

# 基于卷积神经网络模型中梯度与特征分析的材料性能优化与预测机理研究

曹 卓<sup>1</sup>, 但雅波<sup>1</sup>, 李 想<sup>1</sup>, 牛程程<sup>2</sup>, 董容智<sup>1</sup>,  
钱松荣<sup>1</sup>, 胡建军<sup>1,3</sup>

(1. 贵州大学机械工程学院, 贵州 贵阳 550025)

(2. 贵州大学 现代制造技术教育部重点实验室, 贵州 贵阳 550025)

(3. 美国南卡罗来纳大学计算机科学与工程系, 南卡罗来纳 哥伦比亚 29208)

**摘 要:** 材料信息学作为材料领域一种新的研究方法, 引起了国内外广泛的关注。随着材料数据的快速增加, 机器学习方法也越来越多地被应用在材料数据的分析中, 并有望从大量的材料数据中获取具有指导性的材料学规律。采用卷积神经网络模型, 使用从材料数据库中收集得到的 4000 多种材料的数据, 对材料的形成能进行预测并得到了较为准确的预测结果。随后对材料特征矩阵的梯度进行分析, 发现了梯度与材料性能间有一定的相关性, 并可在梯度矩阵的指导下找到具有目标性能的材料特征矩阵分布。最后对卷积神经网络中识别出的特征模式进行了分析, 进一步验证了卷积神经网络具有较好的材料性能预测能力。

**关键词:** 材料信息学; 卷积神经网络; 形成能; 梯度分析; 特征抽取

**中图分类号:** TB3    **文献标识码:** A    **文章编号:** 1674-3962(2020)05-0385-06

## Research on Optimization and Prediction Mechanism of Material Properties Based on Gradient and Feature Analysis in Convolution Neural Network

CAO Zhuo<sup>1</sup>, DAN Yabo<sup>1</sup>, LI Xiang<sup>1</sup>, NIU Chengcheng<sup>2</sup>,  
DONG Rongzhi<sup>1</sup>, QIAN Songrong<sup>1</sup>, HU Jianjun<sup>1,3</sup>

(1. School of Mechanical Engineering, Guizhou University, Guiyang 550025, China)

(2. Key Laboratory of Advanced Manufacturing Technology, Ministry of Education, Guizhou University, Guiyang 550025, China)

(3. Department of Computer Science and Engineering, University of South Carolina, Columbia SC 29208, USA)

**Abstract:** As a new research mode in material science, material informatics has attracted wide attention. With the rapid increase of material data, machine learning methods are more and more used in the analysis of material data to obtain instructive physical and chemical laws from a large number of material data. This paper focuses on the convolutional neural network, using data from more than 4000 materials collected from the Material Project database to predict formation energy of materials, and the prediction results are accurate. Then, the gradient of feature map is analyzed, we observe that there are some certain correlations between gradient and material properties, and under the guidance of gradient matrix, the possible distribution of feature map with target properties can be found. Finally, the patterns recognized by the convolutional neural network are analyzed, which further verifies that the convolutional neural network can achieve excellent prediction results of material property.

**Key words:** materials informatics; convolutional neural network; formation energy; gradient analysis; feature extraction

收稿日期: 2019-05-10    修回日期: 2019-06-26

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(51741101)

