

DOI: 10.3969/j.issn.2096-8248.2025.01.0006

引用格式: 林旭敏, 袁子刚, 武海斌, 等. 机器学习力场中截断半径的选择[J]. 江苏海洋大学学报(自然科学版), 2025, 34(1): 41-50.

机器学习力场中截断半径的选择

林旭敏¹, 袁子刚¹, 武海斌², 刘端阳²

(1. 北京化工大学 数理学院, 北京 100029;

2. 中国科学院半导体研究所 半导体超晶格国家重点实验室, 北京 100083)

摘要: 基于从头算分子动力学的机器学习方法构建力场已成为一个高度活跃的研究领域, 然而目前对机器学习力场中截断半径的选择并没有一个可供参考的依据。利用 83 种不同材料的 1 600 多种结构构型进行从头算分子动力学模拟, 分析近邻原子移动前后作用在中心原子上的力的变化, 从而确定机器学习力场中截断半径的选择。当近邻原子与中心原子的距离在 7.5 Å 或 10 Å (1 Å=0.1 nm) 时, 力的误差通常在 10^{-3} eV/Å 内; 当原子间距为 5 Å 时, 力的误差会增加到 10^{-2} eV/Å。故在机器学习力场中设定 5 Å 的截断半径值就能够满足精度要求。此外, 对于原子晶体来说, 截断半径值可略大于 5 Å; 而对于分子晶体来说, 截断半径值可小于 5 Å; 就金属晶体、离子晶体和合金而言, 截断半径值为 5 Å 即可。该研究首次补充了机器学习力场中截断半径相关的理论知识, 将有利于机器学习力场的发展。

关键词: 机器学习力场; 从头算分子动力学; 截断半径; 力

中图分类号: O469

文献标志码: A

文章编号: 2096-8248 (2025) 01-0041-10

Selection of the cutoff radius in machine learning force fields

LIN Xumin¹, YUAN Zigang¹, WU Haibin², LIU Duanyang²

(1. College of Mathematics and Physics, Beijing University of Chemical Technology, Beijing 100029, China;

2. State Key Laboratory of Superlattices and Microstructures, Institute of Semiconductors,

Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)

Abstract: Constructing a force field by machine learning method based on ab initio molecule dynamics has become a highly active research area, however, there is currently no reference for the selection of cutoff radius. The ab initio molecular dynamics simulation with over 1 600 structural configurations across 83 different materials was carried out to analyze the variation in forces acting on the central atom before and after displacing a neighbor atom, in order to determine the selection of the cutoff radius in machine learning force fields. The force difference typically falls within the range of 10^{-3} eV/Å when the distance between the neighbor atom and the central atom was 7.5 Å or 10 Å. At a distance of 5 Å, this force difference increases to about 10^{-2} eV/Å. Therefore, setting a cutoff radius value of 5 Å in the machine learning force fields can meet the accuracy requirements. Moreover, for atomic crystals, a slightly larger cutoff radius value than 5 Å may be suitable, while for molecular crystals, a cutoff radius value less than 5 Å could be appropriate. In the case of metal crystals, ionic crystals and alloys, the value of 5 Å is deemed suitable. This is the first time to

收稿日期: 2024-04-19; 修订日期: 2024-10-14

基金项目: 中国科学院稳定支持基础研究领域青年团队计划项目 (YSBR-053); 中国科学院网络安全和信息化专项应用示范项目 (CAS-WX2023PY-0101)

作者简介: 林旭敏 (1992—), 女, 硕士研究生, 研究方向为凝聚态物理, (E-mail) 630941936@qq.com。

通信作者: 袁子刚 (1980—), 男, 副教授, 博士, 研究方向为凝聚态物理, (E-mail) yuanzg@mail.buct.edu.cn。

supplement the theoretical knowledge of the cutoff radius in the machine learning force fields, which will be conducive to the development of the machine learning force fields.

Key words: machine learning force fields; ab initio molecular dynamics; cutoff radius; force

0 引言

经典分子动力学 (molecular dynamics, MD) 中的力场为经验势或半经验势, 通常不准确且不适合用于描述化学键断裂与形成, 从头算分子动力学 (ab initio molecular dynamics, AIMD) [1-4] 引入电子运动, 使计算结果质量得以显著提升, 但计算成本随着 N^3 (N 为体系总电子数) 快速增加, 使得 AIMD 在时间尺度和长度尺度选择上有很大局限性。其中, 力场的计算占用了大部分成本。机器学习 [5-7] 的快速发展使得构建形式简单但计算高效的力场成为可能。

目前, 机器学习被广泛应用于各个领域, 机器学习力场 (machine learning force fields, ML-FF) 为近年来发展最活跃的领域之一。它通过学习输入数据, 找到数据间的函数关系并输出。这个过程不需要学习复杂物理关系, 却同时实现了高精度和高效率。Blank 等 [8] 在多维势能面的构建上首次提出机器学习神经网络方法, Behler 等 [9] 提出神经网络势模型 (NNP), 比 DFT 快几个数量级, 这使得高效构建力场成为了可能。基于神经网络框架, Schütt 等 [10-11] 提出 SchNet 模型。很多学者相继提出了其他力场模型, 如 BIMNN [12], GAP [13-15], BPNN [9], MTP [16], DPMD [17-20], SNAP [21-25], GDML [26-27], sGDML [28] 等, 这在很大程度上扩大了 ML-FF 的数值预测和设计的范围。ML-FF 实现了与 AIMD 相媲美的精度, 成本仅次于经验力场, 大大促进了对材料性能的优化及研发新材料的发展 [29]。ML-FF 模型的应用非常广泛, 涉及 Si [18, 30], H₂O [31], Be [32], LiCl [33], Ar [34], Ti [35], ZnO [36], TiO₂ [37] 以及二元、三元甚至多组分合金等体系 [38-42]。

