu diễn cho môi trường hoá học của một nguyên tử trung tâm bằng việc lấy tổng có trọng số của vector biểu diễn các nguyên tử lân cận: $O^{env} = \sum_k w_k O_k$, trong đó O^{env} là vector biểu diễn cho môi trường hoá học của các nguyên tử trung tâm; O_k là vector biểu diễn của nguyên tử lân cận thứ k và w_k là trọng số gắn với nguyên tử lân cận thứ k tương ứng.

Để xác định các nguyên tử lân cận, chúng tôi sử dụng phương pháp phân tích giản đồ Voronoi. Chúng tôi xác định các nguyên tử lân cận là các nguyên tử có chung mặt Voronoi với nguyên tử trung tâm. Trọng số với một nguyên tử lân cận được xác định bởi góc khối tương ứng tạo bởi nguyên tử trung tâm và mặt Voronoi, θ_k , và khoảng cách tới nguyên tử trung tâm, r_k với $w_k = \frac{\theta_k}{\theta_{max}} \frac{1}{r_k}$, trong đó θ_{max} là giá trị lớn nhất của các góc

khối. Từ đó chúng tôi xây dựng được OFM bằng tích vô hướng của vector cột của nguyên tử trung tâm thứ q trong cấu trúc tinh thể thứ p và vector hàng biểu diễn môi trường hoá học tương ứng: $X_{pq} = O_{pq} \times O_{pq}^{env}$. Vector biểu diễn cho vật liệu, q , được xác định thông qua trung bình cộng của các OFM của các nguyên tử trong cấu trúc tinh thể:

$$X_p = \frac{1}{N_p} \sum_q X_{pq} \quad (2)$$

trong đó, N_p là số nguyên tử trong cấu trúc tinh thể của vật liệu thứ p .

3. Kết quả và bàn luận

Trong phần này, chúng tôi nghiên cứu một số tính chất nhiệt động học của các hệ vật liệu tạo thành bởi kim loại chuyển tiếp (T), các nguyên tố đất hiếm họ Lanthanide (LA) và các nguyên tử nhẹ (X). Chúng tôi thu thập tất cả các tổ hợp gồm: a nguyên tử LA ($a = 0,1,2$), b nguyên tử T ($b = 1,2$) và c nguyên tử X ($c = 1$). Ví dụ, một tổ hợp Fe-O gồm 0 LA, 1 T là Fe và 1 X là O; một tổ hợp Nd-Fe-B gồm 1 LA là Nd, 1 T là Fe, và 1 X là B. Chúng tôi lựa chọn các nguyên tố LA trong tập hợp {Y, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Tm, Yb, Lu}, T trong {Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Y, Zr, Nb, Mo, Tc, Ru, Rh, Pd, Ag, Cd, Hf, Re, Os, Ir, Pt, Au, Hg} và X trong {H, B, C, N, O}. Dữ liệu gồm cấu trúc của vật liệu, năng lượng hình thành (formation energy, ΔE^f) được thu thập từ nguồn dữ liệu OQMD [2, 3]. Trong cơ sở dữ liệu OQMD năng lượng hình thành được tính dựa trên DFT. Tổng cộng chúng tôi thu thập được 5967 vật liệu và đặt tên tập dữ liệu này là LATX. Tập dữ liệu này được chia ngẫu nhiên thành tập dữ liệu huấn luyện với 4773 vật liệu (80%) và tập dữ liệu kiểm chứng với 1194 vật liệu (20%).

Dựa trên tập dữ liệu này chúng tôi xây dựng mô hình mạng nơ-ron nhân tạo để thực hiện các nhiệm vụ sau: (1) Dự đoán năng lượng hình thành của vật liệu, (2) Dự đoán độ bền nhiệt động của vật liệu; (3) Phân loại pha bền vững và kém bền của các vật liệu.

