

基于机器学习势函数的材料力热性质多尺度模拟研究进展

吴 静^{1,2}, 黄 安¹, 谢涵鹏¹, 魏东海¹, 李奥南¹, 彭 博¹, 王慧敏³, 秦真真⁴, 刘德欢², 秦光照¹

(1. 湖南大学机械与运载工程学院, 汽车车身先进设计制造国家重点实验室, 长沙 410082; 2. 华中科技大学能源与动力工程学院, 武汉 430074; 3. 湘潭大学物理与光电工程学院, 湖南 湘潭 411105; 4. 郑州大学物理学院(微电子学院), 郑州 450001)

摘 要: 随着人工智能技术的发展, 采用机器学习方法进行势函数的构建和拟合, 成为目前解决经验势函数精度问题的主要技术途径。机器学习方法解决了传统势函数拟合中的试错低效问题, 已成为材料设计和物性研究不可或缺的有力工具。本文围绕当前机器学习势函数的特点, 及其在相变研究、本征性质研究和界面研究等方面的应用, 全面总结介绍势函数及其拟合策略, 以及其在特定物性研究中的应用, 推动机器学习势函数在材料力热性质的多尺度模拟研究。最后, 展望了机器学习势函数所面临的挑战和未来发展前景。

关键词: 机器学习; 原子相互作用势; 多尺度; 力热性质

中图分类号: TK11; TB3 文献标志码: A 文章编号: 0454-5648(2023)02-0531-13

网络出版时间: 2022-12-28



Multi-Scale Simulation of Mechanical and Thermal Transport Properties of Materials Based on Machine Learning Potential

WU Jing^{1,2}, HUANG An¹, XIE Hanpeng¹, WEI Donghai¹, LI Aonan¹, PENG Bo¹, WANG Huimin³, QIN Zhenzhen⁴,
LIU Te-huan², QIN Guangzhao¹

(1. State Key Laboratory of Advanced Design and Manufacturing for Vehicle Body, College of Mechanical and Vehicle Engineering, Hunan University, Changsha 410082, China; 2. School of Energy and Power Engineering, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China; 3. Hunan Key Laboratory for Micro-Nano Energy Materials & Device and School of Physics and Optoelectronics, Xiangtan University, Xiangtan 411105, Hunan, China; 4. School of Physics and Microelectronics, Zhengzhou University, Zhengzhou 450001, China)

Abstract: With the development of artificial intelligence technology, machine learning atomic interaction potential has become popular to solve a problem regarding the low accuracy of empirical potential. Machine learning atomic interaction potential avoids a low efficiency of conventional fitting method for empirical potential and becomes an emerging tool for material exploration and research. This review represented the characteristics of existing machine learning potential and the applications in phase change, intrinsic properties and interface researches. In addition, the challenge and development trends of machine learning atomic interaction potential were also prospected.

Keywords: machine learning; atomic interaction potential; multiscale; mechanical and thermal properties

1 引言

1.1 多功能材料及其力热性质

芯片在社会民生的方方面面发挥着重要作用,

其稳定可靠工作至关重要。芯片在特种应用场景的工作环境恶劣, 例如车辆、宇航、矿场和农田等, 会面临高温和强振动等极端工况, 这对芯片的稳定性和可靠性提出了巨大挑战, 因此需要将多功能材

收稿日期: 2022-10-01。 修订日期: 2022-11-04。

基金项目: 国家自然科学基金(52006057); 湖南大学汽车车身先进设计制造国家重点实验室自主研究课题(52175013); 国家自然科学基金(52076089)。

第一作者: 吴 静(1998—), 男, 博士研究生。

通信作者: 刘德欢(1984—), 男, 博士, 教授;

秦光照(1991—), 男, 博士, 教授。

Received date: 2022-10-01. Revised date: 2022-11-04.

First author: WU Jing (1998—), male, Doctoral candidate.

E-mail: jwu123@hust.edu.cn

Correspondent author: LIU Te-huan (1984—), male, Ph.D., Professor.

QIN Guangzhao (1991—), male, Ph.D., Professor.

E-mail: thliu@hust.edu.cn; gzqin@hnu.edu.cn

料引入到芯片中。为应对高温的恶劣工况,需寻找拥有高热导率的材料,而应对强振动的工况寻找拥有优异负 Poisson 比的力学性能的材料必不可少^[1]。多功能材料指拥有诸多优异性能和特殊结构的材料,例如优越的抗剪性能,抗断裂性能和抗凹痕性能,将为保障芯片的可靠稳定工作发挥重要作用。

材料力学性质包括 Young's 模量,剪切模量和 Poisson 比等,其中 Poisson 比是指材料在受到拉伸或者压缩时出现的力学响应,通常情况下材料在横向受到拉应力时,会在纵向出现收缩,这个现象叫做正 Poisson 比,而一些具有特殊力学性质的材料会在纵向出现膨胀,这种现象叫做负 Poisson 比。具有负 Poisson 比性质的材料通常具有特殊的力学性能,其在抗剪承载力、抗断裂性、能量吸收和压陷阻力等方面比传统材料更有优势。但目前已被发现的天然负 Poisson 比材料较少,人造负 Poisson 比材料成本较高,而通过传统方法研究负 Poisson 比材料时间和人工成本较大。机器学习技术的出现,使快速筛选出具有负 Poisson 比效应的材料成为可能,推动了负 Poisson 比材料的研究^[2–6]。

热导率是材料最重要的基本性质之一。在某些情况下,具有超低或超高热导率的材料对工程应用是必不可少的,热导率是与材料热输运性质相关的一个重要物理量,衡量材料将热量在高低温之间隔绝或传输的能力^[7–13]。测量材料热导率的传统方式是使用稳态和瞬态方法。这种方法由于仪器体积大,耗费也比较高昂。目前在材料热导率探索方面,主要使用理论计算的方法预测材料的热导率,同时借助机器学习的方法构造原子间势函数,实现计算精度和效率并存^[14–19]。

1.2 分子动力学模拟及势函数

分子动力学模拟是一种基于微观尺度研究各项性能的方法,可以在很小的空间和时间尺度上进行模拟,例如空间可以小到纳米层面,时间可以小到皮秒层面^[20]。然后在这样的空间和时间层面上通过数值方法求解经典 Newton 运动方程,模拟系统中原子位置和速度随着时间变化,进一步来获得比热容、热导率、界面热导等物理量。分子动力学模拟给材料研究带来了极大便利,但精确的模拟面临着一个瓶颈,即准确高效的势函数。

1.3 机器学习赋能大规模计算

在使用分子动力学模拟来研究材料力热性质的过程中,最关键的是所研究体系的势函数^[21]。过去常用的方法是第一性原理计算,这种方法十分准确

但是计算成本非常昂贵,随着体系的原子数成 3 次方增长,因此可以模拟的原子数较少^[22–25]。另一种方法是使用经验力场,通常根据键的距离、角度等参数拟合。通过参数的调整使经验力场尽可能准确,这种方法计算效率很高,能够模拟较大的物理体系,但是它的精度不高,难以获得可信的结果。

机器学习势函数的出现解决了经验力场精度不足的问题。在提供高的精度计算结果的同时,能够兼顾较高的计算效率,为材料力热性质的研究提供很大的便利^[26–33]。

2 方法

2.1 机器学习势函数拟合方法

描述符是机器学习的基础,精确定义且合理选择与研究对象相关的描述符在机器学习中十分重要。在机器学习势函数的构造过程中,不同的方法有着不同的核心问题。描述符是机器学习的基础,精确定义且合理选择与研究对象相关的描述符在机器学习中十分重要。此外,还需要构建合理的机器学习模型来进行训练。

2.1.1 神经网络 机器学习(ML)方法被应用于构建势函数,而在众多的机器学习方法中,人工神经网络拟合势函数受到了广泛的关注。前馈神经网络用于拟合势能面最早是由 Blank 在 1995 年提出^[34],用于研究 CO 在 Ni 表面以及 H₂ 在 Si 表面的扩散问题。虽然之后有大量的相关研究报道,但是人们也发现了问题:前馈神经网络只能受限于低维体系。原因是缺少合适的输入坐标使体系能量满足平移、旋转和置换对称性。在 2007 年由 Behler 和 Parrinello 提出了适用于高维体系的高维神经网络势函数(NNPs)^[35]。原子势是基于体系每个原子的局域化学环境来拟合体系的相关性质,即每个原子采用一个单独的前馈神经网络表示。在高维神经网络势中,原子化学环境是用中心原子的对称函数(ACSFs)来描述,这些对称函数构成了原子化学环境的描述符(Descriptor)。

2.1.2 矩张量 矩张量势(MTP)是一种基于不变多项式的原子势构建方法,其基本想法是将原子间作用势看作一个足够光滑的近似多项式^[36]。该近似表示的基础函数由矩多项式组成,通过基础函数的线性组合来覆盖多项式中的所有互换和旋转不变。在 MTP 框架内,一个构型的总能量被计算为来自原子邻域的能量贡献之和。原子邻域被定义为系统中每个原子在 1 个截止半径内的直接化学环境的集

合。由于直角坐标对配置中的原子的平移、旋转和排列不具有不变性,因此它们不能作为 MTP 训练的输入。动量张量包括截止半径内原子的径向、角度和多体分布。将这些参数构建为基础函数,即可提供 MTP 训练所需的原子环境的不变表示。