第一作者: 曹 卓, 男, 1993 年生, 硕士研究生

通讯作者: 胡建军, 男, 1973 年生, 教授, 博士生导师,

Email: jianjunh@cse.sc.edu

DOI: 10.7502/j.issn.1674-3962.201905008

## 1 前 言

近年来, 传统的材料研究模式开始有所转变, 这与 2011 年美国提出的“材料基因组”计划有着极为密切的关

系。“材料基因组”计划试图使用数据驱动的方式加快新材料的发现与应用,建立起新的材料研究模式,成为推动材料学发展的一场革命<sup>[1,2]</sup>。其研究方式主要包括使用高通量实验快速获取大批量材料数据、建立规范的材料数据库、使用机器学习方法对材料的组成、结构和性能进行预测或设计<sup>[3-6]</sup>,相应地,使用这些方法对材料进行研究的学科即被称为材料信息学(materials informatics)<sup>[7]</sup>。在短短几年时间里,材料信息学发展迅速。Takahashi 等<sup>[8]</sup>提出了一种基于第一性原理计算和机器学习的材料合成与设计的研究方法,指出了材料信息学的发展方向 and 存在问题。Keith 等<sup>[9]</sup>综述了机器学习在材料信息学中的应用方法,为材料学研究提供了新的思路。另外,目前已经出现了较多的材料数据库,其中包含了大量的标准化材料数据。如使用第一性原理计算所得数据建立的开源数据库 Materials Project<sup>[10]</sup>、使用高通量实验结果数据建立的开源数据库 inorganic crystal structure database(ICSD)以及国内的材料智能平台 MatCloud、MIP 等,其中 Materials Project 数据库包含了 13 万种无机化合物的元素组成、弹性模量、形成能等多方面材料数据。材料数据的积累为数据驱动下的材料研究提供了可能。

在材料数据库的基础上,机器学习方法逐渐在材料的性能预测与反向设计中发挥重要的指导作用。如 Ward 等<sup>[11]</sup>提出了一种通用的可用于无机材料性能预测的机器学习框架,该框架使用包含材料的原子组成、电子结构和离子特性等物理、化学方面共 136 种数据作为机器学习算法的特征输入,进而对材料的形成能、弹性性能等进行预测,并得到了较高的预测精确度。Ahmad 等<sup>[12]</sup>针对锂电池固体电解质材料数据,使用卷积神经网络对其进行预测和筛选,最终找到了一些可有效抑制金属阳极结晶的固体电解质材料。由此可见,针对一些特定的材料数据并配合适当的机器学习算法,可以有效地发现材料性能背后潜在的物理或化学规律,从而在材料性能计算和新材料发现方面发挥重要作用。另外,在材料信息学研究中,越来越多的研究试图从算法中提取出关于材料性能的机理或规律,因此,具有模式识别功能的卷积神经网络模型常被用于此类问题的研究<sup>[13-16]</sup>。卷积神经网络模型在图像的模式识别任务中表现优异,可有效地侦测出目标图像中存在的模式,通过对模型中的探测器(filters)进行提取,则可以有效揭开模型内部的一些运行机制。若能够将材料表征为合适的数据结构,使用卷积神经网络建立出材料性能预测模型,并有针对性地对模型中识别出的模式进行分析,则可有效发现影响材料性能的因素及其规律。

本文从 Materials Project 数据库中收集了包含过渡金

属和镧系金属共 4030 种晶体材料的结构和形成能数据,并根据原子核外电子轨道分布情况将每种材料表征为对应的二维矩阵,将其用作卷积神经网络的输入数据并建立针对材料形成能的预测模型,之后针对卷积神经网络模型中的梯度参数和特征分布进行提取并分析。

## 2 实验及结果分析

### 2.1 卷积神经网络模型预测

为了能够得到适用于卷积神经网络的二维材料数据,作者选择使用 Tien 等<sup>[17]</sup>提出的轨道场矩阵(orbital field matrix, OFM)描述符对应的表征方法对 4030 种晶体材料进行处理,即先根据原子的核外电子轨道分布将材料数据集中出现的所有原子编码为长度为 32 的一维向量,在对材料进行表征时,根据材料的原子种类、原子个数和原子间距离等信息,利用对原子编码后的一维向量将其表征为  $32 \times 32$  的二维矩阵,作为最终的输入数据以供卷积神经网络使用。由于 OFM 描述符中融入了原子轨道中的电子分布和原子间距离等信息,因此得到的二维矩阵会将这些信息保留在数据的相互位置关系中,这使得卷积神经网络对该矩阵的分布进行模式识别具有了一定意义。接着,作者搭建出适用于该特征矩阵的卷积神经网络模型,并对材料的形成能进行预测,使用了贝叶斯优化算法<sup>[18]</sup>对卷积核个数和尺寸等超参数进行了调整,为了避免过拟合,在训练过程中分别对训练集误差和测试集误差进行监控,并在测试集误差增大前终止训练。最终的模型结构如图 1 所示,包括 3 个卷积层和 2 个全连接层,得到的十次十折交叉验证结果的平均绝对误差为 0.09 eV/atom,拟合优度高达 0.98,结果显示该模型能够有效地提取数据特征且掌握数据间的潜在规律,从而得到较为准确的预测结果。

