高压物理学报

适用于铅锡合金动态响应的机器学习势函数

侯恩则 王啸洋 王涵

A Machine Learning Potential Model for Simulating Dynamic Mechanical Response of Pb-Sn Alloy

HOU Enze, WANG Xiaoyang, WANG Han

引用本文:
侯恩则, 王啸洋, 王涵. 适用于铅锡合金动态响应的机器学习势函数[J]. 高压物理学报, 2026, 40(1):010106. DOI: 10.11858/gywlxb.20251151
HOU Enze, WANG Xiaoyang, WANG Han. A Machine Learning Potential Model for Simulating Dynamic Mechanical Response of Pb–Sn Alloy[J]. Chinese Journal of High Pressure Physics, 2026, 40(1):010106. DOI: 10.11858/gywlxb.20251151

在线阅读 View online: https://doi.org/10.11858/gywlxb.20251151

DOI: 10.11858/gywlxb.20251151

适用于铅锡合金动态响应的机器学习势函数

侯恩则[1,2], 王啸洋[3], 王 涵[3,4]

(1. 北京应用物理与计算数学研究所, 北京 100094;
2. 中国工程物理研究院研究生院, 北京 100088;
3. 北京应用物理与计算数学研究所计算物理全国重点实验室, 北京 100094;
4. 北京大学工学院应用物理与技术研究中心, 北京 100871)

摘要: 铅是一种低熔点且具有复杂温度-压力相图的金属材料,经过与锡的合金化,能够进一步降低其熔点,使得铅锡合金成为研究材料动态力学响应及动态破坏行为的重要模型材料。目前,受表征手段的限制,通过实验方法揭示铅锡合金在原子尺度上的动态破坏行为和机理仍存在巨大挑战。非平衡分子动力学是一种重要的理论研究手段,可以模拟动态过程中的原子运动轨迹,从而揭示动态加载-卸载及破坏行为中的关键原子尺度过程。然而,分子动力学方法的可靠性依赖其所采用的原子间相互作用势函数的精度,目前并没有适用于铅锡合金的动态响应研究的高精度势函数,因此,制约了铅锡合金的动态模拟研究。通过同步学习策略,构建了压力为 0～100 GPa、温度为 0～5 000 K 下具有第一性原理精度的铅锡合金机器学习势函数模型 DP-PbSn。该势函数能够以第一性原理的精度预测铅锡合金的点阵常数和弹性常数等基本性质,以及表面能、层错能、空位形成能等缺陷性质,还能够准确地预测其熔化线和冲击 Hugoniot 曲线,展现了其在动态响应模拟过程中的适用性。利用该势函数对铅和铅锡合金的动态力学响应行为进行了初步的模拟研究,揭示了锡对动态加载过程中相变及塑性行为的影响。该势函数作为重要的理论工具,能够实现高精度的非平衡分子动力学模拟,从而为铅锡合金动态力学损伤行为的实验研究提供关键理论依据。

关键词: 铅锡合金; 动态力学响应; 机器学习; 原子间作用势函数

中图分类号: O521.2 **文献标志码:** A

铅(Pb)是典型的Ⅳ族金属材料,在常压下的熔点约为 6 00 K[1],塑性较好。随着压力的升高,Pb 展现出较复杂的温度-压力相图[2]。当压力高于 13 GPa 时,Pb 由面心立方(face-centered cubic, FCC)相转变为密堆六方(hexagonal close-packed, HCP)相[2–3]。当压力进一步升高至 109 GPa 以上时,Pb 转变为体心立方(body-centered cubic, BCC)相[4]。在近平衡加压条件下,这 2 个相变均被证实为缓慢的一阶相变[2]。在动态加载过程中,Pb 的 Hugoniot 状态的热力学路径会分别经过平衡相图中这 3 个相的相区[5],因此,Pb 在冲击作用下存在复杂的相变行为。Pb 与锡(Sn)形成 PbSn 合金后,熔点进一步降低,并出现金属间化合物[6]。这些特殊的性质使 Pb 与 PbSn 合金在动态加载下更容易发生物态变化,如冲击相变和冲击熔化,因此,Pb 和 PbSn 合金成为研究金属材料动态力学响应与动态破坏的重要模型材料。

对 Pb 的动态力学响应实验研究主要集中于宏观的动态损伤过程,如层裂和微层裂过程中的碎片、

* **收稿日期:** 2025-08-06; **修回日期:** 2025-10-27

第一作者: 侯恩则(1999—),男,博士研究生,主要从事偏微分方程数值解、科学计算与机器学习研究. E-mail: sg.enzo.h@foxmail.com

王啸洋(1991—),男,博士,助理研究员,主要从事材料辐照损伤、高压相结构预测、动态力学响应研究. E-mail: wang_xiaoyang@iapcm.ac.cn

液滴分布[7]以及动态过程中的损伤分层现象[8]。由于现有的微观表征手段在动态力学响应过程中往往不适用，因此，难以通过实验手段直观地获得材料动态响应时的塑性变形、固态相变、熔化及空洞产生等过程的微观机理，目前，通常采用非平衡分子动力学（non-equilibrium molecular dynamics, NEMD）方法对其进行模拟。NEMD 方法能够准确解析短时间尺度及较小空间尺度内的原子运动轨迹，从而获得动态响应中关键的原子尺度过程。利用 NEMD 方法，研究人员已对 Pb 的纳米晶组织的层裂过程[9]、Pb 的卸载熔化过程[10]、应变速率对层裂强度的影响[11]以及 Pb 的冲击塑性行为[12]进行了详细的研究。

值得注意的是，目前大部分 NEMD 工作采用经验势函数来描述原子间的相互作用。常见的经验势函数形式有嵌入原子模型（embedded atom model, EAM）[13]、改进的嵌入原子模型（modified embedded atom model, MEAM）[14]以及键级势（bond order potential, BOP）[15]等。经验势函数通常采用固定的函数形式和有限个可调参数，仅针对少量的材料性质进行拟合。然而，真实的原子间相互作用是一个复杂的高维函数，难以用简单形式精确近似。因此，经验势函数在拟合目标之外的性质时通常精度不足，且外推能力有限，导致绝大部分的经验势函数难以适用于宽热力学范围内多种相结构的描述[16]，且经验势函数也不具备同时描述多种材料缺陷的能力。如 Wang 等[17]构建的 PbEAM 势是目前精度最高的 Pb 势函数之一，能够以很高的精度描述 Pb 的基本性质和 Hugoniot 曲线，但在计算 40 GPa 以上 Pb 的熔点时将偏离实验结果。同时，该势函数显著低估了 FCC 相 (111) 面孪晶的形成能，在冲击加载过程中不合理地出现了孪晶开动的过程。可见，势函数的精度不足降低了 NEMD 模拟结果的可靠性。