在 ML-FF 中, 通常假定系统的总能量 E 是系统中每个原子 i 相关能量 ε_i 的总和, 表示为 $E = \sum_i \varepsilon_i$ 。为了提高计算效率, 在 ML-FF 中引入一个截断函数 f_c , 设定截断半径 (cutoff radius, R_c)。当原子间距大于 R_c 时, 截断函数 f_c 为 0, 即超出 R_c 范围的原子对体系能量不产生贡献, 如图 1 所示。实际

上, 系统中的非局域作用是不能忽略的。尽管许多研究考虑了远程相互作用, 但这些力场模型的应用仍处于初级阶段, 还有很多难题需要解决。传统上, 大多数模型中通常采用较为保守的方法来设定 R_c 。如果选择的 R_c 过小, 可能导致重要作用的缺失, 降低了 ML-FF 模型的准确度。将训练好的力场模型用于分子动力学模拟时, MD 结果易失真。相反, 过大的 R_c 容易过拟合数据, 从而影响模型的泛化性能。因此, 选择适当的 R_c 不仅可以大大提高计算效率, 还可以保证结果质量, 同时节省机时和降低内存消耗, 在很大程度上扩大研究体系的复杂程度和数量规模。但是关于 R_c 的设定, 根据现有文献还没有明确的选择依据。本研究的主要目的在于为 ML-FF 中 R_c 的设定提供一个可靠的参考依据, 首次补充了 ML-FF 中 R_c 参数设置的理论知识, 这必将有利于 ML-FF 的发展。

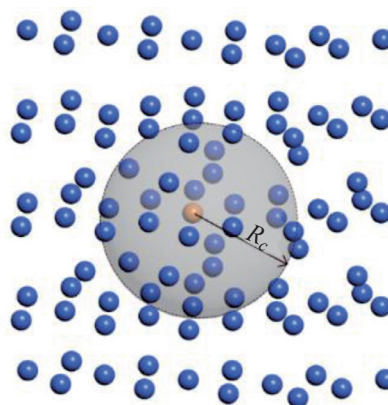


图 1 铁晶体中铁原子 (橙色) 的局部原子环境
Fig.1 Local atomic environment of an iron atom (orange) in iron crystal

1 理论分析

在分子动力学模拟中, 通常使用对势来描述非键势, 它适合用来描述远程相互作用。在本文中, 分子晶体选择 Buckingham 势, 离子晶体用 Born-Mayer-Huggins 势, 原子晶体、金属晶体和合金用 Morse 势。这些势能模型以相对简单的数学形式描述原子间相互作用, 因此在复杂晶体结构的建模和

研究中非常有用。

(1) Bucking-ham 势中的原子相互作用可以表示为

$$u(r) = A e^{-\frac{r}{\rho}} - \frac{C}{r^6}。 \quad (1)$$

其中, 等式右侧的两项构成了斥力势和吸引势, r 为原子对距离, A , C 和 ρ 为势函数参数。在大多数情况下, 如果原子间距足够大, 可以忽略斥力势, 则 Bucking-ham 势可简化为

$$u(r) = -\frac{C}{r^6}。 \quad (2)$$

因此, $u(r) \propto r^{-6}$ 。

R_c 外的所有原子的贡献 $E_{\text{other}}(r)$ 可以描述为

$$E_{\text{other}}(r) = \sum_{r>R_c} u(r) = \int_{R_c}^{\infty} u(r) 4\pi r^2 dr = \int_{R_c}^{\infty} -\frac{C}{r^6} 4\pi r^2 dr。 \quad (3)$$

$E_{\text{other}}(r)$ 对原子的影响为

$$E_{\text{other}}(r) = -\nabla_r E(r) \propto R_c^{-4}。 \quad (4)$$

(2) 在离子晶体的研究中, 通常使用 Born-Maye-Huggins 势, 其势函数为

$$u(r) = A \exp\left(-\frac{r}{\rho}\right) - \frac{C}{r^n}。 \quad (5)$$

其中, 指数项代表排斥势, 幂函数代表吸引势。 n 一般取 6。当 r 足够大时, 势函数可近似为

$$u(r) = -\frac{C}{r^6}。 \quad (6)$$

与上面的 Bucking-ham 势在形式上基本相同, 那么

$$F_{\text{other}} \propto R_c^{-4}。 \quad (7)$$

(3) 至于原子晶体、金属晶体和合金, 采用 Morse 势来描述其原子间势, 其数学表达式为

$$u(r) = A [e^{-2\alpha(r-r_0)} - 2e^{-\alpha(r-r_0)}]。 \quad (8)$$

其中, r_0 表示原子间平衡距离, A 和 α 表示势函数参数。同样, 当 r 大到足以忽略短程斥力势时, 势函数的形式为

$$u(r) = -2Ae^{-\alpha(r-r_0)}。 \quad (9)$$

$E_{\text{other}}(r)$ 可以描述为

$$E_{\text{other}}(r) = \sum_{r>R_c} u(r) = \int_{R_c}^{\infty} u(r) 4\pi r^2 dr = \int_{R_c}^{\infty} -2Ae^{-\alpha(r-r_0)} 4\pi r^2 dr。 \quad (10)$$

所以

$$E_{\text{other}}(r) = e^{-\alpha R_c} (A_1 R_c^2 + A_2 R_c + A_3)。 \quad (11)$$

$E_{\text{other}}(r)$ 对原子的影响为

$$F_{\text{other}}(r) = -\nabla_r E(r) = e^{-\alpha R_c} (A_1' R_c^2 + A_2' R_c + A_3')。 \quad (12)$$

