

基于晶体图卷积神经网络的金属表面能预测框架

周麟铭¹, 朱广宇¹, 吴勇军^{1,2}, 黄玉辉¹, 洪子健^{1,2}

(1. 浙江大学材料科学与工程学院, 杭州 310027;

2. 唐仲英传感材料及应用研究中心, 浙江大学硅材料国家重点实验室, 杭州 310027)

摘 要: 表面能是晶体最重要的物理化学性质之一, 对于表面催化、表面吸附、外延生长、结晶形核、枝晶生长等具有十分重要的影响。快速计算和预测晶体表面能有助于加速催化、电池、合金等材料的设计和优化。本工作采用基于数据驱动的机器学习算法, 构建了晶体图卷积神经网络框架并应用于金属表面能预测, 实现了从晶体结构到表面能的快速准确预测。使用基于物理理论的将表面尺寸与晶体的原子以及成键特征相耦合的表面表示方法时, 模型表现最佳, 平均绝对误差值小于 $0.002 \text{ eV}/\text{\AA}^2$ 。与第一性原理计算相比, 该框架计算时间缩短了约 5 个数量级。最后, 还进一步探讨了其在硅酸盐等复杂体系的普适性和未来的拓展方向, 以期能为机器学习预测表面能的提供参考。

关键词: 机器学习; 材料表面; 表面能; 图神经网络

中图分类号: O731; TP391.7 文献标志码: A 文章编号: 0454-5648(2023)02-0389-08

网络出版时间: 2023-01-17



A Framework for Metal Surface Energy Prediction Based on Crystal Graph Convolutional Neural Network

ZHOU Linming¹, ZHU Guangyu¹, WU Yongjun^{1,2}, HUANG Yuhui¹, HONG Zijian^{1,2}

(1. School of Materials Science and Engineering, Zhejiang University, Hangzhou 310027, China;

2. Cyrus Tang Center for Sensor Materials and Applications, State Key Laboratory of Silicon Materials, Zhejiang University, Hangzhou 310027, China)

Abstract: Surface energy is one of the most important physical and chemical properties for crystals, which has a significant impact on surface catalysis, surface adsorption, epitaxial growth, nucleation, and dendrite growth. Rapid calculation and prediction of crystal surface energies can favor accelerating the design and optimization of catalysis materials, battery materials, and alloys. In this paper, a data-driven machine learning algorithm was proposed with a crystal graph convolutional neural network framework for the prediction of metal surface energy from the crystal structure. Using a physics-based surface representation that couples the surface dimensions to the atomic and bonding features of the crystal, we obtained an MAE value of less than $0.002 \text{ eV}/\text{\AA}^2$, which surpasses other math-based surface models. Compared with the first-principles calculation, the computation time is reduced by approximately 5 orders of magnitude. In addition, we discussed the main challenges and solutions towards the surface energy prediction of more complicated systems such as Silicates. It is expected that this work could be a paradigm for the surface energy prediction with machine learning.

Keywords: machine learning; material surface; surface energy; graph neural network

表面能是材料最重要的物理化学性质之一。它反应了一个材料表面的原子/分子因为不完全键合

而产生的额外系统能量。表面能深刻地影响着材料的一系列性质, 例如催化性能^[1-2]、疏水性^[3-4]、气

收稿日期: 2022-09-28。 修订日期: 2022-11-14。

基金项目: 中央高校基本科研业务费(226-2022-00167); 浙江大学“百人计划”。

第一作者: 周麟铭(1998—), 男, 博士研究生;

朱广宇(2001—), 男, 本科生。

通信作者: 吴勇军(1974—), 男, 博士, 教授;

洪子健(1989—), 男, 博士, 研究员。

Received date: 2022-09-28. Revised date: 2022-11-14.

First author: ZHOU Linming (1998—), male, Doctoral candidate.

ZHU Guangyu (2001—), male, Undergraduate.

E-mail: linming.zhou@zju.edu.cn; gy_zhu@zju.edu.cn

Correspondent author: WU Yongjun (1974—), male, Ph.D., Professor;

HONG Zijian (1989—), male, Ph.D., Professor.

E-mail: yongjunwu@zju.edu.cn; hongzijian100@zju.edu.cn

体吸附性能^[5–7]、形核晶面^[8–9]和枝晶生长^[10–12]等。对晶体各取向晶面的表面能的准确预测具有极其重要的理论和实践意义。传统的晶体表面能计算多基于第一性原理计算,通过计算平板(Slab)模型和块体模型之间的能量差从而推导出其表面能。该方法具有模型简单、普适性强等优点,获得了广泛的应用。然而,在现代材料研发体系中,需要计算的材料种类和数目较多,传统的第一性原理计算(DFT)方法计算资源消耗巨大、计算时间过长,亟需开发新方法来进行快速、高通量的计算。

基于大数据的机器学习方法正在成为材料科学和计算机科学两门学科交叉领域热门的方向。通过对材料数据集中的特征模式的识别,提取出材料大数据中隐含规律和相关性,从而预测出具有优异性能的新材料。受益于信息技术的突飞猛进和计算机性能的不断提高,材料数据的存储管理技术、高通量高性能计算技术的升级使得高通量 DFT 成为可能,从而产生机器学习所需要的数据集。而机器学习方法的引入不仅可以解决传统 DFT 方法计算资源消耗巨大、计算时间过长的问题,并更有可能摆脱时间复杂度的限制,构建超大表面,助力表面吸附、催化等领域的发展。例如,2018 年,Toyao 等^[13]利用 4 种回归方法、随机森林回归、额外树回归和梯度提升回归,开发了一种简单有效的机器学习模型。采用 12 个描述符来预测 CH₄ 类物质在 Cu 基合金上的吸附能。结果表明,研究中采用的机器学习方法可以很好地预测 CH₄ 的吸附能,平均为 0.24~0.27 eV,并且在 4 种回归方法中,额外树回归在预测吸附能方面表现最佳。2020 年,Williams 等^[14]设计了随机森林算法,结合开源材料数据库,建立机器学习模型以预测催化剂中氨的转化率,采用 RuMK 催化剂为实验材料,准确预测了 4 种性能最佳的新型催化剂(M=Y、Sr、Sc 和 Mg)与其吸附性能,误差率在 10%以内。然而,这些传统的机器学习方法模型通常需要人工进行繁杂的特征工程,这大大限制了传统模型的应用范围。

