

ТОЧНОСТЬ, ПРОИЗВОДИТЕЛЬНОСТЬ И ПЕРЕНОСИМОСТЬ МЕЖЧАСТИЧНЫХ ПОТЕНЦИАЛОВ ДЛЯ СПЛАВОВ Al–Cu: СРАВНЕНИЕ МОДЕЛЕЙ ПОГРУЖЕННОГО АТОМА И ГЛУБОКОГО МАШИННОГО ОБУЧЕНИЯ

Е. О. Хазиева^{a,b,}, Н. М. Щелкачев^{a,c}, А. О. Тупеев^{a,d}, Р. Е. Рыльцев^{a,b}*

^a *Институт металлургии Уральского отделения Российской академии наук
620016, Екатеринбург, Россия*

^b *Уральский Федеральный университет им. первого Президента России Б. Н. Ельцина
620002, Екатеринбург, Россия*

^c *Институт физики высоких давлений им. Л. Ф. Верещагина Российской академии наук
142190, Троицк, Москва, Россия*

^d *Department of Materials Engineering, Federal University of São Carlos
13565-905 São Carlos, SP, Brazil*

Поступила в редакцию 10 мая 2023 г.,
после переработки 4 июля 2023 г.
Принята к публикации 6 июля 2023 г.

В последние несколько лет достигнут существенный прогресс в атомистическом моделировании материалов, связанный с применением методов машинного обучения для построения классических межатомных потенциалов взаимодействия. Такие потенциалы представляют собой многочастичные функции с большим количеством варьируемых параметров, значения которых оптимизируются с использованием энергий и сил, вычисленных для различных атомных конфигураций с помощью *ab initio*-методов. В данной работе мы разработали потенциал машинного обучения на основе глубоких нейронных сетей (DP) для сплавов Al–Cu и сравнили его точность и производительность с потенциалом погруженного атома (2NN-MEAM). Анализ полученных результатов позволяет заключить, что разработанный DP обеспечивает достаточно высокую точность расчета структурных, термодинамических, транспортных свойств сплавов Al–Cu как в твердом, так и в жидком состояниях во всем диапазоне составов и широком интервале температур. При этом точность MEAM при расчете тех же свойств в целом заметно ниже. Было показано, что использование потенциалов на основе нейронных сетей при моделировании на современных графических процессорах позволяет добиться производительности расчетов одного порядка с MEAM-вычислениями, что, как минимум, на 4 порядка выше вычислительной эффективности *ab initio*-расчетов. Важнейшим результатом явился вывод о возможности применения DP, параметризованных с использованием конфигураций, соответствующих расплавам и идеальным кристаллам, для моделирования структурных дефектов в кристаллах и межфазных поверхностей.

DOI: 10.31857/S004445102312012X
EDN: MXUUBH

1. ВВЕДЕНИЕ

Одним из трендов современной физики конденсированного состояния и материаловедения является

широкое использование атомистического моделирования для прогнозирования и расчета свойств материалов. Атомистическое моделирование является незаменимым инструментом для описания свойств на атомарных пространственно-временных масштабах, а также при термодинамических или кинетических условиях, пока недоступных эксперименту. В данной работе мы будем говорить о методе молекулярной динамики (МД) как наиболее универсальном и широко используемом методе атомисти-

* E-mail: cat.hazieva@yandex.ru

ческого моделирования. Ключевым объектом МД-моделирования является поверхность потенциальной энергии (Potential Energy Surface, PES) — зависимость потенциальной энергии системы от координат частиц. Если PES известна, то дальнейшее МД-исследование сводится к вычислению межчастичных сил (градиентов PES), численному решению уравнений движения и вычислению наблюдаемых свойств путем усреднения по динамическим траекториям частиц. Существуют два основных метода оценки PES в МД: первопринципная (*ab initio*) молекулярная динамика (AIMD) и классическая МД. В рамках AIMD явно рассматривается электронная подсистема и решается уравнение Шредингера (как правило, в рамках приближения функционала электронной плотности — DFT), что позволяет напрямую вычислять потенциальную энергию системы при текущем положении атомов и получать значения PES в каждой точке МД-траектории. Помимо высокой точности (обычно несколько мэВ/атом) и фундаментального обоснования, AIMD может применяться как к элементарным, так и к многокомпонентным системам. Основное ограничение AIMD состоит в большой ресурсоемкости. В настоящее время AIMD-симуляции могут быть выполнены только для систем, содержащих несколько сотен атомов, и для временных интервалов порядка сотен пикосекунд [1]. Таких пространственно-временных масштабов недостаточно для решения многих важных задач физики конденсированного состояния и материаловедения: расчет транспортных свойств жидкостей (особенно вязкости), моделирование фазовых превращений и расчет диаграмм состояния, моделирование переохлажденных жидкостей и стекол и т.п.

В рамках классической МД электронная подсистема не рассматривается и поэтому PES аппроксимируется с использованием некоторых модельных функций (потенциалов), которые, как правило, имеют достаточно простую аналитическую форму. Для атомистического моделирования металлов и сплавов, «золотым стандартом» является модель погруженного атома (Embedded Atom Model, EAM) и ее модификации. Энергия системы в данной модели представляется в виде суммы энергии парных взаимодействий атомов и энергии взаимодействия каждого атома с электронной плотностью других атомов. Метод может давать хорошие результаты для металлов, особенно с ГЦК-структурой. Для ОЦК- и ГПУ-металлов, а также сплавов на их основе точность EAM может быть гораздо ниже. Данную проблему удалось частично решить в рамках модифи-

цированного метода погруженного атома (Modified Embedded Atom Model, MEAM). В данный метод были включены различия между ковалентными и металлическими связями за счет явного учета угловых взаимодействий как функции электронной плотности. Это позволило описывать не только чистые кристаллы с разными структурами, но также полупроводники, сплавы, оксиды металлов и двухатомные газообразные элементы. В настоящее время MEAM является универсальным и широко распространенным методом для моделирования металлических сплавов.

Использование классических (в частности, EAM/MEAM) межатомных потенциалов сильно ускоряет вычисление PES, что позволяет моделировать системы из $10^6 - 10^9$ атомов на временах вплоть до микросекунд. Однако платой за это является относительно низкая точность; такие потенциалы могут хорошо применяться для простых систем, таких как одно-, двухкомпонентные металлические сплавы [2–6], но обычно показывают низкую точность в более сложных случаях (многокомпонентные и/или многофазные системы, системы со сложными взаимодействиями). Таким образом, в области применения МД-моделирования для количественного расчета свойств материалов существует глобальная проблема соотношения точности и вычислительной эффективности (производительности). С одной стороны, мы имеем точные, но крайне затратные *ab initio*-методы, с другой — классические методы, которые позволяют проводить масштабные вычисления, но обладающие низкой точностью.

В последние несколько лет достигнут существенный прогресс в атомистическом моделировании материалов, связанный с применением методов машинного обучения для построения классических межатомных потенциалов взаимодействия [7–14]. Основная идея такого подхода — аппроксимировать PES-системы с помощью некоторой многочастичной функции общего вида (например, многослойной нейронной сети), используя эталонные значения энергий и межчастичных сил, полученные с помощью *ab initio*-расчетов. Классическая молекулярная динамика с такими потенциалами позволяет достичь точности, сравнимой по точности с *ab initio*-методами, при меньших на 3–5 порядков вычислительных затратах. Такой подход в настоящее время эффективно применяется для моделирования различных свойств материалов и протекающих в них процессов, которые чрезвычайно трудно или даже невозможно моделировать с помощью традицион-

ных методов [7–14].

Несмотря на перспективность и привлекательность потенциалов машинного обучения, методы их эффективной разработки и использования находятся еще на стадии активного становления, как и само активное обучение. Основными методическими вопросами являются проблемы точности (предсказательной способности), производительности (вычислительной эффективности) и переносимости. Под переносимостью здесь понимается возможность использования межчастичных потенциалов для описания конфигураций и термодинамических состояний, которые явным образом не использовались в процессе параметризации потенциала. Примерами открытых вопросов переносимости являются, например, вопрос о применимости потенциалов, параметризованных с использованием только неупорядоченных (жидких) конфигураций, для моделирования кристаллов (см., например [15–17]) или вопрос о необходимости явного включения в тренировочный датасет структурных дефектов или границ фаз при моделировании механических свойств или фазовых превращений.

В настоящее время при изучении каждого конкретного материала исследователь оказывается перед дилеммой: использовать проверенные и вычислительно эффективные традиционные потенциалы или тратить существенные ресурсы на создание потенциалов машинного обучения. Универсального ответа на вопрос, какой из подходов более оправдан не существует. В данной работе мы рассматриваем этот вопрос на примере сплавов Al–Cu, которые являются удобными модельными системами для отработки методических аспектов создания потенциалов машинного обучения. Во-первых, они представляют собой смеси металлов с различными электронными конфигурациями: *p*-металл (Al) и благородный *s*-металл (Cu), и потому демонстрируют сложное химическое взаимодействие между компонентами, которое вызывает нетривиальное поведение. Например, в данной системе образуется ряд сложных интерметаллических фаз и наблюдается немонокотное поведение физико-химических свойств расплавов при изменении состава [18]. Во-вторых, как сами бинарные сплавы Al–Cu, так и соответствующие чистые компоненты Al, Cu представляют самостоятельный фундаментальный интерес (как модельные системы) и большое практическое значение. В-третьих, для данной системы имеется большое количество экспериментальных и расчетных данных, которые можно использовать для сравнения.