3.1. Dự đoán năng lượng hình thành

Một trong những thông số quan trọng trong việc đánh giá độ bền nhiệt động liệu của vật liệu đó là năng lượng hình thành, E_f . Nó cho biết năng lượng cần thiết để hình thành (nếu $E_f > 0$), hoặc năng lượng giải phóng ra (nếu $E_f < 0$) khi hình thành vật liệu đó từ các đơn chất bền. Năng lượng hình thành được tính theo công thức:

$$E_f^{LA_aT_bX_c} = E(LA_aT_bX_c) - a\mu_{LA} - b\mu_T - c\mu_X \quad (3)$$

trong đó, $E(LA_aT_bX_c)$ là tổng năng lượng của hệ hợp kim đất hiếm/kim loại chuyển tiếp $LA_aT_bX_c$, μ_{LA}, μ_T, μ_X lần lượt là thế hóa học (chemical potential) của các nguyên tử LA, T và X cấu thành. Với đa số các nguyên tử, thế hóa được tính bằng với tổng năng lượng tính toán DFT ở trạng thái cơ bản. Với một số nguyên tử, thế hóa được hiệu chỉnh bằng các tính toán DFT+U và làm khớp với dữ liệu thực nghiệm [2].

Trong phần này chúng tôi trình bày kết quả nghiên cứu ứng dụng mạng nơ-ron để biểu diễn năng lượng hình thành, từ đó có thể dự đoán năng lượng hình thành cho các hệ vật liệu mới. Chúng tôi sử dụng OFM (32x32 chiều) như mô tả trong phương trình (2) để biểu diễn thông tin của vật liệu. Để thuận tiện cho việc xây dựng các mô hình học máy, chúng tôi sử dụng dạng vector của OFM với 2024 chiều để biểu diễn các vật liệu. Mô hình học máy được xây dựng bằng mạng nơ-ron với 2 lớp ẩn với 32 nơ-ron để biểu diễn năng lượng hình thành của vật liệu:

$$\hat{y}_p = w_3 \times g(w_2 \times g(X_p \times w_1 + b_1) + b_2) + b_3 \quad (4)$$

trong đó, w_1 là trọng số của lớp ẩn thứ nhất là ma trận gồm 1024 hàng (số inputs) và 32 cột (số nơ-ron của lớp ẩn thứ nhất); w_2 là trọng số của lớp ẩn thứ 2 gồm 32 hàng (outputs từ lớp ẩn thứ nhất) và 32 cột (số nơ-ron của lớp ẩn thứ hai); w_3 là trọng số của lớp output gồm 1 cột (số output) và 32 hàng (số output của lớp ẩn thứ 2); b_1, b_2, b_3 là các hệ số bias tương ứng cho lớp ẩn thứ nhất, thứ hai, và lớp output; g là hàm hoạt hoá.

Để xây dựng và triển khai mô hình, chúng tôi sử dụng thư viện Tensorflow/Keras [26]. Để huấn luyện mô hình (tìm các giá trị của $w_1, w_2, w_3, b_1, b_2, b_3$) chúng tôi sử dụng hàm loss, L , có dạng:

$$L(w, b) = \frac{1}{m} \sum_p (\hat{y}_p(w, b) - \Delta E_p^f)^2 \quad (5)$$

trong đó, m là số điểm dữ liệu trong tập huấn luyện. Chúng tôi sử dụng thuật toán tối ưu ADAM [27] được cài đặt sẵn trong thư viện Tensorflow để cực tiểu hoá hàm loss theo các tham số w_i và b_i . Chúng tôi không sử dụng toàn bộ dữ liệu để tối ưu hoá hàm loss, mà sử dụng các mini batch (các phần của dữ liệu) với kích thước là 256 (điểm dữ liệu) cho mỗi bước tối ưu. Quá trình tối ưu được thực hiện qua 1000 bước.

Các hàm hoạt hoá *Relu*, *Sigmoid* và *Tanh* được khảo sát để biểu diễn năng lượng hình thành. Sau khi huấn luyện mô hình mạng nơ-ron với các hàm hoạt hoá tương ứng chúng tôi sử dụng tập dữ liệu kiểm chứng (test set) để đánh giá hiệu quả của mô hình thông qua các đại lượng RMSE, MAE và R^2 . Các kết quả đưa ra trong bảng 1 cho thấy mô hình mạng nơ-ron có thể cho kết quả dự đoán tốt trên test set với R^2 lớn hơn 0,98. Kết quả khảo sát cũng cho thấy việc sử dụng hàm hoạt hóa *tanh* cho kết quả dự đoán tốt nhất với MAE, RMSE, và R^2 tương ứng là 0,124 eV/atom, 0,176 eV/atom, và 0,983.

