

# Lernen von Repräsentationen für Atomistische Systeme mit Tiefen Neuronalen Netzen<sup>1</sup>

Kristof T. Schütt<sup>2</sup>

**Abstract:** Tiefes Lernen hat in den vergangenen Jahren zu Durchbrüchen beim Lernen von Repräsentationen strukturierter Daten in zahlreichen Anwendungen wie der Bilderkennung oder der maschinellen Übersetzung geführt. Allerdings ist die Funktionsweise von neuronalen Netzen schwer nachzuvollziehen, während ihr Training riesige Datensätze erfordert. In der zusammengefassten Dissertation wird die Nutzung anwendungsspezifischen Vorwissens beim Lernen von Repräsentationen sowohl zur Verbesserung der Dateneffizienz als auch der Interpretierbarkeit am Beispiel von atomistischen Systemen demonstriert. So wie tiefes Lernen Repräsentationen für strukturierte Daten wie Bilder, Texte oder Audio lernen kann, sind die hier entwickelten neuronalen Netze in der Lage atomistische Repräsentationen direkt aus den Positionen und Elementen der Atome zu lernen. Damit ermöglichen sie genaue Vorhersagen von chemischen Eigenschaften sowie atomistische Simulationen, welche mit konventionellen *ab initio* Methoden aufgrund der benötigten Rechenzeit nicht durchführbar wären. Eine Analyse der trainierten Modelle zeigt, dass lokale Repräsentationen gelernt wurden, die mit chemischem Grundwissen übereinstimmen, was den Gewinn von wissenschaftlichen Erkenntnissen aus dem Lernmodell ermöglicht.

## 1 Einführung

Die Fortschritte im tiefen Lernen, u.a. in der Bilderkennung oder der Verarbeitung natürlicher Sprache [KSH12, SVL14, Vi15, Mn15], wurde durch Ende-zu-Ende-Lernen von Repräsentationen strukturierter Daten ermöglicht [LBH15, Sc15]. Dazu werden große Datenmengen benötigt, beispielsweise der ImageNet-Datensatz [De09] in der Bilderkennung, welcher mehr als 14 Millionen annotierte Bilder enthält. In vielen Anwendungen stehen jedoch nur wesentlich kleinere Datenmengen zur Verfügung. Um dort ebenfalls Repräsentationen lernen zu können, ist es zwingend notwendig anwendungsspezifisches *a priori* Wissen in die Entwicklung von neuronalen Netzen einfließen zu lassen. Weiterhin stellen tiefe Netze hochkomplexe, statistische Modelle dar, deren Funktionsweise für den Nutzer schwer nachvollziehbar ist. Während eine Möglichkeit zur Erklärung neuronaler Netze Methoden sind, die den Eingabedimensionen jeweils eine Relevanz für die getroffene Vorhersage zuweisen [Mo17, Ki18], ist es oft besser während des Entwurfs der Architektur eines neuronalen Netzwerkes bereits auf Interpretierbarkeit zu achten. In der zusammengefassten Dissertation wird die Nutzung anwendungsspezifischen Vorwissens beim Lernen von Repräsentationen sowohl zur Verbesserung der Dateneffizienz als auch der Gewinn wissenschaftlicher Erkenntnisse am Beispiel von atomistischen Systemen demonstriert.

<sup>1</sup> Englischer Titel der Dissertation: „Learning Representations of Atomistic Systems with Deep Neural Networks“

<sup>2</sup> Technische Universität Berlin, kristof.schuett@tu-berlin.de

Die Entdeckung und Erforschung neuartiger Moleküle und Materialien ist von entscheidender Bedeutung für eine große Bandbreite von Anwendungen. Diese finden sich z.B. in der Pharmazie und bei der Entwicklung effizienter Batterien oder Solarzellen. Um die chemischen Eigenschaften dieser Stoffe bestimmen zu können, werden quantenchemische Berechnungen benötigt. Deren Laufzeit skaliert mit der Anzahl der Elektronen des Systems, je nach Grad der Approximation, bis zu  $O(n!)$  für die vollständige, numerische Lösung der Schrödinger Gleichung. Während gängige Näherungen wie Dichtefunktionaltheorie (DFT) mit  $O(n^4)$  skalieren, kann dies bereits eine systematische Erkundung des chemischen Raumes undurchführbar machen. Das liegt u.a. an den vielen Möglichkeiten mit denen Molekülen oder Materialien aus Atomen gebildet werden können, wodurch der chemische Raum zu groß für eine erschöpfende Suche wird. Darüber hinaus können auch für Moleküldynamiksimulationen (MD-Simulationen) eines einzelnen Systems bereits mehrere Millionen Quantenchemierechnungen benötigt werden. Um zeitintensive Quantensimulationen zu umgehen, wurden in den vergangenen Jahren diverse Methoden des maschinellen Lernens (ML) eingesetzt, welche mithilfe eines Datensatzes von Referenzrechnungen den funktionalen Zusammenhang zwischen chemischer Zusammensetzung und Struktur eines atomistischen Systems sowie den quantenchemischen Eigenschaften erschließen [Ru12, Fa17, Ch17].

