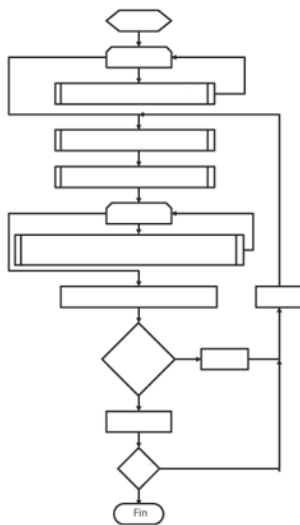


Optimización geométrica de nanoestructuras por el método de algoritmos genéticos

Enrique Guevara Chapa, Sergio Mejía-Rosales
CICFIM, Facultad de Ciencias Físico-Matemáticas, UANL
enrique.guevara.chapa@gmail.com , sergio.mejiars@uanl.edu.mx



RESUMEN

Las propiedades físicas y químicas de las nanoestructuras metálicas están fuertemente correlacionadas con su estructura geométrica a nivel atómico. En esta correlación radica la importancia del problema de encontrar la estructura de mínima energía en cúmulos compuestos por unas pocas decenas de átomos, pues la determinación de estas estructuras optimizadas permite generar simulaciones computacionales y análisis teóricos más precisos. En este trabajo se implementó el método de algoritmos genéticos para encontrar la estructura de mínima energía bajo el potencial Sutton-Chen. Los resultados se comparan en efectividad y rapidez contra el método Monte Carlo de recocido simulado.

PALABRAS CLAVE

Inteligencia artificial, algoritmos genéticos, optimización, Sutton-Chen

ABSTRACT

The physical and chemical properties of metal nanostructures are strongly correlated with the geometric structure at atomic level. It is this correlation that gives importance to the problem of finding the minimum energy structure of clusters consisting of a few tens of atoms, because the determination of these optimized structures can generate computer simulations and theoretical analysis more accurate. A method of genetic algorithms to find the lowest energy structure in the Sutton-Chen potential was implemented in this work. The results were compared in effectiveness and speed against the Monte Carlo simulated annealing.

KEYWORDS

Artificial intelligence, genetic algorithms, optimization, Sutton-Chen.

INTRODUCCIÓN

El acomodo geométrico de los átomos que forman nanopartículas metálicas es uno de factores que determinan las características físicas y químicas de las partículas.¹ Cuanto menor sea la cantidad de átomos que formen una partícula, las diferencias entre los isómeros cobran mayor importancia, por

lo que contar con una estrategia para encontrar la geometría que tenga la menor energía potencial, es decir, la más estable, es de gran utilidad para los análisis teóricos y para el diseño de experimentos.² Debido a que existen varias estructuras estables para cualquier cúmulo de átomos, encontrar la estructura óptima se clasifica como un problema NP-duro,³ lo que implica que el problema es no-determinista, por lo que no tiene solución analítica. Bajo estas condiciones, es recomendable utilizar métodos de inteligencia artificial, como pueden ser algoritmos genéticos⁴ (AG). En este artículo se explicará el diseño de los algoritmos genéticos para encontrar las estructuras geométricas óptimas de las cúmulos monometálicos, utilizando el potencial de Sutton-Chen para modelar las fuerzas interatómicas.

CARACTERÍSTICAS DE LA OPTIMIZACIÓN

En este artículo se define la optimización de nanopartículas como la búsqueda de la estructura con la menor energía interna. Se trabajó con nanopartículas de 2 hasta 80 átomos de plata, a una temperatura de 0 K, es decir, sin considerar ningún efecto de dinámica molecular. Los potenciales atómicos se calcularon usando el modelo de Sutton y Chen para metales. El modelo de Sutton-Chen es un potencial semiempírico, que ha sido ampliamente utilizado para predecir la energía y configuraciones en cúmulos de metales nobles, especialmente de oro y plata.² La ecuación que describe este modelo de potencial es¹

$$U_{SC} = \varepsilon \sum_{i=1}^N \left[\frac{1}{2} \sum_{j=1, j \neq i}^N \left(\frac{a}{r_{ij}} \right)^n - c \sqrt{\sum_{j=1, j \neq i}^N \left(\frac{a}{r_{ij}} \right)^m} \right]$$

Aquí, n y m son enteros que cumplen la condición $m > n$, r_{ij} es la distancia entre los átomos i y j , a es el parámetro de red para estructura fcc, c es una constante que se ajusta para determinar el punto de equilibrio y ε es una constante que permite trabajar la energía del sistema en unidades físicas. Estas constantes fueron establecidas en un principio para igualar curvas experimentales,^{1,5} aunque después se han ajustado siguiendo aproximaciones analíticas clásicas y cuánticas.⁶ Los valores utilizados para modelo de la plata son $m=12$, $n=6$, $\varepsilon(eV)=2.5330 \times 10^{-3}$, $c=145.658$ y $a(\text{Å})=4.0900$.

