

CAPÍTULO 3 ÁREA DE ENERGÍA

APLICACIÓN DE LA TÉCNICA MACHINE LEARNING AL DESARROLLO DE CATALIZADORES PARA PROCESOS DE PRODUCCIÓN DE ENERGÍA

Christian Rodriguez^{1*}, Xim Bokhimi², Angeles Mantilla^{1*}

¹Instituto Politécnico Nacional, Laboratorio de Fotocatálisis, CICATA Legaria, Legaria 694, Col. Irrigación, Alcaldía Miguel Hidalgo, 11500 CDMX, México.

²Instituto de Física, Universidad Nacional Autónoma de México, A. P. 20-364, 01000 CDMX, México.

*ch.rodriguez30@hotmail.com

bokhimi@fisica.unam.mx

*angelesmantilla@yahoo.com.mx

Rodriguez, C., Bokhimi, X., Mantilla, A. (2020). Aplicación de la técnica machine learning al desarrollo de catalizadores para procesos de producción de energía. En E. San Martín-Martínez (Ed.). *Avances de investigación en Nanociencias, Micro y Nanotecnologías. Volumen II*. Barcelona, España: OmniaScience. 77-102.

Resumen

En la actualidad, el desarrollo de catalizadores es de vital importancia en diversas áreas, siendo muy importante su aplicación en procesos de generación de energía. Al ser las propiedades buscadas para lograr una alta eficiencia catalítica en estos materiales cada vez más específicas, el desarrollo experimental de éstos es una tarea muy complicada. Mediante el uso de técnicas de Inteligencia Artificial (IA) como Machine Learning (ML) se plantea la posibilidad de simplificación de estas actividades integrando, a un bajo costo computacional, algoritmos que permitan predecir, con un alto grado de certidumbre, las propiedades de un material diseñado y sintetizado de manera experimental en un laboratorio, reduciendo tiempo y costos en el desarrollo de los mismos.

Palabras clave: Inteligencia Artificial; Machine Learning; Catalizadores; Nanomateriales; Energía

1. Introducción

Las reacciones catalíticas heterogéneas, que involucran sistemas donde interactúan catalizadores sólidos con reactantes gaseosos y/o líquidos, son el núcleo de muchos desafíos relacionados con la energía y el medio ambiente. Entre los ejemplos podemos mencionar la conversión de gases tóxicos en elementos menos nocivos mediante el uso de convertidores catalíticos, la generación de energía usando celdas de combustible y, de manera muy importante, los procesos de refinación del petróleo [1,2]. Los nanomateriales en ocasiones presentan polimorfismos y diferentes distribuciones atómicas [3], mismas que definirán sus posibles aplicaciones en diversas áreas como la industria electrónica [4-7] y el desarrollo de catalizadores, como fase activa o como soporte de los mismos [8].

En los catalizadores empleados en la refinación del petróleo el término nanométrico es ampliamente utilizado [9-11], y propiedades como área superficial, porosidad, así como la presencia de sitios ácidos o básicos en su superficie definirán el comportamiento de estos materiales, siendo un parámetro muy importante la distribución atómica con una fase característica, que presente defectos en ciertos planos [12]. Mediante el uso de metodologías tradicionales de caracterización y el modelado de la distribución atómica es posible obtener información de las propiedades electrónicas, que permita la comprensión de su estructura, y dilucidar la naturaleza de los sitios activos y el mecanismo de las reacciones catalíticas posibles.

En general, el sitio activo de un catalizador sólido es relacionado con imperfecciones, vacancias y defectos que estropean la periodicidad de una superficie ideal, por lo cual es necesario el uso de súper celdas para su simulación [9]. Un modelo computacional para un catalizador sólido que se acerque a la realidad debe contener miles, o incluso decenas de miles de átomos, lo que hace inviable la aplicar la Teoría de Función de Densidad (DFT, por sus siglas en inglés: Density Functional Theory) como método de solución. Los cálculos de las estructuras electrónicas por DFT están limitados a modelos pequeños e idealizados que contengan como máximo algunos cientos de átomos, por lo cual, contar con un sistema teórico de mayor eficiencia y precisión para describir la compleja geometría de la superficie de catalizador no ideal es de gran interés.

En las últimas dos décadas, las técnicas de Inteligencia Artificial (IA) se han utilizado para generar potenciales de interacción que predicen la energía total con la precisión de los cálculos de mecánica cuántica [13-16]. Uno de los desafíos de

la IA es resolver tareas que podrían ser fáciles de realizar de forma intuitiva por el ser humano pero muy difíciles de describir formalmente, tales como reconocer palabras o, en el caso de las actividades de investigación para el desarrollo de nanomateriales, descifrar a qué sistema cristalino pertenece un material a partir de un patrón de difracción de rayos X; hacer que una máquina resuelva este sistema cristalino de manera intuitiva es un proceso complejo de describir, por lo que diversos grupos de trabajo se han enfocado a resolver mediante la aplicación de técnicas de *Machine Learning* (ML) e Inteligencia Artificial (IA) este problema.

1.1. Inteligencia Artificial

Actualmente, la IA tiene un campo próspero en aplicaciones prácticas en las que, mediante el desarrollo de software inteligente, es posible automatizar el trabajo de rutina, como comprender el habla o imágenes, hacer diagnósticos médicos o realizar investigación científica.

El objetivo de la IA radica en la solución de problemas a través del aprendizaje de experiencias por parte de las computadoras, y la comprensión del mundo en términos de una jerarquía de conceptos, es decir, mediante la generación de variables a partir de la alimentación de datos, mediante la aplicación de reglas matemáticas que integren una función que pueda describir de forma futura el problema, ya sea para reconocimiento facial o para describir las propiedades de un catalizador.

Un subcampo de la IA es *Machine Learning* (en español, aprendizaje de máquina o aprendizaje automático) [17]. Mediante la aplicación de ML se busca la solución de problemas de forma automática, a partir de la información que se le suministre al sistema, evitando que el usuario interactúe lo menos posible con el programa (Fig.1).

Los algoritmos de ML intentan utilizar menos recursos para procesar grandes volúmenes de datos e ir aprendiendo por sí mismos. ML se puede dividir en tres grandes categorías: Aprendizaje Supervisado, Aprendizaje No Supervisado y *Reinforcement* o Reforzamiento [18].

En el Aprendizaje Supervisado (Figura 2), los datos empleados en el entrenamiento, incluyen las variables para la construcción del algoritmo y la solución deseada, también llamada etiqueta, como se aprecia en el esquema de la Figura 2. Por ejemplo, en el procesamiento de fotos de animales es necesario ingresar las

imágenes, los filtros a utilizar y la etiqueta que corresponde a la foto del animal, o en la predicción de costos de viviendas es necesario alimentar las características de la misma (número de cuartos, metros cuadrados de construcción, baños, etc.), y el costo de la vivienda, y con todos estos datos generar un algoritmo que se pueda usar de manera automática.

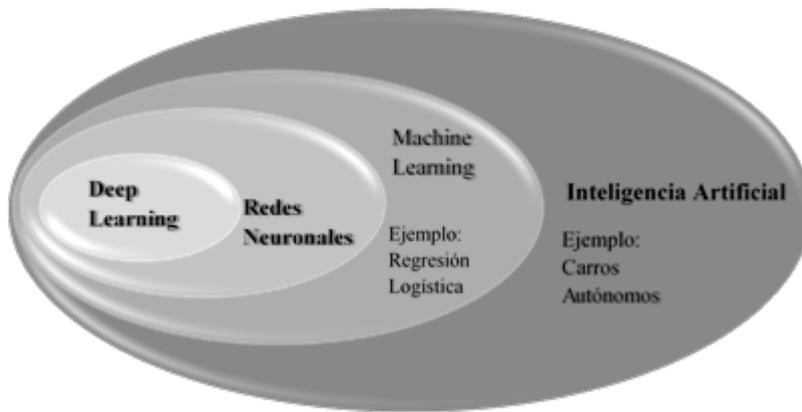


Figura 1. Diagrama de Venn que muestra como *Machine Learning* representa a un tipo de Inteligencia Artificial, y algunos enfoques de la Inteligencia Artificial.

