

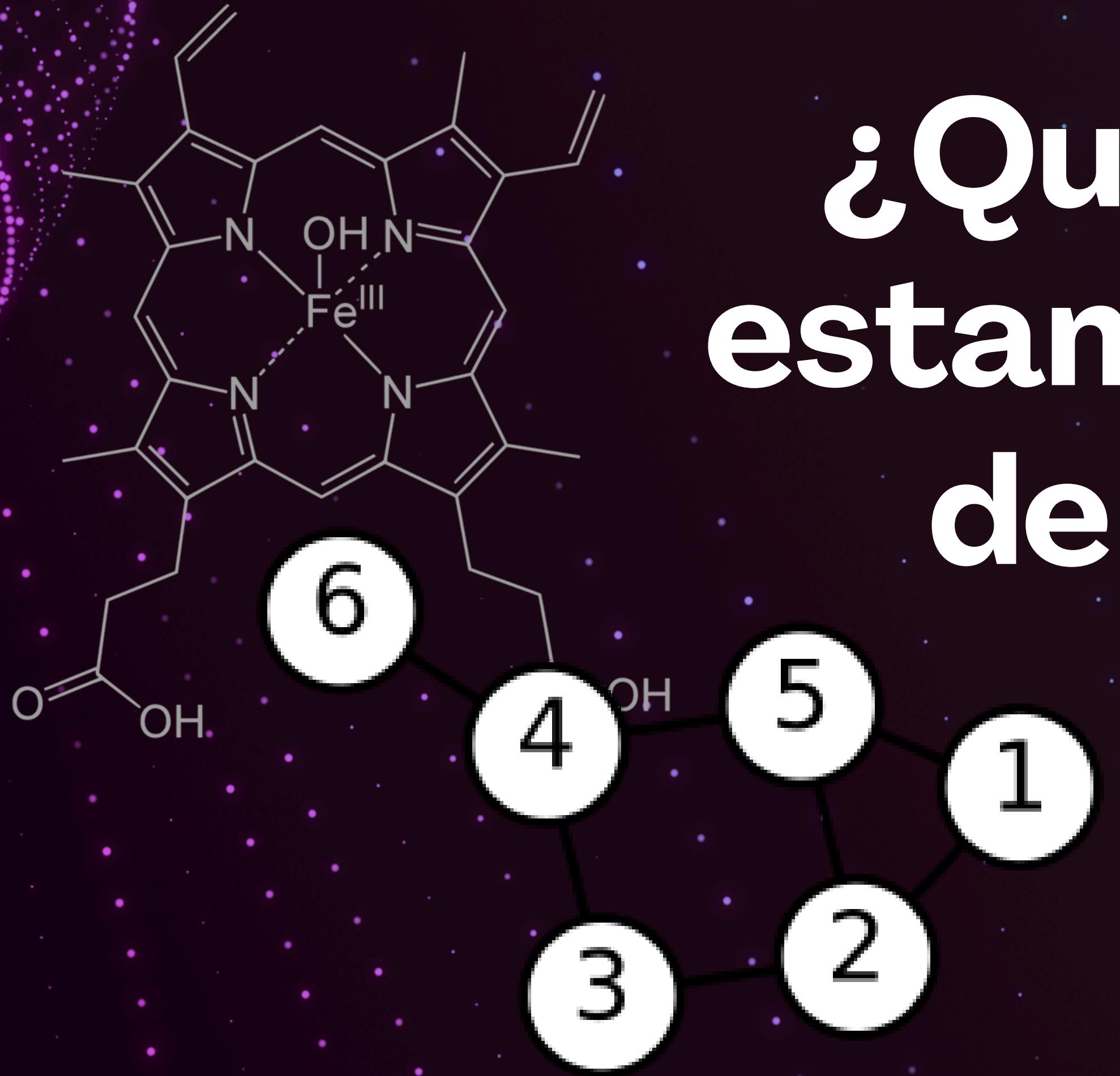
MODELO MACE COMO UNA ALTERNATIVA AL DFT EN LA CONSTRUCCIÓN DE POTENCIALES INTERATOMICOS