基于密度泛函理论（density functional theory, DFT）的第一性原理计算已被广泛应用于研究 Pb 在高压下的相结构和相图。Liu 等[18]和 Cui 等[19]计算了 Pb 的相变压力的临界值，得到的 FCC-HCP 和 HCP-BCC 相变压力与实验数据[2−3]吻合良好。Cricchio 等[20]利用从头算分子动力学（*ab initio* molecular dynamics, AIMD）方法确定了 Pb 的熔化曲线随压力的变化关系，所得结果也与实验数据[21]高度一致。Yu 等[22]计算得到的表面能与实验测量结果[23]相符。上述一致性表明，DFT 方法在预测 Pb 的性质方面具有很高的可靠性。然而，由于 DFT 计算的复杂度随电子数量呈三次方增长，使得此类方法在用于大体系和长时间尺度的分子动力学模拟时计算成本过高，因此，AIMD 无法直接用于模拟动态力学响应。

最近，机器学习势函数的快速发展提供了许多高精度势函数的技术路线。如高斯近似势（Gaussian approximate potential, GAP）[24]、矩张量势（moment tensor potential, MTP）[25]、光谱近邻分析势（spectral neighbor analysis potential, SNAP）[26]、深度势能（deep potential, DP）[27]等。这些机器学习势函数方法有望将第一性原理的精度引入大尺度的原子模拟中，不仅可以提供更加可靠的热力学统计结果，还可能获取与传统经验势模拟结果不同的动态力学响应机理，从而极大地提高原子尺度模拟结果的可靠性，并从模拟中获得新的机理认识。机器学习势函数方法已被广泛应用于材料的动态力学响应研究，例如：高天雨等[28]研究了超快激光作用下铜的熔化现象；曾启昱等[29]研究了从常压到核幔边界条件下液态铁的动力学及输运性质；D'Souza 等[30]研究了氦在冲击作用下的动态行为；Pan 等[31]研究了黄铁矿型二氧化硅在冲击作用下的形成；Zeng 等[32]利用机器学习势函数，并考虑了电子温度效应，研究了钨在快速激光加载作用下的动力学行为。这些成果表明，机器学习势函数方法在 NEMD 中有着良好的适用性和广阔的应用前景。

然而，截至目前，尚没有适用于 PbSn 合金动态力学响应模拟研究的经验势或机器学习势模型，严重制约了人们对 PbSn 合金动态力学响应机理的深入理解。为此，本研究首先利用 Sn 原子百分比为 0～31.25% 的 PbSn 合金，构建高精度机器学习势函数模型；然后，针对压力为 0～100 GPa、温度为 0～5 000 K 的热力学范围进行采样及数据集构建，利用得到的数据训练深度势能模型 DP-PbSn，并验证该势函数对于动态力学响应模拟的适用性；最后，利用 DP-PbSn 对纯 Pb 及 PbSn 合金体系进行 NEMD 模拟，初步探讨 Pb 及 PbSn 合金在不同冲击压强下的动态响应行为的异同，以期加深对 PbSn 合金动态响应机理的认识，为系统性探讨 PbSn 合金的动态力学响应行为提供研究工具和理论依据。

1　深度势能模型构建

DP-PbSn 采用的模型框架为深度势能模型 DP-SE[27]，数据集采用深度势能生成器 DP-Gen[33] 进行构建。DP-Gen 提供了数据集构建的同步学习策略，其循环迭代由模型训练、构型空间探索、数据标签计算 3 个关键步骤组成。每一个循环迭代均会累计数据至最终数据集。当数据集构建完毕，利用所有数据对模型进行最终训练，从而获得可用于 NEMD 模拟的深度势能模型。

1.1　模型训练

在每一个迭代循环中，模型训练主要依赖 DEEPMD-kit[34] 软件包提供的训练和推理工具。训练算法为 Adam 随机优化算法[35]，训练目标分别为体系的能量E、原子的受力F以及体系的维里应力ε。训练通过优化损失函数L来实现

$$L=\frac{1}{|B|}\sum_{k\in B}\left(P_E\frac{1}{N}\left|\hat{E}^k-E^k\right|^2+P_F\frac{1}{3N}\sum_{i\alpha}\left|\hat{F}^k_{i\alpha}-F^k_{i\alpha}\right|^2+P_\varepsilon\frac{1}{9N}\sum_{i\alpha}\left|\hat{\varepsilon}^k_{i\alpha}-\varepsilon^k_{i\alpha}\right|^2\right)\tag{1}$$

式中：B为一个训练数据小子集，$|B|$为该子集的大小；N为构型中的原子个数；$\hat{E}^k$、$\hat{F}^k_{i\alpha}$、$\hat{\varepsilon}^k_{i\alpha}$分别为该子集中的每个构型$k$的能量、受力和维里应力，$E^k$、$F^k_{i\alpha}$、$\varepsilon^k_{i\alpha}$为该子集中的每个构型$k$的能量、受力和维里应力的当前模型预测值；$P_E$、$P_F$、$P_\varepsilon$为训练过程中上述 3 个物理量的权重，$P_E$、$P_F$、$P_\varepsilon$ 随着学习率l_r逐渐衰减。模型开始训练时的学习率$l_r^0=10^{-3}$，结束训练时的学习率为5×10^{-8}。P_E、P_F、P_ε的衰减方式为

$$P_\alpha(t)=P_\alpha^{\text{limit}}\left(1-\frac{r_l(t)}{r_l^0}\right)+P_\alpha^{\text{start}}\left(\frac{r_l(t)}{r_l^0}\right),\quad \alpha=E,F,\varepsilon\tag{2}$$

式中：P_α^{start}和P_α^{limit}分别为训练开始和结束时的权重。训练开始时，设置$P_E^{\text{start}}=0.02$，$P_F^{\text{start}}=1\,000$，$P_\varepsilon^{\text{start}}=0.02$，这些权重随着训练过程逐渐调整，最终变为$P_E^{\text{limit}}=1.0$，$P_F^{\text{limit}}=1.0$，$P_\varepsilon^{\text{limit}}=1.0$。在循环迭代过程中，训练步数为$4\times10^5$。每一轮迭代过程中，基于相同的训练数据和超参数，利用不同的随机数训练 4 个模型，将 4 个模型用于构型空间探索中的误差评估。

1.2　构型空间探索

基于 Sn 原子百分比为 0～31.25% 的 PbSn 合金，针对 FCC、HCP、BCC 相结构进行构型空间探索。对于每一种相结构，选取 16 原子的晶胞进行采样，采样的具体成分为 Pb16、Pb15Sn1、Pb14Sn2、Pb13Sn3、Pb12Sn4、Pb11Sn5。构型空间探索方式为分子动力学模拟，采用 *NPT* 系综，Nosé-Hoover 热浴[36–37]，其中温度范围为 0～5 000 K，压强范围为 0～100 GPa。这一温度压力条件覆盖了 Pb 相图中 BCC、FCC 和 HCP 相的稳定热力学区间[38]。采样过程中，分子动力学模拟的时间步长为 1 fs，采样总时间随着迭代次数不断变化：每进入一个新的温度区间，初始模拟时长为 0.1 ps，随着迭代次数增加，模拟时长增长至 5.0 ps；再次进入下一个温度区间时，模拟时长重置为 0.1 ps，以此类推。对于所有分子动力学轨道，每 10 步提取一个构型进行误差评估。评估方式为计算每个构型的最大原子受力偏差σ_{t}[27]

$$\sigma_{\text{t}}=\max_i\sqrt{\left\langle\left\|F_{\omega,i}-\langle F_{\omega,i}\rangle\right\|^2\right\rangle}\tag{3}$$