由于 R_c 相对较大, 因此只考虑最高阶项的变化, 则

$$F_{\text{other}}(r) \propto e^{-\alpha R_c} R_c^2。 \quad (13)$$

根据上述分析, 截断半径以外的原子贡献将分别随 R_c^{-4} 和 $e^{-\alpha R_c} R_c^2$ 的变化而变化。理论上, 如果 R_c 足够大, 力随着 R_c 增大而迅速衰减为 0。在短距离上, 力会急剧下降, 但与 Bucking-ham 势和 Born-Maye-Huggins 势相比, Morse 势的衰减更为平缓, 尤其是在较大距离上。当 R_c 足够大时, 力函数基本重合。从实验数据中可以发现, 当 R_c 大于 5 Å (1 Å = 0.1 nm) 时的数据大致符合这一规律。因此, 可以假设力的误差变化也与 R_c^{-4} 和 $e^{-\alpha R_c} R_c^2$ 成正比。在本文中, 为了使力的比较更加明显, 将近邻原子移动 0.4 Å, 而不是通常选择的 0.1 Å, 这样力的误差将减小到 0.1 Å 步长的 1/4。由于移动单个原子所引起的力的误差, 以及截断半径之外的相互作用所导致的力的误差, 都表现出随截断半径 R_c 的迅速衰减特性。在现有的分子动力学实践中, 当前者的影响被忽略后, 后者的影响也会迅速减小, 因为在后者的积分计算中, 前者的贡献占据了主导地位。因此, 当 R_c 大于 5 Å 时, 力误差小于 0.01 eV/Å。总的来说, 一般建议取大于 5 Å 的值。

2 计算方法

本次计算中所有材料都是从 Materials Project 数据库中下载得到的, 将下载获得的结构扩胞为接近 20 Å 的超胞。在获得的超胞中随机选择一个原子(中心原子), 以该原子为中心分别在 5 Å, 7.5 Å 和 10 Å 距离附近选择一个原子作为近邻原子(如图 2 所示), 将近邻原子分别沿法向和切向方向移动 0.4 Å, 由此获得新的超胞构型。如, 在双元素材料 AB 中, 先选择一个原子 A 为中心原子, 调整 5 Å, 7.5 Å 和 10 Å 之外的其中一个近邻原子 A/B 的位置, 然后进行分子动力学模拟, 根据计算结果分析调整前后中心原子的力变化情况, 进一步了解远处原子对中心原子的影响。同样地, 再选择一个原子 B 为中心原子, 重复操作。在本文中, 如果是单元素材料, 包括原超胞结构总共能够获得 7 个构型; 那么双元素材料总共有 25 个构型, 三元素材料总共有 55 个构型。

本文总共选取 83 种材料, 其中 15 种金属晶体, 22 种原子晶体, 14 种离子晶体, 分子晶体和合金各 16 种, 如表 1 所示。另外, 有 58 种材料是非单元素组成的。这项工作是利用基于平面波基组的第一性原理计算软件 VASP 进行分子动力学模拟。能量收敛阈值设置为 520 eV, 利用 PBE-GGA 泛函进行交换相关相互作用。总能计算允许误差 1.0×10^{-5} eV,

涂抹宽度设置为 0 eV, 布里渊区用单个 Gamma 采样的 K 点网格, 即 $1 \times 1 \times 1$ 。采用 NVE 微正则系综, 通过 Andersen 恒温器控温。分子动力学离子步数为 1, 初始温度和结束温度均为 300 K, 时间步长 1.0 fs。通过分析中心原子在近邻原子移动前后所受力的误差大小, 可得到不同材料结构中的原子受远处原子影响的情况。

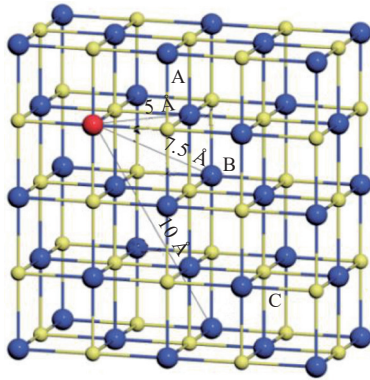


图2 近邻原子 A, B 和 C
Fig.2 Neighbor atoms A, B and C

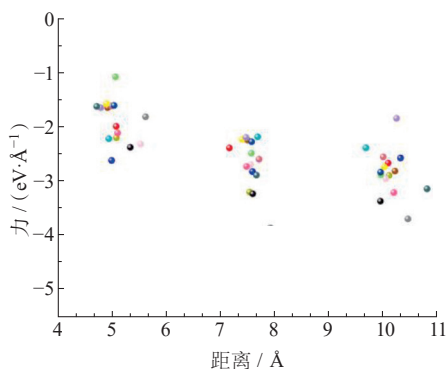
表1 材料
Table 1 Materials

金属晶体	原子晶体	离子晶体	分子晶体	合金
	Si, Ge,		Ar, HF,	ZnCu,
Al, Zn,	As, Se, Te,	NaCl, LiCl,	CO ₂ ,	CuNi,
Ca, Ba,	Sb, B, Sn,	NaF, CuO,	CO, H ₂ ,	Li ₃ Fe, Fe ₃ C,
Ag, Mg,	SiO ₂ , SiC,	BaO, CaO,	AlBr ₃ ,	MnPt,
Mn, Co,	BN, GaAs,	NaBr,	H ₂ Se,	TiZn, AlCo,
Na, Au,	InSb, CdS,	NaO ₂ , Li ₃ P,	SO ₂ , HCl,	LiSbAu,
Ti, Pt,	InP, ZnS,	FeS, CsF,	N ₂ , SO ₃ ,	FeNi, ScAl,
Fe, Ni, K	ZnTe, BiTe,	CaCl ₂ ,	HI, HBr,	MnZn,
	PbSe, GaN,	KBr, SrO	He, H ₂ S,	CuSn, LiAl,
	GaP, CdSe		H ₃ N	MgAl,
				MnAl, MgSn

