

Algorithme génétique hybride massivement parallèle pour la résolution structurale des zéolithes

Omar Abdelkafi¹, Lhassane Idoumghar¹, Julien Lepagnot¹, Jean-Louis Paillaud²

¹ Université de Haute-Alsace, LMIA, EA 3993, F-68093 Mulhouse, France.

{omar.abdelkafi,lhassane.idoumghar,julien.lepagnot}@uha.fr

² Université de Haute-Alsace, CNRS, IS2M UMR 7361, F-68093 Mulhouse, France.

{jean-louis.paillaud}@uha.fr

Mots-clés : *Algorithme génétique, parallélisation, structure zéolitique, fonction objectif.*

1 Introduction

Depuis la découverte de la première zéolithe naturelle par le minéralogiste suédois Axel Fredrik Cronstedt [1] jusqu'aux applications industrielles les plus récentes, les zéolithes comptent 250 ans d'histoire. L'un des défis de la recherche dans le domaine des zéolithes est la découverte de nouveaux matériaux microporeux de type zéolithe. Ils sont utilisés pour des applications en catalyse, séparation et adsorption. Les zéolithes sont particulièrement intéressantes pour l'industrie pétrolière pour avoir de nouveaux catalyseurs zéolitiques à larges pores pour favoriser les phénomènes de diffusion et/ou de faire de nouvelles réactions avec des molécules plus grandes en taille. Les zéolithes sont composées principalement d'atomes de silicium et d'aluminium qui représentent deux des éléments les plus abondants sur terre.

Les Algorithmes Génétiques (AG) ont la capacité d'explorer l'espace de recherche et de trouver des solutions inattendues. Ils ont été utilisés avec succès pour résoudre des problèmes de la chimie combinatoire. Le problème de la résolution structurale des zéolithes ou ZSP (de l'anglais *Zeolites Structure Problem*) est introduit par [2].

2 Formulation de la fonction objectif

Nous proposons, dans cette section, une formulation de la fonction objectif pour résoudre le ZSP. Le calcul est réalisé sur la totalité de l'UC pour évaluer le potentiel de la structure à être une topologie d'une zéolithe stable. Avant chaque évaluation, l'UC de la solution est générée à partir des positions aléatoires des atomes initiaux et des paramètres d'entrée. L'UC est évaluée à l'aide de notre fonction objectif. Cette fonction objectif regroupe un ensemble de pénalisations (contraintes) destinées à évaluer le potentiel de la structure zéolitique. Le ZSP peut être vu comme un problème de minimisation, ce qui veut dire que si toutes les contraintes sont satisfaites alors nous obtenons une structure avec la valeur optimale qui est égale à zéro dans la formulation. Cette structure est alors considérée comme une topologie optimale d'une zéolithe potentielle. Cette formulation de la fonction objectif est composée de 5 pénalisations. Chaque pénalisation est calculée indépendamment et ajoutée à l'évaluation finale.

La première pénalisation traite la connexion entre tous les atomes T de l'UC. La seconde pénalisation vérifie la formation des tétraèdres. La troisième pénalisation vérifie l'existence des 3MR (*3-Membred Ring*). La quatrième pénalisation a pour but de vérifier les distances entre les atomes. La pénalisation finale de la formulation traite les angles \widehat{TTT} entre les atomes T .

3 Présentation de la méthode P-GHAZ

Notre proposition pour résoudre le problème de la résolution structurale des zéolithes est un AG hybride et parallèle que nous avons nommé P-GHAZ (de l'anglais *Parallel Genetic Hybrid Algorithm for Zeolite*). Une population d'individus aléatoires est générée par l'algorithme. Chaque individu représente les atomes d'une AU. Chaque position de l'atome dans l'AU est définie par 3 coordonnées atomiques (x, y, z). Pour créer une zéolithe potentielle par le P-GHAZ, l'algorithme modifie les coordonnées des atomes dans l'AU à travers des croisements et des mutations. Cette mutation est exécutée avec un *pas* qui est prédéfini sur les axes x, y et z. En utilisant les paramètres de l'UC, la topologie est créée et évaluée. L'UC est l'unité de volume la plus petite qui contient toutes les informations structurales et les informations de symétrie. L'objectif est de générer de nouvelles structures avec des topologies qui sont énergétiquement stables et potentiellement synthétisables en zéolithes lorsque la topologie est inconnue.

4 Validation des structures zéolitiques obtenues

Les structures avec une évaluation optimale sélectionnées doivent être validées dans le laboratoire de chimie. Pour cela, les meilleurs candidats sont minimisés, à l'aide de logiciels spécialisés, afin de placer correctement les atomes d'oxygène et de silicium dans une configuration acceptable. À travers trois jeux de tests de zéolithes cibles testés dans la formulation avec le P-GHAZ, nous avons sélectionné 42 structures pour la validation dans le laboratoire de chimie. Le P-GHAZ a réussi à obtenir six topologies possibles qui sont redondantes dans les 42 structures envoyées. Trois d'entre elles sont déjà connues et les trois autres sont nouvelles.

Nous vous proposons un résultat validé à partir des paramètres de la zéolithe **ITE**.

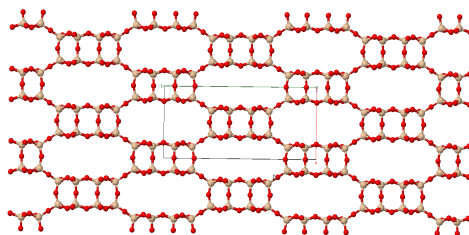


FIG. 1 – La première nouvelle zéolithe *HZM#1* calculée par P-GHAZ.

5 Conclusions et perspectives

L'objectif de ce travail est de traiter le problème de la résolution structurale des zéolithes. D'un point de vue algorithmique, la génération de nouvelles topologies stables de zéolithes inconnues est un défi très intéressant pour aider les chimistes dans la synthèse de nouveaux matériaux zéolitiques.

Références

- [1] A. F. Cronstedt. Rön och beskrifning om en obekant bärg art som kallas zeolites. *Kungliga Vetenskapsakademiens Handlingar*, 17 :120–123, 1756.
- [2] M. Falcioni and M. W. Deem. A biased monte carlo scheme for zeolite structure solution. *Journal of Chemical Physics*, 110(3) :1754–1766, 1999.