Ein atomistisches System kann allgemein als eine Menge von Atomen  $S = \{(Z_i, \mathbf{r}_i) | i \in [1, n_{\text{atoms}}]\}$  geschrieben werden, wobei  $Z_i \in \mathbb{N}$  das chemische Element und  $\mathbf{r}_i \in \mathbb{R}^3$  die Position von Atom  $i$  darstellen. Regressionsmodelle erfordern allerdings im Allgemeinen eine Einbettung in einen Vektorraum. Die Schwierigkeit besteht hier u.a. darin, dass die Systeme im Datensatz aus verschiedenen vielen Atomen bestehen können. Darüber hinaus soll die Repräsentation invariant gegenüber Rotation und Translation des Systems sowie der Ordnung der Atome sein, da diese auch die chemischen Eigenschaften unverändert lassen [Li15]. Aus diesen Gründen wurden in den letzten Jahren eine große Anzahl von Repräsentationen für Moleküle und Materialien entwickelt [BP07, BKC13, Sc14]. Dies hat allerdings den Nachteil, dass die Repräsentationen nicht an den vorhandenen Datensatz angepasst werden können während verschiedene chemische Eigenschaften unter Umständen auch verschiedene Repräsentationen erfordern um eine genaue Vorhersage zu ermöglichen. Dies gilt insbesondere für die Kodierung der chemischen Elemente, wobei oft auf Heuristiken zurückgegriffen wird [Br17, Fa18]. Tiefes Lernen kann hingegen während des Trainings die zu lernende Repräsentation bzgl. der Modalitäten der gegebenen Daten adaptieren. In Folgendem werden die in der Dissertation entwickelten neuronalen Netze zum Lernen von atomistischen Repräsentationen vorgestellt sowie auf deren Anwendung und Interpretierbarkeit eingegangen.

## 2 Atomistische neuronale Netze

Ein wichtiger Ansatz zur Repräsentation atomistischer Systemen ist die Partitionierung der Energie in Beiträge der individuellen Atome, welche den Einfluss der lokalen, chemischen Umgebungen einbeziehen. Auch wenn eine solche Partitionierung nicht eindeutig ist, so spiegeln diese latenten Variable doch den Einfluss lokaler Strukturen auf die Vorhersage wider. In der Dissertation wird dazu jedem Atom  $i$  ein Merkmalsvektor  $\mathbf{x}_i \in \mathbb{R}^F$  zugewie-

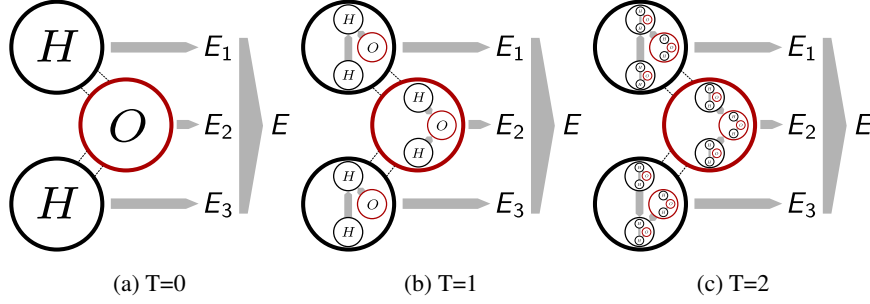


Abb. 1: Illustration der iterativen Konstruktion von atomaren Repräsentationen im neuronalen Netz am Beispiel eines Wassermoleküls mit  $T$  Korrekturschritten. Mit zunehmendem  $T$  werden mehr Informationen über die Umgebung in den atomaren Repräsentationen akkumuliert.

sen. Dieser entspricht zunächst einer vorläufigen atomaren Repräsentation  $\mathbf{x}_i^{(0)} = A_{[Z_i,:]} \in \mathbb{R}^F$ , welche die chemischen Elemente der Atome charakterisiert. Die Elementeinbettungen  $A$  werden dabei während des Trainingsprozesses adaptiert. Davon ausgehend müssen nun den initialen Repräsentationen Informationen über die Atompositionen hinzugefügt werden. Dies geschieht mittels additiver Interaktionskorrekturen

$$\mathbf{x}_i^{(t+1)} = \mathbf{x}_i^{(t)} + \sum_{j \neq i} \mathbf{v}^{(t)}(\mathbf{x}_j^{(t)}, d_{ij}), \quad (1)$$

wobei die Interaktionsnetze  $\mathbf{v}^{(t)}$  die Wechselwirkungen zwischen den Atomen modellieren. Abb. 1 illustriert wie auf diese Weise iterativ zunehmend komplexere Beschreibungen der atomaren Umgebungen konstruiert werden.