proyecto de Aprendizaje Estadístico

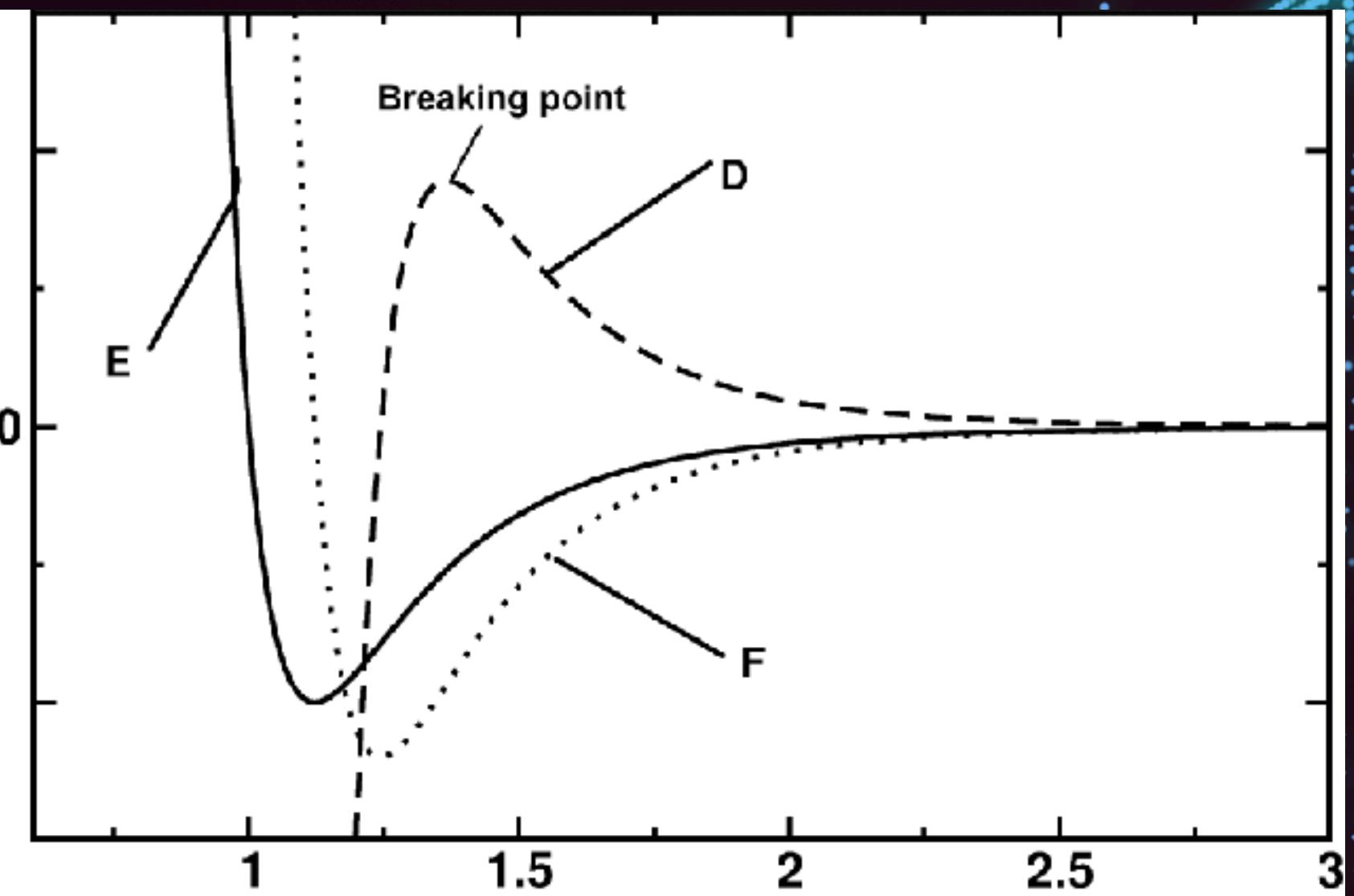


Por Daniel Duque y Tomás Gómez
Martes, 11 de Noviembre de 2025

¿Qué problema
estamos tratando
de abordar?