2. МЕЖЧАСТИЧНЫЕ ПОТЕНЦИАЛЫ И ИХ ПАРАМЕТРИЗАЦИЯ

2.1. МЕАМ-потенциал

В данной работе мы использовали наиболее современный и точный вариант модели погруженного атома — так называемый 2NN-MEAM (second nearest neighbor modified embedded-atom method) [19]. В рамках любой модели погруженного атома энергия системы представляется в виде суммы вкладов парных взаимодействий и функции погружения, моделирующей взаимодействие выделенного атома с электронной плотностью соседних атомов. По сравнению с более простым и распространенным EAM-подходом, в 2NN-MEAM-версии вводятся два существенных улучшения: во-первых, в выражениях для электронной плотности учитываются угловые зависимости межчастичных взаимодействий, во-вторых, параметризация потенциала проводится с учетом взаимодействий как в первой, так и во второй координационных сферах. В результате 2NN-MEAM-потенциалы могут более корректно описывать системы с направленными связями, такие как ковалентные материалы или некоторые (например, ОЦК) металлы. Рассматриваемый 2NN-MEAM-потенциал для сплавов Al–Cu был предложен недавно в работе [20]. Параметризация потенциала осуществлялась путем минимизации ошибок вычисления набора наблюдаемых свойств в сравнении с экспериментальными данными и данными *ab initio*-расчетов. Авторами был рассмотрен следующий набор свойств: энергии сублимации, расстояние между ближайшими соседями, объемные модули и их производные, энергии образования вакансий, поверхностные энергии и энергии дефектов упаковки для ГЦК-кристаллов Al и Cu, разности между ГЦК- и ОЦК-структурами для Al и Cu, температура плавления Cu, а также теплоты образования для твердых растворов сплавов $\text{Al}_{1-x}\text{Cu}_x$. Процедура параметризации и верификации модели более подробно описана в работах [20–22].

2.2. Потенциал глубокого машинного обучения

При разработке потенциала машинного обучения для сплавов Al–Cu мы использовали модель DeePMD [23], в которой поверхность потенциальной энергии системы аппроксимируется с помощью двух полносвязных многослойных искусственных нейронных сетей прямого распространения (перцептронов). Одна из них используется для преобра-

зования координат локального окружения атомов в наборы так называемых дескрипторов — чисел, инвариантных относительно операций трансляции, вращения и пермутации; вторая аппроксимирующая сеть преобразует дескрипторы всех атомов системы в потенциальную энергию. Полное математическое описание структуры модели подробно изложено в работе [23]. Данный подход очень хорошо зарекомендовал себя при моделировании систем различной природы [24–31]. В дальнейшем потенциал, построенный в модели DeePMD, мы будем обозначать как DP (Deep Potential).

Параметризация DP осуществляется путем минимизации функции потерь, представляющей собой взвешенную сумму вкладов от среднеквадратичных ошибок в вычислении энергий, сил и вириалов в сравнении с результатами *ab initio*-расчетов. Ключевую роль при таком способе параметризации играет выбор так называемого тренировочного датасета (ТД) — набора атомных конфигураций и соответствующих им данных *ab initio*-расчетов. Качество ТД определяющим образом влияет на точность потенциала, а его создание является самым трудоемким этапом разработки потенциалов машинного обучения.

Эффективным способом построения ТД является так называемое активное обучение — алгоритмы, позволяющие автоматически отбирать релевантные и статистически независимые обучающие конфигурации в широкой области конфигурационного пространства [23, 32]. В данной работе использовался один из вариантов активного обучения, реализованный в программном пакете DPGEN [33]. В основе алгоритма лежит итеративное повторение следующих трех этапов. На первом этапе с помощью текущего ТД параметризуется ансамбль DP-моделей (как правило 4–5) с одинаковой архитектурой, но различными инициализациями (случайными начальными распределениями параметров). На втором этапе данные модели используются для проведения классического МД-моделирования при различных термодинамических параметрах (температуры, давления, концентрации). Для каждой из таких МД-траекторий происходит контроль точности потенциала путем оценки величины

$$\epsilon_t = \max_i \sqrt{\langle |F_{w,i}(\mathcal{R}_t) - \langle F_{w,i}(\mathcal{R}_t) \rangle|^2 \rangle},$$

где $F_{w,i}(\mathcal{R}_t)$ — сила, действующая в момент времени t в DP-модели с параметрами w на i -й атом в конфигурации $\mathcal{R}_t$; усреднение проводится по ансамблю моделей. Конфигурации, для которых вы-

полняется неравенство $\epsilon_l < \epsilon_t < \epsilon_h$, отбираются в список кандидатов на пополнение ТД. Конфигурации, для которых $\epsilon_t < \epsilon_l$, классифицируются как аккуратно описываемые с заданной точностью, а конфигурации с $\epsilon_t > \epsilon_h$ считаются неудачными. Затем, на третьем этапе для некоторого заданного числа конфигураций из списка кандидатов проводятся *ab initio*-расчеты энергии, межатомных сил и тензоров напряжений. Описанная процедура повторяется, пока не наступает насыщение ТД, т. е. новые конфигурации практически перестают отбираться на этапе МД-моделирования, при этом максимизируется число аккуратных и минимизируется число неудачных конфигураций. Данный алгоритм позволяет сформировать компактный и репрезентативный ТД, содержащий статистически независимые конфигурации для исследуемых термодинамических состояний.

Для запуска процедуры активного обучения с использованием программ DeePMD и DPGEN необходим первичный ТД. Для системы Al–Cu такой ТД был сформирован с использованием моделирования в рамках *ab initio* МД (пакет VASP) для систем Al, Al₅₀Cu₅₀, Cu при температурах 900, 1100, 1400 К, соответствующих равновесным расплавам вблизи линии плавления (ликвидуса). Число молекулярно-динамических шагов для каждой системы составило порядка тысячи.

Молекулярно-динамические симуляции в рамках процедуры активного обучения осуществлялись для расплавов систем Al, Al₇₅Cu₂₅, Al₅₀Cu₅₀, Al₂₅Cu₇₅, и Cu при давлениях (–10, 0, 10) кбар и температурах (800, 1000, ..., 2000) К и для кристаллических конфигураций Al (ГЦК), Al₂Cu (θ -фаза, $I4/mcm$), Al₅₀Cu₅₀ ($C12/m1$), AlCu₃ (β -фаза, $Pm3m$), Cu (ГЦК) (см. точки на диаграмме состояния на рис. 1). Число частиц для каждой из систем оставляло 512; длина МД-траекторий для отбора конфигураций $t_{max} = 25$ пс. Интервал (ϵ_l, ϵ_h) для отбора конфигураций варьировался от (0.2, 0.4) на начальных этапах обучения, до (0.05, 0.15) на конечных. Результатом описанной процедуры явился обучающий *ab initio*-датасет, содержащий 9680 атомных конфигураций и соответствующих им энергий, сил и вириалов. Данные конфигурации репрезентативно отражают поведение расплавов, переохлажденных жидкостей и кристаллов Al–Cu во всем интервале составов для заданных значений температур и давлений. Данные конфигурации были разделены на тренировочный и валидационный датасеты в соотношении 4:1, т. е. 7760 конфигураций использовались для параметризации потенциала (обучения), а 1920 — для

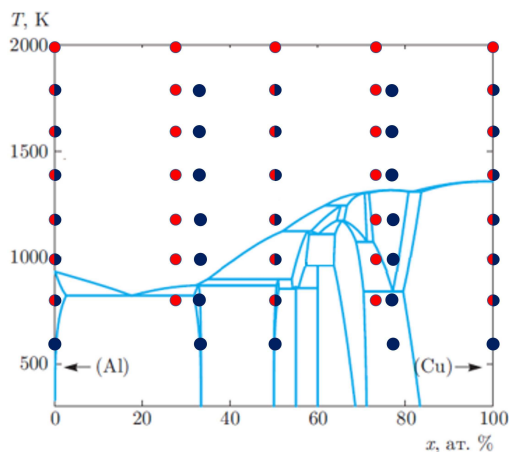


Рис. 1. Фазовая диаграмма системы Al–Cu с указанием температур и составов, используемых для параметризации DP. Красные и синие точки обозначают состояния, рассмотренные для жидких и кристаллических конфигураций соответственно. Фазовая диаграмма адаптирована из работы [4] с данными из [34, 35]

контроля процесса обучения и первичного контроля точности модели (см. ниже).

Расчеты *ab initio* осуществлялись в рамках теории функционала электронной плотности (DFT), реализованной в пакете VASP [36]. Применялись проекционные PAW-псевдопотенциалы и градиентное приближение Пердью–Бурке–Эрнцберга (PBE) [37, 38] для обменно-корреляционного функционала [39]. Для дискретизации зоны Бриллюэна использовалась только Γ -точка. Энергия обрезки плоских волн составляла $E_{cut} = 320$ эВ.

С помощью ТД, полученного в рамках описанной выше процедуры, был параметризован DP. Оптимальные гиперпараметры нейросетей и схема обучения были заимствованы из работы [40].