In der Dissertation werden zwei Ansätze zur Modellierung der Interaktionen  $\mathbf{v}^{(t)}$  eingeführt. Eine Möglichkeit besteht in der Verbindung von der Repräsentation  $\mathbf{x}_j$  eines benachbarten Atoms  $j$  sowie der Distanz  $d_{ij}$  zum Zentralatom  $i$  durch ein faktorisiertes Tensorlayer

$$\mathbf{v}_{ij} = \tanh \left[ W^{xf} \left( (W^{fx} \mathbf{x}_j + \mathbf{b}^{f_1}) \circ (W^{fd} \hat{\mathbf{d}}_{ij} + \mathbf{b}^{f_2}) \right) \right], \quad (2)$$

darzustellen. Dabei werden die Eingaben zunächst mit den Gewichtsmatrizen  $W^{fx}, W^{fd}$  in einen Faktorraum abgebildet werden, woraufhin ihr Hadamard-Produkt zurück in den Repräsentationsraum projiziert wird.

Schließlich können aus den Atomrepräsentationen die gewünschten, chemischen Eigenschaften vorhergesagt werden. Beispielsweise kann die Energie eines Systems als Summe von atomaren Energiebeiträgen

$$\hat{E}(S) = \sum_{i=1}^{n_{\text{atoms}}} \text{NN}_E(\mathbf{x}_i). \quad (3)$$

dargestellt werden, wobei  $\text{NN}_E$  den Energiebeitrag eines Atoms in seiner Umgebung darstellt. Das gesamte Modell kann nun mit stochastischem Gradientenabstieg trainiert werden, wobei die Einbettungen  $A$  sowie die Parameter des Interaktionsnetzes  $\mathbf{v}^{(t)}$  sowie des

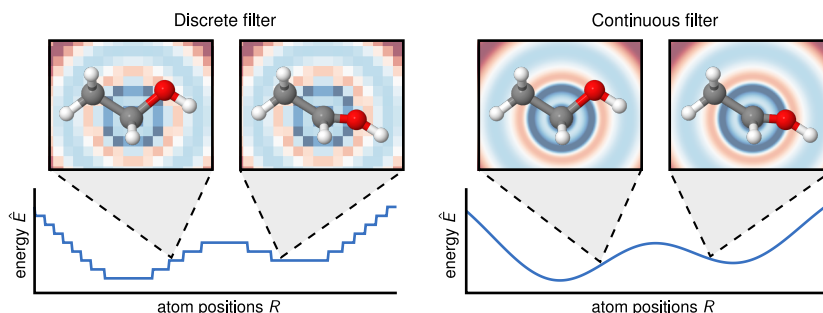


Abb. 2: Einfluss von diskretem vs. kontinuierlichem Filter im Faltungslayer: Unstetigkeiten im Filter übertragen sich auf die Energievorhersage, was der physikalischen Realität widerspricht.

Ausgabernetzes  $\text{NN}_E$  optimiert werden. Ein solches atomistisches, neuronales Netz das Atominteraktionen mit solchen faktorisierten Tensorlayern modelliert, bezeichnen wir als *Deep Tensor Neural Network (DTNN)* [Sc17a].

Eine Alternative um Atominteraktionen zu modellieren bieten Faltungslayer, ähnlich zu denen, die in neuronalen Netzen zur Bildklassifikation genutzt werden. So wie Bilder aus Pixeln aufgebaut sind, auf die eine diskrete Faltung angewandt wird, setzen sich atomistische Systeme aus Atomen zusammen. Diese sind allerdings, im Gegensatz zu Pixeln, nicht auf einem Gitter angeordnet, sondern können sich an beliebigen Positionen befinden. Aus diesem Grund kann eine Faltung mit diskretem Filter zu einer Energievorhersage mit Unstetigkeiten führen (siehe Abb. 2). Um das zu vermeiden wurden Faltungslayer der Form

$$\mathbf{x}_i^{l+1} = (X^l * W^l)_i = \sum_{j=1}^{n_{\text{atoms}}} \mathbf{x}_j^l \circ W(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j), \quad (4)$$

mit der stetigen Filterfunktion  $W$  eingeführt, welche wiederum durch ein neuronales Netz modelliert wird.

Aus der Kombination des oben beschriebenen DTNN-Ansatzes atomare Repräsentationen iterativ zu verfeinern, und Faltungslayer mit kontinuierlichen Filtern zur Modellierung der Interaktionen zu nutzen, wurde die *SchNet*-Architektur entwickelt (Abb. 3) [Sc17b, Sc18].

