

Warszawa, 22.04.2025

Dr hab. inż. Jan Wróbel, prof. PW
Politechnika Warszawska
Wydział Inżynierii Materiałowej

RECENZJA

rozprawy doktorskiej mgr. Dario Massa pt. "*Quantum-Informed Descriptors in Materials Informatics*" opracowana na zlecenie Rady Dyscypliny Naukowej Nauki Fizyczne Uniwersytetu Warszawskiego. Promotorami pracy są dr. hab. Stefanos Papanikolaou, prof. Narodowego Centrum Badań Jądrowych, oraz dr. hab. Piotr Sankowski, prof. Uniwersytetu Warszawskiego.

1. Ogólna charakterystyka pracy

Rozprawa doktorska Pana mgr. Dario Massa koncentruje się na zastosowaniu metod uczenia maszynowego do analizy i projektowania wybranych materiałów. W tego typu podejściach kluczową rolę odgrywają deskryptory, czyli sposób reprezentacji informacji o materiale, który umożliwia skuteczne uczenie modelu. Dobór odpowiednich deskryptorów ma decydujące znaczenie dla dokładności i wiarygodności przewidywanych właściwości fizycznych. Autor w swojej pracy wykazuje, że deskryptory oparte na gęstości ładunku elektronowego, obliczanej metodami *ab initio*, stanowią trafny i fizycznie ugruntowany wybór w kontekście przewidywania właściwości materiałowych.

Praca wpisuje się w dynamicznie rozwijającą się dziedzinę nauki o materiałach wspomaganej metodami uczenia maszynowego — obszar określany mianem *Materials Informatics*. Pan mgr. Dario Massa podjął próbę zastosowania nowoczesnych technik sztucznej inteligencji do lepszego zrozumienia, a docelowo również do projektowania materiałów o pożądanych właściwościach fizykochemicznych. Szczególny nacisk położył na sposób reprezentacji lokalnego środowiska atomowego przy użyciu deskryptorów opartych na danych kwantowo-mechanicznych, pozyskiwanych z obliczeń metodą teorii funkcjonału gęstości (DFT – ang. *density functional theory*), takich jak różnicowa gęstość ładunku oraz obrazy elektronowej gęstości ładunku.

Chociaż bezpośrednim celem pracy było zaprojektowanie i ocena przydatności deskryptorów opartych na gęstości elektronowej — tzw. *Quantum-Informed Descriptors* — do klasyfikacji i predykcji lokalnych właściwości materiałów metalicznych, to w szerszym sensie rozprawa stanowi kompleksowe studium zastosowania różnorodnych metod uczenia maszynowego (w tym: analiza głównych składowych, metoda k-średnich, konwolucyjne i grafowe sieci neuronowe, modele multimodalne oraz klasyczne modele regresyjne) do rozwiązywania konkretnych zagadnień z fizyki materii skondensowanej. Badania

koncentrowały się głównie na defektach punktowych w metalach o strukturze regularnej ściennie centrowanej oraz heksagonalnej zwartej, ze szczególnym uwzględnieniem obecności wodoru jako mobilnego defektu międzywęzłowego. Autor wykorzystał wysokoprzepustowe obliczenia *ab initio* (przy użyciu VASP i Quantum ESPRESSO) do budowy baz danych, które następnie posłużyły do trenowania i testowania modeli predykcyjnych dla takich wielkości jak energia wiązania wodoru, energia migracji czy moduł ściśliwości objętościowej.

2. Zakres i ocena merytoryczna rozprawy

Rozprawa liczy 121 stron i składa się z abstraktu oraz pięciu głównych rozdziałów: wprowadzenia, części zawierającej cztery opublikowane artykuły naukowe stanowiące zasadniczy trzon pracy, podsumowania wyników, zestawienia publikacji autora niezwiązanych bezpośrednio z tematyką rozprawy oraz dodatku metodologicznego obejmującego opis zastosowanych metod obliczeniowych. Strona edytorska pracy jest na ogół poprawna, a układ graficzny rysunków i tabel jest przejrzysty i czytelny.

Rozdział 1 pełni funkcję wprowadzenia do tematyki rozprawy i zawiera ogólne omówienie roli uczenia maszynowego w fizyce materii skondensowanej i naukach o materiałach, ze szczególnym uwzględnieniem znaczenia reprezentacji danych materiałowych oraz znaczenia danych pochodzących z gęstości elektronowej. Autor przedstawił także główne obszary zastosowań, które będą rozwijane w kolejnych rozdziałach, oraz zarysował aktualne wyzwania w obszarze predykcji właściwości materiałów.

Rozdział 2 zawiera opis czterech artykułów naukowych, które stanowią zasadniczy wkład merytoryczny rozprawy doktorskiej i prezentują kolejne etapy rozwoju i zastosowania zaproponowanych przez Autora metod.