Для полученной модели проводилась первичная оценка точности путем вычисления для конфигураций из валидационного датасета вектора $(\delta\epsilon, \delta f, \delta v)$ средних отклонений, предсказанных моделью значений энергии, сил и вириалов от значений, полученных методом DFT. Единицы измерения $\delta\epsilon$ и δv — мэВ/атом и мэВ/Å для δf . Как следует из опыта разработчиков пакета DeePMD, удовлетворительным показателем является значение $\delta f < 100$ мэВ/Å. В нашем случае $\delta f \approx 60$ мэВ/Å, $\delta\epsilon \approx 1.8$ мэВ/атом, т. е. полученные потенциалы достаточно точно воспроизводят силы взаимодействия в сравнении с *ab initio*-расчетами. Важно отметить, что разработанные модели демонстрируют хорошую линейную корреляцию между предсказанными значения-

ми энергий, сил и вириалов, и значениями, вычисленными в рамках DFT (рис. 2). Добиться подобной корреляции при использовании традиционных потенциалов, как правило, очень трудно.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ

3.1. Структура и термодинамические свойства сплавов Al–Cu

Следующим этапом тестирования полученного DP является проверка воспроизводимости наблюдаемых свойств сплавов Al–Cu в сравнении с экспериментальными данными, результатами *ab initio*-моделирования и моделированием посредством описанного выше MEAM-потенциала из работы [20]. Одним из простых базовых свойств для такого тестирования является плотность. Была рассчитана зависимость плотности расплавов Al–Cu от концентрации при температуре $T = 1020$ К. Можно заключить, что DP очень хорошо воспроизводит экспериментальные данные из работы [18, 41] (рис. 3). Среднее отклонение от эксперимента составляет 2–3 %, что сопоставимо с точностью, которую обычно дают *ab initio*-расчеты. При этом точность MEAM-потенциала заметно ниже; среднее отклонение от экспериментальных данных около 5 %.

Также были рассчитаны температурные зависимости плотности для расплавов $\text{Al}_{30\text{wt}\%}\text{Cu}$. Сравнение с экспериментальными данными из работы [18] демонстрирует хорошее согласие для DP со средней ошибкой в 3%; средняя ошибка для MEAM в два раза больше и составляет около 6% (рис. 4). Максимальные погрешности составляют 5.1% и 6.8% соответственно для DP- и MEAM-потенциалов. Кроме того, мы рассчитали зависимости плотности от температуры для чистых Al и Cu (рис. 5) в кристаллическом и жидком состояниях. Для алюминия результаты моделирования сравнивались с результатами работы [42] для плотности кристалла и с работами [43, 44] для расплавов. DP достаточно хорошо описывает плотность алюминия как в жидком, так и в кристаллических состояниях; средние ошибки равны 1.4% и 2% соответственно. MEAM-потенциал точно воспроизводит плотность кристаллического алюминия (ошибка составляет 0.82%), однако дает заметную погрешность для расплавов (3.4%). Сравнение результатов моделирования плотности меди проводилось с работами [41, 45] для жидкости и кристалла соответственно. Результаты моделирования в рамках обеих моделей дают хорошее согласие с экспериментом, однако в данном случае MEAM да-

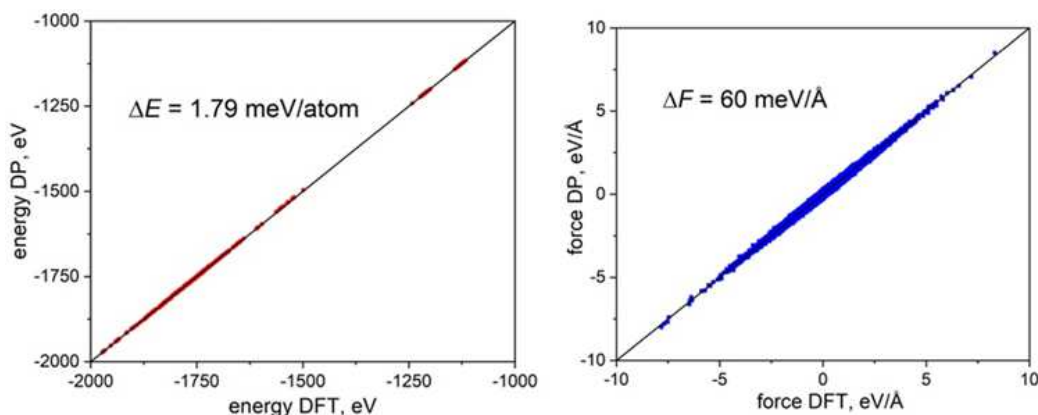


Рис. 2. Корреляционные зависимости энергий и сил, вычисленных *ab initio*-методом (DFT) и с помощью нейросетевого потенциала (DP)

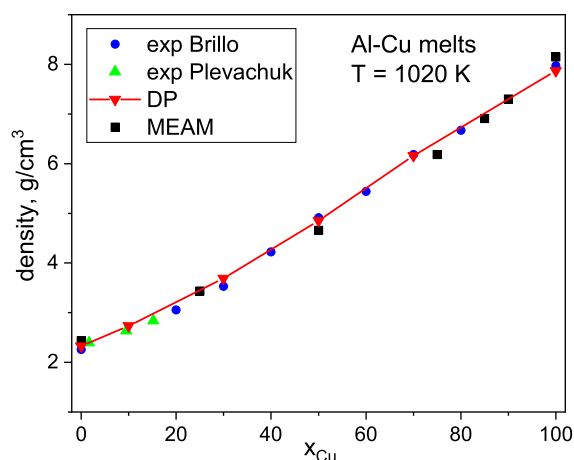


Рис. 3. Зависимость плотности расплавов Al-Cu от концентрации при температуре $T = 1020$ K. Экспериментальные данные заимствованы из работ [18, 41]. Красная кривая приведена для наглядности и представляет собой сплайн-интерполяцию расчетных данных DP

ет немного более высокую точность: средние ошибки для кристалла составляют 3.5% и 1.2% для DP- и MEAM-потенциалов, а для расплава 3.7% и 0.7% соответственно.

Следующим шагом явилось изучение структуры расплавов в сравнении с экспериментальными данными. Основным источником экспериментальной информации о структуре расплавов является статический структурный фактор $S(q)$, определяемый из экспериментов по рассеянию. Мы рассчитали $S(q)$ для расплава $\text{Al}_{60}\text{Cu}_{40}$ при температуре $T = 973$ K. Сравнение расчетных кривых и экспериментальных данных из работы [46] демонстрирует очень хорошее согласие для DP; MEAM же демонстрирует заметное смещение положения и высоты

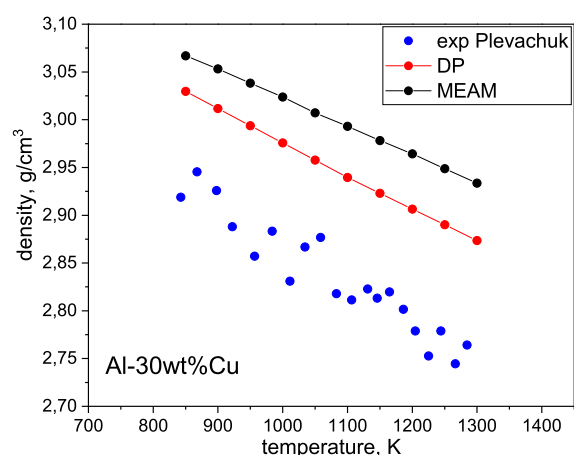


Рис. 4. Температурная зависимость плотности расплава $\text{Al}_{30\text{wt\%Cu}}$. Синие точки — экспериментальные данные из работы [18]

основного пика $S(q)$, что, в частности, свидетельствует о завышенных значениях среднего межатомного состояния и координационного числа (рис. 6).

Еще одной важной характеристикой многокомпонентных расплавов является энтальпия смешения, знак и величина которой определяют характер и интенсивность химического взаимодействия между компонентами. Мы рассчитали концентрационные зависимости энтальпии смешения при температуре $T = 1423$ K, соответствующей жидкому состоянию для всех составов. Во всем диапазоне концентраций наблюдаются отрицательные значения энтальпий. Кривая $\Delta H_{mix}(x)$ асимметрична, ее минимум приходится на область $x_{\text{Cu}} \approx 0.75$ ат %, где наблюдается образование самого тугоплавкого интерметаллида AlCu_3 . Сравнение DP-моделирования