### 3 Analyse der gelernten Repräsentationen

Ein wichtiger Aspekt der eingeführten Modelle ist die Möglichkeit, die gelernte Repräsentation zu analysieren. Damit kann die Funktionsweise des neuronalen Netz studiert und sichergestellt werden, dass das Gelernte mit chemischer Intuition übereinstimmt. Dazu wurden in der Dissertation mehrere Methoden entwickelt, chemisch und räumlich aufgelöste Einblicke in die Repräsentation zu erhalten. Eine dieser Methoden ist das Visualisieren von lokalen, chemischen Potentialen der Moleküle. Dazu wird in das neuronale Netz neben dem zu analysierenden Molekül ein weiteres Atom als „Testladung“ gegeben, wobei dieses das Potential des Moleküls spürt, jedoch dessen Repräsentation nicht beeinflusst.

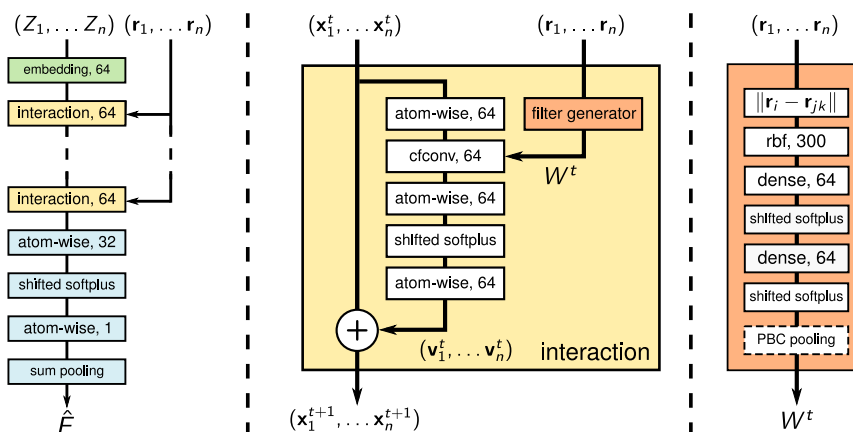


Abb. 3: Die Architektur von SchNet bestehend aus Elementeinbettungen (grün), Interaktions- (gelb) und Ausgabenetzen (blau) sowie Filternetzen (orange).

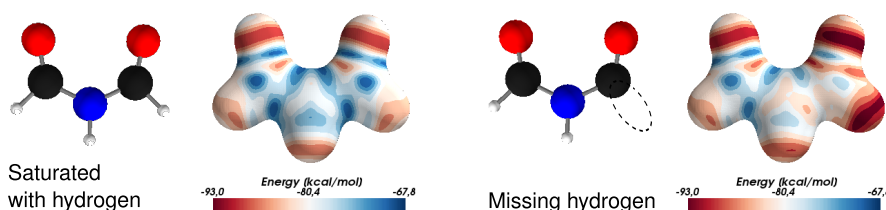


Abb. 4: Lokale, chemische Potentiale von N-Formylformamid mit einem Wasseratom als Testladung. Die Potentiale sind auf einer Isofläche mit  $\sum_i \|\mathbf{r} - \mathbf{r}_i\| = 3.7\text{\AA}$  geplottet und wurden von einem auf dem QM9-Datensatz trainierten SchNet-Modell generiert.

Dies wird erreicht indem in den Interaktionslayern die Testladung von den Atomen des Moleküls nicht berücksichtigt wird.

Abb. 4 zeigt lokale, chemische Potentiale von N-Formylformamid. Links sieht man die vorhergesagte Energie des Wasserstoff-Testatoms auf einer Isofläche mit  $\sum_i \|\mathbf{r} - \mathbf{r}_i\| = 3.7\text{\AA}$ . Die geringste Energie wird nahe der Sauerstoffatome (rot) erreicht, d.h. dass dort ein Wasserstoffatom (weiß) stärker vom Molekül angezogen wird. Dies entspricht der chemischen Intuition, da dort durch Umwandlung einer C-O-Doppelbindung in eine Einfachbindung ein weiteres Wasserstoffatom gebunden werden kann. Auf der rechten Seite sieht man die Auswirkung des Entfernen eines Wasserstoffes. Nun sinkt die Energie des Testatoms an der Fehlstelle, d.h. die offene Bindung wird in der Repräsentation reflektiert.

