

SZAKDOLGOZAT

# Mesterséges intelligencia algoritmusok alkalmazása az anyagtudományban

DAJKA BENCE

*Fizika BSc., számítógépes fizika szakirány*



Témavezető:

DR. RIBÁRIK GÁBOR  
*ELTE, Anyagfizikai Tanszék*

## Kivonat

Az anyagtudományon és azon belül a szilárdtest fizikában az egyik legfontosabb feladat az anyagok kristályszerkezetének vizsgálata. Különböző mérésekkel meg lehet határozni az adott anyag kristályszerkezetét és a benne lévő atomok fajtáját. Az egyik legalapvetőbb ilyen mérés a röntgendiffrakció, ahol a mintára irányított röntgensugárzás elhajlik és az így keletkező intenzitásmaximumok térbeli helyzetéből és relatív erősségéből meghatározhatjuk a kristályszerkezetet. Lehetőség van a mintában lévő fázis(ok) meghatározására eddig ismert diffrakciogramok segítségével. Ezeket a feladatokat manuálisan szokták megoldani, azonban a mesterséges intelligencia gyors fejlődésének következtében, lehetőségünk van gépi tanulási modelleket használni a feladatra. Ennek a dolgozatnak a célja ilyen algoritmusok írása és alkalmazása fázisidentifikációs feladatokra.

# Tartalomjegyzék

<b>1. Irodalmi áttekintés</b>	<b>1</b>
1.1. Kristályszerkezetű anyagok geometriája . . . . .	1
1.2. Reciprokrács . . . . .	2
1.3. Rác síkok jellemzése Miller-indexekkel . . . . .	3
1.4. A röntgendiffrakció elemei . . . . .	4
1.5. A Bragg-egyenlet . . . . .	6
<b>2. Módszerek</b>	<b>6</b>
2.1. Pordiffrakció . . . . .	6
2.2. Difraktogramok kiértékelése . . . . .	7
2.3. Adatok előkészítése . . . . .	8
2.4. Alkalmazott gépi tanulási módszerek . . . . .	9
<b>3. Eredmények</b>	<b>10</b>
3.1. Szimmetria vizsgálata köbös anyagokban . . . . .	10
3.2. Szimmetria vizsgálata köbös anyagokban több fázisra . . . . .	13
3.3. Fázisfelismerés egy fázis esetén . . . . .	15
3.4. Fázisfelismerés több fázis esetén . . . . .	16
<b>4. Összegzés</b>	<b>19</b>
<b>Hivatkozások</b>	<b>21</b>

## Ábrák jegyzéke

2.1. Aluminium diffraktogramja . . . . .	6
2.2. Első modell . . . . .	10
3.1. Első modell . . . . .	12
3.2. Második modell . . . . .	15
3.3. Harmadik modell . . . . .	16
3.4. Negyedik modell . . . . .	18

## Táblázatok jegyzéke

3.1. Algoritmusok teljesítménye egy tércsoport esetén . . . . .	11
3.2. Modell a tércsoportok meghatározására . . . . .	11
3.3. Algoritmusok teljesítménye egy tércsoport esetén a valódi mérések eredményein. . . . .	13
3.4. Modell a tércsoportok meghatározására több fázis esetén . . . . .	14
3.5. Algoritmusok teljesítménye kettő tércsoport felismerésénél . . . . .	14
3.6. Algoritmusok teljesítménye egy tércsoport esetén a valódi mérések eredményein. . . . .	14
3.7. Modell a fázisok meghatározására . . . . .	17
3.8. Modell a fázisok meghatározására . . . . .	17

# 1. Irodalmi áttekintés

Ebben a fejezetben röviden összefoglalom a szakdolgozatban vizsgált jelenségek elméleti hátterét. Ez két részből áll: az első a kristályos anyagok szerkezetének és annak jellemzőinek a megismerése, a második pedig a röntgendiffrakciós mérések kinematikai elmélete és annak megvalósítása.

Ez a fejezet Dr. Fogarassy Bálint *Bevezetés a szilárdtestfizikába* [1], illetve Gubicza Jenő és Zsoldos Lehel *Röntgendiffrakció* egyetemi jegyzetén alapszik.

## 1.1. Kristályszerkezetű anyagok geometriája

A szilárdtest fizikában a kristályos szerkezetű anyagokkal foglalkozunk. Ezek olyan részecske kompozíciók, amelyek hosszútávú peridictást mutatnak szerkezetükben. Ezen kívül jellemző rájuk a *transzlációs szimmetria*, ami azt jelenti, hogy található az anyagban egy, úgynevezett *elemi cella*, amelynek eltoásával a minta hézagmentesen kitölthető, tehát, ha létezik  $\mathbf{a}_1$ ,  $\mathbf{a}_2$ ,  $\mathbf{a}_3$  nem egy síkba es vektor, úgy, hogy az

$$\mathbf{r}' = \mathbf{r} + n_1\mathbf{a}_1 + n_2\mathbf{a}_2 + n_3\mathbf{a}_3 = \mathbf{r} + \mathbf{R}, \quad (1.1)$$

egyenlőséggel összekapcsolt  $\mathbf{r}$  és  $\mathbf{r}'$  környezetek azonosak. Az  $\mathbf{a}_1$ ,  $\mathbf{a}_2$ ,  $\mathbf{a}_3$  vektorokat hívjuk az *elemi rácsvektoroknak* és az ezekkel

$$\mathbf{R} = \sum_{i=1}^3 n_i\mathbf{a}_i; \quad R_i = 0, \pm 1, \pm 2, \dots \quad (1.2)$$

képezzük a *rácsvektorokat*. Az elemi rácsvektork által kifeszített paralelepipedon az anyag egy *elemi cellája* melynek a térfogata

$$V_o = \mathbf{a}_1\mathbf{a}_2\mathbf{a}_3. \quad (1.3)$$

Az elemi cellákban cellákon belül meg van határozva az atomok (ionok, molekulák) helye, típusa és száma, ami egytől akár több ezerig is terjedhet, attól függően mennyire bonyolult az adott kristály. Az elemi cellákat és a bennük lévő atomokat együtt *bázisnak* nevezzük. Ezek a bázisok ismétlődnek periodikusan a kristályokban, a rácsvektorok végpontjai pedig meghatároznak egy *rácsszerkezetet*. Ha ismerjük a kristály a rácsszerkezetét és a bázisait, megadható az úgynevezett *kristályszerkezet*.

