

CrystalGAN: Learning to Discover Crystallographic Structures with Generative Adversarial Networks

从已知的两个域（二元化合物AH和BH）的晶体结构生成新的域（三元化合物AHB或BHA）的晶体结构（其中，A和B分别是不同的金属）

数据集及处理

数据来源

作者使用的数据是通过从[文献1](#)和[文献2](#)中获取的，包含1416个POSCAR文件，63种类别（下图中的元素周期表A和B）

H																	He
Li	Be											B	C	N	O	F	Ne
Na	Mg											Al	Si	P	S	Cl	Ar
K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr
Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I	Xe
Cs	Ba	Lu	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn
		La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb		
		Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No		

Figure 7: The elements included in our data set are highlighted.

特征构建

根据晶体结构文件POSCAR提供的晶胞常数和原子坐标来构建特征如下图所示，并且从每个体系（域）中，选择35种晶体结构（稳定和亚稳态）

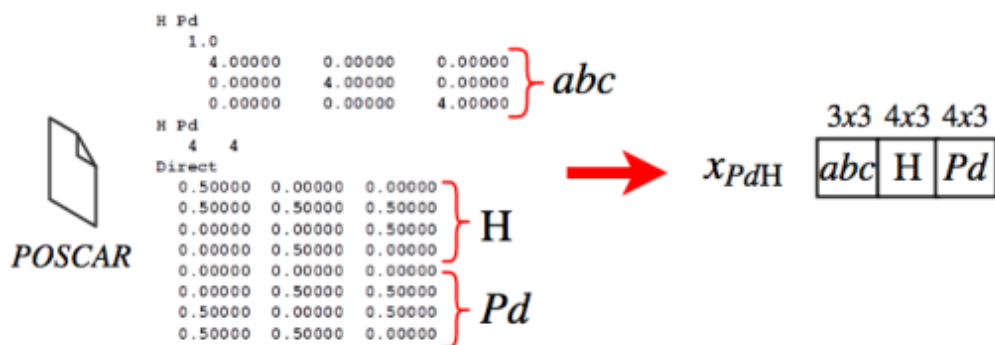


Figure 3: An example of a POSCAR file describing the composition of Palladium and Hydrogen, and the data representation in the CrystalGAN.

由此可得到如下的特征维度（4是因为扩充了一个维度，18和3分别是每个在上面的每个矩阵中最大行数和最大列数）

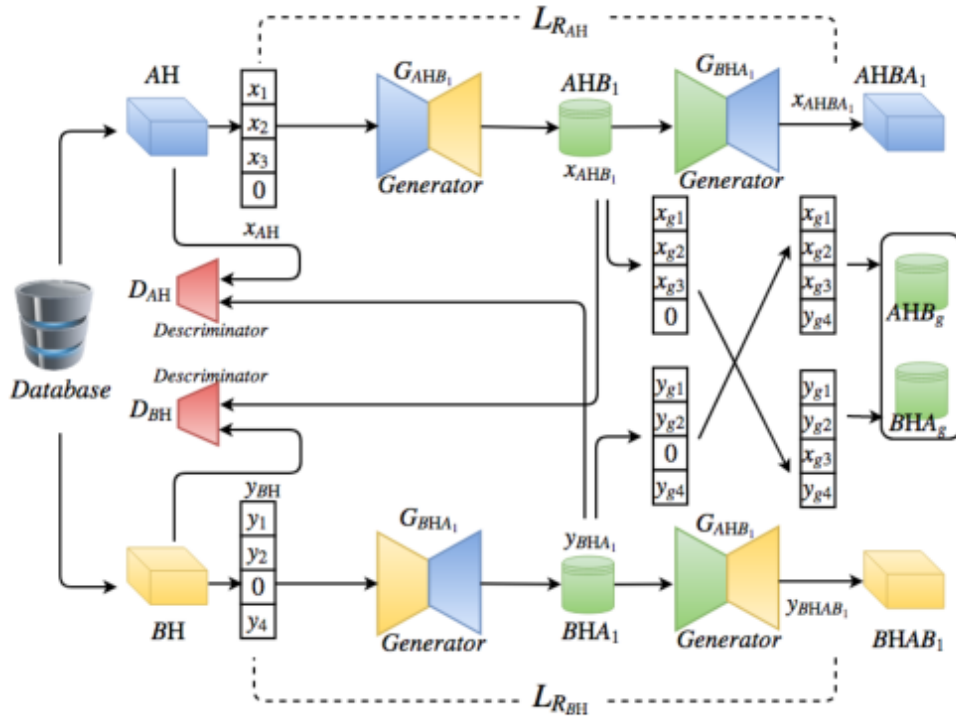
Input dataset	Dimension
PdH	[35, 4, 18, 3]
NiH	[35, 4, 18, 3]

模型及细节

本模型使用如下的三个步骤来从已知的两个域（二元化合物AH和BH）生成新的域（三元化合物AHB或BHA）

- 使用和跨域GANs类型的方法生成混合域的伪二进制样本
- 转移过程从前一步生成的样本中构造更高阶的复杂度数据
- 第二步GAN合成，再几何约束下，生成新型的三元稳定化学结构

第一步



(a) First step of CrystalGAN.