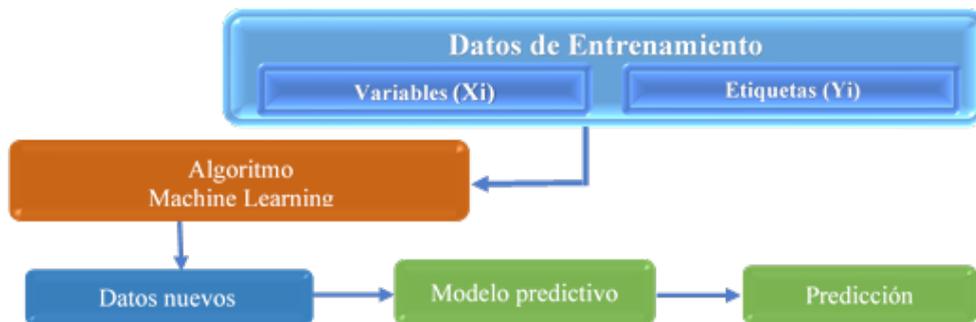


Figura 2. Esquema del modelo de Aprendizaje Supervisado.

En el Aprendizaje No Supervisado los datos de entrenamiento no incluyen las etiquetas por lo que el algoritmo intentará clasificar o descifrar la información por sí solo. Un ejemplo en el que se usa es para agrupar la información recolectada sobre usuarios en una Web, que detecte diversas características en común, lo cual se usa en las aplicaciones de compras en línea.

El Aprendizaje por Reforzamiento (Figura 3) consiste en un agente autónomo que explora un espacio desconocido y determina las acciones a realizar mediante

prueba y error, delimitado por reglas establecidas, aprendiendo por sí mismo y obteniendo recompensas y/o penalizaciones de acuerdo con sus movimientos en el espacio o de cada interacción que realice. Se ha aplicado en juegos como ajedrez y Go ^[19] (mediante el software Deep-blue y Alpha-Go), entre otros.

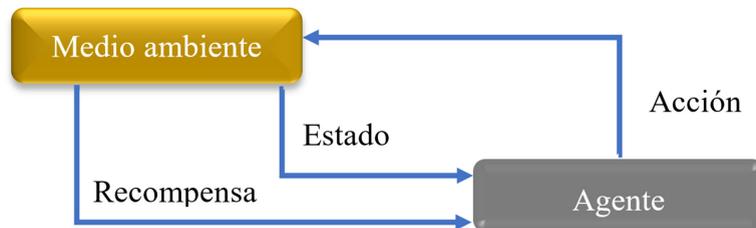


Figura 3. Esquema del modelo de Aprendizaje por Reforzamiento.

Redes Neuronales Artificiales

Cabe señalar que las Redes Neuronales Artificiales (RNA) se desarrollaron para estudiar el procesamiento de señales en el cerebro. En 1943 se introdujeron las primeras RNA [20], que en las décadas siguientes han evolucionado hacia una amplia variedad de algoritmos que han encontrado diversas aplicaciones para reconocimiento de patrones y clasificación de datos [21]. Las RNA tienen la capacidad de aproximar funciones desconocidas con alta precisión, basándose en un conjunto conocido de valores de la función ^[22,23]. En la última década han evolucionado notoriamente (en paralelo a la mayor capacidad tecnológica de procesamiento, memoria RAM, bibliotecas, etc.), y están logrando impresionantes resultados para analizar textos y síntesis de voz, traducción de idiomas, procesamiento de lenguaje natural, visión artificial, análisis de riesgo, clasificación y predicción y, hace un par de décadas, la investigación de nanomateriales.

La Figura 4 muestra el esquema sintetizado de la RNA, compuesta de diferentes capas interconectadas por nodos: la capa de entrada son las variables o dimensiones para construir la función a analizar, la cual está dada por un vector $X = \{X_i\}$, que representa las características del problema a resolver. Todos los nodos están conectados a los nodos de las capas vecinas, y la cantidad de información que se transmite de una neurona a otra está dado por los parámetros del peso. Estos pesos son ajustados para generar una función flexible y precisa. El nodo de la capa de salida es el valor de referencia u objetivo, también llamado etiqueta.

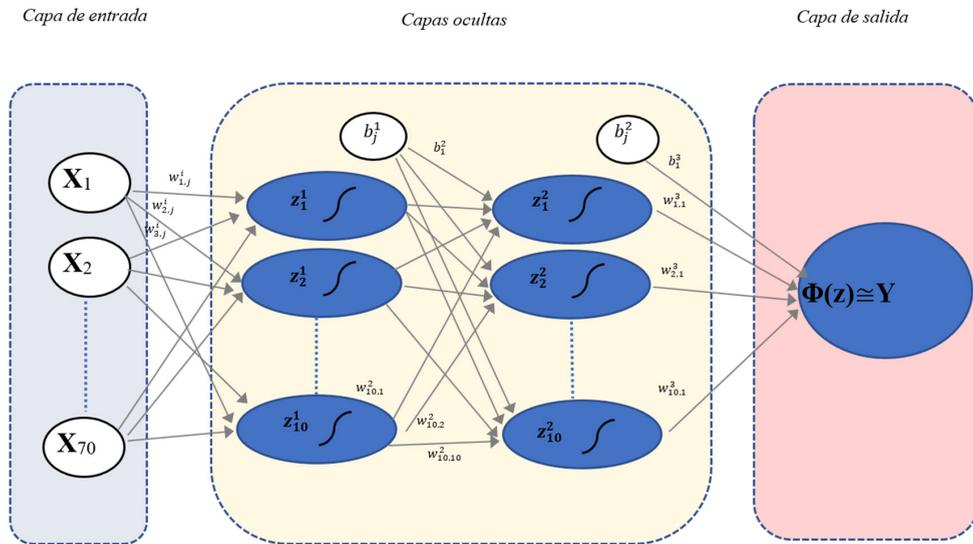


Figura 4. Esquema sintetizado de Red Neuronal Feed Forward.

La arquitectura de la RNA está definida por el número de capas y los nodos de cada capa; la notación corta específica de la arquitectura en la Figura 4 es 70-10-10-1. De acuerdo con la información de la capa de entrada y la arquitectura dada, la información de salida de la RNA depende de los valores numéricos de los pesos.

Hay dos tipos diferentes de pesos, los pesos de conexión entre capa y capa, etiquetados por w^i_{kj} , conectado el nodo k en la capa i , con el nodo j en la capa $l = i + 1$. Los pesos de sesgo b^i_j están conectados a los nodos j de la capa l . Como primera etapa, en cada nodo de la primera capa oculta se evalúa una combinación lineal de los nodos en la capa de entrada. Como todos los pesos en la primera interacción toman valores aleatorios, se obtiene un valor diferente en cada nodo. Posteriormente, se aplica una función de activación no lineal f^1_j a la suma en cada nodo j en la capa i . Finalmente, en cada nodo j en la primera capa oculta, se obtiene un número \tilde{x}^1_j ;

$$\tilde{x}^1_j = f^1_j \left(b^1_j + \sum_{i=1}^{70} w^1_{ij} X_i \right)$$

Estos valores se pasan a los nodos de la segunda capa oculta y se multiplican por los pesos de conexión. Se realiza la sumatoria de los resultados y nuevamente se aplica una función de activación. Finalmente, los valores de los nodos en la segunda capa oculta se multiplican por los pesos de conexión y se realiza la sumatoria, se puede utilizar una función lineal o una función suavizada como

función de activación para evitar cualquier restricción en el rango de valores y se obtiene el valor del nodo en la capa de salida, que está representado como el valor objetivo o etiqueta.