A kristályok szerkezetében szereplő térbeli ismétlődő mintákat, a kristályszerkezet szimmetriáinak nevezzük. Jellemzésükre szimmetriai elemeket használhatunk (pl.: rotáció, tükrözés). 2-D-ban tíz darab ilyen elem van, amivel kaphatunk úgy nevezett *síkbéli pontcsoportokat*, ezeknek a kombinációjával megkaphatjuk az öt lehetséges *síkrácsot* és csúsztatási szimmetriák figyelembe vételével, összesen 17 *sík csoportot* kapunk. Ha kibővítjük a szimmetriák tárgyalását 3-D-ba a 17 síkcsoportból 230 *tércsoport*, a 10 síkbéli pontcsoportból 32 darab lesz és az 5 darab síkrácsszerkezetből pedig 14 különböző rácsszerkezet, amiket *Bravais - rácsoknak* nevezzük. A pontcsoportokkal a rácsszerkezetek, míg a tércsoportokkal az elemi cellákat jellemezhetjük. Ezeknek az szimmetriai csoportok megkülönböztetésére betű, illetve szám jelöléseket használunk pl.: m a szimmetriai elemeknél a mirror szóból ered és tükrözést jelöl, a rács típusoknál a p pedig a primitív rácsokra utal. A 14 különböző Bravais-rács 7 darab *kristályrendszerbe* sorolható. Ezeket köbös, tetragonális, ortorombos, romboéderes, hexagonális, monoklin és triklin Bravais-rácsoknak hívjuk. Az adott kristály elemi celláinak oldalhosszúsága és az oldalak által bezárt szöge határozza meg, hogy melyik kristályrendszerbe tartozik.

## 1.2. Reciprokrács

A rácsszerkezetek jellemzésére meghatározhatunk egy úgynevezett *reciprokrácsot*. Vezessük be  $\mathbf{a}_1$ ,  $\mathbf{a}_2$ ,  $\mathbf{a}_3$  elemi rácsvektorok helyett kölcsönösen egyértelmű hozzárendeléssel a reciprok tér  $\mathbf{b}_1$ ,  $\mathbf{b}_2$ ,  $\mathbf{b}_3$  elemi reciprokrácsvektorokat, hogy

$$a_i b_j = 2\pi \delta_{ij}; \quad i, j = 1, 2, 3; \quad (1.4)$$

teljesül és  $\delta_{ij}$  a Kronecker-delta. Az ebből kapott elemi reciprokrácsvektorok:

$$\begin{aligned} \mathbf{b}_1 &= 2\pi \frac{\mathbf{a}_2 \times \mathbf{a}_3}{V_0}, \\ \mathbf{b}_2 &= 2\pi \frac{\mathbf{a}_3 \times \mathbf{a}_1}{V_0}, \\ \mathbf{b}_3 &= 2\pi \frac{\mathbf{a}_1 \times \mathbf{a}_2}{V_0}, \end{aligned} \quad (1.5)$$

ahol  $V_0$  az elemi cella 1.3 térfogata. Az elemi reciprokrácsvektorok által kifeszített

cella  $V_B$  térfogata pedig:

$$V_B = \mathbf{b}_1 \mathbf{b}_2 \mathbf{b}_3 = \frac{8\pi^3}{V_0}. \quad (1.6)$$

A rácsvektorokhoz hasonlóan itt is definiálhatjuk a reciprokrácsvektorokat:

$$\mathbf{K} = \sum_{j=1}^3 K_j \mathbf{b}_j; \quad K_j = 0, \pm 1, \pm 2, \dots \quad (1.7)$$

Tehát az elemi reciprokrácsvektorok egy elemi cellát feszítenek ki a reciprokrács-térben és a hozzájuk tartozó elemi rácsvektorokkal vett skaláris szorzatuk  $2\pi$ -nek egész számú többszöröse.

### 1.3. Rácssíkok jellemzése Miller-indexekkel

A rácssíkok jellemzésére használjuk a rácspontokon átfektetett síkokat, amiket *rácssíkok*-nak nevezünk. Azok a rácssíkok, amik egymástól egyenlő távolságra vannak és párhuzamosak, egy rács-síksereget alkotnak. Két rács-síksereg akkor különbözik egymástól, ha más a szomszédos síkok távolsága, vagy az állásuk különbözik. Jellemzésükre az ún. *Miller*-indexeket használjuk. Ezeket egy adott rács-síkseregre úgy tudjuk kiszámolni, hogy veszünk három elemi rácsvektort ( $\mathbf{a}_i$ ,  $i = 1, 2, 3$ ), amik egy olyan koordináta rendszert alkotnak, ami metszi a párhuzamos rácssíkokat. Vegyük a rácssíkoknak a tengelyekkel vett metszéspontjainak távolságát az origótól ( $|a_i|$ ), ha ezeknek a reciprokát összeszorozzuk a távolságok legkisebb közös többszörösével, megkapjuk a síksereget jellemző Miller-indexeket, amiket egy  $(hkl)$  számhármassal jellemzünk. A Miller indexekkel beláthatjuk, hogy a reciprokrácsvektorok és a rácssíkseregek egyértelműen megfeleltethetők egymásnak. Vegyük  $(a_1/h - a_2/k)$  vektort, ami a  $(hkl)$  Miller-indexű síkban fekszik. Nézzük meg ennek a vektornak a szorzatát  $G_{hkl}$  reciprokrácsvektorral. Az 1.4 egyenlőség miatt ez zérus lesz:

$$\mathbf{K} \left( \frac{\mathbf{a}_1}{h} - \frac{\mathbf{a}_2}{k} \right) \cdot \left( \frac{\mathbf{a}_1}{h} - \frac{\mathbf{a}_2}{k} \right) = \sum_{j=1}^3 K_j \mathbf{b}_j \left( \frac{\mathbf{a}_1}{h} - \frac{\mathbf{a}_2}{k} \right) = 0 \quad (1.8)$$

és ez érvényes  $(a_2/k - a_3/l)$ , illetve  $(a_3/l - a_1/h)$  vektorokra is. Két szomszédos  $(hkl)$  rácssík távolságát ( $d_{hkl}$ ) megkaphatjuk ha megadjuk az  $a_1/h$ ,  $a_2/k$ ,  $a_3/l$  tengelymetszetű sík távolságát az origótól. Ezt megkaphatjuk, ha kiszámítjuk az  $a_1/l$

vektor a  $(hkl)$  sík  $(K_{hkl})$  irányába normálisának vetületét:

$$d_{hkl} = \frac{a_1}{h} \frac{K_{hkl}}{|K_{hkl}|} = \frac{a_1}{h} \frac{hb_1 + kb_2 + lb_3}{|K_{hkl}|} = \frac{2\pi}{K_{hkl}}. \quad (1.9)$$

Tehát a reciprokrácsvektorok, síkseregeket határoznak meg a rács térben.