### 2.2 特征矩阵梯度分析

为了进一步获取卷积神经网络模型中的深层信息,作者对特征矩阵(feature map)的梯度参数进行了分析<sup>[19,20]</sup>。首先,选择使用  $\text{Cu}_3\text{Au}$  的二维特征矩阵作为输入样本,其形成能为 -3.59 eV/atom,如图 2 所示,其形成能在所使用的数据集中为较低值。然后从卷积神经网络中提取出该输入矩阵对应的二维梯度矩阵进行对比分析。为了便于观察,作者将其 OFM 特征矩阵和梯度矩阵进行了可视化,如图 3 所示,其中左图表示特征矩阵,右图表示对应的梯度矩阵,特征矩阵中的不同颜色对应不同的取值,梯度矩阵中的红色区域对应正梯度值,蓝色区域对应负梯度值。对照观察两张图片可以发现:在梯度矩阵中的 X 方向和 Y 方向的 p2 至 p6 围成的矩形区域梯度值为负,而对应特征矩阵中的取值却不为零;在梯度矩阵中的 X 方向 p1 至 d8、Y 方向 d3 至 d8 围成区域

和X方向d3至d8、Y方向p1至d2围成区域梯度值为正，而对应的特征矩阵中的取值为零。因此，若要根据梯度矩阵得到具有较大形成能的材料，则可在特征矩阵中减小负梯度区域的数据值并增大正梯度区域的数据值。如先将已知材料表征为特征矩阵，再对比找出目标材料，或根据正负梯度所在的区域，使用电子轨道分布与其相符合的原子组合出可能的目标材料。