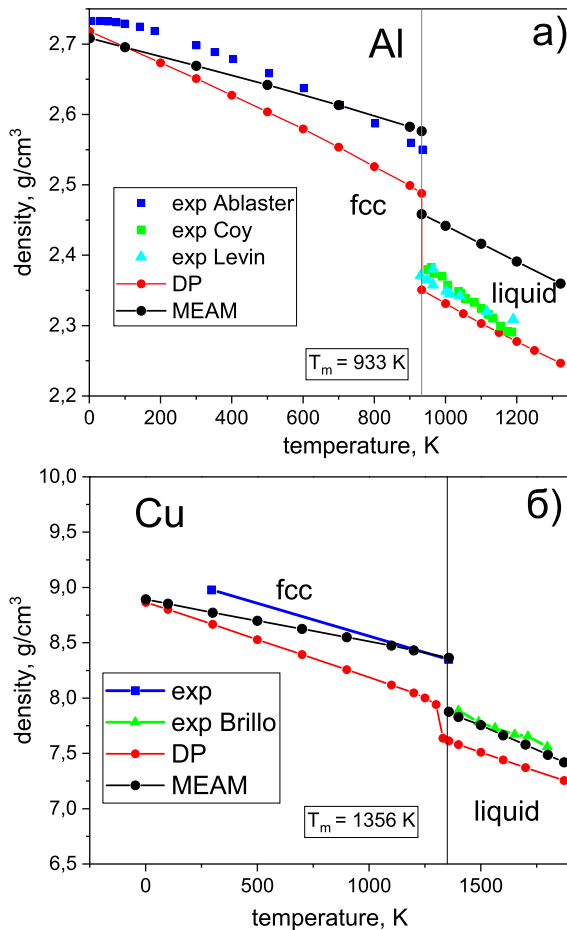


Рис. 5. Температурные зависимости плотности алюминия (а) и меди (б) в кристаллическом и жидком состояниях. Экспериментальные данные для алюминия и меди заимствованы из работ [42–44] и [41, 45] соответственно

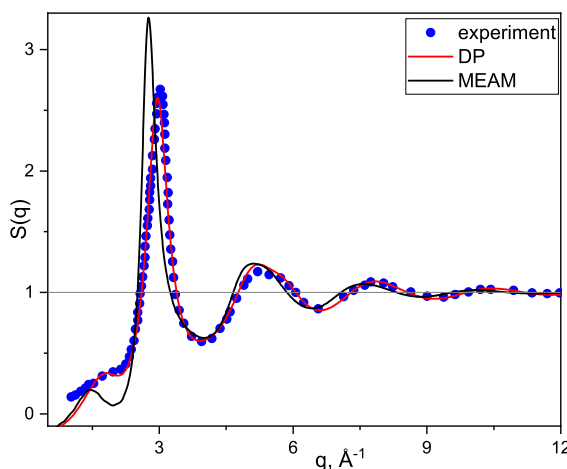


Рис. 6. Структурный фактор расплава $\text{Al}_{60}\text{Cu}_{40}$ при температуре $T = 973$ K. Синие точки – экспериментальные результаты из работы [46], красная кривая – расчет с помощью DP, черная кривая – MEAM

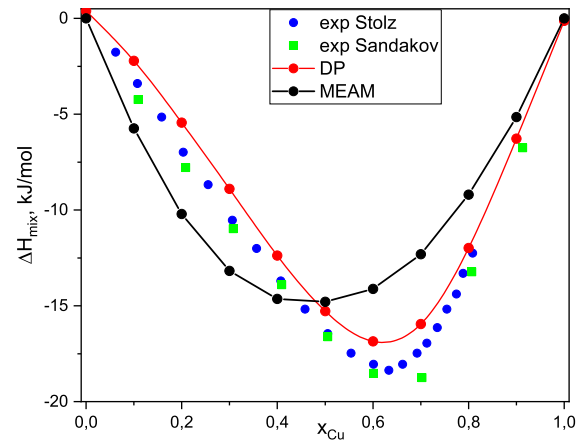


Рис. 7. Расчетные и экспериментальные концентрационные зависимости энтальпий смешения для расплавов Al–Cu при температуре $T = 1423$ K. Экспериментальные данные заимствованы из работ [47, 48]

с экспериментальными данными из работ [47, 48] демонстрируют хорошее согласие (рис. 7). Заметное отклонение от экспериментальных данных наблюдается в области $x_{\text{Cu}} \approx 0.5-0.8$ ат. %, где имеет место наиболее интенсивное химическое взаимодействие между компонентами, что выражается, в частности, в образовании большого числа интерметаллических соединений (рис. 7). При этом максимальное отклонение между теорией и экспериментом составляет 35%, а средняя ошибка 12.6%. Кривая $\Delta H_{\text{mix}}(x)$, полученная с помощью MEAM-потенциала, демонстрирует качественно иное поведение: кривая почти симметрична, а ее минимум наблюдается при $x_{\text{Cu}} \approx 0.45$ ат. %; среднее отклонение от эксперимента составляет 21%, а максимальное отклонение — 51.4%.

Одним из свойств, часто используемых для верификации и параметризации межчастичных потенциалов, является уравнение состояния твердых фаз, например, зависимости $E(V)$ энергии кристалла от его объема. Такие уравнения сравнительно легко могут быть рассчитаны в рамках теории функционала плотности. На рис. 8 и 9 представлено сравнение кривых $E(V)$, рассчитанных с помощью DP, MEAM и DFT. На рисунках видно, что DP-потенциал хорошо воспроизводит *ab initio*-кривые для обоих соединений. Хорошее согласие равновесной энергии E_0 для DFT и DP связано с тем, что DFT-расчеты проводились с использованием тех же параметров, что и при параметризации DP. Для MEAM сравнение данного параметра не имеет смысла, поскольку абсолютное значение энергии существенно зависит от метода расче-

Таблица 1. Параметры уравнения состояния Берча–Мурнагана для Al_2Cu и AlCu_3

	Al_2Cu			AlCu_3		
	MEAM	DP	AIMD	MEAM	DP	AIMD
E_0 , eV	−3.48	−3.92	−3.91	—	−3.93	−3.94
V_0 , Å ³	15.8	14.9	15.02	—	12.5	12.6
B_p	−1.27	−1.3	0.18	—	−0.85	−0.5
B_0 , GPa	78.5	125.01	102.3	—	144.4	138.5

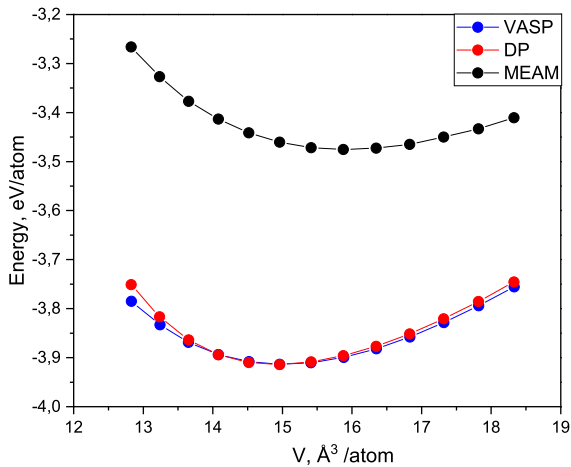


Рис. 8. Уравнение состояния $E(V)$ для соединения Al_2Cu

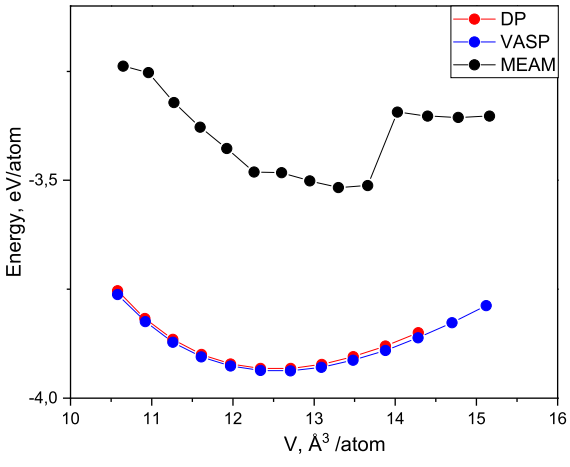


Рис. 9. Уравнение состояния $E(V)$ для соединения AlCu_3

та. Среднее отклонение от результатов DFT для DP-потенциала составляет 0.2% для обоих соединений. MEAM-потенциал хуже описывает *ab initio*-данные. В частности для AlCu_3 кривая имеет скачкообразный характер, который связан с нестабильностью данной структуры в ходе релаксации, которая выражается в образовании двойников и других дефектов, а также изменении симметрии исходной структуры. Приведенные на рис. 8 и 9 расчетные кривые были аппроксимированы уравнением Берча–Мурнагана [49], параметры которого соответствуют равновесной энергии E_0 , равновесному объему V_0 , объемному модулю B_0 и его производной по давлению B_p (см. табл. 1).

3.2. Транспортные свойства расплавов Al–Cu

Расчет количественных характеристик атомного транспорта в жидкостях, таких как вязкость и коэффициенты диффузии, является одной из важнейших задач теории конденсированного состояния. Зависимости значений транспортных свойств от температуры, давления, концентрации и других термодинамических параметров позволяют извлечь цен-

ную информацию об эволюции структуры и атомарной динамики расплавов, необходимую для изучения таких фундаментальных процессов, как стеклообразование и нуклеация, а также для построения и верификации модельных теорий. Расчет транспортных коэффициентов имеет важное значение для верификации межчастичных потенциалов, поскольку их значения вязкости и коэффициентов диффузии очень чувствительны к точности описания межатомного взаимодействия. В рамках такой верификации были проведены расчеты вязкости и коэффициентов диффузии расплавов Al–Cu с использованием DP- и MEAM-потенциалов.