W pierwszym artykule (*Manuscript I*) Pan mgr. Dario Massa wprowadził ideę perturbacji gęstości ładunku elektronowego (PChDP – z ang. *perturbed differential charge density profiles*) jako deskryptora opisującego reakcję lokalnego środowiska atomowego na obecność atomu wodoru. Pokazał, że sygnały PChDP mogą być przekształcone do funkcji rozkładu radialnego (RDF – z ang. *radial distribution function*), a następnie poddane analizie głównych składowych i klasteryzacji. Wyniki sugerują, że deskryptory PChDP korelują z właściwościami chemicznymi i sprężystymi pierwiastków, a także z energiami migracji wodoru. Należy jednak zauważyć, że redukcja wymiarowości do RDF prowadzi do utraty istotnych informacji kierunkowych oraz topologicznych — co Autor sam zresztą zauważa i rozwija w kolejnych pracach.

W drugim artykule (*Manuscript II*) Pan mgr. Dario Massa przedstawił zastosowanie metod *transfer learningu* (uczenia z transferem wiedzy), polegającego na dostosowywaniu już wytrenowanych modeli głębokiego uczenia — w tym modeli analizujących obrazy i tekst — do nowego zadania przewidywania właściwości materiałów na podstawie danych pochodzących z obliczeń kwantowych i informacji krystalograficznych. Autor wykorzystał dane multimodalne: obrazy gęstości ładunku elektronowego (ECD – z ang. *electron charge density*) oraz opisy krystalograficzne z bazy Materials Project, a następnie zastosował zarówno

gotowe modele (np. CLIP od OpenAI), jak i własny model łączący przetwarzanie obrazu i tekstu (InceptionV3 oraz Roberta). Autor zademonstrował, że nawet prosta informacja, jak dwuwymiarowy przekrój ECD w płaszczyźnie $\{111\}$, może zawierać wystarczająco dużo danych, aby przewidzieć kosztowne do obliczenia właściwości, jak moduł ściśliwości objętościowej. Wyniki pokazują, że podejście to może być skuteczne w przypadkach ograniczonej liczby danych oraz że połączenie tekstowych i wizualnych reprezentacji może poprawić dokładność predykcji.

Trzeci artykuł (*Manuscript III*) poświęcony jest ocenie możliwości zastosowania grafowych sieci neuronowych (GNN – z ang. *graph neural network*), a konkretnie modelu MEGNet wytrenowanego na bazie Materials Project, do przewidywania właściwości materiałów zawierających domieszki. Autor badał, czy model wytrenowany na niezdefektowanych kryształach może wiarygodnie przewidywać właściwości takich układów jak właściwości sprężyste czy energia tworzenia, po wprowadzeniu pojedynczego atomu domieszkowego do superkomórki. Badania obejmowały dwie strategie: (i) podstawienie różnych atomów w jednej osnowie krystalicznej (np. Al, Mo, Ni, Au), oraz (ii) podstawienie tego samego atomu w wielu różnych matrycach. Wyniki uzyskane przy użyciu modelu porównano z wynikami obliczeń DFT dla wybranych przypadków. Dla właściwości sprężystych uzyskano dobrą zgodność, natomiast przewidywanie energii tworzenia okazało się znacznie mniej dokładne. Artykuł ten stanowi interesujący przykład oceny zdolności modeli uczenia maszynowego do uogólniania w kontekście lokalnych defektów podstawieniowych. Autor z dużą świadomością wskazał ograniczenia metod głębokiego uczenia – zwłaszcza trudność interpretacji wyników oraz spadek skuteczności przy ekstrapolacji na nowe układy, np. domieszkowanie struktur, które nie występowały w danych treningowych. Podkreślenie tych aspektów świadczy o dojrzałym podejściu Autora, który traktuje uczenie maszynowe jako narzędzie wspierające tradycyjne metody fizyczne, a nie ich bezkrytyczną alternatywę.