Uno de los ingredientes clave de los algoritmos supervisados de ML es la función objetivo definida (calculada), que debe optimizarse durante el proceso de aprendizaje. Esta función objetivo es a menudo una función de costo que queremos minimizar, existen diferentes algoritmos de optimización, tales como gradiente descendente, entre otros. En el caso de RNA, podemos definir la función de costo J que ajusta los valores de los pesos en el proceso de entrenamiento, la cual es la suma de los errores al cuadrado, entre el resultado calculado y la etiqueta de clase verdadera (Ec. 2).

$$J(w) = \frac{1}{2} \sum_i (y^i - \phi(z^i)) \quad (2)$$

En la Figura 5, podemos observar un modelo general de los algoritmos de ML: a partir de un conjunto de datos iniciales que se dividen en datos de entrenamiento y de prueba, se genera el algoritmo de ML, generando una función del problema a resolver como un modelo final. Si éste genera el valor deseado, se agregan nuevos valores que no fueron alimentados en el entrenamiento, y si el modelo final no genera la etiqueta deseada, estos datos son alimentados al entrenamiento del algoritmo de ML. Por otra parte, si la etiqueta generada es la adecuada, este modelo será apto para su empleo en nuevas resoluciones del tema entrenado.

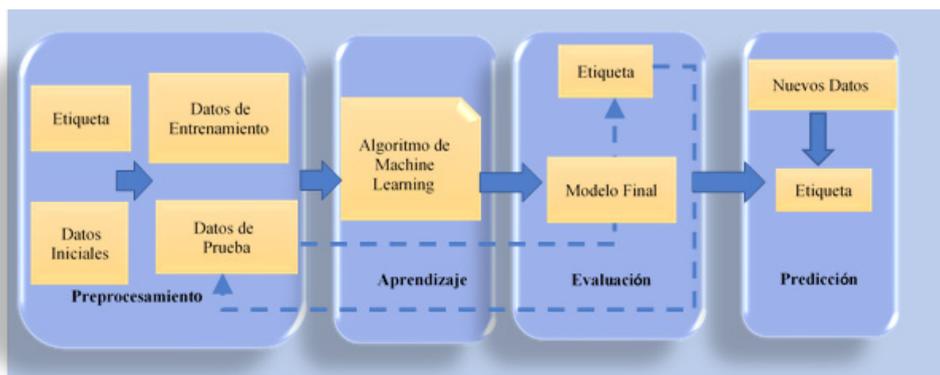


Figura 5. Modelo general de los algoritmos de *Machine Learning*.

ML está cambiando las perspectivas de la física y la química. Un punto importante en la ciencia de materiales es la caracterización de los entornos locales atómicos del material, ya que de ellos dependen sus propiedades. Se espera que

la aplicación de ML al desarrollo de materiales produzca un salto transformador en el ritmo del descubrimiento y diseño de materiales mediante la aceleración de estos procesos.

2. Aplicaciones en la ciencia de materiales utilizando ML

En esta sección se presentan algunas de las principales aplicaciones de los algoritmos de ML en los campos de caracterización de materiales, desarrollo de nuevos materiales y aplicaciones en cálculos moleculares, así como un ejemplo en la integración de la IA, usando robots y metodologías de ML.

2.1. Caracterización de materiales usando ML

2.1.1. Difracción de Rayos X

Sería muy difícil describir a la perfección una estructura cristalina real utilizando solo patrones de difracción de rayos X de polvos (DRX) como fuente de datos, ya que la distribución tridimensional de la densidad de electrones se condensa en una sola dimensión en éstos. La abundancia de datos muchas veces conduce a la superposición de picos, lo que complica la determinación de las intensidades de picos individuales. Es por ello que la simetría de cristal (grupo espacial) no se pueda obtener correctamente a partir de un patrón de DRX de polvos para muchas fases de baja simetría, sin importar qué tipo de herramienta de medición se emplee. Los datos de difracción de un monocristal mejoran esta complicación y facilitan el análisis estructural, en comparación con el uso de difracción de polvos. Sin embargo, aunque recientemente se ha puesto a disposición una técnica de monocristal de tamaño pequeño para DRX [24], la preparación de muestras sigue siendo un desafío.

En el estudio realizado por Park et al [25] donde utilizan Redes Neuronales Convolucionales (CNN¹), se pudo identificar la estructura exacta de estructuras complejas de europios basados en fosforenos, $\text{Ca}_{1.5}\text{Ba}_{0.5}\text{Si}_5\text{N}_6\text{O}_3:\text{Eu}^{2+}$ (empleados en diodos emisores de luz) determinando la estequiometría exacta para estos materiales, identificando el grupo espacial y la clasificación del sistema cristalino, con una precisión en su conjunto de prueba hasta de un 94.99%. Esta CNN fue alimentada con

1. Por sus siglas en inglés CNN, Convolutional Neural Network, Redes neuronales Convolucionales.

150,000 patrones de DRX de polvos, obtenidos a partir de la base de datos ICSD² con su respectiva información cristalográfica, la cual lee los datos medidos del patrón de DRX de polvos como si fuera una imagen, y reconoce el sistema cristalino sin la necesidad de algún análisis teórico, facilitando así el análisis de materiales con configuraciones complejas, proporcionando información sobre su sistema cristalino, los parámetros de red precisos y su estequiometría. En este modelo (Figura 6), la arquitectura de CNN está compuesta por una capa de entrada, tres pares de capas convolucionales y de agrupación, dos capas completamente conectadas y una capa de salida. Cada capa tiene varias neuronas que recopilan información de la capa anterior, y esta información se convierte en un valor específico, utilizando una función de activación del tipo tangente hiperbólica, para ser transferida a las neuronas en la siguiente capa, el tamaño del filtro se reduce a la mitad de una capa a la siguiente.

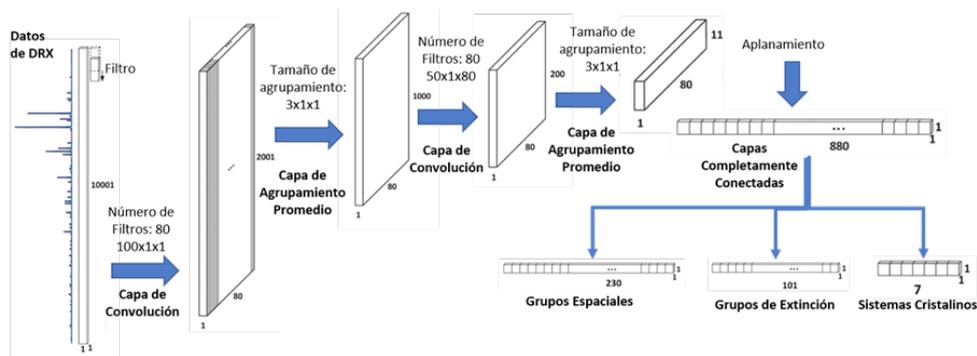


Figura 6. Esquema general de la CNN para el procesamiento de patrones de DRX [25].

2.1.2. Espectroscopía XANES

Espectroscopía de absorción de rayos X en la región cercana al borde (XANES por las siglas de su nombre en inglés: (X-ray Absorption Near Edge Spectroscopy) es una técnica empleada para sondear los entornos locales (es decir, las simetrías de coordinación atómica, el número y las identidades químicas de los átomos vecinos y los estados de oxidación) en un material que presente una fase amorfa [26-28]. Un análisis típico de XANES se basa en comparaciones entre espectros de compuestos conocidos, medidos experimentalmente. Se han reportado intentos de interpretaciones cuantitativas de los espectros XANES utilizando el análisis de componentes principales [29,30] y métodos de deconvolución

2. Inorganic Crystal Structure Database.

lineal, con los cuales se busca separar los resultados de XANES de un sistema de múltiples componentes en espectros de componentes individuales, que proporcionen una base estadística para estimar la presencia y las proporciones de especies individuales; sin embargo, estas técnicas son difíciles de aplicar a sistemas que no tienen espectros de referencia bien establecidos. Los cálculos moleculares teóricos basados en DFT, enfoques de dispersión múltiple completa y enfoques de la ecuación de Bethe-Salpeter [31], proporcionan un medio alternativo para la obtención del espectro XANES de cualquier material. El análisis por XANES es un desafío debido a su sensibilidad a muchos factores, incluidos el número de coordinación, la hibridación orbital, el estado del spin, el estado de oxidación y la simetría de los átomos de absorción central. Adicionalmente, el análisis de XANES a menudo es cualitativo y contrastante, y requiere espectros de referencia de compuestos que pueden no estar disponibles. El trabajo de Zheng et al. [32], presenta un enfoque basado en ML que predice directamente las etiquetas del entorno atómico a partir de XANES, empleando un gran conjunto de datos de XANES computarizado.