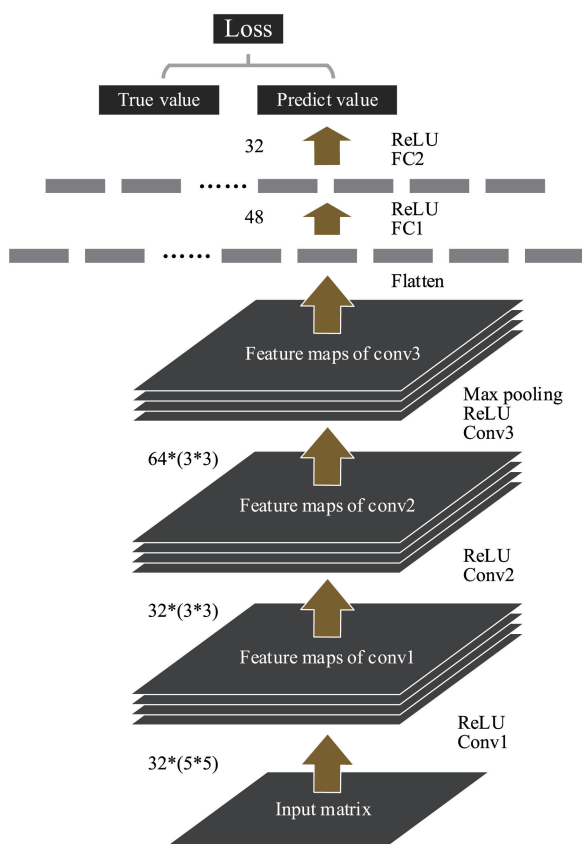


图1 卷积神经网络模型结构

Fig. 1 Architecture of convolutional neural network

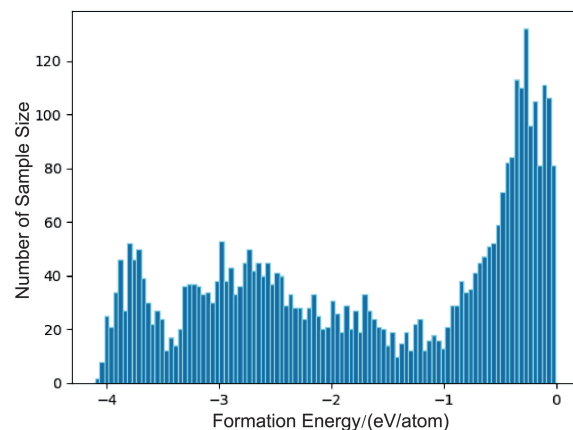
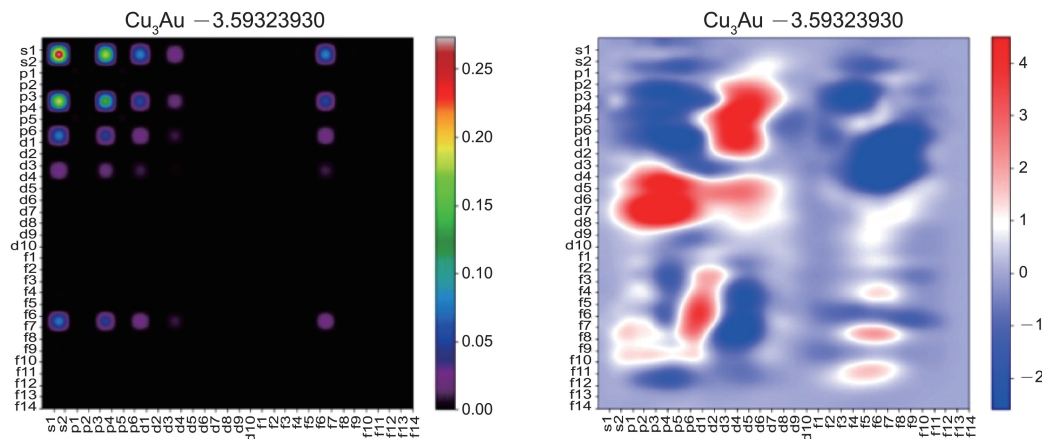


图2 数据集中形成能取值分布

Fig. 2 Formation energy distribution in data set

作者在数据集中找出了形成能为 $-0.18 \text{ eV/atom}$ 的 $\text{V}_3\text{AuN}$ ，其对应的形成能在数据集中较大。同样地，对 $\text{V}_3\text{AuN}$ 的特征矩阵和梯度矩阵进行了可视化，如图4所示。其特征矩阵数据分布与 $\text{Cu}_3\text{Au}$ 较为相似，但仔细观察可以发现，在特征矩阵中的X方向和Y方向的p2至p6围成区域中数据点有所减少，而X方向p1至d8、Y方向d3至d8围成区域和X方向d3至d8、Y方向p1至d2围成区域中数据点有所增加，因此其形成能的取值较 $\text{Cu}_3\text{Au}$ 也有所增加。这一现象在一定程度上表明了特征矩阵对形成能的影响具有一定的规律性，根据特征矩阵对应的梯度值可有效地找到具有较大或较小形成能的材料特征矩阵分布，为找到具有目标性能的材料提供了一种思路。另外，在 $\text{V}_3\text{AuN}$ 的梯度矩阵中，没有出现较大的正梯度或负梯度区域，这是因为其对应的形成能在所使用的数据集中接近取值上限，难以根据样本规律突破上限预测得到数据集以外的取值，因此梯度取值普遍接近于零。为了得到更普遍的观察结果，分别选取数据

图3  $\text{Cu}_3\text{Au}$  对应的二维特征矩阵与梯度矩阵Fig. 3 Feature map and gradient matrix of  $\text{Cu}_3\text{Au}$



集中 100 个形成能较小和较大的样本, 得到其平均特征矩阵和平均梯度矩阵如图 5 所示, 可以看出, 形成能较小的样本特征数据主要集中在左上角区域, 梯度矩阵中存在较大的正梯度和负梯度区域; 而形成能较大的特征矩阵中数据分布较分散, 主要分布在矩阵上侧、左侧以及对角线区域, 并且自身的梯度矩阵取值普遍接近于