图神经网络(GNN)是一种针对图数据结构的神经网络模型,主要用于非 Euclid 结构的数据。图神经网络在诸如计算机视觉、自然语言处理、物体检测等领域研究颇丰,知名的图神经网络模型包括 MEGNet^[15]、MPNN^[16]及其衍生模型(DimeNet^[17]、GeoCGNN^[18])等。图神经网络因为能够自动选取特征,所以能够端对端地将原子结构映射至目标属性,

这种标准化的特性在材料科学研究上(包括性能预测和新结构发现^[15,19]等)具有非常巨大的应用潜力。2018 年,Xie 等^[20]开发了一个晶体图卷积神经网络框架(CGCNN),相较于其他图神经网络,它可以直接从晶体中的原子连接学习材料特性,提供了晶体材料性质通用和可解释的预测。该方法具有速度快、精度高、适用性强、可解释强、节省特征工程等优点。Ahmad 等^[21]采用 CGCNN 学习了固态电解质,预测了具有较好枝晶抑制性能的固态电解质。Zhou 等^[22]采用 CGCNN 算法,从 70 多万种无机材料中预测了 70 多个锌电池正极材料。

通过多种方法将表面特征引入 CGCNN 网络,利用这些改动后的 CGCNN 模型对金属表面能进行预测,并选择其中最优的模型进行超参数优化、元素精度分析以及大表面预测分析。研究表明,使用基于物理理论的将表面尺寸与晶体的原子以及成键特征相耦合的表面表示方法时,模型表现最佳,平均绝对误差(MAE)可以达到 1.8 meV/Å²,并且模型整体在各元素与大表面上预测精度良好。

1 计算方法及网络框架

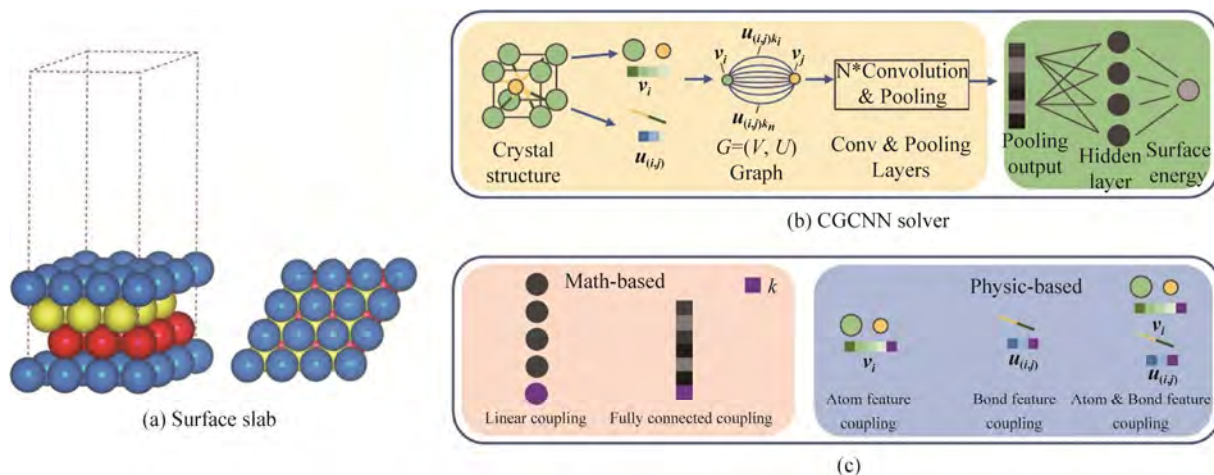
1.1 获取 DFT 数据集

本研究的数据集包含 Cu、Ni 等共 30 种金属元素的常见晶体结构,原始结构获取自 Materials Project 数据库^[23–24],同时,计算表面能流程中所需要的晶胞结构优化、Slab 结构(图 1a)优化均使用 GPAW 软件包^[25–26]完成。GPAW 是 Python 编写的基于投影缀加波方法^[27–28]并依赖原子模拟环境(ASE)^[29–30]的密度泛函理论计算器。在数据集的准备过程中,统一采用了平面波的形式来表示波函数,使用 PBE 泛函^[31],并对 Brillouin 区采样采用 Monkhorst-Pack 方法。计算流程如下:首先,对金属晶胞进行结构优化,设定 Brillouin 区 k 点为 $8 \times 8 \times 8$,结构弛豫判断依据为原子间作用力小于 0.01 eV/Å,动能截断为 520 eV;其次,对于 Slab 模型,其构建工作使用 ASE 完成并对 XY 方向的进行了相对应的扩胞,晶面取向为(100)面,真空层厚度设定为 10 Å。设定表面尺寸从 $p(1 \times 1)$ 到 $p(4 \times 4)$,Slab 层范围从 1 到 4,设定 Brillouin 区 k 点为 $4 \times 4 \times 1$,结构弛豫判断依据为原子间作用力小于 0.05 eV/Å,动能截断为 520 eV。

最终获取的数据集包含 1 482 个表面测试样本,数据集对于表面尺寸以及表面能的分布情

况如图 2 显示。如图 2 所示, 晶体表面尺寸分布整体近似呈正态分布。低表面能样本较多, 高表

面能样本较少, 可能会对模型的学习造成一定的影响。



v_i and v_j represent atom feature; $u_{(ij)k_i}$ and $u_{(ij)k_n}$ represent bond feature; k represents size vector of slab.