2.1.3 Gaussian 近似 Gaussian 近似的方法主要是通过构建的原子邻域之间的相似性计算对一组存储的参考量子力学结果进行内插来计算,使用总能量和原子力来获得原子能量的最佳估计值,从而节约第一性原理计算消耗,同时提高计算效率^[37]。原子能量函数在平移、旋转和原子的排列组合下是不变的。Gaussian 近似势的一个关键是在一个转换的坐标系统中表示原子邻域,以说明这些对称性。

2.1.4 其他 神经网络中的传统训练方法是基于梯度下降的,它可能陷入 ML 模型损失函数的局部最小值,导致次优解。另一种 ML 模型的训练方法是基于进化算法,如遗传算法、遗传编程、进化编程和进化策略。这种与神经网络相结合的全局搜索方法被称为神经进化,它早已被应用于神经网络的进化。一种被称为可分离自然进化策略的变体的计算复杂度与拟合参数的数量成线性关系,很适合进化大规模的神经网络。

神经进化势函数(NEP)即是一种使用可分离自然进化策略进行训练的机器学习势函数框架^[38]。其使用的描述符由 Behler 的对称函数和原子位置的平滑重叠(SOAP)的优化版本改进而来。该框架下的神经网络组成较为简明,在保证精度的前提下,一定程度上提高了基础神经网络的效率。

2.2 机器学习势函数构建软件比较

机器学习势函数的开发的重心是收集训练集和实施的训练过程,通过各种软件和算法平台,使用各种采样方法对材料的多种原子局域环境和不同构型、各种组成状态进行收集,以训练高精度分子动力学机器学习势函数。常见的机器学习势函数拟合工具主要包括以下几种。

2.2.1 深层分子动力学(DeePMD)系列 DeePMD 是一个可以快速训练、测试和评估势能面 (PES) 和力的机器学习势函数构建软件^[39-44]。该软件描述了原子环境描述符和力、维里计算的连锁规则,并创建了与 TensorFlow 的接口,将这些数据作为新的操作符输入以利用 TensorFlow 高度优化的张量操作来训练模型和运行分子动力学模拟计算。DeePMD-kit 的标准工作流程如图,主要包括了准备数据、训练模型、测试模型和应用模型到分子动力学软件中进

行分子动力学模拟。

在数据准备阶段中,训练-测试 DeePMD 模型的数据是由一系列第一性原理计算软件输出的高精度计算数据系统组成的。每个系统包含若干帧。其中一些构型被用作训练数据,其他构型则被用作测试数据。每个构型都记录了模拟区域的形状(盒状张量)和系统中所有原子的位置。在训练阶段,是由 TensorFlow 深度学习框架提供的标准张量

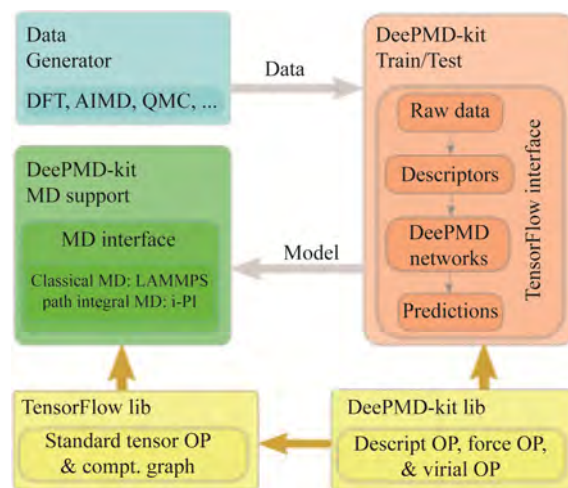


图 1 DeePMD 工作流程^[39]

Fig. 1 DeePMD Workflow^[39]

操作实现的。通过 DeePMD-kit 的训练程序,设定好重要参数,包括网络的大小、训练集和测试集、训练步数、初始学习率和学习率衰减速度等,即可开始训练模型。

DeePMD 训练需要选择合适的描述符,随着软件不断发展,目前 DeePMD-kit 的描述符中,Se_e2 是必须要使用的,该描述符由原子构型的所有信息包括角度和径向构建。在面对具有较强的共价特性的材料或材料体系中需要很强的局域角度信息时,可使用 Se_e2 和 Se_e3 描述符进行混合训练。除此之外,DeePMD-kit 已经实现了 CPU 和 GPU 的多核多线程并行训练和运算,同时利用 DP-GEN 可以实现数据集的主动探索,提高训练效率和模型的精度^[45]。

2.2.2 MLIP MTP 主要由 MLIP 软件来实现,其训练的工作流程分为 3 个不同阶段:训练数据的生成和计算,MTP 参数的实际训练和训练后的 MTP 的验证^[36, 46-48]。和 DeePMD-kit 类似,MTP 训练集的生成和计算也大致分成 3 种方式:1) 通过一系列的随机原子位移和应变来对平衡构型周围的相空间进行采样,这种方式被称为随机位移参数或晶体训

练随机位移。2) 采用第一性原理方法计算获得的构型单点能, 准备训练集, 训练初步的 MTP 机器学习势函数。3) 利用训练好的矩张量势进行初步的分子

动力学模拟, 对未涉及的构型进行筛选后, 重新计算并加入到训练集中, 即主动探索构型空间, 丰富数据集。

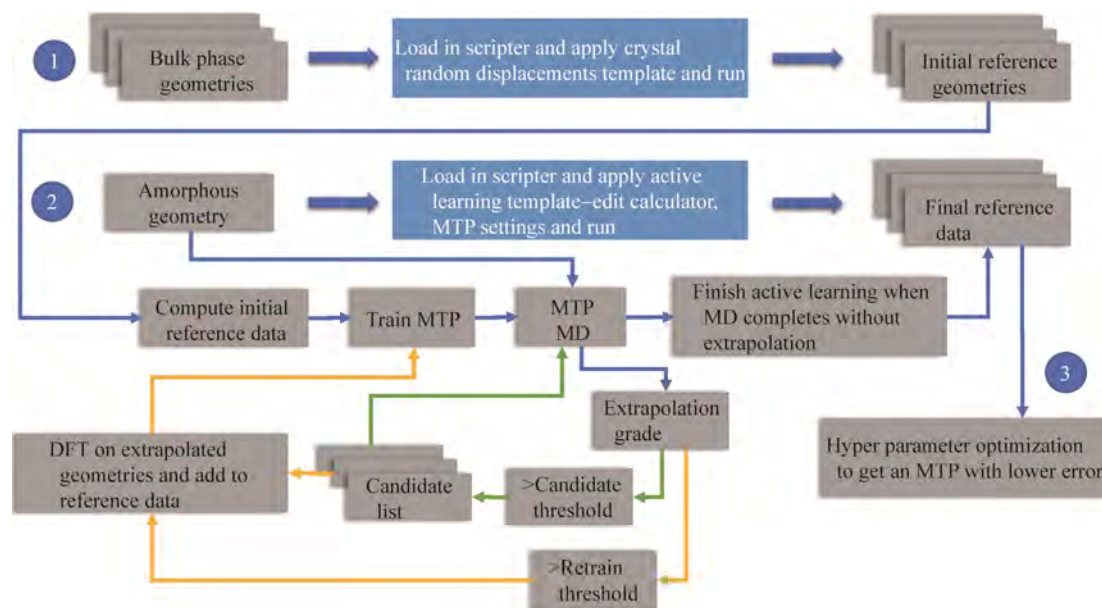


图2 矩张量势(MTP)工作流程

Fig. 2 Moment tensor potential (MTP) Workflow

在第2个阶段, 即训练阶段中, 超参数控制着势函数的拟合情况。通过给出具有不同参数的列表, 进行分别拟合, 并对比训练报告中训练和测试误差, 即可对超参数进行优化, 从而选出最合适的超参数。

2.2.3 Gaussian 近似势(GAP) GAP 的目的是制定一个通用原子间势, 它能可靠地满足各种各样的应用需求^[37, 49]。在该方法中, 不对势的函数形式做任何预先假设。相反, 使用非参数、非线性回归的 Gaussian 过程形式来寻找任意值的函数值。在回归过程中, 量子力学数据, 如总能量和原子力, 会被作为依据使用, 因此可以看作是量子力学势能面的插值。

2.4 机器学习势函数对比

Fan^[50]等针对分子动力学的关键参数对几种常见的机器学习势进行了对比。表1展示了基于多相碳体系^[51], 各机器学习势包括 DP^[39], GAP^[37], MTP^[36]和 NEP^[50]的性能表现, 主要对比了能量、力和位力的误差、模拟速度和特定硬件下模拟能达到的最大体系, 充分体现了机器学习势函数在高精度、大体系和高效率分子模拟的优势。其中 GAP 与 MTP 使用 72 核心英特尔至强 Gold 6240 处理器, DP 与 NEP 使用 32 GB 显存 Tesla V100GPU 加速。 ΔE 、 ΔF 与 ΔV 分别表示能量的均方根误差(meV/atom)、力的均方根误差(meV/Å)和位力的均方根误差(meV/atom)。速度

表1 机器学习势函数构建软件比较^[50]

Table 1 Comparison of machine learning potential function building software^[50]