IMPLEMENTACIÓN DE ALGORITMOS GENÉTICOS

Los algoritmos genéticos de búsqueda se basan en el principio de la teoría evolutiva biológica.⁷ Esta teoría explica cómo las especies van produciendo individuos con aptitudes cada vez mayores para sobrevivir en condiciones dadas. Bajo este principio se pueden resolver problemas físicos de optimización global. En AG cada individuo es una solución propuesta al problema dado y a través de la selección, reproducción y mutación se generan nuevos individuos, repitiendo el procedimiento hasta que se cumple un criterio de convergencia.

Codificación

En la naturaleza, las características propias de cada individuo están codificadas en sus genes. Estas características generan la aptitud del individuo para transmitir sus genes a la siguiente generación. En los AG los genes serán los datos de la solución propuesta y la aptitud será un número real que indique la probabilidad que esta solución sea tomada en cuenta.

En la optimización de nanopartículas los genes de cada solución son las posiciones relativas de cada átomo en la partícula y la aptitud será un número inversamente proporcional a la energía, pues las configuraciones con menor energía deben de tener mayor probabilidad de ser seleccionadas.

Tamaño de población

El primer paso del método AG consiste en generar una serie de estructuras aleatorias y relajarlas por un método de optimización local, con una cantidad fija de átomos. El conjunto de estas estructuras serán la población inicial del método y su número determinará cuantas soluciones habrá en cada generación.

El método de optimización local utilizado para la relajación de las nanopartículas, es el método FIRE (*Fast Inertial Relaxation Engine*)⁸ debido a su rapidez y fácil implementación.

Para buscar el tamaño de población ideal se utilizaron nanopartículas de 13, 19 y 38 átomos en plata. Se trabajó con esta cantidad de átomos debido a que las propiedades geométricas de estas nanopartículas son muy distintas.⁹ Se realizaron

pruebas con poblaciones de 10, 20 y 40 individuos, con los mismos criterios de selección y mutación. Se encontró que para poblaciones de 40 el método convergía en menos de 50 generaciones en los sistemas de 13 y 19 átomos encontrando las configuraciones óptimas el 100% de las ocasiones, pero en la nanopartícula de 38 átomos sólo encontraba el mínimo global un 2% de las ocasiones en un promedio de 170 generaciones. Tanto con 10 y 20 individuos se obtuvieron resultados casi idénticos: las configuraciones de 13 y 19 átomos convergen en un promedio de 60 generaciones con una efectividad del 100% en localizar el mínimo global. En la configuración de 38 átomos se logra la convergencia en 230 generaciones con una efectividad del 14% para encontrar el mínimo global. Es por esto que para el diseño final se utilizó una población $N=10$.

Selección

Para seleccionar a los individuos de la generación que transmitirán sus genes, es decir a los padres de la siguiente generación, se utilizó la técnica de rueda de *ruleta por pares*. Esta técnica consiste en asignar una probabilidad de ser escogido a cada individuo en base a su aptitud y en función a esta probabilidad son seleccionados dos padres distintos. Este proceso se repite tantas veces como individuos existan en la próxima generación.

La clave para el funcionamiento de este método es generar la aptitud de manera adecuada. La aptitud tiene que ser mayor entre más negativa sea la energía, pero si se define como el negativo de la energía, todas las nanopartículas tendrán prácticamente la misma probabilidad de ser seleccionadas dado que los rangos energéticos son de la misma magnitud. Para poder diferenciar claramente las mejores estructuras y asignarles una probabilidad significativamente mayor de ser escogidas se aumentó la presión selectiva. Esto se logra al elevar a una potencia el negativo de la energía. Se probaron 3 distintas potencias como presión selectiva y se graficaron las probabilidades de cada individuo como se muestra en la figura 1. En esta figura se ve claramente que una potencia de 4 no es suficiente para hacer una distinción significativa entre los niveles de energía y que una potencia de 8 provoca que dos nanopartículas ocupen el 90% de la ruleta, lo cual no es deseable.