#### 1.4. A röntgendiffrakció elemei

A röntgensugárzás nagyságrendje ( $10^{-10}$  m), a kristályos anyagok rácsállandójának nagyságrendjébe esik, ezért kiválóan alkalmas az anyagok szerkezetének vizsgálatára. Hullámtermészetéből adódóan, a szilárd testre sugározva elhajlik, és a kapott intenzitásmaximumok térbeli helyzetéből és relatív erősségéből meghatározhatjuk az ismeretlen anyagok kristályszerkezetét. A röntgensugárzás szóródásának leírásához, feltételezzük, hogy:

- A röntgenfoton hullámhossza állandó, tehát a szórás rugalmas.
- A diffrakció során a bekövetkező fázisugrás nem változik a különböző szóráscentrumokra tehát a szórás koherens.
- Nem vesszük figyelembe az újraszóródást.

Mivel koherens szórásról beszélünk, ezért az interferenciaképet a szórócentrumok térbeli elhelyezkedése határozza meg. Vegyünk két szóráscentrumot, úgy, hogy az egyiket egy koordinátarendszer kezdőpontjának választjuk ( $O$ ) és a másik centrum ( $P$ )  $\mathbf{r}$  távolságra van tőle. A két pontra essen egy  $\lambda$  hullámhosszú,  $\mathbf{k}_0$  vektorral jellemezhető röntgensugár ( $|\mathbf{k}_0| = 2\pi/\lambda$ ). A szórt sugárzás hullámvektora  $\mathbf{k}$ , és a rugalmasság miatt, a hullámhossza szintén  $\lambda$  ( $|\mathbf{k}| = 2\pi/\lambda$ ). Felírható a következő összefüggés:

$$(\mathbf{k}_0 - \mathbf{k})\mathbf{r} = -\mathbf{G}\mathbf{r}. \quad (1.10)$$

A sugárzás amplitúdója  $\mathbf{k}$  irányba:

$$A(\mathbf{K}) = A_0 e^{-i\mathbf{K}\mathbf{r}}, \quad (1.11)$$



ahol  $A_0$  függ a szórás erősségétől és a sugárnyaláb intenzitásától. Ha több szórócentrumot nézünk, az eredő amplitúdó az amplitúdók összegeként tekinthető. Ezt felírhatjuk

$$A(\mathbf{K}) = \sum_n \left( \sum_p f_p e^{-i\mathbf{K}\mathbf{r}_p} \right) e^{-i\mathbf{K}\mathbf{R}_n} \quad (1.12)$$

alakban, ahol  $\mathbf{R}_n$  az  $O$  szóráspontról kiinduló  $n$ . cellához mutató vektor és  $\mathbf{r}_p$  az elemi cella  $p$ . atomjának a helyvektora. A zárójelben szereplő kifejezést *szerkezeti tényező*nek hívjuk és egy cella szórását írja le. Felírható:

$$F(\mathbf{K}) = \sum_p f_p e^{-i\mathbf{K}\mathbf{r}_p}, \quad (1.13)$$

itt az elemi cella  $p$ . atomjának a szórását az  $f_p$  tényező adja meg, ami függ az atom fajtájától és a bejövő és a szórt sugár irányától. Ezt behelyettesítve az 1.12 képletbe:

$$A(\mathbf{K}) = F(\mathbf{K}) \sum_n e^{-i\mathbf{K}\mathbf{R}_n}. \quad (1.14)$$

A sugárzás intenzitását innen megkaphatjuk az amplitúdó abszolútértékének négyzetéből:

$$I(\mathbf{G}) = |A(\mathbf{G})|^2 = |F(\mathbf{G})|^2 \cdot |e^{-i\mathbf{G}\mathbf{R}_n}|^2. \quad (1.15)$$

Ezután meg tudjuk vizsgálni, milyen feltételnek kell teljesülnie ahhoz hogy intenzitásmaximumokat kapjunk. Ahhoz, hogy az 1.15 egyenlőség jobb oldali második tagja maximumot adjon, teljesülnie kell, hogy  $\mathbf{K}$  vektor és bármely  $\mathbf{R}_n$  rácsvektor esetén, a skaláris szorzatuk  $2\pi$  egész számú többszöröse. Ahogy az 1.2-es fejezetben tárgyaltuk, ezek a vektorok a reciprokrácsvektorok. Tehát elmondhatjuk, hogy intenzitásmaximumokat kapunk azokban a  $\mathbf{k}$  irányokban, ahol

$$\mathbf{k} - \mathbf{k}_0 = \mathbf{K}_{hkl} \quad (1.16)$$

és  $\mathbf{G}_{hkl} = h\mathbf{b}_1 + k\mathbf{b}_2 + l\mathbf{b}_3$ , ami  $(hkl)$  Miller-indexekkel jellemzett síksereg szórásvektora. A röntgendiffrakciós mérés során a detektor a minta körül forogva vizsgálja a sugarak szóródását és amikkel megadhatóak a rácsszerkezetet jellemző  $\mathbf{G}_{hkl}$  recip-

rokrácsvektorok.