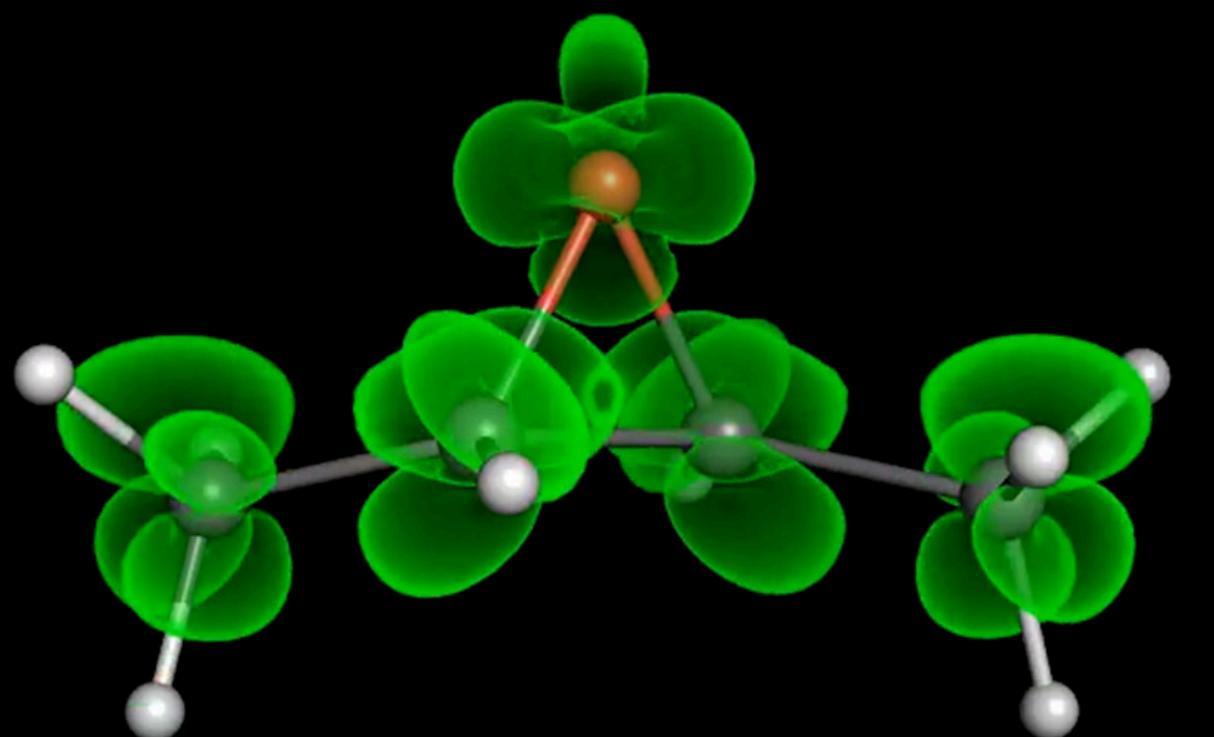


Determinación de potenciales interatómicos (campos de fuerza) para sistemas químicos y modelamiento atómico.



Fundamento teórico del dft

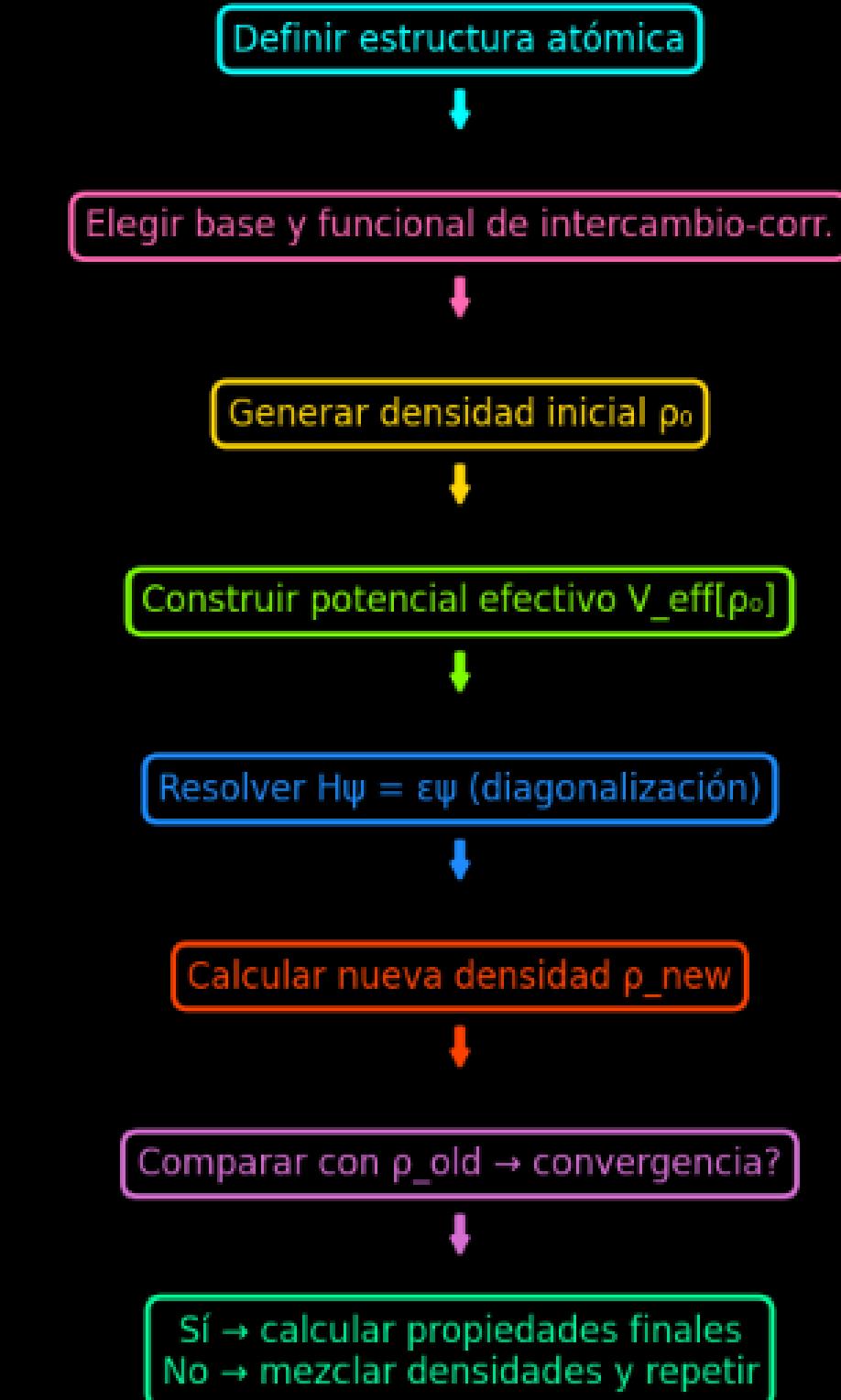
La teoría del funcional de la densidad (TFD o DFT por sus siglas en inglés: Density functional theory), aplicada a sistemas electrónicos, es un procedimiento variacional alternativo a la solución de la ecuación de Schrodinger, donde el funcional de la energía electrónica es minimizado respecto a la densidad. Es uno de los métodos más utilizados en los cálculos cuánticos de la estructura electrónica.



