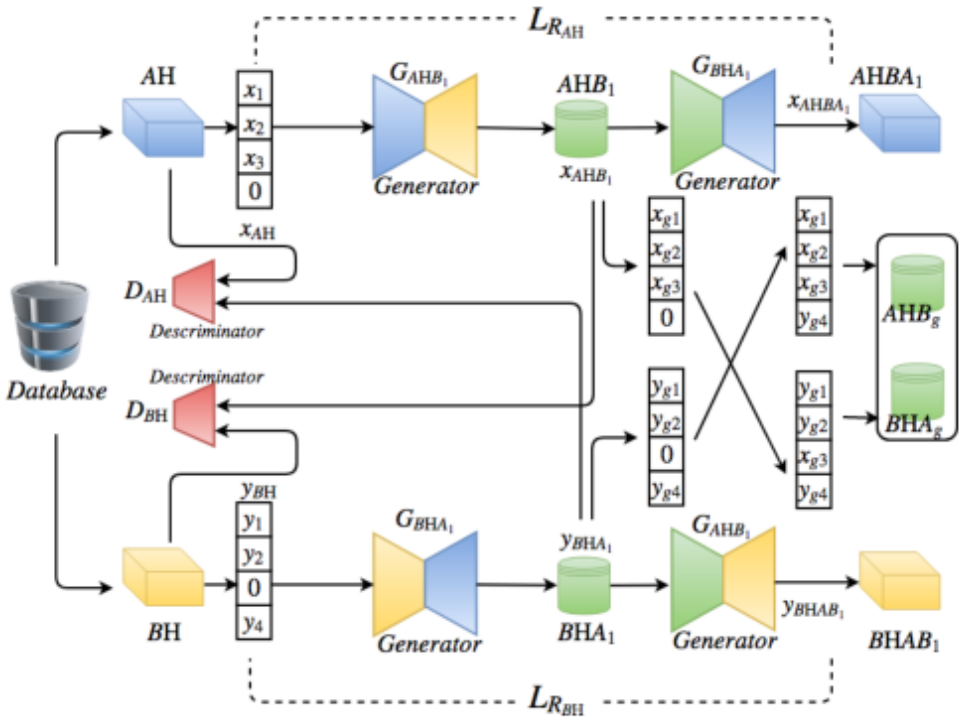
CrystalGAN: Learning to Discover Crystallographic Structures with Generative Adversarial Networks

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$AHBA_1$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：

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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：

$$L_{GAN_{AHB_1}} = L_{GAN_{BH}} + L_{R_{AH}} \qquad L_{GAN_{BHA_1}} = L_{GAN_{AH}} + L_{R_{BH}}$$

则生成器的总损失可定义为：

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

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。

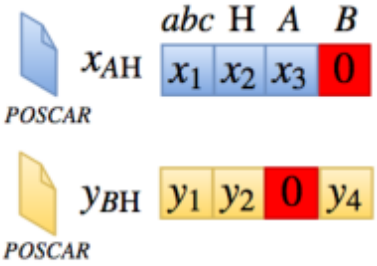
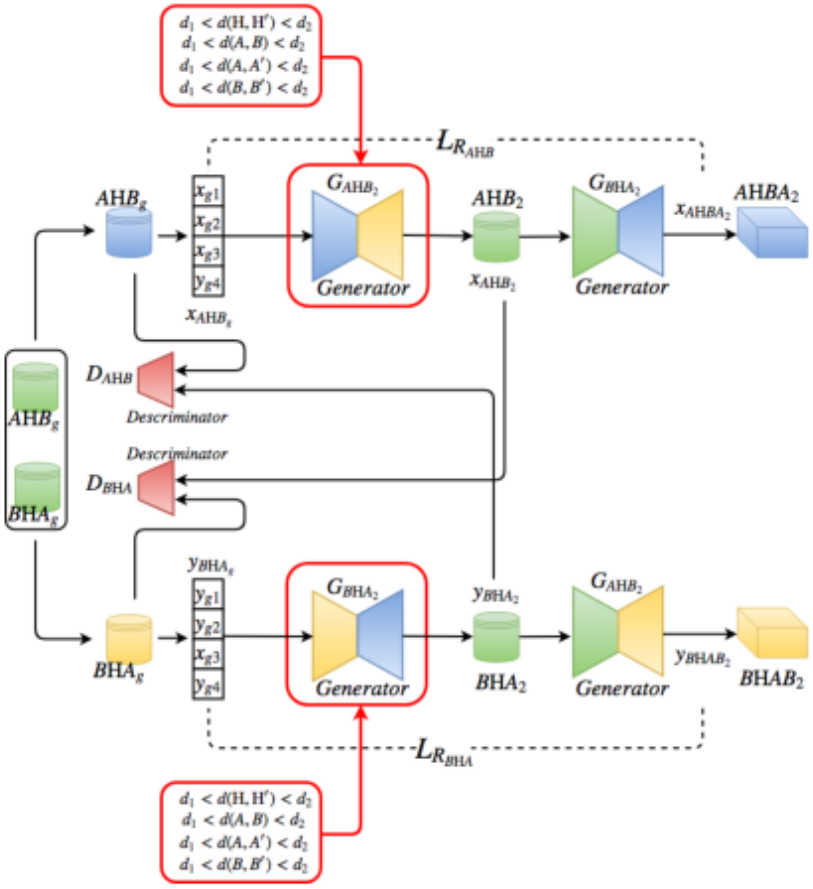