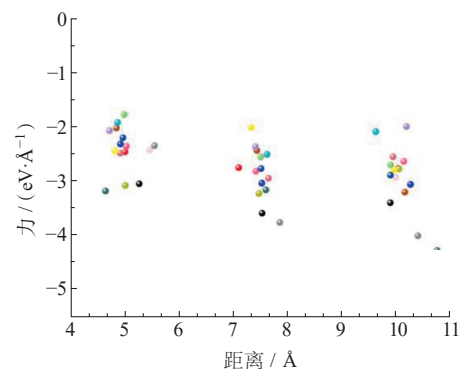
3 结果与讨论

为了进行全面分析, 选择与中心原子距离分别约为 5 Å, 7.5 Å 和 10 Å 的近邻原子。然后, 将近邻原子分别沿法向和切向两个方向移动 0.4 Å, 由此产生的力的误差以 F_{xy} 表示 ($x=5, 7.5, 10$, 其中 x 代表中心原子与邻近原子之间的距离; $y=n, t$, 其中 n 代表法向, t 代表切向), 并分别求出所有材料中 F_{xy} 的平均值, 如表 2 所示。当原子间距离足够大时, 原子间的排斥势可以忽略不计, 中心原子受截断半径外原子影响的力与 R_c^{-4} 和 $e^{-\alpha R_c} R_c^2$ 成正比, 力的误差随 R_c^{-4} 或 $e^{-\alpha R_c} R_c^2$ 变化。因此, 假设当截断半径大于 5 Å 时, 力的误差与 R_c^{-4} 和 $e^{-\alpha R_c} R_c^2$ 成正比, 则应该小于 0.01 eV/Å。由图 3 可知所有材料力误差的分布情况。为更加直观了解力误差的变化趋势, 分别从金属晶体、原子晶体、离子晶体、分子晶体和合金材料中各选择了 5 种结构, 如图 4 所示, 纵坐标表示力误差的对数值。可以发现, 当原子间距增大时, 力的误差呈减小趋势, 即原子间相互作用随距离增大而减弱。从 5 Å 到 7.5 Å, 力误差迅速衰减; 从 7.5 Å 到 10 Å, 力误差衰减平缓。数据表明, 在计算原子受力时, 不必考虑体系中其他所有原子对其的影响, 只需要考虑某一距离范围内的原子影响。

当原子间距约 5 Å 时, 移动近邻原子前后, 作用在中心原子上的力误差在 10^{-2} eV/Å 左右; 当原子间距约 7.5 Å 和 10 Å 时, 原子力误差在 10^{-3} eV/Å 左右。从实验数据来看, 当近邻原子与中心原子的距离超过 5 Å 时, 这一假设基本成立。原子间距 5 Å 时, 力误差已经满足了计算力场时的精度要求。这意味着当原子间距大于 5 Å 时, 它们之间的相互作用可忽略。由此表明, 在 ML-FF 中将截断半径设定为 5 Å 是一个在多数材料中都接近最佳选择的值。