Коэффициент диффузии D рассчитывался с помощью формулы Стокса–Эйнштейна, согласно которой $D = \text{MSD}/6t$ при $t \rightarrow \infty$, где t — время, MSD — среднеквадратичное смещение. На практике расчеты по данной формуле сводятся к определению тангенса угла наклона прямой $\text{MSD}(t)$ при достаточно больших временах, где реализуется диффузионный режим атомной динамики. С вычислительной точки зрения, расчет коэффициентов диффузии требует относительно немного ресурсов, поскольку в MSD это одночастичное свойство и усреднение дан-

ной корреляционной функции осуществляется как по числу частиц, так и по временному окну. Это в принципе позволяет получить достаточную статистику даже в случае использования AIMD. С другой стороны, одночастичные свойства подвержены влиянию гидродинамических флуктуаций, следствием которых являются длинно-временные 'хвосты' временных автокорреляционных функций [50–52], а также зависимость коэффициентов диффузии от размера системы [53, 54]. Данным методом были рассчитаны температурные зависимости коэффициента самодиффузии расплавов $\text{Al}_{80}\text{Cu}_{20}$. Для данного сплава имеются экспериментальные данные из двух независимых источников [55, 56], а также данные компьютерного моделирования в рамках AIMD [57]. На рис. 10 приводится сравнение расчетных и экспериментальных политегов коэффициента самодиффузии. Видно, что результаты, рассчитанные с помощью DP и MEAM, хорошо коррелируют друг с другом и близки к среднему значению, рассчитанному по двум независимым экспериментальным кривым. В то же время, результаты AIMD дают заметно более низкие значения D , которые при этом очень близки к экспериментальным данным из работы [56]. Отметим, однако, что такая корреляция может быть и случайностью, поскольку точность AIMD-расчетов коэффициента самодиффузии может быть сильно ограничена малыми размерами моделируемой системы и малыми расчетными интервалами. Действительно, авторы работы [57] моделировали систему, состоящую из 200 частиц, а временной интервал расчета MSD составлял всего 2 пс. Учитывая упоминаемую выше проблему зависимости D от размера системы и эффекты гидродинамических флуктуаций, это могло значительно сказаться на точности расчетов.

Вязкость расплава вычислялась посредством формулы Грина–Кубо как интеграл от автокорреляционной функции недиагональных элементов тензора вязких напряжений. Тензор напряжений является многочастичным свойством, т.е. для заданной конфигурации системы из N частиц мы имеем только одно значение (а не N значений, как в случае одночастичных свойств типа MSD). По этой причине накопление статистических данных, достаточных для точного вычисления вязкости, является гораздо более сложной задачей. Для решения указанной проблемы мы использовали метод TDM (time decomposition method), предложенный в работе [58]. Суть метода заключается в расчете интегралов Грина–Кубо для десятков независимых траекторий, вычисления среднего и среднеквадра-

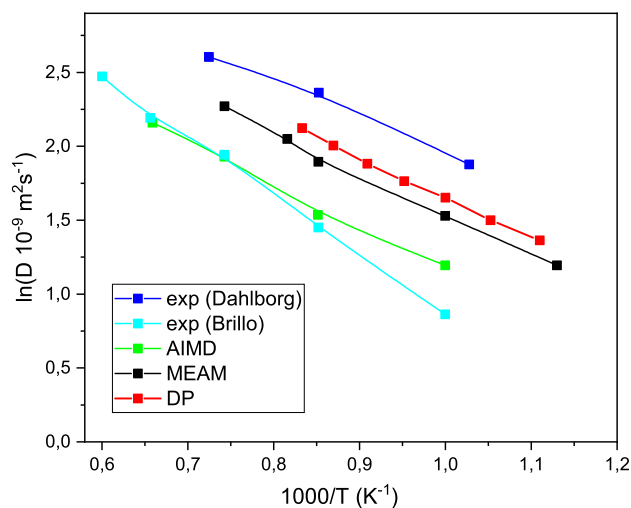


Рис. 10. Температурные зависимости коэффициента самодиффузии расплава $\text{Al}_{80}\text{Cu}_{20}$. Экспериментальные данные заимствованы из работ [55, 56], а данные AIMD из работы [57]

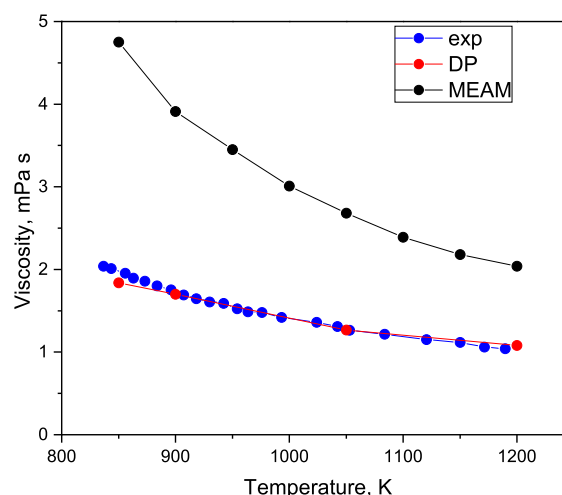


Рис. 11. Температурные зависимости вязкости расплава $\text{Al}_{85}\text{Cu}_{15}$. Синие точки – экспериментальные результаты из работы [18], красные точки – результаты молекулярно-динамического расчета с использованием нейросетевого потенциала, черные точки – расчеты с помощью MEAM-потенциала

тичного отклонения σ по ансамблю траекторий и аппроксимации усредненного интеграла двойной экспоненциальной функцией с весом $1/\sqrt{\sigma}$. Данный метод позволяет достичь достаточно высокой точности расчета при меньших вычислительных затратах. Методом TDM с использованием потенциалов DP и MEAM была рассчитана температурная зависимость вязкости расплава $\text{Al}_{85}\text{Cu}_{15}$. Результаты, полученные с помощью потенциала машинного

обучения, идеально согласуются с экспериментом из работы [18], средняя ошибка всего 0.4%. В то же время результаты МЕАМ отличаются от экспериментальных примерно в два раза (рис. 11).

Также были рассчитаны концентрационные зависимости вязкости при температуре $T = 1500\text{ К}$ (рис. 12). Для этой температуры имеются экспериментальные данные из работ [59, 60]. Результаты обеих экспериментальных работ обнаруживают немонотонную зависимость вязкости с максимумом при $x_{\text{Cu}} \approx 75\text{ ат.}\%$. При этом наблюдается существенное количественное отличие, особенно в области составов $x_{\text{Cu}} = 50\text{--}80\text{ ат.}\%$; разница в абсолютном значении вязкости достигает 50%. Результаты расчетов с помощью DP демонстрируют отличное согласие с экспериментом [60] в области составов, богатых алюминием $x_{\text{Cu}} < 40\text{ ат.}\%$ со средней ошибкой 7.8%, для эксперимента [59] ошибка составляет 23.6%. При увеличении содержания меди отклонение от экспериментальных данных увеличивается и достигает максимума в 30% при $x_{\text{Cu}} \approx 75\text{ ат.}\%$ для данных из [60]; для экспериментальных данных из [59] максимальное отклонение в 58% достигается при $x_{\text{Cu}} \approx 60\text{ ат.}\%$. В области богатой медью расхождение между экспериментом и расчетом затем начинает спадать и для чистой меди составляет 8% и 17% для [60] и [59] соответственно. При этом на расчетной кривой не наблюдается четкого максимума при $x_{\text{Cu}} \approx 75\text{ ат.}\%$; имеется лишь перегиб в окрестности при $x_{\text{Cu}} \approx 75\text{ ат.}\%$. Указанные свойства расчетной кривой устойчивы относительно изменения параметров моделирования и параметров процедуры расчета вязкости. Возможные причины обнаруженного расхождения с экспериментальными данными анализируются в разд. 4.

Концентрационная зависимость вязкости, полученная в моделировании с МЕАМ-потенциалом, демонстрирует линейный рост вязкости с увеличением концентрации меди при $x_{\text{Cu}} < 65\text{ ат.}\%$, который сменяется слабым максимумом при $x_{\text{Cu}} \approx 75\text{ ат.}\%$. При этом МЕАМ демонстрирует существенное расхождение с экспериментом в области, богатой алюминием, со средней ошибкой 19.5% по сравнению с экспериментом [60] и ошибкой 47.8% — с экспериментом [59]. В области увеличения концентрации меди ошибка увеличивается для первого эксперимента и составляет 26%, но значительно уменьшается для второго эксперимента и равна 7.8%. Для чистой меди средние отклонения составляют 19% и 10% для первого и второго экспериментов соответственно.