图 1 面心立方结构的 Slab 模型以及基于 CGCNN 的表面能计算网络示意图

Fig. 1 Slab model of a FCC crystal and the schematic diagram of surface energy calculation network based on CGCNN

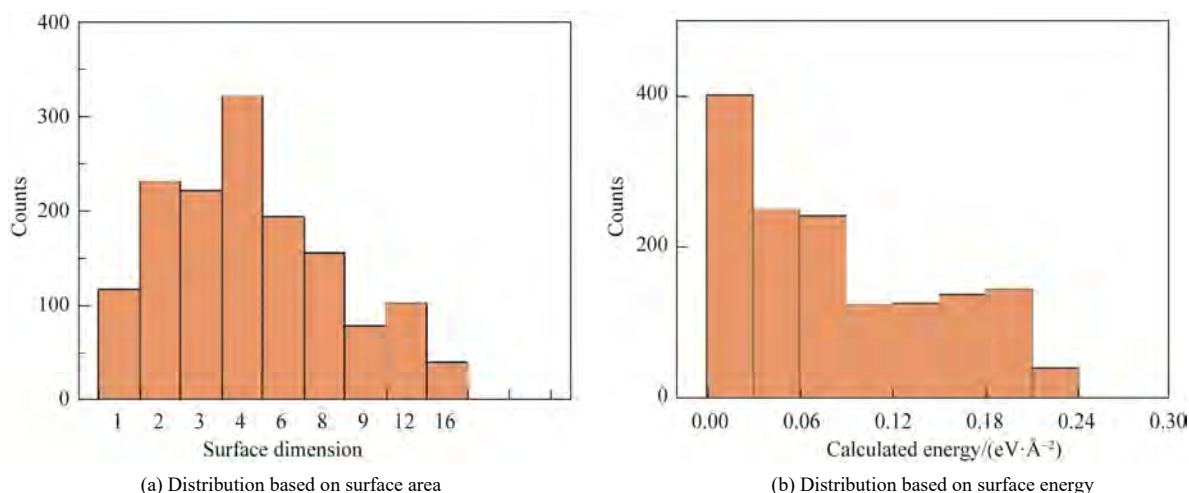


图 2 DFT 计算数据分布

Fig. 2 Distribution of DFT data

1.2 晶体图卷积神经网络

图神经网络^[20]以晶体结构为输入, 经过网络提取, 晶体结构被转换为无向重图 $G=(V, U)$, 其结点表示原子, 边表示原子间的化学键。晶体图不同于一般的分子图, 由于其周期性, 允许在同一对节点中存在多条边。参照 Xie 等^[20]的工作, 在本项目中, 每个节点 i 用 1 个特征向量 v_i 来表示。 v_i 编码了节点 i 对应的原子的性质。特征向量 $u_{(ij)k}$ 表示为连接原子 i 和原子 j 的第 k 个键。图 1b 展示了晶体图神经网络构建的过程。

原始向量通过神经网络转化为新的向量分为 2 个步骤。首先是通过非线性图卷积函数与周围原子键进行卷积, 以迭代更新原子特征向量 v_i , 卷积函数

可表示为:

$$v_i^{(t+1)} = \text{Conv}(v_i^{(t)}, v_j^{(t)}, u_{(ij)k}), (i, j)_k \in G \quad (1)$$

其次, 经过卷积层, 网络将迭代每个原子的周围环境, 自动学习每个原子的特征向量 $v_i^{(R)}$ 。然后经过池化层生成晶体的总体特征向量 v_c , 用池化函数表示为:

$$v_c = \text{Pool}(v_0^{(0)}, v_1^{(0)}, \dots, v_N^{(0)}, \dots, v_N^{(R)}) \quad (2)$$

除了卷积层和池化层外, 模型还增加了全连接隐藏层, 以捕捉晶体结构和性质之间的复杂映射。最后, 输出层连接隐藏层或全连接层预测目标性质 $\hat{y}$ 。

整个训练是通过最小化预测性质 $\hat{y}$ 和由成本函数 $J(y, \hat{y})$ 定义的 DFT 计算性质 y 之间的差异来完成,

利用反向传播和随机梯度下降(SGD), 使用 DFT 计算的数据迭代更新映射权重来解决最优化问题。神经网络的搭建基于深度学习框架 PyTorch, 采用卷积神经网络作为网络模块计算单元, 使用全连接层构建回归模型, 使用 SGD 优化器和 Softplus 激活函数对训练过程进行参数调整。

1.3 针对表面模型的网络改动

原始的晶体图神经网络并未考虑表面的特殊性, 很难将其有效的推广到表面能的预测上。在本研究中, 针对表面模型的网络进行改动, 提出基于数学和基于物理的模型。由于晶体图卷积神经网络的输入和输出对于表面模型的适用性具有重要意义, 为了避免复杂的特征提取工作, 本文的网络中优先考虑端对端的形式, 将结构优化前的晶胞作为输入, 相应地将表面能作为输出。但由于实际计算表面能时需要设定参数构建不同尺寸的超晶胞, 以表示不同大小表面。因此, 还需在基础模型中引入表面尺寸向量 $\mathbf{k}$, 用以标识晶体的表面尺寸, 以 $(\mathbf{k}_x, \mathbf{k}_y, \mathbf{k}_z)$ 表示 $p(\mathbf{k}_x, \mathbf{k}_y)$ 的 XY 方向尺寸, 和 $\mathbf{k}_z$ 的 Z 方向层数。因此模型需要对表面尺寸向量 $\mathbf{k}$ 的引入方式进行探讨。