a1 金属晶体近邻原子沿法向移动的情况



a2 金属晶体近邻原子沿切向移动的情况

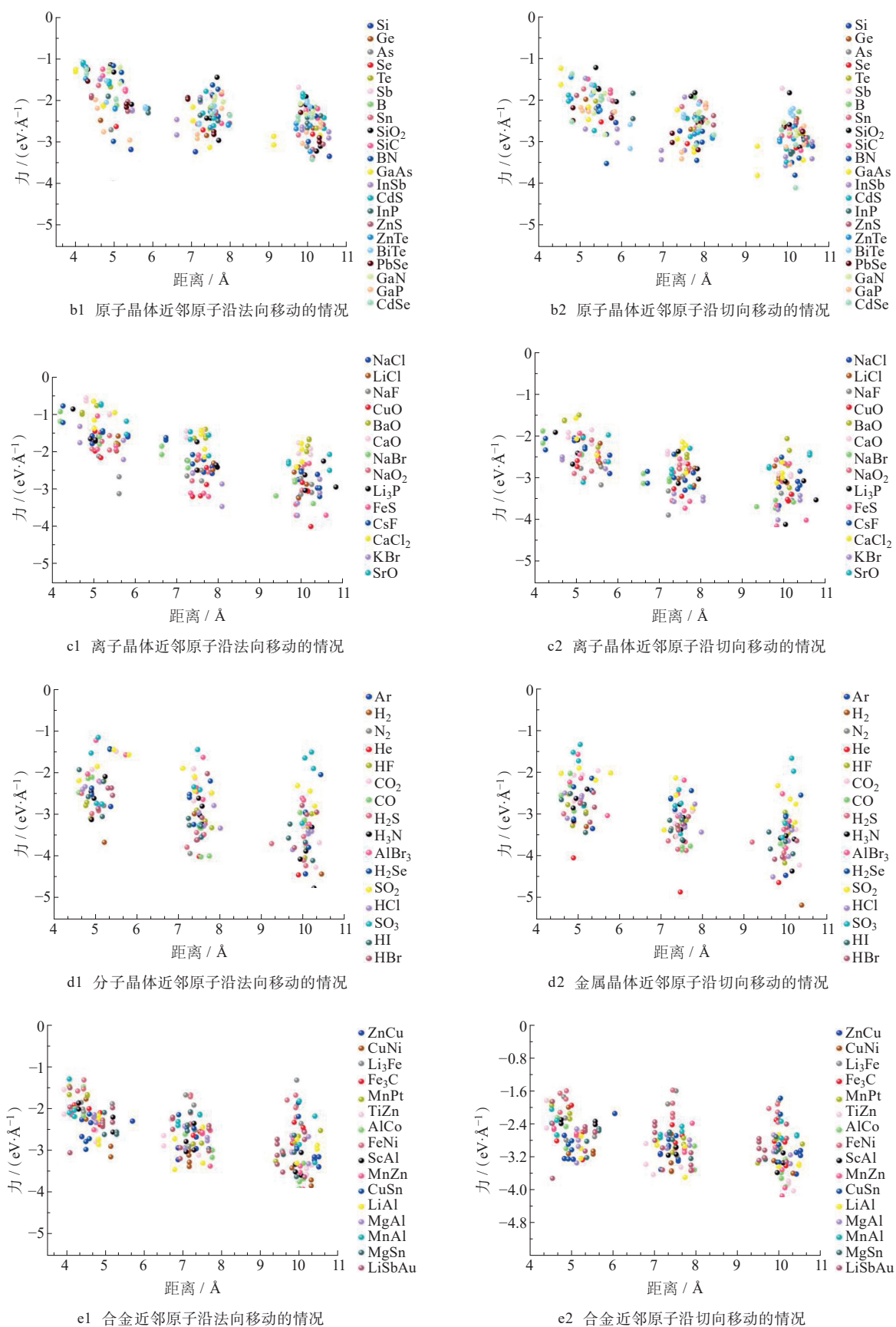


图 3 力误差的对数值

Fig.3 Logarithm of the difference in forces

表 2 力的误差
Table 2 Difference of force

材料	距离 / Å	$\bar{F}_n / (\text{eV}\cdot\text{Å}^{-1})$	$\bar{F}_t / (\text{eV}\cdot\text{Å}^{-1})$	$F / (\text{eV}\cdot\text{Å}^{-1})$	$F_{n, \max} / (\text{eV}\cdot\text{Å}^{-1})$	$F_{t, \max} / (\text{eV}\cdot\text{Å}^{-1})$	$\bar{F}_n - \bar{F}_t / (\text{eV}\cdot\text{Å}^{-1})$
金属晶体	5	0.051 66	0.013 05	0.032 36	0.258 00	0.042 91	0.038 61
	7.5	0.006 85	0.005 12	0.005 99	0.014 82	0.023 44	0.001 73
	10	0.005 29	0.005 15	0.005 22	0.035 70	0.024 48	0.000 14
原子晶体	5	0.066 69	0.033 44	0.055 56	0.279 09	0.189 87	0.033 25
	7.5	0.019 14	0.008 59	0.013 87	0.113 89	0.040 76	0.010 55
	10	0.010 15	0.004 91	0.007 53	0.062 21	0.053 69	0.005 24
离子晶体	5	0.059 32	0.018 27	0.038 80	0.275 29	0.097 22	0.041 05
	7.5	0.011 38	0.003 90	0.007 64	0.040 43	0.018 11	0.007 48
	10	0.004 30	0.002 65	0.003 47	0.022 07	0.022 59	0.001 65
分子晶体	5	0.030 60	0.015 24	0.022 92	0.235 79	0.152 23	0.015 36
	7.5	0.008 87	0.002 64	0.005 75	0.111 22	0.019 06	0.006 23
	10	0.005 64	0.002 98	0.004 31	0.095 81	0.064 83	0.002 66
合金	5	0.029 63	0.013 74	0.021 68	0.167 59	0.086 31	0.015 89
	7.5	0.009 53	0.007 41	0.008 47	0.063 47	0.090 27	0.002 12
	10	0.008 85	0.005 76	0.007 30	0.157 51	0.054 80	0.003 09

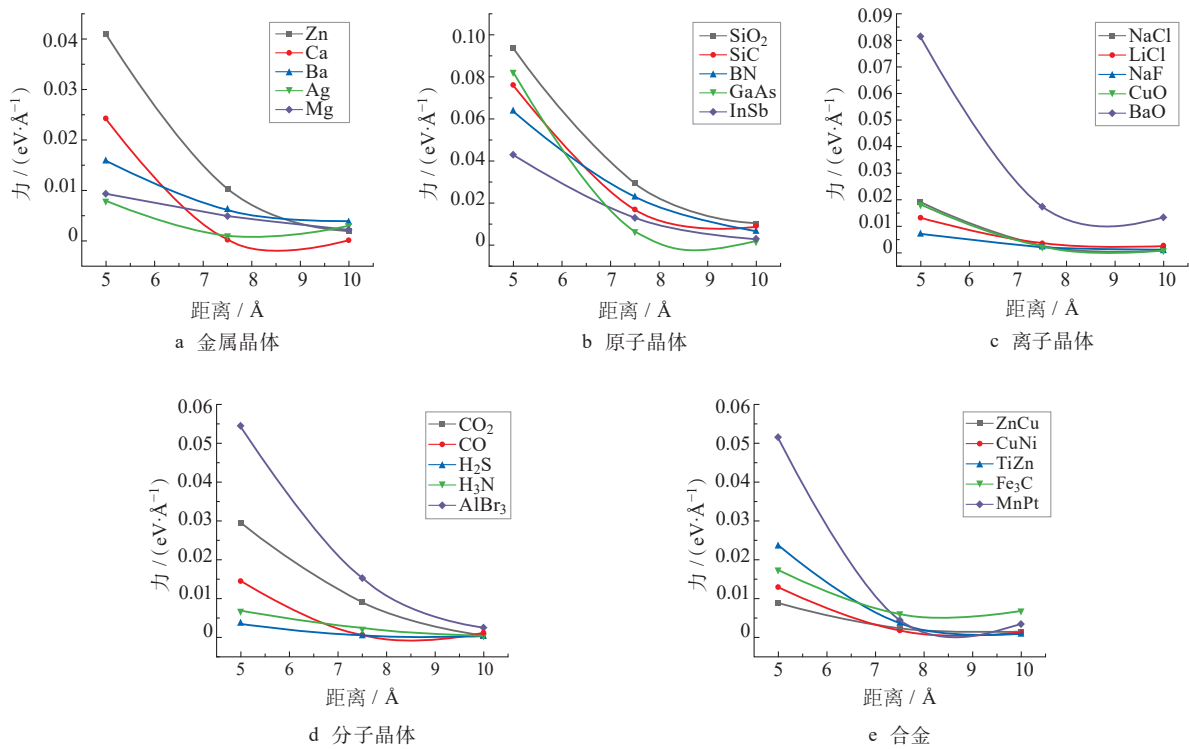


图 4 各种材料中力的误差变化
Fig.4 Trend of force's difference in various materials

进一步分析,对于分子晶体,当原子间距约 5 Å 时,原子所受作用力的误差通常在 10^{-3} eV/Å 范围内。对于其他材料,这一误差在 10^{-2} eV/Å 范围内。就分子晶体而言,在 7.5 Å 情况下,力的误差也在 10^{-3} eV/Å 左右;而在 10 Å 情况下,力的误差会减小到 10^{-4} eV/Å 左右,某些数据点甚至在 10^{-5} eV/Å 或 10^{-6} eV/Å。金属晶体、离子晶体和合金,在 7.5 Å 和