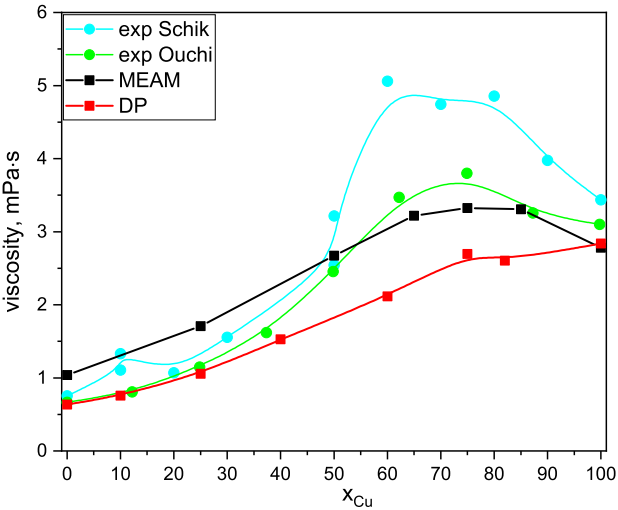


Рис. 12. Концентрационная зависимость динамической вязкости расплавов Al–Cu при $T = 1500\text{ К}$. Экспериментальные данные заимствованы из работ [59, 60]

Таблица 2. Температуры плавления Al, Cu и интерметаллида AlCu_3 , полученные в эксперименте и рассчитанные методом движения межфазной границы с помощью DP и МЕАМ

	Al	Cu	AlCu_3
experiment, K	933	1356	1322
DP, K	875	1050	1220
МЕАМ, K	1055	1345	1052
$\Delta\text{ DP, \%}$	6%	22.5%	8%
$\Delta\text{ МЕАМ, \%}$	13%	0.8%	20.4%

3.3. Температуры плавления

Практически важной задачей является оценка температур плавления металлов и их соединений. Данную задачу можно решить, например, моделируя движение двухфазной границы жидкость–кристалл при различных температурах (см. рис. 13). Температура плавления при этом определяется как температура, при которой скорость движения границы близка к нулю. Данным методом были оценены температуры плавления чистых алюминия и меди, а также единственного конгруэнтно плавящегося интерметаллида AlCu_3 . Сравнение результатов моделирования и экспериментальных данных представлены в табл. 2. Видно, что для алюминия и AlCu_3 наблюдается хорошее согласие эксперимента и DP-моделирования. Отклонения от эксперимен-

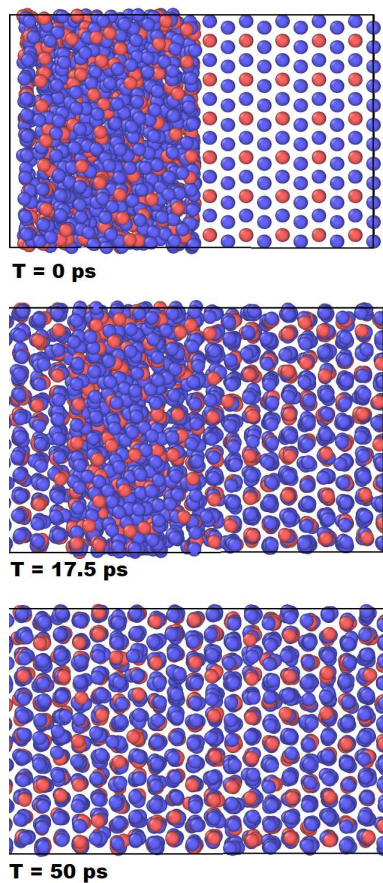


Рис. 13. Движение межфазной границы жидкость–кристалл для соединения AlCu_3

та составляет 6% для алюминия и 8% для интерметаллида AlCu_3 . Согласие для чистой меди заметно хуже: ошибка здесь составляет около 22%. Такая ошибка, вероятно, вызвана неточностью расчетов в рамках теории функционала электронной плотности, на основе которых был построен потенциал. MEAM-потенциал демонстрирует почти идеальное согласие эксперимента с теорией для чистой меди, отклонение составляет лишь 0.8%. Это неудивительно, поскольку температура плавления меди являлась одной из величин, используемых при параметризации MEAM-потенциала. Для чистого алюминия и интерметаллида AlCu_3 MEAM-расчеты заметно менее точные, отклонение от эксперимента здесь составляет 13% и 20.4% соответственно.

3.4. Дефекты упаковки и динамика дислокаций

Одной из сложнейших задач является моделирование свойств и процессов, происходящих при

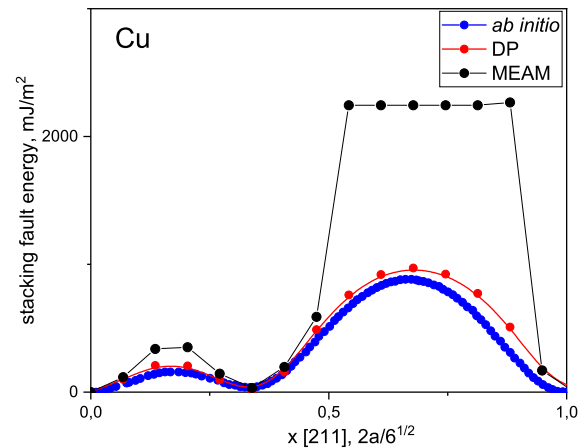


Рис. 14. Энергетика дефектов упаковки для ГЦК-решетки Cu вдоль плоскости легкого скольжения в $[111]$ в направлении $[211]$

пластических деформациях. Атомистическое моделирование таких процессов с помощью потенциалов машинного обучения является настоящим вызовом. Основная проблема такого моделирования – вычислительные ресурсы. Действительно, для реалистичного описания механических свойств необходимо рассматривать системы, состоящие из десятков и сотен миллионов частиц [61–63]. Только такие размеры позволяют задать реалистичные плотности структурных дефектов и получать разумные значения прочности, пределов текучести и других характеристик. Другой важной проблемой является большое количество дефектов, энергетику которых необходимо правильно описывать: дислокации, границы зерен, межфазные границы и т.п. Явное введение таких дефектов в тренировочные конфигурации затруднительно, а иногда и вовсе невозможно, хотя определенные попытки в этом направлении предпринимаются [64, 65].

В связи с этим возникает важный вопрос о переносимости потенциалов машинного обучения, параметризованных на конфигурациях идеального кристалла и жидкости, на моделирование систем со структурными дефектами. Детальное исследование данного вопроса является предметом отдельного исследования, поэтому ниже мы приводим результаты нескольких предварительных тестов.

Первый тест — моделирование энергетики дефектов упаковки, которые являются важнейшими структурными дефектами при пластических деформациях. В качестве объекта была рассмотрена чистая медь, для которой проведено моделирование смещения слоев ГЦК-кристаллов вдоль плоскости

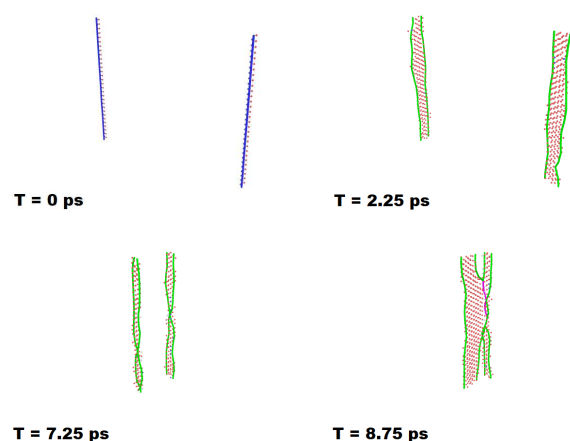


Рис. 15. Релаксация и динамика диполя винтовых дислокаций в ГЦК-решетке Al при моделировании с помощью DP. Синие прямые обозначают линии полных дислокаций, зеленые линии — частичных дислокаций Шокли. Красным цветом обозначены дефектные частицы с ГПУ-подобным локальным окружением, ГЦК-подобные частицы удалены для наглядности

легкого скольжения в $[111]$ в направлении $[211]$. Полученные энергии дефектов упаковки как функции смещения изображены на рис. 14 в сравнении с результатом *ab initio*-расчетов. Видно, что разработанный потенциал позволяет количественно описывать энергетику данных дефектов даже при условии, что соответствующие им конфигурации не вводились явным образом в тренировочный датасет. Аналогичный расчет для MEAM-потенциала дает качественно аналогичную зависимость при относительных смещениях $x < 0.5$ и $x > 0.95$, однако в широкой промежуточной области смещений демонстрирует нефизические значения, связанные с некорректной релаксацией структуры, приводящей к образованию структурных дефектов.

В качестве второго теста была рассмотрена релаксация и динамика движения дислокаций в чистом алюминии. В идеальную ГЦК-решетку, состоящую из 216000 частиц алюминия ($20 \times 20 \times 8$ нм³), была введена пара винтовых дислокаций на расстоянии 10 нм друг от друга. В процессе релаксации такой конфигурации каждая из полных дислокаций распадается на пару частичных дислокаций Шокли, которые начинают сближаться в силу взаимного притяжения и впоследствии аннигилируют (рис. 15). Расщепление полных дислокаций на частичные является типичным для алюминия и других ГЦК-металлов. Притяжение и аннигиляция дислокаций с противоположными векторами

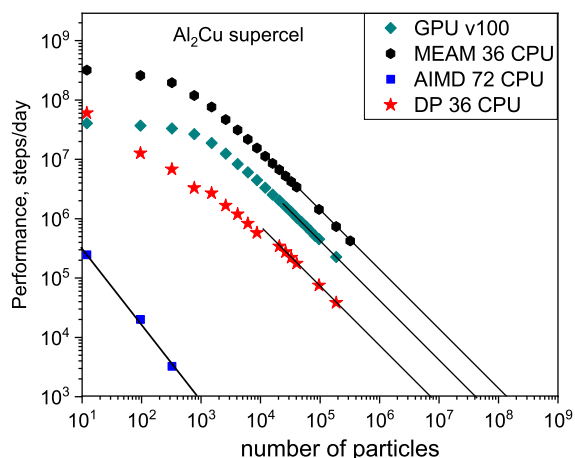


Рис. 16. Вычислительная производительность (МД-шагов/сутки) для DP-, MEAM- и AIMD-вычислений на примере МД-моделирования сверхъячеек кристалла Al_2Cu

Бюргерса, находящихся в одной плоскости скольжения, также соответствует общим представлениям теории структурных дефектов [66]. Аналогичный расчет для MEAM-потенциала дает похожую картину сближения и аннигиляции дислокаций с той существенной разницей, что наблюдается лишь частичное расщепление полных дислокаций на дислокации Шокли.

