

Samostalni seminar iz istraživanja u fizici: Strojno učenje interatomskih potencijala

Juraj Ovčar*

Sveučilište u Zagrebu

Prirodoslovno-matematički fakultet - Fizički odsjek

Mentor: dr. sc. Ivor Lončarić

Institut Ruđer Bošković - Zavod za teorijsku fiziku

Zagreb, 12. siječnja 2019.

Izložili smo osnovni princip rada umjetnih neuronskih mreža te prikazali kako se pomoću njih mogu konstruirati plohe potencijalne energije za izvođenje molekularne dinamike sustava s velikim brojem atoma. Pomoću programskog paketa Amp razvili smo neuronsku mrežu koja predviđa potencijalnu energiju molekule CO adsorbirane na površini Pd(111) do na grešku od 2.11 meV po atomu.

I. UVOD

Dinamika malih molekula na površinama relevantna je za procese heterogene katalize. Iznimno važan primjer je Haber-Bosch proces[1] konverzije atomsferskog dušika u amonijak što omogućava proizvodnju umjetnih gnojiva. Poznato je da ozračivanje površina intenzivnim i kratkovalnim (UV) laserskim zračenjem može izazvati difuziju, desorpciju, disocijaciju i kemijske reakcije adsorbiranih molekula (admolekula)[2]. Tako se mogu ubrzati katalitičke reakcije. Na izolatorskim površinama među supstratom i adsorbatom najčešće prevladavaju Van der Waalsove interakcije koje slabo perturbiraju elektronsku strukturu admolekula. Desorpcijska energija je mala (kaže se da su molekule fizisorpcirane), a admolekule energiju iz laserskog pulsa primaju direktno, pobuđenjem elektrona valentne ljuske. S druge strane, metali jako apsorbiraju UV zračenje, pa u većini fotokemijskih procesa na vodljivim površinama dominira indirektno pobuđenje admolekula preko jakih interakcija s elektronskim i fononskim podsustavom. Simulacije dinamike takvih sustava s velikim brojem atoma i stupnjeva slobode na razini teorije funkcionala gustoće su računalno vrlo zahtjevne. Stoga se pokušava izbjeći korištenje teorije funkcionala gustoće za dinamiku ovakvih kompleksnih sustava. Jedna od obećavajućih metoda je interpolacija plohe potencijalne energije neuronskim mrežama (strojno učenje)[3]. U sljedećem poglavlju ukratko su opisani podaci na kojima se vršilo strojno učenje; u poglavlju Strojno učenje izložen je princip rada neuronskih mreža i motivacija za njihovo korištenje u molekularnoj dinamici; naposljetku, proces treniranja neuronskih mreža mreže te rezultati treniranih mreža prikazani su u poglavlju Rezultati.

II. O PODACIMA

MOLEKULARNO-DINAMIČKIH SIMULACIJA KORIŠTENIH ZA STROJNO UČENJE

Pomoću AIMDEF¹[4] sheme simuliran je sustav adsorbiranih CO molekula na površini Pd(111) ozračenoj UV laserskim pulsom u slici Langevinove dinamike[5]. Za sve atome u molekulama CO rješava se Langevinova jednadžba:

$$m_i \frac{d^2 \mathbf{r}_i}{dt^2} = -\nabla_{\mathbf{r}_i} V(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_N) - \eta_{e,i}(T_e(t), \mathbf{r}_i) \frac{d\mathbf{r}_i}{dt} + \mathbf{R}_{e,i}(T_e(t), \eta_{e,i}(\mathbf{r}_i)), \quad (1)$$

gdje su elektronski stupnjevi slobode uzeti preko koeficijenta trenja $\eta_{e,i}$ i fluktuacijske sile $\mathbf{R}_{e,i}$, a $V(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_N)$ je potencijalna energija ovisna o položajima atoma u Born-Oppenheimerovoj aproksimaciji. Sve adijabatske sile (derivacije potencijala) se računaju pomoću teorije funkcionala gustoće (DFT)² i Hellman-Feynmanovog teorema. Vremenska ovisnost temperatura fononskog i elektronskog podsustava se računa rješavajući sistem jednadžbi:

$$\begin{aligned} C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} &= \frac{\partial}{\partial z} \kappa \frac{\partial T_e}{\partial z} - g(T_e - T_l) + S(z, t), \\ C_l \frac{\partial T_l}{\partial t} &= g(T_e - T_l), \end{aligned} \quad (2)$$

gdje su C_e i C_l toplinski kapaciteti elektrona i fonona, T_e i T_l njihove temperature, g je konstanta elektron-fononskog vezanja, κ je termalna vodljivost elektrona, z je okomita udaljenost od površine, a $S(z, t)$ apsorbirana energija lasera u jediničnom vremenu i volumenu. Stohastička sila $\mathbf{R}_{e,i}$ je modelirana kao gausijanski bijeli šum s varijancom danom fluktuacijsko-disipacijskim teoremom:

* juraj.ovcar@gmail.com

¹ Ab Initio Molecular Dynamics with Electronic Friction

² Density Functional Theory

$$\text{Var}(\mathbf{R}_{e,i}(T_e, \eta_{e,i})) = \frac{2k_B T_e(t) \eta_{e,i}(\mathbf{r}_i)}{\Delta t}, \quad (3)$$

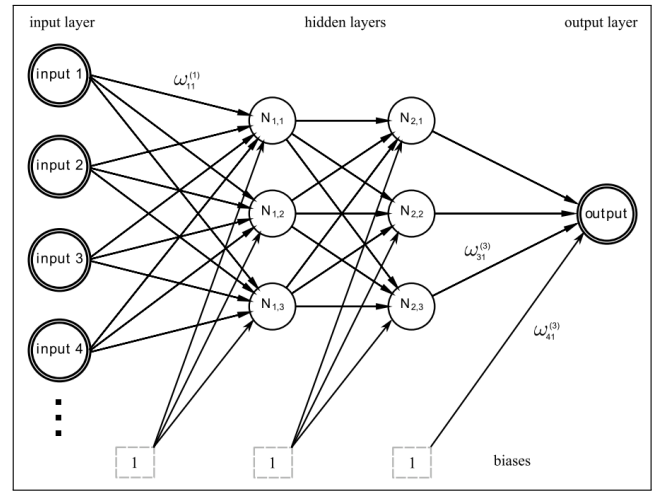
gdje je Δt vremenski korak simulacije. U svakom koraku simulacije koeficijent trenja $\eta_{e,i}(\mathbf{r}_i)$ se računa unutar LDFA³[6] aproksimacije, što znači da ovisi o lokalnoj elektronskoj gustoći gole površine na položaju adsorbata. Računa se kao onaj koeficijent trenja kojeg bi imao atom (C ili O) koji se giba u slobodnom elektronskom plinu iste gustoće. Simulirani sustav se sastoji od četiri sloja po 8 atoma Pd(111) i 6 adsorbiranih molekula CO. Četvrti sloj Pd (onaj najdalje od površine) se tokom simulacija držao "smrznutim", za trećeg se koristila klasična Newtonova jednadžba gibanja u adijabatskoj aproksimaciji, a efekt lasera na prvi i drugi sloj je uzet spajanjem slojeva na Nosé-Hooverov termostat[7][8] s vremenski ovisnom temperaturom T_i izračunatom u 2TM modelu[9]. Kalkulacija je implementirana u programskom paketu VASP koristeći DFT i vdW-DF funkcional izmjene i korelacije[10]. Interakcija elektrona i jezgara je tretirana PAW⁴ metodom[11].

III. STROJNO UČENJE

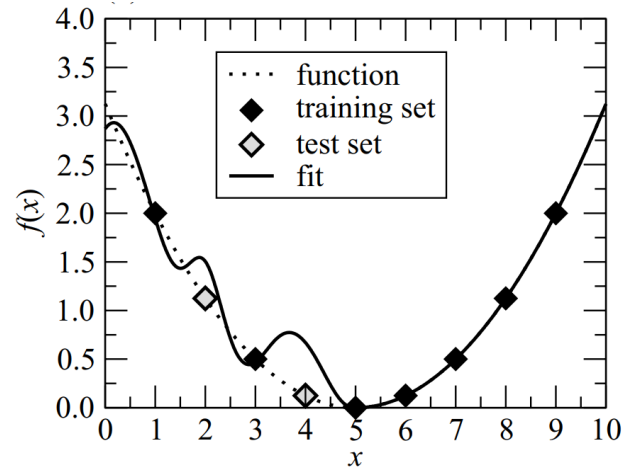
A. 'Feed-forward' neuronske mreže

Zbog trenutnih ograničenja računalnih mogućnosti računala, korištenje *ab initio* metoda elektronske strukture za molekularnu dinamiku[5] je moguće samo za sustave sačinjene od maksimalno nekoliko stotina atoma. Od takvih *ab initio* metoda, zbog dobrog omjera preciznosti i efikasnosti dominantno se koristi teorija funkcionala gustoće (DFT). Međutim, broj simuliranih atoma i vrijeme simulacije su često nedovoljni za adekvatan opis realnih sistema. Stoga su razvijene daljnje aproksimativne metode čiji je cilj konstrukcija potencijalne plohe kao funkcije atomskih koordinata (često se te plohe skraćeno nazivaju PES⁵) na kojoj je molekularna dinamika računalo provediva. Elektronski stupnjevi slobode u dinamičkim procesima se u takvim modelima ne uzimaju eksplicitno, nego primjerice uvođenjem fluktuacijsko-disipacijskih sila. Ideja je izračunati energiju pojedinih atomskih konfiguracija nekom metodom, primjerice DFT-om, a onda ih interpolirati u PES. Za interpolaciju tako dobivenih točaka razvijene su mnoge metode, čiji je pregled dan u referenci [12]. Mi smo točke dobivene DFT-om interpolirali koristeći neuronsku mrežu (skraćeno NN)[3].

