

机器学习加速理论晶体结构预测研究进展

罗啸山^{1,2}, 王振雨^{2,3}, 高朋越^{1,2}, 张 微², 吕 健^{1,2}, 王彦超^{1,2}

(1. 吉林大学, 超硬材料国家重点实验室, 长春 130012; 2. 吉林大学, 计算方法与软件国际中心, 长春 130012;
3. 吉林大学, 未来科学国际合作联合实验室, 长春 130012)

摘 要: 理论晶体结构预测可以在给定化学组分的条件下确定材料的晶体结构, 已成为材料科学研究的重要工具。然而, 该方法一直面临计算成本高的瓶颈问题。近年来, 新兴机器学习方法在传统科学计算上展现了广阔的应用前景, 逐渐被引入到晶体结构预测领域。本文主要讨论机器学习方法在理论晶体结构预测领域的最新研究进展, 分别从加速晶体结构的能量计算和势能面的探索两个方面介绍领域的最新成果, 并对未来研究可能的发展提出抛砖引玉的见解。

关键词: 机器学习; 晶体结构预测; 机器学习势; 生成模型

中图分类号: O469 文献标志码: A 文章编号: 0454-5648(2023)02-0552-09

网络出版时间: 2023-01-17



Review on Machine Learning Accelerated Crystal Structure Prediction

LUO Xiaoshan^{1,2}, WANG Zhenyu^{2,3}, GAO Pengyue^{1,2}, ZHANG Wei², LV Jian^{1,2}, WANG Yanchao^{1,2}

(1. State Key Laboratory of Superhard Materials, College of Physics, Jilin University, Changchun 130012, China;
2. International Center of Computational Method and Software, College of Physics, Jilin University, Changchun 130012, China;
3. International Center of Future Science, Jilin University, Changchun 130012, China)

Abstract: Crystal structure prediction is a powerful theoretical simulation tool, which can determine the crystal structure of materials with the given information of chemical composition. However, its application is severely limited due to the highly computational cost. In recent years, the state-of-art machine learning methods reveal a promising prospect in accelerating the conventional scientific computing, thus introducing the methods into the crystal structure prediction. This review briefly introduced recent progress on the application of machine learning for the crystal structure prediction. Two aspects were discussed, *i.e.*, accelerating the energy evaluation and enhancing the potential energy surface sampling. In addition, some insights into the future development in this aspect were also suggested.

Keywords: machine learning; crystal structure prediction; machine learning potential; generative model

凝聚态物质的微观原子排列方式, 即晶体结构, 直接决定了其宏观物理和化学性质。因此, 确定材料的晶体结构一直是物理、化学和材料等物质科学研究领域的焦点课题。在仅给定材料化学组分的条件下, 通过理论模拟预测材料的晶体结构被称为理论结构预测。理论结构预测不仅可以与实验相辅相成共同确定材料的结构, 而且还可以先于实验, 经

济、高效的开展新材料设计, 加速新材料的研发。

物质的结构与其能量构成了高维空间中的一个超曲面, 被称为势能面(PES)。根据能量最低原理, 凝聚态物质最可能存在的稳定结构是其 Gibbs 自由能最低的结构, 因此理论结构预测的目标是确定势能面上的最低点所对应的结构。一方面由于物质体系的微观行为由其多电子 Schrodinger 方程决定, 而

收稿日期: 2022-10-14。 修订日期: 2022-11-13。

基金项目: 国家自然科学基金(91961204, 12034009, 11974134, 11904129); 吉林省教育厅科学技术研究项目(JJKH20211042KJ)。

第一作者: 罗啸山(1998—), 男, 博士研究生。

通信作者: 张 微(1979—), 女, 博士, 副教授。

Received date: 2022-10-14. Revised date: 2022-11-13.

First author: LUO Xiaoshan (1998-), male, Doctoral candidate.

Email: luoxs21@mails.jlu.edu.cn

Correspond author: ZHANG Wei (1984-), female, Ph.D., Associate Professor.

Email: zhangw_bxx@jlu.edu.cn

其解的解析形式未知, 故无法解析地表达势能面。另一方面势能面具有高维度与多能谷的复杂特性, 其维度和能谷数分别随体系原子数增加而线性和指数增加^[1-2]。对于 1 个原子数为 N 的周期性晶体体系, 其势能面的维度为 $3N+3$ (忽略元素种类)。以 55 原子的 LJ 团簇体系为例, 势能面能谷的数目估计达到 10^{21} 个^[3], 遍历势能面上所有的极小值点是一项几乎不可能完成的任务。理论结构预测要在如此庞大的结构群中确定能量最低的结构, 属于典型的非确定性多项式(NP-hard)难题, 因此需要发展针对性的数值求解手段。

多年来, 科学家们一直致力于解决晶体结构预测这一理论难题, 通过引入 Monte-Carlo、分子动力学和全局优化算法等, 先后发展了多种有效的晶体结构预测方法, 其中具有代表性的方法包括: 基于蒙特卡洛算法或分子动力学的模拟退火方法、盆地跳跃方法、极小值跳跃方法、巨动力学方法, 基于遗传算法的 USPEX^[4-5]方法, 基于群体智能算法的 CALYPSO^[6-7]方法, 和纯随机搜索方法 AIRSS^[8-9]等。这些方法在材料结构研究中发挥重要作用, 取得了系列重要的研究成果。例如, 发现了绝缘相的钠具有双六角密排结构^[10]、成功预测了锂的半导体相结构^[11]、预言了系列笼型富氢化合物超导体 CaH_6 ^[12]和 LaH_{10} ^[13]等。

虽然理论结构预测方法在材料结构研究中发挥了重要作用, 但随着体系尺寸的增加, 材料势能面的复杂度显著增加(维度线性增加、极小值数目以指数形式增加)。此外, 基于第一性原理方法的结构能量计算成本一般与晶胞内的电子数目呈 3 次指数增加关系。因此, 理论结构预测方法在处理较大的体系(如晶胞内原子数大于 50)时常面临着计算效率下降甚至难以搜索到基态结构的问题。为实现更加准确高效的复杂体系结构预测, 现有方法还面临着双重难题: 势能面高效探索问题和结构的高效计算问题。

近年来, 随着计算机软硬件水平的提高和基本数值算法的完善, 机器学习作为人工智能领域的一个重要分支快速发展, 在分类、回归和预测能力上得到了质的飞越, 被广泛应用在自然语言处理、计算机视觉、语音识别、机器翻译、自动驾驶等现代科学技术的各个领域。在物理、化学和材料科学领域, 机器学习方法也被用于加速材料性质计算^[14]、逆向结构设计^[15]等物质科学领域的研究中, 成为加速传统计算的重要工具。机器学习方法也进一步

