

0.1. Бобков М.Е., Гренев И.В. Разработка модели машинного обучения для предсказания катионной структуры цеолитов типа FAU

Цеолиты и цеолитоподобные материалы широко используются в качестве сорбентов и носителей катализаторов. Цеолиты с топологией FAU имеют высокую термическую стабильность, большой объем пор, низкую себестоимость, а их модуль (отношение SiO_2/Al_2O_3) и катионный состав возможно настраивать под конкретные процессы газоразделения. Так как размещение катионов в структуре цеолитов определяет их адсорбционные свойства, то разработка моделей, позволяющих предсказывать размещение катионов на основе химического состава цеолитов, является актуальной задачей. Существующие на данный момент методы молекулярного моделирования, позволяющие решать данную задачу, требуют задания моделей межмолекулярного взаимодействия между конкретными катионами и атомами адсорбента.

В данной работе, была предложена модель машинного обучения, позволяющая предсказывать размещение любых катионов в структуре цеолитов FAU на основе их химического состава. На первом этапе моделирование размещения катионов проводилось с помощью метода Монте-Карло в NVT ансамбле при вариации моделей силовых полей и типов размещения алюминия в цеолите. В работе были рассмотрены две модели силовых полей для описания межмолекулярного взаимодействия для ряда катионов с атомами адсорбента и три различных типа распределения алюминия в структуре: кластеризованный, случайный и равномерный. Основываясь на экспериментальных литературных данных, была создана база данных, содержащая более 100 монокатионных и бикатионных структур с различным модулем цеолита. В базу данных вошли такие характеристики структур как: химический состав, заселенность катионных позиций, размеры элементарной ячейки, условия дегидратации. Был предложен количественный критерий MPS для оценки точности предсказания размещения катионов относительно экспериментальных данных.

В работе показано, что ни различные модели силовых полей, ни различные модели типов размещения Al в структуре цеолита не оказывают существенного влияния на заселенность катионных позиций. По этой причине для генерации обучающей выборки с помощью метода Монте-Карло для монокатионных, бикатионных и трикатионных форм цеолитов типа FAU, содержащих катионы Li, Na, K, Rb, Cs и Ca, использовалась модель равномерного распределения Al и силовое поле [1], параметризованное на результатах квантово-химических расчетов. Для предсказания размещения катионов в зависимости от химического состава была создана модель

машинного обучения, которая была обучена на заранее сгенерированных структурах, а также в последующем проходила тестирование на примерах из базы данных. Для того чтобы модель машинного обучения различала катионы между собой и как следствие на выходе были получены более точные предсказания, необходимо было добавить дополнительные параметры, содержащие уникальные значения для каждого катиона. Поэтому для расширения предсказательных возможностей модели машинного обучения за пределы комбинаций 6 типов катионов, в качестве дескрипторов в модели ИИ использовались их физические параметры такие как: формальный заряд, катионный радиус и поляризуемость. Полученная модель была задействована для предсказания размещения катионов референсных структур, в том числе и для структур, у которых катионный состав не входил в обучающую выборку.

Работа выполнена при финансовой поддержке РНФ (грант № 24-71-10096).

Список литературы

- [1] BOULFELFEL S., FINDLEY J.M., FANG H., ET AL. Article title // A Transferable Force Field for Predicting Adsorption and Diffusion of Small Molecules in Alkali Metal Exchanged Zeolites with Coupled Cluster Accuracy //The Journal of Physical Chemistry C. – 2021. – Т. 125. – №. 48. – С. 26832-26846.