式中：$F_{\omega,i}$为模型ω对原子i的受力预测。当模型偏差位于预设的上界（σ_{high}）与下界（σ_{low}）之间，即$\sigma_{\text{low}}\leqslant\sigma_{\text{t}}<\sigma_{\text{high}}$时，构型被选为数据标签计算的候选构型。设置$\sigma_{\text{high}}=0.20$ eV/atom，$\sigma_{\text{low}}=0.05$ eV/atom。随着迭代步数的进行，σ_{t}将会逐渐减小。当 99% 以上的探索构型满足$\sigma_{\text{t}}\leqslant\sigma_{\text{low}}$时，构型空间探索结束。在每一轮迭代中，最多随机选取满足条件的 100 个构型进行数据标签计算。

除了对各物相的基础构型进行探索之外，还对 FCC 相的 (100)、(110) 和 (111) 3 个指数的表面进行探索，探索过程中采用 *NVT* 系综，温度范围为 0～2000 K。

1.3　数据标签计算

在每一轮迭代的第 3 步，对所选构型进行 DFT 计算。为保证数据的高精度，测试了 Pb-Sn 代表性构型的单点数据随着平面波截断能和倒空间格点密度的收敛性。为保证每原子的能量、受力和维里应

力张量能够分别收敛至 1 meV/atom、20 meV/Å及 20 meV/atom，采用 100 Ry 的平面波截断能以及 0.08 bohr^{-1} 的倒空间格点密度。电子波函数采用 0.2 eV 的高斯展宽。针对 DFT 采用的交换关联泛函，采用 Ernzerhof 等[39]提出的广义梯度近似。采用模守恒赝势 ONCV（optimized norm-conserving Vanderbilt）[40]将 Pb 和 Sn 的 14 个电子考虑成价电子。在本研究中，所有用于训练和测试的 DFT 计算（即数据标签）均由 ABACUS 软件完成[41]。

2　模型表征结果

2.1　训练、测试误差

DP-PbSn 的训练数据集包含 8 217 个构型。在该训练集上，DP-PbSn 的训练均方根误差（root mean square error, RMSE）如表 1 所示。

表 1　DP-PbSn 的训练误差与测试误差

Table 1　Training and testing error of DP-PbSn

Dataset	RMSE		
	Energy/(meV/atom)	Force/(meV·Å^{-1})	Virial stress/(meV/atom)
Training	4.76	61.98	32.54
Testing	2.88	31.39	25.73

为了更准确地评估 DP-PbSn 在训练数据集覆盖范围内的精度，构建了包含约 3 000 个构型的测试集。测试集基于 Pb16、Pb14Sn2、Pb12Sn4 3 种组分，采用 *NPT* 系综进行分子动力学模拟。时间步长为 1 fs，模拟总时长为 10 ps，每 1 ps 抽取一帧进行 DFT 标签计算，每个热力学状态包含 10 个数据点。不同组分、温度、压力条件下的测试误差如图 1 所示，模型在测试集上的 RMSE 分布如表 1 所示。

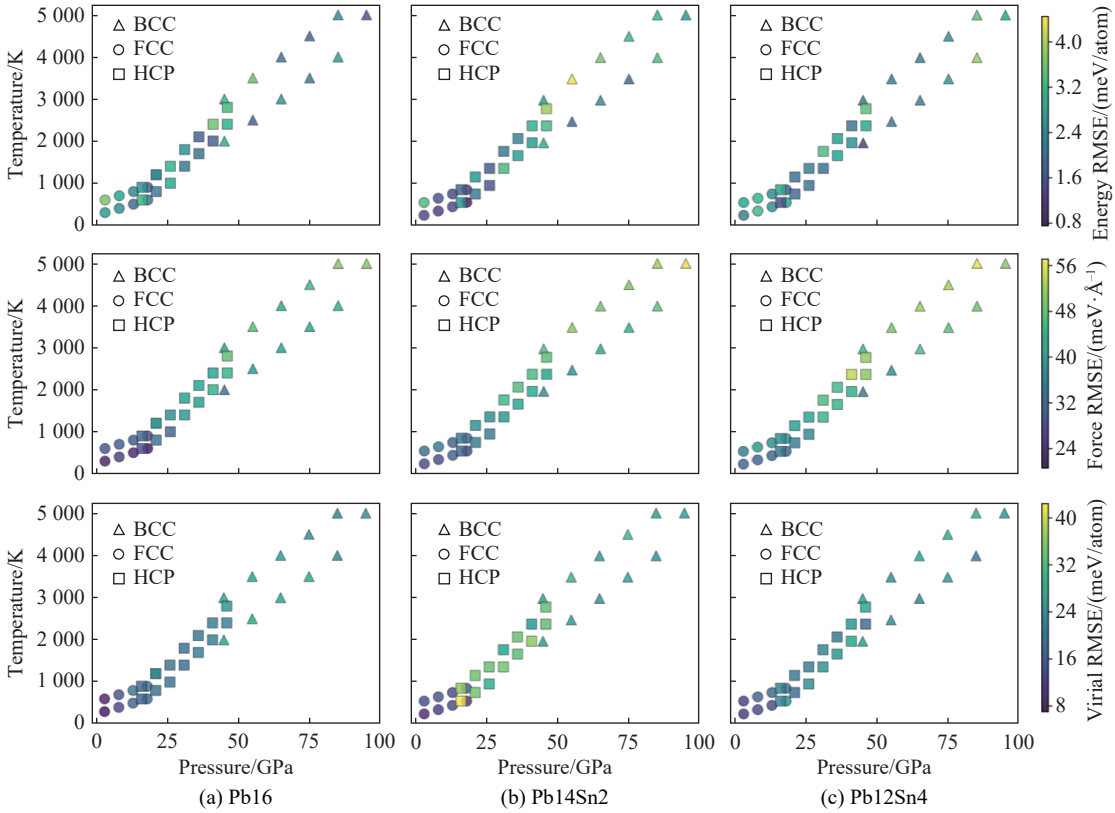


图 1　不同温度、压力条件下 3 种组分的测试误差

Fig. 1　Testing RMSE on three components at various temperature and pressure

DP-PbSn 在测试集上的误差显著低于训练集误差，这是由于，在数据集构建过程中，迭代中的模型采样到部分高能构型，这些构型的数据标签往往存在较高的原子受力，从而导致训练精度较低。当数据集构建完毕后，模型采样到这些高能构型的概率大幅降低，因此，测试集显示出较低的误差。

2.2　基本性质

利用 DP-PbSn 预测的 Pb 和不同组分合金的基本性质如表 2 和表 3 所示。考察的组分为纯 Pb、Sn 的原子百分比（a_{Sn}）分别为 9% 和 25% 的 PbSn 合金，表征的基本性质包括点阵常数（a 和 c）、聚合能（E_{coh}）、弹性常数（C_{ij}）、低指数表面形成能（E_{surf}）、空位形成能（E_{vac}）、溶解能（E_{sol}）等。其中，点阵常数通过针对目标物相，利用共轭梯度法进行结构优化，提取末态点阵常数的方式获取。

