

КОМПЛЕКСНОЕ DFT-МОДЕЛИРОВАНИЕ И ОПТИМИЗАЦИЯ РАСЧЁТОВ ЭЛЕКТРОКАТАЛИТИЧЕСКОЙ ДЕСУЛЬФУРИЗАЦИИ ТИОФЕНА НА ВЫСОКОЭНТРОПИЙНЫХ СПЛАВАХ

Чуруксаев И.В. (ИТМО)

Научный руководитель – кандидат химических наук Морозов Н.А.
(ИТМО)

Введение. Высокоэнтропийные сплавы (ВЭС) представляют собой однофазные структуры, состоящие минимум из пяти различных металлов. Эти материалы обладают уникальными физико-химическими характеристиками и высокой стабильностью за счёт высокой энтропии смешивания, даже в экстремальных условиях. ВЭС демонстрируют значительный потенциал в качестве катализаторов в процессах, таких как электрохимическая десульфуризация нефтепродуктов. Однако эффективный скрининг ВЭС осложняется тем, что для одного химического состава существует огромное число возможных геометрических вариантов, обусловленных случайным распределением атомов в кристаллической решётке. Полный DFT-скрининг всей совокупности вариантов требует значительных вычислительных ресурсов и времени, что зачастую делает такой подход нецелесообразным.

Современные методы машинного обучения, в частности нейронные сети, позволяют ускорить предсказание свойств, однако их точность зависит от объёма и качества обучающих данных. В данной работе предложен комбинированный подход, сочетающий DFT-расчёты и машинное обучение, позволяющий минимизировать количество дорогостоящих квантово-химических вычислений.

Основная часть. Классический подход, основанный на полном DFT-скрининге, оказывается неэффективным из-за роста числа вариантов геометрических конфигураций при увеличении числа компонентов системы. В связи с этим был разработан комбинированный метод, включающий:

1. Проведение DFT-расчётов для бинарных и тернарных систем. Это позволяет оценить взаимные эффекты между элементами и служит основой для обучения нейронной сети. Расчёты выполнялись методом плоских волн в гибридной GPW-схеме с применением функционала PBE[1], реализованного в CP2K[2], с базисным набором DZVP-MOLOPT-SR-GTH и GTH-псевдопотенциалами.

2. Обучение нейронной сети на основе данных, полученных из DFT-моделирования. Используется поэтапный подход, где сначала сеть калибруется на простых системах, а затем дополняется дополнительными вычислениями для сложных многокомпонентных сплавов.

3. Верификация модели путём сравнения предсказаний нейросети с контрольными DFT-расчётами. Анализ показал, что предложенная методика позволяет сократить время вычислений с расчётных лет до вычислительных недель, сохраняя точность предсказания на уровне ± 0.1 эВ.

Таким образом, интеграция предварительного квантово-химического моделирования с обучением нейросети позволяет значительно упростить процесс скрининга ВЭС, где для одного состава существует множество возможных геометрических вариантов, и эффективно решает задачу поиска перспективных катализаторов.

Выводы. Предложенный комбинированный метод, объединяющий DFT-расчёты и машинное обучение, позволяет существенно сократить вычислительные затраты при скрининге высокоэнтропийных сплавов. Использование предварительных расчётов для

бинарных и тернарных систем позволяет корректно обучить нейросеть и минимизировать число необходимых DFT-расчётов. Верификация модели подтвердила её точность, а время расчётов сократилось с нескольких лет до нескольких недель. Это открывает новые перспективы для разработки катализаторов на основе ВЭС и их экспериментального внедрения.

Список использованных источников:

1. Perdew, J. P., Burke, K., & Ernzerhof, M. (1996). Generalized Gradient Approximation Made Simple. *Phys. Rev. Lett.*, 77(18), 3865–3868.
2. VandeVondele, J., Krack, M., Mohamed, F., Parrinello, M., Chassaing, T., & Hutter, J. (2005). QUICKSTEP: Fast and accurate density functional calculations using a mixed Gaussian and plane waves approach. *Comput. Phys. Commun.*, 167(2), 103–128.