Shema tipične 'feed-forward' neuronske mreže prikazana je na Slici 1. Sastoji se od ulaznog sloja, proizvoljnog broja slojeva skrivenih neurona i izlaznog čvora.



Slika 1. Shematski prikaz 'feed-forward' neuronske mreže s dva sloja skrivenih neurona. U tekstu su pristranosti označene s b umjesto s ω kako se ne bi pomješale s težinama. Preuzeto iz [13].



Slika 2. Primjer interpolacije 1D funkcije pomoću neuronske mreže. Preuzeto iz [3].

Neuronska mreža iz ulaznih podataka (input, u našem slučaju atomske koordinate) učita N_0 brojeva, gdje N_i predstavlja broj neurona u i -tom sloju. Ti brojevi se šalju skrivenim neuronima koji generiraju niz N_1 brojeva koje prosljeđuju drugom sloju skrivenih neurona i tako dalje sve do izlaznog neurona u kojem se generira konačni rezultat (output, u našem slučaju potencijalna energija). Formula prema kojoj se računa output j -tog skrivenog neurona u i -tom čvoru je:

$$o_j^{(i)} = f \left(\sum_{k=1}^{N_i-1} \omega_{kj}^{(i)} o_k^{(i-1)} + b_j^{(i)} \right), \quad (4)$$

gdje je $\omega_{kj}^{(i)}$ težina (weight) s kojom output iz k -tog neurona iz prethodnog sloja ulazi u promatrani skriveni neuron, $b_j^{(i)}$ pristranost (bias) promatranog neurona, a

³ Local Density Functional Approximation

⁴ Projector Augmented-Wave

⁵ Potential Energy Surface

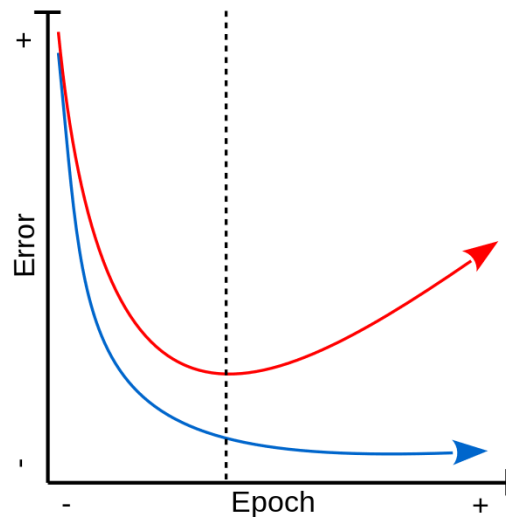
f njegova aktivacijska funkcija. Često korištene aktivacijske funkcije su tangens hiperbolni, sigmoidalna, Gaussova i linearna funkcija. Pokazano je da dovoljno velike 'feed-forward' neuronske mreže mogu proizvoljnom točnošću aproksimirati bilo koju kontinuiranu funkciju pod uvjetom da je f lokalno omeđena po djelovima kontinuirana funkcija koja nije polinom[14]. Primjer 1D interpolacije neuronskom mrežom prikazan je na Slici 2. Skup točaka koje treba interpolirati naziva se "training-set", a proces variranja parametara mreže (težina i pristranosti) "treniranjem". Parametri mreže se variraju tako da minimiziraju neku zadanu "funkciju gubitka"⁶ koja mjeri odstupanje predviđenih vrijednosti od onih zadanih u training-setu. Mi smo za funkciju gubitka koristili korijen srednjeg kvadratnog odstupanja ukupne energije sustava:

$$\Gamma = \sqrt{\frac{1}{M} \sum_{j=1}^M \left(\hat{E}_j - E_j \right)^2}, \quad (5)$$

gdje je M broj zadanih (training) atomskih konfiguracija, N_j broj atoma u j -toj konfiguraciji, E_j energije konfiguracija izračunate DFT-om, a \hat{E}_j je predviđanje NN-a za j -tu konfiguraciju. Smatra se da je mreža konvergirala kad funkcija gubitka padne ispod neke zadane vrijednosti. Nakon konvergencije, uspoređuju se predviđanja NN-a za neke atomske konfiguracije različite od onih iz skupa za treniranje (taj skup podataka naziva se testnim setom). *Overfitting* predstavlja jedan od značajnijih problema interpolacije neuronskim mrežama. Ako se zada presnažan uvjet konvergencije, NN će vrlo precizno interpolirati točke training-seta tako da deformira interpolacijsku krivulju između tih točaka, povećavajući grešku na testnom setu. Takvi NN-ovi se ne generaliziraju dobro na nepoznate podatke. Rješenje problema *overfitting-a* ilustrirano je na slici 3 i često se naziva *early stopping*. Uvede se treći skup podataka različitih od onih iz training i test setova, tzv. validacijski set. Svakih nekoliko iteracija treninga se računa funkcija gubitka na validacijskom setu. Za istreniranu mrežu se onda uzme ona za koju je validacijska funkcija gubitka dosegla globalni minimum. Performanse tako trenirane mreže se onda provjeravaju na testnom setu.

