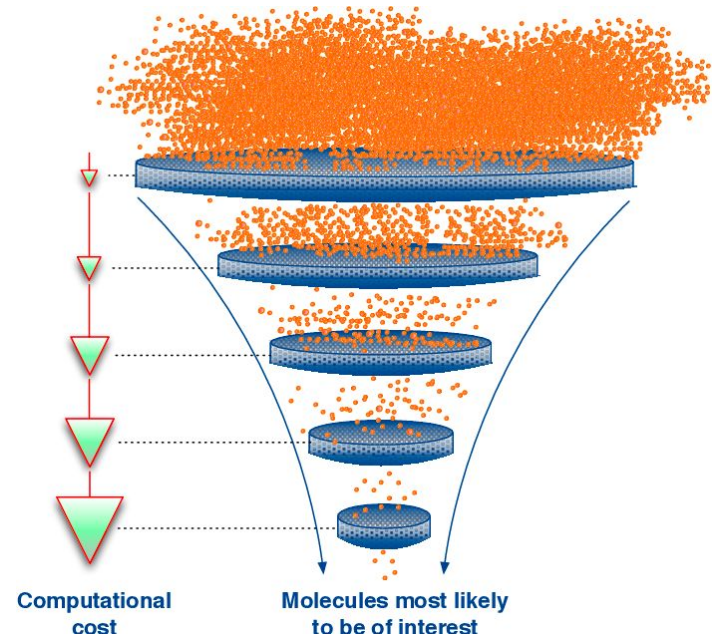


Graph Neural Networks équivariant et modèle de diffusion

GdR GDM 2023

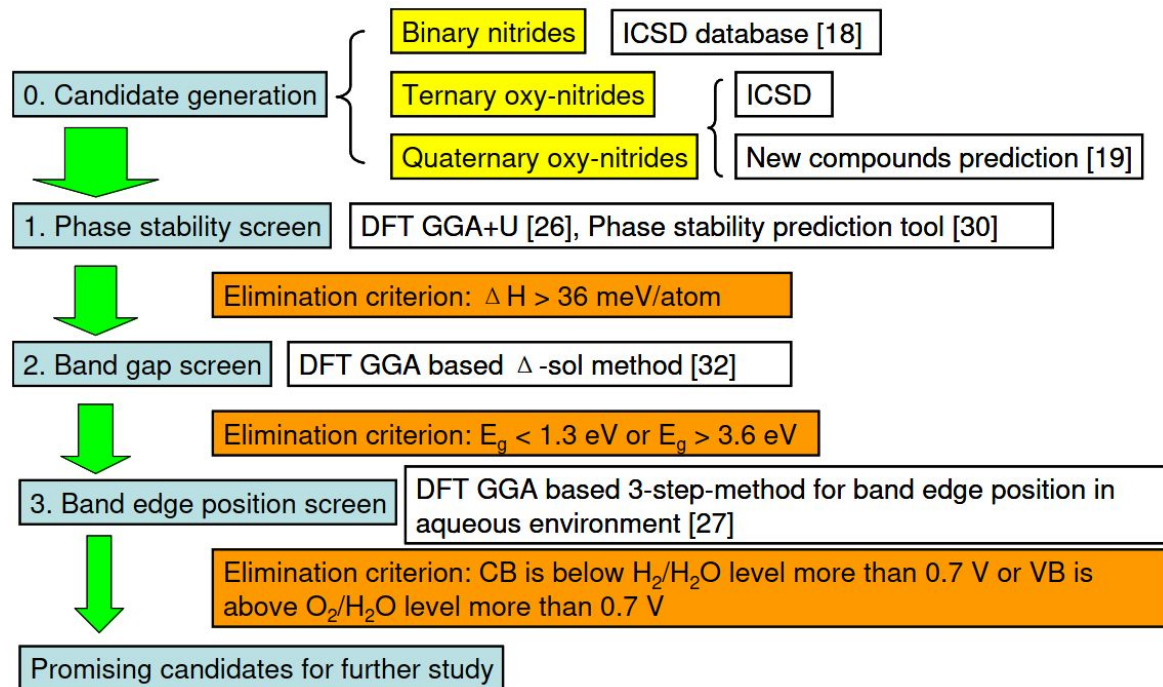
Criblage à haut débit

- Recherche de nouveaux matériaux
 - Large échelle
- Techniques employées
 - Machine learning
 - Simulation ab-initio et DM
 - Expérimentation



Criblage à haut débit: application à la photocatalyse

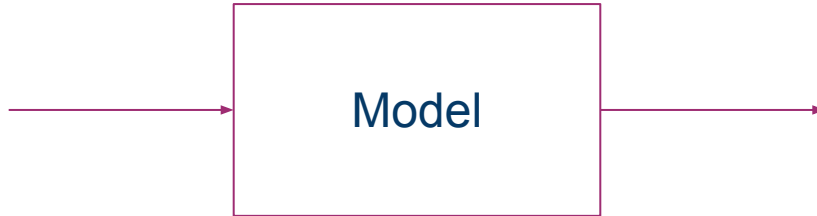
- Production d'hydrogène solaire
- Semi conducteur
 - Stabilité
 - Structure de bande
- Comment trouver des candidats?



Paradigme d'apprentissage

Régression :

Structure
cristalline

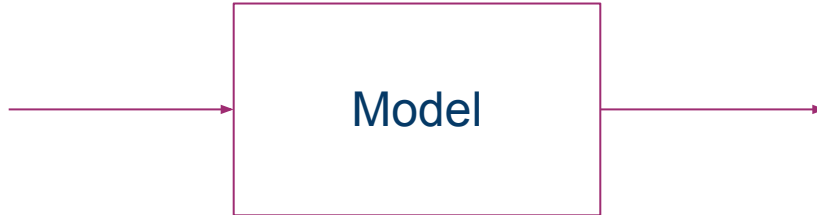


Propriétés:

- énergie de formation
- band gap
- ...

Génération :

\mathcal{N}
(tirage aléatoire)

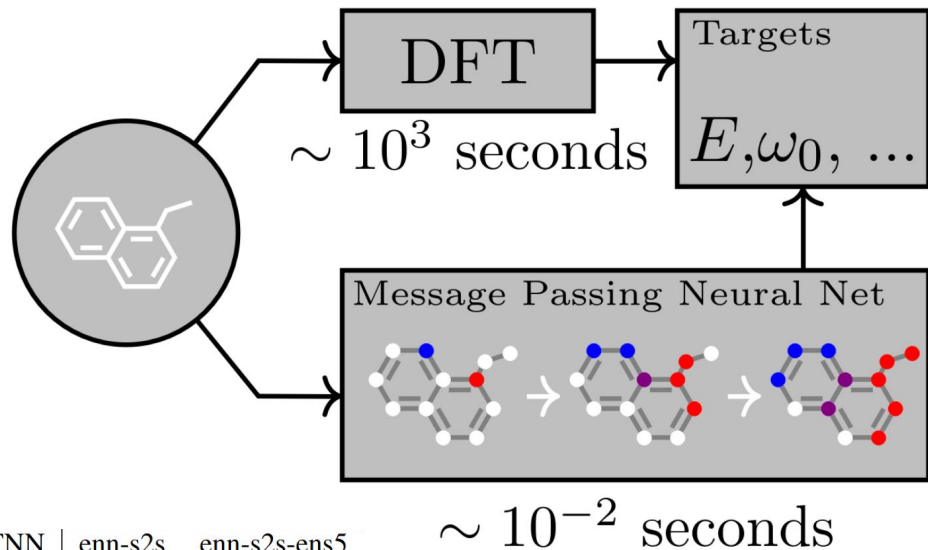


Structure
cristalline

Neural Message Passing for Quantum Chemistry

Gilmer et al., ICML 2017

- Chimie organique
- Tâche de régression/classification
- Introduction passage de message en ML appliqué à la chimie

