

**Recenzja rozprawy doktorskiej mgr Dario Massa pt.:**  
*Quantum-Informed Descriptors in Materials Informatics*

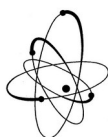
Praca doktorska dotyczy relatywnie nowego i niezwykle dynamicznie rozwijającego się interdyscyplinarnego nurtu nauk ścisłych i przyrodniczych, z pogranicza obliczeniowej fizyki materii skondensowanej, inżynierii materiałowej oraz informatyczno-matematycznych metod sztucznej inteligencji, który zwięźle nazywa się informatyką materiałową. Podstawą rozprawy doktorskiej mgr Dario Massy są cztery publikacje wieloautorskie z 2024 roku: trzy opublikowane w renomowanych czasopismach fizycznych (przy czym jeden artykuł na etapie złożenia rozprawy doktorskiej został przyjęty do druku) oraz jeden artykuł konferencyjny.

- [1]. Dario Massa, Efthimios Kaxiras, and Stefanos Papanikolaou. "Alloy informatics through ab initio charge density profiles: Case study of hydrogen elects in face-centred cubic crystals", In: Acta Materialia 268 (2024): 119773. DOI: 10.1016/j.actamat.2024.119773
- [2]. Dario Massa, Grzegorz Kaszuba, Stefanos Papanikolaou and Piotr Sankowski. "Transfer Learning in Materials Informatics: structure-property relationships through minimal but highly informative multimodal input", Accepted in NeurIPS2024 - Machine Learning and the Physical Sciences (2024). Public NeurIPS Peer Review Process, Comments and Acceptance: OpenReview DOI: [arxiv.org/abs/2401.09301](https://arxiv.org/abs/2401.09301)
- [3]. Dario Massa, Daniel Cieśliński, Amirhossein Naghdi and Stefanos Papanikolaou. "Substitutional alloying using crystal graph neural networks", In: AIP Advances 1 January 2024; 14 (1): 015023; DOI:10.1063/5.0163765
- [4]. Andrea Angeletti, Luca Leoni, Dario Massa, Luca Pasquini, Stefanos Papanikolaou and Cesare Franchini. "Hydrogen Diffusion in Magnesium Using Machine Learning Potentials", In: NPJ Computational Materials 11(1) (2025) 85.

W trzech artykułach Doktorant jest pierwszym autorem (w jednej pracy był też autorem korespondencyjnym), a w czwartej pracy znalazł się na 3 miejscu listy autorów, co łącznie daje dobre podstawy uznania wiodącego wkładu mgr Dario Massy w uzyskanie wyników zawartych w publikacjach, będących przedmiotem rozprawy doktorskiej.

Praca doktorska została zrealizowana pod opieką prof. Stefanosa Papanikolaou (NCBJ) oraz prof. Piotra Sankowskiego (UW) w Centrum Doskonałości NOMATEN NCBJ w Otwocku oraz w Laboratorium ELLIS (European Laboratory for Learning and Intelligent Systems) w Warszawie.

W centrum zainteresowań informatyki materiałów wydaje się być umiejętne i selektywne (czyli pod wieloma względami „inteligentne”) wykorzystanie ogromnych i coraz lepiej zarchiwizowanych baz danych z obszaru doświadczalnej, obliczeniowej i teoretycznej fizyki ciał stałych, do trenowania algorytmów uczenia maszynowego (ML), celem przyspieszenia



procesu poszukiwania, projektowania i odkrywania nieznanymi własności materiałów, czy wręcz odkrywania kompletnie nowych struktur. Należy przy tym podkreślić, z czego dobrze zdaje sobie sprawę Doktorant, że nie zawsze między danymi wejściowymi a końcowymi konkluzjami (przedstawianymi w postaci korelacji pomiędzy rozważanymi i czasami dość odległymi wielkościami fizycznymi czy chemicznymi,) występuje wyraźny związek przyczynowo-skutkowy, mający swoje ugruntowanie w wiedzy o materiałach. Stąd bardzo trafnie zauważa Autor, przytaczając kilka przykładów prognozowania wybranych właściwości fizycznych materiałów na podstawie np. danych o strukturach krystalicznych, że "kluczowym czynnikiem sukcesu jest efektywność deskryptorów używanych do kodowania istotnych informacji o właściwościach układu".