被引入到了结构预测领域, 为解决结构预测的上述 2 个关键问题带来了新的途径。目前关于结构预测方法^[16-17]、机器学习势方法^[18-19]、晶体结构生成模型方法^[20-21]等已有数篇综述文章。本文将围绕机器学习方法在结构预测中的应用展开讨论。在第 1 部分监督学习加速能量计算中, 首先对机器学习势函数的发展及应用做简要概括, 其次对目前机器学习势函数加速结构预测的研究进行归纳讨论。在第 2 部分无监督学习加速势能面探索中, 首先简要介绍无监督生成模型, 其次根据应用生成模型生成晶体结构时如何以数值形式表示结构的不同方法, 分别加以讨论。最后在第 3 部分对机器学习方法在应用于理论结构预测领域时面临的挑战与前景作出总结。

1 监督学习加速能量计算

1.1 机器学习势构建

基于密度泛函理论(DFT)^[22-23]的第一性原理计算可以较为准确的描述材料体系的能量与电子性质, 是目前材料模拟的重要工具。然而其计算量随体系中电子数的增加呈 3 次方增长, 在处理大体系时计算成本昂贵。为了解决大体系结构计算问题, 科学家们提出的办法之一是构造原子间相互作用模型, 也被称为经验势函数或经验力场。经验势函数采用基于物理直觉的表达式, 通过对已知数据拟合, 获得研究体系的解析势形式函数, 如 Lennard-Jones 势^[24]、Buckingham 势^[25]、Stillinger-Weber 势^[26]及 EAM 势^[27]等。这些经验势都已被成功应用于大体系、长时间的模拟, 并取得了不错的成果^[28]。然而由于采用人为给定的解析表达形式, 经验势函数通常只能准确描述特定的原子成键环境, 当研究体系的原子成键环境发生显著改变时, 势函数的精度会严重下降。

监督学习是学习构建输入与输出之间的关系, 通常是估计以给定输入为条件的输出的条件概率。将机器学习监督学习引入材料模拟领域的一个重要发展方向是学习物质势能面, 进而构造原子间相互作用势函数, 这种势函数通常被称为机器学习势(MLP)。相较于经验势函数, 机器学习势不依赖于任何函数形式上的假设, 仅依据大量的第一性原理计算数据, 利用监督学习算法, 来构建原子环境与能量之间的关系, 从而实现对新原子环境的能量和原子受力的预测。实践表明, 机器学习势具有与第一性原理方法接近的精度、

且计算效率有几个数量级的提升^[29–31], 同时可移植性明显优于经验势函数, 是克服第一性原理计算量瓶颈的重要手段。值得注意的是, 机器学习势的可移植性严重依赖于数据集所覆盖的构型空间。

1995 年 Blank 等^[32]提出了利用神经网络构建势函数的学术思想, 随后大量的机器学习势方法开始涌现。2007 年 Behler 和 Parrinello^[33]提出将体系的总能表达为单原子能量的和的方式:

$$E = \sum_i \varepsilon_i(\mathbf{d}_i) \quad (1)$$

其中: E 代表体系的总能量; ε_i 为体系中每个原子

i 的能量; \mathbf{d}_i 为描述原子成键环境的特征向量(描述符), \mathbf{d}_i 与 ε_i 的映射关系由机器学习模型给出。通常认为原子成键环境的依赖是局域的, 因此这种表达方式可以看作考虑一定截断半径以内的相互作用, 而忽略了截断半径以外的长程相互作用。另外, 将体系总能分解为单原子能量的和, 使得势函数能够处理不同尺寸的体系。此后机器学习势模型大多基于上述形式发展而来。

如图 1 所示, 发展机器学习势主要包括两部分工作: 1) 设计合适的描述符, 用于描述结构中中原子局域环境; 2) 选择合适的监督学习模型, 建立原子环境与体系能量(及原子受力)的映射关系。

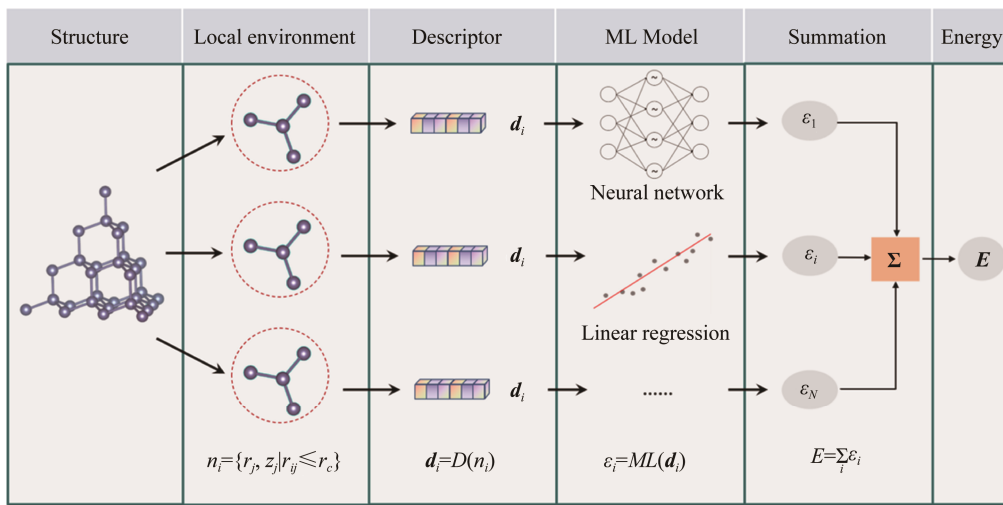


图 1 基于局域环境描述符构建机器学习势流程图

Fig. 1 Workflow for machine learning potential with local environment descriptor

基于上述构建思路, Behler 等^[34]设计了原子中心对称函数(ACSFs)描述符, 利用多组径向函数与角向函数描述中心原子的局域环境, 结合神经网络模型, 发展了高维神经网络势函数(HDNNPs)^[33], HDNNPs 已被成功应用于碳、TiO₂ 等体系^[35–37]。Bartók 等^[38]设计了原子位置平滑重叠(SOAP)描述符, 利用球谐函数与径向函数描述原子的近邻密度, 并将其与 Gaussian 过程回归相结合, 发展了 Gaussian 近似势函数(GAP)^[39], GAP 已被成功应用于模拟碳、硼及过渡金属等体系^[40–46]。Shapeev 等^[47]设计了基于不变多项式的局域环境描述符, 结合线性回归模型, 发展了矩张量势(MTP), MTP 已被成功应用于模拟钼、铝及 Ag–Pd 等体系^[48]。Thompson 等设计了基于球谐函数展开的局域环境描述符, 结合线性回归模型, 发展了谱邻近分析势(SNAP), SNAP 已被成功应用于各种合金及过渡金属体系的研究^[49–52]。