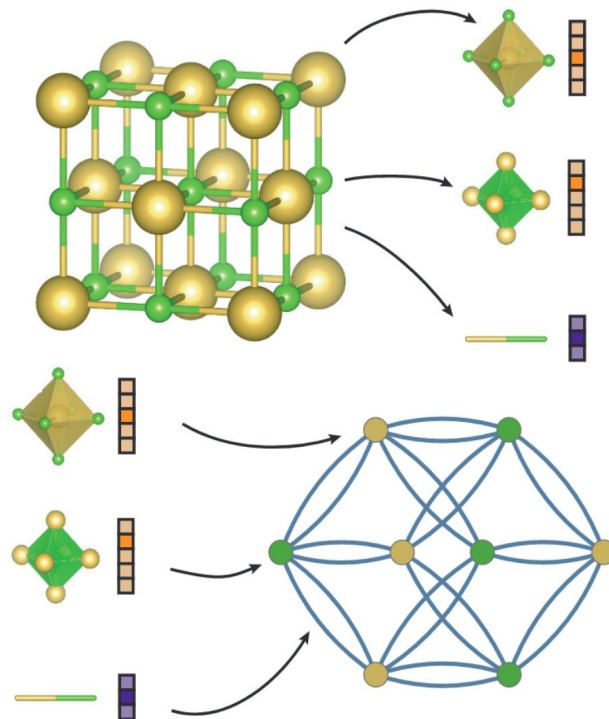
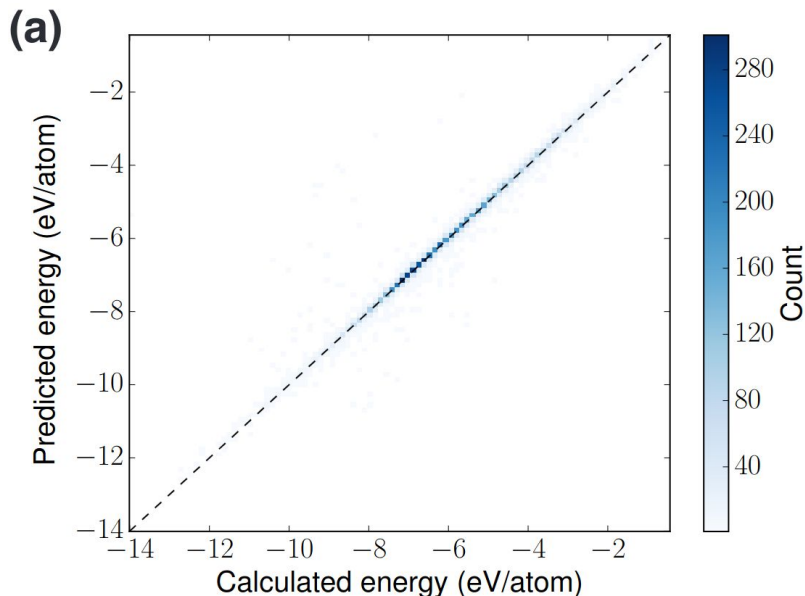


Target	BAML	BOB	CM	ECFP4	HDAD	GC	GG-NN	DTNN	enn-s2s	enn-s2s-ens5
HOMO	2.20	2.20	3.09	2.89	1.54	1.18	1.17	-	0.99	0.74
LUMO	2.76	2.74	4.26	3.10	1.96	1.10	1.08	-	0.87	0.65
gap	3.28	3.41	5.32	3.86	2.49	1.78	1.70	-	1.60	1.23
U0	1.21	1.43	2.98	85.01	0.58	3.02	0.83	-	0.45	0.33
U	1.22	1.44	2.99	85.59	0.59	3.16	0.86	-	0.45	0.34

Crystal Graph Convolutional Neural Networks for an Accurate and Interpretable Prediction of Material Properties

Xie et al., *Physical Review Letters* 2018

- Adaptation aux matériaux (périodicité)



Equivariance et réseau de neurone

Théorème d'approximation universelle

Théorème d'approximation universelle: Soit $C(X, Y)$ l'ensemble des **fonctions continues** de X vers Y . Soit $\sigma \in C(\mathbb{R}, \mathbb{R})$. Notons que $(\sigma \circ x)_i = \sigma(x_i)$, c'est à dire que $\sigma \circ x$ représente l'application de σ à chacune des composantes de x .

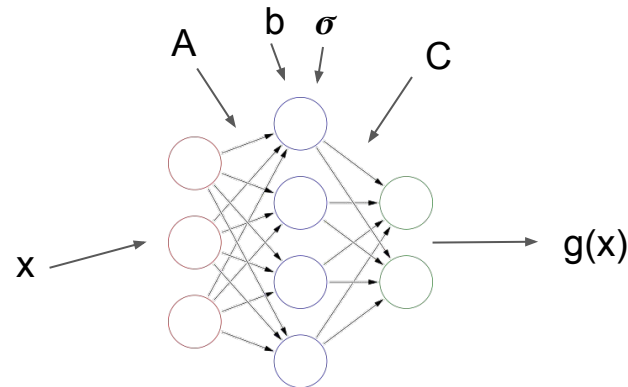
Alors σ n'est pas **polynomiale si et seulement si**

pour tout $n \in \mathbb{N}$, $m \in \mathbb{N}$, pour tout sous-espace **compact** $K \subseteq \mathbb{R}^n$, pour tout $f \in C(K, \mathbb{R}^m)$ et pour tout $\varepsilon > 0$, il existe $k \in \mathbb{N}$, $A \in \mathbb{R}^{k \times n}$, $b \in \mathbb{R}^k$ et $C \in \mathbb{R}^{m \times k}$, tels que:

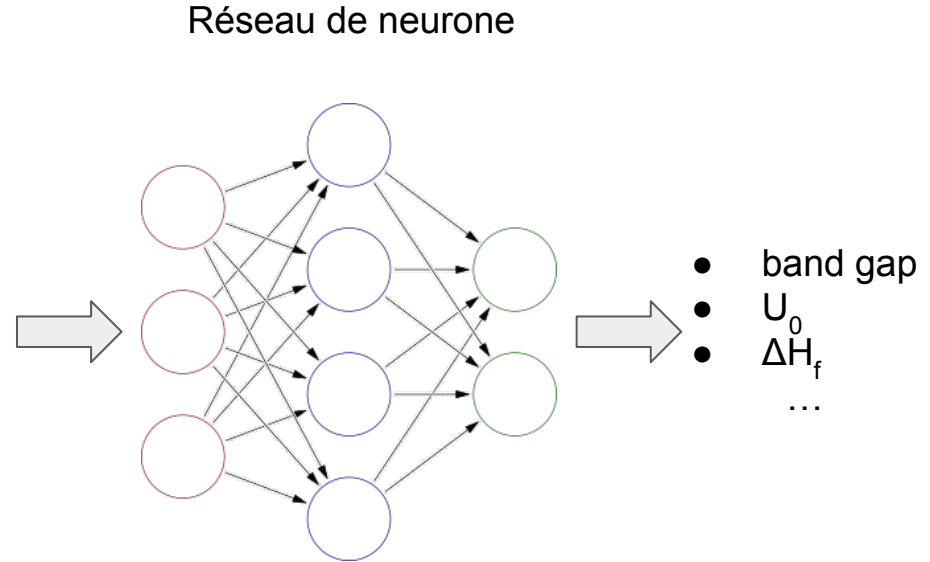
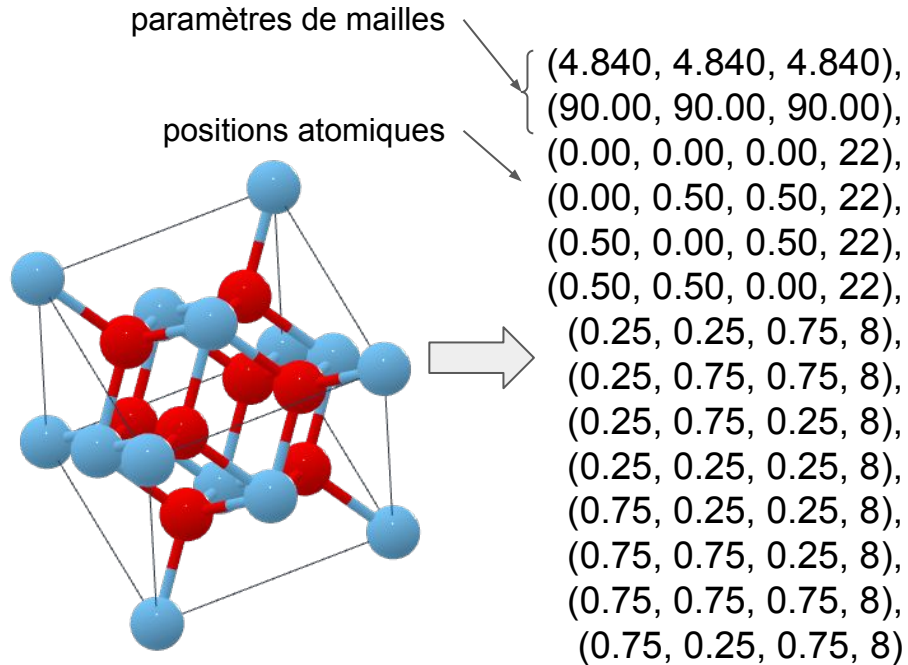
$$\sup_{x \in K} \|f(x) - g(x)\| < \varepsilon$$

