



UNIVERSITAT
POLITÈCNICA
DE VALÈNCIA

Informe de prácticas en empresa

Autor: Sergi Vila Boronat

Tutores: Reisel Millán Cabrera

Juan Miguel Alberola Oltra

En las prácticas de la cátedra ENIA-UPV, se ha llevado a cabo un estudio computacional del mecanismo de la reacción de deshidratación e isomerización de isobutanol para producir butenos lineales, catalizada por una zeolita con la estructura ferrierita (FER). Las zeolitas son catalizadores ácidos fuertes, y el mecanismo de la reacción incluye etapas de protonación del alcohol, formación de agua, isomerización de la cadena carbonada, y deprotonación de los intermedios catiónicos para formar butenos (Figura 1).

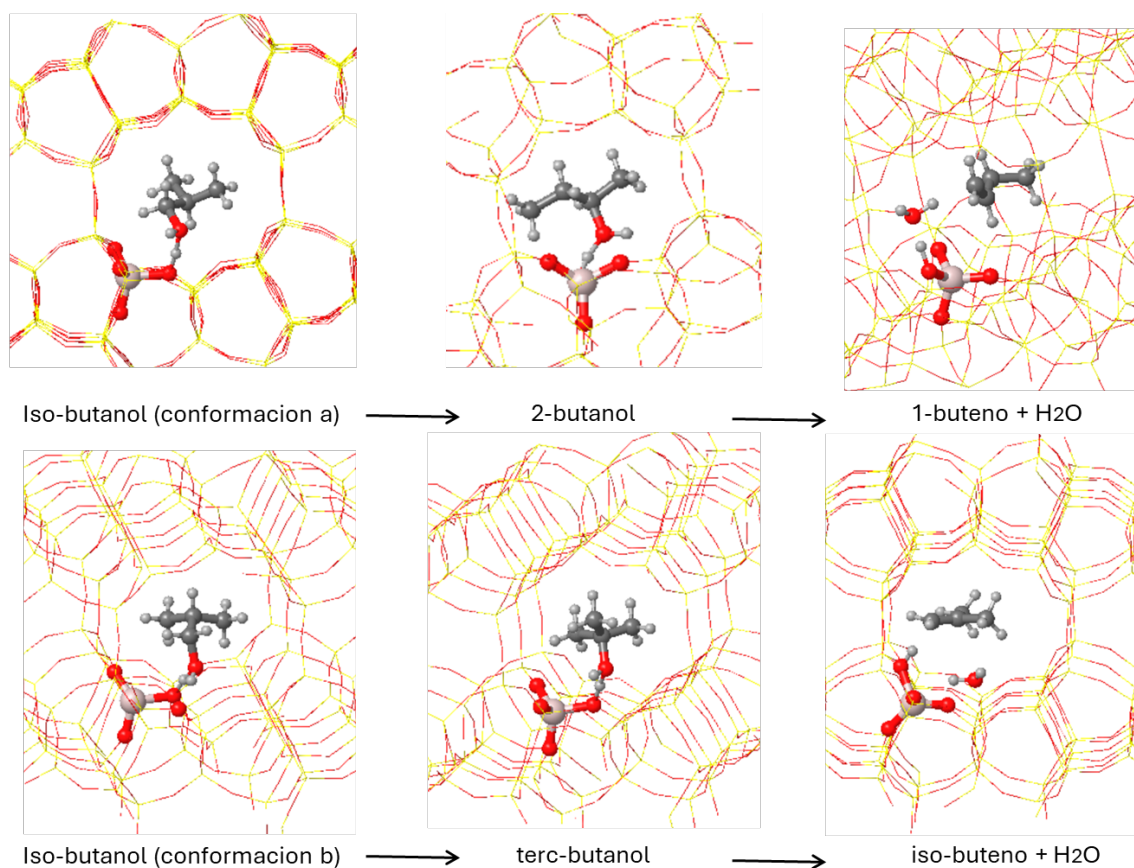


Figura 1. Estructuras optimizadas a nivel DFT de los intermedios más relevantes del mecanismo de deshidratación de isobutanol catalizado por la zeolita ferrierita. Dependiendo de la conformación inicial del isobutanol adsorbido se pueden obtener butenos lineales (1-buteno, arriba) o ramificados (iso-buteno, abajo). Los átomos de Si y O de la zeolita se muestran como líneas amarillas y rojas; los átomos de Al, O, C e H que participan en la reacción se muestran como bolas crema, rojas, grises y blancas, respectivamente.