B. Simetrijske funkcije

U odsustvu vanjskih polja broj nezavisnih stupnjeva slobode sistema N atoma je $3N - 6$, gdje se oduzima 6 stupnjeva slobode koji odgovaraju translacijama i rotacijama čitavog sustava. Tih 6 stupnjeva slobode se može uzeti u obzir tako da se sustav umjesto s $3N$ prostornih koordinata opiše pomoću $3N - 6$ "unutarnjih" koordinata (primjerice duljine veza i valentnih ili dihedralnih



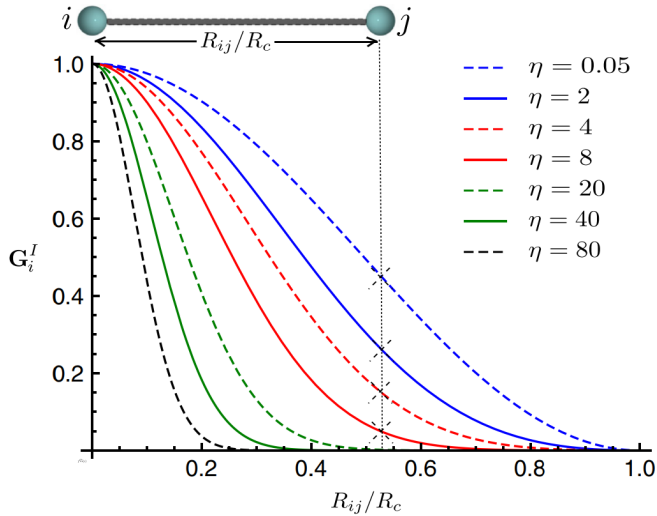
Slika 3. Ilustracija *overfitting-a*. Crvena linija predstavlja grešku na validacijskom setu, a plava grešku na training-setu. Crtkanom linijom označena je iteracija treninga pri kojoj je validacijska funkcija gubitka dosegla minimum. Preuzeto s [15].

kuteva). Međutim, tako definirane koordinate nisu dobar input za neuronsku mrežu ako u sustavu postoji više atoma iste vrste. Razlog je to što atomske koordinate u NN ulaze kao vektor-stupac, gdje svaka komponenta odgovara jednom neuronu u ulaznom sloju pa, ako se koriste prostorne koordinate i permutiraju se dva identična atoma, NN za fizikalno istu konfiguraciju atoma može izračunati različitu energiju (budući da težine na pojedinim neuronima ulaznog sloja mogu varirati). Stoga se vektor atomskih koordinata \mathbf{R} preslikava *simetrijskim funkcijama*[3] \mathbf{G} u vektor $\mathbf{G}(\mathbf{R})$ invarijantan na operacije koje čuvaju simetriju sistema. Simetrijske funkcije koje smo mi koristili pripadaju klasi *atomske-centriranih* simetrijskih funkcija. Polazišna pretpostavka je da je ukupna energija sustava zbroj lokalnih doprinosa interakcija pojedinih atoma sa njihovom neposrednom okolinom. U toj aproksimaciji neuronska mreža ukupnu energiju konfiguracije N atoma računa kao:

$$\hat{E} = \sum_{i=1}^N \hat{E}_i(\mathbf{G}_i(\mathbf{R})) \quad (6)$$

gdje je \mathbf{R} 3N-dimenzionalni vektor kartezijskih koordinata atoma, \mathbf{G}_i simetrijska funkcija i -tog atoma, a \hat{E}_i predviđeni energijski doprinos i -tog atoma (i njegove okoline). Ovaj pristup je koristan jer je energija ekstenzivna u broju atoma, pa se NN može koristiti za sisteme različitih veličina. Mi smo koristili Gaussove simetrijske funkcije. U toj shemi se svaki vektor $\mathbf{G}_i(\mathbf{R})$ sastavlja unijom dva pomoćna podvektora: $\mathbf{G}_i(\mathbf{R}) = \mathbf{G}_i^I(\mathbf{R}) \cup \mathbf{G}_i^{II}(\mathbf{R})$. $\mathbf{G}_i^I(\mathbf{R})$ predstavlja interakcije i -tog atoma s pojedinačnim atomima, a $\mathbf{G}_i^{II}(\mathbf{R})$ interakcije i -tog atoma s parovima atoma (interakcije tri tijela). Kom-

⁶ U stranoj literaturi "Loss function" ili "Cost function".