10 Å 时,力的误差几乎降至 10^{-3} eV/Å。与此相反,原子晶体在 7.5 Å 情况下,力的误差也为 10^{-3} eV/Å;但相比于其他材料,力的误差在 10^{-1} eV/Å 数量级的数据较多。

分别从金属晶体、原子晶体、离子晶体、分子晶体和合金 5 种材料中选择了 Zn, SiO₂, NaCl, H₂S 和 ZnCu, 如图 5 所示,其中纵坐标表示力误差的对

数值。同样可以看出, 原子力的误差随原子间距增大呈减小趋势, 即原子间相互作用影响随距离增大而减弱。相比其他材料, 原子晶体中原子间相互作用变化更为明显, 而分子晶体中原子间相互作用变化较弱。在不同类型的晶体结构中, 一个原子移动后, 对另一个原子的力的影响程度会有所不同。在分子晶体中, 力对原子的影响通常不太明显, 而在原子晶体中, 力对原子的影响则更为明显。这可能是由于这些晶体结构中原子间相互作用的性质和强度不同。在分子晶体中, 原子之间通常通过共价键或范德华力相互作用, 这种作用力较弱, 而且通常是非定向的。因此, 当一个原子移动时, 对周围原子的影响相对较小, 而对另一个原子的作用力变化也可忽略不计。与此相反, 在原子晶体中, 原子通常以金属键或离子键等强相互作用方式结合在一起, 这种相互作用相对较强, 通常具有方向性。因此, 当一个原子移动时, 其位置变化可能会显著影响周围原子的排列和作用力, 从而导致原子所受力的变化更加明显。综上所述, 在这 5 种材料中, 原子晶体中的原子间的影响更为明显, 而分子晶体中的则相对较弱。因此, 根据研究体系种类优化截断半径的选择, 在 ML-FF 中, 对于原子晶体, 截断半径可以略大于 5 Å; 而对于分子晶体可略小于 5 Å; 对于金属晶体、离子晶体和合金来说, 5 Å 即可。

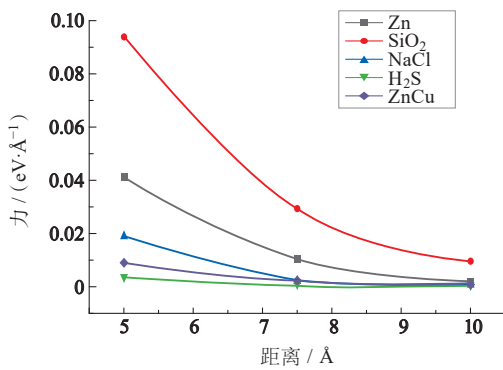


图 5 力误差
Fig.5 Difference of force

总之, 当原子相距 5 Å 时, 力的误差通常在 10^{-2} eV/Å 范围内。而在某些情况下, 力的误差会在 10^{-1} eV/Å 范围内。从大量的数据中还发现: 沿法向移动近邻原子前后, 中心原子受到的力的误差基本大于沿切向移动近邻原子的情况, 这在各种材料中基本表现一致。图 6 中, 曲线 5n, 5t, 7.5n, 7.5t, 10n,

10t 指的是近邻原子沿法向 / 切向移动后的中心原子力误差 F_{xy} ($x=5, 7.5, 10; y=n, t$, 其中 n 指法向, t 指切向) 的平均值, 纵坐标表示力误差的对数值。图 7 中, 分析了不同材料中沿法向移动原子后力的误差大于沿切向移动原子的百分比, 在不同材料中所占的百分比分别为: 金属晶体 75.56%, 原子晶体 74.48%, 离子晶体 80.36%, 分子晶体 69.87%, 合金 68.45%, 所有材料 73.27%, 根据表 2 中的 $\bar{F}_n - \bar{F}_t$ 也可以得到同样的结果。两个原子之间的相互作用通常与原子间的距离密切相关。当原子移动时, 两个原子间的距离会发生变化, 从而导致它们之间的相互作用发生变化。在分子动力学中, 当原子沿法向或切向移动时, 影响它们的作用力因方向不同而不同。相比角度多体效应, 由距离因素引起的影响较大, 所以沿法向移动时产生的影响更为明显, 从而导致原子间的相互作用更为敏感。

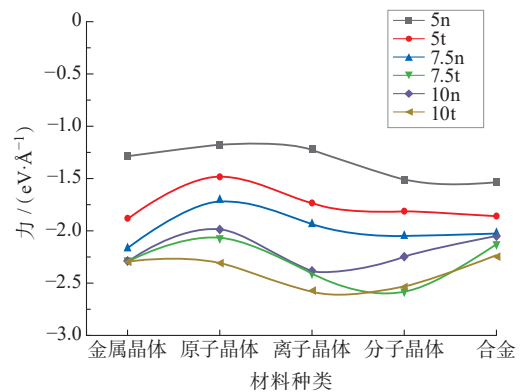


图 6 材料类型与力的关系
Fig.6 Relationship between material type and force

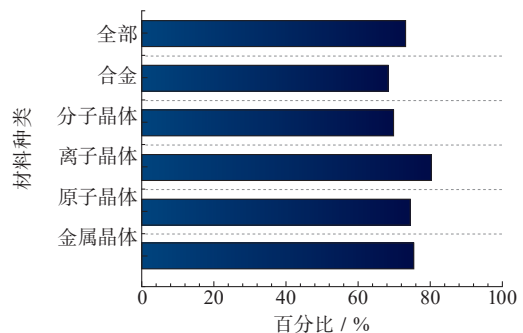


图 7 沿法向移动原子后力的误差大于沿切向移动原子的百分比

Fig.7 Percentage of the difference in forces after moving the neighbor atom in the normal direction is greater than that in the tangential direction

