

Предсказание частот фононных мод халькопиритов с использованием графовой нейронной сети*

М.С. Снегеров¹, А.И. Князькова², Д.А. Вражнов²,
Г.К. Распопин², Ю.В. Кистенев²

¹ *Национальный исследовательский Томский государственный университет, г. Томск, Россия*

² *Институт оптики атмосферы им. В.Е. Зуева СО РАН, г. Томск, Россия*

Квантово-химические расчеты частот фононных мод оптических нелинейных кристаллов требуют больших вычислительных затрат. В данной работе на основе графовой нейронной сети рассмотрена предиктивная модель для предсказания частот фононных мод оптических кристаллов типа «халькопирит». Для обучения нейронной сети использовались информация о структурах кристаллов типа «халькопирит» и частоты фононных мод из базы теоретических расчетов «Computational Raman Database». Показано, что коэффициент детерминации предсказания частот фононных мод разработанной модели равен 0.922.

Ключевые слова: *фононные моды, графовая нейронная сеть, оптические кристаллы, халькопирит, предиктивная модель, квантово-химические расчеты.*

Введение

Кристаллы со структурой типа «халькопирит» представляют собой перспективный класс материалов, которые активно используются в фотодетекторах, элементах солнечных батарей, устройствах нелинейной оптики [1, 2, 3]. Точное предсказание частот фононных мод важно для понимания структуры и свойств кристалла, к примеру, механических, тепловых, сегнетоэлектрических [4]. Хотя стандартные вычислительные методы, такие как теория функционала плотности (density functional theory, DFT) [5], теория возмущений функционала плотности [6], позволяют с высокой точностью получить частоты фононных мод, но большие вычислительные затраты делают их неэффективными для быстрого анализа. Положение частот фононных мод можно определять экспериментально, например, с помощью спектроскопии комбинационного рассеяния света, однако такие результаты не позволяют однозначно идентифицировать фононные моды без точного теоретического расчета.

Альтернативой вычислительным методам может служить применение алгоритмов машинного обучения (МО), которые позволяют реализовать точные и одновременно производительные модели-предикторы [7]. Особенностью применения МО в материаловедении является выбор способа представления кристаллической структуры в виде понятном для алгоритма. Исходя из этого, графовые нейронные сети (ГНС), основанные на геометрических особенностях кристаллической структуры, позволяют предиктивной модели учитывать локальную симметрию, определяющую частоты фононных мод. ГНС работают на основе итеративного изменения признаков между узлами и их соседями, преобразуя информацию о локальном окружении каждого атома [8]. Данный подход позволяет ГНС строить информативные векторные представления как атомов, так и всей структуры в целом, которые затем используются для предсказания целевых свойств.

В данной работе представлена предиктивная модель на основе ГНС, способная с высокой точностью предсказать частоты фононных мод кристаллов типа «халькопирит» на основе их кристаллической структуры.

Материалы и методы

Кристаллы типа «халькопирит» с формулами $A^I B^{III} C^{IV}_2$ и $A^{II} B^{IV} C^V_2$ (где А, В, С – различные типы атомов, а верхние индексы обозначают их валентность) принадлежат к тетрагональной сингонии с объемно-центрированной решеткой (пространственная группа $D_{2d}(I\bar{4}2d)$, номер 122) [9, 10]. Структура подобных кристаллов изображена на рис. 1.

* Работа выполнена в рамках государственного задания ИОА СО РАН.