où

$$g(x) = C \cdot (\sigma \circ (A \cdot x + b))$$

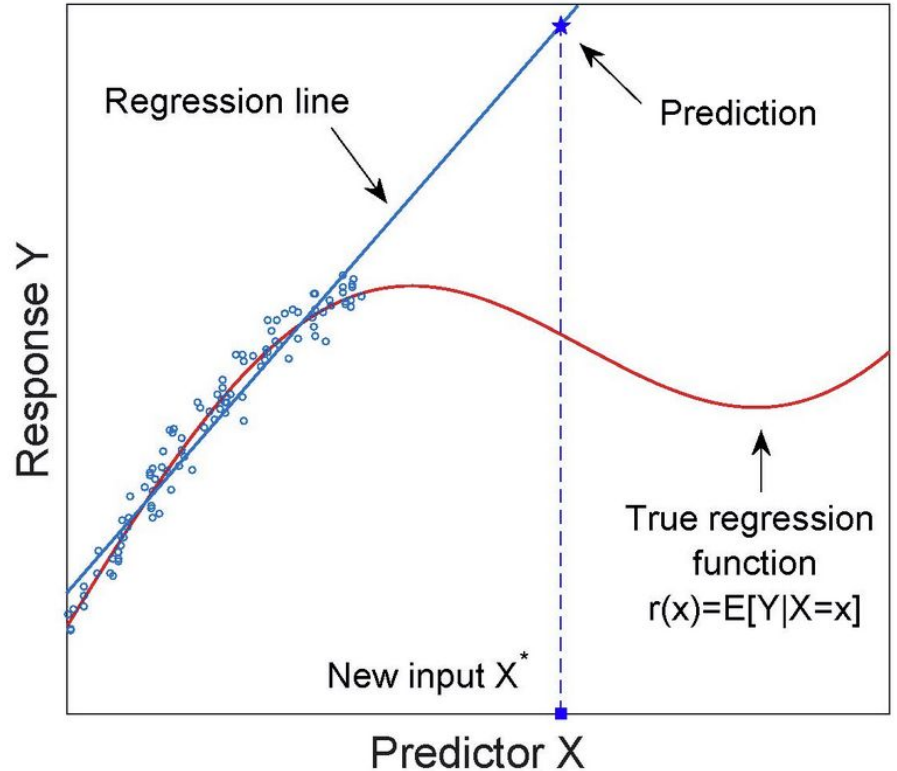


Méthode naïve



Interpolation vs Extrapolation

- Modèle de machine learning
 - Bon en interpolation
 - Mauvais en extrapolation
- Solution
 - Exploiter les symétries
 - Théorie des groupes

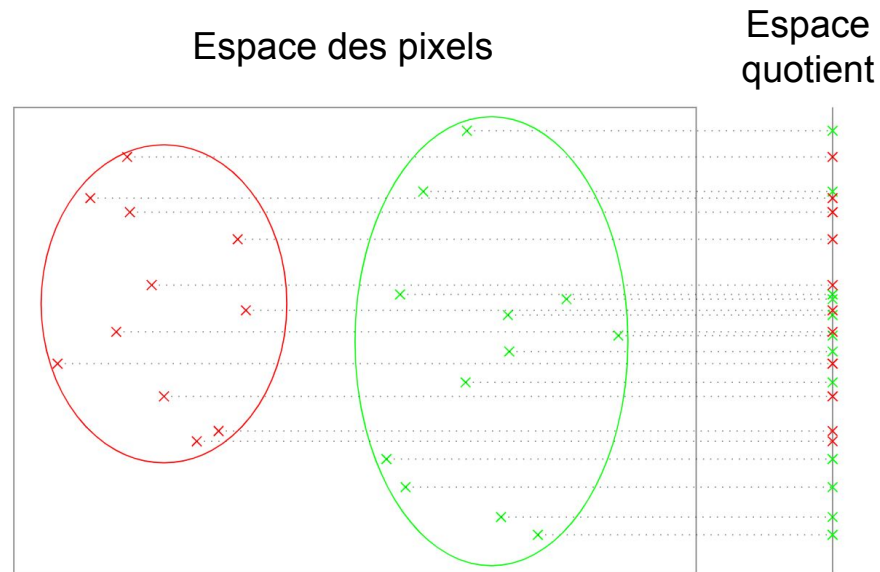


Théorie des groupes et machine learning

- On cherche à classifier en observant uniquement certains pixel
- Symétrie: translation horizontale
 - Groupe des translations
 - Relations d'équivalence entre pixel
 - Définition d'un espace quotient




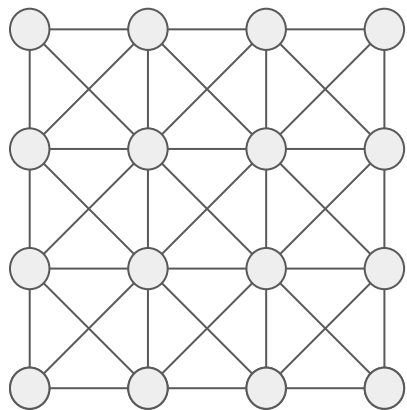
Ensemble de drapeaux à classifier



Equivalence avec les MPNN

On peut généralement reformuler les modèles connues comme des MPNN

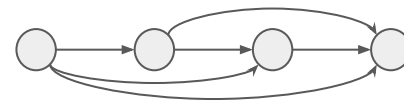

Dense (NN)



Convolution (CNN)



Récurrent (LSTM)



Transformer

Matériaux et graphes

Notations et définitions

Ensemble des matériaux périodiques

$$\mathcal{M}_n^F = \{(\rho, x, z) \mid \rho \in GL_d(\mathbb{R}), x \in [0, 1]^{n \times d}, z \in F^n\}$$

↑
Positions atomiques

Maille Informations chimiques

Ensemble de tous les matériaux:

$$\coprod_{n \in \mathbb{N}} \mathcal{M}_n^F$$

Ensemble des matériaux périodiques

$$\langle M \rangle = \{(\rho \cdot (x_i + \tau), z_i) \mid \tau \in \mathbb{Z}^d, 1 \leq i \leq n\} \subseteq \mathbb{R}^d \times F$$

Actions de groupes

\mathfrak{S}_n (permutation) :

$$\sigma \cdot (\rho, x, z) = (\rho, x \circ \sigma^{-1}, z \circ \sigma^{-1})$$

$O(d)$ (orthogonale) :