不同于上述介绍的机器学习势, 2018 年 Zhang

等^[53]提出了一种端对端(End-to-end)的神经网络势。所谓端对端, 是指在模型训练过程中, 不需要先对描述符的超参数拟合, 仅提供训练集的数据即可完成整个训练过程。基于这一思路, Han 等利用编码神经网络(Encoding network)构造原子局域环境的描述符, 并结合全连接神经网络提出了基于深度学习的深度势函数(DP)^[54–55], DP 已被成功应用于单质、多元体系、分子体系及低维体系^[56]。最近有研发团队将 DP 部署在 Submit 超级计算机上, 并成功对 1 亿个原子大尺度体系进行分子动力学模拟, 达到第一性原理精度^[57]。

以上介绍的机器学习势的构建主要思路大体相同, 皆为从单原子的环境出发, 利用机器学习模型拟合单原子能量, 通过求和得到体系的总能。而 Xie 等^[58]将晶体结构抽象为图神经网络结构, 通过网络的迭代训练得到整个晶体的全局描述符, 随后利用全连接神经网络将晶体结构与目标特征(能量、力等)建立联系, 提出了晶体图卷积网络(CGCNN)。本文

对主要的 MLP 方法进行了简要介绍, 关于 MLP 更详细的介绍可参考文献[46, 59–60]。

1.2 机器学习势加速结构预测

机器学习势的高效性与准确性使其成为加速结构预测的有效手段。目前机器学习势加速的结构预测方式可以分为 2 类, 即直接加速结构预测和迭代更新加速结构预测。

1) 直接加速结构预测

利用训练好的 MLP 直接替换 DFT 进行结构能量计算, 是最直观的加速结构预测的手段。目前, 科学家已将不同种类的 MLP 与结构预测方法相结合, 用于加速大体系的结构预测研究。2015 年 Ouyang 等^[61]利用神经网络势结合能谷跳跃方法对 Au₅₈ 团簇进行结构搜索, 成功搜索到了新结构, 其能量比前人提出的结构能量低 0.24 eV 每分子式。2017 年 Chiriki 等^[62]利用神经网络势对 Au₁₄₇ 团簇进行结构搜索, 成功找到更稳定的结构, 后续利用 MLP 进一步对相图及动力学性质进行了模拟^[63–64]。2019 年 Kolmogorov 等利用神经网络势并结合演化算法, 分别对 Cu–Pd–Ag 体系中的一元、二元及三元团簇^[65]和 Au 团簇^[66]进行结构搜索, 体系原子数最多达 80 个, 成功找到更稳定的基态结构。2020 年 Wang 等^[67]将基于深度学习的深度势函数 DeepPotential^[68]结合 CALYPSO^[7]对二元 Al–Mg 合金体系进行结构搜索, 成功发现了 6 种未被报道过的亚稳结构。

2) 迭代更新 MLP 加速结构预测

上述直接加速策略的有效性严重依赖于 MLP 的质量, 为了解决该问题, 科学家们提出了迭代更新 MLP 的策略, 其基本思想是以初代粗糙精度的 MLP 为基础, 在结构预测的过程中逐步加入新结构到数据集中, 训练得到新一代 MLP。通过迭代扩充数据集, 在结构预测过程中不断的完善 MLP, 提高势的精度, 进而加速结构预测。Pickard 和 Deringer 等将 GAP 与随机结构搜索软件 AIRSS^[8]相结合, 将随机产生的结构的 DFT 结果作为初始数据集训练初代 GAP, 随后使用 GAP 对新一批随机结构弛豫, 取弛豫结构轨迹的部份结构加入数据集中迭代更新 GAP, 成功找到了单质硼的几种复杂的同素异构体^[69]。为提高迭代更新 MLP 的效率, Deringer 和 Bernstein 等对迭代策略做了改进, 通过物理约束(配位数、键长等)筛选用于更新 MLP 的结构, 并成功应用于磷^[70]、碳和硅等体系^[71]。

迭代更新 MLP 的策略能够利用物理约束等方式增加数据集的多样性, 进而提高 MLP 的精度与可移植性, 但该策略可能将已被 MLP 描述准确的构型再次加入数据集中, 不但会增加冗余数据提高训练成本, 而且会造成模型对冗余数据预测精度的下降。因此, 科学家们进一步发展了多种自适应加速结构预测的策略。自适应加速方案的基本思想是在结构预测过程中利用主动学习技术判断结构是否可以被当前的 MLP 准确描述。当结构可以被准确描述时, 直接对其应用 MLP 进行能量计算; 当结构无法被 MLP 准确描述时, 采用 DFT 对其进行能量计算, 并用该结构更新 MLP。该方案一定程度上缓解了迭代更新 MLP 中冗余数据的问题, 使模型能够在尽量少的数据集上达到尽可能好的效果。Tong 等^[72]将自主发展的 GAP 与 CALYPSO^[7]方法相结合。由于 GAP 能够在预测能量的同时给出预测的方差(可靠性), Tong 等收集在结构搜索的过程中 GAP 给出大方差的构型, 重新对其进行 DFT 计算, 随后加入数据集中更新 GAP, 实现了自适应加速的结构预测方案。该方案被成功应用于 B₈₄ 团簇中, 不仅重现了前人提出的准平面结构, 同时还发现了新的核–壳状与笼状结构。Podryabinkin 等^[73]将矩张量势 MTP^[47]与 USPEX^[4]相结合, 实现了自适应加速的结构预测, 发现了新型硼单质结构。

2 无监督学习加速势能面探索

无监督学习生成模型可以对生成数据集的概率分布进行显式或隐式的建模, 建模后通过对概率分布的采样实现对新数据的生成。机器学习中典型的生成模型包括生成对抗网络(GAN)^[74]、变分自编码器(VAE)^[75], 以及流模型(Flow Model)^[76]与扩散模型(Diffusion Model)^[77]。目前, 无监督学习生成模型已在图像生成、机器翻译、语音合成、风格转换等领域中展现出惊人的能力。传统结构预测方法主要通过蒙特卡洛、分子动力学和全局优化算法来实现对材料势能面的探索和新结构的产生。近年来, 随着大量材料结构与性质数据库建立, 无监督学习算法被逐渐引入到材料设计领域, 并在势能面的表示学习与探索、新结构的生成等方面取得了引人注目的进展。这些新技术逐渐成为结构预测中加速势能面探索的新途径。