## 1.5. A Bragg-egyenlet

Az 1.16 egyenlőséget fel lehet írni másik alakban. Közös kezdőpontból számított  $\mathbf{k}$  és  $\mathbf{k}_0$  hullámszámvektorok különbsége  $\mathbf{K}_{hkl}$  reciprokrácsvektor. A két hullámszámvektor hossza  $2\pi/\lambda$ , míg a reciprokrácsvektor abszolút értéke  $2\pi/d_{hkl}$ . A három vektor által alkotott derékszögű háromszögben igaz, hogy:

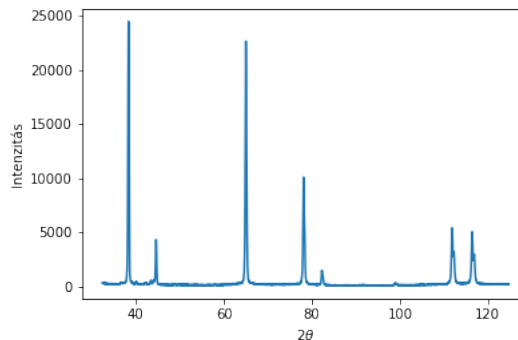
$$2d_{hkl}\sin\Theta = \lambda, \quad (1.17)$$

ahol  $\Theta$  a  $\mathbf{k}$  és  $\mathbf{k}_0$  által bezárt szög fele. Innen látható, hogy  $\lambda$  hullámhosszú sugárzásnál és  $d_{hkl}$  rácssíktávolság esetén a besugárzási irányhoz képest milyen  $2\Theta$  irányokban fogunk maximális intenzitásokat mérni.

## 2. Módszerek

### 2.1. Pordiffrakció

A dolgozatban felhasznált diffrakciós minták mind pordiffrakciós mérésekből származnak. A pordiffrakció lényege, hogy a besugárzott térfogatban sok, véletlenszerűen orientált kristályszemcse helyezkedik el. Ennek következtében a kapott intenzitáseloszlások nem függenek a kristály relatív helyzetétől. A mérések során a szórt sugárzás intenzitáseloszlását vizsgáljuk  $2\theta$  függvényében, egy ilyen mérés eredménye látható a 2.1 ábrán.



2.1. ábra. Alumínium minta diffraktogramja

A diffraktogramokon a csúcsok egy-egy  $(hkl)$  síkseregnek felelnek meg. A csúcsok nagysága függ többek között a beeső röntgensugár intenzitásától a szerkezeti tényezőtől és az ún. *multiplicitástól*, ami abból adódik, hogy különböző Miller-indexű síkseregekhez ugyanaz a  $d_{hkl}$  tartozik és ezért a szórt sugár ezekről ugyanannál a  $\theta$  szögnél jelenik meg a diffrakciós csúcs ezeknél a szögeknél, tehát a diffraktogrammon a csúcsok nagyobbak lesznek. Ahhoz, hogy minden síkírácssereghez csak egy csúcs tartozzon, fontos hogy a beeső sugárnyaláb monokromatikus legyen, ami azt jelenti, hogy csak egy féle hullámhosszú sugárnyaláb szóródik és jut a detektorba.

## 2.2. Diffraktogramok kiértékelése

A diffraktogramok kiértékeléséhez meg kell határozni a csúcsokhoz tartozó Bragg-szögeket. Vegyük a mért görbén a legnagyobb intenzitású pontjaihoz tartozó szögeket és a hullámhossz ismeretében kiszámíthatjuk a csúcsokhoz tartozó  $d_{hkl}$  értékét. Monokromatikus sugárzás esetén természetesen elég ilyenkor egy sugár hullámhosszával számolni. A kristályos szerkezetű anyagok pordiffraktogramjainál a csúcsok relatív intenzitását és helyét az anyag kristályszerkezet és az elemi cellában lévő anyagok típusa határozza meg, ezért a röntgen pordiffraktogramok segítségével úgy azonosíthatjuk az anyagokat mint az ujjlenyomatokkal az embereket. Ha ismeretlen anyagnál kell meghatározni egy, vagy akár több fázist célszerű kiválasztani az első pár csúcs helyzetét és összehasonlítani egy már beazonosított anyag diffraktogramjával. Természetesen ez kettő vagy több fázis, vagyis különböző anyagnál már kevésbé egyszerű, mivel a intenzitásmaximumok összeadódnak.

Ha ismerjük egy köbös kristály reflexióinak  $(hkl)$  indexeit, megadhatjuk a kristály rácsállandóját:

$$\frac{1}{d_{hkl}^2} = \frac{h^2 + k^2 + l^2}{a^2}, \quad (2.1)$$

ahol  $a$  jelöli a rácsállandót. Mivel ez a számítás nagyban függ a leolvasott Bragg-szögektől, aminek meghatározásánál szisztematikus hibák lépnek fel, ezek az állandók mérésenként változnak. A rácsállandó meghatározása hasznos ötvözetek vizsgálatakor, mivel itt az ötvözőatomok beépülésekor a rácsparaméter változik. Ezt a változást már századszázalékos pontossággal megadhatjuk és ennek segítségével meghatározhatjuk az ötvöző atomok koncentrációját, ha ismerjük a rácsparaméter ötvözőatom koncentrációjától való függését. Ez a módszer csak kétalkotós ötvöze-

teknél alkalmazható, mivel több alkotóelem esetén nem ismerjük biztosan az ötvözőatomok hatását.

### 2.3. Adatok előkészítése

A gépi tanulási modelljeinkhez szükségünk lesz, minél több, megfelelően előkészített pordiffraktogramm mérési eredményre. Akadnak ehhez szabadon elérhető adatbázisok [2], viszont ezeken az oldalakon nincsen elég minta ahhoz, hogy hatásos modell modelt lehessen vele csinálni. Pordiffraktogramok szimulálásához elegendő tudni az adott minta anyag szerkezeti tulajdonságait, így ezek segítségével elég robosztussá lehet tenni a modellt ahhoz, hogy ne csak a neki betanított adaton teljesítsen jól mivel az a végső cél, hogy egy számára ismeretlen mintát fel tudjon ismerni. Végül összegyűjtöttem annyi valós mért pordiffraktogramot amennyit csak találtam és ezek mellé gyűjtöttem struktúra fájlokat. A struktúra fájlok szimulálásához a VESTA [3] nevű ingyenes, szerkezetvizsgálatra használt szoftvert használtam.