表 2　利用 DP-PbSn 预测的纯 Pb 的基本性质

Table 2　Basic properties of pure Pb predicted by DP-PbSn

Phase	Model	a/Å	E_{coh}/eV	C_{11}/GPa	C_{12}/GPa	C_{44}/GPa	E_{surf}/(meV·Å^{-2})			E_{vac}/eV
							(100)	(110)	(111)	
FCC	DP-PbSn	5.037	–3.243	45.75	39.14	14.64	18.87	20.82	17.68	0.485
	DFT	5.039	–3.247	51.80	34.52	16.79	18.78	22.48	17.26	0.490
Phase	Model	a/Å	c/Å	c/a	E_{coh}/eV	C_{11}/GPa	C_{12}/GPa	C_{44}/GPa	E_{vac}/eV	
HCP	DP-PbSn	3.539	5.892	1.665	–3.238	58.032	38.603	5.162	0.530	
	DFT	3.542	5.863	1.655	–3.234	51.840	35.560	6.950	0.520	

表 3　利用 DP-PbSn 预测的不同组分 PbSn 合金的基本性质

Table 3　Basic properties of PbSn alloys with different compositions predicted by DP-PbSn

Phase	a_{Sn}/%	Model	a/Å	C_{11}/GPa	C_{12}/GPa	C_{44}/GPa	E_{sol}/(meV/atom)	E_{surf}/(meV·Å^{-2})		
								(100)	(110)	(111)
FCC	9	DP-PbSn	5.031	44.78	38.79	13.81	88.57	18.92	20.22	17.53
		DFT	5.021	51.28	35.19	14.25	127.09	20.10	22.40	19.20
	25	DP-PbSn	5.001	45.45	38.93	13.01	72.97	19.42	20.82	18.45
		DFT	4.991	51.21	36.28	12.53	95.39	22.60	24.60	23.90
Phase	a_{Sn}/%	Model	a/Å	c/Å	c/a	C_{11}/GPa	C_{12}/GPa	C_{44}/GPa	E_{sol}/(meV/atom)	
HCP	9	DP-PbSn	3.541	5.862	1.656	55.73	36.98	5.40	133.90	
		DFT	3.541	5.846	1.651	55.26	40.71	11.29	252.10	
	25	DP-PbSn	3.519	5.824	1.655	54.29	38.33	3.97	96.08	
		DFT	3.465	5.885	1.698	55.71	40.34	5.16	157.06	

聚合能的计算公式为

$$E_{coh} = E_0 - E_{iso} \tag{4}$$

式中：E_0为末态中对应的每原子能量，E_{iso}为真空中的单原子能量。

弹性常数采用有限差分法，通过优化后的构型模拟体系的变形，并计算相应的体系能量变化，利用胡克定律计算弹性常数分量。

空位形成能的计算公式为

$$E_{vac} = E_{tot} - N_0 E_0 \tag{5}$$

式中：E_{tot}为含缺陷体系的总能量，N_0为该体系的原子数。

表面形成能的计算公式为

$$E_{\mathrm{surf}} = (E_{\mathrm{s,tot}} - N_0 E_0)/2A \tag{6}$$

式中：$E_{\mathrm{s,tot}}$为含表面体系的总能量，A为自由表面的面积。

DP-PbSn 对基本性质的预测精度与合金成分有关。对于纯 Pb，DP-PbSn 在预测所有上述性质方面表现出与第一性原理相近的精度。对于 Sn 原子百分比为 9% 的 PbSn 合金，DP-PbSn 在预测点阵常数、表面能等性质方面表现出较高的精度，而在预测 FCC 相和 HCP 相的溶解能方面与 DFT 计算结果相比偏低。此外，由于弹性常数分量C_{ij}数值较小，虽然 DP-PbSn 与 DFT 结果相比相对误差较大，但其绝对误差较小，仅为数吉帕。该现象在针对其他体系（如 Sn）的机器学习势函数中也有报道[42]。对于 Sn 原子百分比为 25% 的 PbSn 合金，DP-PbSn 对 HCP 相溶解能的预测值相较于 DFT 结果偏低，而在预测其他性质方面，能够达到与 DFT 相近的精度。

值得注意的是，当压力高于 13 GPa 时，HCP 相才呈现热力学稳定，另外，FCC-HCP 相变速度缓慢，在动态模拟过程中，HCP 相不会大量出现。因此，预测的 PbSn 合金 HCP 相的部分零压基本性质与 DFT 结果的差距并不会显著影响 DP-PbSn 计算结果的可靠性。对基本性质的精确表征是准确预测缺陷性质和有限温性质的重要保证。对于上述 3 种组分，DP-PbSn 在预测 (100)、(010)、(001) 这 3 个低指数表面的表面形成能时表现出与第一性原理接近的计算精度。在动态力学响应模拟中，势函数对表面能的准确预测是对动态破坏、裂纹形成和演化过程及行为进行可靠复现与预测的基础。

2.3　广义层错能

广义层错能是一种衡量晶体塑性变形能力的性能指标[43]，描述了部分晶体沿特定的晶面（滑移面）和晶体学取向（滑移方向）进行刚性位移时产生的能量变化。在与滑移方向垂直的 2 个方向上，允许原子按照约束弛豫，得到能量-位移变化曲线，称为广义层错能曲线，也叫作 γ 线。DP-PbSn 预测的 Pb 的广义层错能曲线如图 2 所示。计算层错能时，考虑易滑移方向为$\langle 1\bar{1}0\rangle$，该方向为大多数 FCC 相结构的最易滑移方向[44]，滑移面选择 (110)和(111) 2 个晶体学取向。

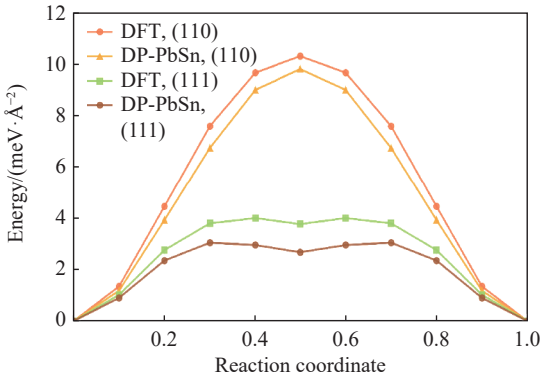


图 2　DP-PbSn 沿着$\langle 1\bar{1}0\rangle$方向滑移时不同滑移面上的广义层错能

Fig. 2　Generalized stacking fault energy predicted by DP-PbSn along $\langle 1\bar{1}0\rangle$ on various slip planes

在$\langle 1\bar{1}0\rangle$/(110)滑移系上，DP-PbSn 预测得到的 Pb 的层错能约为 9.8 meV/Å^2，而 DFT 计算结果为 10.2 meV/Å^2；在$\langle 1\bar{1}0\rangle$/(111)滑移系上，DP-PbSn 能够准确复现该滑移系层错能的双峰结构，预测的最高层错能为 3 meV/Å^2，约为 DFT 计算结果的 75%。较低的层错能表明 Pb 在该滑移面极易产生滑移。值得注意的是，DFT 层错能计算的构型未被显式地加入训练数据集中。因此，DP-PbSn 对广义层错能的准确预测来自 DP-SE 模型架构优秀的外推能力。