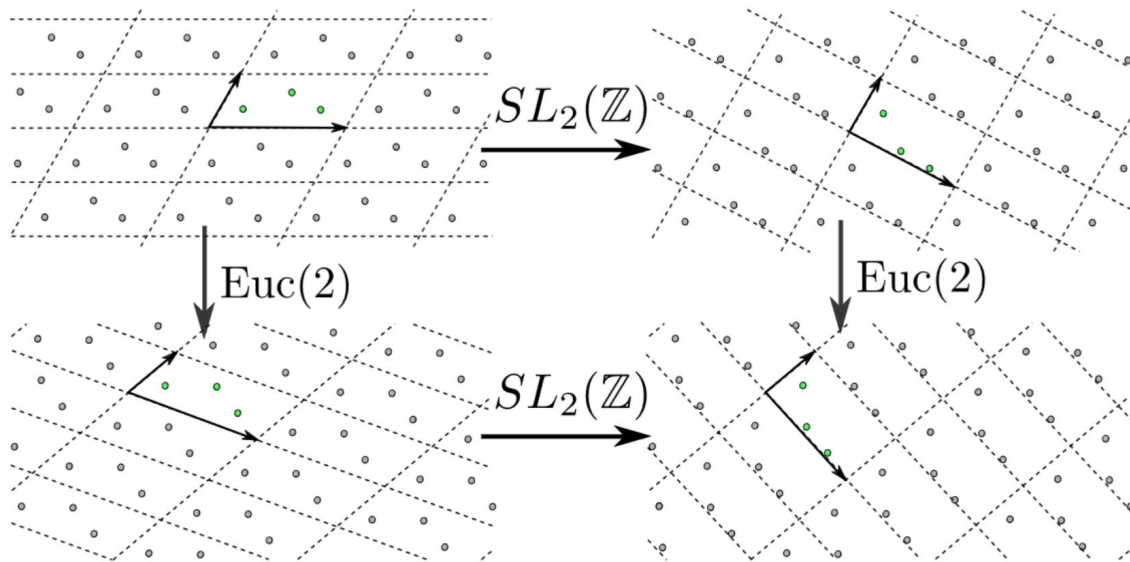
$$g \cdot (\rho, x, z) = (\rho \cdot g^{-1}, [gx], z)$$

E (translation) :

$$v \cdot (\rho, x, z) = (\rho, [x + \rho^{-1}v], z)$$

$SL_d(\mathbb{Z})$ (pavage alternatif) :

$$g \cdot (\rho, x, z) = (g \cdot \rho, x, z)$$



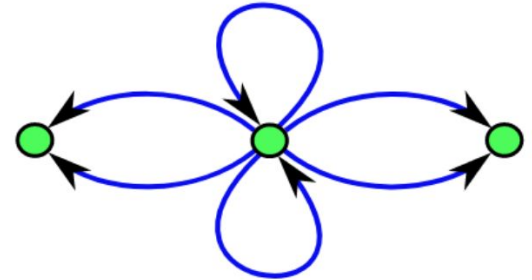
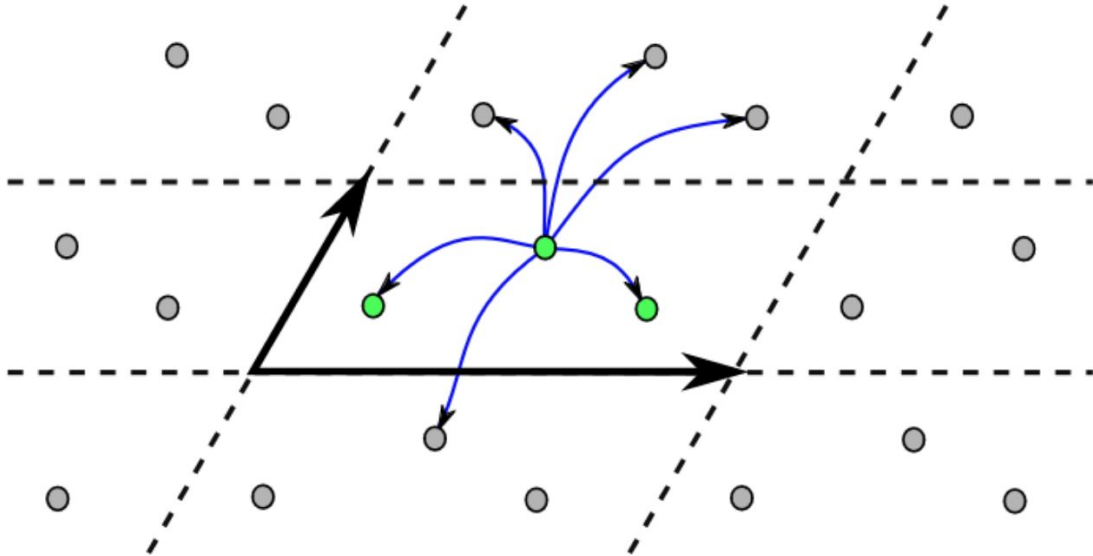
Graphe

- En fonction de l'environnement local des noeuds

$$\Gamma_0 = \{1, \dots, n\}$$

$$\Gamma_1 = \{(i, j, \tau) \in \Gamma_0 \times \Gamma_0 \times \mathbb{Z}^d \mid \|\rho(x_j - x_i + \tau)\| < c_i\}$$

$$\Gamma_2 = \{(\gamma, \gamma') \in \Gamma_1 \times \Gamma_1 \mid \text{tgt}(\gamma) = \text{src}(\gamma')\}$$



Géométrie et graphe

- Grandeur géométrique du graphe
 - Invariante/équivariante en fonction du groupe qui agit

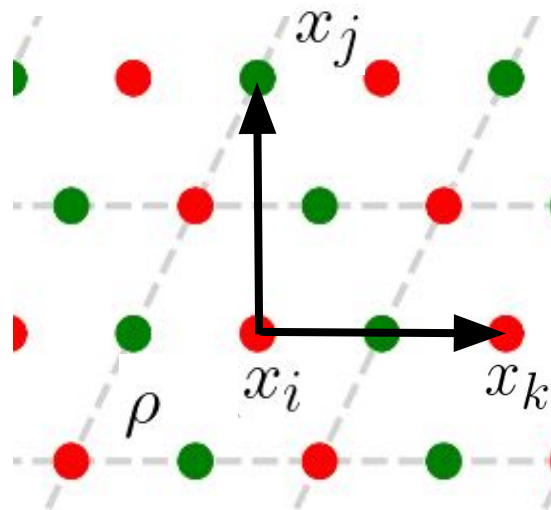
$$e_{ij}^\tau = x_j - x_i + \tau$$

$$v_{ij}^\tau = \rho e_{ij}^\tau$$

$$r_{ij}^\tau = \|v_{ij}^\tau\|$$

$$\theta_{ijk}^{\tau\tau'} = \text{atan2}(\|v_{ij}^\tau \wedge v_{ik}^{\tau'}\|, v_{ij}^\tau \cdot v_{ik}^{\tau'})$$

$$\mathcal{A}_{ijk}^{\tau\tau'} = \frac{1}{2} \|v_{ij}^\tau \wedge v_{ik}^{\tau'}\|$$