Bardzo owocnym punktem wyjścia poszukiwania tego typu deskryptorów, zawierających na przykład informacje o kwantowym charakterze badanego obiektu, w celu uwzględnienia fizycznych podstaw budowy i stabilności kryształów, była koncepcja wykorzystania map gęstości ładunkowych (i pewnie też spinowych?). Istotnie, nie funkcje falowe Blocha opisujące stany elektronowe w materiałach translacyjnie niezmienniczych, ale bezpośrednio gęstości elektronowe są centralnym pojęciem nie tylko twierdzeń teorii funkcjonału gęstości DFT (kluczowa wielkość w stosowanych technikach kwantowych obliczeń struktury elektronowej, takich jak metody pseudopotencjałów, LCAO, APW czy KKR), gdyż rozkłady gęstości elektronowych są źródłem identyfikacji atomów w eksperymentach dyfrakcyjnych. Tak więc wybór deskryptorów w postaci map gęstości elektronowych, zawierających w sobie informację o atomach budujących kryształ, oddziaływaniach pomiędzy atomami reprezentowanych rodzajami wiązań chemicznych, wydaje się fizycznie jak najbardziej trafny i uzasadniony.

Przechodząc do bardziej szczegółowego omówienia zasadniczych rezultatów prac [1-4], warto podkreślić, że do uzyskania tak różnorodnych wyników zawartych w rozprawie, wymagane były od Doktoranta rozległe umiejętności teoretyczno-numeryczne (znajomość a przede wszystkim biegłość w obliczeniach DFT z zastosowaniem różnych kodów, np. Quantum Espresso oraz VASP) oraz algorytmiczne (implementacja wielu modeli i metod uczenia maszynowego oraz sprawność wykorzystania baz danych).

**Praca [1]** prezentuje interesujące wyniki badania profili gęstości ładunkowych w perspektywie „informatyki stopów” na przykładzie domieszkowania wodorem kryształów o strukturze *fcc*, w szczególności w metalicznym magnezie, najbardziej atrakcyjnym z punktu widzenia poszukiwania materiałów do magazynowania wodoru. Autorzy wychodząc od wyników obliczeń *ab initio* struktury elektronowej, a zatem rozkładów ładunkowych i potencjałów krystalicznych, rozważają ich deformację pod wpływem defektów w formie domieszek wodorowych, które mogą lokować się w przypadku struktur gęstego upakowania (*fcc*, *hcp*) w lukach tetraedrycznych lub oktaedrycznych. Z uwagi na silną zależność wiązań chemicznych w obecności „niedoskonałości” sieci krystalicznej w postaci H w pozycjach międzywęzłowych (lukach) TI lub OI, naturalnymi deskryptorami do szerszej analizy z użyciem algorytmów ML (oprócz wspomnianych już profili gęstości ładunkowych) okazały się parametry geometryczne wokół atomów budujących strukturę, czyli pierwiastka metalicznego M oraz wodoru H (promienie oraz odpowiadające objętości wynikające z analizy Badera) jak też transfery ładunkowe pomiędzy ładunkami w wyniku zaburzeń w postaci domieszek. Istotnym okazała się również analiza radialnej funkcji dystrybucyjnej RDF, charakterystycznej dla uwypuklenia wpływu nieporządku na położenia atomów. Do obliczeń DFT