Software	$\Delta E/(\text{meV} \cdot \text{atom}^{-1})$	$\Delta F/(\text{meV} \cdot \text{\AA}^{-1})$	$\Delta V/(\text{meV} \cdot \text{atom}^{-1})$	Speed/(step $\cdot \text{ms}^{-1}$)	N_{max}
DP (se2)	80	1 100	250	290	240×10^3
DP (se2+se3)	44	800	170	150	220×10^3
GAP	46	1 100	NA	6.1	
MTP (4 Å)	36	650	180	110	
MTP (5 Å)	35	630	200	61	
MTP (6 Å)	35	650	220	27	
NEP (4.2 Å)	42	690	160	3600	$10\,000 \times 10^3$
NEP (3.7 Å)	44	700	170	4600	$12\,000 \times 10^3$

单位为每 ms 的原子步数, 同时 $N_{\max}$ 表示在每块 Tesla V100 GPU 上可以模拟的体系最大原子数。

2.5 数据采集与训练集准备

训练集的获取是机器学习势函数中的根本问题。为了达到较高精度的势函数, 一般会选用第一性原理等高精度计算的数据作为训练集。在实践过程中, 不同体系、不同情况下获取训练集的方法也有所不同。

2.5.1 被动学习 被动学习在势函数训练中一般代指模型通过指定的训练集进行训练而不会进行新的训练集补充, 这里的补充指的是训练过程中的自动补充, 人工增加的训练集并不算在内。对于一般体系来说, 人工获取训练集是一个简单而较为方便的方式, 通过第一性原理软件获取的数据进行简单整理和转化即可开始训练。但人工获取训练集对使用者的理解要求较高, 对于外推性较差的势函数和一些较为复杂的体系来说, 充足而全面的训练集是必不可少的, 这就对训练集的准备提高了要求, 不能保证训练集的多样性与广覆盖, 训练的势函数便无法达到要求的精度。

2.5.2 主动学习 面对一些复杂体系, 主动学习是一个十分合适的数据挖掘方法。主动学习是指在训练过程中通过对训练的样本空间进行不断的探索和补充, 丰富训练集的一种训练方式。以 DeePMD 为例, DP-GEN 是集成了神经网络势能的主动学习工作流^[45]。在工作流的初始阶段, 训练仍需要一些手动构建的训练集。通过初始训练集, DeePMD 可以构建一个初始的势函数。利用该势函数进行经典分子动力学(CMD)模拟, 可以得到一系列构型空间, 通过对比得到构型, 根据特定指标将适合加入到训练集的构型筛选出来, 进行第一性原理标记计算, 再加入到下次的训练集中。该循环流程不仅能主动探索样本空间, 同时还能保证训练集的精简, 避免冗余, 节约了计算资源。

2.5.3 增强采样 主动学习为训练带来了一定的便利性, 但在面对复杂体系中不同构象时, 其构建的数据集可能仍具有一些不完整性。因此科学家们研究出了增强采样以探索这部分训练集。增强采样的方法较多^[52-54], 包括 Metadynamics 和 Umbrella sampling 等。

2.5.4 其他 针对一些复杂的反应体系或大分子体系时, 构象变化是体系达到平衡状态或响应外界诱导后最直观的表述, 关键的稳态和动态性质也需要通过构象平均或含时变化来计算, 因此有效的构

象采样是揭示体系变化机理和性质预测的基础。除了常用的一些采样方法, 一些从软硬件方面考虑的采样方法也十分常见。较为简单的一种方法是采用粗粒化方法, 减少体系自由度, 增加体系势能面的平滑度, 增大模拟步长等^[55]。

2.6 多尺度模拟介绍

随着近年来计算机技术和高性能计算的飞速发展, 数值模拟计算也取得了很多重大进展, 越来越多的计算方法被开发出来, 用于对多种材料和体系进行多种尺度下的多属性模拟计算^[56]。表 2 中展示了在热输运领域中常用的几种求解热导率的计算方法, 包括第一性原理结合 Boltzmann 输运方程^[57]、CMD^[58]、非平衡 Green 函数(NEGF)^[59-61]、Monte Carlo 方法(MC)^[62]和有限元模拟等。

2.6.1 第一性原理结合 Boltzmann 输运方程 密度泛函理论是基于量子力学的从头计算(*ab-initio*)理论, 通常也被称为第一性原理计算, 其计算方法和过程通常不需要依赖任何的经验参数就可以完成, 研究对象主要集中于原子尺度, 常用的计算软件有 Vienna *ab-initio* Simulation Package (VASP)^[63]和 Quantum Espresso (QE)^[64]等。现代研究体系多为具有多电子的原子、分子和等离子体系, 体系中各粒子之间具有复杂的相互作用关系。在实际模拟计算过程中常常需要一定的理论近似和简化, 在此基础上通过求解电子体系的 Schrodinger 方程从而确定离子系统的基态能量和电子能量, 进而得到所需的力学、热学、电学等相关性质。采用第一性原理计算的优点在于其可以实现原子级别的精准调控, 从而准确获得确定结构的物理化学性质。然而, 其缺点在于模拟尺度小, 无法完成介观尺度甚至宏观尺度的理论预测, 同时需要消耗大量的计算资源。

2.6.2 CMD Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator (LAMMPS)是一个经典的分子动力学代码, 可以模拟液体中的粒子, 固体和气体的系综, 也可以采用不同的力场和边界条件来模拟原子、聚合物、生物、固态(金属、陶瓷、氧化物)、颗粒、粗晶或宏观系统^[65]。LAMMPS 可以计算的体系小至几个粒子, 大到上百万甚至是上亿个粒子。LAMMPS 是一可以修改和扩展的计算程序, 比如, 可以加上一些新的力场, 原子模型, 边界条件和诊断功能等。

最近 Fan 等开发的分子动力学模拟 GPUMD 是一种通用分子动力学代码^[50, 66-69]。除了数据初始化和一些计算外, 所有其他的计算都在 GPU 上完成。

表 2 常用热导率计算方法对比

Table 2 Comparison of different thermal conductivity calculation methods

Calculation methods	Key points	Advancements and limitations
First principle calculation combined with boltzmann transport equation	The force constants are obtained by first principle calculations to solve the phonon boltzmann transport equation, which in some cases requires consideration of higher order phonon scattering or coupling of multiple carriers	High accuracy, but high computational cost
Molecular dynamics simulation	Study of thermal conductivity, density of states, phonon relaxation, etc. of materials based on Newton's equations through large size models	Relatively large systems can be studied, but the results are limited by the accuracy of the potential function
Non-equilibrium green's function	Combining NEGF and BTE methods to study phonon transport in more complex nanostructures	Ideal for studying low-dimensional materials, interface models, multilayer structures, etc., but insufficient consideration of non-simple harmonic scattering
Monte carlo method	Obtain the distribution of phonons by tracking their motion, and finally obtain the thermodynamic characteristics in the system, suitable for handling complex geometries and complex scattering cases	Simple algorithm, but computationally intensive
Finite element simulation	Based on the continuous medium theory, the system is divided into finite units, and the nodes are connected by mathematical equations to obtain the required properties	Device scale simulations can be performed, suitable for handling complex models, but the accuracy fluctuates greatly

除了高效之外, GPUMD 的另一个独特功能是它具有研究热传递的有效实用程序及数据处理流程。

2.6.3 MC 模拟 MC 模拟是以统计概率理论为基础, 采用随机抽样的方法来检测相空间。蒙特卡洛模拟主要用来模拟体系的平均热力学性质。该方法可用于流体、非晶材料、和生物细胞结构等复杂自由度的系统^[70]。

2.6.4 有限元模拟 有限元分析(FEA)利用数学近似的方法对真实物理系统进行模拟^[71–73]。当前利用有限元分析, 可以对体系的多种性质如电磁、力学、声学、传热传质进行分析。同时, 依靠有限元的尺寸优势, 可以对材料的特性和结构设计进行多物理场之间的耦合分析。

2.6.5 其他 NEGF 方法是研究具有开放边界条件的双端半无限电极电极模型的有力工具, 现已成为在原子尺度上模拟器件体系电子输运性质的标准工具^[74–77]。将 Semi Empirical 方法与 NEGF 方法结合进行自洽计算, 得到器件体系在非平衡态下的电子态, 并由此得到电子在器件散射区的透射概率谱, 进而分析电子的输运性质。

除了模拟计算之外, 在实验测量方面, 随着激光器技术的高速发展, 热反射测量技术(TDTR)和(FDTR)成为研究材料热输运属性的有力工具之一^[78–82]。其主要思想是利用超快激光技术, 在材料表面进行加热, 并在皮秒内探测出微米甚至纳米级的热信号变化, 获得温度梯度并计算材料的热特性。其中时域热反射(TDTR)技术是通过机械延时装置将加热激光和探测激光信号以一定时间分别施加, 以探测温度梯

度, 而频域热反射(FDTR)是通过在相位上对两类激光进行调制控制达到相同目的。热反射测量技术可以测量薄膜、衬底结构、块体等材料的热容、面内外热导率和界面热阻等属性。结合基于高精度机器学习势函数的分子动力学模拟和各种实验测量方法, 可以对各种材料和不同结构进行详细深入的研究, 对于探索发现新材料和调控研究现有材料有重大意义。