Miután elvégeztem az adatgyűjtés, elő kellett készítenem az adatokat a modell betanítására. Az adatok feldolgozásához Python programnyelvet használtam Jupyter Notebook környezetben. A fájlokból először ki kellett nyernem a nekem szükséges adatokat, a csúcsokhoz tartozó  $2\theta$  szögeket, a hozzájuk tartozó  $d_{hkl}$  rácssíktávolságokat, a szimmetria vizsgálatnál szükség volt még tércsoportokra, illetve kiszedtem még az anyagok neveit. Ezután az adatokat táblázatokba raktam és elmentettem későbbi felhasználásra. Voltak olyan minták amiket nem tudtam használni mivel hiányzott az első néhány reflexió.

Ahhoz, hogy a kellő pontosságot elérjük a gépi tanulási modellekkel sok adatra van szükség. Amint már említettem ez jelen esetben nem állt elő, így a meglévő adatot kellett kibővíteni. Mivel az általunk használt  $d_{hkl}$  rácssíktávolság értéke nagyon érzékeny a hozzá tartozó  $2\theta$  értékre ezért ugyanannál a  $(hkl)$  Miller-indexekkel jelölt rácssíkoknál két mérés esetén kis eltérések lehetnek. Ezért kibővítést a csúcsokhoz tartozó  $d_{hkl}$  értékek kis mértékben ( $0,01 \text{ Angstrom}$ ) való eltolásával végeztem. Az eltolás mértéke az anyag rácsparaméterének változtatásával végeztem. Az 2.1 egyenlet alapján az eltolás értéke:

$$\Delta d = d_{hkl} \frac{\Delta a}{a}. \quad (2.2)$$

Ezzel az adatok készen vannak a betanítása, majd kiértékelési fázisra.

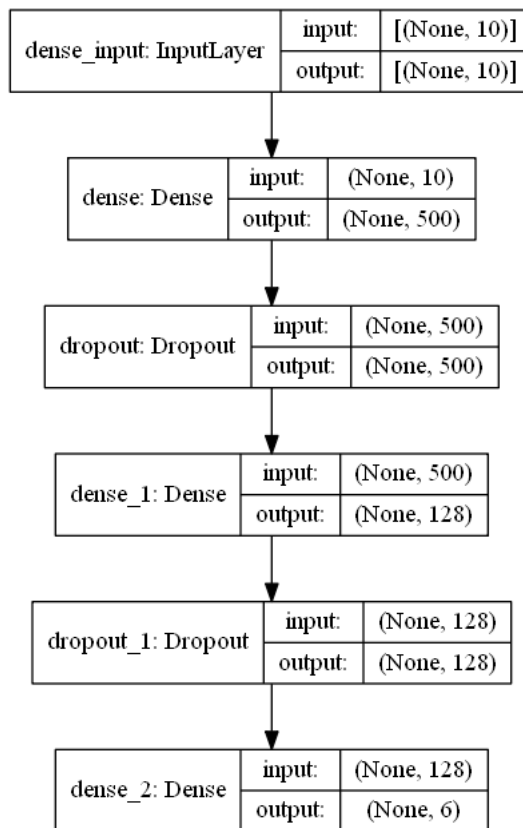
## 2.4. Alkalmazott gépi tanulási módszerek

A gépi tanulás, vagy angolul *machine learning*, azon az elven alapszik, hogy csinálunk egy algoritmust, amit ha egy adathalmazon betanítunk, akkor az algoritmus meglátja az adatok között azt a kapcsolatot és ehhez úgy tud alkalmazkodni, hogy a jövőben betáplált, számára ismeretlen, adatokat már úgy tudja kezelni mintha ismerné őket. Jelen esetben klasszifikációs problémák megoldására alkalmazom az algoritmusokat, tehát megadom nekik az adatokat és a csoportokat és megkérem, hogy rendezze az adatokat ezekbe a csoportokba.

Kiindulásnak olyan gépi tanulási eszközöket alkalmaztam, amik néhány problémára kiválóan alkalmazhatóak, viszont teljesítményük nagyban függ a tanításkor használt adattól, tehát a „tanítónak” több feladata van. A választott módszerek közül az első a logisztikus regresszió, ami a legegyszerűbb mind közül, a lényege, hogy a betanított adatok alapján próbálja megbecsülni egy függő változó bekövetkezésének valószínűségét. A második a *K-Nearest Neighbors* algoritmus, ami abból indul ki, hogy a hasonló dolgok közel állnak egymáshoz és ez alapján próbál osztályokat csinálni. Az utolsó kettő pedig a *Decision Tree* és a *Random Forest* algoritmusok amelyek pedig eldöntendő kérdéseket tesznek fel és az alapján hoznak döntéseket.

Ezekkel a módszerekkel szemben a *neurális hálózatok* sokkal megengedőbbek. Az előző módszerek olyan számításokat alkalmaztak, amelyeknél a bemenő adatnak formája fontos volt mivel ezek nem tudják elég pontosan reprezentálni az adatsort. Ezzel szemben a neurális hálózatok akár több száz rétegből állhatnak így az adat minden aspektusát képesek figyelembe venni a kiszabott feladotknál. Ilyen mély tanulási, angolul *deep learning* algoritmusokat már többször is használták sikeresen ezen témakörben [4],[5],[6]. Jelen esetben ezeket az algoritmusokat klasszifikációs feladatokra fogjuk alkalmazni. A neurális hálók tenzor bemeneteket használnak és ezeket a tenzorokat részekre bontják és ezek a részek különböző súlyokkal megtoldva alkotják a kapott tenzor reprezentációját. Ezek a részek a háló rétegei (*layer*). Mivel a neurális hálók nagyon részletes reprezentációra képesek, szinte mindig túlillesztenek, ami azt jelenti, hogy olyan jól megtanulják a kapott adatsor legkisebb paramétereit is, hogy olyan súlyokat próbálnak ismeretlen adatokon alkalmazni amik csak a betanító adatokban volt hatásos. Ennek elkerülése érdekében a modell teljesít-

ménye mellett az új adatokon mért teljesítményt is kell monitorozni. A továbbiakban ismertetem kifejlesztett modellek eredményeit.



2.2. ábra. Neurális háló teljesítménye a tércsoportok meghatározásában egy anyag esetén

## 3. Eredmények

### 3.1. Szimmetria vizsgálata köbös anyagokban

Ahogy azt a 1.1 fejezetben láttuk, a tércsoportok a kristályrendszerek szimmetriájának legkisebb eleme. Hagyományos módszerrel pordiffraktogrammból hosszú idő lenne megmondani az anyagok tércsoportját, viszont egy relatíve kicsi neurális hálózattal ezt automatizálni lehet.