第一种方法是基于数学模型的方法, 核心思路是避免表面尺寸与原子之间的相互作用, 从拟合的角度去考虑尺寸对于表面的作用。如图 1c 所示, 此类方法引入表面尺寸的基本思路是使表面尺寸向量 $\mathbf{k}$ 不参与卷积池化, 单纯作用于池化后的全连接网络层: 一种改进方法是将表面尺寸向量 $\mathbf{k}$ 耦合进输出线性层, 增加线性层的维度, 称为线性耦合, 记隐藏层的特征为 $\mathbf{H}$, 该方法的耦合以 $\mathbf{H}' = \text{Concat}(\mathbf{H}, \mathbf{k})$ 的形式表示; 另一种改进方法是将表面尺寸向量 $\mathbf{k}$ 耦合进池化后的全连接层, 将表面尺寸向量 $\mathbf{k}$ 作为总体特征的一部分, 直接引入池化之后的晶体的总体特征向量 $\mathbf{v}_c$, 并参与后续隐藏层仿射, 公式表达为 $\mathbf{v}_c' = \text{Concat}(\mathbf{v}_c, \mathbf{k})$, 称为全连接耦合。

另一类是基于表面实际物理状态的方法。核心的思路是利用深度学习把表面尺寸向量 $\mathbf{k}$ 耦合进原子之间的相互作用, 将尺寸对于表面的影响以物理作用的形式引入网络中。如图 1c 所示, 此方法引入表面尺寸的基本思路是表面尺寸向量参与卷积池化: 表面尺寸也是晶体原子特征或键特征的一部分, 故在网络卷积之前, 将表面尺寸向量 $\mathbf{k}$ 与原子特征向量 $\mathbf{v}_i$ 相耦合, 公式表达为 $\mathbf{v}_i' = \text{Concat}(\mathbf{v}_i, \mathbf{k})$, 称为原子特征耦合方法; 与键特征向量 $\mathbf{u}_{(ij)}$ 相耦合, 称为键特征耦合方法, 公式表达为 $\mathbf{u}_{(ij)}' = \text{Concat}(\mathbf{u}_{(ij)},$

$\mathbf{k})$; 当原子特征和键特征同时耦合, 称为原子-键特征耦合方法。通过上述耦合方法, 使表面尺寸特征完整参与卷积池化过程, 在神经网络中对网络权重产生影响。

1.4 超参数优化

本课题选取 7 个主要超参数来检验其对于训练结果的影响, 其中, 卷积层的数量, 池化层后连接的隐藏层数量, 最大临近原子数, 最大原子邻域, 网格搜索的步长, 动量系数, 权值衰减。超参数的 Bayes 优化是通过 Dragonfly 开源 Python 库^[32]来完成的。每组超参数训练 120 个 Epochs。使用验证集指标绝对平均误差来评估模型的准确性。将全部数据集随机分为 60% 的训练集、20% 的验证集和 20% 的测试集, 分别进行正交测试。对于每种模型的 Bayes 优化, 均设置了 200 步的最大优化次数。

2 结果与讨论

2.1 基于数学理论的模型表现

模型采用文献[17]中的默认超参数, 将数据集随机分为 60% 的训练集、20% 的验证集和 20% 的测试集, 以 MAE 作为评价指标, 进行模型训练, 训练过程及其结果如图 3a 所示。

在训练过程中 MAE 在前 40 个 Epochs 中迅速收敛, 除去几次突跃外, MAE 指标围绕固定范围波动, 此外, 训练过程中会自动记录评价指标达到最优时的模型及相关模型参数, 并在此基础上进行验证, 用于测试集中的性能预测, 得到基于数学理论的晶体卷积图神经网络表面能预测值与计算值的对比如图 3b 所示。研究表明, 基于图神经网络的金属晶体预测模型泛化性较为良好, 精度较高。2 种方法相比较, 线性耦合与全连接耦合均能实现较快的收敛速度, 但总体表现, 线性耦合表现更佳, 可以达到 $2.2 \text{ meV}/\text{\AA}^2$ 的 MAE 与 0.996 的 R^2 表现。

2.2 基于物理理论引入

同样采用默认超参数, 将数据集随机分为 60% 的训练集、20% 的验证集和 20% 的测试集, 以 MAE 作为评价指标, 进行模型训练, 训练过程及其结果如图 4a 所示。

可见训练过程中 MAE 的变化趋势, 其变化趋势与基于数学理论的模型总体一致, 但基于物理理论的模型的训练误差表现更佳。结合图 4b 内 3 种引入方式的预测性能对比, 可以了解到, 原子特征耦合模型误差波动范围大, 出现明显异常峰, 不稳定,

且预测的结果误差是 3 种引入方式中最差的。键特征耦合模型收敛快, 较为稳定, 但其最佳模型的 MAE 与 R^2 指标均不及原子-键特征耦合模型, 后者

可以达到 $1.8 \text{ meV}/\text{\AA}^2$ 的 MAE 以及 0.998 的 R^2 , 是目前 5 种基于数学或物理理论的引入方式中表现最佳的方案。