3 力学和热性质研究

第一性原理计算是探索基态原始结构力学性质的有力工具, 但对于有限温度下的大型模拟体系, 计算成本变得非常昂贵。经典分子动力学模拟提供了研究更大系统的可能性^[83–84], 但它们需要精确的原子间势函数。机器学习势函数的出现, 使分子动力学模拟能够以接近第一性原理的精度进行大尺度的模拟^[85–89]。因此, 当前该新型模拟方法已经应用于材料力学性质的预测, 将推动材料科学模拟的进一步发展。

3.1 力学性质

碳作为地球上最基本的元素, 关于其各种同素异形体的研究是当前热点领域。在有关碳的分子动力学模拟研究中, 常用的经验势函数有 AIREBO^[90], REBO^[91], Tersoff^[92]等。石墨烯作为二维材料的代表之一, 吸引了许多的研究者。常用的模拟方法有分子动力学模拟和 DFT 计算。但是, 在关于石墨烯的力学性质-负 Poisson 比该 2 种研究方法存在争议。传统的分子动力学模拟认为键长增加是导致石

石墨烯负 Poisson 比的原因^[93], 而第一性原理计算发现键角的增加是石墨烯负 Poisson 比潜在的物理机制^[94]。为了解决深入分析石墨烯的负 Poisson 比性质, Wu 等^[2]采用 MTP 机器学习势函数研究了应力驱动下, 键长键角的演变。为了验证势函数的准确性, 使用机器学习势函数预测了石墨烯的能量和力, 并且与第一性原理的结果比较。结果表明该势函数具有很高的精度, 如图 3a 所示。进一步地, 结合机器学习势函数计算出石墨烯的声子谱并且与传统的

经验势函数和第一性原理结果对比, 可以发现该机器学习势函数具有第一性原理精度, 如图 3b 所示。机器学习方法所预测的负 Poisson 比结果(图 3d)与第一性原理的结果基本一致, 而传统经验势函数的误差非常明显。

机器学习势函数的研究结果表明石墨烯负 Poisson 比的物理机制来源于键角增加, 如图 3d 所示。该研究表明基于机器学习势函数的分子动力学模拟有能力在更大的尺度上达到第一性原理精度。

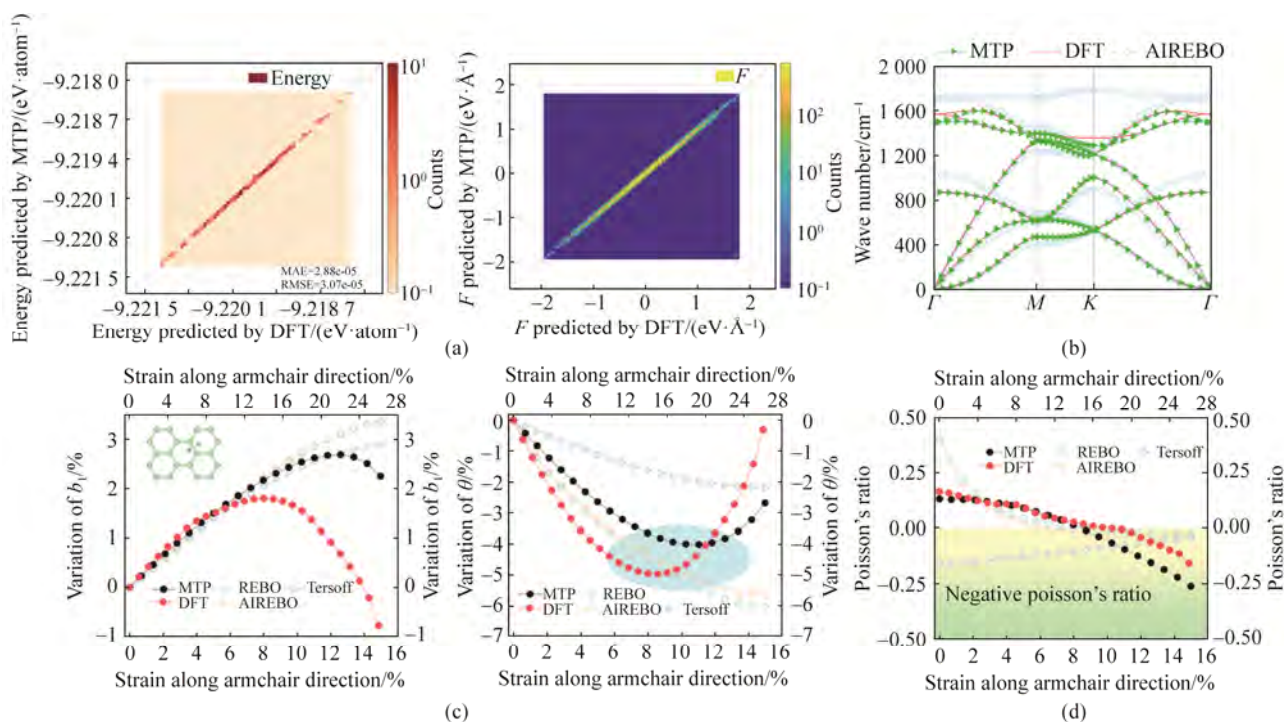


图 3 机器学习势函数应用于材料力学性质研究^[2]

Fig. 3 Application of machine learning function to the study of mechanical properties of materials^[2]

机器学习势函数也用于类石墨烯材料 BC₂N 力学性质的研究。Bohayra Mortazavi 等^[31]同样采用 MTP 势函数研究了 BC₂N 在单轴应力下不同方向的力学响应, 研究结果表明二维材料 BC₂N 具有良好的力学特性。

除了用于二维材料力学性质的研究, 机器学习势函数也被用于研究高熵合金的弹性特性。Dai 等^[95]结合 DeePMD 机器学习势函数预测了高熵合金 (Zr_{0.2}Hf_{0.2}Ti_{0.2}Nb_{0.2}Ta_{0.2})C 在温度范围从 0 到 2 400 °C 的弹性特性。预测值与实验测量结果吻合较好, 表明 DeePMD 较高的准确性。

随着机器学习势函数的发展, 以往传统方法难以解决的问题现在可以得到很好的解决, 通过这种高精度的分子动力学模拟, 有望在未来获得对高熵合金等体系力学特性的深入了解。

3.2 热输运性质

研究材料的热输运性质, 常用的模拟方法有第一性原理计算和分子动力学模拟等。由于传统的分子动力学模拟受限于经验势函数, 最终得到的结果往往不可靠。机器学习势函数的出现, 为提高分子动力学模拟的精度带来了机遇, 同时也为研究复杂材料的热输运性质提供了新的途径。

3.2.1 相变研究 硅作为重要的工业半导体材料之一, 准确研究其热输运性质非常重要。Li 等^[43]使用 DeePMD 机器学习方法准确拟合了晶体硅, 非晶硅和无定型硅的势函数, 形成了一个包含 3 个相的势函数。结合平衡态分子动力学模拟可以准确计算晶体硅 200~1 000 K 范围内的晶格热导率。使用分子动力学模拟结合该势函数计算出了晶体硅到非晶硅的相变温度, 与实验结果能够基本吻合。该研

研究工作表明, 基于统一的神经网络势函数是研究材料热运输和相变非常具有前景的工具, 具有较高的精度。

除了将机器学习势函数应用于固-液相变, 研究人员也将机器学习势函数引入了固-固相变研究中。硫化锡(SnS)因其无毒且富含稀土元素而在热电领域引起人们的特别关注^[96], 然而高温高压条件下, 由于SnS中存在很强的晶格非谐性和结构相变, SnS中的声子和热运输机制还没有得到充分的理解。Ouyang等^[97]构建了SnS基于第一性原理的MTP机器学习势, 可以预测结构相变在不同温度和压力下的晶格动态演化。例如在低温区, 随着压力的增加, SnS的 Γ_4 和 Y_1 声子频率出现了异常的下降, 这是由结构相变引起的。除此之外, 还研究了SnS的晶格热导率随温度和压力的变化, 研究结果为进一步

研究SnS在高温高压下的声子和热运输提供了借鉴意义

3.2.2 本征性质研究 在探索新材料过程中需要计算每一个新材料的性质来评估该材料, 导致计算量快速增加。机器学习势函数的出现使探索新材料的计算量有了明显的下降, 缩短了新材料的研发周期。以热电材料SnSe为例, Guo等^[98]使用RG₂代码探索了28 000种新的SnSe结构, 计算每种结构的形成能发现其中有16种结构更稳定。通过力学计算、热力学计算和电子适应度函数, 研究了新结构的稳定性和电学性能。随着温度从300 K升高到800 K, 晶格电导率从300 K时的1.13 W/(m·K)下降到800 K时的0.44 W/(m·K)。这项工作不仅证明了新结构的优异性能, 而且为理解循环结构的热运输性能提供了深入的见解。