A VESTA szoftver segítségével szimuláltam 77 köbös anyag pordiffraktogramját. A mért köbös mintákból 40 darabot használtam. 77 mért minta 6 különböző tércsoportba sorolható: Fd3m, Fm3m, Fd3, Pa3, Pn3 és Im3. Ez a hat fajta tércsoport

lefedni mind a három féle köbös rácsszerkezetet: az egyszerűt(Pa3, Pn3), lapcentrált(Fd3m, Fd3), gyémánt(Fm3m) és tércentrált(Im3). Ennek következtében az a modell amit jól be lehet tanítani ezeken az adatokon, nagy pontossággal fogja tudni sosem látott köbös kristályszerkezetű anyagok tércsoportját megmondani.

Az adathalmaz 2.3-ben leírt módon bővítettem, így összesen 77,077 darab betanítási minta állt rendelkezésemre. Mindegyik mintának az első 10 darab csúcsához tartozó  $d_{hkl}$  értékét használtam jellemzőként és címkének a tércsoportok számosított majd tenzorral alakított kódját. A szimulált adatsort felosztottam két részre: egy tréning és egy teszt sorra. A tréning sorral betanítottam az egyszerű modelleket és a teszt adatsorral leteszteltem, az eredmények a 3.1-ben szerepelnek.

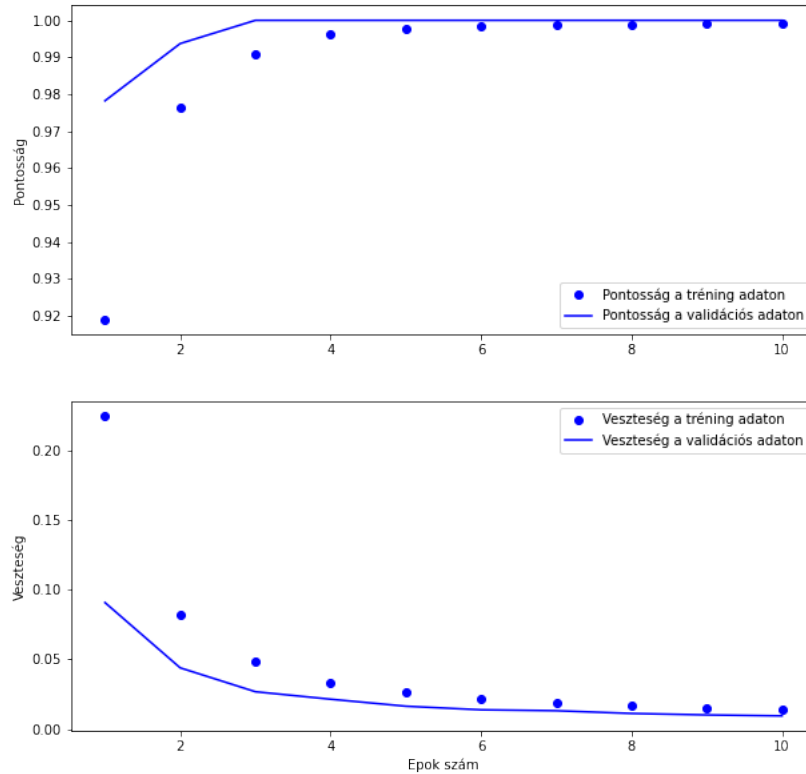
	Pontosság a tréning adatokon	Pontosság a teszt adatokon
Random Forest Classifier	1.0	1.0
Decision Tree Classifier	1.0	1.0
Logisztikus Regresszió	1.0	1.0
K Neighbors Classifier	1.0	1.0
Neurális hálózat	1.0	1.0

3.1. táblázat. Algoritmusok teljesítménye egy tércsoport esetén

A neurális hálózat modell betanításához a tréning adatot megint csak két részre szedtem: egy olyanra amivel betanítom a modellt és egy un. validációs adatsorra, ami arra kell, hogy monitorozható legyen a modell esetleges túlillesztése. A neurális háló három darab teljesen összekötött és kettő darab dropout rétegből áll, ennek a vázlata látható a 3.2-es táblázatban. A paraméterek száma nagyjából annyi mint az adatok száma, ez azért van, mert így modell nagyjából minden elemet tud reprezentálni az adatsorban, viszont nem fog túlilleszteni amit tovább biztosít a 0.5-ös dropout ráta és az L2-es típusú kernel regularizátor.

Réteg (típus)	Kimenet formája	Paraméterek száma
Dense	(None, 500)	5500
Dropout	(None, 500)	0
Dense	(None, 128)	64128
Dropout	(None, 128)	0
Dense	(None, 6)	774
Paraméterek száma összesen: 70,402		

3.2. táblázat. Modell a tércsoportok meghatározására



3.1. ábra. Tércsoport klasszifikációra használt neurális háló betanulási folyamata

Mivel egyszerre csak egy fajta tércsoportja lehet egy mintának ezért veszteséget, tehát hogy mennyire vagyunk messze a várt értéktől, *binary crossentropy* függvénnyel számoljuk, ami megmondja nekünk, hogy melyik tércsoport a legvalószínűbb az adott mintánál. Az optimalizáló függvénynek az *adam*-ot választottam. Az 3.1-es ábrán látható a modell betanulási folyamata. A felső ábra mutatja hogy a tréning és a validációs adatokat a milyen pontosan találja el a modell, az alsó pedig azt hogy mennyire vagyunk közel a teljes pontossághoz, epokok pedig azok a fázisok, amikor a modell végigszámolja az adatokon az optimalizáló és a veszteség számító függvényeket. Látható hogy már az első alkalommal nagy pontosságot lehet elérni és utána már közel 0 a veszteség és pontosan 1 a pontosság.

Miután betanítottuk mind a neurális hálónk mind a klasszikus algoritmusokat, a mért mintákon is teszteljük őket. A modellek teljesítménye a 3.3-as táblázatban



szerepel. Látható, hogy bár mindegyik tökéletesen teljesített a tréning adatsoron, csak a neurális háló hibátlan a mért mintákon. Ez azért van mert a neurális hálók jobb reprezentációra képesek és emiatt pontosabbak.