El modelo computacional del dft

Se basa en resolver de forma autoconsistente las ecuaciones de Kohn–Sham, donde el sistema de muchos electrones se reemplaza por un conjunto de electrones independientes que se mueven en un potencial efectivo dependiente de la densidad electrónica. Computacionalmente, se parte de una densidad inicial, se construye el potencial total y se resuelven las ecuaciones de Kohn–Sham mediante diagonalización matricial para obtener nuevos orbitales y una densidad actualizada.

Flujo computacional del método DFT

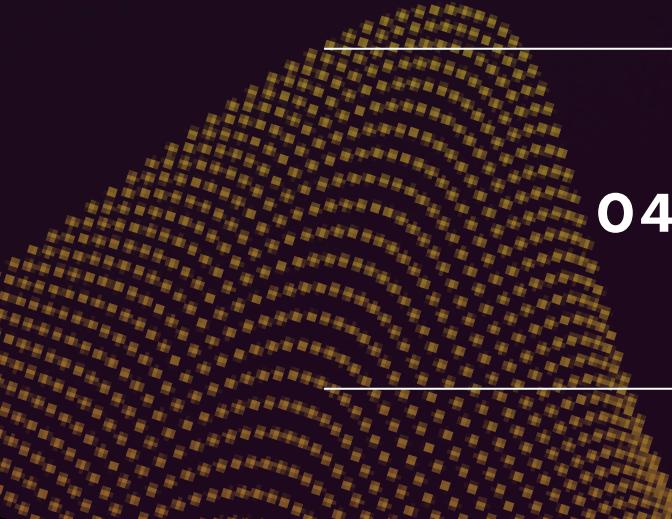


Coste computacional del modelo dft

Razones por las cuales a pesar de la precisión del modelo computacional del dft, y de bajo coste computacionalmente puede tener complicaciones en los siguientes casos:

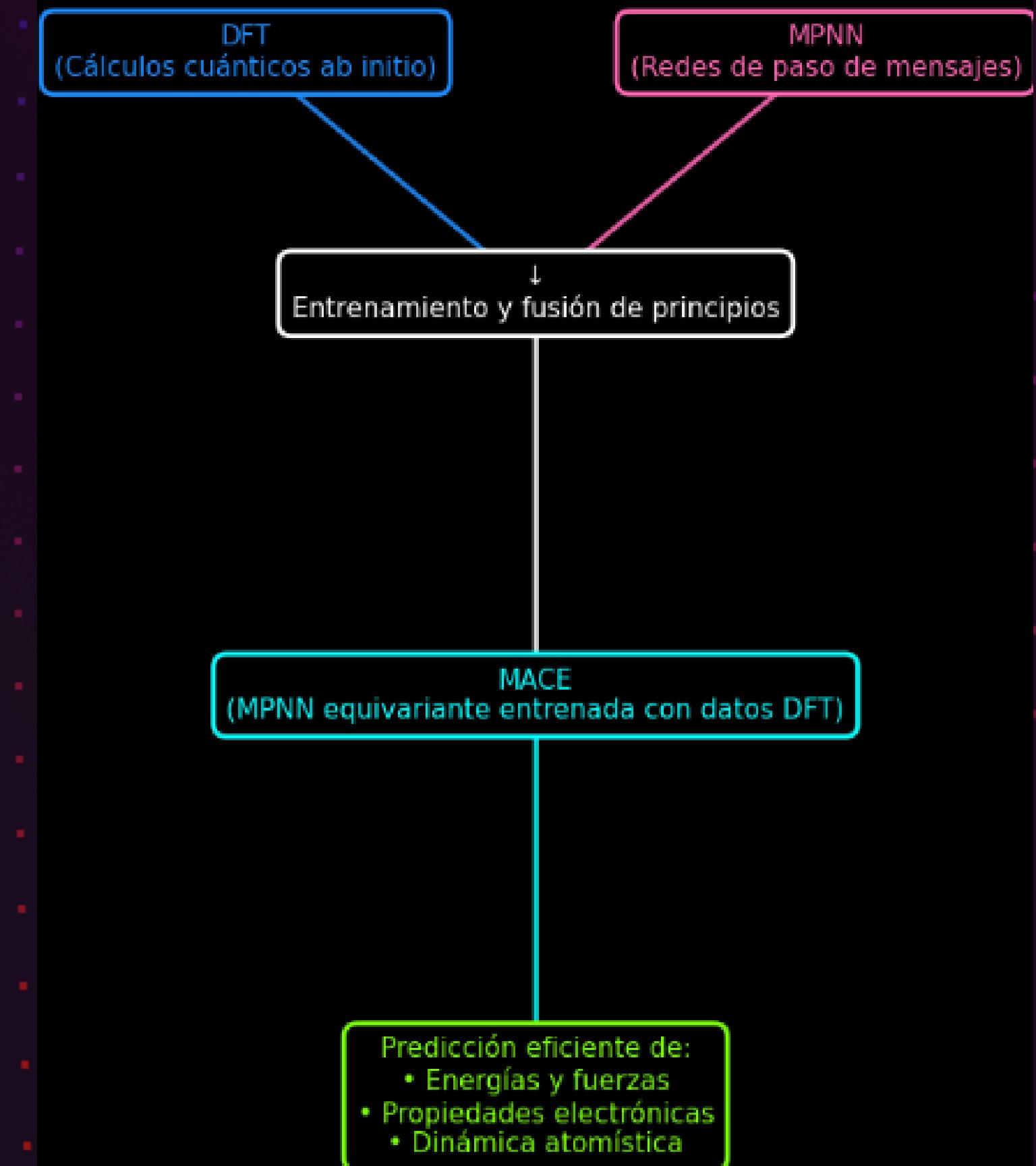
Escalado cúbico ($\sim N^3$):