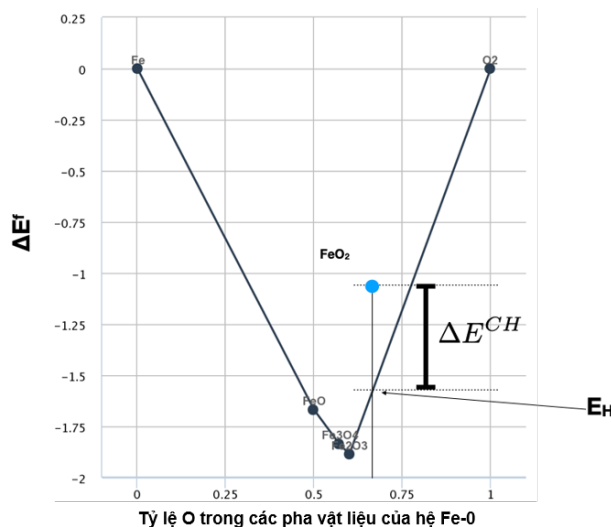
Bảng 1. So sánh kết quả dự đoán năng lượng hình thành của mô hình mạng nơ-ron và kết quả tính toán phiếm hàm mật độ.

Hàm hoạt hóa	MAE (eV/nguyên tử)	RMSE (eV/nguyên tử)	R^2
<i>Sigmoid</i>	0,134	0,181	0,982
<i>Relu</i>	0,130	0,189	0,981
<i>Tanh</i>	0,124	0,176	0,983

3.2. Dự đoán độ bền nhiệt động

Trong phần này, chúng tôi khảo sát khả năng ứng dụng mạng nơ-ron nhân tạo để biểu diễn độ bền nhiệt động của các vật liệu. Độ bền nhiệt động của các vật liệu được đo bằng năng lượng phân huỷ thành các pha khác bền vững hơn của vật liệu dựa trên việc phân tích bao lồi của giản đồ pha. Trong hình 2, chúng tôi trình bày giản đồ pha của hệ Fe-O: Trục hoành biểu diễn tỷ lệ của O và trục tung biểu diễn năng lượng hình thành các pha vật liệu của tổ hợp Fe-O. Phân tích bao lồi của giản đồ pha ta thấy các pha nằm ở đường bao lồi (đường màu đen đậm) gồm Fe, O₂, FeO, Fe₂O₃ và Fe₃O₄, còn pha FeO₂ (điểm màu xanh) nằm phía trên bao lồi. Độ bền nhiệt động học của một pha vật liệu được đánh giá dựa trên convex hull distance, ΔE^{CH} , là khoảng cách theo phương thẳng đứng từ vị trí biểu diễn năng lượng hình thành của pha vật liệu đó tới điểm cắt bao lồi (điểm E_H) (hình 2). Đây chính là giá trị năng lượng có thể giải phóng được khi phân ly vật liệu này thành các pha bền hơn. Do đó, chúng tôi tạm định nghĩa đây là năng lượng phân ly thành các pha bền

vững hơn. Cần chú ý rằng các điểm nằm ở đường bao lồi sẽ là các pha bền nhiệt động của vật liệu, còn các điểm nằm phía trên bao lồi sẽ là các pha kém bền nhiệt động. Các điểm nằm càng cao hơn bao lồi càng kém bền và có thể bị phân huỷ thành các pha bền hơn.



Hình 2. Giải đồ pha của hệ vật liệu Fe-O. Trục hoành biểu diễn tỷ lệ O trong các pha vật liệu, trục tung biểu diễn năng lượng hình thành, đường màu đen đậm biểu diễn bao lồi, pha FeO_2 kém bền được biểu diễn bằng điểm màu xanh.

Chúng tôi sử dụng các thông số của mạng nơ-ron nhân tạo và cách tối ưu hoá tương tự cho trường hợp năng lượng hình thành. Các hàm hoạt hoá *Relu*, *Sigmoid*, *Tanh* cũng được khảo sát để xây dựng mô hình dự đoán ΔE^{CH} . Bảng 2 đưa ra so sánh các kết quả dự đoán độ bền nhiệt động sử dụng mô hình mạng nơ-ron nhân tạo của chúng tôi và kết quả tính toán bằng DFT. Chúng ta thấy rằng các mô hình mạng nơ-ron cho kết quả dự đoán độ bền nhiệt động tốt với cả 3 hàm hoạt hóa *Relu*, *Sigmoid* và *Tanh* với các chỉ số MAE, RMSE đều nhỏ hơn 0,18 eV/nguyên tử. Trong đó kết quả dự đoán tốt nhất thu được khi sử dụng hàm hoạt hóa *tanh* với MAE, RMSE và R^2 tương ứng là 0,105 eV/atom, 0,150 eV/atom, và 0,909. Nói cách khác, các mô hình mạng nơ-ron nhân tạo với hàm hoạt hóa *tanh* có thể dự đoán với sai số tuyệt đối trung bình (MAE) khoảng 0,124 eV/nguyên tử với năng lượng hình thành và 0,105 eV/nguyên tử với năng lượng phân ly.