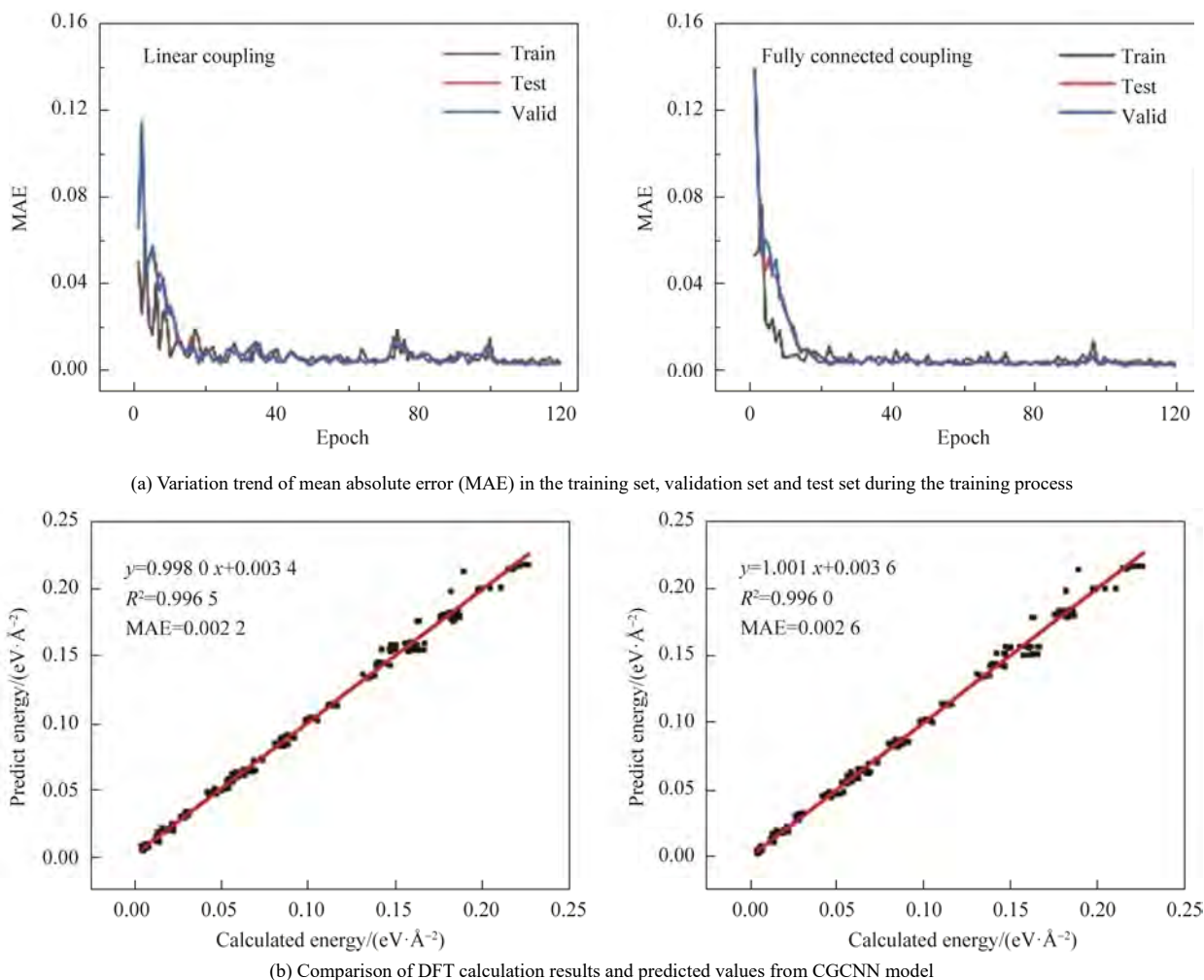


图 3 基于数学方法构建的 CGCNN 模型性能
Fig. 3 Performance of math-based CGCNN model

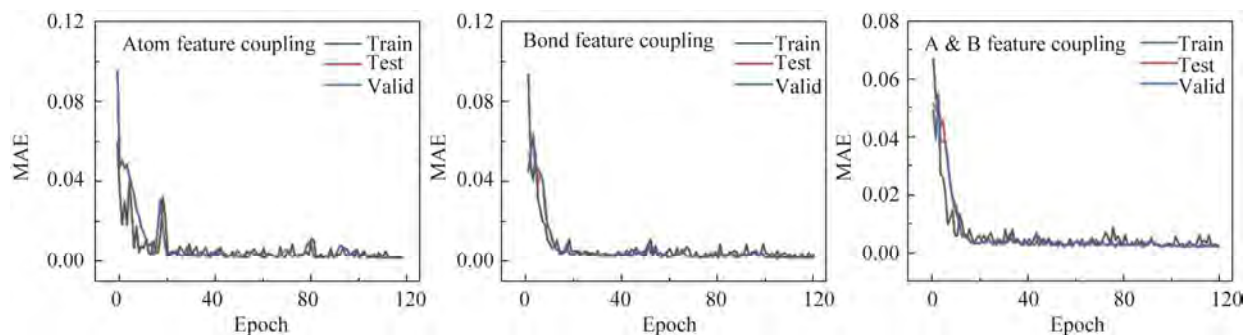
2.3 超参数优化的结果

由于默认参数的比较具有一定的局限, 本课题进一步对上文设计的模型均进行了超参数优化。这部分内容选取了 7 个主要超参数来检验其对于训练结果的影响并进行优化, 分别为卷积层数量, 池化层后连接的隐藏层数量, 最大临近原子数, 最大原子邻域, 网格搜索的步长, 动量系数, 权值衰减。正交检验的结果表明, 基于当前数据集和模型的推荐超参数如表 1 所示。可见, 基于物理理论的模型的改进整体优于单纯基于数学理论的模型, 该结论与默认参数结果大体一致, 其中基于原子-键特征耦合的模型在超参数优化后具有最优的性能, MAE 从 $1.8 \text{ meV}/\text{\AA}^2$ 提升至 $1.6 \text{ meV}/\text{\AA}^2$ 。