- 01** El tiempo de cómputo escala aproximadamente como el cubo del número de electrones u orbitales NNN .
- 02** La matriz Hamiltoniana y las funciones de onda necesitan mucha memoria, especialmente para sistemas con miles de átomos.
- 03** Aunque existen aproximaciones (LDA, GGA, híbridos), los funcionales más precisos (como HSE o B3LYP) requieren integrales no locales que incrementan el costo drásticamente.
- 04** En materiales con defectos, superficies, o nanoestructuras, se necesitan superceldas grandes para evitar interacciones artificiales entre imágenes periódicas.



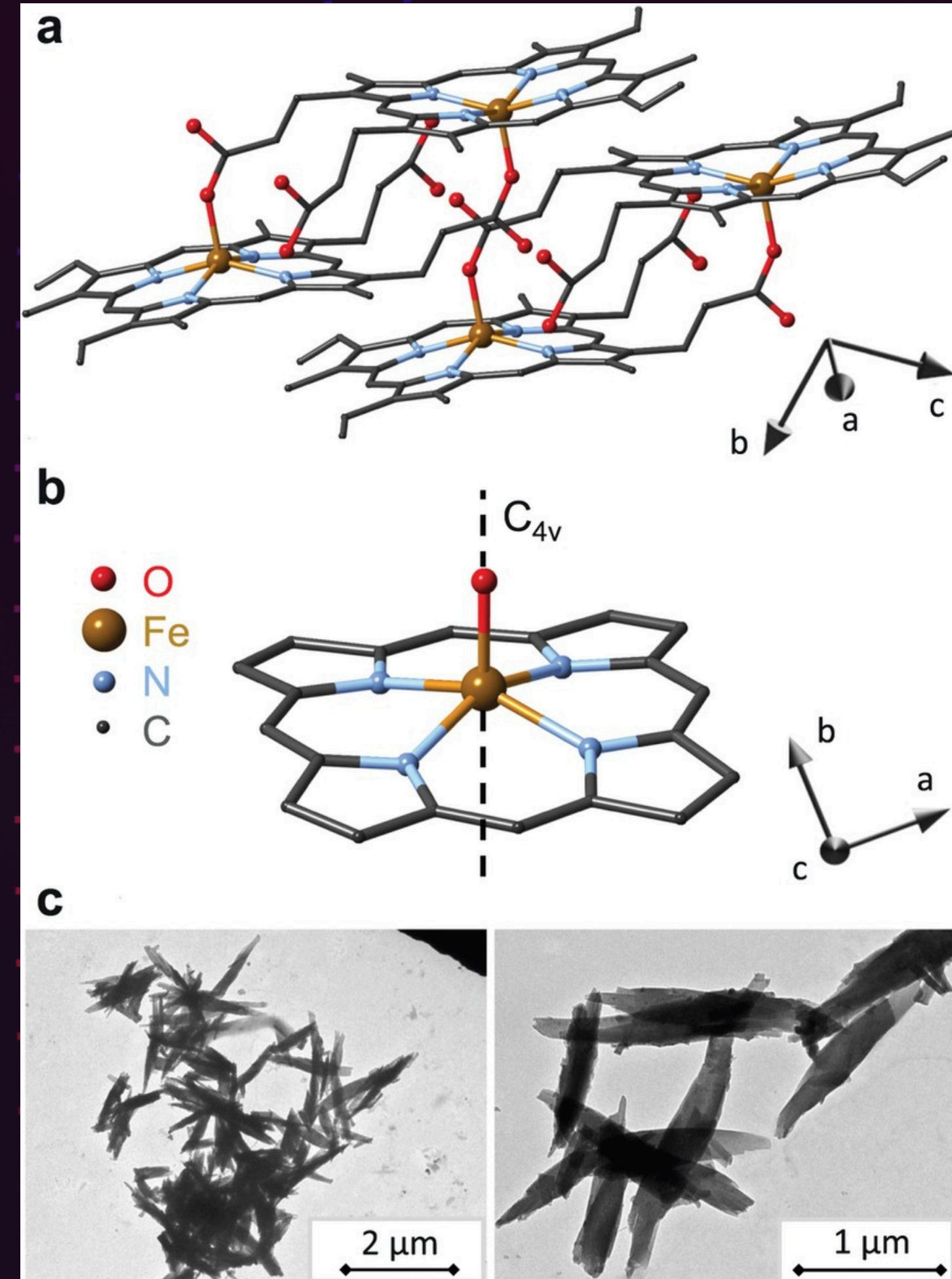
MACE (Multiplicative Atomic Cluster Expansion)