Ein entscheidender Nachteil von manuellen Deskriptoren ist, dass chemische Elemente entweder als orthogonal betrachtet werden oder Heuristiken zur Bestimmung ihrer Ähnlichkeit herangezogen werden müssen. Im DTNN-Ansatz werden jedoch Einbettungsvektoren für die Elemente direkt aus den Daten gelernt, so dass wir nun die Struktur dieses Vektorraums analysieren können. Abb. 5 zeigt die führenden zwei Hauptkomponenten der Elementeinbettungen für ein SchNet-Modell das auf dem Datensatz von 60,000 Ma-

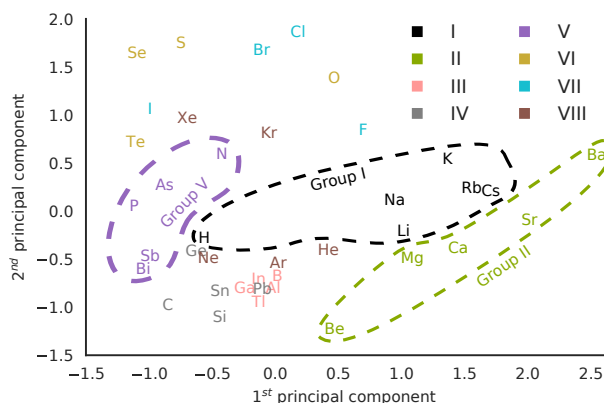


Abb. 5: Die ersten zwei Hauptkomponenten der von SchNet aus dem Materials-Project-Datensatz gelernten Elementeinbettungen  $\mathbf{x}^0$ . Im Einbettungsraum sind Cluster von Elementen zu erkennen, die den Hauptgruppen des Periodensystems entsprechen.

aterialien aus dem *Materials Project*-Repository [Ja13] trainiert wurde. Bereits in dieser dimensionsreduzierten Darstellung zeigt sich, dass viele Elemente, die der selben Hauptgruppe (d.h. Spalte) des Periodensystems angehören, auch im Einbettungsraum gruppiert sind (siehe Farbkodierung in Abb. 5). Darüber hinaus zeigt sich innerhalb dieser Gruppen eine Ordnung welche den Perioden (d.h. den Reihen) entspricht. Beispielsweise ist die erste Hauptgruppe von links nach rechts von Wasserstoff (H) in der ersten Periode über Lithium (Li) und Natrium (Na) in der zweiten und dritten Periode zu den schweren Elementen (K, Rb, Cs) in der 4.-6. Periode. Ähnliche Ordnungen finden sich u.a. auch in der 2. Hauptgruppe (Be→Mg→Ca→Sr→Ba) sowie der 5. Hauptgruppe von Stickstoff (N) nach Bismut (Bi). Da das neuronale Netz keine explizite Information über die Struktur des Periodensystems erhalten hat, muss es dieses chemische Wissen aus den Geometrien und Energien der Materialien inferiert haben.

## 4 Anwendungen

### 4.1 Virtuelles Screening

In der Dissertation wird die Vorhersage verschiedener chemischer Eigenschaften auf diversen Molekül- und Materialdatensätzen demonstriert. Hier zeigen wir beispielhaft die Vorhersage der inneren Energie bei 0K  $U_0$  auf dem QM9-Benchmark. Dieser besteht aus 133,885 kleinen, stabilen, organischen Molekülen, die aus bis zu 9 schweren Atomen aus den Elementen  $\{C, O, N, F\}$  bestehen und mit Wasserstoff gesättigt wurden [Ra14, BR09, Re15]. Die mittleren, absoluten Fehler von DTNN und SchNet sind in Abb. 6 (links) abhängig von der Größe des Trainingssatzes dargestellt. Es zeigt sich, dass zum einen SchNet deutlich niedrigere Fehler als DTNN erreicht und zum anderen mehr Interaktionsblöcke  $T$  ebenfalls zu einer Reduzierung des Fehlers beitragen. Bei Nutzung von 25,000