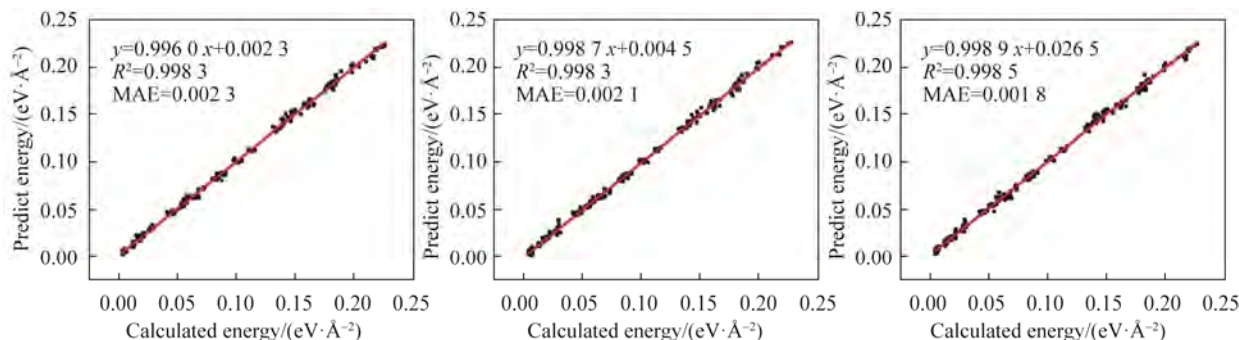
2.4 各元素预测精度分析

为更为准确地评估模型的预测性能, 探明模

型使用范围, 研究进一步优化方向, 分析了原子-键特征耦合模型中各元素预测值与计算值之间的相对误差, 并绘制示意图如图 5 所示。由图 5 可知, 在 30 种元素中有 26 种元素的表面能预测误差在 10% 以下, 其中有 23 种元素的预测误差在 5% 以下, 表现优异。但值得注意的是模型在碱金属元素表面能预测中表现较差, 特别是在铷和铯金属相对误差可以达到 22%。究其原因 是碱金属元素与其他金属元素(主要是过渡族元素)电子结构性质差异较大, 但各元素数据集数量相对平均, 在相同的原始数据集训练下碱金属元素特征提取较弱, 且模型在训练时倾向于达到整体性能最优, 导致在碱金属元素表现一般。针对这个问题, 提供更多的活泼金属数据有望减轻此类现象。



(a) Variation trend of MAE indicators in training set, validation set, and test set during training process



(b) Comparison of the DFT calculation results with predicted values from CGCNN model

图4 基于物理方法构建的CGCNN模型性能

Fig. 4 Performance of physics-based CGCNN model

表1 最优超参数设定集

Table 1 Optimal hyperparameter set

Model	Num of conv layers	Num of hidden layers	Max num of neighbor atom	Max radius	Grid step	Momentum	Weight decay	MAE/(eV·Å ⁻²)
Linear coupling	1	1	11	11	0.279	0.788	0.000	0.002 44
Fully connected coupling	2	3	11	12	0.054 5	0.925	0.000	0.002 35
Atom feature coupling	2	1	10	10	0.120	0.894	0.000	0.001 68
Bond feature coupling	3	2	9	11	0.263	0.935	0.000	0.001 68
Atom& bond feature coupling	2	1	9	11	0.231	0.963	0.000	0.001 61

2.5 大表面预测分析

综合上述多种方式的评估对比,可以认为基于图神经网络的深度学习模型对于数据集具有良好的泛化能力,表面能预测速度快,总体精度高,实现了从金属晶体结构到表面能的端对端求解器。为进一步研究的模型的预测性能,选用金属 Cu 作为例子,构建大尺寸表面结构,在上述最优模型下进行表面能预测,其结果图 6 所示。

在 X 和 Y 方向上,表面能预测值随表面尺寸增加而增加,其中:在中尺寸表面(X 和 Y≤8)时,变化趋势较为缓慢,超出这个范围后,预测值增加趋势明显。需要注意的是,本实验实际计算的是比表面能值,其值随表面尺寸变化不明显。从这个角度

看,基于原始数据集尺寸(X 和 Y≤4)的拓展,模型同样在中等尺寸表面(X 和 Y≤8)内具有良好的泛化性能,说明基于小表面数据训练的模型可以用于更大表面的预测。但是此模型在尺寸远大于数据集尺寸时(维度尺寸扩展大于 2 倍时,X 和 Y>8)时变得不适用,这可能是由于缺少大表面数据参与训练导致,利用主动学习的方法补充相应的大表面样本,可以用少量的大尺寸表面的数据提升模型在这方面的性能。

在 Z 方向上,当 Z≤8 时,整体趋势趋向于降低后稳定,当 Z 继续增加,其值先增加后减少。在固体物理理论中,表面原子由于具有悬键等,相较于内部原子具有更多的能量。计算模拟中,若设定