El objetivo de estas prácticas es doble. Por una parte, conocer a nivel molecular el mecanismo de esta reacción, es decir, obtener la superficie de energía potencial del proceso mediante la optimización de la geometría de todas las especies implicadas en el proceso: reactivos, productos, intermedios de reacción y los estados de transición que los conectan. Por otra parte, evaluar la eficiencia de distintas metodologías de simulación atómica, para lo cual se han empleado tanto métodos tradicionales de química cuántica basados en teoría del funcional de la densidad (DFT), como enfoques más recientes basados en potenciales de aprendizaje automático o *machine learning* (ML).

Los cálculos DFT se han realizado mediante el código VASP, ampliamente utilizado para el estudio de propiedades electrónicas y estructurales de materiales sólidos y sistemas moleculares. Este enfoque permite obtener resultados con alta precisión, si bien con un coste computacional elevado. Por otro lado, se ha explorado el uso de potenciales de *machine learning*, en particular el modelo MACE (*Message Passing Atomic Cluster Expansion*), implementado dentro del entorno de Atomic Simulation Environment (ASE). Este tipo de potenciales permite aproximar la superficie de energía potencial con menor coste, facilitando la exploración de configuraciones y la optimización estructural.

Los cálculos realizados a lo largo de esta práctica han permitido comparar la precisión y eficiencia de los enfoques DFT y *machine learning* en la descripción del mecanismo de reacción estudiado. Para ello, se ha representado la energía de todas las estructuras optimizadas con el modelo MACE frente a las energías calculadas a nivel DFT (Figura 2). Se observa una correlación lineal entre ambos conjuntos de datos, con un valor del coeficiente de regresión $r^2 = 0.85$. Este resultado indica que el modelo MACE reproduce bien las tendencias energéticas DFT, pero su precisión se debería mejorar mediante un proceso de re-entrenamiento de ajuste fino (*fine-tuning*).

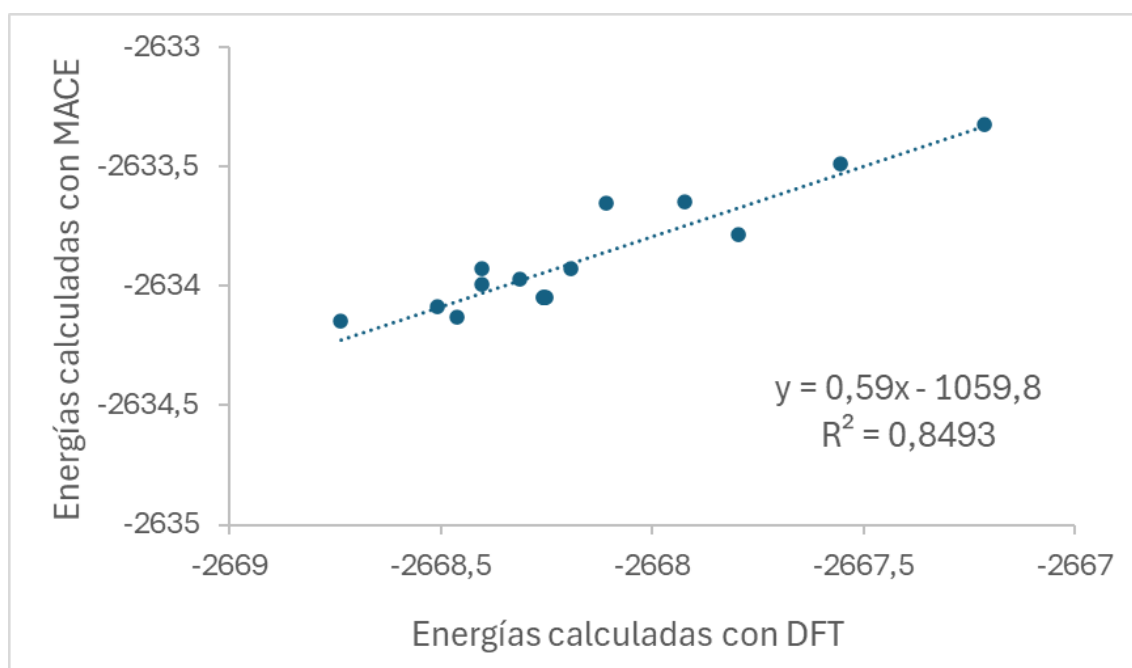


Figure 2. Representación de las energías calculadas con el modelo MACE frente a las energías calculadas DFT, incluyendo los coeficientes del ajuste de regresión lineal. Los valores de las energías se dan en eV.

Estos resultados son bastante buenos teniendo en cuenta que los cálculos realizados con DFT tienen un coste computacional mucho más alto. Para los cálculos DFT hemos necesitado hasta 55 horas para optimizar una sola estructura utilizando 64 procesadores, mientras que con el potencial MACE estas optimizaciones se realizan en menos de 10 minutos utilizando solamente 8 procesadores.