GAN 是一种最典型的无监督学习生成模型, 由一个生成器与一个判别器构成(图 2a), 生成器接收噪声输入, 输出合成的假样本, 而判别器接收真假

样本输入并判断样本是否为真。轮流训练生成器与判别器，使生成器尽量欺骗判别器，判别器尽量不被欺骗。当两者的零和博弈达到纳什均衡时，判别器无法区分真假，即生成器可以产生以假乱真的样本。VAE 是另外一类广泛采用的生成模型，由一个编码器与一个解码器构成(图 2b)，编码器将数据映射到隐编码空间，解码器从隐编码空间采样还原数据，同时要求隐编码空间分布服从多维正态分布，从而构建从已知的简单分布到数据分布的变换。Flow Model 由一连串可逆变换构成(图 2c)，构建数据与隐变量间维度一致的分布映射。由于这些变换可逆，因此反向采样即基于这些变换函数的逆函数。Diffusion Model 从非平衡热力学出发^[78]，可以看作一个 Markov 链(图 2d)，先向样本数据逐步添加随机噪声(扩散)，再学习其逆扩散过程，从噪声中重建样本。

GAN 与 VAE 是最基本的生成模型架构，很多新颖的模型也往往符合 GAN 或 VAE 的形式。Flow Model 相比 GAN 与 VAE 虽然更新，但由于其在模

型设计上具有较高的可逆性要求，因此目前在晶体结构生成领域并无应用。扩散模型是当前深度生成模型领域最先进的方法，并且还在高速发展当中。将上述无监督学习生成模型用于晶体结构生成时，不仅需要考虑到使用何种无监督模型，还需要考虑到如何将晶体结构编码为与该模型相匹配的可接收表示，经过模型学习并生成结构的表示后，解码晶体结构(图 3)。该过程中的关键问题是如何以数值形式对晶体结构进行描述，从而将数据集高效、准确的输入到机器学习模型。这与上文机器学习势中结构描述符的设计类似，不同的是，机器学习势主要考虑对某一原子的环境进行描述，而生成模型主要考虑对整个结构进行数值描述。目前，在晶体结构生成研究中主要采用的表示方式包括：原子环境描述符表示^[79]、原子坐标表示^[80–83]、三维图像像素表示^[84–88]、基于图论的图表示^[89]。下面根据上述分类来介绍无监督学习加速势能面探索的最新研究进展。

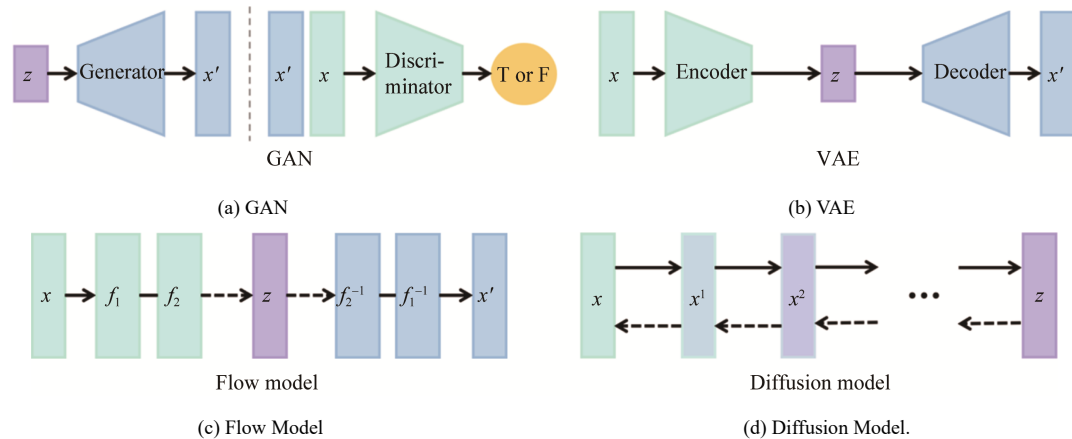
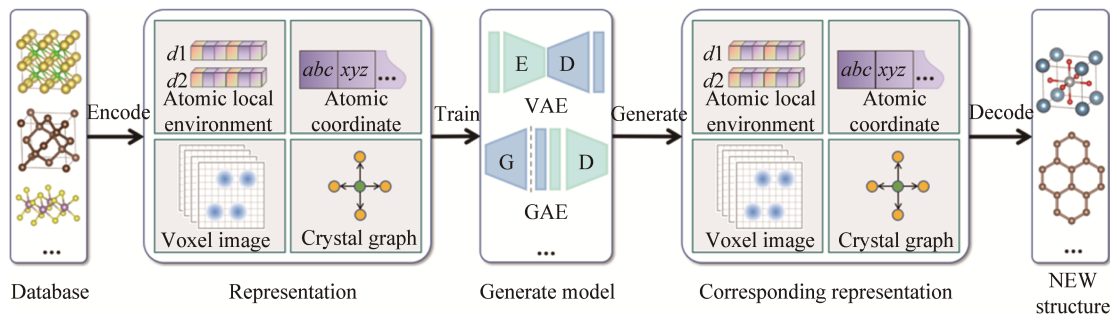


图 2 4 种典型的无监督生成模型
Fig. 2 Four typical generative models



Encode the dataset with a representation, then train the model and generate the corresponding new representation, finally decode them back to crystal structure.

图 3 无监督学习生成模型生成晶体结构示意图
Fig. 3 Schematic of generating crystal structure using generative model

2.1 原子环境描述符表示

与机器学习势中的原子环境描述符类似，将原

子环境展开到一系列具有平移、旋转不变性的基函数上可以方便的构建与结构对应的一组向量，来描

述晶体结构。然而, 这种结构编码方法通常会丢失部分结构信息, 难以反向解码出晶体结构。Ryan 等^[79]使用多视角原子局域环境指纹(m-AFP)表示结构, 并使用 VAE 学习以 m-AFP 表示的数据集的分布。由于 m-AFP 无法逆向解码出晶体结构, 所以训练好的 VAE 并未直接用于新结构的生成, 而是用于评估一个结构中原子位置被不同元素占据的概率。Ryan 等应用该模型设计了多种新型 Mn-Ge 和 Li-Mn-Ge 化合物。