La extracción de información del entorno de coordinación de XANES es similar a la de reconocimiento de imágenes y en este campo las técnicas de ML han avanzado mucho. Timoshenko et al. [33] reportan que, a partir de redes neuronales, se pueden predecir el número de coordinación de los átomos de Pt utilizando espectros de XANES de nanopartículas metálicas. Carbonet et al. [34], usaron CNN para predecir los entornos de coordinación 3d de especies de metales de transición a partir de espectros de XANES, con precisión de 86%; sin embargo, su trabajo se centró en tres tipos de coordinaciones bien definidas: tetraédrica, piramidal cuadrada y octaédrica, en el cual el entorno dominante octaédrico constituye el 64 % de los datos totales. Por ello, es necesario en el caso de catalizadores, desarrollar un enfoque que describa los entornos locales de los óxidos.

Zheng et al. [32], presentan un modelo de clasificación a partir de un conjunto de árboles de decisión, utilizando un subconjunto de datos de espectros de XANES, que promedia la salida de los árboles de decisión para mejorar su precisión y reducir así posibles sobreajustes, como ocurrió en estudios anteriores. Este modelo (Figura 7) fue entrenado a partir 190,000 espectros de estructura de borde cercano de absorción de rayos X (K-edge). Este estudio considera un número de coordinaciones de hasta 12, y un total de 25 motivos de coordinación distintos, con un enfoque que proporciona una descripción razonablemente completa de la geometría local en cristales, y consigue un poder de predicción de 85.4%, y

un puntaje Jaccard de 81.8 % de todos los entornos de coordinación asociados para 33 elementos catiónicos en óxidos, cubriendo la mayoría de las especies de cationes relevantes desde el punto de vista tecnológico, abarcando elementos alcalinos, metaloides, metales de transición, metales postransicionales y carbón; los átomos con un peso atómico mayor a 52 no se tomaron en cuenta. Los modelos resultantes de estos espectros pueden ser aplicados directamente para identificar entornos de coordinación experimentales de XANES con una pérdida mínima de precisión. Este algoritmo generó una aplicación web que puede identificar entornos de coordinación de K-edge XANES con una precisión de hasta 80 % para el análisis de los espectros <https://xas.crystals.ai/>.

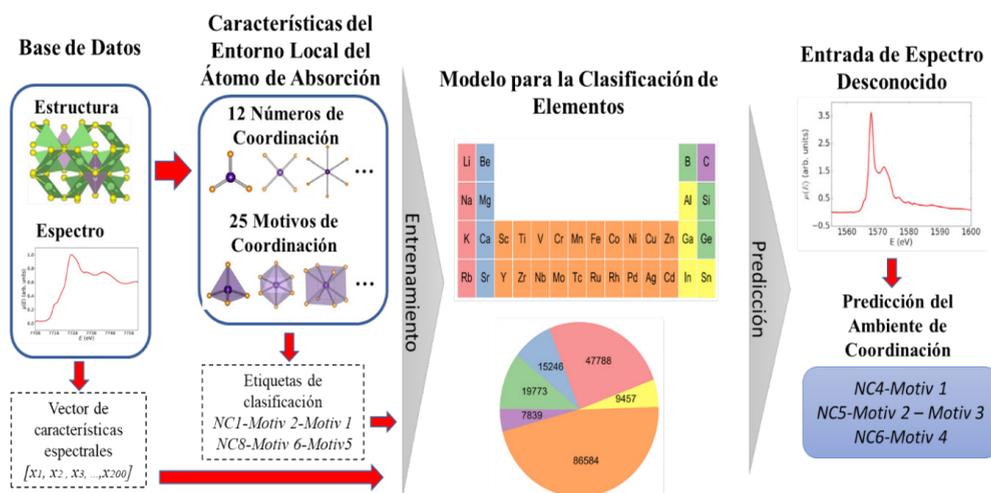


Figura 7. Flujo de trabajo del algoritmo de identificación del entorno de coordinación [32].

2.1.3. Espectroscopia RAMAN

La espectroscopia RAMAN es una técnica espectroscópica empleada en química y física de la materia condensada para estudiar modos de baja frecuencia (vibratorios, rotatorios, etc.) basándose en los fenómenos de dispersión inelástica (dispersión RAMAN) de la luz monocromática de un láser en el espectro de luz visible, infrarrojo cercano, o ultravioleta cercano, donde la luz láser interactúa con fonones u otras excitaciones en el sistema, provocando un desplazamiento hacia arriba o hacia debajo de la energía de los fotones del láser, lo que genera información acerca de los modos vibracionales del sistema. En esta técnica la línea base del espectro se origina principalmente por la fluorescencia del material, y

puede ser más intensa que la dispersión RAMAN real en varios órdenes de magnitud, por lo que la corrección de la línea de base es un problema latente. Lui et al [35] reportan el empleo de CNN de acuerdo con el enfoque del tratamiento de imágenes y clasificador de imágenes, colocando filtros a través de redes neuronales completamente conectadas y, a partir de los datos de la base de datos RRUFF, obtener los espectros RAMAN con su respectiva estructura [36], corrigiendo estos espectros mediante la eliminación de la línea de base, así como los rayos cósmicos. El conjunto de datos de entrada generados fueron 5168 espectros en total, con información de 1671 diferentes tipos de minerales, así como datos adicionales de entrada para la alimentación de las redes neuronales, desplazando cada espectro de izquierda a derecha unos números de onda, agregando ruido aleatorio, proporcional a la magnitud en cada número de onda. Para compuestos con más de un espectro se tomó la combinación lineal de todos sus espectros, generando una mayor cantidad de muestras y de variables que se alimentaron a la red neuronal, y con una mayor cantidad de información se obtiene un algoritmo con mayor poder de predicción. Como se observa en el diagrama presentado por dichos autores (Figura 8), se obtiene una CNN con diferentes tipos de patrones de entrada y operadores de agrupación, que extraen las estructuras más importantes.

En este estudio se presentó una solución empleando CNN, clasificando espectros RAMAN, con una eficiencia de hasta 96 %, lo cual evita la necesidad de pre-procesamiento de estos espectros. Esta metodología es aplicable a otros métodos de espectroscopía, especulando que se pueden generar algoritmos muy

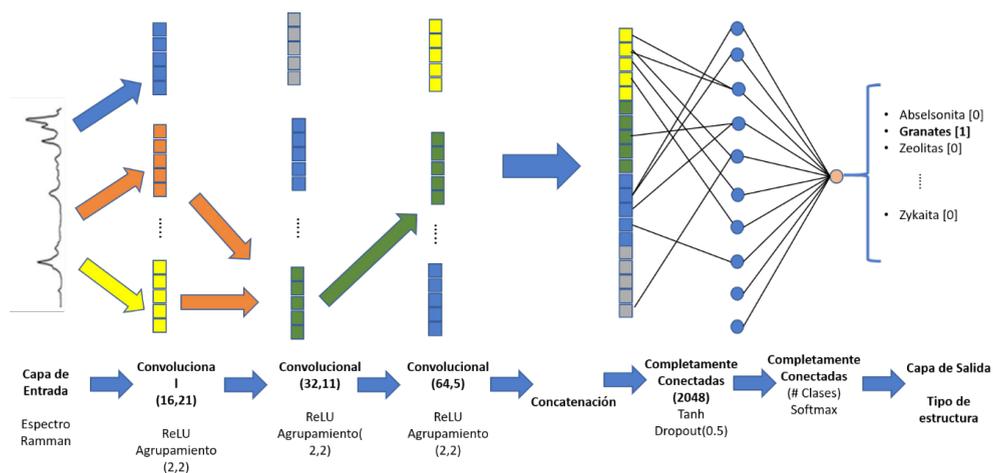


Figura 8. Diagrama de la CNN propuesta para el reconocimiento del espectro RAMAN [35].

efectivos para diferentes tipos de estructuras, por lo que se puede generar una transferencia de aprendizaje donde en un futuro se podrían combinar estructuras y diferentes técnicas de espectroscopía, como ha sucedido con aplicaciones de reconocimiento de objetos.