---

uwzględniających wpływ nieporządku chemicznego, zastosowano dobrze znaną i szybką pod względem numerycznym metodę pseudopotencjałów dostępną w ramach pakietu QE oraz z wykorzystaniem superkomórek. Szczegółowo analizowane są takie parametry, które uzyskiwane są z obliczeń DFT jak tzw. zaburzone różnicowe profile gęstości ładunkowych (PChDP), energie wiązania, skalowanie wyników wraz z rozmiarem atomów, wpływ lokalnej symetrii, obliczenia barier energetycznych migracji atomów wodoru. W zasadniczej części pracy dotyczącej ML zastosowano jeden z algorytmów PCA (*principal component analysis*) należący do technik uczenia bez nadzoru, celem utrzymania możliwie silnie różnorodnej informacji o układzie. Jako rezultaty badań uzyskano bardzo interesujące korelacje pomiędzy wielkościami związanymi z rozkładami gęstości ładunkowych (maksima RDF, transfery ładunkowe, ładunek Badera) a własnościami atomowymi i strukturalnymi.

Autorzy dochodzą do interesujących wniosków, że na podstawie analizy ML z użyciem deskryptorów w postaci zaburzonych różnicowych profili gęstości ładunkowych PChDP pojawiają się możliwości przewidywania zachowania materiałów w obecności różnych defektów krystalicznych. Poprzez analogię biologiczną, podejście to pozwala spodziewać się uzyskać „genotyp” materiału krystalicznego w obecności defektów (np. atomy H w lukach krystalicznych) optymalnego np. do zastosowań przechowywania wodoru w strukturach metali i stopów.

W **pracy [2]** badano transfer uczenia się w architekturach opartych na obrazie i tekście, które mogą mieć wpływ na podejmowanie decyzji w nowych metodach AI w zastosowaniu do selekcji lub poszukiwania materiałów o pożądanych właściwościach. Podobnie jak w podejściu zaprezentowanym w pracy [1] założono, że własności fizyczne materiałów wynikają w dużej mierze z ich struktury elektronowej, a najbardziej reprezentacyjne przypadki można wyekstrahować bezpośrednio z zestawów danych obrazów profili gęstości ładunku elektronowego przy użyciu sieci neuronowych. W tym celu skorzystano z bazy danych obliczeń DFT (Materials Project) z dostępem do map ECP (*electron charge density*), ograniczając się do stabilnych układów krystalicznych o strukturze *fcc* (781 przypadków - finalnie do trenowania użyto 592 próbek, odfiltrowanych pod względem czystości danych). Autorzy przetestowali możliwość transferu znanego multimodalnego modelu uczenia tzw. *Contrastive Language-Image Pre-training* (CLIP) dostępnego w OpenAI. W przypadku testów regresji liniowej, rozważono kilka wielkości fizycznych istotnych z punktu widzenia własności mikroskopowych materiałów krystalicznych, takich jak energia formowania, energia Fermiego oraz objętościowy moduł sprężystości (*bulk modulus*). Zbadano dwa podstawowe modele, aby wprowadzić informacje tekstowe i obrazowe o strukturach kryształu, czego wynikiem był niestandardowy model multimodalny w formie stosu. W celu przetworzenia (rozpoznawania i klasyfikowania) obrazu używano aplikacji InceptionV3 (aplikacji z rodziny CNN), który był wstępnie wytrenowanym modelem bazy ImageNet. W przypadku tekstu używano modelu językowego Roberta. Rys. 2 [2] przedstawia jakość dopasowania metodą regresji liniowej dla niestandardowego modelu multimodalnego na różnych etapach jego implementacji. Analiza danych InceptionV3 (tylko obraz) pozwala przewidywać bardzo trafnie wartości modułu sprężystości (uzyskano wysokie wartości współczynników korelacji), porównywalne z modelem CLIP. Dalsza poprawa prognozowania z zastosowaniem modelu RoBERTa (tylko tekst) lub poprzez połączenie danych tekstowych i obrazu nie dają widocznej poprawy współczynników korelacji. W pewnym kontraście do modułu sprężystości pozostają