过大的表面层厚度,对晶体弛豫优化后,表面结构与其内部结构趋同,表面能量反而会降低,从这个

角度看,在上述表面尺寸、表面厚度下,模型拟合能力合理。

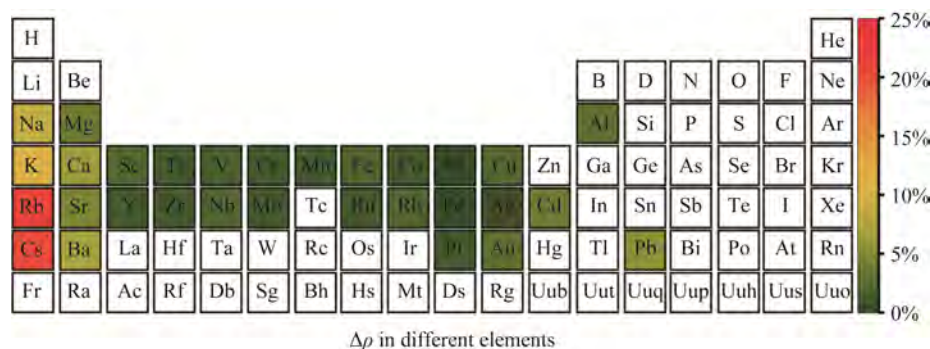


图 5 各元素的表面能预测误差分布图

Fig. 5 Model error distribution map for chemical elements

总体而言,使用构建的模型预测大表面性质时,能准确的反应实际计算时表面能的变化趋势,并在一定范围内展示出优秀的泛化能力,大大减少了 DFT 计算的资源与时间消耗。但由于原始数据集的限制,对于更大范围表面的学习需要更多数据集以及主动学习的方法来针对性的训练,模型整体具有非常大优化的空间。

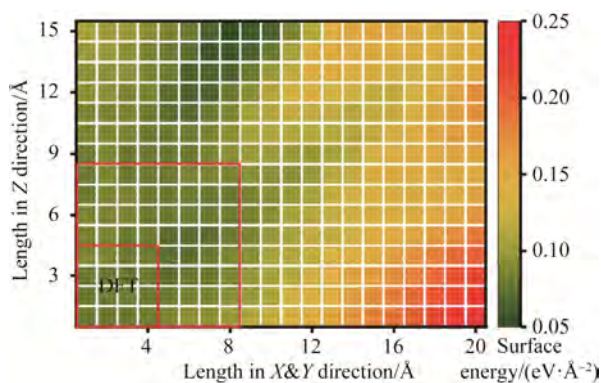


图 6 CGCNN 模型在大表面预测的表面能分布图

Fig. 6 Error distribution map of CGCNN model with respect to dimensions

3 结论

以金属晶体作为研究对象,基于第一性原理,在密度泛函理论计算下建立不同表面大小的晶体表面能数据集。随后,综合对比两种基于数学的方法和 3 种基于物理的方法,深入探讨了这几种表面尺寸引入方式的利弊,最终获得了晶体表面在模型内的最优表现形式。再者,对模型进行超参数的 Bayes 优化,提高模型的综合性能。最后,利用从元素分析和大表面预测 2 个方面出发,分析模型的局部表现和泛化能力。总体上,实现了晶体图卷积神经网络在金属晶体表面能上高速度、高精度、大尺寸的

预测表现。

另一方面,对于硅酸盐等成分较多的无机材料而言,本方法经过改进后也可以适用。训练集中需要加入其不同的截止面的表面能等数据进行训练,所需要的高通量 DFT 计算的数据量会随之增长。由于 DFT 计算资源有限、数据集有限、晶面取向多样、多元素晶体存在不同表面终止等问题,本工作研究对于实现普适性的表面预测还有一定的距离。为了解决普适性预测的问题,可以建立一个唯一标识符来准确表示某一个特定的表面(包括表面尺寸、晶体结构、晶面取向、表面终止情况等)并通过程序化的方式完成数据集的生成。此外,本研究采用了一次随机分割的数据集进行了结果评估,后续也可以通过多次 k -折交叉验证等方式^[33-34]进行结果评估,并在每次 k -折交叉验证前对数据集进行 Monte-Carlo 采样,以获得更可靠的预测。在未来的工作中,我们期望通过构建更加通用的特征以及机器学习算法的改进,得到更为泛用、更为高效、更为准确的模型。

作者贡献声明:

周麟铭: 主要负责机器学习工具的开发和数据分析。

朱广宇: 负责模型搭建训练以及超参数优化的部分。

文章由两位作者共同撰写。

参考文献:

- [1] LAI N C, CONG G, LIANG Z, et al. A highly active oxygen evolution catalyst for lithium-oxygen batteries enabled by high-surface-energy facets[J]. *Joule*, 2022, 2(8): 1511–1521.
- [2] MA J, XING F, NAKAYA Y, et al. Nickel-based high-entropy