Slika 4. Ovisnost komponenti $\mathbf{G}_i^I(\mathbf{R})$ o udaljenosti atoma za različite η , uz $R_S = 0$. Preuzeto iz [13].

ponente vektora $\mathbf{G}_i^I(\mathbf{R})$ se računaju za različite vrijednosti parametara η i R_C pomoću sljedeće formule:

$$\mathbf{G}_{i,\eta R_S}^I(\mathbf{R}) = \sum_{j \neq i} e^{-\eta(R_{ij}-R_S)^2/R_C^2} f_C(R_{ij}), \quad (7)$$

gdje su parametri η i R_S širina i centar gausijana, $R_{ij} = \|\mathbf{R}_j - \mathbf{R}_i\|$ je udaljenost između dva atoma, a $f_C(r)$ glatka funkcija na $r \leq R_C$ te vrijedi $f_C(r \geq R_C) = 0$. $f_C(r)$ se naziva *cutoff* funkcijom. Eksplicitno za $r \leq R_C$:

$$f_C(r) = 0.5(1 + \cos(\pi r/R_C)). \quad (8)$$

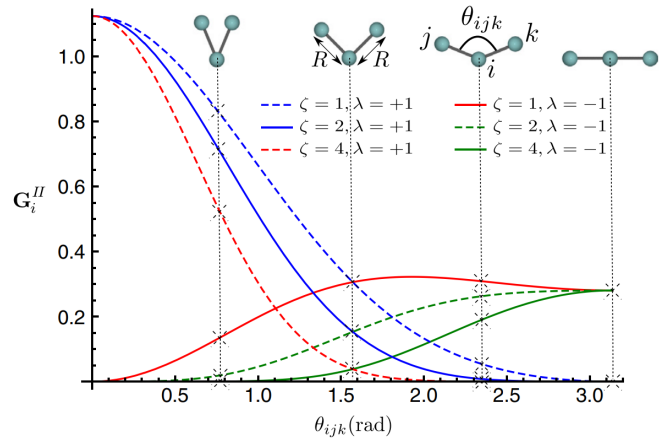
Komponente $\mathbf{G}_i^{II}(\mathbf{R})$ računaju se prema:

$$\begin{aligned} G_{i,\eta\zeta\lambda}^{II}(\mathbf{R}) &= 2^{1-\zeta} \sum_{\substack{j,k \neq i \\ (j \neq k)}} (1 + \lambda \cos(\theta_{ijk}))^\zeta \\ &\times e^{-\eta(R_{ij}^2 + R_{ik}^2 + R_{jk}^2)/R_C^2} f_C(R_{ij}) f_C(R_{ik}) f_C(R_{jk}) \end{aligned} \quad (9)$$

za različite vrijednosti parametara η, ζ i λ . θ_{ijk} je kut među tri atoma (vidi sliku 5). Na slikama 4 i 5 prikazani su grafovi komponenti $\mathbf{G}_i^I(\mathbf{R})$ i $\mathbf{G}_i^{II}(\mathbf{R})$.

C. Programski paket Amp [13]

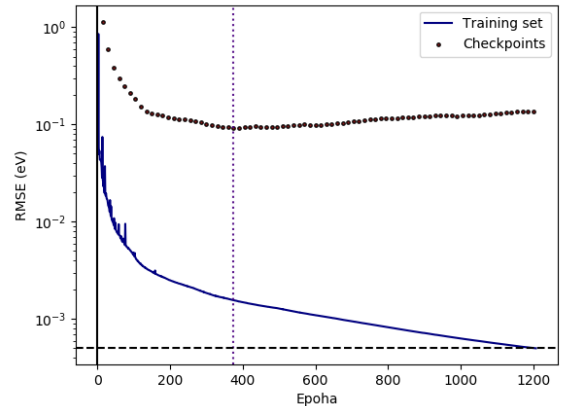
The Atomic Simulation Environment (ASE)[16] je skup alata i Python modula za konstrukciju, manipulaciju, vizualizaciju te vršenje atomističkih simulacija. ASE može služiti kao sučelje za mnoge pakete za proračun elektronske strukture (GPAW, Dacapo, VASP, Quantum ESPRESSO, ...). Amp (Atomistic Machine-learning Package)[13], otvoreni (open-source) programski paket kojeg smo koristili za strojno učenje, je dizajniran kao modul ASE-a, odnosno proračuni elektronske strukture u nekom drugom paketu (u našem slučaju VASP-u)



Slika 5. Ovisnost komponenti $\mathbf{G}_i^{II}(\mathbf{R})$ o kutu među atomima za različite ζ i λ , uz $\eta = 0.005$ i $R = R_C/3$. Preuzeto iz [13].