---

przewidywania wartości energii Fermiego, które jeśli bazują wyłącznie na obrazach ECD, generalnie nie wypadają korzystnie. Dużą poprawę współczynnika korelacji przynosi dopiero wykorzystanie dodatkowych (tekstowych) informacji krystalograficznych na różnych poziomach wnioskowania (wzór chemiczny, słowa kluczowe). Okazuje się, że energia formowania jest trudną do przewidywania wielkością, na podstawie obrazów ECD. Tym bardziej, że obserwujemy niewielką poprawę po uzupełnieniu danych wejściowych w postaci tekstu (przeciwnie niż w przypadku analizy energii Fermiego).

**Praca [3]** pokazuje inne podejście do prognozowania wybranych wielkości fizycznych materiałów, alternatywne do prac [1-2] z użyciem deskryptorów w postaci ładunkowych gęstości elektronowych, gdyż bazuje na tzw. splotowych sieciach neuronowych grafów krystalicznych CGNN (*crystal graph neural networks*). Jest to bardzo obiecująca koncepcja zaproponowana przez T. Xie and J. C. Grossman, *Crystal graph convolutional neural networks for an accurate and interpretable prediction of material properties*, Phys. Rev. Lett. **120**, 145301 (2018) oraz C. W. Park and C. Wolverton, *Developing an improved crystal graph convolutional neural network framework for accelerated materials discovery*, Phys. Rev. Mater. **4**, 063801 (2020) – znanych specjalistów od obliczeń *ab initio* – której celem, jak zaznaczają autorzy, jest „akceleracja odkryć” w naukach o materiałach. Wspólną ideą modeli opartych na GNN jest przedstawienie atomów w postaci węzłów (V) i wiązań chemicznych pomiędzy nimi jako krawędzi (E) w grafie  $G(V,E)$ , który można dalej przekazać do wytrenowanej sieci neuronowej, celem utworzenia połączeń na poziomie węzłów („wyuczona” reprezentacja każdego atomu wraz z jego indywidualnym otoczeniem chemicznym) i splatać z sąsiednimi węzłami i krawędziami. Zadaniem algorytmu jest poszukiwanie materiału  $y$  o określonych właściwościach fizyko-chemicznych, biorąc pod uwagę strukturę danych opartą na grafie  $G$  (wejście) z zakodowanymi istotnymi cechami dla rozważanego problemu, jak też zestaw wag  $W$  (parametry modelu), które można uzyskać w drodze uczenia się na podstawie dostępnych danych. Ta więc przewidywanie cech materiału  $y$  sprowadza się do poszukiwania funkcji mapującej  $f(G, W) \rightarrow y$ , zależnej od grafów i wag. Autorzy pracy [3] w szczególności użyli poprawionego modelu CGNN, nazywanego w skrócie MEGNet (Materials Graph Network), skutecznie przewidujący właściwości molekuł i kryształów, umożliwiający uwzględnienie takich parametrów termodynamicznych jak temperatura, ciśnienie czy entropia. Zbadano wpływ przede wszystkim zaburzeń krystalicznych (defektów) na wielkości mechaniczne takie jak moduł sprężystości (*bulk modulus*) oraz moduł ścinania (*shear modulus*) w wybranych materiałach Al, Ni, Mo i Au, rozważając większość pierwiastków układu okresowego jako niedoskonałości sieci. Uzyskano bardzo interesujące zależności modułów w funkcji domieszek w ramach serii 3d, 4d i 5d metali przejściowych. W podsumowaniu, można uznać, że zaproponowana analiza z zastosowaniem metod AI jest bardzo obiecująca, niemniej należałoby się zastanowić nad przyczyną np. stosunkowo słabych przewidywań dotyczących energii formowania, podczas gdy przewidywania własności mechanicznych wypadają bardzo dobrze. Jaka jest przyczyna rozbieżności w takich przypadkach jak np. Al z domieszką Ni, gdzie korelacja modułu sprężystości jest znakomita, podczas gdy energia formowania wypada fatalnie (Tabela VII przedstawiająca porównanie wyników obliczeń DFT i przewidywań z użyciem modelu MEGNet). Przypuszczalnie, energia formowania jest trudna do przewidywania z użyciem metod ML, gdyż jej wartość jest wypadkową bardzo wielu zmiennych, a ponadto pozostaje wielkością względną.