零, 没有明显的正、负梯度区域, 可见形成能的取值大小与特征矩阵数据分布确实存在一定的对应关系, 且使用对应的梯度分析使得该现象具有了一定的可解释性。

然而, 对于形成能较大的样本, 其梯度接近于零的现象并不是绝对的, 这是因为卷积神经网络对样本进行学习后具有一定的向外预测能力, 通过对大量的梯度矩

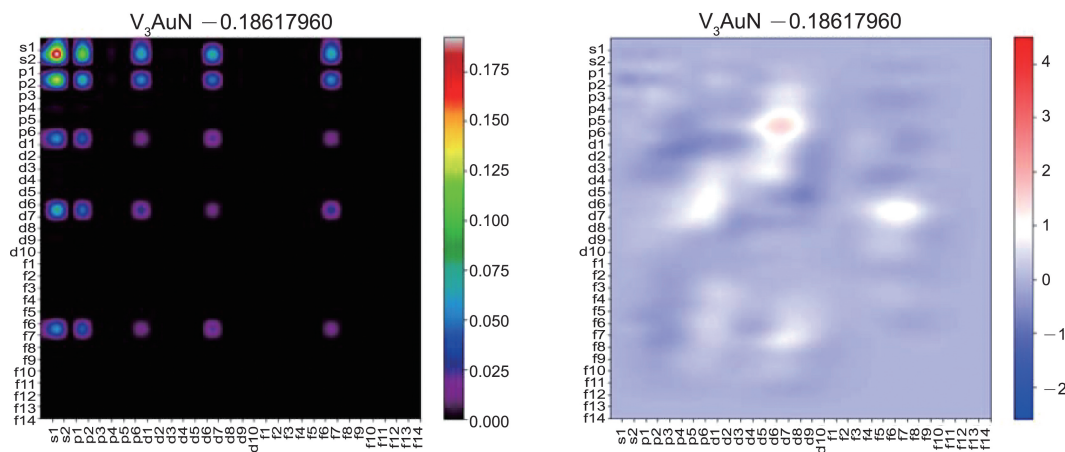


图 4  $V_3AuN$  对应的二维特征矩阵与梯度矩阵

Fig. 4 Feature map and gradient matrix of  $V_3AuN$

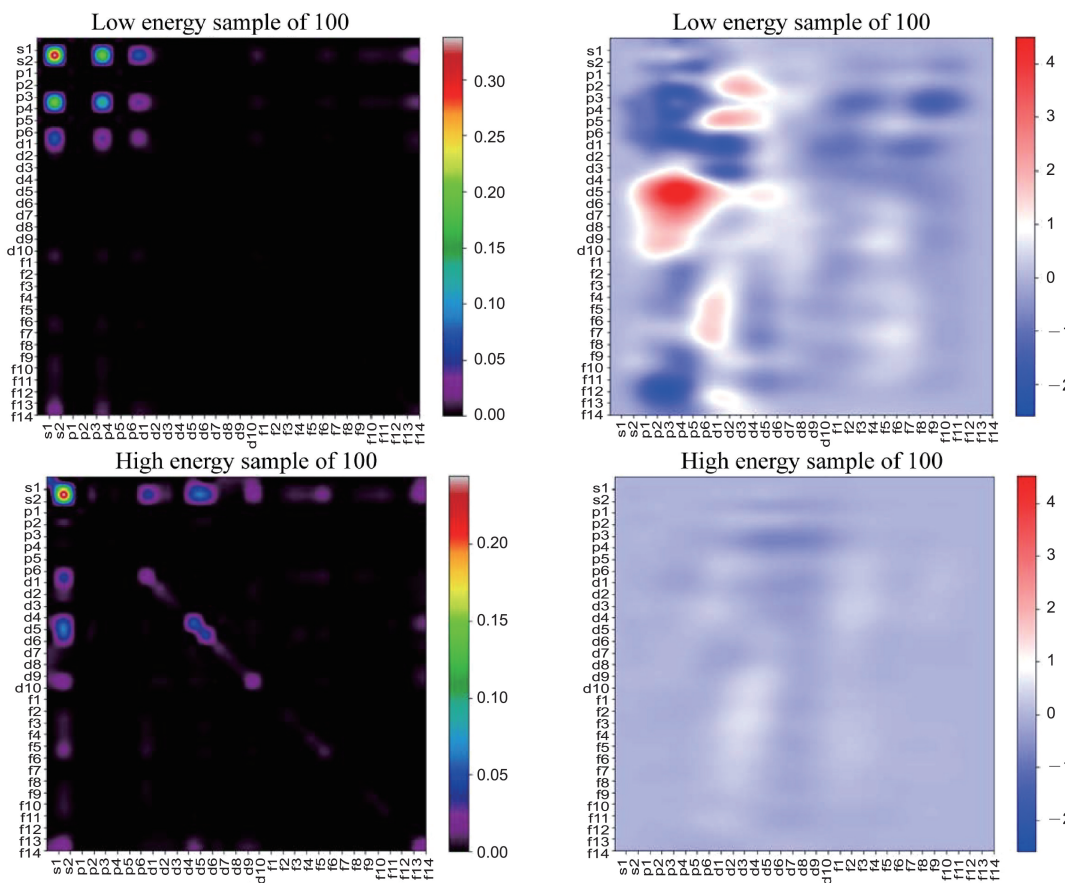


图 5 形成能较小和较大的 100 个样本的平均特征矩阵和平均梯度矩阵

Fig. 5 The average feature map and the average gradient matrix of 100 samples with smaller and larger formation energy



阵进行观察,发现其中一些仍然存在着较大的正梯度或负梯度区域。如图6所示,上方为YZr的特征矩阵与梯度矩阵,其具有在数据集中较大的形成能 $-0.11\text{ eV/atom}$ ,然而其梯度矩阵中仍然存在明显的正、负梯度区域。于是,作者试图在样本集外找到其梯度矩阵指导下具有更大形成能的特征矩阵对应的材料,即下方特征矩阵对应的材料 $\text{Zr}_3\text{V}_3\text{O}$ ,可以看到其特征矩阵在负梯度区域的取值减小,正梯度范围取值几乎不变,因此对应的形成能

提高到了 $0.10\text{ eV/atom}$ ,且在梯度矩阵中的对应区域正负梯度值随之减弱,对形成能的影响也随之减弱,即梯度矩阵对特征矩阵的变化做出了响应,这也证实了样本对应的特征矩阵与梯度矩阵之间确实存在着一定的相关性。