1) 原子坐标表示

直接将晶格与原子坐标作为机器学习模型的输入, 可以省去反向解码结构的步骤。但需要注意, 因晶体结构具有周期性和平移旋转不变性, 同一结构可以通过无数组坐标进行表示, 这引入了结构与表示的“一对多”问题。Nouira 等^[80]建立了 CrystalGAN, 采用晶体晶格矩阵与原子分数坐标拼接而成的二维数组表示结构。他们从 2 种稳定二元氢化物出发, 使用 GAN 采样三元稳定氢化物。Kim 等^[90]也采用晶格常数与原子分数坐标表示结构, 根据改进的生成对抗网络 Wasserstein-GAN (wGAN)^[91-92]设计了 Composition-Conditioned CrystalGAN, 发现了 20 种全新配比的三元 Mg-Mn-O 化合物。Ren 等^[93]设计了 FTCP, 将原子坐标与晶体属性在倒空间(密勒指数)上的展开做拼接, 共同作为模型的输入, 随后使用 VAE 学习结构表示的分布, 设计了上百种满足特定形成能、带隙等要求的新结构。

2) 三维图像体素表示

受机器学习生成模型在图像生成领域的启发, 类比使用像素上的值表示平面图片, 将三维空间切割, 使用体素上的值也可以表示三维晶体。采用图像表示可以容易地将处理平面图像的二维算法扩展到三维, 但同时也使表示的数据量显著增加, 带来部分存储和计算负担, 另外, 这种表示方式同样面临结构与表示的“一对多”问题。Hoffmann 等^[84]采用三维图像体素表示结构, 设计了基于三维卷积 VAE 的网络, 学习三维图像体素表示的数据集分布, 随后通过 U-Net 网络^[94-95]确定新生成三维图像中的原子位置, 进而解码出结构。Noh 等^[85]采用同样的体素图像方式表示原子位置, 同时增加了对晶格的考虑。在模型上 Noh 首先使用卷积自编码器(AE)将三维图像压缩, 再通过 VAE 学习压缩向量的分布。生成结构时先在隐空间中采样得到新的压缩指纹, 再通过 AE 解码器得到图像表示, 最后利

用寻峰算法重建晶体结构。Kim 等^[86]并非按照固定分辨率划分体素, 而是对各个晶胞沿平行于晶格 *abc* 轴的方向分割体素网格, 将数据集中不同尺寸结构分割为数量相同的体素, 利用 wGAN 学习数据集分布, 并通过额外回归网络预测晶格常数, 最终实现新晶体图像生成, 该方法成功设计了多种 SiO₂ 多孔吸附材料。

3) 图表示

基于图模型^[96-98]和等变网络^[99-103]的研究逐渐为晶体结构生成提供了新途径。图模型将原子看作节点, 原子间连接关系看作边, 节点和边共同组成图来描述晶体结构。等变网络可以保证数据集在平移、转动等对称操作下保持等变性。图模型与等变网络的结合有望在考虑晶体对称性的同时, 实现结构的编解码。Xie 等^[89]使用多重图^[58]表示晶体结构, 设计了基于图模型和 VAE 的晶体扩散变分自编码器(CDVAE)网络, 学习数据集的分布, 通过扩散模型解码器生成稳定的晶体结构, 并在钙钛矿结构、碳单质和 Materials Project 数据库^[104]结构等体系中证明了 CDVAE 生成结构的高有效性。

3 总结与展望

本文对机器学习方法在晶体结构预测领域的应用进行了简要的总结, 可以看到机器学习方法在解决晶体结构预测的 2 个关键问题上均发挥了重要作用, 显著拓展了结构预测可模拟体系的尺寸, 提高了结构预测的计算效率。但机器学习方法在晶体结构预测领域的应用还处于早期发展阶段, 仍有大量科学与技术问题等待着人们去解决, 例如稀疏的晶体结构样本难以覆盖高维度的研究课题、复杂的机器学习模型难以部署应用于大规模研究、如何提高模型的可解释性并发掘背后的物理意义等^[105-107]。

在监督学习加速能量计算方面, 基于主动学习的自适应策略一定程度解决了 MLP 的可移植性问题。但在处理不同体系时, 科研人员需要对结构描述符的超参数进行优化, 对 MLP 外推构型的判断标准进行调整。这非常依赖科研人员的研究经验, 并且涉及复杂的人工操作。因此, 相关方法与软件还未被实现大规模应用。进一步将监督学习用于原子受力的学习, 可以加速分子动力学模拟计算; 除能量以外, 结合其他期望性质的学习有望从多个维度进行新材料的筛选与设计。

在无监督学习加速势能面探索方面, 利用无监督生成模型设计无机晶体结构的研究仍处于探索阶

段, 进一步提高有效晶体结构生成率和增加结构的多样化程度是领域重要的发展方向。此外, 现有模型的结构生成过程具有随机性, 通常难以控制生成结构的原子数、配比等信息, 发展条件式生成模型, 有望实现晶体结构的可控生成, 同时可为功能导向的新材料设计提供新手段。

未来, 发展用户友好、全流程自动化的软件是上述先进技术得以快速、广泛应用的基础。相信随着计算能力的提高、材料数据库的完善和机器学习算法的发展, 数据驱动的机器学习方法将在结构预测领域将会发挥越来越重要的作用。

参考文献:

- [1] STILLINGER F H. Exponential multiplicity of inherent structures[J]. *Phys Rev E*, 1999, 59(1): 48–51.
- [2] STILLINGER F H. Inherent structures enumeration for low-density materials[J]. *Phys Rev E*, 2001, 63(1): 011110.
- [3] WALES D J, DOYE J P K. Global optimization by basin-hopping and the lowest energy structures of lennard-jones clusters containing up to 110 atoms[J]. *J Phys Chem*, 1997, 101(28): 5111–5116.
- [4] GLASS C W, OGANOV A R, HANSEN N. USPEX—Evolutionary crystal structure prediction[J]. *Comput Phys Commun*, 2006, 175(11/12): 713–720.
- [5] OGANOV A R, GLASS C W. Crystal structure prediction using ab initio evolutionary techniques: Principles and applications[J]. *J Chem Phys*, 2006, 124(24): 244704.
- [6] WANG Y, LV J, ZHU L, et al. Crystal structure prediction via particle-swarm optimization[J]. *Phys Rev B*, 2010, 82(9): 094116.
- [7] WANG Y, LV J, ZHU L, et al. CALYPSO: A method for crystal structure prediction[J]. *Comput Phys Commun*, 2012, 183(10): 2063–2070.
- [8] PICKARD C J, NEEDS R J. Ab initio random structure searching[J]. *J Phys Condens Matter*, 2011, 23(5): 053201.
- [9] PICKARD C J, NEEDS R J. High-pressure phases of silane[J]. *Phys Rev Lett*, 2006, 97(4): 045504.
- [10] MA Y, EREMETS M, OGANOV A R, et al. Transparent dense sodium[J]. *Nature*, 2009, 458(7235): 182–185.
- [11] LV J, WANG Y, ZHU L, et al. Predicted novel high-pressure phases of lithium[J]. *Phys Rev Lett*, 2011, 106(1): 015503.
- [12] WANG H, TSE J S, TANAKA K, et al. Superconductive sodalite-like clathrate calcium hydride at high pressures[J]. *Proc National Acad Sci*, 2012, 109(17): 6463–6466.
- [13] PENG F, SUN Y, PICKARD C J, et al. Hydrogen clathrate structures in rare earth hydrides at high pressures: Possible route to room-temperature superconductivity[J]. *Phys Rev Lett*, 2017, 119(10): 107001.
- [14] SCHMIDT J, MARQUES M R G, BOTTI S, et al. Recent advances and applications of machine learning in solid-state materials science[J]. *Npj Comput Mater*, 2019, 5(1): 83.
- [15] WANG J, WANG Y, CHEN Y. Inverse design of materials by machine learning[J]. *Materials*, 2022, 15(5): 1811.
- [16] WANG Y, LV J, GAO P, et al. Crystal structure prediction *via* efficient sampling of the potential energy surface[J]. *Accounts Chem Res*, 2022, 55(15): 2068–2076.
- [17] YIN X, GOUNARIS C E. Search methods for inorganic materials crystal structure prediction[J]. *Curr Opin Chem Eng*, 2022, 35: 100726.
- [18] KOCER E, KO T W, BEHLER J. Neural network potentials: A concise overview of methods[J]. *Annu Rev Phys Chem*, 2022, 73(1): 1–24.
- [19] BEHLER J. Four generations of high-dimensional neural network potentials[J]. *Chem Rev*, 2021, 121(16): 10037–10072.
- [20] FUHR A S, SUMPTER B G. Deep generative models for materials discovery and machine learning-accelerated innovation[J]. *Front Mater*, 2022, 9: 865270.
- [21] CHEN L, ZHANG W, NIE Z, et al. Generative models for inverse design of inorganic solid materials[J]. *J Mater Inform*, 2021, 1: 4.
- [22] HOHENBERG P, KOHN W. Inhomogeneous electron gas[J]. *Phys Rev*, 1964, 136(3B): B864–B871.
- [23] KOHN W, SHAM L J. Self-consistent equations including exchange and correlation effects[J]. *Phys Rev*, 1965, 140(4A): A1133–A1138.
- [24] LENNARD-JONES J E. Cohesion[J]. *P Phys Soc*, 1931, 43(5): 461–482.
- [25] BUCKINGHAM R A. The classical equation of state of gaseous helium, neon and argon[J]. *Proc Royal Soc Lond Ser Math Phys Sci*, 1938, 168(933): 264–283.
- [26] STILLINGER F H, WEBER T A. Computer simulation of local order in condensed phases of silicon[J]. *Phys Rev B*, 1984, 31(8): 5262–5271.
- [27] DAW M S, BASKES M I. Embedded-atom method: Derivation and application to impurities, surfaces, and other defects in metals [J]. *Phys Rev B*, 1984, 29(12): 6443–6453.
- [28] THOMPSON A P, AKTULGA H M, BERGER R, et al. LAMMPS - a flexible simulation tool for particle-based materials modeling at the atomic, meso, and continuum scales[J]. *Comput Phys Commun*, 2022, 271: 108171.
- [29] BEHLER J. Perspective: Machine learning potentials for atomistic simulations[J]. *J Chem Phys*, 2016, 145(17): 170901.
- [30] TONG Q, XUE L, LV J, et al. Accelerating CALYPSO structure prediction by data-driven learning of a potential energy surface[J]. *Faraday Discuss*, 2018, 211(0): 31–43.
- [31] GUBAEV K, PODRYABINKIN E V, HART G L W, et al. Accelerating high-throughput searches for new alloys with active learning of interatomic potentials[J]. *Comp Mater Sci*, 2019, 156: 148–156.
- [32] BLANK T B, BROWN S D, CALHOUN A W, et al. Neural network models of potential energy surfaces[J]. *J Chem Phys*, 1995, 103(10): 4129–4137.
- [33] BEHLER J, PARRINELLO M. Generalized neural-network representation of high-dimensional potential-energy surfaces[J]. *Phys Rev Lett*, 2007, 98(14): 146401.
- [34] BEHLER J. Atom-centered symmetry functions for constructing high-dimensional neural network potentials[J]. *J Chem Phys*, 2011, 134(7): 074106.
- [35] KHALIULLIN R Z, ESHET H, KÜHNE T D, et al. Nucleation mechanism for the direct graphite-to-diamond phase transition[J]. *Nat Mater*: 2011, 10(9): 693–697.
- [36] ARTRITH N, URBAN A. An implementation of artificial neural-network potentials for atomistic materials simulations: Performance for TiO₂[J]. *Comp Mater Sci*: 2016, 114: 135–150.
- [37] BEHLER J. Four generations of high-dimensional neural network potentials[J]. *Chem Rev*, 2021, 121(16): 10037–10072.
- [38] BARTÓK A P, KONDOR R, CSÁNYI G. On representing chemical