此外, 在移动相同元素的原子时, 力的误差略大

于移动异种元素时的力的误差,如图8所示,不同材料中所占的百分比分别为:原子晶体 58.93%,离子晶体 53.57%,分子晶体 53.47%,合金 60.65%,所有材料 57.04%。元素种类对原子间相互作用的影响主要体现在两个方面:原子间距离和原子间相互作用的强度。对于同种元素的原子来说,由于它们具有相同的电子结构,因此它们之间的相互作用强度通常大于不同元素原子之间的相互作用强度。因此,当移动相同元素的原子时,原子所受力的变化可能会更加明显。

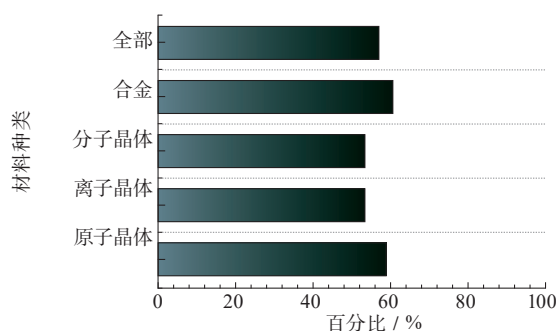


图8 移动同种元素的原子后力的误差大于移动异种元素原子情况下的百分比

Fig.8 Percentage of the difference in forces after moving a neighbor atom of the same element is greater than that of a different element

4 总结与展望

本文利用 VASP 进行从头算分子学模拟,分析了原子力的误差。根据实验数据,在 5 Å 附近的近邻原子的影响已达到要求的精度。因此,在 ML-FF 中,取 5 Å 的截断半径即可在提高计算效率的同时保证计算准确度。此外考虑研究体系的种类,对于原子晶体来说,截断半径值可略大于 5 Å;而对于分子晶体来说,截断半径值可小于 5 Å;就金属晶体、离子晶体和合金而言,截断半径值为 5 Å 即可。总之,本文的研究内容有望在保证结果准确度的基础上提高 ML-FF 中的计算效率。尤其在研究复杂、数量大的体系时,能够大大减少计算工作量,也在一定程度上使得研究更为复杂且数量规模更大的体系成为可能。本文通过 DFT 手段探讨 ML-FF 中截断半径的选择,后续将进一步深入研究,比如增加模拟的数据集数量、采用结构更为复杂的材料。另外,比较不同截断半径的 ML-FF 在应用于 MD 时的效果以验证截断半径对 ML-FF 的影响,这是未来要完成的挑战。ML-FF 是一个新兴的领域,本文首次对 ML-FF 中截断半径参数设置的理论知识进行了补充,这必将有利于 ML-FF 的发展。

参考文献:

- [1] CAR R, PARRINELLO M. Unified approach for molecular dynamics and density-functional theory [J]. Physical Review Letters, 1985, 55 (22): 2471-2474.
- [2] GROSS A. Ab initio molecular dynamics simulations of the adsorption of H₂ on palladium surfaces [J]. Chemphyschem, 2010, 11 (7): 1374-1381.
- [3] ANDERSSON D A, BEELER B W. Ab initio molecular dynamics (AIMD) simulations of NaCl, UCl₃ and NaCl-UCl₃ molten salts [J]. Journal of Nuclear Materials, 2022, 568: 153836.
- [4] CRISTIGLIO V, HENNET L, CUELLO G J, et al. Ab-initio molecular dynamics simulations of the structure of liquid aluminates [J]. Journal of Non-crystalline Solids, 2007, 353 (18/19/20/21): 1789-1792.
- [5] JORDAN M I, MITCHELL T M. Machine learning: trends, perspectives, and prospects [J]. Science, 2015, 349 (6245): 255-260.
- [6] ANTONO E, MATSUZAWA N N, LING Julia, et al. Machine-learning guided quantum chemical and molecular dynamics calculations to design novel hole-conducting organic materials [J]. The Journal of Physical Chemistry A, 2020, 124 (40): 8330-8340.
- [7] YANG Wenhong, FIDELIS T T, SUN Wenhua. Machine learning in catalysis, from proposal to practicing [J]. Acs Omega, 2019, 5 (1): 83-88.
- [8] BLANK T B, BROWN S D, CALHOUN A W, et al. Neural network models of potential energy surfaces [J]. The Journal of Chemical Physics, 1995, 103 (10): 4129-4137.
- [9] BEHLER J, PARRINELLO M. Generalized neural-network representation of high-dimensional potential-energy surfaces [J]. Physical Review Letters, 2007, 98 (14): 146401.
- [10] SCHÜTT K T, SAUCEDA H E, KINDERMANS P J, et al. SchNet-a deep learning architecture for molecules and materials [J]. The Journal of Chemical Physics, 2018, 148 (24): 241722.
- [11] SCHÜTT K T, KESSEL P, GASTEGGER M, et al. SchNetPack: a deep learning toolbox for atomistic systems [J]. Journal of Chemical Theory and Computation, 2018, 15 (1): 448-455.
- [12] YAO Kun, HERR J E, BROWN S N, et al. Intrinsic