	Pontosság a mért adatokon
Random Forest Classifier	0.650
Decision Tree Classifier	0.850
Logisztikus Regresszió	0.950
K Neighbors Classifier	0.975
Neurális hálózat	1.0

3.3. táblázat. Algoritmusok teljesítménye egy tércsoport esetén a valódi mérések eredményein.

## 3.2. Szimmetria vizsgálata köbös anyagokban több fázisra

A diffraktogramokról abban az esetben is le tudjuk olvasni az anyagok fázisait, ha nem csak egy található a mintában. Ilyenkor az intenzitások összeadódnak és ennek a képét látjuk a kapott görbéken. Ezt a jelenséget egyszerűen tudjuk úgy szimulálni, ha az egy fázisú mintákat amiket az előző feladatban használtunk összeadjuk egymással.

Miután összeadtam a szimulált köbös minták egy részét 210000 szimulált többfázisú mintám volt amik 21 osztályba tartoztak, ezek a csoportok a tércsoportok párosával. A mért mintáknál is ugyanezt az eljárást alkalmaztam, így összesen 1080 mért kétfázisú mintám volt. Mivel ez már egy lényegesen nagyobb adasor a neurális hálót is bővítettem 3.4. Belekerült még egy teljesen összekapcsolt és még egy dropout réteg, illetve az egyes rétegek neuronszámát is lényegesen megnőveltem a nagyobb számítási kapacitás érdekében.

A betanítási folyamatban hasonló a 3.1-es szekcióban vázoltakhoz. A modellek teljesítménye a tréning adatsoron az 3.5-ös táblázatban vannak. Látható hogy most is nagyon pontosan meg tudják mondani a tréning adatoknál tércsoportokat. A neurális háló betanulásánál itt csak annyi változott az egy fázist néző modellhez képest, hogy lassabban jut el a szinte tökéletes pontossághoz 3.2. A 3.6-os táblából kiderül hogy a klasszikus gépi tanulási algoritmusok ebben a feladatban messze elmaradnak a neurális hálózat által elért pontosságtól.

Réteg (típus)	Kimenet formája	Paraméterek száma
Dense	(None, 1000)	11000
Dropout	(None, 1000)	0
Dense	(None, 500)	500500
Dropout	(None, 500)	0
Dense	(None, 500)	250500
Dropout	(None, 500)	0
Dense	(None, 21)	10521
Paraméterek száma összesen: 772,521		

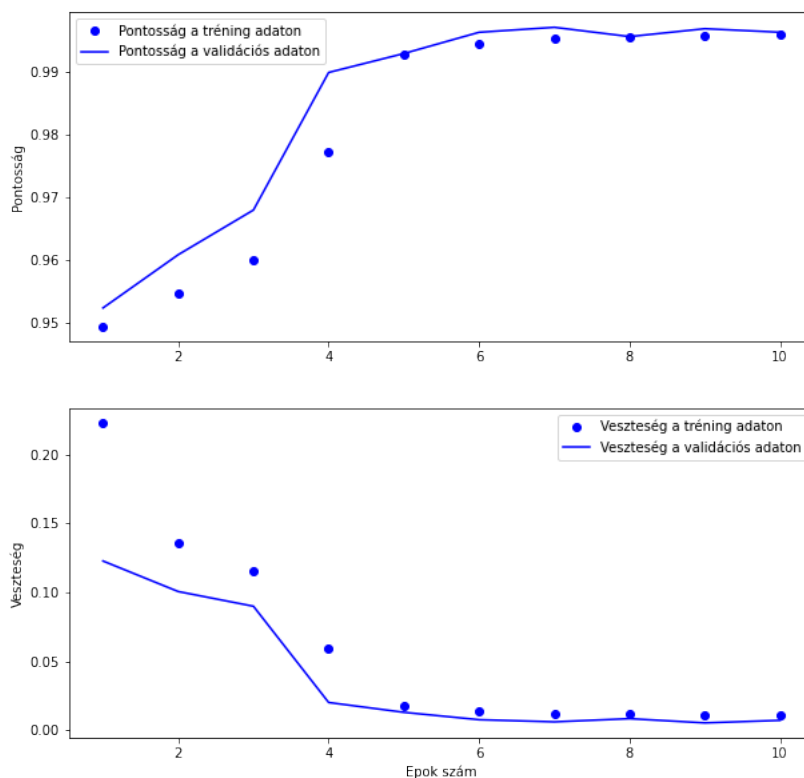
3.4. táblázat. Modell a tércsoportok meghatározására több fázis esetén

	Pontosság a tréning adatokon	Pontosság a teszt adatokon
Random Forest Classifier	0.997	0.997
Decision Tree Classifier	1.0	0.997
Logisztikus Regresszió	0.98	0.98
K Neighbors Classifier	0.99	0.99
Neurális hálózat	0.99	0.99

3.5. táblázat. Algoritmusok teljesítménye kettő tércsoport felismerésénél

	Pontosság a mért adatokon
Random Forest Classifier	0.68
Decision Tree Classifier	0.66
Logisztikus Regresszió	0.51
K Neighbors Classifier	0.75
Neurális hálózat	0.95

3.6. táblázat. Algoritmusok teljesítménye egy tércsoport esetén a valódi mérések eredményein.



3.2. ábra. Neurális háló teljesítménye a tércsoportok meghatározásában több anyag jelenlétében

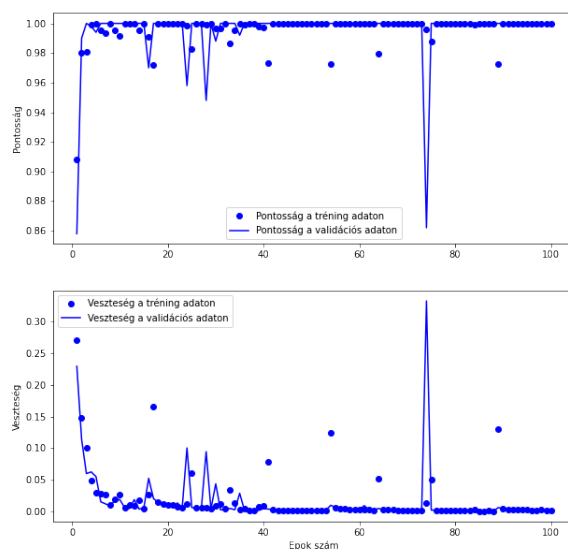
### 3.3. Fázisfelismerés egy fázis esetén

A diffraktogramok segítségével tehát meg tudjuk határozni egy anyag szerkezetét, de ha kapunk egy ismeretlen mintát, akkor fontos lehet tudnunk hogy mi is van benne pontosan. Mivel a diffraktogramok szinte ujjlenyomatként működnek, meg lehet egyértelműen határozni velük a mintákban található fázisokat. Ezt folyamatot ugyancsak hasznos lenne automatizálni és a neurális hálók segítségével ez is lehetséges.