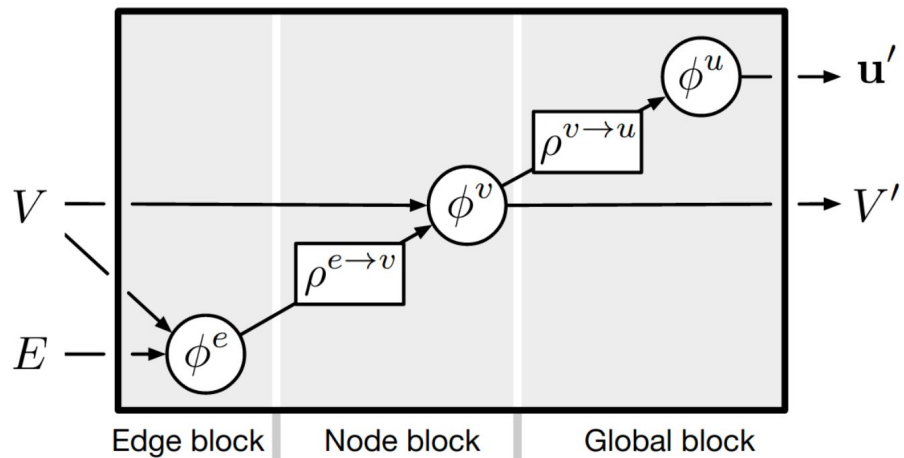
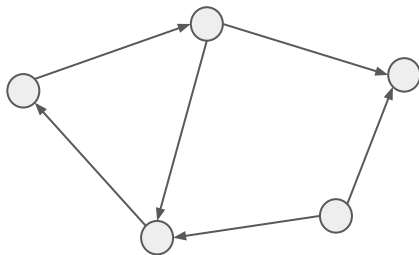


Graph Neural Network et processus de diffusion

Relational inductive biases, deep learning, and graph networks

Battaglia et al., 2018

- MPNN
 - Propagation des messages par les arêtes du graphe
 - Agrégation des messages par les noeuds



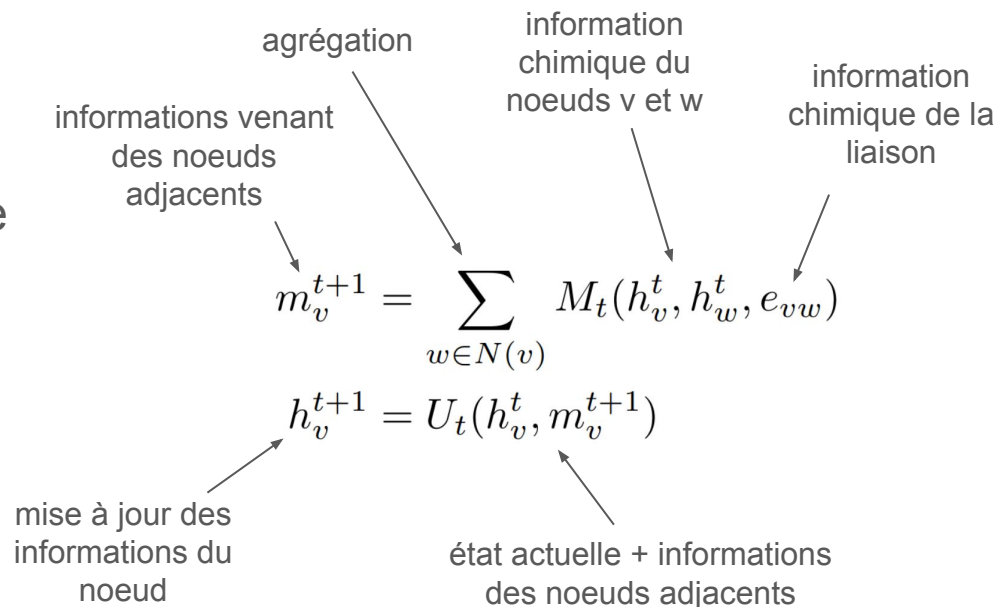
(c) Message-passing neural network

Neural Message Passing for Quantum Chemistry

Gilmer et al., ICML 2017

- Classification/régression tasks
- Introduction des MPNN en chimie
- Pas d'information géométrique

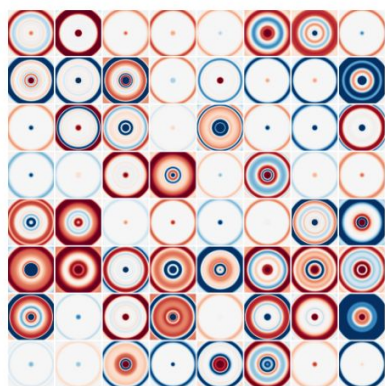
(informations cachées dans le type de liaisons)



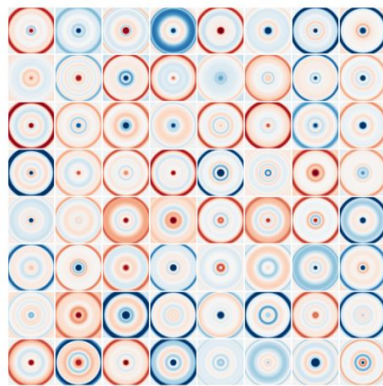
SchNet: A continuous-filter convolutional neural network for modeling quantum interactions

Schütt et al., NIPS 2017

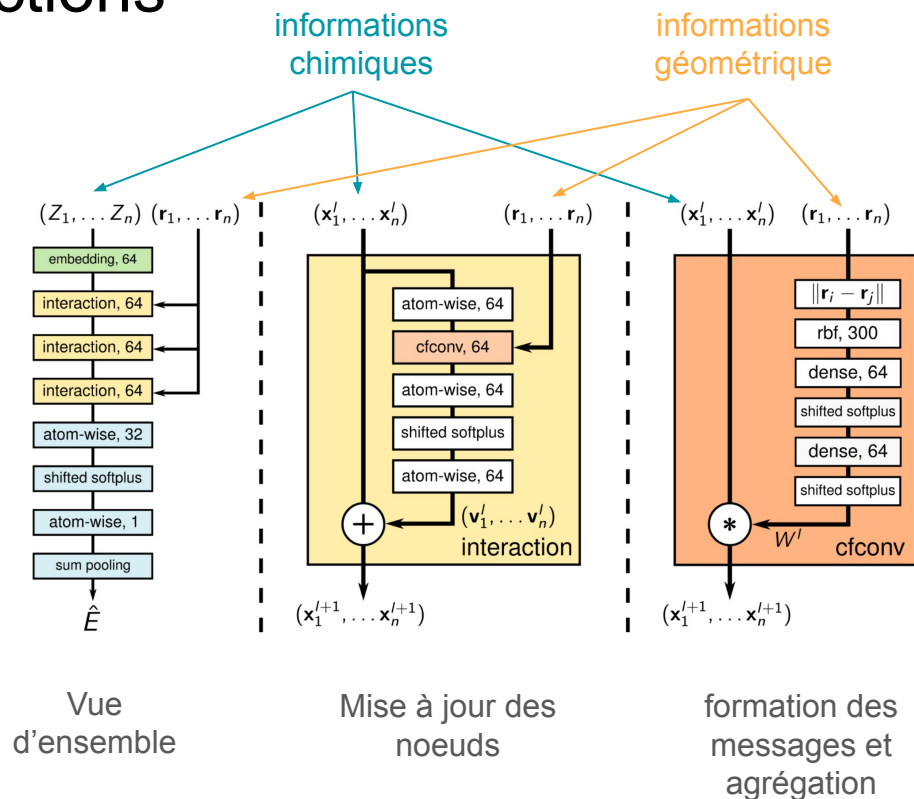
- Classification/régression
- Avec information géométrique
 - distances interatomique



(a) 1st interaction block



(b) 2nd interaction block



E(n) Equivariant Graph Neural Networks

Satorras et al., ICML 2021

- Classification/régression + reconstruction
- Equivariant - E(n)
 - Translation
 - Rotation
 - Réflexion

informations équivariantes

Pondération

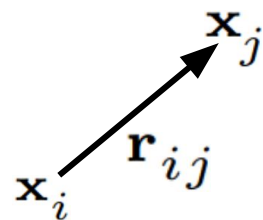
$$\hat{\mathbf{m}}_{ij} = \mathbf{r}_{ij}^l \phi_x(\mathbf{m}_{ij})$$

$$\hat{\mathbf{m}}_i = C \sum_{j \neq i} \hat{\mathbf{m}}_{ij}$$

$$\mathbf{x}_i^{l+1} = \mathbf{x}_i^l + \hat{\mathbf{m}}_i$$

Agrégation

Mise à jour des positions



Arêtes entre le
noeuds i et j

Problématique: extension aux matériaux

Action sur une molécule :

$$x'_i = x_i + g_i$$

Action sur un cristal :

$$\begin{cases} \rho' = g\rho \\ x'_i = [x_i + g_i] \end{cases}$$

← Action sur la maille

← Action sur les positions atomiques

Equivariant Message Passing Neural Network for Crystal Material Discovery

Klipfel, Peltre et al., AAAI 2023

Action équivariante sur la maille d'un matériau

$$\rho' = \exp \left(\frac{1}{|\Gamma_2|} \sum_{(\gamma, \gamma') \in \Gamma_2} \varphi_{\theta}^{\rho} (m_{\gamma}, m_{\gamma'}, \theta_{\gamma\gamma'}) \cdot \lambda_{\gamma\gamma'} \right) \cdot \rho$$