- environments[J]. *Phys Rev B*, 2013, 87(18): 184115.
- [39] BARTÓK A P, PAYNE M C, KONDOR R, et al. Gaussian approximation potentials: the accuracy of quantum mechanics, without the electrons[J]. *Phys Rev Lett*, 2010, 104(13): 136403.
- [40] DERINGER V L, CSÁNYI G, PROSERPIO D M. Extracting crystal chemistry from amorphous carbon structures[J]. *ChemPhysChem*, 2017, 18(8): 873–877.
- [41] DERINGER V L, CSÁNYI G. Machine learning based interatomic potential for amorphous carbon[J]. *Phys Rev B*, 2017, 95(9): 094203.
- [42] ROWE P, DERINGER V L, GASPAROTTO P, et al. An accurate and transferable machine learning potential for carbon[J]. *J Chem Phys*, 2020, 153(3): 034702.
- [43] DERINGER V L, PICKARD C J, CSÁNYI G. Data-driven learning of total and local energies in elemental boron[J]. *Phys Rev Lett*, 2018, 120(15): 156001.
- [44] SZLACHTA W J, BARTÓK A P, CSÁNYI G. Accuracy and transferability of Gaussian approximation potential models for tungsten[J]. *Phys Rev B*, 2014, 90(10): 104108.
- [45] DRAGONI D, DAFF T D, CSÁNYI G, et al. Achieving DFT accuracy with a machine-learning interatomic potential: Thermomechanics and defects in bcc ferromagnetic iron[J]. *Phys Rev Mater*, 2018, 2(1): 013808.
- [46] DERINGER V L, BARTÓK A P, BERNSTEIN N, et al. Gaussian process regression for materials and molecules[J]. *Chem Rev*: 2021, 121(16): 10073–10141.
- [47] SHAPEEV A V. Moment tensor potentials: A class of systematically improvable interatomic potentials[J]. *Multiscale Model Sim*, 2016, 14(3): 1153–1173.
- [48] NOVIKOV I S, GUBAEV K, PODRYABINKIN E V, et al. The MLIP package: moment tensor potentials with MPI and active learning[J]. *Mach Learn Sci Technology*, 2021, 2(2): 025002.
- [49] CHEN C, DENG Z, TRAN R, et al. Accurate force field for molybdenum by machine learning large materials data[J]. *Phys Rev Mater*, 2017, 1(4): 043603.
- [50] LI X-G, HU C, CHEN C, et al. Quantum-accurate spectral neighbor analysis potential models for Ni-Mo binary alloys and fcc metals[J]. *Phys Rev B*, 2018, 98(9): 094104.
- [51] DENG Z, CHEN C, LI X G, et al. An electrostatic spectral neighbor analysis potential for lithium nitride[J]. *NPJ Comput Mater*, 2019, 5(1): 75.
- [52] WOOD M A, CUSENTINO M A, WIRTH B D, et al. Data-driven material models for atomistic simulation[J]. *Phys Rev B*, 2019, 99(18): 184305.
- [53] ZHANG L, HAN J, 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, CANADA, 2018: 4441–4451.
- [54] HAN J, ZHANG L, CAR R, et al. Deep potential: A general representation of a many-body potential energy surface[J]. *Commun Comput Phys*, 2018, 23(3): 629–639.
- [55] ZHANG L, HAN J, WANG H, et al. Deep Potential molecular dynamics: a scalable model with the accuracy of quantum mechanics[J]. *Phys Rev Lett*, 2018, 120(14): 143001.
- [56] WEN T, ZHANG L, WANG H, et al. Deep potentials for materials science[J]. *Mater Futur*, 2022, 1(2): 022601.
- [57] JIA W, WANG H, CHEN M, et al. Pushing the limit of molecular dynamics with ab initio accuracy to 100 million atoms with machine learning[J]. *Arxiv*, 2020. Doi:10.48550/arXiv.2005.00223.
- [58] XIE T, GROSSMAN J C. Crystal graph convolutional neural networks for an accurate and interpretable prediction of material properties[J]. *Phys Rev Lett*, 2018, 120(14): 145301.
- [59] TAKAHASHI K, TAKAHASHI L. Creating machine learning-driven material recipes based on crystal structure[J]. *J Phys Chem Lett*, 2019, 10(2): 283–288.
- [60] DERINGER V L, CARO M A, CSÁNYI G. Machine learning interatomic potentials as emerging tools for materials science[J]. *Adv Mater*, 2019, 31(46): 1902765.
- [61] OUYANG R, XIE Y, JIANG D. Global minimization of gold clusters by combining neural network potentials and the basin-hopping method[J]. *Nanoscale*, 2015, 7(36): 14817–14821.
- [62] JINDAL S, CHIRIKI S, BULUSU S S. Spherical harmonics based descriptor for neural network potentials: Structure and dynamics of Au₁₄₇ nanocluster[J]. *J Chem Phys*, 2017, 146(20): 204301.
- [63] CHIRIKI S, JINDAL S, BULUSU S S. c-T phase diagram and Landau free energies of (AgAu)₅₅ nanoalloy via neural-network molecular dynamic simulations[J]. *J Chem Phys*, 2017, 147(15): 154303.
- [64] CHIRIKI S, JINDAL S, BULUSU S S. Neural network potentials for dynamics and thermodynamics of gold nanoparticles[J]. *J Chem Phys*, 2017, 146(8): 084314.
- [65] HAJINAZAR S, SANDOVAL E D, CULLO A J, et al. Multitribe evolutionary search for stable Cu–Pd–Ag nanoparticles using neural network models[J]. *Phys Chem Chem Phys*, 2019, 21(17): 8729–8742.
- [66] THORN A, ROJAS-NUNEZ J, HAJINAZAR S, et al. Toward ab initio ground states of gold clusters via neural network modeling[J]. *J Phys Chem C*, 2019, 123(50): 30088–30098.
- [67] WANG H, ZHANG Y, ZHANG L, et al. Crystal structure prediction of binary alloys via deep potential[J]. *Front Chem*, 2020, 8: 589795.
- [68] ZHANG L, LIN D-Y, WANG H, et al. Active learning of uniformly accurate interatomic potentials for materials simulation[J]. *Phys Rev Mater*, 2019, 3(2): 023804.
- [69] DERINGER V L, PICKARD C J, CSÁNYI G. Data-driven learning of total and local energies in elemental boron[J]. *Phys Rev Lett*, 2018, 120(15): 156001.
- [70] DERINGER V L, PROSERPIO D M, CSÁNYI G, et al. Data-driven learning and prediction of inorganic crystal structures[J]. *Faraday Discuss*, 2018, 211(0): 45–59.
- [71] BERNSTEIN N, CSÁNYI G, DERINGER V L. De novo exploration and self-guided learning of potential-energy surfaces[J]. *Npj Comput Mater*, 2019, 5(1): 99.
- [72] TONG Q, GAO P, LIU H, et al. Combining machine learning potential and structure prediction for accelerated materials design and discovery[J]. *J Phys Chem Lett*, 2020, 11(20): 8710–8720.
- [73] PODRYABINKIN E V, TIKHONOV E V, SHAPEEV A V, et al. Accelerating crystal structure prediction by machine-learning interatomic potentials with active learning[J]. *Phys Rev B*, 2019, 99(6): 064114.
- [74] GOODFELLOW I J, POUGET-ABADIE J, MIRZA M, et al. Generative Adversarial Networks[C]//Advances in Neural Information Processing Systems 27, Montréal, CANADA, 2014: 2672–2680.
- [75] KINGMA D P, WELING M. Auto-encoding variational bayes[J]. *Arxiv*, 2014. Doi:10.48550/arxiv.1312.6114.
- [76] REZENDE D J, MOHAMED S. Variational Inference with Normalizing Flows[C] //Proceedings of the 32nd International