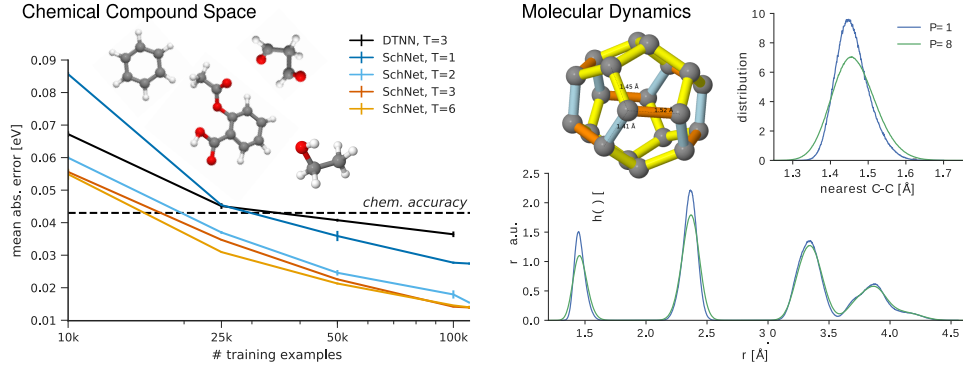


Abb. 6: Ergebnisse für Vorhersagen. Links: Die Lernkurven für DTNN und SchNet mit  $T$  Interaktionsblöcken zeigen mittlere, absolute Fehler (MAE) in eV für die innere Energie ( $U_0$ ) auf dem QM9-Datensatz. Rechts: Mit Energie- und Kraftvorhersagen von SchNet wurden Ringpolymer-MD-Simulationen für das Fulleren  $C_{20}$  mit  $P \in \{1, 8\}$  Systemreplikas durchgeführt.

Referenzrechnungen, erreicht SchNet mit  $T \geq 2$  hier bereits deutlich geringere Fehler als *chemische Genauigkeit*, welche im Allgemeinen als 0.043eV angenommen wird.

## 4.2 Moleküldynamiksimulationen

Neben der Vorhersage von chemischen Eigenschaften in stabilen Molekülkonfiguration, ist eine weitere Anwendung die Analyse des dynamischen Verhaltens eines Moleküls. Dabei wird die Bewegung eines Moleküls in einer durch ein Temperaturbad approximierten Umgebung simuliert. Dazu ist es nötig die auf die Atome wirkenden Kräfte zu berechnen, welche genutzt werden um die neuen Atompositionen zu berechnen. Die Kräfte sind dabei die negative Ableitung der Energie nach den Atompositionen

$$\mathbf{F}_i(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_n) = -\frac{\partial E}{\partial \mathbf{r}_i}(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_n). \quad (5)$$

Daher können die atomaren Kräfte direkt von einem der oben vorgestellten Energiemodelle analytisch berechnet werden, was einer Backpropagation der Energievorhersage entspricht. Da viele Quantenchemiedaten Kräfte enthalten, können diese ebenfalls zum Training des Modells genutzt werden, indem ein kombinierter Energie-Kraft-Loss

$$\rho \|E - \hat{E}\|^2 + \frac{1}{n_{\text{atoms}}} \sum_{i=0}^{n_{\text{atoms}}} \left\| \mathbf{F}_i - \left( -\frac{\partial \hat{E}}{\partial \mathbf{r}_i} \right) \right\|^2, \quad (6)$$

genutzt wird, wobei  $\rho$  den Einfluss des Energiefehlers skaliert. Das zusätzliche Training mit den atomaren Kräften stellt hier dem neuronalen Netz Information über die unmittelbare Umgebung des Datenpunktes zur Verfügung, was die benötigte Menge von Trainingspunkten drastisch reduziert.

Abb. 6 (rechts) zeigt die Ergebnisse einer Ringpolymer-MD-Simulation (RPMD) für das Fulleren  $C_{20}$ . In der üblichen Born-Oppenheimer-Näherung werden Atomkerne klassisch

behandelt, d.h. sie besitzen eine feste Position zu einem gegebenen Zeitpunkt. Im Gegensatz dazu wird bei einer RPMD die quantenmechanische Aufenthaltswahrscheinlichkeit durch einen Ring von gekoppelten Atomen dargestellt. Dies erfordert zusätzliche Quantenrechnungen für jedes Atomreplika  $P$  im Ring, wobei  $P = 1$  der klassischen Born-Oppenheimer-MD entspricht. In Abb. 4 (rechts) wurden Simulationen mit  $P = 1$  und  $P = 8$  bei einer Temperatur von 300K mithilfe eines SchNet-Modells durchgeführt, welches auf 20,000 C<sub>20</sub>-Konfigurationen trainiert wurde. In den Plots ist zu sehen, wie sich die Distanzverteilungen aufgrund der nun berücksichtigten nuklearen Quanteneffekte für  $P = 8$  verbreitern. Um diese Ergebnisse zu ermitteln wurde eine 1.25ns MD-Trajektorie mit einem Zeitschritt von 0.5fs erzeugt, womit für 8 Atomreplika insgesamt 20 Millionen Quantenberechnungen durchgeführt werden müssten. Da jede einzelne DFT-Rechnung auf 32 CPU-Kernen eine Rechenzeit von 11s benötigt, würde dies mit konventionellen Methoden eine Rechenzeit von ca. 7 Jahren erfordern. SchNet verkürzt die Rechenzeit um Faktor  $10^3$ - $10^4$  auf ca. 7 Stunden, wodurch vorher praktisch undurchführbare Simulationen möglich werden.