3.5. Тестирование производительности потенциалов

Производительность (вычислительная эффективность) межатомных потенциалов является важнейшей характеристикой, в некоторых случаях даже более важной, чем точность. Например, при моделировании механических свойств реальных кристаллов ошибка, обусловленная рассмотрением слишком малых размеров системы (и, следовательно, нефизичной плотности дефектов и размеров зерен) вследствие недостаточной производительности может быть гораздо выше, чем неточности в описании межатомных энергий и сил. В связи с этим оптимизация вычислительной эффективности потенциалов машинного обучения является одной из основных задач, стоящих перед разработчиками новых алгоритмов и программных кодов. В последние годы в данном направлении достигнут значительный прогресс. В частности, использование процедуры сжатия DeePMD-потенциалов и разработка эффективных алгоритмов для графических процессоров позволила, как минимум, на порядок повысить вычислительную эффективность [23, 67].

Мы провели сравнение производительности DP-, MEAM- и AIMD-вычислений на примере MD-моделирования кристалла Al_2Cu . Для данного соединения генерировались сверхъячейки $n \times n \times n$ для $n \in (1...30)$, что соответствует системам с числом частиц $n \in (12...324000)$. Для каждой сверхъячейки осуществлялось MD-моделирование в течение 1000 шагов. В качестве меры производительности было выбрано число MD-шагов в сутки (steps/day). AIMD- и MEAM-расчеты осуществлялись только на CPU, а для DP также и на GPU (карты V100). Результаты тестирования приведены на рис. 16. Видно, что для размеров системы $N \sim 10^2 - 10^3$, когда можно непосредственно осуществить все три подхода, производительность DP и MEAM при использовании CPU превышает производительность AIMD на три и четыре порядка соответственно. При больших размерах системы провести AIMD-расчеты становится практически невозможным и можно сравнивать только экстраполированные значения. Производительность DP и MEAM при $N > 10^4$ уменьшается с ростом числа частиц по степенному закону $N^{-\alpha}$, где $\alpha \approx 1$. При этом при использовании CPU MEAM-потенциал оказывается примерно в 20 раз более производительным. Однако использование GPU позволяет существенно повысить производительность DP и даже при использовании одной карты класса V100 добиться отставания от MEAM всего в 2-3 раза.

Важным вопросом, связанным с производительностью, является максимальное число частиц, которое можно моделировать за разумное время с использованием доступных пользователю вычислительных ресурсов. Если условно принять минимально допустимую рабочую производительность в 10^3 шагов в сутки (что сравнимо с типичной производительностью AIMD), то использование 1 карты GPU V100 позволяет моделировать системы, состоящие из порядка 10^7 частиц. Использование же нескольких десятков карт может позволить изучать системы с $N \sim 10^8$, что достаточно, например, для реалистичного моделирования пластических деформаций.

4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Сопоставление полученных вычислительных результатов с экспериментальными данными позволяет заключить, что разработанный DP обеспечивает достаточно высокую точность расчета структурных, термодинамических, транспортных свойств сплавов

Al-Cu как в твердом, так и в жидком состояниях во всем диапазоне составов и широких интервалах температур. При этом точность MEAM при расчете тех же свойств в целом заметно ниже, хотя в некоторых случаях (например, при расчете плотности) удается достичь хорошего согласия с экспериментальными данными. Это отражает общую проблему модельных (в частности EAM и MEAM) потенциалов, в которых небольшое число настраиваемых параметров не позволяет описать широкий спектр различных свойств.

Несмотря на хорошее описание совокупности наблюдаемых свойств, обнаружено, что вычисленные с помощью DP значения температур плавления и вязкости заметно отличаются от эксперимента в области составов богатых медью. Учитывая, что DP очень хорошо воспроизводит *ab initio*-энергии и силы во всем диапазоне составов, можно предположить, что проблемы данных расчетов связаны с недостаточно точным описанием межчастичных взаимодействий в рамках теории функционала электронной плотности. Действительно, для задачи расчета температуры плавления проблема неточности стандартных *ab initio*-методов хорошо известна [68]. Для проверки высказанной гипотезы требуется параметризация DP с использованием других вариантов псевдопотенциала для Cu и/или более точных методов *ab initio*-расчетов. Из множества доступных вариантов наиболее реалистичный с точки зрения соотношения точности и вычислительной затратности, является использование приближения meta-GGA для функционала электронной плотности (например, в варианте r2-SCAN). В целом следует отметить, что разработка потенциалов машинного обучения на основе *ab initio*-методов, выходящих за рамки стандартного GGA DFT-подхода, является актуальной задачей.

Важнейшим результатом является вывод о возможности применения DP-потенциалов, параметризованных с использованием конфигураций, соответствующих расплавам и идеальным кристаллам, для моделирования структурных дефектов в кристаллах и границ раздела фаз (см. результаты в разд. 3.3, 3.4). Как следствие, потенциалы, параметризованные по такой схеме, могут использоваться для моделирования механических свойств реальных кристаллов, процессов, происходящих при их пластических деформациях, а также фазовых превращениях. Природа такой переносимости до конца не понятна, но вероятней всего она связана с определенной структурной схожестью между конфигурациями, возникающими в расплавах

и перегретых кристаллах, и конфигурациями, возникающими на границах раздела фаз жидкость–кристалл и в окрестности структурных дефектов кристаллической решетки. Вопрос об универсальности и границах применимости такой переносимости также остается пока открытым. В целом вопрос о переносимости потенциалов машинного обучения является крайне интересным и малоизученным, хотя в последнее время его исследованию уделяется все больше внимания [15–17].

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной работе мы провели сравнительный анализ межчастичных потенциалов для атомистического моделирования сплавов Al–Cu. Рассмотрены два типа потенциалов: широко используемая модель погруженного атома (в наиболее современном варианте 2NN-MEAM) и нейросетевой потенциал DeePMD, принадлежащий к перспективному классу потенциалов машинного обучения. В ходе анализа мы сравнивали точность, производительность и переносимость указанных моделей. Точность моделей определялась точностью расчета наблюдаемых свойств сплавов Al–Cu в сравнении с имеющимися экспериментальными данными. Под переносимостью в данном случае понималась способность потенциала моделировать конфигурации, существенно отличающиеся от тех, которые были использованы в ходе его параметризации.

Анализ полученных результатов позволяет сделать следующие выводы.

1. Потенциалы глубокого машинного обучения позволяют с достаточно высокой точностью моделировать широкий спектр свойств металлических сплавов в различных термодинамических состояниях, а также количественно описывать фазовые превращения. В то же время, потенциалы погруженного атома, в силу простой функциональной формы и небольшого числа варьируемых параметров, способны адекватно описывать лишь ограниченный набор свойств и состояний.

2. Точность межчастичных потенциалов, параметризуемых с использованием *ab initio*-расчетов, ограничивается используемыми квантово-механическими приближениями. При этом оказывается, что разные наблюдаемые свойства в различной степени чувствительны к точности описания межчастичных взаимодействий. Так, для сплавов Al–Cu оказалось, что в области богатой медью, температуры плавления и вязкость за-

метно хуже описываются нейросетевым потенциалом, параметризованным с помощью стандартных DFT-расчетов с использованием GGA PBE-функционалов и PAW-псевдопотенциалов. Поиск оптимальных *ab initio*-приближений для лучшего описания данных свойств является актуальной задачей.

3. Потенциал машинного обучения, параметризованный с использованием только конфигураций, соответствующих жидкости и идеальным кристаллам, способен правильно описывать энергетику структурных дефектов и межфазных поверхностей в сплавах Al–Cu. Такая переносимость потенциалов является важным свойством в контексте их применения для моделирования пластических деформаций и фазовых превращений.

4. Использование потенциалов на основе нейронных сетей при моделировании на современных графических процессорах позволяет добиться увеличения производительности расчетов на, как минимум, 4 порядка по сравнению с *ab initio*-вычислениями (а при размерах системы более 10^3 частиц — гораздо больше). Важно, что достигаемая при этом производительность практически одного порядка с производительностью MEAM.

5. Можно заключить, что использование потенциалов машинного обучения является гораздо более эффективным по сравнению с моделями семейства EAM как с точки зрения соотношения точности и производительности, так и в контексте возможности моделирования широкого спектра свойств и термодинамических состояний.

Финансирование. Исследование выполнено при поддержке Российского научного фонда, грант № 22-22-00506, <https://rscf.ru/project/22-22-00506/>. Молекулярно-динамические расчеты выполнены на вычислительном кластере «Уран» на базе ИММ УрО РАН и суперкомпьютере Межведомственного суперкомпьютерного центра РАН.