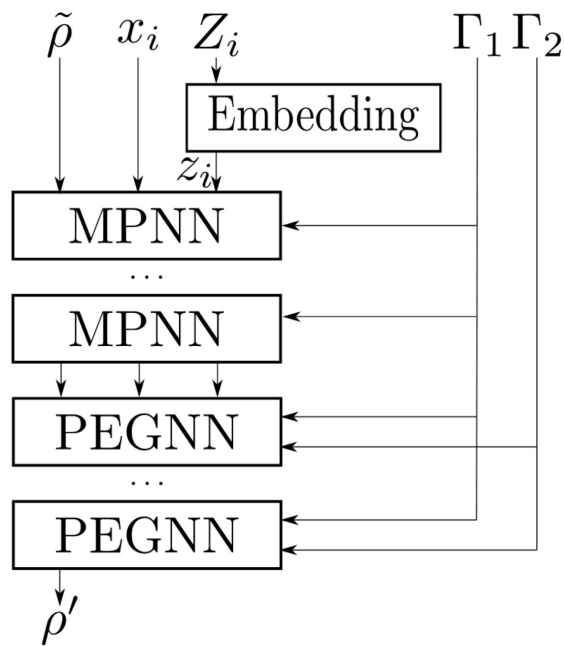
Condition:

$$\begin{aligned} \forall g \in O(d), \lambda_{\bar{\gamma}}(g \cdot M) &= g \lambda_{\bar{\gamma}}(M) g^{-1} \\ \forall g \in SL_d(\mathbb{Z}), \lambda_{\bar{\gamma}}(g \cdot M) &= \lambda_{\bar{\gamma}}(M) \end{aligned}$$

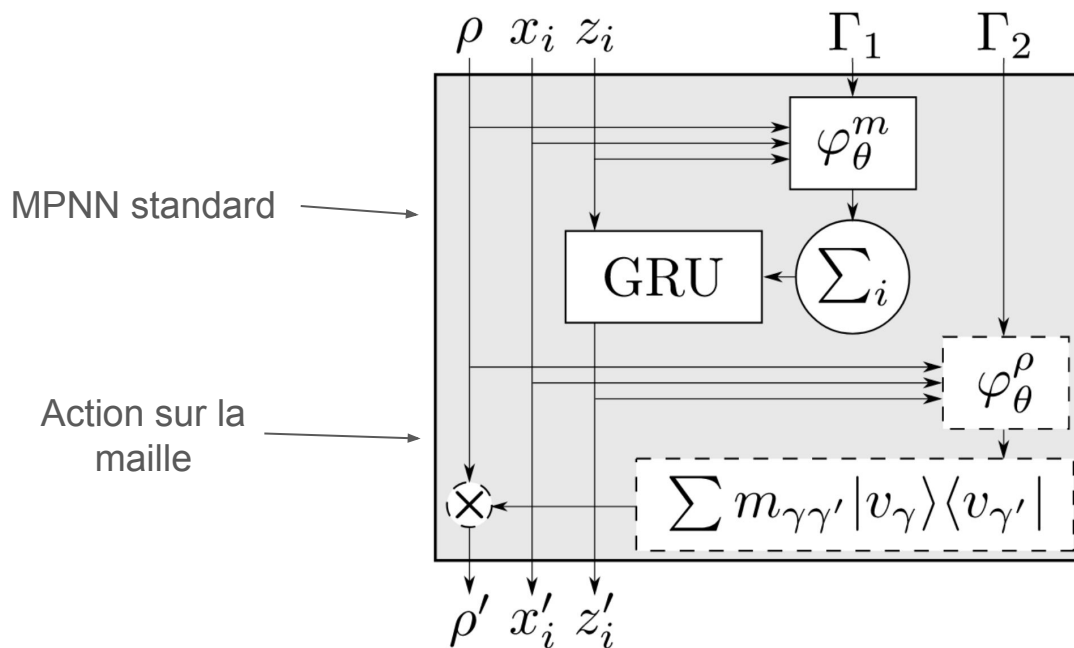
Utilisation de gradient d'invariant géométrique