对广义层错能的准确预测体现了 DP-PbSn 对材料 FCC 相塑性变形过程模拟的适用性。

2.4　熔化线

DP-PbSn 预测得到的 Pb 的熔化线如图 3 所示。熔化线计算方法为两相共存法，在包含约 2 000 个原子、厚度约为 50 Å的体系中，引入厚度约为 25 Å的液相。通过 *NPT* 系综，调节目标温度和压强，寻找在给定压强下能够实现固液共存的温度作为熔点温度。

在熔点计算中考察了 BCC、FCC、HCP 3 个相结构。在 20 GPa 以下，FCC 相与 HCP 相熔化线的交点高度重合，其交点出现在 5 GPa 以下。HCP 相与 BCC 相的熔化线在约 35 GPa 处有交点。在

0～100 GPa 范围内，DP-PbSn 预测的熔化线与实验结果[38] 高度重合，体现了模型优秀的外推能力。相比之下，目前适用于描述 Pb 且精度最高的 EAM 势函数在 40 GPa 以上时的熔点预测结果显著低于实验结果，因此，DP-PbSn 适用于模拟更高冲击压力下的动态力学响应行为，且对冲击熔化现象的描述更加精确。

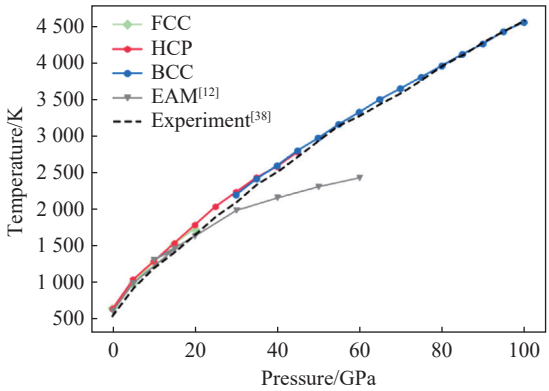


图 3　DP-PbSn 及现有的 EAM 势函数[12] 对 0～100 GPa 下的 Pb 熔点预测结果

Fig. 3　Melting curves of Pb within the pressure range of 0–100 GPa predicted by DP-PbSn and EAM potential function[12]

3　冲击压缩模拟

第 2 节展示了 DP-PbSn 在一系列基本性质、缺陷性质及有限温度性质下的表征结果，证明了其在动态力学响应模拟中的适用性。接下来，利用 NEMD 方法模拟 Pb 以及 Sn 原子百分比为 20% 的 PbSn 合金的动态响应行为，初步探讨并对比其在动态加载过程中微观组织形貌演化的异同。

3.1　NEMD 设置

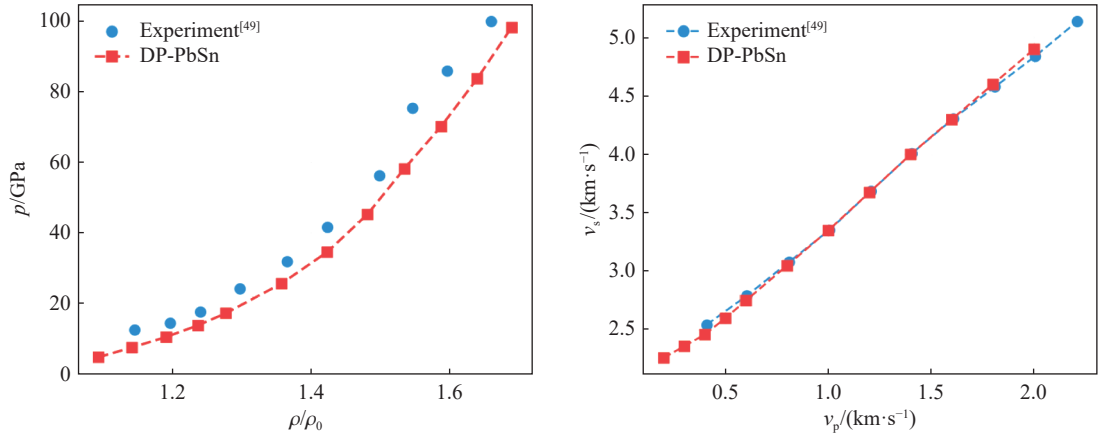
基于 Pb 以及 Sn 原子百分比为 20% 的 PbSn 合金的 FCC 相构建 NEMD 初始构型。初始构型中的 x、y、z 方向分别沿 [100]、[010]、[001] 3 个方向，长度分别为 100、100 和 1 000 Å，共包含约 3.2×10^5 个原子。分子动力学模拟采用整合了 NVNMD 方法[45] 的 LAMMPS 软件[46]。

在进行动态加载之前，体系需要弛豫到室温的热力学平衡状态，因此，首先对体系进行 50 ps 的含温弛豫，弛豫采用 *NPT* 系综，并控制压强为零。弛豫过程中，在 x 和 y 维度上均采用周期性边界条件，在 z 维度上采用自由边界条件。

弛豫后，对体系进行活塞加载[47]。加载过程中，活塞位于 z 方向底端。选取活塞速度为 0.2～2.0 km/s。活塞加载后，体系内部将产生一个由 z 方向底端传播至顶端的平面冲击波，冲击波经过的样品为压缩区域。在活塞冲击过程中，对体系采用 *NVE* 系综。当冲击波到达 z 方向顶端时模拟结束。在活塞冲击加载过程中，采用可变时间步长，变化范围为 0.001～1 fs，并确保每个时间步长内单个原子的位移不超过 0.1 Å。在冲击模拟过程中，沿 z 方向统计压强和温度等热力学量，同时对原子运行轨道进行表征。其中相结构采用 OVITO 软件[48] 中的多面体模板匹配方法进行分析并可视化。

3.2　冲击 Hugoniot 曲线

Hugoniot 曲线描述了材料动态加载过程中物理量之间的依赖关系[49]。本研究主要考察在活塞冲击压缩过程中的密度-压强以及活塞速率与波速之间的依赖关系。借助 NEMD 模拟，提取了不同活塞速率下的 Hugoniot 曲线，如图 4 所示。图 4(a) 展示了不同的活塞速率下 Pb 的冲击压强-相对密度（p-ρ/ρ_0）的相互关系。与 Marsh 等[49] 的实验结果相比，DP-PbSn 预测的 Hugoniot 密度在相同压强下略偏高，但总体趋势与实验结果一致。图 4(b) 展示了冲击波速度 v_s 与活塞速率 v_p 的相互依赖关系。DP-PbSn 预测的结果与实验测量结果基本重合，v_s 与 v_p 近似呈线性相关。正确预测 Hugoniot 曲线进一步证明了 DP-PbSn 在模拟动态过程中的适用性和模拟结果的合理性。



(a) Shock pressure-relative density relationship　　(b) Piston velocity-shock wave velocity relationship

图 4　DP-PbSn 预测的 Hugoniot 曲线

Fig. 4　Hugoniot curves predicted by DP-PbSn

3.3　Pb 与 PbSn 合金的冲击压缩模拟

活塞冲击过程中，Pb 以及 Sn 原子百分比为 20% 的 PbSn 合金沿着冲击波传播方向的压强和温度分布如图 5 所示。随着冲击波的传播，压缩区域内部的温度和压强同步升高。在所有算例中，随着冲

