

## Automatizētā rentgendifrakcijas interpretācija, izmantojot rentgenstaru Pareto metode

Michele Galasso<sup>1</sup>, Artem R. Oganov<sup>2</sup>

<sup>1</sup> *Latvijas Universitātes Cietvielu fizikas institūts*

<sup>2</sup> *Skolkovas Zinātnes un tehnoloģiju institūts*

Kristāla struktūras noteikšana, kas atbilst eksperimentālai rentgendifraktogramai, ir sarežģīts uzdevums, īpaši, kad saskaras ar zemu kvalitātes eksperimentālajiem datiem. Tas bieži notiek augstspiediena eksperimentos, kas tiek veikti, izmantojot dimanta laktas šūnas, kur tādi jautājumi kā paraugu piesārņojums, nevienmērība, neliela parauga izmērs un spiediena efekti var ietekmēt datu integritāti. Lai risinātu šo problēmu, parastais pieejas veids ir izmantot ab initio atomiskas simulācijas, lai identificētu vairākus zemu enerģijas kandidātu struktūras, kuras pēc tam manuāli pārbauda pret eksperimentālajiem rentgena staru difrakcijas raksturiem.

USPEX programmatūra, evolucionārs algoritms kristāla struktūras prognozēšanai, izmanto Pareto optimizāciju, lai meklētu stabilas struktūras, kas optimizē dažādas materiālu īpašības, piemēram, cietību vai kopējo magnētizāciju. Nesen USPEX kodā tiek integrēta iespēja optimizēt atšķirību starp modeļa un rentgenstaru difrakcijas datiem gan pulvera, gan monokristālu difrakcijai, ņemot vērā arī entalpiju.

Metode tika pārbaudīta ar  $\text{KTaWO}_6$  normalā spiediena apstākļos un ar  $\text{NaN}_5$  pie 50 GPa gan pulvera, gan monokristāla gadījumā, attiecīgi. Pirmajā gadījumā, neskatoties uz to, ka materiāla eksperimentālā struktūra ir nesakārtota, USPEX veiksmīgi atrada labāko periodisko tuvinājumu pēc 40 paaudzēm. Otrajā gadījumā USPEX atrada pareizo struktūru pēc 12 paaudzēm, demonstrējot tās efektivitāti un precizitāti, prognozējot kristāla struktūru zem augsta spiediena, izmantojot rentgenstaru difrakcijas datus.

## Automated X-ray Diffraction Interpretation using Pareto Optimization

Michele Galasso<sup>1</sup>, Artem R. Oganov<sup>2</sup>

<sup>1</sup> *Institute of Solid State Physics, University of Latvia*

<sup>2</sup> *Skolkovo Institute of Science and Technology*

Determining the crystal structure corresponding to an experimental X-ray diffraction pattern is a complex task, especially when faced with low-quality experimental data. This happens frequently in high-pressure experiments conducted within diamond anvil cells, where issues such as sample contamination, inhomogeneity, small sample size, and pressure effects can compromise the data integrity. To address this, a common approach involves utilizing ab initio atomistic simulations to identify a range of low-energy candidate structures, followed by manual verification against experimental X-ray diffraction patterns.

The USPEX code, an evolutionary algorithm for crystal structure prediction, uses Pareto optimization to look for stable structures which optimize various materials properties, such as hardness or total magnetization. Recently, USPEX has integrated the optimization of the agreement with provided X-ray diffraction data alongside enthalpy for both powder and single-crystal diffraction patterns.

The method has been tested on  $\text{KTaWO}_6$  at ambient pressure and on  $\text{NaN}_5$  at 50 GPa for the powder and the single-crystal case, respectively. In the first case, despite the experimental structure of the material is disordered, USPEX succeeded in finding the best periodic approximation after 40 generations. In the second case, USPEX found the right structure after 12 generations, showcasing its efficiency and accuracy in X-ray guided crystal structure prediction under high-pressure conditions.