Bảng 2. So sánh kết quả dự đoán độ bền nhiệt động của mô hình mạng nơ-ron và kết quả tính toán phiếm hàm mật độ.

Hàm hoạt hóa	MAE (eV/nguyên tử)	RMSE (eV/nguyên tử)	R ²
<i>Sigmoid</i>	0,116	0,161	0,895
<i>Relu</i>	0,113	0,178	0,873
<i>Tanh</i>	0,105	0,150	0,909

3.3. Phân loại vật liệu bền và kém bền

Trong quá trình khám phá và thiết kế vật liệu mới, việc nhận diện các pha bền của vật liệu là điều đặc biệt quan trọng. Trong mục này chúng tôi xây dựng mạng nơ-ron nhân tạo để nhận diện các cấu trúc của vật liệu tồn tại ở các pha bền vững. Sử dụng ngưỡng độ bền nhiệt động 0,10 eV/nguyên tử để phân loại vật liệu bền vững và kém bền vững. Vật liệu bền sẽ được gán nhãn là 1 và vật liệu kém bền sẽ được gán nhãn là 0, chúng tôi mô hình hoá xác suất để biểu diễn khả năng một vật liệu được biểu diễn bởi X_p :

$$P(X_p) = \frac{e^{h(X_p)}}{1 + e^{h(X_p)}} \quad (6)$$

Chúng tôi sử dụng mạng nơ-ron với 2 lớp ẩn (hidden layer) với 32 nơ-ron cho mỗi lớp ẩn để biểu diễn hàm $h(X_p)$:

$$h(X_p) = w_3 \times g(w_2 \times g(X_p \times w_1 + b_1) + b_2) + b_3 \quad (7)$$

trong đó, g là hàm hoạt hoá (activation function), w_1 là trọng số cho lớp ẩn thứ nhất; w_2 là trọng số cho lớp ẩn thứ hai; w_3 là trọng số cho lớp output; b_1, b_2, b_3 là các hệ số bias. Để huấn luyện mô hình (tìm các trọng số w_i phù hợp), chúng tôi sử dụng thuật toán tối ưu hoá ADAM để cực tiểu hoá hàm *loss*. Hàm *binary cross entropy*, $L(w, b)$, được sử dụng để huấn luyện mô hình:

$$L(w, b) = -\sum_{p=1}^m y_p \log(p(X_p)) + (1 - y_p) \log(1 - p(X_p)) \quad (8)$$

trong đó, n là số điểm dữ liệu trong tập huấn luyện; y_p là nhãn thực của vật liệu p . Chúng tôi cũng sử dụng quá trình tối ưu hàm *loss* tương tự như trong trường hợp của năng lượng hình thành và độ bền nhiệt động.

Để đánh giá hiệu quả của mô hình chúng tôi sử dụng chỉ số *Accuracy* (số điểm dữ liệu dự đoán đúng chia cho số điểm dữ liệu dự đoán), *Precision* (số điểm dữ liệu dự đoán đúng là bền vững chia cho số điểm dữ liệu thực tế là bền vững) và *Recall* (số điểm dữ liệu dự đoán là bền vững đúng chia cho số điểm dữ liệu dự đoán bền vững). Chúng tôi cũng khảo sát kết quả dự đoán với các hàm hoạt hoá *Relu*, *Sigmoid* và *Tanh*. Các kết quả đánh giá được tóm tắt trong bảng 3.

Bảng 3. Tóm tắt kết quả phân loại vật liệu bền và kém bền với bộ dữ liệu thử nghiệm.