模型分别将AH和BH（A是一种金属，B是另一种金属）经过编码后的向量数据作为输入。经过一个生成器生成一个潜在空间，第二个生成器作为翻译器，然后计算AH和AHBA₁之间的损失，损失越小，说明两个生成器越好。

若将输入分别记为 $\{(x_{AH_i})\}_{i=1}^{N_{AH}}$ 以及 $\{(y_{BH_i})\}_{i=1}^{N_{BH}}$ ，则可得到如下等式：

$$x_{AHB_1} = G_{AHB_1}(x_{AH}) \quad x_{AHBA_1} = G_{BHA_1}(x_{AHB_1}) = G_{BHA_1} \cdot G_{AHB_1}(x_{AH})$$

$$y_{BHA_1} = G_{BHA_1}(y_{BH}) \quad y_{BHAB_1} = G_{AHB_1}(y_{BHA_1}) = G_{AHB_1} \cdot G_{BHA_1}(y_{BH})$$

重建的损失函数可定义（即计算原始数据和重建数据之间的距离）如下

$$L_{RAH} = d(x_{AHBA_1}, x_{AH}) = d(G_{BHA_1} \cdot G_{AHB_1}(x_{AH}), x_{AH})$$

$$L_{RBH} = d(y_{BHAB_1}, y_{BH}) = d(G_{AHB_1} \cdot G_{BHA_1}(y_{BH}), y_{BH})$$

在理想情况下， $L_{RAH} = 0, L_{RBH} = 0, x_{AHBA_1} = x_{AH}, y_{BHAB_1} = y_{BH}$

生成器的任务是保证原始数据尽可能精确地重建，故先定义如下损失

$$L_{GAN_{BH}} = -E_{x_{AH} \sim P_{AH}}[\log(D_{BH}(G_{AHB_1}(x_{AH})))]$$

$$L_{GAN_{AH}} = -E_{y_{BH} \sim P_{BH}}[\log(D_{AH}(G_{BHA_1}(y_{BH})))]$$

则生成器 G_{AHB_1} （左上和右下）以及生成器 G_{BHA_1} （右上和左下）的损失函数可定义如下：

$$L_{GAN_{AHB_1}} = L_{GAN_{BH}} + L_{RAH} \quad L_{GAN_{BHA_1}} = L_{GAN_{AH}} + L_{RBH}$$

则生成器的总损失可定义为：

$$L_{G_1} = L_{GAN_{AHB_1}} + L_{GAN_{BHA_1}} = \lambda_1 L_{GAN_{BH}} + \lambda_2 L_{RAH} + \lambda_3 L_{GAN_{AH}} + \lambda_4 L_{RBH}$$

判别器AH和BH的损失函数可定义如下：

$$L_{D_{BH}} = -E_{y_{BH} \sim P_{BH}}[\log(D_{BH}(y_{BH}))] - E_{x_{AH} \sim P_{AH}}[\log(1 - D_{BH}(G_{AHB_1}(x_{AH})))]$$

$$L_{D_{AH}} = -E_{x_{AH} \sim P_{AH}} [\log(D_{AH}(x_{AH}))] - E_{y_{BH} \sim P_{BH}} [\log(1 - D_{AH}(G_{BHA_1}(y_{BH})))]$$

则判别器的总损失可定义为：

$$L_{D_1} = L_{D_{AH}} + L_{D_{BH}}$$

第二步（特征转移）

在第一步中生成的 x_{ABH_1} 和 y_{BHA_1} 是融合A和B属性的新域，但域A和域B在这些样本中完全混合，没有办法推导出来自这些域的两个独立元素的特征。