Figure 2: Encoding of x_{AH} and y_{BH} with placeholders.

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：

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

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

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：

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

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

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

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

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

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

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

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

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：

$$L_{GAN_{AHB_2}} = L_{GAN_{BHA_g}} + L_{R_{AHB}} \qquad L_{GAN_{BHA_2}} = L_{GAN_{AHB_g}} + L_{R_{BHA}}$$

则生成器的总损失可定义为：

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

判别器AHB和BHA的损失函数可定义如下：

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

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

则判别器的总损失可定义为：

$$L_{D_2} = L_{D_{AHB}} + L_{D_{BHA}}$$

结构和结果

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

特征构建和特征维度

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，选择个晶体结构（稳定和亚稳态）

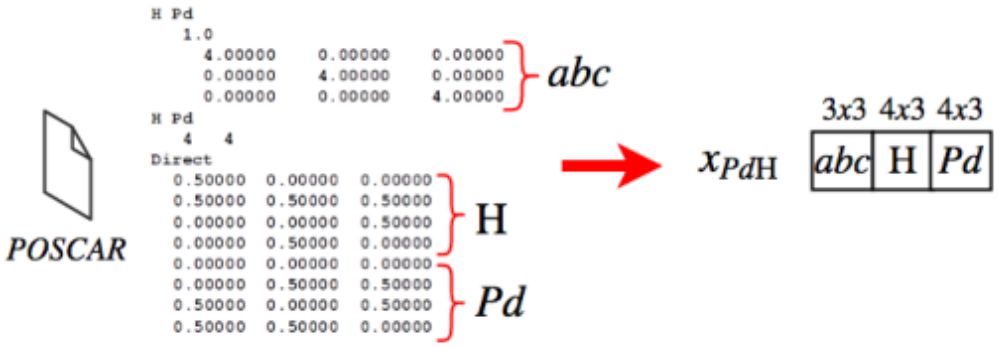


Figure 3: An example of a POSCAR file describing the composition of Palladium and Hydrogen, and the data representation in the CrystalGAN.

由此可得到如下的特征维度（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），4是因为扩充了一行

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

实现细节

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，$d_1 = 1.8A^\circ, d_2 = 3A^\circ$，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。

结果

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
   0.31783467   0.38348212   6.43965053
  -0.14229795   4.61861133  -1.02656614
   5.30012273   2.00472569  -0.25500044
H Pd Ni
2  2  2
Cartesian
   1.58695459   0.61697345   0.02452001
   4.09158802   1.54180848  -0.16272403
   2.38770532   0.72835826   0.07921831
   0.40653645   0.16036039   4.67786407
   0.04466104   2.44065856  -0.45760279
  -0.29513394   1.82811617   3.96068835
```

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