## 5 Schlussfolgerungen

In der zusammengefassten Dissertation wurden neuronale Netze zum Lernen von Repräsentationen entwickelt, wobei durch Nutzung von anwendungsspezifischem *a priori* Wissen die Dateneffizienz erhöht wird. Latente Variablen, die Konzepten aus dem Anwendungsgebiet entsprechen, ermöglichen dabei eine natürliche Interpretation des Modells. Bei der Anwendung auf Moleküle und Materialien wurde gezeigt, dass die entwickelten Modelle genaue Vorhersagen chemischer Eigenschaften treffen und Moleküldynamiksimulationen um mehrere Größenordnungen beschleunigen, da DTNN und SchNet linear mit der Anzahl der Atome skalieren. Während in der Arbeit DFT-Referenzrechnungen genutzt wurden, ist die Übertragung auf genauere Methoden (z.B. CCSD(T) mit  $O(n^7)$ ) problemlos möglich [Ch18]. So kann SchNet selbst für kleine Moleküle Beschleunigungen um einen Faktor von mehreren Millionen erzielen. Die Analyse der Repräsentationen ermöglicht die Entdeckung chemischer Zusammenhänge, die nicht in den einzelnen Referenzrechnungen enthalten sind. U.a. wurden Einbettungen chemischer Elemente gelernt, die der Struktur des Periodensystems entsprechen sowie lokale Potentiale welche Bindungsmuster des Moleküls widerspiegeln. Damit sind die eingeführten, neuronalen Netze eine wichtige Grundlage zur Unterstützung naturwissenschaftlicher Forschung durch maschinelles Lernen, sowohl für die Beschleunigung von Simulationen als auch für den Gewinn wissenschaftlicher Erkenntnisse.

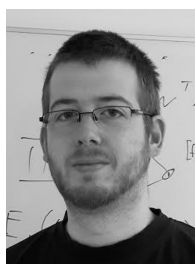
## Literaturverzeichnis

- [BKC13] Bartók, Albert. P.; Kondor, Risi; Csányi, Gabor: On representing chemical environments. Phys. Rev. B, 87(18):184115, 2013.
- [BP07] Behler, Jörg; Parrinello, Michele: Generalized neural-network representation of high-dimensional potential-energy surfaces. Phys. Rev. Lett., 98(14):146401, 2007.



- [BR09] Blum, Lorenz C; Reymond, Jean-Louis: 970 Million Druglike Small Molecules for Virtual Screening in the Chemical Universe Database GDB-13. *J. Am. Chem. Soc.*, 131:8732, 2009.
- [Br17] Brockherde, F.; Voigt, L.; Li, L.; Tuckerman, M. E.; Burke, K.; Müller, K.-R.: Bypassing the Kohn-Sham equations with machine learning. *Nature Communications*, 8:872, 2017.
- [Ch17] Chmiela, Stefan; Tkatchenko, Alexandre; Sauceda, Huziel E; Poltavsky, Igor; Schütt, Kristof T; Müller, Klaus-Robert: Machine learning of accurate energy-conserving molecular force fields. *Science advances*, 3(5):e1603015, 2017.
- [Ch18] Chmiela, Stefan; Sauceda, Huziel E; Müller, Klaus-Robert; Tkatchenko, Alexandre: Towards Exact Molecular Dynamics Simulations with Machine-Learned Force Fields. *Nature Communications*, 9, 2018.
- [De09] Deng, Jia; Dong, Wei; Socher, Richard; Li, Li-Jia; Li, Kai; Fei-Fei, Li: Imagenet: A large-scale hierarchical image database. In: *Computer Vision and Pattern Recognition, 2009. CVPR 2009. IEEE Conference on*. Ieee, S. 248–255, 2009.
- [Fa17] Faber, Felix A; Hutchison, Luke; Huang, Bing; Gilmer, Justin; Schoenholz, Samuel S; Dahl, George E; Vinyals, Oriol; Kearnes, Steven; Riley, Patrick F; von Lilienfeld, O Anatole: Prediction errors of molecular machine learning models lower than hybrid DFT error. *J. Chem. Theory Comput.*, 13(11):5255–5264, 2017.
- [Fa18] Faber, Felix A; Christensen, Anders S; Huang, Bing; von Lilienfeld, O Anatole: Alchemical and structural distribution based representation for universal quantum machine learning. *The Journal of Chemical Physics*, 148(24):241717, 2018.
- [Ja13] Jain, Anubhav; Ong, Shyue Ping; Hautier, Geoffroy; Chen, Wei; Richards, William Davidson; Dacek, Stephen; Cholia, Shreyas; Gunter, Dan; Skinner, David; Ceder, Gerbrand; Persson, Kristin a.: The Materials Project: A materials genome approach to accelerating materials innovation. *APL Materials*, 1(1):011002, 2013.
- [Ki18] Kindermans, Pieter-Jan; Schütt, Kristof T; Alber, Maximilian; Müller, Klaus-Robert; Erhan, Dumitru; Kim, Been; Dähne, Sven: Learning how to explain neural networks: PatternNet and PatternAttribution. In: *International Conference on Learning Representations (ICLR)*. 2018.
- [KSH12] Krizhevsky, A.; Sutskever, I.; Hinton, G. E.: Imagenet classification with deep convolutional neural networks. In: *Advances in neural information processing systems*. S. 1097–1105, 2012.
- [LBH15] LeCun, Y.; Bengio, Y.; Hinton, G.: Deep learning. *Nature*, 521(7553):436–444, 2015.
- [Li15] von Lilienfeld, O Anatole; Ramakrishnan, Raghunathan; Rupp, Matthias; Knoll, Aaron: Fourier series of atomic radial distribution functions: A molecular fingerprint for machine learning models of quantum chemical properties. *International Journal of Quantum Chemistry*, 115(16):1084–1093, 2015.
- [Mn15] Mnih, Volodymyr; Kavukcuoglu, Koray; Silver, David; Rusu, Andrei A; Veness, Joel; Bellemare, Marc G; Graves, Alex; Riedmiller, Martin; Fidjeland, Andreas K; Ostrovski, Georg et al.: Human-level control through deep reinforcement learning. *Nature*, 518(7540):529, 2015.
- [Mo17] Montavon, Grégoire; Lapuschkin, Sebastian; Binder, Alexander; Samek, Wojciech; Müller, Klaus-Robert: Explaining nonlinear classification decisions with deep taylor decomposition. *Pattern Recognition*, 65:211–222, 2017.