最后,作者对卷积神经网络中每个卷积层的卷积核进行可视化,如图7所示。卷积核作为卷积神经网络中的重要组成部分,通过在样本数据集中的训练,卷积核

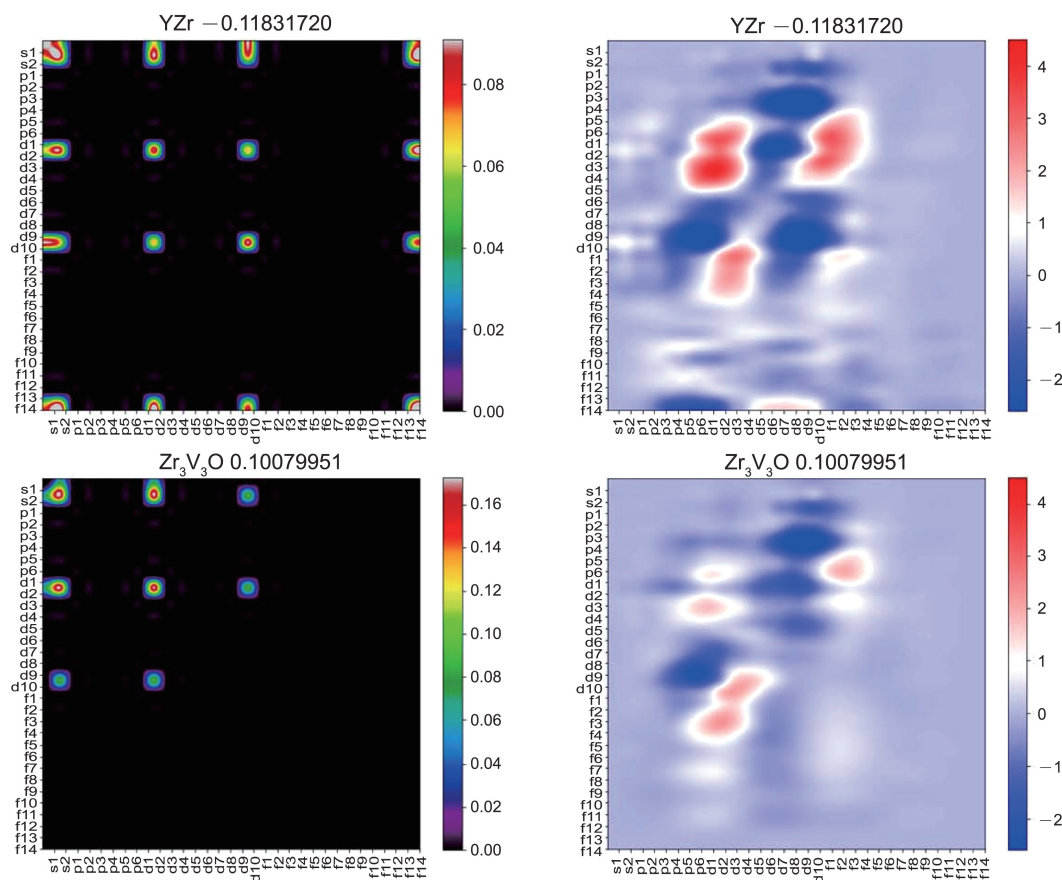


图6 YZr和 $\text{Zr}_3\text{V}_3\text{O}$ 的特征矩阵与梯度矩阵

Fig. 6 Feature map and gradient matrix of YZr and  $\text{Zr}_3\text{V}_3\text{O}$

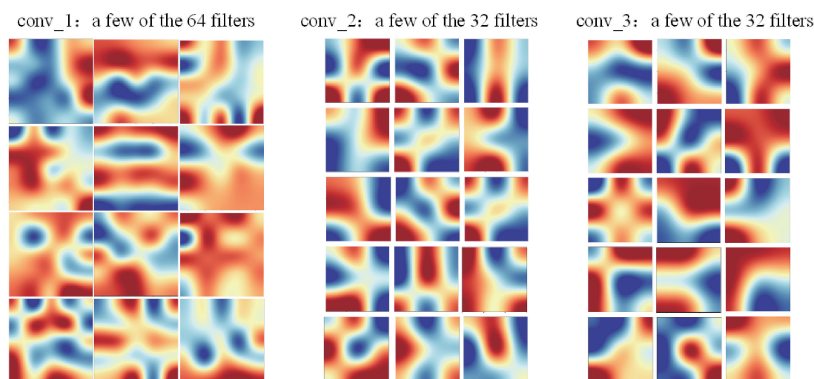


图7 卷积神经网络中的卷积核

Fig. 7 Convolutional kernel in convolutional neural network

会不断根据样本特征做出变化,最后形成一定的模式,即将样本特征中的模式进行了保留,通过对卷积核进行分析,可以有效地验证网络模型的学习效果<sup>[21]</sup>。观察图 7 可以看出,卷积核特征矩阵中数据点的分布模式能够很好地识别,且不同卷积层的卷积核有所不同,更深层的卷积核特征矩阵模式的局部细节会有更好的识别,如四点分布、条状分布等。