ЛИТЕРАТУРА

1. Y. Mishin, Acta Mater. **214**, 116980 (2021).
2. Г. Э. Норман, С. В. Стариков, В. В. Стегайлов, ЖЭТФ **141**, 910 (2012).
3. E. M. Kirova, G. E. Norman, and V. V. Pisarev, Comput. Mater. Sci. **172**, 109367 (2020).

4. Р. М. Хуснутдинов, А. В. Мокшин, С. Г. Меньшикова, А. Л. Бельтюков, В. И. Ладьянов, ЖЭТФ **149**, 9941004 (2016).
5. R. M. Khusnutdinoff, R. R. Khairullina, A. L. Belyukov, V. I. Lad'yanov, and A. V. Mokshin, J. Phys.: Cond. Matt. **33**, 104006 (2021).
6. B. N. Galimzyanov and A. V. Mokshin, Int. J. Sol. Struct. **224**, 111047 (2021).
7. M. Ceriotti Michele, C. Clementi, and O. A. von Lilienfeld, J. Chem. Phys. **154**, 160401 (2021).
8. Y. Mishin, Acta Materialia **214**, 116980 (2021).
9. J. A. von Lilienfeld and K. Burke, Nature Communications **11**, 4895 (2020).
10. J. Behler and G. Csányi, Eur. Phys. J. B **94**, 142 (2021).
11. V. L. Deringer, J. Phys.: Energy **2**, 041003 (2020).
12. N. Mueller, A. Hernandez, and Wang Chuhong, J. Chem. Phys. **152**, 050902 (2020).
13. V. L. Deringer, M. A. Caro, and G. Csányi, Advanced Materials **31**, 1902765 (2019).
14. J. Behler, J. Chem. Phys. **145**, 170901 (2016).
15. И. А. Балякин, Р. Е. Рыльцев, Н. М. Щелкачев, Письма в ЖЭТФ **117**, 377384 (2023).
16. M. Benoit, J. Amodeo, S. Combettes, I. Khaled, A. Roux, and J. Lam, Mach. Learn.: Sci. Technol **2** 025003 (2021).
17. B. Monserrat, J. G. Brandenburg, E. A. Engel, and Bingqing Cheng, Nat Commun **11**, 5757 (2020).
18. Y. Plevachuk, V. Sklyarchuk, A. Yakymovych, S. Eckert, B. Willers, and K. Eigenfeld., Metall. Mater. Trans. A **39**, 3040 (2008).
19. B.-J. Lee and M. I. Baskes, Phys. Rev. B **62**, 8564 (2000).
20. A. Mahata, T. Mukhopadhyay, and Mohsen Asle Zaeem, Comput. Mater. Sci. **201**, 110902 (2022).
21. E. Asadi, M. Asle Zaeem, S. Nouranian, and M. I. Baskes, Acta Materialia **86**, 169181 (2015).
22. B.-J. Lee, J.-H. Shim, and M. I. Baskes, Phys. Rev. B **68**, 144112 (2003).
23. T. Wen, L. Zhang, H. Wang, E. Weinan, and D. J. Srolovitz, Materials Futures **1**, 022601 (2022).
24. Niu Haiyang, L. Bonati, P. M. Piaggi, and M. Parrinello, Nature Commun. **11**, 2654 (2020).
25. G. M. Sommers, A. M. F. Calegari, Zhang Linfeng, Wang Han, and R. Car, Phys. Chem. Chem. Phys. **22**, 10592 (2020).
26. T. E. Gartner, Zhang Linfeng, P. M. Piaggi, R. Car, A. Z. Panagiotopoulos, and P. G. Debenedetti, PNAS **117**, 26040 (2020).
27. I. A. Balyakin, S. V. Rempel, R. E. Ryltsev, and A. A. Rempel, Phys. Rev. E **102**, 052125 (2020).
28. T. Wen, Wang Cai-Zhuang, M. J. Kramer, Sun Yang, Ye Beilin, Wang Haidi, Liu Xueyuan, Zhang Chao, Zhang Feng, Ho Kai-Ming, and Wang Nan, Phys. Rev. B **100**, 174101 (2019).
29. L. Tang, Z. J. Yang, T. Q. Wen, K. M. Ho, M. J. Kramer, C. Z. Wang, Phys. Chem. Chem. Phys. **22**, 18467 (2020).
30. Zhang Linfeng, Wang Han, R. Car, and E. Weinan, J. Chem. Phys. **152**, 154701 (2021).
31. C. M. Andolina, P. Williamson, and W. A. Saidi, J. Chem. Phys. **126**, 236001 (2020).
32. E. V. Podryabinkin, A. V. Shapeev, Comput. Mater. Sci. **140**, 171 (2017).
33. Y. Zhang et al., Comput. Phys. Commun. **253**, 107206 (2020).
34. V. T. Witusiewicz, U. Hecht, S. G. Fries, and S. Rex, J. Alloys Comp. **385**, 133 (2004).
35. C. W. Bale, P. Chartrand, S. A. Degterov et al., Calphad **26**, 189 (2002).
36. G. Kresse and J. Furthmuller, Phys. Rev. B **54**, 11169 (1996).
37. J. P. Perdew, J. A. Chevary, S. H. Vosko, K. A. Jackson, M. R. Pederson, D. J. Singh, and C. Fiolhais, Phys. Rev. B **46**, 6671 (1992).
38. J. P. Perdew and Wang Yue, Phys. Rev. B **46**, 6671 (1992).
39. G. Kresse and D. Joubert, Phys. Rev. B **59**, 1758 (1999).
40. R. E. Ryltsev and N. M. Chtchelkatchev, J. Mol. Liq. **349**, 118181 (2022).
41. J. Brillo and I. Engry, Z. Metallkd. **95**, 691 (2004).
42. J. W. Arblaster, ASM International Materials Park **684**, (2018).
43. E. S. Levin, G. D. Ayushina, and P. V. Gel'd, High Temperature **6**, 416418 (1968).
44. W. J. Coy and R. S. Mateer, Trans. Amer. Soc. Metals **58**, 99 (1955).

45. A. A. Aleksashkina, M. M. Demin, V. I. Mazhukin, Keldysh Institute preprints **066**, (2018).
46. S. Y. Wang, M. J. Kramer, M. Xu, S. Wu, S. G. Hao, D. J. Sordellet, K. M. Ho, and C. Z. Wang, Phys. Rev. B **79**, 144205 (2009).
47. U. K. Stolz, I. Arpshofen, F. Sommer and B. Predel, J. Phase Equilibria **14**, 473 (1993).
48. V. M. Sandakov, Esin Yu. O., P. V Gel'd, V. D. Shantarin, Russ. J. Phys. Chem. **45**, 1150 (1971).
49. F. Birch, Phys. Rev. **71**, 809 (1947).
50. R. E. Ryltsev and N. M. Chtchelkatchev. J. Chem. Phys. **141**, 124509 (2014).
51. A. McDonough, S. P. Russo, and I. K. Snook, Phys. Rev. E **63**, 026109 (2001).
52. M. H. Ernst, Phys. Rev. E **71**, 030101 (2005).
53. In-Chul Yeh and G. Hummer, J. Phys. Chem. B **108**, 15873 (2004).
54. V. I. Deshchenya, N. D. Kondratyuk, A. V. Lankin, and G. E. Norman, Russ. J. Phys. Chem. A **96**, 556 (2022).
55. U. Dahlborg, M. Besser, M. J. Kramer, J. R. Morris, and M. Calvo-Dahlborg, Physica B **412**, 50 (2013).
56. J. Brillo, S. M. Chathoth, M. M. Koza, and A. Meyer, Appl. Phys. Lett. **93**, 121905 (2008).
57. W. Y. Wang, J. J. Han, H. Z. Fang, J. Wang, Y. F. Liang, S. L. Shang, Y. Wang, X. J. Liu, L. J. Kecskes, S. N. Mathaudhu, X. Hui, and Z. K. Liu, Acta Materialia **97**, 75 (2015).
58. C. Rey-Castro and L. F. Vega, J. Phys. Chem. B **110**, 14426 (2006).
59. M. Schick, J. Brillo, I. Egry, and B. Hallstedt, J. Mater. Sci. **47**, 8145 (2012).
60. N. Ouchi et al., Proc. 9th Asian Thermophysical Properties Conference, Beijing, China, 109301 (2010).
61. A. V. Karavaev, V. V. Dremov, and F. A. Sapozhnikov, J. Nuclear Materials **524**, 149 (2019).
62. V. V. Dremov, P. V. Chirkov, and A. V. Karavaev, Sci. Rep. **11**, 934 (2021).
63. V. V. Dremov and A. V. Karavaev, Procedia Manufacturing **37**, 599 (2019).
64. D. Marchand, A. Jain, A. Glensk, and W. A. Curtin, Phys. Rev. Materials **4**, 103601 (2020).
65. D. Marchand and W. A. Curtin, Phys. Rev. Materials **6**, 053803 (2022).
66. К. Ю. Окишев, *Кристаллохимия и дефекты кристаллического строения: учебное пособие*, Изд-во ЮУрГУ (2007).
67. Guo Zhuoqiang et al., Proc. 27th ACM SIGPLAN Symp. on Principles and Practice of Parallel Programming (2022).
68. F. Dorner, Z. Sukurma, C. Dellago, and G. Kresse, Phys. Rev. Lett. **121**, 195701 (2018).