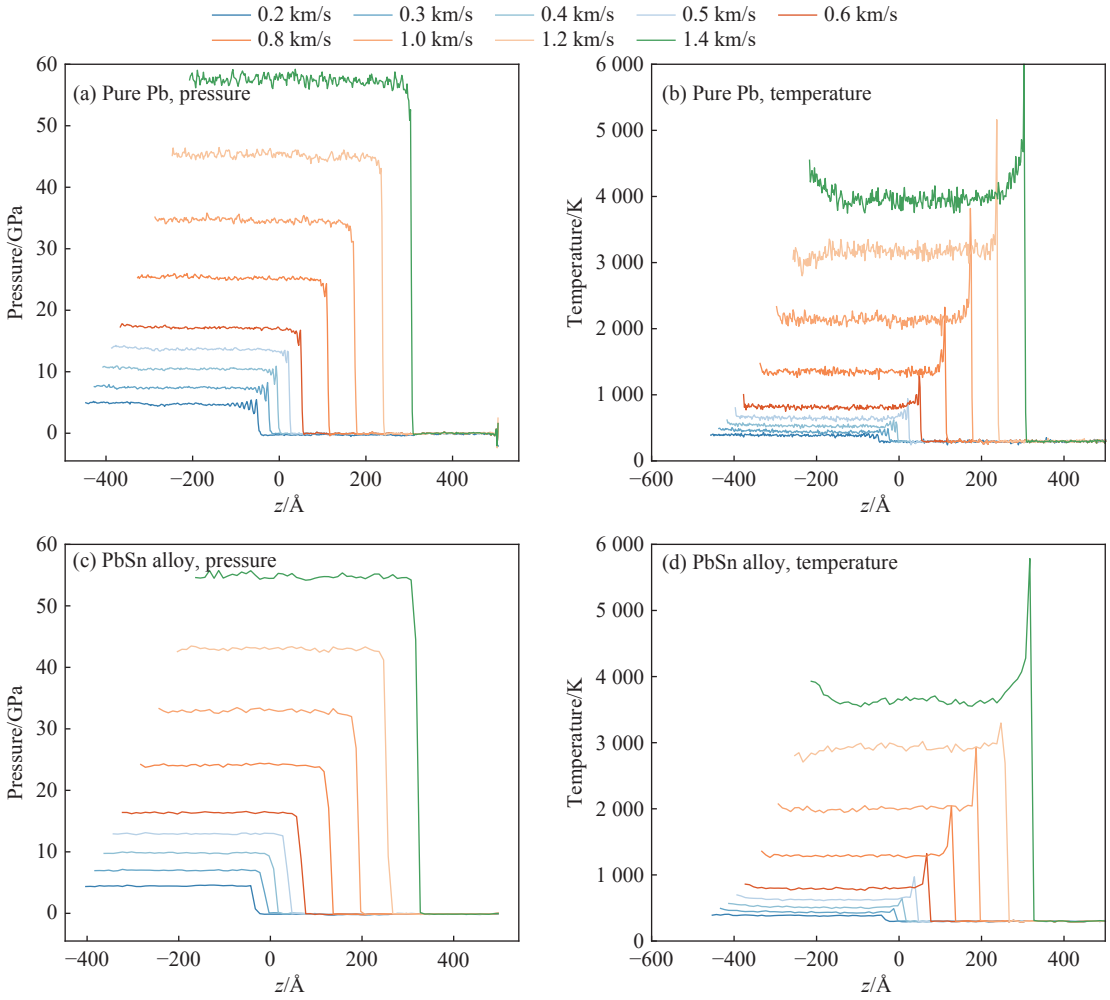


图 5　不同速率下活塞冲击过程中体系的温度和压强分布

Fig. 5　Distribution of pressure and temperature during dynamic loading at various velocities

击波的经过，压强均在压缩区域内快速形成一个平台。冲击波波阵面处形成一个温度的尖峰，随后下降至平台值。在图 5 中，只统计了活塞速率小于 1.4 km/s 的情况，这是由于，当活塞速率高于 1.4 km/s 时，体系发生冲击熔化，加载过程中，微观组织演化机理未发生明显的变化。对比图 5(a)、图 5(b)与图 5(c)、图 5(d) 发现，PbSn 合金在 Hugoniot 状态下的温度和压强均略低于纯 Pb，而温度和压强度分布规律相同。

活塞冲击过程中的微观组织形貌演化如图 6 所示。可以看出，在不同的活塞速率下，Pb 与 PbSn 合金的冲击塑性变形-相变现象略有不同，主要体现在亚稳定 BCC 相的行为上。当活塞速率为 0.4 km/s 时，Pb 的压缩区域内同时出现冲击塑性变形及 FCC-BCC 冲击相变，相变路径为典型的贝茵路径[50]。此时，压缩区域内的温度和压强难以维持 BCC 相的动力学稳定性，因此，压缩区域内的 BCC 相将逐渐退化为含有层错的 FCC 相结构，层错面为 FCC 的 (111) 面及其等价面。进一步增加活塞速率，将导致压缩区域内的温度和压力进一步上升，热力学条件更加接近平衡相图中的 BCC 相区，导致 BCC 相的动力学稳定性进一步增加。当活塞速率为 0.6 km/s 时，Pb 压缩区域内部呈现出形变 FCC 相与 BCC 相共存的情况，而 PbSn 合金内部则几乎完全转变为 BCC 相，说明在相同的冲击条件下，PbSn 合金中 BCC 相的形成更显著，或其稳定性更高；当活塞速率增加至 0.8 km/s 时，Pb 和 PbSn 合金中形成的 FCC 相均能够保持动力学稳定，压缩区域内全部为 BCC 相结构；进一步增加活塞速率至 1.0 km/s，压缩区域内部的 BCC 相中逐渐出现无法被识别为 BCC、FCC、HCP 相的无序结构。

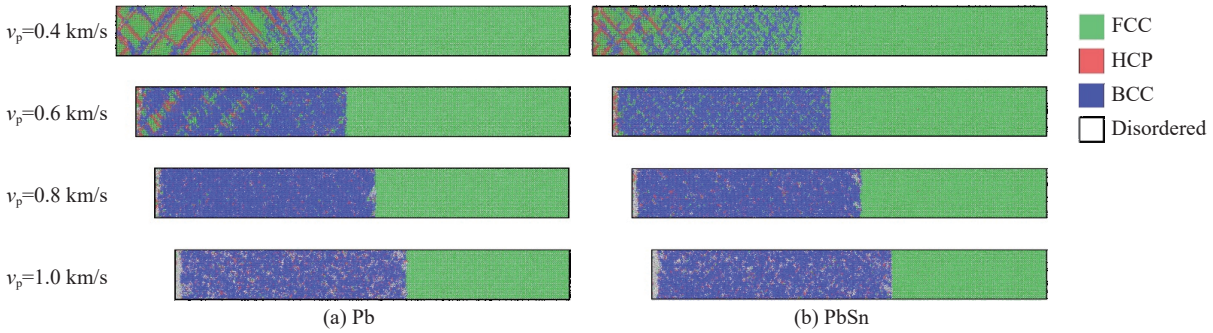


图 6　不同活塞速率下 Pb 和 PbSn 合金在加载过程中的分子动力学轨道截图(模拟时间为活塞加载后的 20 ps)