2.2. Cálculos de estructura electrónica

El estudio de las propiedades estructurales, energéticas y dinámicas de la materia condensada para el desarrollo de materiales requieren una adecuada descripción de las interacciones atómicas. El uso de DFT para los cálculos de primeros principios proporciona una descripción precisa de muchos sistemas complejos, en particular para sólidos y superficies, por lo cual se ha convertido en una herramienta estándar para estudiar desde la ciencia de materiales hasta la bioquímica [37,38].

A pesar de los resultados exitosos, la investigación de procesos químicos mediante simulaciones por computadora a menudo está limitada por los altos costos computacionales involucrados en los cálculos de un número considerable de configuraciones atómicas, permitiendo calcular solo unos cientos de átomos y no los requeridos para el estudio de catalizadores de millones de átomos.

En años recientes se ha trabajado en el desarrollo de potenciales interatómicos más eficientes que, mediante el uso de formas funcionales simplificadas basadas en aproximaciones físicamente razonables, describan estas interacciones. Una propuesta consiste en calcular los puntos de energía potencial en la superficie, que es una función de alta dimensión que produce la energía potencial si se suministran las coordenadas atómicas, pudiendo realizar una evaluación mucho más rápida, permitiendo extender la magnitud y tiempo de las simulaciones de dinámica molecular significativamente, así como el uso de miles de átomos en la simulación.

Muchos estudios de potenciales de interacción atómica utilizando redes neuronales se han basado en el enfoque generado por Behler-Parrinello [39], usando redes neuronales de alta dimensionalidad basados en la contribución energética de cada tipo de átomo, mediante su entorno químico local.

Los datos de entrada a esta red neuronal son cálculos de primeros principios DFT, de configuraciones atómicas con algunos cientos de átomos y una energía calculada del compuesto a estudiar. Estas configuraciones necesitan un tratamiento de datos para ser alimentadas a la red neuronal, en la cual las

interacciones interatómicas se describen por medio de un conjunto de funciones Gaussianas, que generan huellas dactilares estructurales de ciertas configuraciones; éstas describen las funciones radiales y angulares del entorno químico local para cada combinación de especies atómicas, usando la notación de las bases de la función radial G_i^2 y las bases de la función de angular G_i^4 .

La función radial centrada en el átomo i , G_i^2 está definida como:

$$G_i^2 = \sum_{j \neq i}^N e^{-\eta(R_{ij}-R_s)^2} \cdot f_c(R_{ij}), \quad (3)$$

Los parámetros η y R_s definen el ancho y el centro de las funciones de Gauss, respectivamente. Estos valores son ajustables, siendo R_{ij} la distancia entre los átomos i y j , $\vec{R}_{ij} = \vec{R}_i - \vec{R}_j$.

La función de corte f_c (Ec. 4) permite tener un suave truncamiento a las funciones de Gaussianas, radial y angular.

$$f_c(R_{ij}) = \begin{cases} 0.5 \times \left[\cos\left(\frac{\pi R_{ij}}{R_c}\right) + 1 \right] & \text{for } R_{ij} \leq R_c \\ 0 & \text{for } R_{ij} > R_c \end{cases} \quad (4)$$

La función angular centrada en el átomo i , está definida como:

$$G_i^4 = 2^{1-\zeta} \sum_{j \neq i} \sum_{k \neq ij} \left[(1 + \lambda \cdot \cos\theta_{ijk})^\zeta \cdot e^{-\eta(R_{ij}^2 + R_{ik}^2 + R_{jk}^2)} \cdot f_c(R_{ij}) \cdot f_c(R_{ik}) \cdot f_c(R_{jk}) \right], \quad (5)$$

Mientras que las funciones radiales se construyen para cada par de átomos, las funciones radiales dependen de todos los tripletes de átomos en la estructura, combinando el coseno de los ángulos $\theta_{ijk} = \frac{\vec{R}_{ij} \cdot \vec{R}_{ik}}{R_{ij} R_{ik}}$ centrado en el átomo i , donde el parámetro λ puede asumir el valor $+1$ y -1 , y el valor de ζ determina el parámetro angular.

La sumatoria de las funciones (Ec. 3 y Ec. 5) se extiende sobre todos los átomos dentro del radio de corte R_c ; la representación de las funciones de simetría radial y angular se muestra en la Figura 9.

La Figura 10 muestra la manera en que se genera una red neuronal para cada tipo de átomo, donde su capa de salida funciona como una sumatoria de energías, cuyo valor se acerca a la energía total de la configuración que fue alimentada, generando así una función del potencial de energía para un sistema específico con una alta precisión y eficiencia, acercándose a los cálculos de primeros principios por DFT, en el orden de 1meV/átomo.

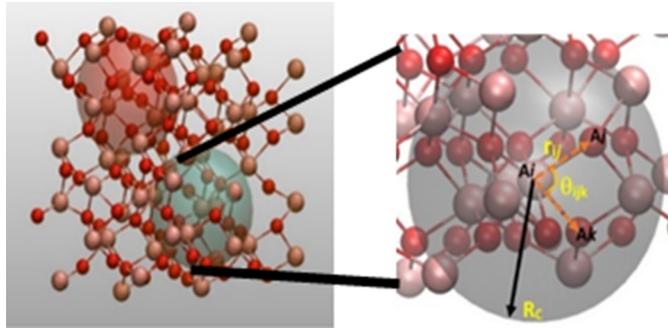


Figura 9. Representación del ambiente químico local atómico de acuerdo con el radio de corte (R_c).

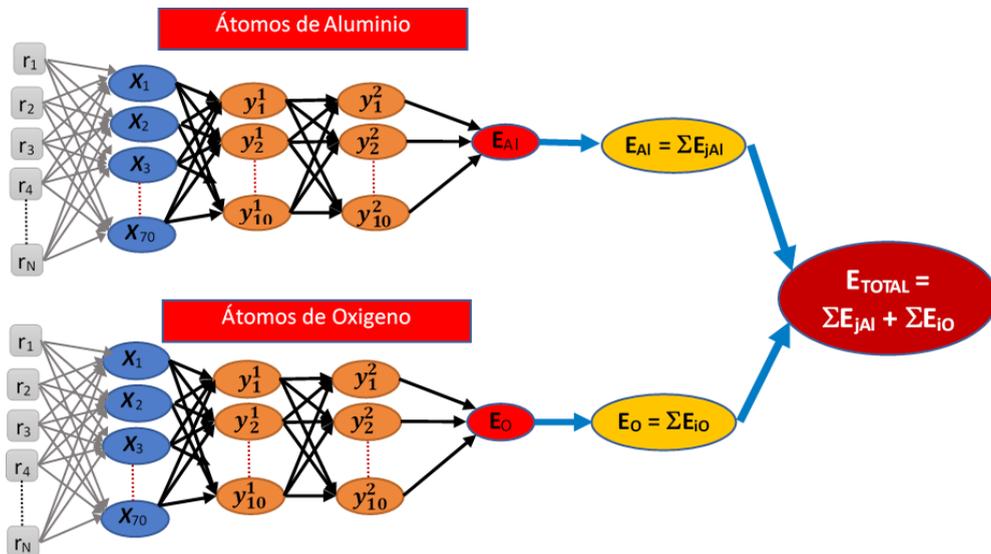


Figura 10. Representación de la red neuronal del sistema de α -alúmina, red neuronal para cada tipo de átomo.