- Conference on Machine Learning, Lille, France, 2015: 1530–1538.
- [77] HO J, JAIN A, ABBEEL P. Denoising Diffusion Probabilistic Models[C] //Advances in Neural Information Processing Systems 33, Virtual, 2020: 6840–6851.
- [78] SOHL-DICKSTEIN J, WEISS E A, MAHESWARANATHAN N, et al. Deep Unsupervised Learning using Nonequilibrium Thermodynamics[C] //Proceedings of the 32nd International Conference on International Conference on Machine Learning, Lille, France, 2015: 2256–2265.
- [79] RYAN K, LENGUEL J, SHATRUK M. Crystal structure prediction *via* deep learning[J]. J Am Chem Soc, 2018, 140(32): 10158–10168.
- [80] NOUIRA A, SOKOLOVSKA N, CRIVELLO J-C. CrystalGAN: Learning to Discover Crystallographic Structures with Generative Adversarial Networks[C] //Proceedings of the AAAI 2019 Spring Symposium on Combining Machine Learning with Knowledge Engineering, California, USA, 2018: doi:10.48550/arxiv.1810.11203.
- [81] KIM S, NOH J, GU G H, et al. Generative adversarial networks for crystal structure prediction[J]. Acs Central Sci, 2020, 6(8): 1412–1420.
- [82] ZHAO Y, AL-FAHDI M, HU M, et al. High-throughput discovery of novel cubic crystal materials using deep generative neural networks[J]. Adv Sci, 2021, 8(20): 2100566.
- [83] REN Z, TIAN S I P, NOH J, et al. An invertible crystallographic representation for general inverse design of inorganic crystals with targeted properties[J]. Matter, 2022, 5(1): 314–335.
- [84] HOFFMANN J, MAESTRATI L, SAWADA Y, et al. Data-driven approach to encoding and decoding 3-D crystal structures[J]. Arxiv: 2019, doi:10.48550/arxiv.1909.00949.
- [85] NOH J, KIM J, STEIN H S, et al. Inverse design of solid-state materials *via* a continuous representation[J]. Matter, 2019, 1(5): 1370–1384.
- [86] KIM B, LEE S, KIM J. Inverse design of porous materials using artificial neural networks[J]. Sci Adv, 2020, 6(1): eaax9324.
- [87] COURT C J, YILDIRIM B, JAIN A, et al. 3-D inorganic crystal structure generation and property prediction *via* representation learning[J]. J Chem Inf Model, 2020, 60(10): 4518–4535.
- [88] LONG T, FORTUNATO N M, OPAHLE I, et al. Constrained crystals deep convolutional generative adversarial network for the inverse design of crystal structures[J]. NPJ Comput Mater, 2021, 7(1): 66.
- [89] XIE T, FU X, GANEA O-E, et al. Crystal Diffusion Variational Autoencoder for Periodic Material Generation[C]//The Tenth International Conference on Learning Representations (ICLR 2022), Virtual, 2022. Doi:10.48550/arxiv.2110.06197.
- [90] KIM S, NOH J, GU G H, et al. Generative adversarial networks for crystal structure prediction[J]. Acs Central Sci, 2020, 6(8): 1412–1420.
- [91] ARJOVSKY M, CHINTALA S, BOTTOU L. Wasserstein GAN[J]. Arxiv, 2017. Doi:10.48550/arxiv.1701.07875.
- [92] GULRAJANI I, AHMED F, ARJOVSKY M, et al. Improved Training of Wasserstein GANs[C] //Advances in Neural Information Processing Systems 30, Los Angeles, USA, 2017: 5767–5777.
- [93] REN Z, TIAN S I P, NOH J, et al. An invertible crystallographic representation for general inverse design of inorganic crystals with targeted properties[J]. Matter, 2022, 5(1): 314–335.
- [94] RONNEBERGER O, FISCHER P, BROX T. U-Net: Convolutional Networks for Biomedical Image Segmentation[C] //Medical Image Computing and Computer-Assisted Intervention, Munich, Germany, 2015: 234–241.
- [95] OKTAY O, SCHLEMPER J, FOLGOC L L, et al. Attention U-Net: learning where to look for the pancreas[J]. Arxiv, 2018. Doi:10.48550/arxiv.1804.03999.
- [96] SCARSELLI F, GORI M, TSOI A C, et al. The graph neural network model[J]. Ieee T Neural Networ, 2009, 20(1): 61–80.
- [97] GILMER J, SCHOENHOLZ S S, RILEY P F, et al. Neural Message Passing for Quantum Chemistry[C] //Proceedings of the 34th International Conference on Machine Learning - Volume 70, 2017: 1263–1272.
- [98] BATTAGLIA P W, HAMRICK J B, BAPST V, et al. How good is my GAN?[J]. Arxiv, 2018. Doi:10.48550/arxiv.1807.09499.
- [99] THOMAS N, SMIDT T, KEARNES S, et al. Tensor field networks: Rotation- and translation-equivariant neural networks for 3D point clouds[J]. Arxiv, 2018. Doi:10.48550/arxiv.1802.08219.
- [100] FUCHS F B, WORRALL D E, FISCHER V, et al. SE(3)-Transformers: 3D Roto-Translation Equivariant Attention Networks[C] //Advances in Neural Information Processing Systems 33, Virtual, 2020: 1970–1981.
- [101] SATORRAS V G, HOOGEBOOM E, WELLING M. E(n) Equivariant Graph Neural Networks[C] //Proceedings of the 38th International Conference on Machine Learning, Virtual, 2021: 9323–9332.
- [102] KLIPFEL A, BOURAOUI Z, FRÉGIER Y, et al. Equivariant graph neural network for crystalline materials[C] //Proceedings of the 1st International Workshop on Spatio-Temporal Reasoning and Learning, Vienna, Austria, 2022: doi:10.48550/arxiv.2102.09844.
- [103] WANG S, GUO X, ZHAO L. Deep Generative Model for Periodic Graphs[J]. Arxiv, 2022. Doi:10.48550/arxiv.2201.11932.
- [104] JAIN A, ONG S P, HAUTIER G, et al. Commentary: The materials project: A materials genome approach to accelerating materials innovation[J]. Apl Mater, 2013, 1(1): 011002.
- [105] YUE L, BIRU G, XINXIN Z, et al. Machine learning assisted materials design and discovery for rechargeable batteries[J]. Energy Storage Materials, 2020, 31: 434–450.
- [106] SIQI S, ZHANGWEI T, XINXIN Z, et al. Applying data-driven machine learning to studying electrochemical energy storage materials[J]. Energy Storage Sci Technol, 2022, 11(3): 739.
- [107] YUE L, XINXIN Z, ZHENGWEI Y, et al. Machine learning embedded with materials domain knowledge[J]. J Chin Ceram Soc, 2022, 50(3): 863–876.