Fig. 6　NEMD snapshots for Pb and PbSn alloy at various piston velocities (snapshots were taken 20 ps after the piston loading)

利用 DP-PbSn 进行的 NEMD 模拟初步揭示了 Sn 对 PbSn 合金动态力学响应的影响：在 Hugoniot 状态中，PbSn 合金具有比 Pb 略低的温度和压强，同时，Sn 能够起到稳定 BCC 相结构的作用。

4　结　论

针对 PbSn 模型材料缺乏可靠势函数的现状，利用深度势能方法构建了适用于 PbSn 合金动态力学响应模拟的高精度机器学习势函数 DP-PbSn，并对该势函数的精度和适用性进行了表征，得到以下主要结论。

(1) DP-PbSn 在模拟点阵常数、弹性模量、表面形成能、广义层错能等性质方面达到了与第一性原理相近的精度，并准确预测了 Pb 在 0～100 GPa 下的熔点。表征结果不仅验证了 DP-PbSn 的高精度和强外推能力，同时证明了 DP-PbSn 在动态力学响应模拟中的适用性。

(2) 利用该势函数，初步研究了沿 FCC 相的 [001] 方向冲击时，Pb 与 Sn 原子百分比为 20% 的 PbSn 合金的不同。在 Pb 中加入 Sn 会略微降低 Hugoniot 状态下的温度和压强，同时，Sn 具有提高冲击过程中形成的 BCC 相动力学稳定性的作用。

(3) DP-PbSn 势函数是研究 PbSn 合金动态力学响应的重要理论工具，利用该工具，有助于揭示动态加载/卸载过程中合金的微观组织演化机理，从而深化对延性金属动态行为的理解，并为建立相应的力学模型提供关键的理论依据。

感谢新加坡 A-STAR 李旺辉老师给予的宝贵的指导意见！

参考文献：

[1] DEWAELE A, MEZOUAR M, GUIGNOT N, et al. Melting of lead under high pressure studied using second-scale time-resolved X-ray diffraction [J]. Physical Review B, 2007, 76(14): 144106.

[2] KUZNETSOV A, DMITRIEV V, DUBROVINSKY L, et al. FCC-HCP phase boundary in lead [J]. Solid State Communications, 2002, 122(3/4): 125–127.

[3] TAKAHASHI T, MAO H K, BASSETT W A. Lead: X-ray diffraction study of a high-pressure polymorph [J]. Science, 1969, 165(3900): 1352–1353.

[4] VANDERBORGH C A, VOHRA Y K, XIA H, et al. BCC lead at 109 GPa: diffraction studies to 208 GPa [J]. Physical Review B, 1990, 41(10): 7338–7340.

[5] DAI C D, TAN H, GENG H Y. Model for assessing the melting on Hugoniots of metals: Al, Pb, Cu, Mo, Fe, and U [J]. Journal of Applied Physics, 2002, 92(9): 5019–5026.

[6] KARAKAYA I, THOMPSON W T. The Pb-Sn (lead-tin) system [J]. Journal of Phase Equilibria, 1988, 9(2): 144–152.

[7] CHEN Y, REN G, TANG T, et al. Experimental study of micro-spalling fragmentation from melted lead [J]. Shock Waves, 2016, 26(2): 221–225.

[8] ANTIPOV M V, ARININ V A, GEORGIEVSKAYA A B, et al. Experimental and computational damage and ejecta studies of Pb explosively shock loaded to p_{SL}≈32 to 40 GPa [J]. Journal of Dynamic Behavior of Materials, 2017, 3(2): 300–315.

[9] XIANG M Z, HU H B, CHEN J. Spalling and melting in nanocrystalline Pb under shock loading: molecular dynamics studies [J]. Journal of Applied Physics, 2013, 113(14): 144312.

[10] WANG K, ZHANG F G, HE A M, et al. An atomic view on spall responses of release melted lead induced by decaying shock loading [J]. Journal of Applied Physics, 2019, 125(15): 155107.

[11] MAYER A E, MAYER P N. Strain rate dependence of spall strength for solid and molten lead and tin [J]. International Journal of Fracture, 2020, 222(1/2): 171–195.

[12] LI G M, WANG Y B, WANG K, et al. Shock induced plasticity and phase transition in single crystal lead by molecular dynamics simulations [J]. Journal of Applied Physics, 2019, 126(7): 075902.

[13] DAW M S, BASKES M I. Embedded-atom method: derivation and application to impurities, surfaces, and other defects in metals [J]. Physical Review B, 1984, 29(12): 6443–6453.

[14] BASKES M I. Modified embedded-atom potentials for cubic materials and impurities [J]. Physical Review B, 1992, 46(5): 2727–2742.

[15] HORSFIELD A P, BRATKOVSKY A M, FEARN M, et al. Bond-order potentials: theory and implementation [J]. Physical Review B, 1996, 53(19): 12694–12712.

[16] WANG X Y, WANG Z Y, GAO P Y, et al. Data-driven prediction of complex crystal structures of dense lithium [J]. Nature Communications, 2023, 14(1): 2924.

[17] WANG K, ZHU W J, XIANG M Z, et al. Improved embedded-atom model potentials of Pb at high pressure: application to investigations of plasticity and phase transition under extreme conditions [J]. Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering, 2019, 27(1): 015001.

[18] LIU A Y, GARCA A, COHEN M L, et al. Theory of high-pressure phases of Pb [J]. Physical Review B, 1991, 43(2): 1795–1798.

[19] CUI S X, CAI L C, FENG W X, et al. First-principles study of phase transition of tin and lead under high pressure [J]. Physica Status Solidi (B), 2008, 245(1): 53–57.

[20] CRICCHIO F, BELONOSHKO A B, BURAKOVSKY L, et al. High-pressure melting of lead [J]. Physical Review B, 2006, 73(14): 140103.

[21] VOHRA Y K, RUOFF A L. Static compression of metals Mo, Pb, and Pt to 272 GPa: comparison with shock data [J]. Physical Review B, 1990, 42(13): 8651–8654.

[22] YU D K, SCHEFFLER M. First-principles study of low-index surfaces of lead [J]. Physical Review B, 2004, 70(15): 155417.

[23] BOMBIS C, EMUNDTS A, NOWICKI M, et al. Absolute surface free energies of Pb [J]. Surface Science, 2002, 511(1/2/3): 83–96.

[24] BARTÓK A P, PAYNE M C, KONDOR R, et al. Gaussian approximation potentials: the accuracy of quantum mechanics, without the electrons [J]. Physical Review Letters, 2010, 104(13): 136403.

[25] SHAPEEV A V. Moment tensor potentials: a class of systematically improvable interatomic potentials [J]. Multiscale Modeling & Simulation, 2016, 14(3): 1153–1173.

[26] THOMPSON A P, SWILER L P, TROTT C R, et al. Spectral neighbor analysis method for automated generation of quantum-accurate interatomic potentials [J]. Journal of Computational Physics, 2015, 285: 316–330.

[27] ZHANG L F, HAN J Q, WANG H, et al. End-to-end symmetry preserving inter-atomic potential energy model for finite and extended systems [C]//Proceedings of the 32nd International Conference on Neural Information Processing Systems. Montréal: Curran Associates Inc., 2018: 4441–4451.