El método MACE sintetiza y complementa la DFT, es una MPNN (Message Passing Neural Network) que aprende, a partir de datos generados por DFT, un modelo de paso de mensajes equivariante que respeta las simetrías físicas del espacio tridimensional, permitiendo predecir energías y fuerzas con exactitud cercana a la DFT pero a un costo computacional miles de veces menor.



Justificación de MACE:

El modelo MACE integra física, química computacional y aprendizaje automático para simular materiales complejos con alta precisión sin necesidad de supercomputación. Se busca, aplicarla al estudio del cristal de beta-hematina, un dímero de ferriprotoporfirina IX con hasta 296 átomos por celda unitaria, donde la simulación tradicional es muy costosa. Gracias a MACE, estos cálculos se reducen a orden $\sim O(N)$, permitiendo evaluar interacciones interatómicas de manera eficiente.

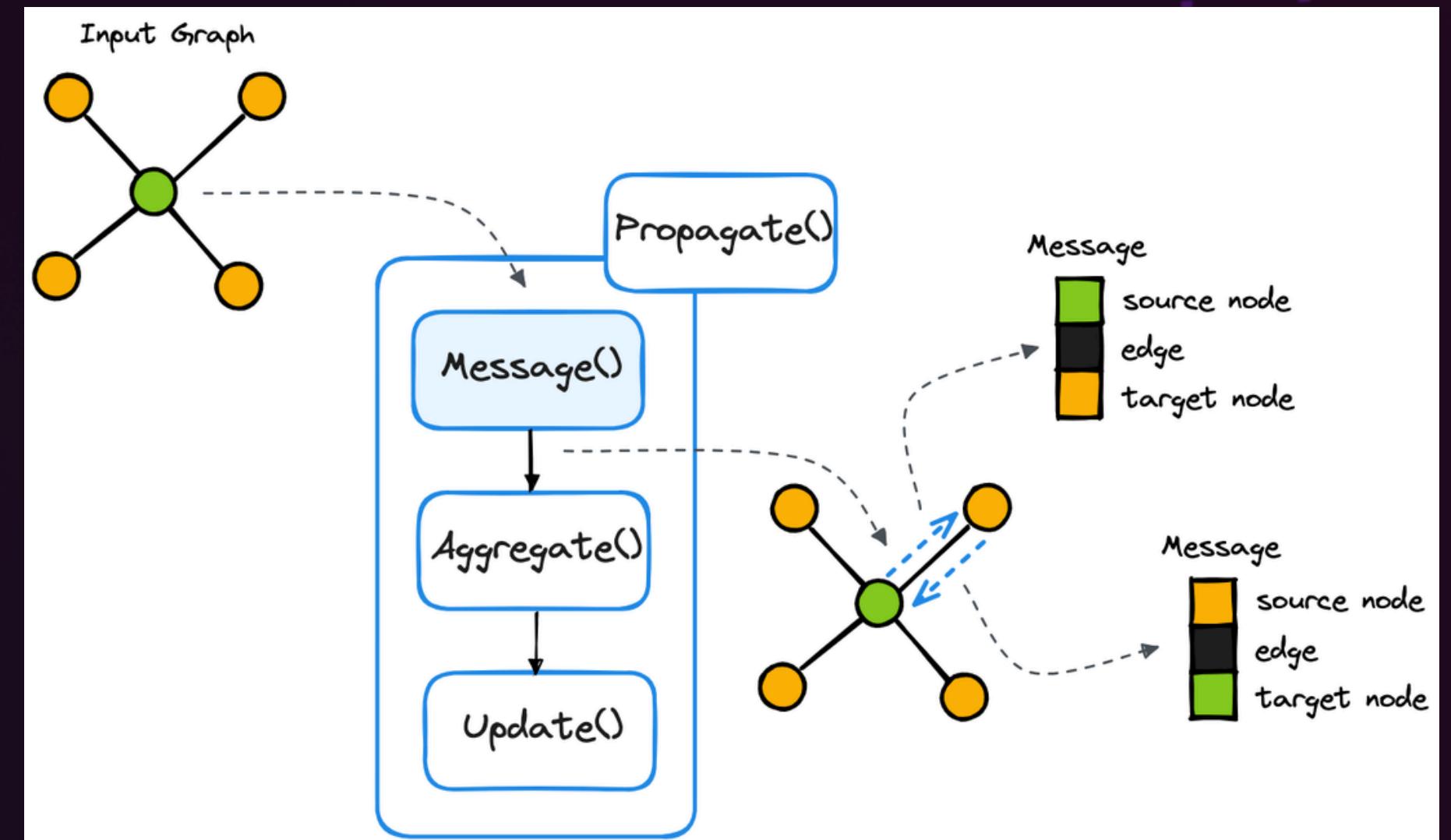


Objetivos:

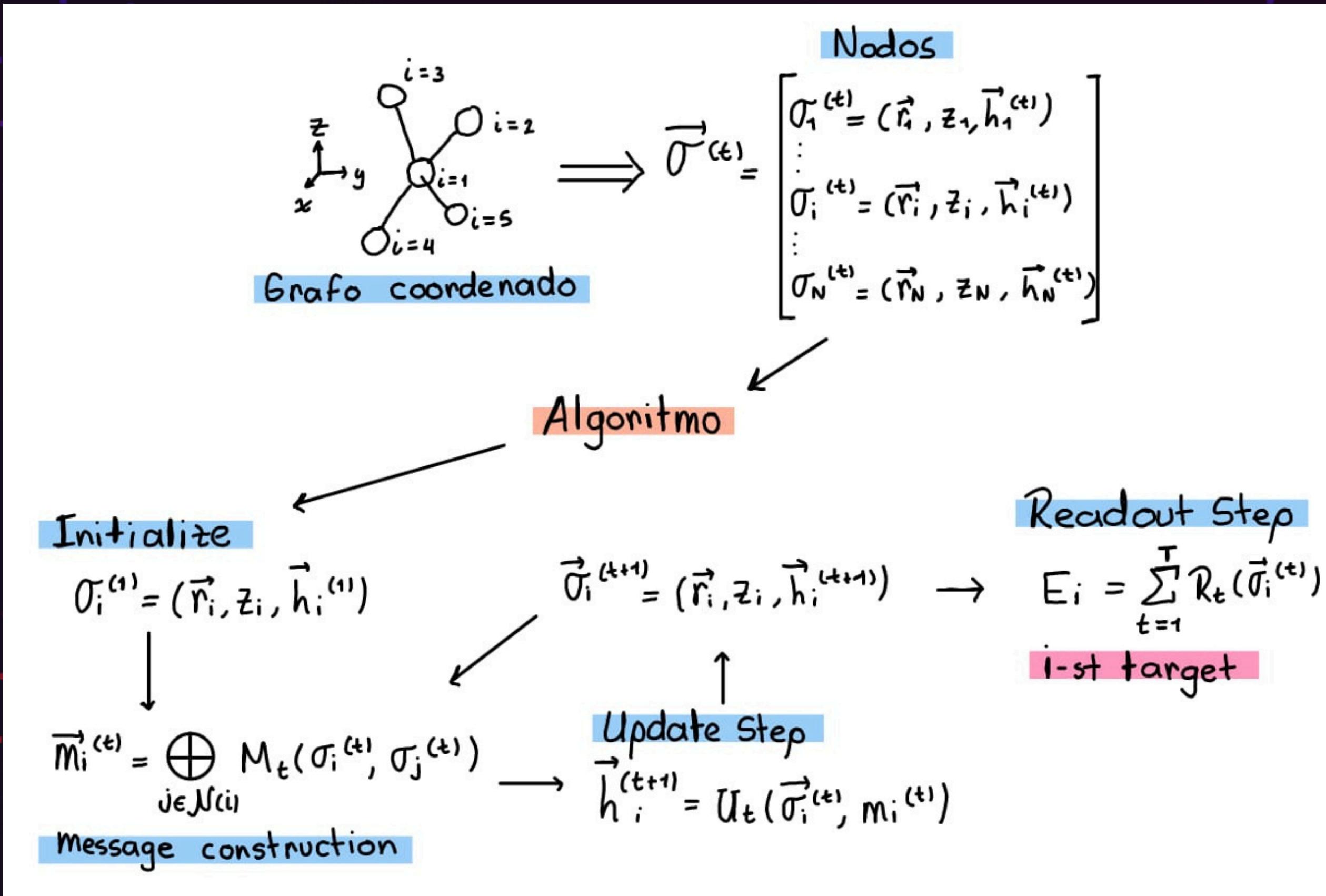
- Entender el funcionamiento de MACE como GNN y MPNN, desde su funcionamiento como algoritmo, hasta su fase de entrenamiento como “learnable model”
- Aprender a usar MACE incorporado en ASE y así poder determinar las energías de nuestros sistemas atómicos y cómo deducir propiedades deseadas a partir de esta información.
- Entender el proceso del fine-tuning y cómo llevarlo a cabo a partir de datos experimentales o de laboratorio.
- Objetivo opcional: Emplear MACE para el cálculo de propiedades elásticas del dímero de Beta-Hematina y su comparación cualitativa con un espectro IR de una muestra experimental. (Este objetivo depende del tiempo disponible)

MACE como MPNN (Message Passing Neural Network)

Las Message Passing Neural Networks MPNNs son GNNs (Graph Neural Networks), es decir una red basada en **Nodos** (representando átomos) en un espacio 3D, cuyas aristas (**Edges**) representan las interacciones de un nodo con su vecindad. En particular buscan aprender a mapear de un “**label graph**” a un “**target space**” mediante el **intercambio iterativo de mensajes** entre nodos conectados