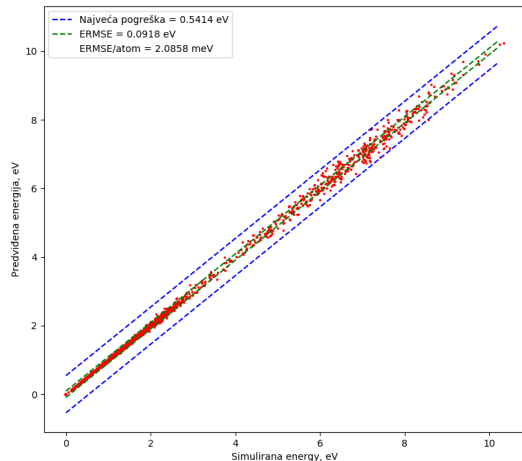
se učitavaju preko ASE-a u Amp. Istrenirane neuralne mreže se mogu koristiti u ASE-u za atomističke simulacije. Amp je većinom pisan u Pythonu, a kompjutacijski zahtjevni procesi su pisani u Fortranu.

IV. REZULTATI

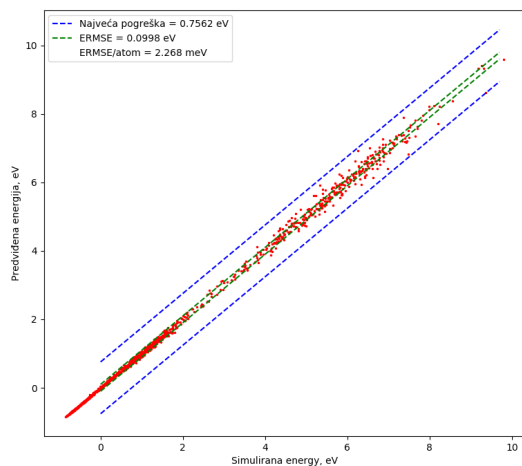


Slika 6. Treniranje mreže 30 – 20 – 10 uz $R_C = 4.25 \text{ \AA}$. Uvjet konvergencije smo postavili na ERMSE od $0.5 \cdot 10^{-3} \text{ eV}$ na training-setu (horizontalna crtkana linija). Globalni minimum ERMSE na validacijskom setu označen je točkastom vertikalnom linijom na epohi 375. Ta epoha odgovara ERMSE od $1.56 \cdot 10^{-3} \text{ eV}$ na training-setu.

Dobiveni DFT podaci sadržavali su 465 simulacija (trajektorija) u trajanju od 3.5 ps za različite temperature i početne konfiguracije sustava. Vremenski korak simulacije bio je 1 fs, pa većina trajektorija sadrži 3500 "slika" sustava. Ukupni broj slika je nešto više od $1.6 \cdot 10^6$. Mi smo nasumično poredali trajektorije, pa iz prvih 300 trajektorija odabrali svaku 201. sliku za training-set, iz



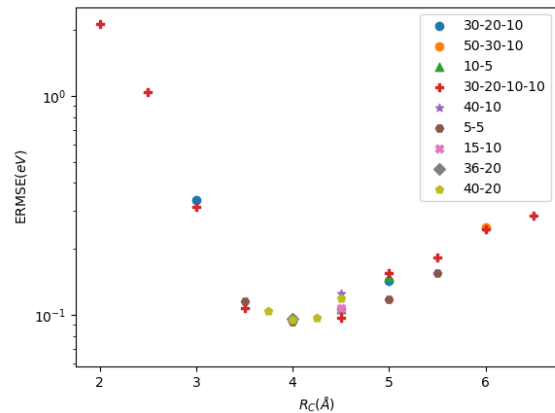
Slika 7. Usporedba točnih (simuliranih) i predviđenih energija na validacijskom setu za mrežu 30 – 20 – 10 – 10 uz $R_C = 4.25$ Å i uvjet konvergencije $1.56 \cdot 10^{-3}$ eV. Nultočka energije je za potrebe crteža odabrana tako da energije padaju u interval $0 - 10$ eV.



Slika 8. Usporedba točnih (simuliranih) i predviđenih energija na testnom setu za mrežu 30 – 20 – 10 – 10 uz $R_C = 4.25$ Å i uvjet konvergencije $1.56 \cdot 10^{-3}$ eV. Nultočka energije je za potrebe crteža odabrana tako da energije padaju u interval $0 - 10$ eV.

sljedećih 100 trajektorija smo odabrali svaku 201. za validacijski set, a za testni set smo iz 200 nasumičnih trajektorija odabrali svaku 251. sliku, pazeći pritom da ne odaberemo konfiguraciju koju smo već uzeli za training ili validacijski set. Tako smo dobili training-set od 5200 slika, validacijski set od 1759 slika te testni set od 1200 slika. S obzirom da dinamika iz koje su podaci dobiveni sadrži nasumične fluktuacijske sile, ovakav odabir rezul-