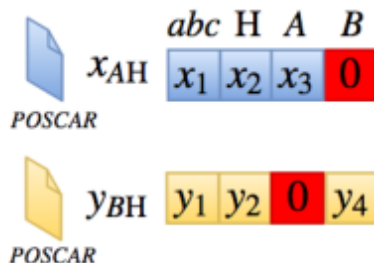
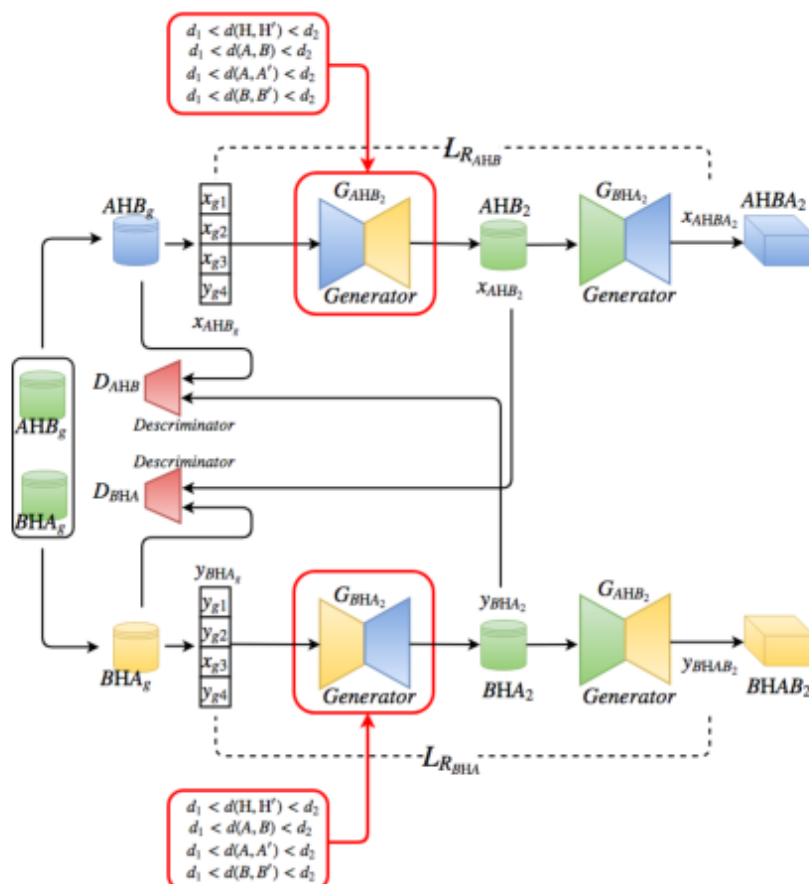


Figure 2: Encoding of x_{AH} and y_{BH} with placeholders.

所以作者添加了一个占位符（对于AH域，第四个矩阵为空，对于BH域，第三个矩阵为空）。而后将当前域为空的位置替换为另一个域对应位置的矩阵元素，然后会生成如第一步的 ABH_g 和 BAH_g

第三步



(b) Second step of CrystalGAN

在这一步中，作者考虑了晶体结构的几何约束来控制生成数据的质量。具体原理是：晶体结构完全由局部分布来描述，这种分布是由给定晶体结构中每个原子到所有最近邻的距离决定的。

若假定 $S = \{s_i\}_{i=1}^m$ 分别是一个晶体结构中所有原子的最近邻， d_1 是两个最近邻点之间的最短距离， d_2 是两个最近邻点之间的最远距离，则可定义如下两个几何约束：

$$L_{geo_1} = f(d_1, s_1, \dots, s_m) = \min_{s \in S} \|d_1 - s\|_2^2$$

$$L_{geo_2} = f(d_2, s_1, \dots, s_m) = -\min_{s \in S} \|d_2 - s\|_2^2$$

总的几何约束可定义如下：

$$L_{geo} = L_{geo_1} + L_{geo_2}$$

剩余的损失函数定义同第一步类似，给定 x_{AHB_g} 以及 y_{BHA_g} ，则可得到如下等式：

$$x_{AHB_2} = G_{AHB_2}(x_{AHB_g}) \quad x_{AHBA_2} = G_{BHA_2}(x_{AHB_2}) = G_{BHA_2} \cdot G_{AHB_2}(x_{AHB_g})$$

$$y_{BHA_2} = G_{BHA_2}(y_{BHA_g}) \quad y_{BHAB_2} = G_{AHB_2}(y_{BHA_2}) = G_{AHB_2} \cdot G_{BHA_2}(y_{BHA_g})$$

重建的损失函数可定义（即计算原始数据和重建数据之间的距离）如下

$$L_{RAHB} = d(x_{AHBA_2}, x_{AHB_g}) = d(G_{BHA_2} \cdot G_{AHB_2}(x_{AHB_g}), x_{AHB_g})$$

$$L_{RBHA} = d(y_{BHAB_2}, y_{BHA_g}) = d(G_{AHB_2} \cdot G_{BHA_2}(y_{BHA_g}), y_{BHA_g})$$

生成器的任务是保证原始数据尽可能精确地重建，故先定义如下损失

$$L_{GAN_{BHA_g}} = -E_{x_{AHB_g} \sim P_{AHB_g}} [\log(D_{BHA}(G_{AHB_2}(x_{AHB_g})))]$$

$$L_{GAN_{AHB_g}} = -E_{y_{BHA_g} \sim P_{BHA_g}} [\log(D_{AHB}(G_{BHA_2}(y_{BHA_g})))]$$