Algoritmo MPNN



Equivarianza en GNN

Una red **equivariante** es aquella que transforma de una manera específica bajo la **acción de un grupo**. En específico nuestro grupo de interés es $O(3)$ las rotaciones y reflexiones de partículas en un espacio 3D. Decimos que una GNN es **equivariante** $O(3)$ si cumple que bajo la acción de Q en el grupo:

$$\vec{h}_i^{(t)}(Q \cdot (\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_N)) = D(Q) \vec{h}_i(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_N)$$

\Downarrow Componentes

$$h_{i, \kappa L M}^{(t)}(Q \cdot (\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_N)) = \sum_{M'} D_{M' M}^L(Q) h_{i, \kappa L M'}^{(t)}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_N)$$

Por lo que hablamos de la M -esica característica de tipo L del átomo i , en el canal k

Cambios propuestos por MACE a la equivariance MPNN

Expansión Jerarquizada

$$\vec{m}_i^{(t)} = \sum_j \vec{u}_1(\sigma_i^{(t)}; \sigma_j^{(t)}) + \sum_{j_1, j_2} \vec{u}_2(\sigma_i^{(t)}; \sigma_{j_1}^{(t)}, \sigma_{j_2}^{(t)}) + \dots + \sum_{j_1, \dots, j_v} \vec{u}_v(\sigma_i^{(t)}; \sigma_{j_1}^{(t)}, \dots, \sigma_{j_v}^{(t)})$$

Message Construction

$$m_{i, kLM}^{(t)} = \sum_v \sum_{\eta_v} w_{z_i kL, \eta_v} \vec{B}_{i, \eta_v kLM}$$

$$* \vec{B}_{i, \eta_v kLM} = \sum_{\tilde{l}m} C_{\eta_v, \tilde{l}m}^{\text{LM}} \prod_{\xi=1}^v \sum_{\tilde{k}} w_{k\tilde{k}\lambda_\xi}^{(t)} \underline{A_{i, \tilde{k}\lambda_\xi m_\xi}^{(t)}} , \quad \overrightarrow{lm} = (l_1 m_1, \dots, l_v m_v)$$

$$* A_{i, klm_3}^{(t)} = \sum_{l_1 m_1, l_2 m_2} C_{l_1 m_1, l_2 m_2}^{l_3 m_3} \sum_{j \in N(i)} R_{k l_1, l_2 l_3}^{(t)}(r_{ji}) Y_{l_1}^{m_1}(\hat{r}_{ij}) \sum_{\tilde{k}} w_{k\tilde{k}l_2}^{(t)} h_{j, \tilde{k}l_2 m_2}^{(t)}$$

Cambios propuestos por MACE a la equivariance MPNN

Update

$$h_{i, \tilde{K}LM}^{(t+1)} = U_t^{KL}(\sigma_i^{(t)}, \vec{m}_i^{(t)}) = \sum_{\tilde{\kappa}} W_{KL, \tilde{\kappa}}^{(t)} m_{i, \tilde{K}LM}^{(t)} + \sum_{\tilde{\kappa}} W_{Z_i KL, \tilde{\kappa}}^{(t)} h_{i, \tilde{K}LM}^{(t)}$$

Readout

$$E_i = E_i^{(0)} + E_i^{(1)} + \dots + E_i^{(T)}, \text{ donde}$$

$$E_i^{(t)} = R_t(\vec{h}_i^{(t)}) = \begin{cases} \sum_{\tilde{\kappa}} W_{\text{readout}, \tilde{\kappa}}^{(t)} h_{i, \tilde{\kappa}00}^{(t)} & \text{si } t < T \\ \text{MLP}_{\text{readout}}^{(t)}(\{h_{i, \tilde{\kappa}00}^{(t)}\}_{\tilde{\kappa}}) & \text{si } t = T \end{cases}$$

Referencias:

- [1] I. Batatia et al., “**A foundation model for atomistic materials chemistry**,” arXiv (Cornell University), Dec. 2023, doi: <https://doi.org/10.48550/arxiv.2401.00096>.
- [2] I. Batatia, D. P. Kovács, G. N. C. Simm, C. Ortner, and G. Csányi, “**MACE: Higher Order Equivariant Message Passing Neural Networks for Fast and Accurate Force Fields**,” arXiv.org, Jan. 26, 2023. <https://arxiv.org/abs/2206.07697> (accessed Jun. 14, 2024).
- [3] K. Capelle, “**A bird’s-eye view of density-functional theory**,” Sociedad (University of Buenos Aires), Mar. 2022, doi: <https://doi.org/10.48550/arxiv.cond-mat/0211443>.
- [4] X. Liu, K. Zeng, Z. Luo, Y. Wang, T. Zhao, and Z. Xu, “**Fine-Tuning Universal Machine-Learned Interatomic Potentials: A Tutorial on Methods and Applications**,” arXiv (Cornell University), Jun. 2025, doi: <https://doi.org/10.48550/arxiv.2506.21935>.