Hàm hoạt hóa	<i>Accuracy</i>	<i>Precision</i>	<i>Recall</i>
<i>Sigmoid</i>	0,87	0,82	0,68
<i>Relu</i>	0,92	0,85	0,86
<i>Tanh</i>	0,87	0,75	0,76

Kết quả bảng 3 cho thấy, hàm *Relu* cho hiệu quả tốt nhất trong việc nhận diện vật liệu có khả năng bền vững với *Accuracy* là 0,92, *Precision* là 0,85 và *Recall* là 0,86. Điều này có nghĩa là dựa trên dữ liệu test, số điểm dữ liệu dự đoán đúng đạt 92% tổng số điểm dữ liệu, có 85% số điểm dữ liệu dự đoán là bền vững thực tế là bền vững, có 86% số vật liệu được dự đoán là bền vững sẽ thực sự được khẳng định là bền nhiệt động với các tính toán năng lượng hình thành dựa vào DFT. Kết quả nghiên cứu này cho thấy tiềm năng to lớn của các mô hình mạng nơ-ron nhân tạo trong việc sàng lọc các vật liệu có khả năng bền nhiệt động phục vụ cho việc tìm kiếm các vật liệu mới.

4. Kết luận

Trong bài báo này, chúng tôi đã trình bày các nghiên cứu chi tiết về việc ứng dụng mô hình mạng nơ-ron nhân tạo để biểu diễn và dự đoán một số tính chất của độ bền nhiệt động bao gồm: (1) năng lượng hình thành, (2) năng lượng phân ly thành các pha bền vững

hơn và (3) nhận diện các vật liệu có khả năng bền về mặt nhiệt động học. Chúng tôi đã sử dụng phép biểu diễn ma trận trường quỹ đạo OFM với các thông tin về cấu hình điện tử hoá trị và thông tin hình học dựa trên các phân tích giản đồ Voronoi. Kết quả nghiên cứu cho thấy mô hình mạng nơ-ron nhân tạo có khả năng dự đoán với độ chính xác cao các đại lượng nhiệt động: Năng lượng hình thành với $R^2 \sim 0,98$ và năng lượng phân ly thành các pha bền vững hơn với $R^2 \sim 0,91$. Các mô hình mạng nơ-ron nhân tạo cũng cho thấy tiềm năng lớn trong việc nhận diện các vật liệu bền vững hay kém bền vững với độ chính xác có thể lên đến 92%.

LỜI CẢM ƠN

Nghiên cứu này được tài trợ bởi Quỹ Phát triển Khoa học và Công nghệ Quốc gia (NAFOSTED) trong khuôn khổ đề tài mã số 103.01-2019.30. Các tác giả xin chân thành cảm ơn.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

[1] A. Jain, S.P. Ong, G. Hautire, et al. (2013), “Commentary: The materials project: A materials genome approach to accelerating materials innovation”, *APL Materials*, **1(1)**, DOI: 10.1063/1.4812323.

[2] S. Kirklin, J.E. Saal, B. Meredig, et al. (2015), “The open quantum materials database (OQMD): Assessing the accuracy of DFT formation energies”, *npj Comput. Mater.*, **1**, DOI: 10.1038/npjcompumats.2015.10.

[3] J.E. Saal, S. Kirklin, M. Aykol, et al. (2013), “Materials design and discovery with high-throughput density functional theory: The open quantum materials database (OQMD)”, *JOM*, **65**, pp.1501-1509, DOI: 10.1007/s11837-013-0755-4.

[4] Y. Xu, M. Yamazaki, P. Villars (2011), “Inorganic materials database for exploring the nature of material”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **50(11S)**, DOI: 10.1143/JJAP.50.11RH02.

[5] NOMAD CoE (2021), <https://www.nomad-coe.eu/>, accessed 2 November 2021.

[6] Automatic FLOW for Materials Discovery (2021), <http://afloplib.org/>, accessed 2 November 2021.

[7] V.D. Nguyen, T.L. Pham, H.C. Dam (2019), “Application of materials informatics on crystalline materials for two-body terms approximation”, *Comput. Mater. Sci.*, **166**,

pp.155-161, DOI: 10.1016/j.commsci.2019.04.030.

[8] T.L. Pham, H. Kino, K. Terakura, et al. (2016), “Novel mixture model for the representation of potential energy surfaces”, *J. Chem. Phys.*, **145(15)**, DOI: 10.1063/1.4964318.