Vehetünk két az iparban és más területeken fontos fémeket az alumíniumot és a vasat, és a csinálhatunk arra modellt hogy ezeket az anyagokat felismerje egy diffraktogrammban. A válsztott módszer ugyanaz mint eddig, vettem a mért mintákat

és a szimulált mintákat és kibővítettem a szimulált adatsort, hogy elég robusztus modellem legyen az ismeretlen fázisok kezelésére.

A feladathoz egy olyan modellt választottam ami 1D-s konvolúcióval dolgozik. A modell struktúrája a 3.7-es táblán látható. A konvolúciós rétegek 3D-s tenzorokat kérnek bemenő fájlunk és ezeket vizsgálják, úgy, hogy kis ablakokban vizsgálják az adatsort, míg a modell másik eleme a max pooling réteg agresszívan félbevágja az ablakokat és ezzel akadályozza a túlillesztést. A 3.3 ábrán látható a betanítás folyamata. Az ábrán látszanak nagy kiugró tüskék ezek lehetnek a pooling layerek félbevágással elért hatása. A modell összességében a mért adatokon 1-es pontossággal teljesít, ami megint csak mutatja gépi tanulási modellek előnyeit ebben a tudományágban.



3.3. ábra. Neurális háló teljesítménye a anyagok fázisainak meghatározásában egy anyagnál

### 3.4. Fázisfelismerés több fázis esetén

A szimmetriaviszsgálathoz hasonlóan itt is összeadtuk az egyes fázisokat és abból próbáltuk kivenni, hogy éppen melyik fázisok vannak bennük. A modell a 3.8-as táblázatban látható, a betanítási folyamat 3.4 ebben az esetben nem eredményezett

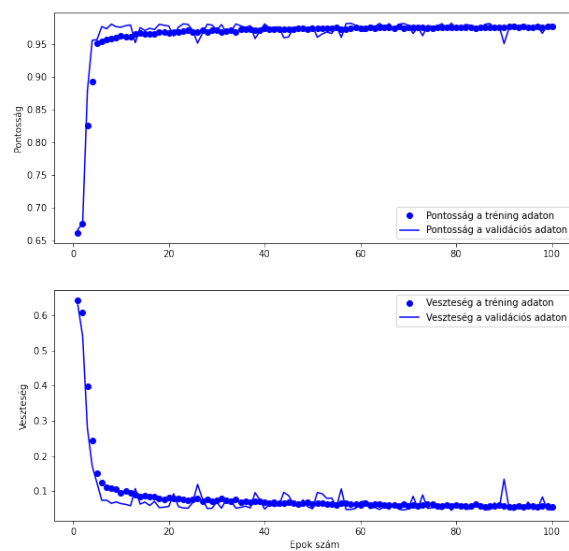
akkora tüskéket mint egy fázis esetén, a pontosság pedig itt is 1 volt a valódi mért adatokon.

Réteg (típus)	Kimenet formája	Paraméterek száma
Conv1D	(None, 8, 20)	120
max pooling1D	(None, 8, 20)	0
Conv1D	(None, 8, 20)	2020
max pooling1D	(None, 8, 20)	0
flatten	(None, 160)	0
Dense	(None, 1)	161
Paraméterek száma összesen: 2,301		

3.7. táblázat. Modell a fázisok meghatározására

Réteg (típus)	Kimenet formája	Paraméterek száma
Conv1D	(None, 8, 20)	120
max pooling1D	(None, 8, 20)	0
Conv1D	(None, 8, 20)	2020
max pooling1D	(None, 8, 20)	0
flatten	(None, 160)	0
Dense	(None, 1)	161
Paraméterek száma összesen: 2,301		

3.8. táblázat. Modell a fázisok meghatározására



3.4. ábra. Neurális háló teljesítménye a anyagok fázisainak meghatározásában több anyag jelenlétében

## 4. Összegzés

A dolgozatomban ismertettem, hogyan lehet alkalmazni a mesterséges intelligencia különböző eszközeit, mint a gépi tanulás és a neurális hálózatok, anyagtudományi mérések kiértékelésének automatizálására. Láttuk, hogy már egy egyszerűbb modellel nagy pontosságot lehet elérni egyszerűbb anyagok szimmetriai tulajdonságainak meghatározására, és kifinomultabb deep learning modellekkel pedig automatikussá lehet tenni a fázisfelismerést. A továbbiakban lehet több ráccsoportra is alkalmazhatóvá tenni a modelleket, illetve hasonló feladatok elvégzésére is.

### **Köszönetnyilvánítás**

Szeretném megköszönni Ribárik Gábornak, hogy ellátott a szükséges szakirodalommal és hasznos tanácsaival.

Budapest, 2021. május 31.



## Hivatkozások

- [1] Dr. Fogarssay Bálint. *Bevezetés a szilárdtestfizikába.* ELTE Eötvös Kiadó, 1997
- [2] R.T. Downs and M. Hall-Wallace. *The american mineralogist crystal structure database*, 2003
- [3] Koichi Momma and Fujio Izumi. *Vesta*, 2006
- [4] Park W.B. Lee J.H. Lee, JW. *A deep-learning technique for phase identification in multiphase inorganic compounds using synthetic xrd powder patterns.* Nat Commun, 11:86, 2020
- [5] Ren Z. Sun S. Oviedo, F. *Fast and interpretable classification of small x-ray diffraction datasets using data augmentation and deep neural networks.* Comput Mater, 60(6), 2019
- [6] Benedix A. Mikut R. Reischl M. Schuetzke, J. *Enhancing deep-learning training for phase identification in powder x-ray diffractograms.* IUCrJ, 8:408–420, 2021