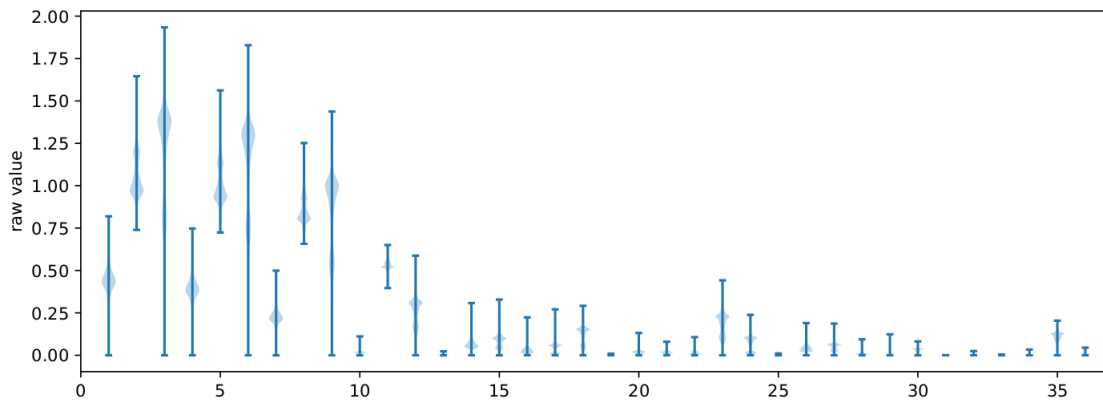
tira nasumično odabranim slikama koje dobro istražuju konfiguracijski prostor.



Slika 9. Ovisnost ERMSE o R_C za različite mreže.

Prije treniranja odabiru se struktura mreže (broj skrivenih slojeva i neurona), simetrijske funkcije (u Amp-u se nazivaju *deskriptorima*), cutoff-funkcija i pripadajući parametri. Koristili smo gausijanske deskriptore (7) i (9) s kosinusnom cutoff-funkcijom (8). Odabrali smo parametre $\eta = (0.05, 0.23, 1.08, 5.0)$ za deskriptore (7) te $\eta = 0.005$, $\gamma = (1, -1)$ i $\zeta = (1.0, 4.0)$ za deskriptore (9). R_C smo varirali između 2 Å i 6.5 Å. Optimalnu mrežu za zadane ulazne parametre smo pronašli tako da svakih 15 koraka treniranja (epoha) generiramo kopiju trenutne mreže (*"checkpoint"*) kojom računamo korijen srednjih kvadratnih odstupanja predviđenih energije od simuliranih (ERMSE), a za optimalnu mrežu uzimamo onu za koju se postigne globalni minimum ERMSE na validacijskom setu. Na slici 6 prikazan je primjer treniranja za mrežu 30 – 20 – 10 – 10, (30 skrivenih neurona u prvom skrivenom sloju, 20 u drugom, ...) uz $R_C = 4.25$ Å. Usporedbe predviđenih i simuliranih energija na validacijskom i testnom setu za checkpoint na kojem je postignut globalni minimum validacijskog seta prikazani su na Slikama 7 i 8. Dobiva se da je za testni set ERMSE po atomu 2.26 meV/atom. Istu proceduru ponovili smo za različite mreže i vrijednosti parametra R_C . Rezultati na testnom setu su prikazani na Slici 9. U okolini $R_C \approx 4$ Å sve mreže se ponašaju slično. Najmanji pronađeni ERMSE iznosi 2.11 meV/atom za mrežu 5-5 i $R_C = 4.0$ Å. S obzirom da postoji globalni minimum za R_C , zaključujemo da ovako odabrani deskriptori ne opisuju dobro interakcije među atomima na udaljenosti većoj od $R_C \approx 4$ Å.

Rezultat djelovanja deskriptora na ulazne podatke se u Amp-u naziva *"fingerprint"*. Mi smo za svaku vrstu atoma (C, O i Pd) koristili po 36 deskriptora. Na Slici 10 prikazan je violinski graf fingerprint-a atoma ugljika za mrežu 5-5 i $R_C = 4$ Å. Graf prikazuje raspon vrijednosti pojedinih fingerprint-a te učestalost kojom se pojedine vrijednosti pojavljuju (širine *"violine"*). Iz njega možemo



Slika 10. "Violinski" graf vrijednosti fingerprint-a atoma ugljika. Prikazan je raspon vrijednosti fingerprint-a te učestalost kojom se pojavljuju.

naslutiti koje interakcije su relevantne za opis sistema. Prvih 12 fingerprint-ova predstavlja rezultat djelovanja deskriptorom (7), a preostalih 24 djelovanje deskriptora (9). Iz slike možemo zaključiti primjerice da je treći fingerprint, koji predstavlja interakciju atoma ugljika s atomima paladija, relevantan za opis sistema, dok primjerice 25. fingerprint nije (on predstavlja interakciju tri atoma C). Općenito su deskriptori interakcija triju atoma manje zastupljeni. Idući korak bi bio testirati deskriptore s ulaznim parametrima koji bolje opisuju daleke interakcije (dalje od 4Å), primjerice povećati η u deskriptorima (9) ili koristiti cutoff funkciju tipa polinoma [13]. S druge strane, valja napomenuti da uključivanje sve više interakcija u opis sistema produljuje i vrijeme proračuna, tako da treba pronaći balans između preciznosti i efikasnosti.