- [Ra14] Ramakrishnan, Raghunathan; Dral, Pavlo O; Rupp, Matthias; Von Lilienfeld, O Anatole: Quantum chemistry structures and properties of 134 kilo molecules. Scientific data, 1:140022, 2014.
- [Re15] Reymond, J.-L.: The chemical space project. Acc. Chem. Res., 48(3):722–730, 2015.
- [Ru12] Rupp, M.; Tkatchenko, A.; Müller, K.-R.; Von Lilienfeld, O. A.: Fast and accurate modeling of molecular atomization energies with machine learning. Phys. Rev. Lett., 108(5):058301, 2012.
- [Sc14] Schütt, Kristof T; Glawe, Henning; Brockherde, Felix; Sanna, Antonio; Müller, Klaus-Robert; Gross, Eberhard KU: How to represent crystal structures for machine learning: Towards fast prediction of electronic properties. Phys. Rev. B, 89(20):205118, 2014.
- [Sc15] Schmidhuber, Jürgen: Deep learning in neural networks: An overview. Neural networks, 61:85–117, 2015.
- [Sc17a] Schütt, K. T.; Arbabzadah, F.; Chmiela, S.; Müller, K.-R.; Tkatchenko, A.: Quantum-chemical insights from deep tensor neural networks. Nature Communications, 8, 2017.
- [Sc17b] Schütt, K. T.; Kindermans, P.-J.; Sauceda, H. E.; Chmiela, S.; Tkatchenko, A.; Müller, K.-R.: SchNet: A continuous-filter convolutional neural network for modeling quantum interactions. In: Advances in Neural Information Processing Systems 30. S. 992–1002, 2017.
- [Sc18] Schütt, Kristof T; Sauceda, Huziel E.; Kindermans, Pieter-Jan; Tkatchenko, Alexandre; Müller, Klaus-Robert: SchNet - a deep learning architecture for molecules and materials. The Journal of Chemical Physics, 148(24), 2018.
- [SVL14] Sutskever, Ilya; Vinyals, Oriol; Le, Quoc V: Sequence to sequence learning with neural networks. In: Advances in neural information processing systems. S. 3104–3112, 2014.
- [Vi15] Vinyals, Oriol; Toshev, Alexander; Bengio, Samy; Erhan, Dumitru: Show and tell: A neural image caption generator. In: IEEE Conference on Computer Vision and Pattern Recognition (CVPR). IEEE, S. 3156–3164, 2015.



**Kristof T. Schütt** ist wissenschaftlicher Mitarbeiter am Berliner Zentrum für Maschinelles Lernen. Er studierte Informatik an der TU Berlin und beschäftigte sich in seiner Masterarbeit mit der frühen Erkennung von JavaScript-Schadcode mit maschinellem Lernen. Im Mai 2018 schloss er seine Promotion am Fachbereich Maschinelles Lernen der TU Berlin zum maschinellen Lernen von Repräsentationen atomistischer Systeme ab. Sein aktueller Forschungsschwerpunkt liegt auf der Entwicklung interpretierbarer, neuronaler Netze und insbesondere deren Anwendung in der Quantenchemie.