Equivariant Message Passing Neural Network for Crystal Material Discovery

Klipfel, Peltre et al., AAAI 2023



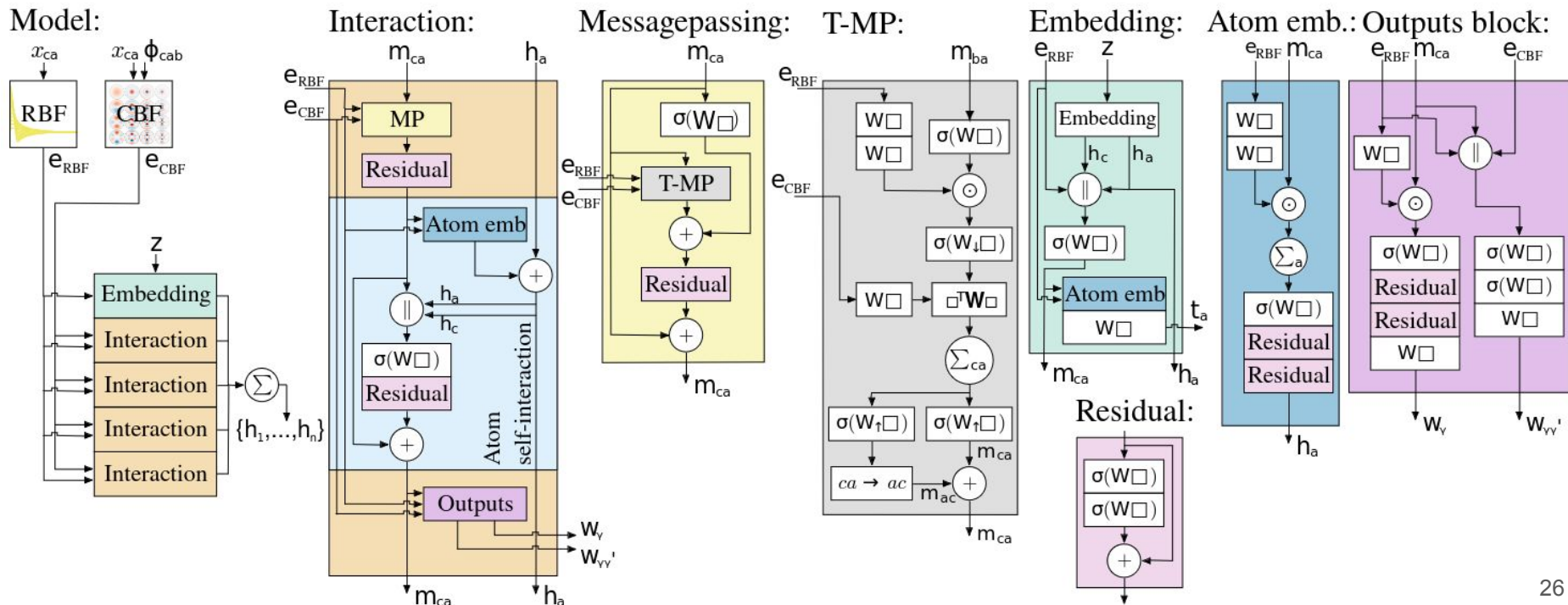
Réseau de neurone



Couche équivariante

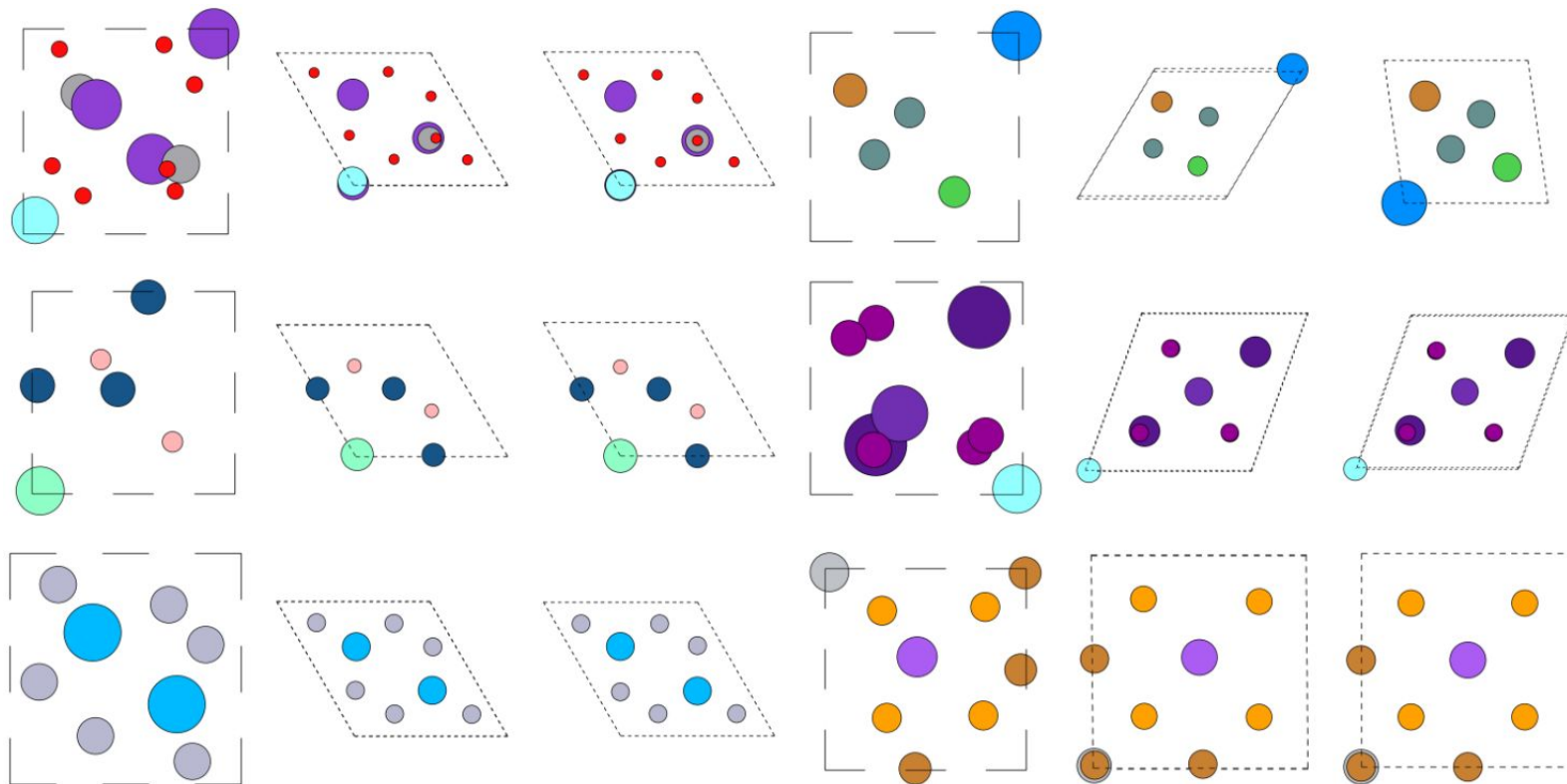
Unified Model for Crystalline Material Generation

Klipfel et al., IJCAI 2023



Unified Model for Crystalline Material Generation

Klipfel et al., IJCAI 2023



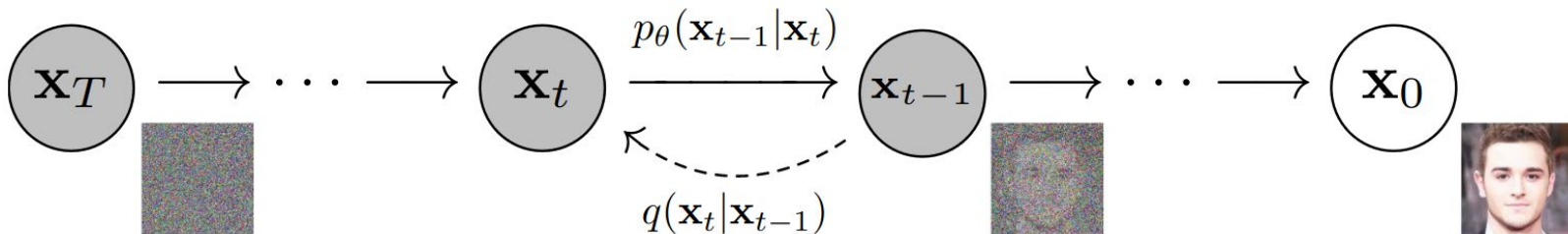
Denoising Diffusion Probabilistic Models

Ho et al., NeurIPS 2020

Processus de diffusion (vu par les informaticien):

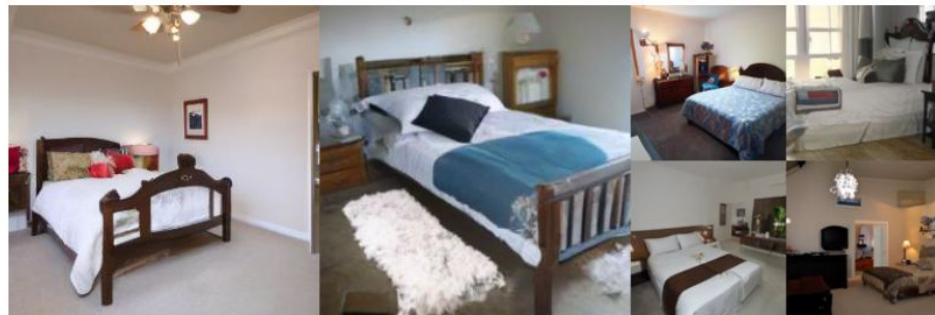
Forward process: $q(\mathbf{x}_t | \mathbf{x}_{t-1}) := \mathcal{N}(\mathbf{x}_t; \sqrt{1 - \beta_t} \mathbf{x}_{t-1}, \beta_t \mathbf{I})$

Reverse process: $p_\theta(\mathbf{x}_{t-1} | \mathbf{x}_t) := \mathcal{N}(\mathbf{x}_{t-1}; \boldsymbol{\mu}_\theta(\mathbf{x}_t, t), \boldsymbol{\Sigma}_\theta(\mathbf{x}_t, t))$