**Praca [4]** wchodząca do rozprawy doktorskiej dotyczy badań teoretycznych zjawiska dyfuzji wodoru w magnezie z wykorzystaniem różnych metod i strategii uczenia maszynowego (m.in. MACE i CHGNet) w celu tworzenia wiarygodnych potencjałów oddziaływań międzyatomowych. Podejście to umożliwiło m.in. bezpośrednie porównania pomiędzy rezultatami obliczeń DFT (pakiet VASP bazujący na metodzie pseudopotencjałów) a metodami dynamiki molekularnej wspomaganymi uczeniem maszynowym. Przewidywania dotyczące np. radialnej funkcji dystrybucyjnej (RDF) z wykorzystaniem algorytmu *Crystal Hamiltonian Graph Neural Network* (CHGNet) oraz bazy danych *Materials Project*, dały bardzo dobrą zgodność z wynikami obliczeń pakietem VASP. Należy podkreślić, że w przeprowadzonych badaniach dla różnych temperatur i zakresów stężeń wodoru w kryształach magnezu, uzyskano wartości współczynników dyfuzji wodoru i energii aktywacji, które są w znakomitej zgodności z wynikami eksperymentów, co podkreśla skuteczność i dokładność metod wspomaganych uczeniem maszynowym w kontekście opisu dynamicznego procesu dyfuzji.

Reasumując na podstawie przedstawionej rozprawy doktorskiej stwierdzam, że mgr Dario Massa wykazał się bardzo dobrym przygotowaniem teoretycznym w zakresie metod obliczeniowych DFT i dynamiki molekularnej, jak też nowoczesnych technik uczenia maszynowego oraz wyjątkową numeryczną sprawnością przy operowaniu tak wieloma kodami i aktualnymi algorytmami AI. Na szczególnie pozytywną ocenę zasługuje szerokie spojrzenie oraz duża samodzielność w poszukiwaniu podejść do problemu zastosowania ML do badań materiałów krystalicznych. Należy też podkreślić ponadprzeciętne umiejętności Doktoranta korzystania z najbardziej aktualnych materiałowych baz danych, najnowszych algorytmów sieci neuronowych, jak również krytyczne spojrzenie na uzyskiwane wyniki. Dario Massa w swojej pracy doktorskiej uzyskał oryginalne, wręcz pionierskie wyniki w relatywnie nowej i niezwykle dynamicznie rozwijającej się dziedzinie fizyki ciała stałego, jaką jest wspomagana metodami AI informatyka materiałów.

Zważywszy na: (i) wypracowanie ogólnych koncepcji i procedur numerycznych, umożliwiających wskazywanie korelacji pomiędzy wybranymi własnościami fizyko-chemicznych materiałów, (ii) walidację przewidywań z zastosowaniem zaawansowanych obliczeń DFT, (iii) stworzenie możliwości akceleracji poszukiwań nowych materiałów metodami ML, recenzent rezerwuje sobie prawo wyróżnienia rozprawy doktorskiej po przebiegu obrony pracy doktorskiej.

Podsumowując stwierdzam, że recenzowana rozprawa spełnia wymagania określone w art. 187 ustawy z dnia 20 lipca 2018 r. Prawo o szkolnictwie wyższym i nauce (z późn. zm.) i wnioskuję o jej dopuszczenie do dalszych etapów postępowania o nadanie stopnia doktora w dziedzinie nauk ścisłych i przyrodniczych w dyscyplinie nauki fizyczne.