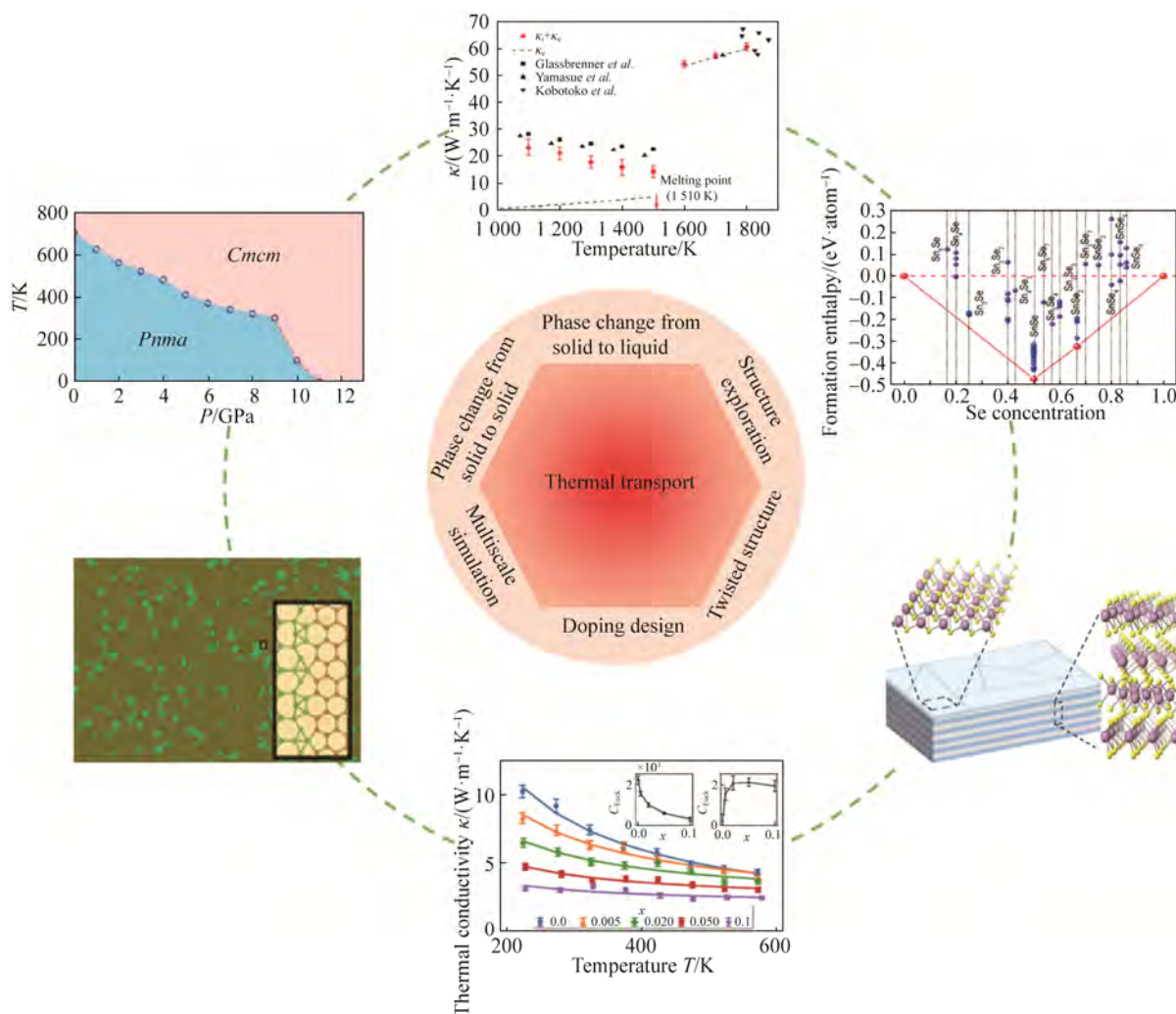


图4 机器学习势函数应用于材料热运输性质研究^[98, 100–104]

Fig. 4 Machine learning potential applied to the study of thermal transport properties of materials^[98, 100–104]

当前经典分子动力学模拟和有限元方法被广泛用于研究更大、更真实的系统, 但反过来依赖经验

信息。Bohayra Mortazavi等^[99–100]已以第一性原理为桥梁训练机器学习势函数, 以有效的模拟介观及宏

观结构。以石墨烯-硼烯异质结为例, 基于 MTP 的机器学习势函数的分子动力学模拟方法可以有效地预测多种石墨烯/硼烯异质结构的界面热导。然后将分子动力学获得的数据提供给有限元模拟, 计算宏观尺度下石墨烯-硼烯多晶材料的有效热导率。从而为在连续介质水平上研究异质结构的有效热导率提供了经验指导。这项工作突出的应用了 DFT/CMD/FEM 模拟, 表明机器学习势函数可以有效且方便地用于第一性原理多尺度建模, 从而拓展了新型纳米结构的性质计算。

层间旋转是当前研究的热点方向, 相比传统的 AA 和 AB 堆叠的二维材料, 双层 MoS_2 旋转后的结构会产生一些特殊的性质。Kim 等^[102]打破了传统双层 MoS_2 的 AA 和 AB 堆叠方式, 利用晶体层之间的随机旋转调控面内和面外热导率之比。实验结果表明面内与面外热导率的比值为 880 ± 110 , 超过了已有的报道。为深入分析潜在的物理机制, 他们采用 NEP 机器学习方法拟合了旋转任意角度后的双层 MoS_2 的势函数。均相非平衡分子动力学(HNEMD)模拟的结果表明随机的层间旋转是热输运机制改变、面外导热受阻的主要原因。

机器学习势函数对于全固态电池电解质中热输运微观的机制是非常有效的。Paolo Pegolo 等^[104]使用第一性原理计算和基于机器学习势函数的分子动力学模拟, 计算了典型锂离子导体 Li_3ClO 反钙钛矿

的热导率。研究结果揭示了空位数量的增加导致了局部无序, 从而在 Li_3ClO 中出现了玻璃态。并且在高温时其热导率趋于稳定, 并不是与 $1/T$ 曲线吻合。最终的计算表明, 即使 Li_3ClO 在实际器件中的散热能力将会降低, 但是 Li_3ClO 在相当大的温度范围内仍然具有良好的热导率。该研究工作表明基于机器学习势函数的分子动力学模拟获得的结果, 能为器件热管理的实际设计提供指导意义。

3.2.3 界面研究 随着半导体器件的微型化, 高功率化, 散热问题已成为制约其工作可靠性和稳定性的重要因素之一。因此, 研究半导体器件中界面导热的科学问题至关重要。而砷化硼(BAs)材料拥有极高的热导率^[105-108], 有望作为高效散热介质为宽禁带半导体氮化镓(GaN)基电子器件的应用提供可靠的散热保障。实验研究已表明 GaN-BAs 键合界面有超高的界面热导^[109], 但对于其传热机理尚缺乏深入的认识。Wu 等^[110]成功拟合了 BAs 的机器学习势函数, 填补了 BAs 在导热应用中多年以来的空白。除此之外, 该工作精确和高效的构地构建了 GaN-BAs 异质结的机器学习势函数并采用多尺度模拟方法, 详细分析了 GaN/BAs 界面传热的物理机制。这种基于机器学习势函数驱动的多尺度模拟不仅促进了 BAs 冷却基板在电子领域的实际应用, 而且为设计先进的热管理系统提供了新的途径。

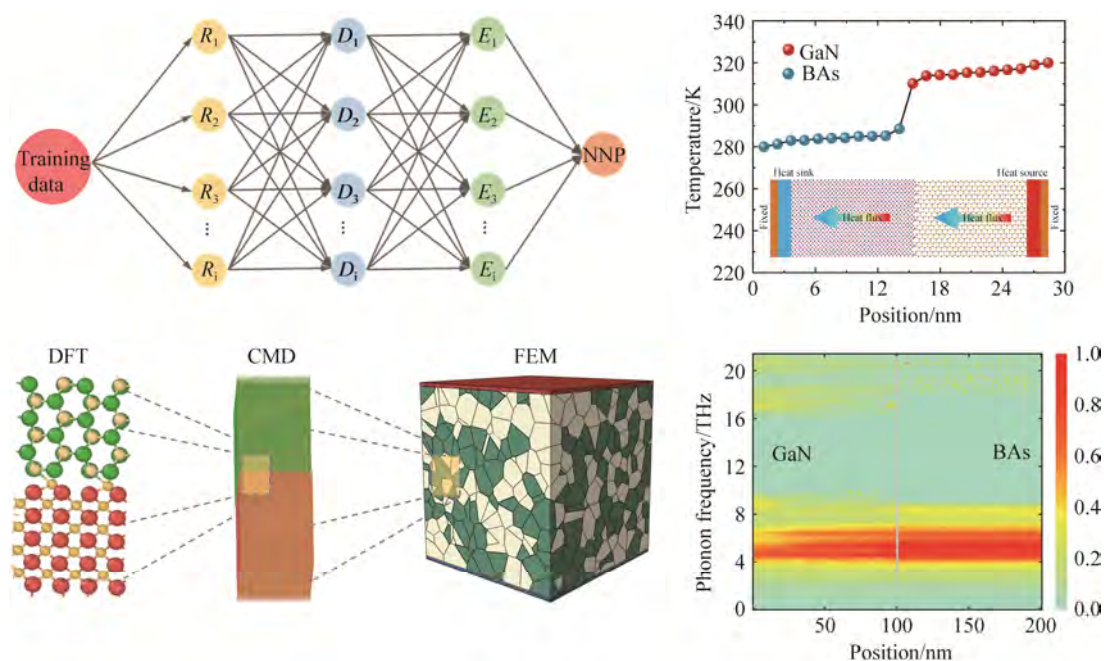


图 5 GaN-BAs 界面热输运多尺度研究示意图^[110]

Fig. 5 Schematic diagram of multi-scale of thermal transport at GaN-BAs interface^[110]