[9] T.L. Pham, H. Kino, K. Terakura, et al. (2017), “Machine learning reveals orbital interaction in materials”, *Sci. Technol. Adv. Mater.*, **18(1)**, pp.756-765, DOI: 10.1080/14686996.2017.1378060.

[10] H.C. Dam, T.L. Pham, T.B. Ho, et al. (2014), “Data mining for materials design: A computational study of single molecule magnet”, *J. Chem. Phys.*, **140(4)**, DOI: 10.1063/1.4862156.

[11] L. Yang, G. Ceder (2013), “Data-mined similarity function between material compositions”, *Phys. Rev. B*, **88(22)**, DOI: 10.1103/PhysRevB.88.224107.

[12] G. Hautier, C.C. Fischer, A. Jain, et al. (2010), “Finding nature’s missing ternary oxide compounds using machine learning and density functional theory”, *Chem. Mater.*, **22(12)**, DOI: 10.1021/cm100795d.

[13] A.R. Oganov, A.O. Lyakhov, M. Valle (2011), “How evolutionary crystal structure prediction works and why”, *Acc. Chem. Res.*, **44(3)**, pp.227-237, DOI: DOI: 10.1021/ar1001318.

[14] N. Artrith, J. Behler (2012), “High-dimensional neural network potentials for metal surfaces: A prototype study for copper”, *Phys. Rev. B*, **85(4)**, DOI: 10.1103/PhysRevB.85.045439.

[15] J. Behler (2011), “Atom-centered symmetry functions for constructing high-dimensional neural network potentials”, *J. Phys. Chem.*, **134(7)**, DOI: 10.1063/1.3553717.

[16] O. Isayev, D. Fourches, E.N. Muratov, et al. (2015), “Materials cartography: Representing and mining materials space using structural and electronic fingerprints”, *Chem. Mater.*, **27(3)**, DOI: 10.1021/cm503507h.

[17] S. Yousef, G. Da, N. Thanh, et al. (2012), “Data mining for materials: Computational experiments with AB compounds”, *Phys. Rev. B*, **85(10)**, DOI: 10.1103/PhysRevB.85.104104.

[18] A. Seko, A. Takahashi, I. Tanaka (2014), “A sparse representation for potential energy surface”, *Phys. Rev. B*, **90(2)**, DOI: 10.1103/PhysRevB.90.024101.

[19] T.L. Pham, N.D. Nguyen, V.D. Nguyen, et al. (2018), “Learning structure-property relationship in crystalline materials: A study of lanthanide-transition metal alloys”, *J. Chem. Phys.*, **148(20)**, DOI: 10.1063/1.5021089.

[20] T.L. Pham, D.N. Nguyen, M.Q. Ha, et al. (2020), “Explainable machine learning for materials discovery: Predicting the potentially formable Nd-Fe-B crystal structures and extracting the structure-stability relationship”, *IUCr Journals*, **7**, Pt 6, pp.1036-1047, DOI: 10.1107/S2052252520010088.

[21] W.S. McCulloch, W. Pitts (1943), “A logical calculus of the ideas immanent in nervous activity”, *Bull. Math. Biophys.*, **52(1/2)**, pp.99-115.

[22] F. Rosenblatt (1958), “The perceptron: A probabilistic model for information storage and organization in the brain”, *Psychol. Rev.*, **65(6)**, pp.386-408.

[23] M. Minsky, S.A. Papert (2017), *Perceptrons: An Introduction to Computational Geometry*, MIT Press, DOI: 10.7551/mitpress/11301.001.0001.

[24] S. Hihi, Z.B. Rabah, M. Bouaziz, et al. (2019), “Prediction of soil salinity using remote sensing tools and linear regression model”, *Adv. Remote Sens.*, **8(3)**, pp.77-88, DOI: 10.4236/ars.2019.83005.

[25] I. Goodfellow, Y. Bengio, A. Courville (2016), *Deep Learning*, MIT Press, 800pp.

[26] M. Abadi, A. Agarwal, P. Barham, et al. (2015), “TensorFlow: Large-scale machine learning on heterogeneous systems”, <https://www.tensorflow.org/static/extras/tensorflow-whitepaper2015.pdf>, accessed 12 December 2022.

[27] D.P. Kingma, J. Ba (2015), “Adam: A method for stochastic optimization”, *arXiv*, DOI: 10.48550/arXiv.1412.6980.