- bond energies from a bonds-in-molecules neural network [J]. *The Journal of Physical Chemistry Letters*, 2017, 8 (12) : 2689-2694.
- [13] BARTÓK A P, PAYNE M C, KONDOR R, et al. Gaussian approximation potentials: the accuracy of quantum mechanics, without the electrons [J]. *Physical Review Letters*, 2010, 104 (13) : 136403.
- [14] KLAWOHN S, KERMODE J R, BARTÓK A P. Massively parallel fitting of Gaussian approximation potentials [J]. *Machine Learning: Science and Technology*, 2023, 4 (1) : 015020.
- [15] BYGGMäSTAR J, NORDLUND K, DJURABKOVA F. Gaussian approximation potentials for body-centered-cubic transition metals [J]. *Physical Review Materials*, 2020, 4 (9) : 093802.
- [16] SHAPEEV A V. Moment tensor potentials: a class of systematically improvable interatomic potentials [J]. *Multiscale Modeling & Simulation*, 2016, 14 (3) : 1153-1173.
- [17] WANG Han, ZHANG Linfeng, HAN Jiequn, et al. DeePMD-kit: a deep learning package for many-body potential energy representation and molecular dynamics [J]. *Computer Physics Communications*, 2018, 228: 178-184.
- [18] MIAO Ling, WANG Linwang. Liquid to crystal Si growth simulation using machine learning force field [J]. *The Journal of Chemical Physics*, 2020, 153 (7) : 074501.
- [19] ZHANG Linfeng, WANG Han, CAR R, et al. Phase diagram of a deep potential water model [J]. *Physical Review Letters*, 2021, 126 (23) : 236001.
- [20] WANG Jinjin, SHEN Hong, YANG Riyi, et al. A deep learning interatomic potential developed for atomistic simulation of carbon materials [J]. *Carbon*, 2022, 186: 1-8.
- [21] LI Xiangguo, HU Chongze, CHEN Chi, et al. Quantum-accurate spectral neighbor analysis potential models for Ni-Mo binary alloys and fcc metals [J]. *Physical Review B*, 2018, 98 (9) : 094104.
- [22] CHEN Chi, DENG Zhi, TRAN R, et al. Accurate force field for molybdenum by machine learning large materials data [J]. *Physical Review Materials*, 2017, 1 (4) : 043603.
- [23] DENG Zhi, CHEN Chi, LI Xiangguo, et al. An electrostatic spectral neighbor analysis potential for lithium nitride [J]. *Npj Computational Materials*, 2019, 5 (1) : 75.
- [24] JIANG Jun, LI Xiangguo, MISHKIN A S, et al. Amorphous Zirconia-doped Tantalum modeling and simulations using explicit multi-element spectral neighbor analysis machine learning potentials (EME-SNAP) [J]. *Physical Review Materials*, 2023, 7 (4) : 045602.
- [25] DOMINA M, COBELLI M, SANVITO S. Spectral neighbor representation for vector fields: machine learning potentials including spin [J]. *Physical Review B*, 2022, 105 (21) : 214439.
- [26] CHMIELA S, TKATCHENKO A, SAUCEDA H E, et al. Machine learning of accurate energy-conserving molecular force fields [J]. *Science Advances*, 2017, 3 (5) : 1603015.
- [27] ASNAASHARI K, KREMS R V. Gradient domain machine learning with composite kernels: improving the accuracy of PES and force fields for large molecules [J]. *Machine Learning: Science and Technology*, 2021, 3 (1) : 015005.
- [28] CHMIELA S, SAUCEDA H E, POLTAVSKY I, et al. sGDML: constructing accurate and data efficient molecular force fields using machine learning [J]. *Computer Physics Communications*, 2019, 240: 38-45.
- [29] LIU Wenxiang, ZHU Yang, WU Yongqiang, et al. Molecular dynamics and machine learning in catalysts [J]. *Catalysts*, 2021, 11 (9) : 1129.
- [30] JINNOUCHI R, KARSAI F, KRESSE G. Making free-energy calculations routine: combining first principles with machine learning [J]. *Physical Review B*, 2020, 101 (6) : 060201.
- [31] MORAWIETZ T, SINGRABER A, DELLAGO C, et al. How van der Waals interactions determine the unique properties of water [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 2016, 113 (30) : 8368-8373.
- [32] CHEN Lei, SUKUBA I, PROBST M, et al. Iterative training set refinement enables reactive molecular dynamics via machine learned forces [J]. *Rsc Advances*, 2020, 10 (8) : 4293-4299.
- [33] SIVARAMAN G, GUO Jicheng, WARD L, et al. Au-

- tomated development of molten salt machine learning potentials: application to LiCl [J]. *The Journal of Physical Chemistry Letters*, 2021, 12 (17) : 4278-4285.
- [34] PATTNAIK P, RAGHUNATHAN S, KALLURI T, et al. Machine learning for accurate force calculations in molecular dynamics simulations [J]. *The Journal of Physical Chemistry A*, 2020, 124 (34) : 6954-6967.
- [35] WEN Tongqi, WANG Rui, ZHU Lingyu, et al. Specialising neural network potentials for accurate properties and application to the mechanical response of titanium [J]. *Npj Computational Materials*, 2021, 7 (1) : 206.
- [36] ECKHOFF M, BEHLER J. High-dimensional neural network potentials for magnetic systems using spin-dependent atom-centered symmetry functions [J]. *Npj Computational Materials*, 2021, 7 (1) : 170.
- [37] ARTRITH N, URBAN A. An implementation of artificial neural-network potentials for atomistic materials simulations: performance for TiO₂ [J]. *Computational Materials Science*, 2016, 114: 135-150.
- [38] JIANG Wanrun, ZHANG Yuzhi, ZHANG Linfeng, et al. Accurate deep potential model for the Al-Cu-Mg alloy in the full concentration space [J]. *Chinese Physics B*, 2021, 30 (5) : 050706.
- [39] LI Yongle, XU Feng, HOU Long, et al. Molecular dynamics simulation of the transformation of Fe-Co alloy by machine learning force field based on atomic cluster expansion [J]. *Chemical Physics Letters*, 2023, 82: 140646.
- [40] GUBAEV K, PODRYABINKIN E V, HART G L W, et al. Accelerating high-throughput searches for new alloys with active learning of interatomic potentials [J]. *Computational Materials Science*, 2019, 156: 148-156.
- [41] MORTAZAVI B, SHAHROKHI M, SHOJAEI F, et al. A first-principles and machine-learning investigation on the electronic, photocatalytic, mechanical and heat conduction properties of nanoporous C5N monolayers [J]. *Nanoscale*, 2022, 14 (11) : 4324-4333.
- [42] WANG Yinnan, ZHANG Linfeng, XU Ben, et al. A generalizable machine-learning potential of Ag-Au nanoalloys and its application on surface reconstruction, segregation and diffusion [J]. *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, 2021, 30 (2) : 025003.

(责任编辑:褚金红)