2.3. Búsqueda de nuevos materiales

La forma tradicional de descubrir un material ha sido mediante ensayo y error: proponiendo modelos para explicar la estructura cristalina de los materiales conocidos y a través de un modelo, se diseña y sintetizan materiales, esperando que el material resultante presente las propiedades del esperado en el diseño. Adicionalmente, se han usado como apoyo cálculos cuánticos ab-initio para probar la estabilidad de la distribución atómica de compuestos propuestos, los cuales conllevan un alto costo computacional para su realización. Gómez-Bokhimi [40],

reportan el uso de un algoritmo de ML para predecir nuevos materiales tipo perovskita a partir de información cristalográfica de bases de datos.

Los materiales tipo perovskita cuentan con estructuras singulares, y se emplean en desarrollo de materiales piezoeléctricos [41], superconductividad a altas temperaturas y celdas solares [42, 43], entre otros. La simetría más común de las perovskitas, es la cúbica (grupo espacial $Pm\bar{3}m$), en la cual existen tres tipos de iones con diferentes sitios geométricos. Los cationes ocupan sitios dodecaédricos, y octaédricos, los aniones se encuentran en los vértices del octaedro y los octaedros se conectan compartiendo vértices, aunque se han encontrado perovskitas con otros sistemas cristalinos debido a una reducción de simetría de los cristales.

A partir de la información cristalográfica, tomada de la base de datos Crystallography Open Database (COD) [44], se generaron 2862 muestras que se alimentaron a la red neuronal, con lo que se obtuvo la información respectiva a cada átomo, sus sitios de Wyckoff a partir del grupo espacial y la especie atómica. Con esta información se generaron nuevas variables, tomando en cuenta radio atómico promedio y electronegatividad promedio, a partir de los cuales se generan relaciones de los radios atómicos, de acuerdo con el sitio de Wyckoff. Posteriormente, se realiza la descripción del entorno químico local, tomando en cuenta los factores geométricos del empaquetamiento del cristal y el factor de tolerancia de Goldschmidt. Con esta información, es posible definir para este caso si el compuesto estudiado tiene estructura perovskita (Figura 11), al generar con el valor en la capa de salida un clasificador de estructuras: material perovskita (1) o no perovskita (0).

Para este sistema no fue necesario el uso de cálculos de mecánica cuántica, pero éstos sí se utilizaron para validar la predicción realizada por la red neuronal. La red neuronal artificial, entrenada con características basadas únicamente en datos empíricos condujo a puntajes superiores al 96% en la clasificación de compuestos cristalinos como estructuras de perovskita o no perovskita, y la red neuronal permitió no solo lidiar con las estructuras de perovskita cúbica de alta simetría, sino también con aquellas donde hay rotación entre octaedros.

Los alcances de esta investigación sugieren que la metodología actual puede aplicarse a otros sistemas de cristal con más de cuatro sitios. Este enfoque puede servir para desarrollar más modelos de clasificación binaria para otros tipos de estructuras como silicatos complejos, espinelas o wurtzitas. El éxito del presente

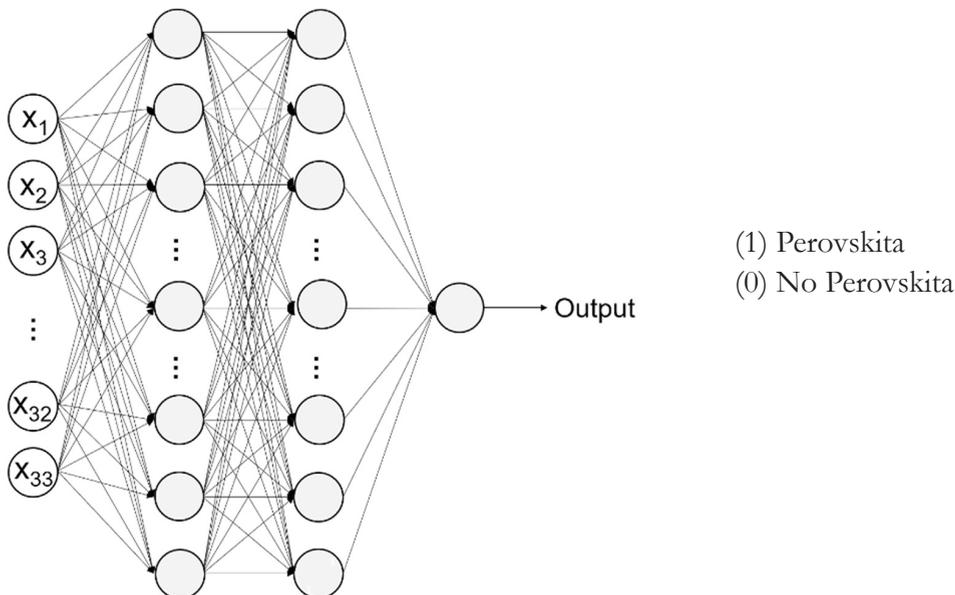


Figura 11. Arquitectura de Red Neuronal clasificadora de estructura perovskita.

trabajo también sentó un precedente para entrenar a las redes neuronales para clasificar un compuesto en una variedad de estructuras cristalinas.

2.4. Automatización del proceso de estudios de materiales

El descubrimiento y desarrollo de nuevos materiales para su aplicación a procesos catalíticos de producción de energía son esenciales para una transición a una economía baja en carbono. Unir las innovaciones tecnológicas en materia de automatización, robótica y ciencias de la computación con enfoque en química, síntesis y caracterización de materiales permitirá acelerar las actividades de investigación y desarrollo tradicionales, tanto en la industria como en la academia.

El desarrollo de nuevos algoritmos integrados de IA y robótica en plataformas totalmente autónomas es imprescindible para alcanzar estos objetivos. Aspuru-Guzik [45] reportan un estudio enfocado al desarrollo de materiales, en el cual se integra la detección virtual de alto rendimiento, planificación de síntesis automatizada, laboratorios automatizados y algoritmos de aprendizaje automático.

Además de reducir en un orden de magnitud los tiempos en el desarrollo de nuevos materiales, este enfoque integrado busca reducir los costos asociados

con el descubrimiento inicial y con ello, el costo de los productos finales. Esta propuesta se basa en el uso de robots para la realización de experimentos que generen un análisis de datos; estos datos a su vez generen nueva información y comprensión de la misma, y luego utiliza un algoritmo de ML para diseñar nuevos experimentos optimizados enfocados en el objetivo específico de la investigación, generando así un ciclo virtuoso en estas tareas.

Un ejemplo de experimentación automatizada, propuesto por Aspuru-Guzik [45] se esquematiza en la Figura 12. El procedimiento comienza con la identificación de un espacio de solicitud de candidatos para un problema determinado. Los prospectos prometedores de esta biblioteca se identifican, potencialmente a través de la detección computacional, y se reducen aún más al identificar las moléculas sintéticamente accesibles. Finalmente, las limitaciones de los sistemas robóticos disponibles se tienen en cuenta antes de comenzar la síntesis y caracterización automatizadas.