综上所述,采用基于机器学习势函数的分子动力学模拟,在计算精度方面能以第一性原理的精度准确预测共价键和金属键材料力热性质,远远高于传统的经验势函数。虽然其计算效率低于传统的经验势函数,但在计算精度上有了很大的提升。值得注意的是,当前机器学习势函数缺少在有机物模拟体系方面的应用,需要后续的研究工作进行探索。

4 总结与展望

随着各行业对具有更高更好性能材料的探索需求不断增加,由于同时具有精度和效率两个优点,基于机器学习势函数并且通过多尺度模拟的方法对二维材料和合金材料的力学性质以及非晶体材料和晶体材料等的热输运性质进行研究,已经受到了广泛的使用和认可。但是目前这种方法仍然面临着一些挑战需要去探索并且在未来寻找更好的解决办法。

4.1 机器学习模型与训练集

目前用于拟合原子间相互作用的机器学习势函数模型,主要有 Gaussian 近似、矩张量和神经网络。不同的机器学习模拟精度相差较小,但是计算效率相差较大,其中基于神经网络的机器学习势函数模型更具有优势。此外, Gaussian 近似、矩张量和基于神经网络方法的神经进化势对于训练集数量的敏感度较小,传统的人工神经网络势则需要大量的训练样本才能覆盖完整的势能面。

当前训练一个准确的势函数,主要的难点在于训练集的获取,尽管已有采用主动学习方法获取训练集的方法和软件 DP-GEN,但对于复杂体系,如固-液相变,使用该方法则存在一定难度。因此,如何高效获取训练集是亟需解决的问题。

4.2 精度与效率

基于第一性原理分子动力学模拟获得的结果非常精确,可信度高,但是极其低效,难以运用于大体系长时间模拟。虽然根据经验描述以及假设获得的经验力场能够大规模长时间的进行分子动力学模拟,但是其精度太低,可信度不高。随着机器学习在各个学科的应用,具有高精度和高效率的机器学习势函数应运而生。在大规模的材料分子动力学模拟研究中,经验力场的计算效率是最高的,机器学习势函数与其相比存在较大的差距。但是机器学习势函数的精度却比经验力场高了很多,接近第一性原理计算的结果。所以越来越多的人倾向于使用机器学习势函数来研究材料的力热性质,相信随着机

器学习技术的不断发展以及高性能计算机集群的不断迭代,机器学习势函数会给材料领域的研究带来许多便利。

4.3 可迁移性与通用性

虽然机器学习势函数凭借这其高精度和高效率获得了不少材料研究者的青睐,但是机器学习势函数也有一些不足,特别是机器学习势函数的通用性不高。也就是说它只有一个狭窄的适用范围,如果将其运用在一些训练集没有涉及的模拟环境,那么机器学习势函数的可靠性将会大幅度降低^[86]。同时机器学习势函数也缺乏通用性,比如在研究 2 个元素的合金的时候,之前所构建的 2 个元素的单独机器学习势函数无法适用,而需要构造一个能运用于合金的新的机器学习势函数,或者是通过扩展单独的元素势函数来实现 2 种元素的合金势。近年来,迁移学习方法已经被广泛用于提高对目标数据的预测效果或标注精度,以及数据小样本等问题。已有研究者使用迁移学习解决机器学习势函数通用性的问题^[111],但目前处于初步阶段,同时研究人员也在探索解决机器学习模型的可解释性问题。

4.4 电子效应

大部分机器学习力场无法清楚地描述化学系统,描述符只考虑了原子的自由度,而不包含电子结构相关的信息^[112]。例如总电荷和自旋态,当所研究的系统具有一致的电子态,那么不会受太大的影响,而实际上量子系统本质上是非局域的,在一些情况下机器学习势函数无法构建合理的模型,这方面需要进一步的研究探索。

未来,拟合机器学习势函数将朝着快速化、自动化和通用化发展,分子动力学模拟将不会再受到缺乏精确势函数这一瓶颈问题的限制。另一方面,解决基于机器学习势函数分子动力学模拟低效率的问题也是亟需努力的方向。

参考文献:

- [1] HUANG X, GUO Z. Thermal effect of epilayer on phonon transport of semiconducting heterostructure interfaces[J]. Int J Heat Mass Transfer, 2021, 178: 121613.
- [2] WU J, ZHOU E, QIN Z, et al. Accessing negative Poisson's ratio of graphene by machine learning interatomic potentials[J]. Nanotechnology, 2022, 33(27): 275710.
- [3] DU Y, MAASSEN J, WU W, et al. Auxetic black phosphorus: A 2D material with negative Poisson's ratio[J]. Nano Lett, 2016, 16(10): 6701–6708.
- [4] FAN Y, XIANG Y, SHEN H S. Temperature-dependent negative Poisson's ratio of monolayer graphene: Prediction from molecular dynamics simulations[J]. Nanotechnol Rev, 2019, 8(1): 415–421.

- [5] GRIMA J N, WINCZEWSKI S, MIZZI L, et al. Tailoring graphene to achieve negative Poisson's ratio properties[J]. *Adv Mater*, 2015, 27(8): 1455–1459.
- [6] HO D T, HO V H, PARK H S, et al. Negative in-plane Poisson's ratio for single layer black phosphorus: An atomistic simulation study[J]. *Phys Status Solidi (b)*, 2017, 254(12): 1700285.
- [7] CAI Y, KANG S, XU X. Extremely high tensile strength and superior thermal conductivity of an sp^3 -hybridized superhard C_{24} fullerene crystal[J]. *J Mater Chem A*, 2019, 7(7): 3426–3431.
- [8] CAI Q, SCULLION D, GAN W, et al. High thermal conductivity of high-quality monolayer boron nitride and its thermal expansion[J]. *Sci Adv*, 2019, 5(6): eaav0129.
- [9] CARRETE J, LI W, MINGO N, et al. Finding unprecedentedly low-thermal-conductivity half-Heusler semiconductors via high-throughput materials modeling[J]. *Phys Rev X*, 2014, 4(1): 011019.
- [10] CUI Y, QIN Z, WU H, et al. Flexible thermal interface based on self-assembled boron arsenide for high-performance thermal management[J]. *Nat Commun*, 2021, 12(1): 1284.
- [11] ZHENG Q, LI S, LI C, et al. High thermal conductivity in isotopically enriched cubic boron phosphide[J]. *Adv Funct Mater*, 2018, 28(43): 1805116.
- [12] XIE X, YANG K, LI D, et al. High and low thermal conductivity of amorphous macromolecules[J]. *Phys Rev B*, 2017, 95(3): 035406.
- [13] FENG T, RUAN X. Ultra-low thermal conductivity in graphene nanomesh[J]. *Carbon*, 2016, 101: 107–113.
- [14] SIVARAMAN G, KRISHNAMOORTHY A N, BAUR M, et al. Machine-learned interatomic potentials by active learning: amorphous and liquid hafnium dioxide[J]. *npj Comput Mater*, 2020, 6(1): 104.
- [15] ROWE P, DERINGER V L, GASPAROTTO P, et al. An accurate and transferable machine learning potential for carbon[J]. *J Chem Phys*, 2020, 153(3): 034702.
- [16] ROWE P, CSÁNYI G, ALFÈ D, et al. Development of a machine learning potential for graphene[J]. *Phys Rev B*, 2018, 97(5): 054303.
- [17] QIAN X, PENG S, LI X, et al. Thermal conductivity modeling using machine learning potentials: Application to crystalline and amorphous silicon[J]. *Mater Today Phys*, 2019, 10: 100140.
- [18] PODRYABINKIN E V, TIKHONOV E V, SHAPEEV A V, et al. Accelerating crystal structure prediction by machine-learning interatomic potentials with active learning[J]. *Phys Rev B*, 2019, 99(6): 064114.
- [19] ROWE P, DERINGER V L, GASPAROTTO P, et al. An accurate and transferable machine learning potential for carbon[J]. *J Chem Phys*, 2020, 153(3): 034702.
- [20] PERILLA J R, GOH B C, CASSIDY C K, et al. Molecular dynamics simulations of large macromolecular complexes[J]. *Curr Opin Struct Biol*, 2015, 31: 64–74.
- [21] ZHANG X, XIE H, HU M, et al. Thermal conductivity of silicene calculated using an optimized Stillinger-Weber potential[J]. *Phys Rev B*, 2014, 89(5): 054310.
- [22] YUE S Y, QIN G, ZHANG X, et al. Thermal transport in novel carbon allotropes with sp^2 or sp^3 hybridization: An *ab initio* study[J]. *Phys Rev B*, 2017, 95(8): 085207.
- [23] QIN G, HAO K R, YAN Q B, et al. Exploring T-carbon for energy applications[J]. *Nanoscale*, 2019, 11(13): 5798–5806.
- [24] QIN G, QIN Z, FANG W Z, et al. Diverse anisotropy of phonon transport in two-dimensional group IV–VI compounds: A comparative study[J]. *Nanoscale*, 2016, 8(21): 11306–11319.
- [25] QIN G, QIN Z, WANG H, et al. Anomalously temperature-dependent thermal conductivity of monolayer GaN with large deviations from the traditional $1/T$ law[J]. *Phys Rev B*, 2017, 95(19): 195416.
- [26] HANAKATA P Z, CUBUK E D, CAMPBELL D K, et al. Accelerated search and design of stretchable graphene kirigami using machine learning[J]. *Phys Rev Lett*, 2018, 121(25): 255304.
- [27] CHAN H, NARAYANAN B, CHERUKARA M J, et al. Machine learning classical interatomic potentials for molecular dynamics from first-principles training data[J]. *J Phys Chem C*, 2019, 123(12): 6941–6957.
- [28] CHEN L, TRAN H, BATRA R, et al. Machine learning models for the lattice thermal conductivity prediction of inorganic materials[J]. *Comput Mater Sci*, 2019, 170: 109155.
- [29] KOROTAEV P. Accessing thermal conductivity of complex compounds by machine learning interatomic potentials[J]. *Phys Rev B*, 2019, 100: 144308.
- [30] LIU H, QIAN X, BAO H, et al. High-temperature phonon transport properties of SnSe from machine-learning interatomic potential[J]. *J Phys: Condensed Matter*, 2021, 33(40): 405401.
- [31] MORTAZAVI B, NOVIKOV I S, SHAPEEV A V. A machine-learning-based investigation on the mechanical/failure response and thermal conductivity of semiconducting BC₂N monolayers[J]. *Carbon*, 2022, 188: 431–441.
- [32] MORTAZAVI B, PODRYABINKIN E V, NOVIKOV I S, et al. Efficient machine-learning based interatomic potentials for exploring thermal conductivity in two-dimensional materials[J]. *J Phys: Materials*, 2020, 3(2): 02LT02.
- [33] MORTAZAVI B, JAVVAJI B, SHOJAEI F, et al. Exceptional piezoelectricity, high thermal conductivity and stiffness and promising photocatalysis in two-dimensional MoSi₂N₄ family confirmed by first-principles[J]. *Nano Energy*, 2021, 82: 105716.
- [34] BLANK T B, BROWN S D, CALHOUN A W, et al. Neural network models of potential energy surfaces[J]. *J Chem Phys*, 1995, 103(10): 4129–4137.
- [35] BEHLER J, PARRINELLO M. Generalized neural-network representation of high-dimensional potential-energy surfaces[J]. *Phys Rev Lett*, 2007, 98(14): 146401.
- [36] SHAPEEV A V. Moment tensor potentials: A class of systematically improvable interatomic potentials[J]. *Multiscale Model Simul*, 2016, 14(3): 1153–1173.
- [37] BARTÓK A P, PAYNE M C, KONDOR R, et al. Gaussian approximation potentials: The accuracy of quantum mechanics, without the electrons[J]. *Phys Rev Lett*, 2010, 104(13): 136403.
- [38] FAN Z, ZENG Z, ZHANG C, et al. Neuroevolution machine learning potentials: Combining high accuracy and low cost in atomistic simulations and application to heat transport[J]. *Phys Rev B*, 2021, 104(10): 104309.
- [39] WANG H, ZHANG L, HAN J, et al. DeePMD-kit: A deep learning package for many-body potential energy representation and molecular dynamics[J]. *Comput Phys Commun*, 2018, 228: 178–184.
- [40] CALEGARI ANDRADE M F, KO H Y, ZHANG L, et al. Free energy of proton transfer at the water–TiO₂ interface from *ab initio* deep potential molecular dynamics[J]. *Chem Sci*, 2020, 11(9): 2335–2341.
- [41] DAI F Z, SUN Y, WEN B, et al. Temperature dependent thermal and elastic properties of high entropy (Ti_{0.2}Zr_{0.2}Hf_{0.2}Nb_{0.2}Ta_{0.2})B₂: molecular dynamics simulation by deep learning potential[J]. *J Mater*