V. ZAKLJUČAK

Opisali smo princip rada umjetnih neuronskih mreža pri konstrukciji ploha potencijalne energije. Pomoću programskog paketa Amp razvili smo NN koja predviđa potencijalnu energiju molekula CO na površini Pd(111)

do na preciznost 2.11 meV/atom. Testirali smo performanse različitih mreža u ovisnosti o parametru R_C te smo pronašli optimalni R_C za kojeg većina mreža daje sličnu preciznost. Dobivene mreže se mogu rabiti za molekularnu dinamiku. Zaključno, efikasnost umjetnih neuronskih mreža kao interpolacijskih alata je osigurana univerzalnim aproksimacijskim teoremima; međutim, NN-ovi imaju ograničene ekstrapolacijske sposobnosti jer ne počivaju ni na kakvim fizikalnim pretpostavkama pa se sa pouzdanošću mogu koristiti samo u djelu konfiguracijskog prostora na kojem su trenirane. Međutim, u našem slučaju ipak postoji fizikalni "input" u neuronsku mrežu preko simetrijskih funkcija (deskriptora). Proučavajući njih mogli bismo steći uvid u to koje su interakcije relevantne za opis sistema.

VI. ZAHVALE

Zahvaljujem se svojem mentoru Ivoru Lončariću na razjašnjavanju potrebnih fizikalnih i računalnih koncepata te na ukazanom strpljenju i savjetima pri rješavanju različitih problema koji su se pojavili tokom izrade ovog seminara.

-
- [1] Max Appl. The haber-bosch process and the development of chemical engineering. *A Century of Chemical Engineering* (ed. W. Furter), Plenum Publishing Corporation, pages 20–51, 1982.
- [2] Hua Guo, Peter Saalfrank, and Tamar Seideman. Theory of photoinduced surface reactions of admolecules. *Progress in Surface Science*, 62:239–303, 12 1999.
- [3] Jörg Behler. Representing potential energy surfaces by high-dimensional neural network potentials. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 26(18):183001, 2014.
- [4] D. Novko, M. Blanco-Rey, M. Alducin, and J. I. Juaristi. Surface electron density models for accurate ab initio molecular dynamics with electronic friction. *Phys. Rev. B*, 93:245435, Jun 2016.
- [5] R. Car and M. Parrinello. Unified approach for molecular dynamics and density-functional theory. *Phys. Rev. Lett.*, 55:2471–2474, Nov 1985.
- [6] J. I. Juaristi, M. Alducin, R. Díez Muiño, H. F. Busnengo, and A. Salin. Role of electron-hole pair excitations in the dissociative adsorption of diatomic molecules on metal surfaces. *Phys. Rev. Lett.*, 100:116102, Mar 2008.
- [7] Shuichi Nosé. A unified formulation of the constant temperature molecular dynamics methods. *The Journal of chemical physics*, 81(1):511–519, 1984.
- [8] Dino Novko, Ivor Lončarić, María Blanco-Rey, J. Iñaki Juaristi, and Maite Alducin. Energy loss and surface temperature effects in ab initio molecular dynamics simula-

- tions: N adsorption on ag(111) as a case study. *Phys. Rev. B*, 96:085437, Aug 2017.
- [9] Ivor Lončarić, M. Alducin, P. Saalfrank, and J. I. Juaristi. Femtosecond-laser-driven molecular dynamics on surfaces: Photodesorption of molecular oxygen from ag(110). *Phys. Rev. B*, 93:014301, Jan 2016.
- [10] M. Dion, H. Rydberg, E. Schröder, D. C. Langreth, and B. I. Lundqvist. Van der waals density functional for general geometries. *Phys. Rev. Lett.*, 92:246401, Jun 2004.
- [11] P. E. Blöchl. Projector augmented-wave method. *Phys. Rev. B*, 50:17953–17979, Dec 1994.
- [12] Lionel Raff, Ranga Komanduri, and Martin Hagan. *Neural networks in chemical reaction dynamics*. OUP USA, 2012.
- [13] Alireza Khorshidi and Andrew A Peterson. Amp: A modular approach to machine learning in atomistic simulations. *Computer Physics Communications*, 207:310–324, 2016.
- [14] Moshe Leshno, Vladimir Ya Lin, Allan Pinkus, and Shimon Schocken. Multilayer feedforward networks with a nonpolynomial activation function can approximate any function. *Neural networks*, 6(6):861–867, 1993.
- [15] <https://bioinfo.ircic.ca/overfitting-and-regularization>, Oct 2017.
- [16] <https://wiki.fysik.dtu.dk/ase/>.