### 3 结 论

在材料数据快速积累的背景下,机器学习和深度学习在材料信息学研究中发挥着愈加重要的作用。本文针对过渡金属和镧系金属化合物,从 Materials Project 材料数据库中收集得到 4000 多种材料的结构和形成能信息,通过 OFM 描述符对应的表征方法,根据电子结构信息将材料表征为二维特征矩阵,并利用卷积神经网络对材料的形成能进行预测,得到了较为准确的预测结果。另外,为能够从卷积神经网络中得到更多具有指导性的规律,我们将材料特征矩阵与卷积神经网络中对应的梯度矩阵进行了分析,发现样本对应的特征矩阵与梯度矩阵间存在一定的相关性,通过梯度矩阵的指导,能够找到可能存在的具有较大形成能的特征矩阵分布。最后,我们对卷积神经网络中的卷积核进行了可视化分析,发现其能够有效地识别出特征矩阵中的分布模式,这也是卷积神经网络能够对形成能进行准确预测的原因之一。通过卷积神经网络可以快速准确地得到与第一性原理计算值具有可比性的材料性能预测结果。通过梯度分析方法可以有效地得到具有一定指导性的规律,这为材料信息学的研究提供了一种新的思路。

#### 参考文献 References

- [1] WARD L, WOLVERTON C. Current Opinion in Solid State and Materials Science[J], 2017, 21(3): 167-176.
- [2] YUNQI L, LUNYANG L, WENDUO C, *et al.* Scientia Sinica Chimica [J], 2018, 48(3): 243.
- [3] CALFA B A, KITCHIN J R. Aiche Journal[J], 2016, 62(8): 2605-2613.
- [4] STANEV V, OSES C, KUSNE A G, *et al.* npj Computational Materials [J], 2018, 4(1): 29-42.
- [5] ZHOU Q, TANG P, LIU S, *et al.* Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America[J], 2018, 115(28): E6411-E6417.
- [6] HIMMETOGLU B. Journal of Chemical Physics [J], 2016, 145(13410113): 1-9.
- [7] YOSIPOF A, SHIMANOVICH K, SENDEROWITZ H. Molecular Informatics[J], 2016, 35(11/12): 568-579.
- [8] TAKAHASHI K, TANAKA Y. Dalton Transactions (Cambridge, England: 2003)[J], 2016, 45(26): 1497.
- [9] BUTLER K T, DAVIES D W, CARTWRIGHT H, *et al.* Nature[J], 2018, 559(7715): 547-555.
- [10] JAIN A, SHYUE P O, HAUTIER G, *et al.* APL Materials[J], 2013, 1(0110021): 1-13.
- [11] WARD L, AGRAWAL A, CHOUDHARY A, *et al.* npj Computational Materials[J], 2016, 2(16028): 1-7.
- [12] AHMAD Z, XIE T, MAHESHWARI C, *et al.* ACS Central Science [J], 2018, 4(8): 996-1006.
- [13] KAJITA S, OHBA N, JINNOUCHI R, *et al.* Scientific Reports[J], 2017, 7(1): 1-9.
- [14] ZILETTI A, KUMAR D, SCHEFFLER M, *et al.* Nature Communications[J], 2018, 9(1): 2775-2790.
- [15] XIE T, GROSSMAN J C. Physical Review Letters [J], 2018, 120(14): 145301-145306.
- [16] CAO Z, DAN Y, XIONG Z, *et al.* Crystals[J], 2019, 9(4): 191-206.
- [17] TIEN L P, KINO H, TERAOKURA K, *et al.* Science and Technology of Advanced Materials[J], 2017, 18(1): 756-765.
- [18] SHAHRIAR B, SWERSKY K, WANG Z, *et al.* Proceedings of The IEEE[J], 2016, 104(1): 148-175.
- [19] UMEHARA M, STEIN H S, GUEVARRA D, *et al.* npj Computational Materials[J], 2019, 5(1): 1-9.
- [20] The proceedings of the 13th European Conference on Computer Vision, ECCV 2014[C]. Berlin: Springer International Publishing, 2014.
- [21] CHOLLET F. How Convolutional Neural Networks See the World[EB/OL]. (2016-1-30)[2019-6-20]. <https://blog.keras.io/how-convolutional-neural-networks-see-the-world.html>.

(编辑 惠 琼)