W czwartym artykule (*Manuscript IV*) Pan mgr. Dario Massa porównywał skuteczność różnych modeli potencjałów międzyatomowych opartych na uczeniu maszynowym (MLPs – z ang. *machine learning potentials*) w opisie dyfuzji wodoru w magnezie. Analiza obejmowała zarówno tzw. uniwersalne potencjały międzyatomowe (UIP – z ang. *universal interatomic potentials*), takie jak MACE i CHGNet, wytrenowane na dużych i różnorodnych zbiorach danych, jak również model trenowany lokalnie na potrzeby konkretnego układu. Ten drugi rodzaj potencjału został stworzony przy użyciu tzw. treningu *on-the-fly*, czyli w trakcie trwania symulacji dynamiką molekularną *ab initio* (AIMD – z ang. *ab initio molecular dynamics*), podczas której nowe dane są dynamicznie dodawane do zbioru treningowego i wykorzystywane do aktualizacji modelu. Autor przeprowadził szczegółową analizę trajektorii dyfuzji, energii wiązania i barier migracji wodoru, a także testował modele pod kątem ich zdolności do reprodukcji właściwości dynamicznych w realistycznych warunkach wysokotemperaturowych. Najważniejszym moim zdaniem wnioskiem płynącym z tego artykułu jest obserwacja, że modele UIP zawodzą w opisie zjawisk takich jak dyfuzja wodoru, jeśli ich zbiory treningowe nie zawierają konfiguracji metastabilnych obecnych w trajektoriach AIMD. Autor wykazał, że tylko model trenowany *on-the-fly* na takich trajektoriach jest w stanie prawidłowo odtworzyć dynamikę atomów wodoru i przewidywać wiarygodne bariery migracji.

To ważne spostrzeżenie praktyczne, które podkreśla znaczenie doboru odpowiedniego zbioru treningowego oraz kontekstowego trenowania modelu MLP w odniesieniu do badanego zjawiska.

Po szczegółowej analizie czterech artykułów naukowych, które stanowią zasadniczą część rozprawy, Pan mgr. Dario Massa przeszedł do podsumowania wyników i wniosków zawartych w Rozdziale 3. Choć objętość tego rozdziału jest niewielka, to przedstawione tam wnioski są trafne i dobrze oddają istotę przeprowadzonych analiz.

Rozdział 4 zawiera wykaz prac naukowych niezwiązanych bezpośrednio z główną tematyką rozprawy doktorskiej. Choć nie stanowią one integralnej części rozprawy, to potwierdzają szerszą aktywność naukową doktoranta i jego doświadczenie w różnych aspektach badań obliczeniowych i eksperymentalnych w nauce o materiałach.

Rozdział 5 przedstawia w zwięzłej formie podstawy teoretyczne stosowanych w pracy narzędzi obliczeniowych, w tym metody DFT oraz wybranych metod uczenia maszynowego. Choć zakres tego dodatku jest ograniczony, to spełnia on swoją rolę jako materiał uzupełniający, pozwalający lepiej zrozumieć techniczne aspekty zastosowanych metod.

3. Uwagi szczegółowe

W pracy występuje kilka drobnych pomyłek, niedociągnięć i niejasności, które mogą utrudniać zrozumienie pracy i wyników badań, np. :

- 1) W rozprawie brakuje wyraźnie sformułowanej hipotezy badawczej oraz jednoznacznie określonego celu i zakresu pracy. Choć poszczególne części rozprawy składają się na spójną całość, a wnioski można odczytać z kontekstu artykułów i komentarzy autorskich, to brak tych elementów wprost utrudnia czytelnikowi uchwycenie ogólnego zamysłu badawczego i naukowego tła podejmowanych działań. Wyraźne przedstawienie celu, zakresu i hipotezy mogłoby dodatkowo wzmocnić strukturę pracy i ułatwić odbiór jej wartości poznawczej.
- 2) W Tabeli S II w materiałach uzupełniających do *Manuscript I* przedstawiono wartości właściwości sprężystych uzyskane przy użyciu narzędzia Thermo_PW. Niestety, wiele z tych wartości jest błędnych, a niektóre wręcz fizycznie niedopuszczalne (np. ujemne moduły Younga czy moduły ściśliwości objętościowej). Czy Autor może wytłumaczyć, czym jest to spowodowane?
- 3) W tabelach będących materiałami uzupełniającymi do *Manuscript I*, Autor podaje wartości z nadmierną precyzją (np. 6 cyfr po przecinku), co jest nieadekwatne w kontekście typowych niepewności obliczeń DFT.

4. Uwagi o charakterze dyskusyjnym

Do najważniejszych uwag merytorycznych, do których w mojej ocenie Autor powinien się odnieść należą:

- 1) Wszystkie metody zaproponowane w rozprawie zostały przetestowane na układach relatywnie prostych z osnową składającą się z atomów jednego pierwiastka. Tymczasem w zastosowaniach praktycznych, takich jak projektowanie materiałów do ekstremalnych warunków (np. w energetyce jądrowej), kluczową rolę odgrywają stopy wieloskładnikowe. Czy zaproponowane deskryptory — zwłaszcza te oparte na gęstości ładunku elektronowego — mogą zostać w bezpośredni sposób rozszerzone na układy o zróżnicowanym lokalnym składzie chemicznym? Czy Autor rozważał włączenie do zbioru treningowego struktur o nieregularnym, niejednorodnym otoczeniu atomowym, typowym dla stopów wysokiej entropii?
- 2) W *Manuscript I* Autor analizuje zmiany w gęstości ładunku elektronowego wywołane obecnością wodoru jako defektu punktowego. Czy zastosowana metoda, oparta na analizie różnicowej gęstości ładunku i zmianie sygnału RDF, mogłaby być równie skuteczna w przypadku innych typów defektów, takich jak wakanse? Co było powodem wyboru właśnie wodoru jako defektu testowego?
- 3) W *Manuscript II* Autor prezentuje ciekawe i obiecujące podejście oparte na *transfer learningu*, wykorzystujące multimodalne połączenie obrazów gęstości ładunku elektronowego oraz opisu tekstowego struktury krystalicznej. Modele te okazały się skuteczne w predykcji takich właściwości jak moduł ściśliwości objętościowej. Zważywszy jednak na to, że wiele baz danych materiałowych (np. Materials Project) zawiera już bezpośrednio wartości takich właściwości, rodzi się pytanie: jakie są potencjalne możliwości zastosowania tej metody w praktyce? Czy głównym celem jest rozwój narzędzi do predykcji właściwości dla nowych, dotąd nieprzebadanych materiałów, np. w wysokoprzepustowych procedurach selekcji struktur generowanych automatycznie (USPEX, CALYPSO)? Czy Autor zastanawiał się na temat możliwości rozszerzenia tej koncepcji na bardziej złożone materiały, np. stopy wieloskładnikowe, gdzie dane wejściowe mogą być trudniejsze do jednoznacznego zdefiniowania?
- 4) W kontekście zastosowania modeli MLP do predykcji trajektorii dyfuzji wodoru, interesujące byłoby poznanie opinii Autora na temat ich przydatności w przypadku bardziej złożonych zjawisk, takich jak dyfuzja własna z udziałem wakansów czy migracja atomów w losowych środowiskach stopowych, gdzie rzadkość zdarzeń w AIMD może znacząco ograniczać jakość danych treningowych. Czy metody MLP *on-the-fly* są wciąż skuteczne w takich przypadkach, czy wymagają istotnej modyfikacji?

5. Ocena końcowa rozprawy doktorskiej

Praca doktorska mgr. Dario Massa stanowi wartościowy i oryginalny wkład w rozwój interdyscyplinarnej dziedziny na pograniczu fizyki materii skondensowanej, nauki o materiałach oraz informatyki. Autor wykazał się bardzo dobrą znajomością zarówno zaawansowanych metod *ab initio*, jak i nowoczesnych technik uczenia maszynowego, co pozwoliło mu na zaprojektowanie i ocenę deskryptorów opartych na danych kwantowo-mechanicznych, opisujących lokalne środowiska atomowe oraz energię defektów punktowych. Na szczególne uznanie zasługuje rozwój metod wykorzystujących gęstość ładunku

elektronowego jako nośnika fizycznie ugruntowanej informacji strukturalnej — począwszy od jej reprezentacji w postaci obrazów, po zastosowanie grafowych sieci neuronowych i modeli multimodalnych do klasyfikacji właściwości lokalnych. Praca obejmuje szeroki zakres badań: od opracowania deskryptorów, przez tworzenie i testowanie modeli ML, aż po ich zastosowanie w realistycznych układach metalicznych. Należy zwrócić uwagę, że Autor samodzielnie przygotowywał dane wejściowe na podstawie obliczeń DFT w dwóch niezależnych kodach (VASP i Quantum ESPRESSO), co wymagało zaawansowanych kompetencji w zakresie metod numerycznych.

Na podstawie powyższych stwierdzeń wyrażam opinię, że rozprawa doktorska mgr. Dario Massa pt. „*Quantum-Informed Descriptors in Materials Informatics*” spełnia wszystkie wymagania stawiane rozprawom doktorskim zawarte w Ustawie z dnia 20 lipca 2018 r. Prawo o szkolnictwie wyższym i nauce i wnoszę o dopuszczenie jej Autora do publicznej obrony przed Radą Dyscypliny Naukowej Nauki Fizyczne Uniwersytetu Warszawskiego.

Ze względu na interdyscyplinarny i nowatorski charakter badań — obejmujących rozwój metod uczenia maszynowego do opisu lokalnych właściwości materiałów na podstawie danych kwantowo-mechanicznych — a także na szeroki zakres tematyczny rozprawy i bardzo wysoką jakość wykonanych badań (trzy z czterech prac zostały opublikowane w prestiżowych czasopismach z najwyższej kategorii, takich jak *Acta Materialia* i *npj Computational Materials*, oraz w materiałach konferencji NeurIPS, wysoko punktowanej w krajowym systemie oceny), rekomenduję również rozpatrzenie wniosku o wyróżnienie rozprawy doktorskiej mgr. Dario Massa.

Z poważaniem,