则生成器 G_{AHB_2} （左上和右下）以及生成器 G_{BHA_2} （右上和左下）的损失函数可定义如下：

$$L_{GAN_{AHB_2}} = L_{GAN_{BHA_g}} + L_{RAHB} \quad L_{GAN_{BHA_2}} = L_{GAN_{AHB_g}} + L_{RBHA}$$

则生成器的总损失可定义为：

$$L_{G_2} = L_{G_{AHB_2}} + L_{G_{BHA_2}} + L_{geo} = \lambda_1 L_{GAN_{BHA_g}} + \lambda_2 L_{RAHB} + \lambda_3 L_{GAN_{AHB_g}} + \lambda_4 L_{RBHA} + \lambda_5 L_{geo_1} + \lambda_6 L_{geo_2}$$

判别器 AHB 和 BHA 的损失函数可定义如下：

$$L_{DBHA} = -E_{y_{BHA_g} \sim P_{BHA_g}} [\log(D_{BHA}(y_{BHA_g}))] - E_{x_{AHB_g} \sim P_{AHB_g}} [\log(1 - D_{BHA}(G_{AHB_2}(x_{AHB_g})))]$$

$$L_{DAHA} = -E_{x_{AHB_g} \sim P_{AHB_g}} [\log(D_{AHB}(x_{AHB_g}))] - E_{y_{BHA_g} \sim P_{BHA_g}} [\log(1 - D_{AHB}(G_{BHA_2}(y_{BHA_g})))]$$

则判别器的总损失可定义为：

$$L_{D_2} = L_{DAHB} + L_{DBHA}$$

模型细节

输入输出维度及结构

以生成器 G_{AHB_1} 为例，其输入输出为： $\mathbb{R}^{l \times m}_{AH}, \mathbb{R}^{l \times m}_{BH} \rightarrow \mathbb{R}^{k \times m}_{AHB_1}$

以判别器 D_{AH} 为例，其输入输出为： $\mathbb{R}^{k \times m}_{AHB_1} \rightarrow [0, 1]$

生成器和判别器的定义都类似，都是使用5到10层的全连接层，只不过判别器最后用了一个sigmoid层用来预测标签

模型超参数定义

通过交叉验证设置超参数。使用AdamOptimizer作为优化器，并设置 $\alpha = 0.0001$, $\beta_1 = 0.5$ 。将epochs设置为1000，并将min-batch设置为35(因为一个Input维度就是35)。每个生成器或判别器都是5层的多层神经网络，而且每层有100个单元，并且使用ReLU作为激活函数。

距离定义

在生成晶体结构时，规定的是 $A - B$, $A - A'$ 和 $B - B'$ 之间的距离，而 $A - H$ 和 $B - H$ 之间的距离不受限制。在这篇文章中， $d_1 = 1.8A^\circ$, $d_2 = 3A^\circ$

结果与讨论

GAN的潜在空间使用高斯噪声作为输入，无法生成可接受的化学结构。若使用DiscoGAN来生成新的伪二元结构，则它表现得非常好，但不适合生成三元结构。带约束的CrystalGAN优于所有其他结果。

Composition	GAN (standard)	DiscoGAN	CrystalGAN without constraints	CrystalGAN with geometric constraints
Pd - Ni - H	0	0	4	9
Mg - Ti - H	0	0	2	8

Table 2: Number of ternary compositions of good quality generated by the tested methods.

下图是生成的Pd-Ni-H，作者想说明的是，所有原子之间的最短距离都满足要求，即生成的结构尊重几何结构

Atom 1	Atom 2	Distance
H 1	Pd	0.8103
	Ni	2.4366
	Pd	2.4782
	H	2.6765
	H	2.9976
H 2	Pd	1.9035
	Ni	2.2619
	Pd	2.2755
	H	2.6765
	H	2.9976
Pd 3	H	0.8103
	H	1.9035
	Ni	2.9513
Pd 4	Ni	1.9463
	H	2.2755
	H	2.4782
	Ni	2.9662
Ni 5	H	2.2619
	Ni	2.3474
	H	2.4366
	Pd	2.9513
	Pd	2.9662
Ni 6	Pd	1.9463
	Ni	2.3474

H Pd Ni

1.0

0.317834670.383482126.43965053

-0.142297954.61861133-1.02656614

5.300122732.00472569-0.25500044

H Pd Ni

2 2 2

Cartesian

1.586954590.616973450.02452001

4.091588021.54180848-0.16272403

2.387705320.728358260.07921831

0.406536450.160360394.67786407

0.044661042.44065856-0.45760279

-0.295133941.828116173.96068835

Figure 5: The list of the nearest neighbours (on the left); the corresponding generated POSCAR file (on the right).