- intermetallic as a highly active and selective catalyst for acetylene semihydrogenation[J]. *Angew Chem Int Ed*, 2022, 61(27): e202200889.
- [3] PIREZ C, LEE A F, JONES C, et al. Can surface energy measurements predict the impact of catalyst hydrophobicity upon fatty acid esterification over sulfonic acid functionalised periodic mesoporous organosilicas?[J]. *Catal Today*, 2014, 23(1): 167–173.
- [4] VALSESIA A, DESMET C, OJEA-JIMÉNEZ I, et al. Direct quantification of nanoparticle surface hydrophobicity[J]. *Commun Chem*, 2018, 1: 53.
- [5] MICHIARDI A, APARICIO C, RATNER B D, et al. The influence of surface energy on competitive protein adsorption on oxidized NiTi surfaces[J]. *Biomater*, 2007, 28(4): 586–594.
- [6] ZHOU K, CHEN J, WANG T, et al. Effect of surface energy on protein adsorption behaviours of treated CoCrMo alloy surfaces[J]. *Appl Surf Sci*, 2020, 520(1): 146354.
- [7] HENSLEY A J R, COLLINGE G, WANG Y, et al. Coverage-dependent adsorption of hydrogen on Fe(100): Determining catalytically relevant surface structures via lattice gas models[J]. *J Phys Chem C*, 2020, 124(13): 7254–7266.
- [8] STIRNER T, SCHOLZ D, SUN J, et al. Ab initio simulation of structure and surface energy of low-index surfaces of stoichiometric α -Fe₂O₃[J]. *Surf Sci*, 2018, 671: 11–16.
- [9] WU M, ZHANG Z, XU X, et al. Seeded growth of large single-crystal copper foils with high-index facets[J]. *Nature*, 2020, 581: 406–410.
- [10] LI S, FU J, MIAO G, et al. Toward planar and dendrite-free Zn electrodepositions by regulating Sn-crystal textured surface[J]. *Adv Mater*, 2021, 33: 2008424.
- [11] GAO X, ZHOU Y, HAN D, et al. Thermodynamic understanding of Li-dendrite formation[J]. *Joule*, 2020, 4(9): 1864–1879.
- [12] DU J, ZHANG A, GUO Z, et al. Atomistic underpinnings for growth direction and pattern formation of hcp magnesium alloy dendrite[J]. *Acta Mater*, 2018, 161: 35–46.
- [13] TOYAO T, SUZUKI K, KIKUCHI S, et al. Toward effective utilization of methane: machine learning prediction of adsorption energies on metal alloys[J]. *J Phys Chem C*, 2018, 122(15): 8315–8326.
- [14] WILLIAMS T, MCCULLOUGH K, LAUTERBACH J. Enabling catalyst discovery through machine learning and high-throughput experimentation[J]. *Chem Mater*, 2020, 32(1): 157–165.
- [15] CHEN C, YE W, ZUO Y, et al. Graph networks as a universal machine learning framework for molecules and crystals[J]. *Chem Mater*, 2019, 31(9): 3564–3572.
- [16] GILMER J, SCHOENHOLZ S S, RILEY F P, et al. Neural message passing for quantum chemistry[J]. *Arxiv*, 2017. Doi:10.48550/arXiv.1704.01212.
- [17] GASTEIGER J, GROB J, GÜNNEMANN S. Directional message passing for molecular graphs[J]. *Arxiv*, 2020. Doi:10.48550/arXiv.2003.03123.
- [18] CHENG J, ZHANG C, DONG L. A geometric-information-enhanced crystal graph network for predicting properties of materials[J]. *Commun Mater*, 2021, 2: 92.
- [19] KEARNES S, MCCLOSKEY K, BERNDL M, et al. Molecular graph convolutions: Moving beyond fingerprints[J]. *J Comput-Aided Mol Des*, 2016, 30(8): 595–608.
- [20] XIE T, GROSSMAN J. Crystal graph convolutional neural networks for an accurate and interpretable prediction of material properties[J]. *Phys Rev Lett*, 2018, 120(14): 145301.
- [21] AHMAD Z, XIE T, MAHESHWARI C, et al. Machine learning enabled computational screening of inorganic solid electrolytes for suppression of dendrite formation in lithium metal anodes[J]. *ACS Cent Sci*, 2018, 4(8): 996–1006.
- [22] ZHOU L, YAO M A, WU Y, et al. Machine learning assisted prediction of cathode materials for Zn-ion batteries[J]. *Adv Theory Simul*, 2021, 4: 2100196.
- [23] JAIN A, ONG S P, HAUTIER G. Commentary: The materials project: A materials genome approach to accelerating materials innovation[J]. *APL Mater*, 2013, 1: 011002.
- [24] DE JONG M, CHEN W, ANGSTEN T, et al. Charting the complete elastic properties of inorganic crystalline compounds[J]. *Sci Data*, 2015, 2: 150009.
- [25] MORTENSEN J J, HANSEN L B, JACOBSEN K W. Real-space grid implementation of the projector augmented wave method[J]. *Phys Rev B*, 2005, 71: 035109.
- [26] ENKOVAAARA J, ROSTGAARD C, MORTENSEN J J, et al. Electronic structure calculations with GPAW: A real-space implementation of the projector augmented-wave method[J]. *J Phys: Condens Matter*, 2010, 22: 253202.
- [27] BLÖCHL P E. Projector augmented-wave method[J]. *Phys Rev B*, 1994, 50: 17953.
- [28] BLÖCHL P E, FÖRST C J, SCHIMPL J. Projector augmented wave method: Ab-initio molecular dynamics with full wave functions[J]. *Bull Mater Sci*, 2003, 26: 33.
- [29] LARSEN A H, MORTENSEN J J, BLOMQVIST J, et al. The atomic simulation environment—a python library for working with atoms[J]. *J Phys: Condens Matter*, 2017, 29: 273002.
- [30] BAHN S R, JACOBSEN K W. An object-oriented scripting interface to a legacy electronic structure code[J]. *Comput Sci Eng*, 2002, 4: 56–66.
- [31] PERDEW J P, ERNZERHOF M. Rationale for mixing exact exchange with density functional approximations[J]. *J Chem Phys*, 1996, 105: 9982–9985.
- [32] KANDASAMY K, VYSYARAJU K R, NEISWANGER W, et al. tuning hyperparameters without grad students: Scalable and robust bayesian optimisation with dragonfly[J]. *J Mach Learn Res*, 2020, 21(81): 1–27.
- [33] YU S, CHAI H, XIONG Y, et al. Studying complex evolution of hyperelastic materials under external field stimuli using artificial neural networks with spatiotemporal features in a small-scale dataset[J]. *Adv Mater*, 2022, 34: 2200908.
- [34] ZHANG X, XU J, YANG J, et al. Understanding the learning mechanism of convolutional neural networks in spectral analysis[J]. *Anal Chim Acta*, 2020, 1119: 41–51.