Denoising Diffusion Probabilistic Models

Ho et al., NeurIPS 2020



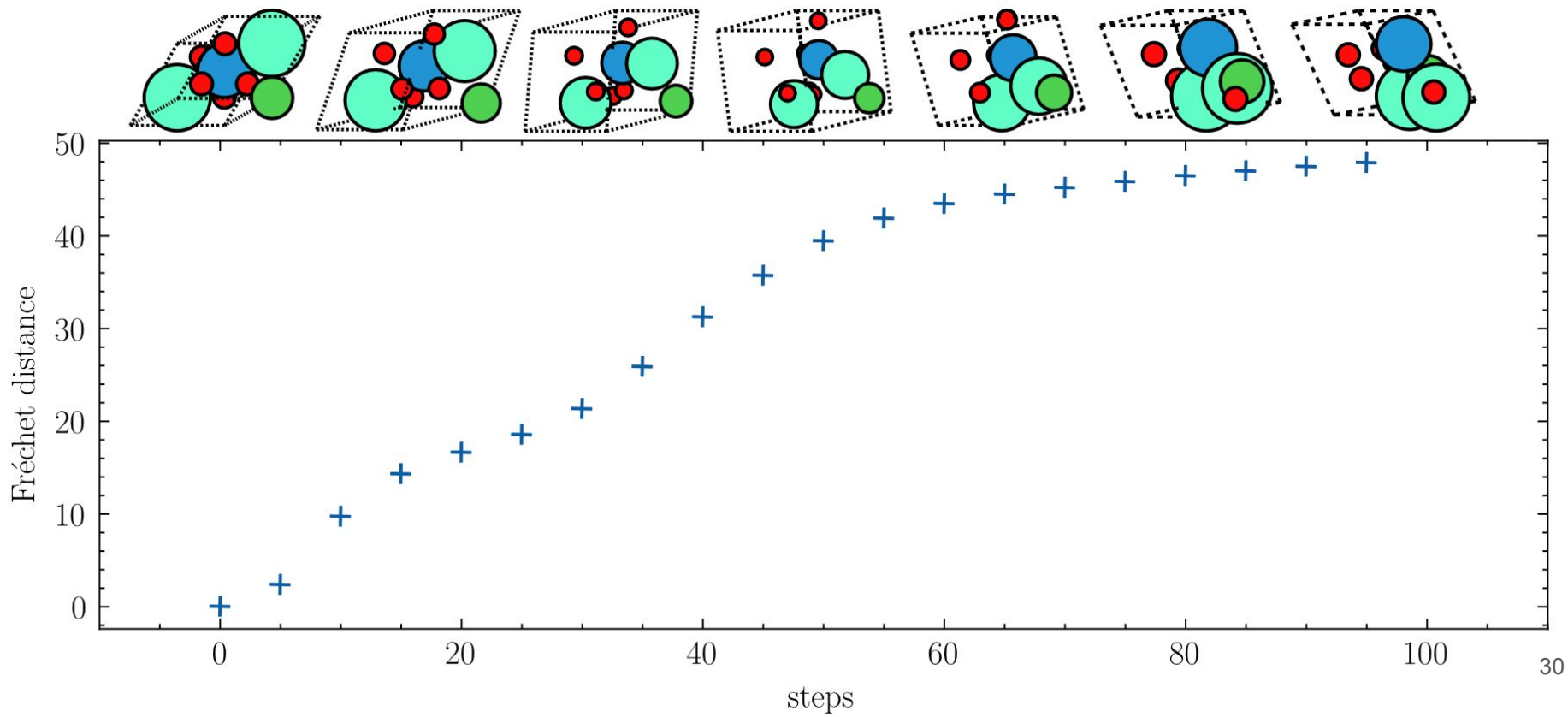
Algorithm 1 Training

- 1: **repeat**
 - 2: $\mathbf{x}_0 \sim q(\mathbf{x}_0)$
 - 3: $t \sim \text{Uniform}(\{1, \dots, T\})$
 - 4: $\epsilon \sim \mathcal{N}(\mathbf{0}, \mathbf{I})$
 - 5: Take gradient descent step on
$$\nabla_{\theta} \left\| \epsilon - \epsilon_{\theta}(\sqrt{\bar{\alpha}_t} \mathbf{x}_0 + \sqrt{1 - \bar{\alpha}_t} \epsilon, t) \right\|^2$$
 - 6: **until** converged
-

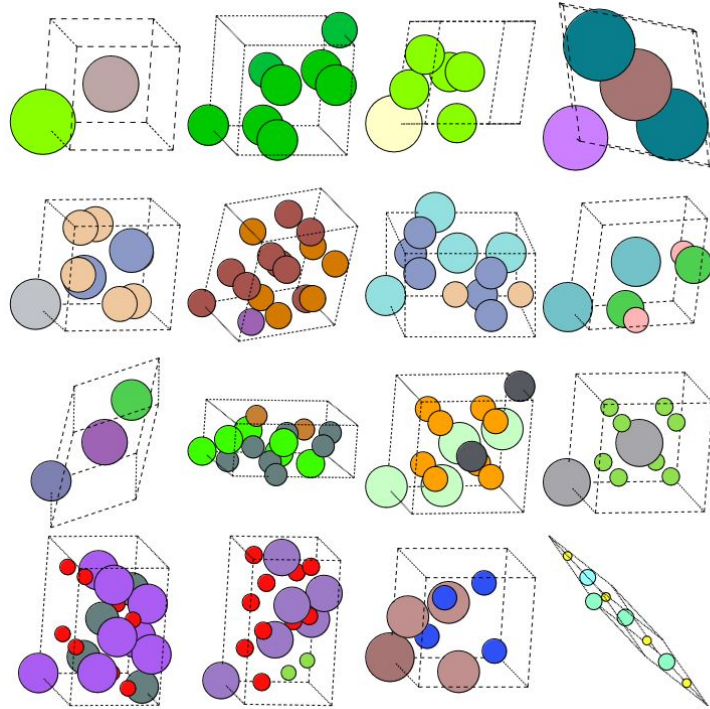
Algorithm 2 Sampling

- 1: $\mathbf{x}_T \sim \mathcal{N}(\mathbf{0}, \mathbf{I})$
 - 2: **for** $t = T, \dots, 1$ **do**
 - 3: $\mathbf{z} \sim \mathcal{N}(\mathbf{0}, \mathbf{I})$ if $t > 1$, else $\mathbf{z} = \mathbf{0}$
 - 4: $\mathbf{x}_{t-1} = \frac{1}{\sqrt{\alpha_t}} \left(\mathbf{x}_t - \frac{1 - \alpha_t}{\sqrt{1 - \bar{\alpha}_t}} \epsilon_{\theta}(\mathbf{x}_t, t) \right) + \sigma_t \mathbf{z}$
 - 5: **end for**
 - 6: **return** \mathbf{x}_0
-

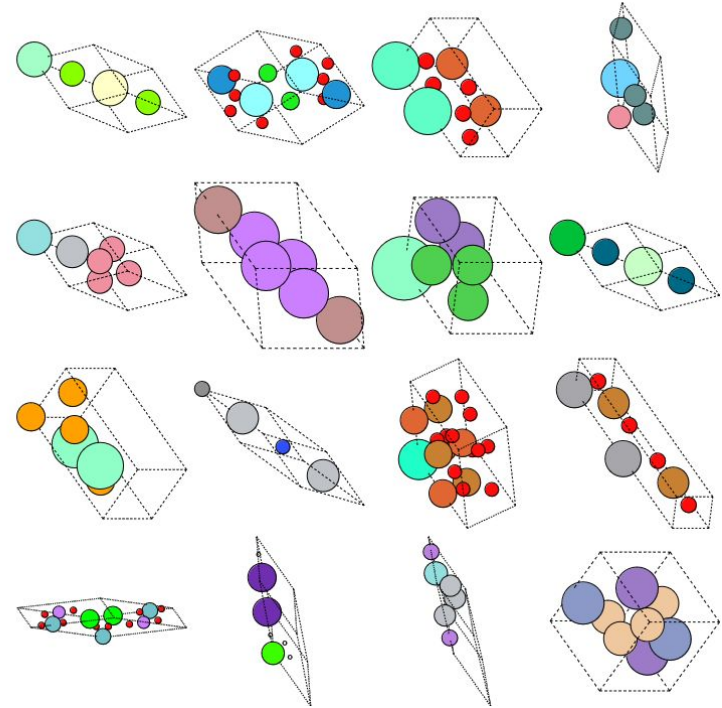
Processus de diffusion et matériaux



Processus de diffusion et matériaux



Processus de diffusion



Matériaux de *MaterialsProject*

Conclusion

- Théorie des groupes en machine learning
- Matériaux périodique et action de groupe
- Représentation graphique
- Graph Neural Networks et applications à la chimie des matériaux