- Sci Technol, 2021, 72: 8–15.
- [42] GARTNER T E, ZHANG L, PIAGGI P M, et al. Signatures of a liquid–liquid transition in an ab initio deep neural network model for water[J]. *Proceed National Academy Sci*, 2020, 117(42): 26040–26046.
- [43] LI R, LEE E, LUO T. A unified deep neural network potential capable of predicting thermal conductivity of silicon in different phases[J]. *Mater Today Phys*, 2020, 12: 100181.
- [44] SHI M, MO P, LIU J. Deep neural network for accurate and efficient atomistic modeling of phase change memory[J]. *IEEE Electron Device Lett*, 2020, 41(3): 365–368.
- [45] ZHANG Y, WANG H, CHEN W, et al. DP-GEN: A concurrent learning platform for the generation of reliable deep learning based potential energy models[J]. *Comput Phys Commun*, 2020, 253: 107206.
- [46] MORTAZAVI B, PODRYABINKIN E V, NOVIKOV I S, et al. Accelerating first-principles estimation of thermal conductivity by machine-learning interatomic potentials: A MTP/ShengBTE solution[J]. *Comput Phys Commun*, 2021, 258: 107583.
- [47] NOVIKOV I S, GUBAEV K, PODRYABINKIN E, et al. The MLIP package: Moment tensor potentials with mpi and active learning[J]. *Machine Learn: Sci Technol*, 2020, 2: 025002.
- [48] NOVOSELOV I I, YANILKIN A V, SHAPEEV A V, et al. Moment tensor potentials as a promising tool to study diffusion processes[J]. *Comput Mater Sci*, 2019, 164: 46–56.
- [49] SUN P P, BAI L, KRIPALANI D R, et al. A new carbon phase with direct bandgap and high carrier mobility as electron transport material for perovskite solar cells[J]. *npj Comput Mater*, 2019, 5(1): 9.
- [50] FAN Z, WANG Y, YING P, et al. GPUMD: A package for constructing accurate machine-learned potentials and performing highly efficient atomistic simulations[J]. *J Chem Phys*, 2022, 157(11): 114801.
- [51] DERINGER V L, CSÁNYI G. Machine learning based interatomic potential for amorphous carbon[J]. *Phys Rev B*, 2017, 95(9): 094203.
- [52] BONATI L, PARRINELLO M. Silicon liquid structure and crystal nucleation from *Ab Initio* deep metadynamics[J]. *Phys Rev Lett*, 2018, 121(26): 265701.
- [53] YANG M, BONATI L, POLINO D, et al. Using metadynamics to build neural network potentials for reactive events: the case of urea decomposition in water[J]. *Catal Today*, 2022, 387: 143–149.
- [54] ZHU Q, ZENG Q, OGANOV A R. Systematic search for low-enthalpy sp³ carbon allotropes using evolutionary metadynamics[J]. *Physical Review B*, 2012, 85(20): 201407.
- [55] ZENG J, CAO L, XU M, et al. Complex reaction processes in combustion unraveled by neural network based molecular dynamics simulation[J]. *Nat Commun* 2020, 11: 5713.
- [56] CHEN J, GU X, CAO B. A review of simulation methods in micro/nanoscale heat conduction[J]. *ES Energy Environ*, 2018, 1(39): 16–55.
- [57] LI W, CARRETE J, A. KATCHO N, et al. ShengBTE: A solver of the Boltzmann transport equation for phonons[J]. *Comput Phys Commun*, 2014, 185(6): 1747–1758.
- [58] HANSSON T, OOSTENBRINK C, VAN GUNSTEREN W. Molecular dynamics simulations[J]. *Current Opinion Struct Biol*, 2002, 12(2): 190–196.
- [59] MINGO N, YANG L. Phonon transport in nanowires coated with an amorphous material: An atomistic Green's function approach[J]. *Phys Rev B*, 2003, 68(24): 245406.
- [60] OZPINECI A, CIRACI S. Quantum effects of thermal conductance through atomic chains[J]. *Phys Rev B*, 2001, 63(12): 125415.
- [61] SEGAL D, NITZAN A, HÄNGGI P. Thermal conductance through molecular wires[J]. *J Chem Phys*, 2003, 119(13): 6840–6855.
- [62] JENG M S, YANG R, SONG D, et al. Modeling the thermal conductivity and phonon transport in nanoparticle composites using monte carlo simulation[J]. *J Heat Transfer*, 2008, 130(4): 042410.
- [63] FUCHS F, FURTHMÜLLER J, BECHSTEDT F, et al. Quasiparticle band structure based on a generalized Kohn-Sham scheme[J]. *Phys Rev B*, 2007, 76(11): 115109.
- [64] GIANNOZZI P, ANDREUSSI O, BRUMME T, et al. Advanced capabilities for materials modelling with Quantum ESPRESSO[J]. *J Phys: Condensed Matter*, 2017, 29(46): 465901.
- [65] STEVEPLIMPTON. Fast parallel algorithms for short-range molecular dynamics[J]. *J Computa Phys*, 1995, 117(1): 1–19.
- [66] DONG H, HIRVONEN P, FAN Z, et al. Heat transport across graphene/hexagonal-BN tilted grain boundaries from phase-field crystal model and molecular dynamics simulations[J]. *J Appl Phys*, 2021, 130(23): 235102.
- [67] FAN Z, CHEN W, VIERIMAA V, et al. Efficient molecular dynamics simulations with many-body potentials on graphics processing units[J]. *Comput Phys Commun*, 2017, 218: 10–16.
- [68] FAN Z, ZENG Z, ZHANG C, et al. Neuroevolution machine learning potentials: Combining high accuracy and low cost in atomistic simulations and application to heat transport[J]. *Phys Rev B*, 2021, 104(10): 104309.
- [69] GABOURIE A J, FAN Z, ALA-NISSILA T, et al. Spectral decomposition of thermal conductivity: Comparing velocity decomposition methods in homogeneous molecular dynamics simulations[J]. *Phys Rev B*, 2021, 103(20): 205421.
- [70] JENG M S, YANG R, SONG D, et al. Modeling the thermal conductivity and phonon transport in nanoparticle composites using monte carlo simulation[J]. *J Heat Transfer*, 2008, 130(4): 042410.
- [71] FLOURY J, CARSON J, PHAM Q T. Modelling thermal conductivity in heterogeneous media with the finite element method[J]. *Food Bioproc Technol*, 2008, 1(2): 161–170.
- [72] LENGVARSKÝ P, BOCKO J. Prediction of Young's modulus of graphene sheets by the finite element method[J]. *Am J Mech Eng*, 2015, 3(6): 225–229.
- [73] MINGO N, YANG L. Phonon transport in nanowires coated with an amorphous material: An atomistic Green's function approach[J]. *Phys Rev B*, 2003, 68(24): 245406.
- [74] BRANDBYGE M, MOZOS J L, ORDEJÓN P, et al. Density-functional method for nonequilibrium electron transport[J]. *Phys Rev B*, 2002, 65(16): 165401.
- [75] DONG J, ZHANG B, ZHANG S, et al. Effects of interface charge-transfer doping on thermoelectric transport properties of black phosphorene-F4TCNQ nanoscale devices[J]. *Appl Surface Sci*, 2022, 579: 152155.
- [76] TAO Y, CAI S, WU C, et al. Anisotropic phonon transport in van der Waals nanostructures[J]. *Phys Lett A*, 2022, 427: 127920.
- [77] GU X, FAN Z, BAO H. Thermal conductivity prediction by atomistic simulation methods: Recent advances and detailed comparison[J]. *J Appl Phys*, 2021, 130(21): 210902.
- [78] JIANG P, QIAN X, YANG R. Tutorial: Time-domain thermoreflectance (TDTR) for thermal property characterization of bulk and thin film materials[J]. *J Appl Phys*, 2018, 124(16): 161103.
- [79] ZHANG Y, ESLAMISARAY M A, FENG T, et al. Observation of suppressed diffuson and propagon thermal conductivity of

