

МАШИННОЕ ОБУЧЕНИЕ ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ СТРОЕНИЯ БИМЕТАЛЛИЧЕСКИХ НАНОЧАСТИЦ НА ОСНОВАНИИ ДАННЫХ АНАЛИЗА EXAFS СПЕКТРОВ

Барковский В.В. (Южный федеральный университет, Ростов-на-Дону)

Научный руководитель – к.ф.-м.н., доцент Авакян Л.А. (Южный федеральный университет, Ростов-на-Дону)

Для идентификации наночастиц со структурой ядро-оболочка, перспективной для задач катализа, предлагается подход, основанный на анализе EXAFS спектров и выделении парной радиальной функции распределения атомов (ПРФРА), которые, в свою очередь, подвергаются статистической обработке логистической моделью. Для набора статистических данных предлагается использовать ПРФРА, полученные в результате молекулярно-динамического моделирования свободных биметаллических наночастиц при конечной температуре. Результат применения логистической модели к таким синтетическим данным показывают принципиальную возможность разрешения типа строения наночастицы (ядро-оболочка, обратная ядро-оболочка, полностью неупорядоченный твердый раствор) по форме ПРФРА.

Введение. Идентификация структуры биметаллических наночастиц имеет важное значение для исследований, направленных на оптимизацию структуры и повышение электрохимических характеристик PtM/C электрокатализаторов. Расширенная рентгеновская абсорбционная тонкоструктурная спектроскопия (EXAFS) является мощным методом исследования наночастиц благодаря своей чувствительности к локальной атомной структуре и составу при отсутствии дальнего порядка, высокому пространственному разрешению и применимости в условиях каталитических реакций.

Различия в форме, размере и архитектуре наночастиц должны проявляться в локальной структуре. В частности, локальная атомная структура несвязанных друг с другом медных и платиновых наночастиц отличается от таковой для наночастицы, в которой атомы меди и платины равномерно перемешаны (строение типа неупорядоченного твердого раствора). В первом случае будут равны нулю координационные числа N_{Pt-Cu} и N_{Cu-Pt} , а также межатомные расстояния R_{Cu-Cu} и R_{Pt-Pt} будут близки к таковым в соответствующем объемном чистом металле. Во втором случае координационные числа N_{Pt-Cu} и N_{Cu-Pt} будут отличны от нуля, а расстояния R_{Cu-Cu} и R_{Pt-Pt} будут близкими к таковым в объемном сплаве, то есть, к среднему значению между чистыми R_{Cu-Cu} и R_{Pt-Pt} . В случае наночастиц со строением типа ядро-оболочка возможно ожидать иного влияния на локальную атомную структуру, например, ненулевое значение координационных чисел N_{Pt-Cu} и N_{Cu-Pt} при значениях межатомных расстояний R_{Cu-Cu} и R_{Pt-Pt} близких к таковым для чистых наночастиц.

Основная часть. Для изучения влияния архитектуры наночастицы на локальную атомную структуру мы рассмотрим набор детальных атомных моделей использованием потенциала межатомного взаимодействия EMT. Рассматривались модели наночастиц с размером, варьирующимся от 2 до 4.5 нм, содержащих атомы платины и меди с концентрацией от 20% до 80%. В результате последовательной релаксации приведение в равновесие с термостатом при комнатной температуре (термализации) и наблюдении в течении 1 пс получены ПРФРА для каждой из рассматриваемых моделей.

Число таких моделей (и соответствующих им функций) достаточно велико и может исчисляться сотнями, что требует автоматизации их анализа. Такая автоматизация может быть эффективно выполнена с привлечением т. н. методов машинного обучения (МО), и, в частности, метода логистической регрессии.

Выбор метода «логистическая регрессия» из класса линейных классификаторов обоснован высокой производительностью и точностью при работе с данными, представленными в работе. Использование метода стохастического градиентного спуска, который оптимизирует функцию потерь, также способствовало повышению скорости работы на обучающих данных с большим количеством признаков (параметров). Метод логистической регрессии показал наилучший результат среди альтернативных методов при оценке качества программной модели, протестированной на теоретических данных.

Выводы. В результате применения метода логистической регрессии к набору синтетических данных, представляющих собой нормализованные парные радиальные функции распределения (ПРФРА), удалось установить, что локальная атомная структура чувствительна к архитектурным особенностям наночастицы: по результатам тестов кросс-валидации на теоретических данных, в которых часть выборки использовалась для обучения МО-модели, а оставшаяся для проверки точности предсказаний, архитектура определялась корректно в 99 % случаев.

В работе были рассмотрены другие методы классификации, многие из которых также показали удовлетворяющий результат при их оценке на синтетических данных. В дальнейшем планируется внедрять в практическую деятельность методы машинного обучения. Они будут использоваться в качестве подтверждения теоретическому заключению по определению структуры экспериментальных наночастиц, характеризующие данные которые собираются на синхротронных установках.