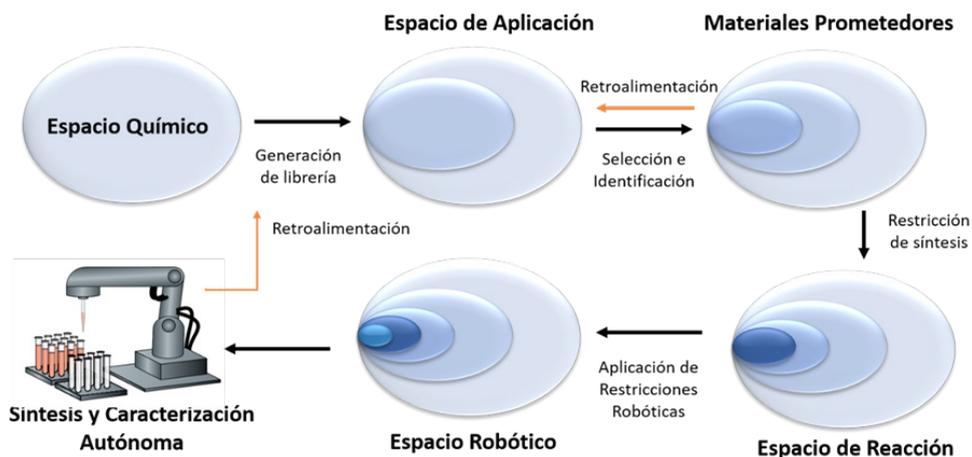


Figura 12. Flujo de trabajo de un enfoque de circuito cerrado para el descubrimiento de materiales autónomos [45].

La retroalimentación de la experimentación *in situ* se utiliza para ajustar el modelo, creando el espacio de aplicación para la próxima iteración de este ciclo. Otros mecanismos de retroalimentación en varias etapas del ciclo ayudan a garantizar que los candidatos sean compatibles con todas las etapas del ciclo, y reduzcan la prueba y el error a largo plazo. Una vez construida, esta función se utiliza para proponer el siguiente experimento. El modelo se actualiza y avanza hacia la maximización del rendimiento de la reacción en función de las condiciones predefinidas.

3. Conclusiones

Vivimos en una época en la que abunda la información; mediante la aplicación de algoritmos de ML es posible convertir esa información en conocimiento. En los últimos años se han aplicado algoritmos poderosos para, empleando la información contenida en poderosas bibliotecas y librerías en su mayoría de código abierto, detectar patrones en esta información y hacer predicciones sobre eventos futuros. En este estudio se presentan algunos ejemplos de la aplicación e integración de algoritmos al desarrollo de catalizadores en ciencia de materiales. Lo interesante en estos algoritmos es que cada ejemplo acopla información de su problema, ya sea para describir los entornos químicos locales (por medio de interacciones energéticas a partir de ecuaciones Gaussianas), o a partir de patrones o espectros usados como tratamiento y clasificación de imágenes, y obtener así el resultado deseado.

Con escasa infraestructura y la aplicación de la metodología se podrá realizar investigación de forma autónoma en ciertas etapas de misma, y mediante su integración, se podrá dedicar más tiempo al desarrollo de nuevas ideas. Adicionalmente, se disminuirá el contacto con compuestos tóxicos y peligrosos y los gastos de operación, y se podrá hacer la planeación de síntesis que se realizará mediante un brazo robótico trabajando 24 horas, e integrar la información obtenida a la investigación.

Actualmente existen pocos grupos de investigación enfocados al desarrollo de algoritmos de ML aplicados a la ciencia de materiales. Su aplicación en este campo podría generar grandes beneficios en el área de catalizadores, empleando algoritmos con eficiencia del 86-96%, y minimizando el requerimiento de capacidad computacional, mediante el uso de esta metodología e información suficiente integrada al algoritmo de ML. Sin duda, un incremento en la disponibilidad de librerías de programación y métodos de optimización que se puedan integrar a un software permitirá realizar el estudio de nuevos materiales de manera más rápida y eficiente.

Agradecimientos

Los autores agradecen el apoyo económico de los proyectos SIP 20201373 y 20200352, y CONACyT 285711. Ch. Rodríguez agradece las becas recibidas a CONACyT y BEIFI (IPN).

Bibliografía

1. Escudero-Escribano M., Verdaguer-Casadevall A., Malacrida, P., Grønbjerg U., Knudsen B. P., Jepsen A. K., Rossmeisl J., Stephens I. E. L., and Chorkendorff I. (2012). Pt₅gd as a highly active and stable catalyst for oxygen electroreduction. *J. Am. Chem. Soc.*, 134, 16476 – 16479. <https://doi.org/10.1021/ja306348d>.
2. Lim B., Jiang M., Camargo P. H. C., Cho E. C., Tao J., Lu X., Zhu Y. and Xia Y. (2009). Pd-pt bimetallic nanodendrites with high activity for oxygen reduction. *Science*, 324, 1302 – 1305. <https://doi.org/10.1126/science.1170377>.
3. Abyzov, A.M. (2019). Aluminum Oxide and Alumina Ceramics. Review Part 1. Properties of Al₂O₃ and Commercial Production of Dispersed Al₂O₃. *Refract. Ind. Ceram.*, 60, 24-32. <https://doi.org/10.1007/s11148-019-00304-2>.
4. Vozdecky, P.; Roosen, A.; Knieke, C. and Peukert, W. (2010). Direct Tape Casting of Nanosized Al₂O₃ Slurries Derived from Autogenous Nanomilling. *J. Am. Ceram. Soc.*, 93, 1313-1319. <https://doi.org/10.1111/j.1551-2916.2009.03597.x>.
5. Zemanek, M.; Pribyl, R.; Kelar, J.; Pazderka, M.; Stastny, P.; Kudelcik, J.; Trunec, M. and Cernak, M. (2019). Electrical Properties of Alumina-Based Ceramic Barrier Layers for Dielectric Barrier Discharge. *Plasma Sources Sci. Technol.*, 28, 075001. <https://doi.org/10.1088/1361-6595/ab28fa>.
6. Liu, S.; Liu, S.; Zhou, Y.; Piao, Y. Li, G. and Wang. Q. (2018). Transparent ZnO:Al₂O₃ Films with High Breakdown Voltage and Resistivity. *Appl. Phys. Lett.*, 113, 032102. <https://doi.org/10.1063/1.5028513>.
7. Liu, J.; Yan, H. and Jiang, K. (2013). Mechanical Properties of Graphene Platelet-Reinforced Alumina Ceramic Composites. *Ceramics Int.*, 39, 6215–6221. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2013.01.041>.
8. Li, F.; Xu, K.; Dong, C. and Chen, J. (2008). Study on Catalyst Carrier Nano- α -Alumina with High Specific Surface Area. *Front. Chem. China*, 3, 198–202. <https://doi.org/10.1007/s11458-008-0038-8>.
9. Behrens M., Studt F., Kasatkin I., Kuhl S., Havecker M., Abild-Pedersen F., Zander S., Girgsdies F., Kurr P., Knief B. L., Tovar M., Fischer R. W., Nørskov J. K. and Schlögl R. (2012). The active site of methanol synthesis over Cu/ZnO/Al₂O₃ Industrial catalysts, *Science*, 336, 893 – 897. <https://doi.org/10.1126/science.1219831>.

10. Olah G. A. (2005). Beyond oil and gas: The methanol economy. *Angew. Chem. Int. Ed.*, 44, 2636 – 2639. <https://doi.org/10.1002/anie.200462121>.
11. Olah G. A., Goepfert, A. and Prakash G. K. S. (2009). Chemical recycling of carbon dioxide to methanol and dimethyl ether: From greenhouse gas to renewable, environmentally carbon neutral fuels and synthetic hydrocarbons, *J. Org. Chem.* 74, 487 – 498. <https://doi.org/10.1021/jo801260f>
12. Rudolph, M.; Motylenko, M. and Rafaja, D. (2019). Structure model of γ -Al₂O₃ based on planar defects. *IUCrJ*, 6, 116–127. <https://doi.org/10.1107/S2052252518015786>.
13. Blank T. B., Brown S. D., Calhoun A. W., and Doren D. J. (1995). Neural-network models of potential-energy surfaces, *J. Chem. Phys.*, 103, 4129 – 4137. <https://doi.org/10.1063/1.469597>.
14. Lorenz, S.; Scheffler, M. and Gross, A. (2006). Descriptions of Surface chemical reactions using a neural network representation of the potential-energy surface. *Phys. Rev. B*, 73, 115431. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.73.115431>.
15. Behler, J. and Parrinello, M. (2007). Generalized Neural-Network Representation of High-Dimensional Potential-Energy Surfaces. *Phys. Rev. Lett.*, 98, 146401. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.98.146401>.
16. Artrith, N. and Urban, A. (2016). An Implementation of Artificial Neural-Network Potentials for Atomistic Materials Simulations: Performance for TiO₂. *Comput. Mater. Sci.*, 114, 135-150. <https://doi.org/10.1016/j.commatsci.2015.11.047>.
17. Goodfellow, I., Bengio, Y. and Courville, A. *Deep Learning*. MIT Press, 2016.
18. Raschka, S. and Mirjalili, V. *Python Machine Learning*. Pack publishing Ltd. UK, 2017.
19. Hsu, F.-H. *Behind Deep Blue: Building the Computer That Defeated the World Chess Champion*. Princeton University Press, Princeton, NJ, USA. 2002.
20. McCulloch, W., Pitts and W., Bull. *A Logical Calculus of the Ideas Immanent in Nervous Activity*. *Math. Biophys.* 1943, 5, 115.