- hydrogenated amorphous silicon films[J]. *Nanoscale Adv*, 2022, 4(1): 87–94.
- [80] WANG M, RAMER G, PEREZ-MORELO D J, et al. High throughput nanoimaging of thermal conductivity and interfacial thermal conductance[J]. *Nano Lett*, 2022, 22(11): 4325–4332.
- [81] THAKUR S, DIONNE C J, KARNA P, et al. Density and atomic coordination dictate vibrational characteristics and thermal conductivity of amorphous silicon carbide[J]. *Phys Rev Mater*, 2022, 6(9): 094601.
- [82] JIANG P, WANG D, XIANG Z, et al. A new spatial-domain thermoreflectance method to measure a broad range of anisotropic in-plane thermal conductivity[J]. *Int J Heat Mass Transfer*, 2022, 191: 122849.
- [83] ALAGHEMANDI M, ALGAER E, BÖHM M C, et al. The thermal conductivity and thermal rectification of carbon nanotubes studied using reverse non-equilibrium molecular dynamics simulations[J]. *Nanotechnology*, 2009, 20(11): 115704.
- [84] CHEN W, ZHANG J, YUE Y. Molecular dynamics study on thermal transport at carbon nanotube interface junctions: Effects of mechanical force and chemical functionalization[J]. *Int J Heat Mass Transfer*, 2016, 103: 1058–1064.
- [85] BARTÓK A P, KERMODE J, BERNSTEIN N, et al. Machine learning a general-purpose interatomic potential for silicon[J]. *Phys Rev X*, 2018, 8(4): 041048.
- [86] BUTLER K T, DAVIES D W, CARTWRIGHT H, et al. Machine learning for molecular and materials science[J]. *Nature*, 2018, 559(7715): 547–555.
- [87] CHAN H, SASIKUMAR K, SRINIVASAN S, et al. Machine learning a bond order potential model to study thermal transport in WSe₂ nanostructures[J]. *Nanoscale*, 2019, 11(21): 10381–10392.
- [88] CHEN L, TRAN H, BATRA R, et al. Machine learning models for the lattice thermal conductivity prediction of inorganic materials[J]. *Comput Mater Sci*, 2019, 170: 109155.
- [89] KOROTAEV P. Accessing thermal conductivity of complex compounds by machine learning interatomic potentials[J]. *Phys Rev B*, 2019, 100(14): 144308.
- [90] STUART S J, TUTEIN A B, HARRISON J A. A reactive potential for hydrocarbons with intermolecular interactions[J]. *J Chem Phys*, 2000, 112(14): 6472–6486.
- [91] BRENNER D W, SHENDEROVA O A, HARRISON J A, et al. A second-generation reactive empirical bond order (REBO) potential energy expression for hydrocarbons[J]. *J Phys: Condensed Matter*, 2002, 14(4): 783.
- [92] SEVIK C, KINACI A, HASKINS J B. Influence of disorder on thermal transport properties of boron nitride nanostructures[J]. *Phys Rev B*, 2012, 86(7): 075403.
- [93] JIANG J W, CHANG T, GUO X, et al. Intrinsic negative Poisson's ratio for single-layer graphene[J]. *Nano Lett*, 2016, 16(8): 5286–5290.
- [94] QIN Z, QIN G, HU M. Origin of anisotropic negative Poisson's ratio in graphene[J]. *Nanoscale*, 2018, 10(22): 10365–10370.
- [95] DAI F Z, WEN B, SUN Y, et al. Theoretical prediction on thermal and mechanical properties of high entropy (Zr_{0.2}Hf_{0.2}Ti_{0.2}Nb_{0.2}Ta_{0.2})C by deep learning potential[J]. *J Mater Sci Technol*, 2020, 43: 168–174.
- [96] HEO S H, YOO J, LEE H, et al. Solution-processed hole-doped snse thermoelectric thin-film devices for low-temperature power generation[J]. *ACS Energy Lett*, 2022, 7(6): 2092–2101.
- [97] OUYANG N, WANG C, CHEN Y. Temperature- and pressure-dependent phonon transport properties of SnS across phase transition from machine-learning interatomic potential[J]. *Int J Heat Mass Transfer*, 2022, 192: 122859.
- [98] GUO D, LI C, LI K, et al. The thermoelectric performance of new structure SnSe studied by quotient graph and deep learning potential[J]. *Mater Today Energy*, 2021, 20: 100665.
- [99] MORTAZAVI B, SILANI M, PODRYABINKIN E V, et al. First-principles multiscale modeling of mechanical properties in graphene/borophene heterostructures empowered by machine-learning interatomic potentials[J]. *Adv Mater*, 2021: 2102807.
- [100] MORTAZAVI B. Machine-learning interatomic potentials enable first-principles multiscale modeling of lattice thermal conductivity in graphene/borophene heterostructures[J]. *Mater Horizons*, 2020, 9: 2359–2367.
- [101] HE R, WU H, ZHANG L, et al. Structural phase transitions in SrTiO₃ from deep potential molecular dynamics[J]. *Phys Rev B*, 2022, 105(6): 064104.
- [102] KIM S E, MUJID F, RAI A, et al. Extremely anisotropic van der Waals thermal conductors[J]. *Nature*, 2021, 597(7878): 660–665.
- [103] LI R, LEE E, LUO T. A unified deep neural network potential capable of predicting thermal conductivity of silicon in different phases[J]. *Mater Today Phys*, 2020, 12: 100181.
- [104] PEGOLO P, BARONI S, GRASSELLI F. Temperature- and vacancy-concentration-dependence of heat transport in Li₃ClO from multi-method numerical simulations[J]. *npj Comput Mater*, 2022, 8(1): 24.
- [105] TIAN F, SONG B, CHEN X, et al. Unusual high thermal conductivity in boron arsenide bulk crystals[J]. *Science*, 2018, 361(6402): 582–585.
- [106] DAMES C. Ultrahigh thermal conductivity confirmed in boron arsenide[J]. *Science*, 2018, 361(6402): 549–550.
- [107] KANG J S, LI M, WU H, et al. Experimental observation of high thermal conductivity in boron arsenide[J]. *Science*, 2018, 361(6402): 575–578.
- [108] LI S, ZHENG Q, LV Y, et al. High thermal conductivity in cubic boron arsenide crystals[J]. *Science*, 2018, 361(6402): 579–581.
- [109] KANG J S, LI M, WU H, et al. Integration of boron arsenide cooling substrates into gallium nitride devices[J]. *Nat Electron*, 2021, 4(6): 416–423.
- [110] WU J, ZHOU E, HUANG A, et al. Deep-potential driven multiscale simulation of gallium nitride devices on boron arsenide cooling substrates[J]. *arXiv Preprint*, 2022: 2201.00516.
- [111] LIU Y, GUO B, ZOU X, et al. Machine learning assisted materials design and discovery for rechargeable batteries[J]. *Energy Storage Mater*, 2020, 31: 434–450.
- [112] UNKE O T, CHMIELA S, GASTEGGER M, et al. SpookyNet: Learning force fields with electronic degrees of freedom and nonlocal effects[J]. *Nat Commun*, 2021, 12(1): 7273.