[28] 高天雨, 曾启昱, 陈博, 等. 超快激光诱导 Cu 薄膜熔化的神经网络分子动力学研究 [J]. 金属学报, 2024, 60(10): 1439–1450.
GAO T Y, ZENG Q Y, CHEN B, et al. Neural network molecular dynamics study of ultrafast laser-induced melting of copper nanofilms [J]. Acta Metallurgica Sinica, 2024, 60(10): 1439–1450.

[29] 曾启昱, 陈博, 康冬冬, 等. 大规模、量子精度的分子动力学模拟: 以极端条件液态铁为例 [J]. 物理学报, 2023, 72(18): 187102.
ZENG Q Y, CHEN B, KANG D D, et al. Large scale and quantum accurate molecular dynamics simulation: liquid iron under extreme condition [J]. Acta Physica Sinica, 2023, 72(18): 187102.

[30] D'SOUZA J X, HU S X, MIHAYLOV D I, et al. Designing a quantum-accurate machine-learning potential to enable large-scale simulations of deuterium under shock [J]. Physics of Plasmas, 2025, 32(4): 042701.

[31] PAN S N, SHI J Y, LIANG Z X, et al. Shock compression pathways to pyrite silica from machine learning simulations [J]. Physical Review B, 2024, 110(22): 224101.

[32] ZENG Q Y, CHEN B, ZHANG S, et al. Full-scale *ab initio* simulations of laser-driven atomistic dynamics [J]. NPJ Computational Materials, 2023, 9(1): 213.

[33] ZHANG Y Z, WANG H D, CHEN W J, et al. DP-GEN: a concurrent learning platform for the generation of reliable deep learning based potential energy models [J]. Computer Physics Communications, 2020, 253: 107206.

[34] WANG H, ZHANG L F, HAN J Q, et al. DeePMD-kit: a deep learning package for many-body potential energy representation and molecular dynamics [J]. Computer Physics Communications, 2018, 228: 178–184.

[35] KINGMA D P, BA J. Adam: a method for stochastic optimization [C]//Proceedings of the 3rd International Conference on Learning Representations (ICLR). San Diego: ICLR, 2015.

[36] NOSÉ S. A unified formulation of the constant temperature molecular dynamics methods [J]. The Journal of Chemical Physics, 1984, 81(1): 511–519.

[37] HOOVER W G. Canonical dynamics: equilibrium phase-space distributions [J]. Physical Review A, 1985, 31(3): 1695–1697.

[38] KRYGIER A, POWELL P D, MCNANEY J M, et al. Extreme hardening of Pb at high pressure and strain rate [J]. Physical Review Letters, 2019, 123(20): 205701.

[39] ERNZERHOF M, SCUSERIA G E. Assessment of the Perdew-Burke-Ernzerhof exchange-correlation functional [J]. The Journal of Chemical Physics, 1999, 110(11): 5029–5036.

[40] SCHLIPF M, GYGI F. Optimization algorithm for the generation of ONCV pseudopotentials [J]. Computer Physics Communications, 2015, 196: 36–44.

[41] ZHOU W Q, ZHENG D Y, LIU Q R, et al. ABACUS: an electronic structure analysis package for the AI era [EB/OL]. arXiv: 2501.08697, 2025 (2025-10-22)[2025-08-06]. https://arxiv.org/abs/2501.08697.

[42] CHEN T, YUAN F B, LIU J C, et al. Modeling the high-pressure solid and liquid phases of tin from deep potentials with *ab initio* accuracy [J]. Physical Review Materials, 2023, 7(5): 053603.

[43] LI W, LU S, HU Q M, et al. Generalized stacking fault energies of alloys [J]. Journal of Physics: Condensed Matter, 2014, 26(26): 265005.

[44] 余永宁, 杨平, 强文江, 等. 材料科学基础 [M]. 北京: 高等教育出版社, 2006.
YU Y N, YANG P, QIANG W J, et al. Fundamentals of materials science [M]. Beijing: Higher Education Press, 2006.

[45] MO P H, LI C, ZHAO D, et al. Accurate and efficient molecular dynamics based on machine learning and non von Neumann

architecture [J]. NPJ Computational Materials, 2022, 8(1): 107.
[46] Sandia National Laboratories. LAMMPS [CP/OL]. [2025-10-02]. https://lammps. sandia. gov.
[47] LI W H, HAHN E N, YAO X H, et al. Shock induced damage and fracture in SiC at elevated temperature and high strain rate [J]. Acta Materialia, 2019, 167: 51–70.
[48] STUKOWSKI A. Visualization and analysis of atomistic simulation data with OVITO —the open visualization tool [J]. Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering, 2010, 18(1): 015012.
[49] MARSH S P. LASL shock Hugoniot data [M]. Berkeley: University of California Press, 1980.
[50] ALIPPI P, MARCUS P M, SCHEFFLER M. Strained tetragonal states and Bain paths in metals [J]. Physical Review Letters, 1997, 78(20): 3892–3895.

A Machine Learning Potential Model for Simulating Dynamic Mechanical Response of Pb-Sn Alloy

HOU Enze[1,2], WANG Xiaoyang[3], WANG Han[3,4]

（1. *Institute of Applied Physics and Computational Mathematics*, *Beijing* 100094, *China*;
2. *Graduate School of China Academy of Engineering Physics*, *Beijing* 100088, *China*;
3. *Laboratory of Computational Physics*, *Institute of Applied Physics and Computational Mathematics*, *Beijing* 100094, *China*;
4. *Center for Applied Physics and Computing*, *College of Engineering*, *Peking University*, *Beijing* 100871, *China*）

Abstract: Lead is a low-melting-point metal with a complex temperature-pressure phase diagram. Alloying with tin further reduces its melting temperature, making lead-tin alloys an important model material for studying dynamic mechanical responses and failure behavior. However, experimental characterization of atomic-scale dynamic failure mechanisms in PbSn alloys remains challenging due to current technical limitations. Non-equilibrium molecular dynamics (NEMD) simulations can track atom trajectories and reveal key dynamic processes under dynamic loading-unloading. It thus serves as a critical alternative tool. Yet, the reliability of molecular dynamics relies on the accuracy of interatomic potentials, and currently, no high-accuracy potential exists for PbSn alloys under dynamic conditions. In this work, we develop a machine-learning interatomic potential (DP-PbSn) for PbSn alloys using a concurrent learning scheme. This potential achieves first-principles accuracy across a wide thermodynamic range (0–100 GPa, 0–5 000 K), reliably predicting fundamental properties (e.g., lattice constants, elastic constants), defect energetics (e.g., surface energy, stacking fault energy, vacancy formation energy), as well as melting curves and shock Hugoniot curves, demonstrating its suitability for dynamic simulations. Leveraging this potential, we conduct preliminary NEMD simulations to investigate the dynamic mechanical responses of pure Pb and PbSn alloys, elucidating the influence of Sn on phase transitions and plastic deformation under dynamic loading. The DP-PbSn serves as a robust theoretical tool for high-accuracy non-equilibrium molecular dynamics, providing essential insights for experimental studies on the dynamic damage behavior of PbSn alloys.

Keywords: lead-tin alloy; dynamic mechanical responses; machine learning; interatomic potential