

ГИБРИДНЫЙ MLIP-DFT ПОДХОД ДЛЯ РАСЧЕТА ЭНЕРГИЙ АДСОРБЦИИ АНАЛИТОВ НА ПОВЕРХНОСТИ МЕТАЛЛОКСИДНЫХ ГАЗОЧУВСТВИТЕЛЬНЫХ СЕНСОРОВ

**Крючков О. П.¹, Ботнарь А. А.¹, Скорб Е. В.¹
Научный руководитель – Ботнарь А. А.¹, Скорб Е. В.¹**

¹Университет ИТМО
h.krger20@gmail.com

Введение

Электронный нос – это устройство для детекции запахов. Они применяются для экологического мониторинга, систем безопасности, диагностики заболеваний, анализа пищевой продукции и в других областях. Один из распространённых подходов опирается на использование полупроводниковых металлоксидных газовых сенсоров: взаимодействие газа с поверхностью сенсора вызывает изменения электрических характеристик (например, сопротивления), которые используются для дальнейшего анализа [1]. Сложность работы с газовыми сенсорами – их низкая избирательность. Часто в современных системах отклики датчиков обрабатываются с помощью моделей машинного обучения (ML), обученных на экспериментальных данных для ограниченного числа исследуемых газов (аналитов). Применение ML помогает в решении проблемы избирательности, однако создаёт ограничения в физической и химической интерпретируемости, а также снижает надёжность при анализе газов, не из обучающей выборки [2]. Для улучшения эффективности моделей ML перспективно добавление информации, основанной на фундаментальных принципах взаимодействия аналита с поверхностью сенсора, характеризующих процесс адсорбции.

Для изучения процесса адсорбции и его характеристик возможно использование теории функционала плотности (DFT). Ввиду высокой вычислительной сложности DFT не может применяться для проведения скрининга с использованием многочисленных поверхностей сенсора, аналита и возможных конформаций. Однако существуют модели ML для предсказания межатомного потенциала (MLIP), которые обладают меньшей точностью по сравнению с DFT, но требуют меньше вычислительных ресурсов [3]. Несмотря на плюсы, интеграция многомасштабного атомистического моделирования в практическую генерацию дескрипторов для электронного носа остается ограниченной.

В настоящей работе этот пробел устранен путем разработки системы для вычисления физически обоснованных дескрипторов адсорбции аналита на поверхности газовых сенсоров. Основная цель – представить полученную с помощью квантово-химических расчётов энергию адсорбции в качестве физически интерпретируемого показателя, который может дополнять экспериментальные данные и служить основой для физически обоснованных моделей ML.

Основная часть

Материалы сенсоров, рассматриваемых в данной работе, представляют собой кристаллическую поверхность оксида металла, в том числе допированную различными металлами, такими как In, Ni, Se, Ag. В качестве аналитов рассматривается набор органических молекул различных классов: углеводороды (например, гексан), кислородсодержащие соединения – спирты и карбонильные соединения (например, изопропанол и бутиральдегид), ароматические молекулы (например, о-ксилол), азотсодержащие основания (например, пиридин), галогенорганические соединения (например, иодметан), серосодержащие соединения (например, тиофен).

Разработанный процесс вычисления включает: построение модели поверхности сенсора, оптимизацию конформации изолированных молекул аналита, использование MLIP для определения оптимального положения аналита (смещение относительно поверхности кристалла и углов поворота самого аналита) и использование DFT для точного расчета энергии адсорбции. MLIP служит для приближенного определения сайта адсорбции, позволяя быстро оценить многочисленные конфигурации, такие как изменение углов вращения аналита и места адсорбции. Этот этап сокращает пространство для поиска конфигурации и является более быстрым по сравнению с использованием DFT для перебора. Только наиболее стабильная конфигурация, выявленная с помощью скрининга MLIP, впоследствии уточняется с помощью DFT для получения точных значений энергии адсорбции.

Существуют некоторые другие подходы для определения сайтов связывания. Например методика AUGUR. В ней для вычисления оптимального сайта связывания используется предсказание на основе графовых нейросетей, для оптимизации позиции и конфигурации аналита применяются байесовская оптимизация и результаты валидируются DFT [4]. Существенное ограничение такого подхода – процесс оптимизации. В нем атомы аналита добавляются один за другим и результат зависит от порядка их добавления. Таким образом, для молекул с большим числом атомов вычисления становятся трудоемкими. В другом подходе (MLIP-МС) для симуляции процесса адсорбции применяется метод Монте Карло и MLIP, однако данный метод реализован только для адсорбции на металл-органические каркасные структуры и не применяет DFT для уточнения расчетов [5].

Предлагаемый подход обладает рядом преимуществ: вычислительная эффективность и сохранение точности благодаря применению и MLIP, и DFT, возможность масштабирования системы на новые аналиты и вариации состава поверхности сенсора, физическая осмысленность получаемого параметра.

Выводы

Был разработан подход для проведения вычислений дескрипторов адсорбции, полученных на основе квантово-химических расчетов, для поверхностей газовых сенсоров и исследуемых летучих молекул. Подход включает в себя определение конфигурации адсорбции на основе MLIP с уточнением вычислений DFT для получения точных результатов. Таким образом, данные вычисления можно охарактеризовать как “цифровой двойник” процесса адсорбции, происходящего на поверхности датчика. Вычисляемая энергия адсорбции является физически значимым параметром, который может быть использован для ML моделей вместе с экспериментальными откликами датчиков для создания более надежных систем электронного носа.

Литература

1. Chen H., Huo D., Zhang J. Gas Recognition in E-Nose System: A Review // IEEE Trans. Biomed. Circuits Syst. 2022, V. 16, № 2, P. 169–184.
2. Furizal F. and et al. Future Potential of E-Nose Technology: A Review // Int. J. Robot. Control Syst. 2023, V. 3, № 3, P. 449–469.
3. Jacobs R. и др. A practical guide to machine learning interatomic potentials -- Status and future // Curr. Opin. Solid State Mater. Sci. 2025, V. 35, 101214.
4. Kouroudis I. and et al. AUGUR, a flexible and efficient optimization algorithm for identification of optimal adsorption sites // Comput. Mater. Nature Publishing Group, 2025, V. 11, № 1, 136.
5. Edwards C. W. and et al. MLIP-MS: A Framework for Adsorption Simulations using Machine-Learned Interatomic Potentials: arXiv:2602.13725. arXiv, 2026.