21. Gasteiger, J. and Zupan, J. (1993). Neural Networks in Chemistry. *Angew. Chem. Int. Ed.* 32, 503. <https://doi.org/10.1002/anie.199305031>.
22. Scarselli, F. and Tsoi, A. V. (1998). The Graph Neural Network Model. *Neural Networks* 11, 15.
23. Attali, J-G. and Pages, G. (1997). Approximations of functions by a multilayer perceptron: a new approach, *Neural Networks* 10(6), 1069-1081. [https://doi.org/10.1016/s0893-6080\(97\)00010-5](https://doi.org/10.1016/s0893-6080(97)00010-5).
24. Hirosaki, N., Takeda, T., Funahashi, S. and Xie, R.-J. (2014). Discovery of New Nitridosilicate Phosphors for Solid State Lighting by the Single-Particle-Diagnosis Approach. *Chem. Mater.* 26, 4280–4288. <https://doi.org/10.1021/cm501866x>.
25. Park, W. B., Chung, J., Jung, J., Sohn, K., Singh, S. P., Pyo, M., Shin, N. and Sohn, K.-S. (2017). Classification of crystal structure using a convolutional neural network. *IUCrJ* 4, 486-494. <https://doi.org/10.1107/S205225251700714X>.
26. O'Day, P.A., Newville, M., Neuhoff, P.S., Sahai, N. and Carroll, S.A. (2000). X-ray absorption spectroscopy of strontium(II) coordination. *J. Colloid Interface Sci.* 222, 184–197. <https://doi.org/10.1006/jcis.1999.6621>.
27. Chaurand, P., Rose, J., Briois, V., Salome, M., Proux, O., Nassif, V., Olivi, L., Susini, J., Hazemann, J.L., and Bottero, J.y. (2007). New methodological approach for the vanadium K-edge X-ray absorption near-edge structure interpretation: application to the speciation of vanadium in oxide phases from steel slag. *J. Phys. Chem. B*, 111, 5101–5110. <https://doi.org/10.1021/jp063186i>.
28. Silversmit, G., Bokhoven, J.A.V., Poelman, H., Eerden, A.M.J.V.D., and Marin, G.B. (2005). The structure of supported and unsupported vanadium oxide under calcination, reduction and oxidation determined with XAS. *Appl. Catal. B* 285, 151–162. <https://doi.org/10.1016/j.apcata.2005.02.018>.
29. Manceau, A., Marcus, M., and Lenoir, T. (2014). Estimating the number of pure chemical components in a mixture by X-ray absorption spectroscopy. *J. Synchrotron Radiat.* 21, 1140–1147. <https://doi.org/10.1107/S1600577514013526>.

30. Beauchemin, S., Hesterberg, D., and Beauchemin, M. (2002). Principal component analysis approach for modeling sulfur K-XANES spectra of humic acids. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 66, 83. <https://doi.org/10.2136/sssaj2002.8300>.
31. Laskowski, R., and Blaha, P. (2010). Understanding the L2,3 X-ray absorption spectra of early 3d transition element. *Phys. Rev. B* 82, 205104. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.82.205104>.
32. Zheng, C.; Chen, C.; Chen, Y. and Ong, S. P. (2020). Random Forest Models for Accurate Identification of Coordination Environments from X-Ray Absorption Near-Edge Structure. *Patterns*. 1, 2, 1000013. <https://doi.org/10.1016/j.patter.2020.100013>
33. Timoshenko, J., Lu, D., Lin, Y., and Frenkel, A.I. (2017). Supervised machine learning-based determination of three-dimensional structure of metallic nanoparticles. *J. Phys. Chem. Lett.* 8, 5091–5098. <https://doi.org/10.1021/acs.jpcllett.7b02364>.
34. Carbone, M.R., Yoo, S., Topsakal, M., and Lu, D. (2019). Classification of local chemical environments from X-ray absorption spectra using supervised machine learning. *Phys. Rev. Matter.* 3, 033604. <https://doi.org/10.1103/PhysRevMaterials.3.033604>.
35. Liu, J., Osadchy, M., Ashton, L., Foster, M., Solomone, C. and Gibson, J.S. (2017). Deep convolutional neural networks for RAMAN spectrum recognition: a unified solution. *The Royal Society of Chemistry*. 142, 21, 4067-4074. <https://doi.org/10.1039/C7AN01371J>.
36. Lafuente, B. Downs, R. T., Yang, H. and Stone, N. (2015). The power of databases: the RRUFF project. *Highlights in Mineralogical Crystallography*, pp. 1–30. <https://doi.org/10.1515/9783110417104-003>.
37. Car, R. and Parrinello, M. (1985). Unified Approach for Molecular Dynamics and Density-Functional Theory. *Phys. Rev. Lett.* 55, 2471. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.55.2471>.
38. D. Marx and J. Hutter, *Ab initio Molecular Dynamics: Basic Theory and Advanced Methods*. Cambridge University Press, Cambridge, 2009.
39. Behler, J. and Parrinello, M. (2007). Generalized Neural-Network Representation of High-Dimensional Potential-Energy Surfaces. *Phys. Rev. Lett.*, 98, 146401. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.98.146401>.

40. Gómez-Peralta, J and Bokhimi, X. (2020). Discovering new perovskites with artificial intelligence. *Journal of solid Chemistry*, 285, 121253. <https://doi.org/10.1016/j.jssc.2020.121253>.
41. Uchino, K. (2015). Glory of piezoelectric perovskites. *Sci. Technol. Adv. Mater.* 16, 4, 046001. <https://doi.org/10.1088/1468-6996/16/4/046001>.
42. Hancock, C.A., Porras – Vazquez, Keenan, P.J. and Slater P.R. (2015). Oxyanions in perovskites: from superconductors to solid oxide fuel cells. *Dalton Trans.* 44, 10559–10569. <https://doi.org/10.1039/C4DT03036B>.
43. Koh TM, Thirumal K, Soo HS and Mathews N. (2016). Multidimensional Perovskites: A Mixed Cation Approach Towards Ambient Stable and Tunable Perovskite Photovoltaics. *Chem. Sus. Chem.* 9 (18):2541-2558. <https://doi.org/10.1002/cssc.201601025>.
44. Gra_zulis, S., Da_skevi_c, A., Merkys, A., Chateigner, D., Lutterotti, L. Quir_ os, M., Serebryanaya, N.R., Moeck, P. Downs, R.T. and LeBail. A. (2012). Crystallography Open Database (COD): an open-access collection of crystal structures and platform for world-wide collaboration. *Nucleic Acids Res.* 40, D420–D427. <https://doi.org/10.1093/nar/gkr900>.
45. Tabor, D.P., Roch, L.M., Saikin, S.K., Kreisbeck, C., Sheberla, D., Montoya, J.H. et al. (2018). Accelerating the discovery of materials for clean energy in the era of smart automation. *Nature Reviews Materials*, 3, 5-20. <https://doi.org/10.1038/s41578-018-0005-z>.