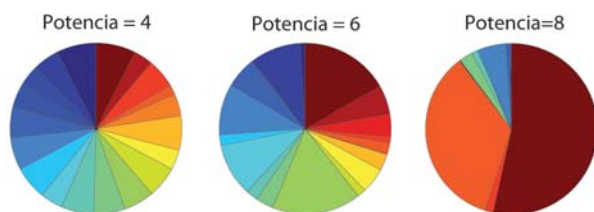


Fig. 1. Probabilidades de cada estructura en una generación de ser seleccionado como padres. Las tres corridas son independientes para 20 estructuras de 19 átomos, con potencias distintas en cada corrida.

Con la potencia de 6 se marca claramente cuáles son mejores nanopartículas, pero conserva la diversidad genética de la siguiente población.

Después de la selección de cada uno de los padres, se reservó el último lugar para el individuo con mayor aptitud. De esta forma se garantiza que los mejores genes se transfieran a la siguiente generación. Al hacer este elitismo se vio una mejora considerable en la efectividad del método.

Cruce

Cuando los padres hayan sido seleccionados se buscó la forma de combinar los genes para la siguiente generación. Esto se logró al dividir cada una de las estructuras en dos y unir las partes de cada una, cuidando siempre que los hijos tengan la misma cantidad de átomos que los padres. Una vez unidas las partes, se relajan las estructuras y se obtiene un nuevo individuo. Con esta forma de realizar el cruce se pueden obtener dos hijos de dos padres y acelerar el proceso de crear una nueva generación. En la figura 2 se puede ver con exactitud como se realiza este cruce entre dos estructuras.

Al hacer esta operación con todos los padres, se crea una nueva generación que debe de tener una aptitud promedio mejor que la anterior, aunque esto no garantiza que tenga individuos mejores y sólo si se usa elitismo se puede garantizar con absoluta certeza que siempre se tendrá a un individuo tan bueno como el mejor de la generación anterior.

Mutación

Debido a que en el cruce se realiza una relajación que reubica a todos los átomos, por lo que en cada cruce hay un factor de mutación implícito. Sin

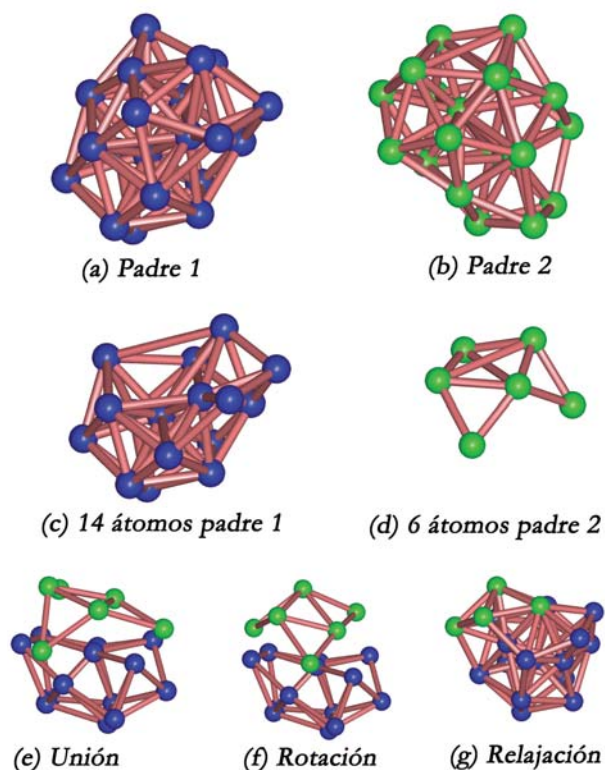


Fig. 2. Cruce entre dos estructuras de 19 átomos. Se pueden ver en 2(a) y 2(b) a los padres, en 2(c) y 2(d) se ve a los padres después del corte realizado. En 2(e) se muestra la unión de las dos partes, en 2(f) se ve que una de las partes realizó un giro sobre el plano de corte y en 2(g) se ve la estructura final relajada.

embargo, esta mutación es muy pequeña y no altera la posición de los átomos lo suficiente como para modificar la geometría total de la nanopartícula, por lo que fue necesario agregar un factor de mutación externa. Esto se obtuvo al rotar sobre el plano de corte a una de las dos partes a unir y de esta forma conservar toda la información que se desea transmitir y evitar que un gen dominante se transmita en la misma posición durante muchas generaciones. Esta mutación hace que el número de pasos para encontrar el mínimo global en la estructura de 38 átomos, se reduzca a la mitad.

Desestancamiento

El último factor que se definió fue el criterio de convergencia y de desestancamiento. El criterio que se decidió implementar fue el siguiente: Si se generan 15 generaciones sin cambiar el mínimo, se cambiará el valor de la potencia que eleva la

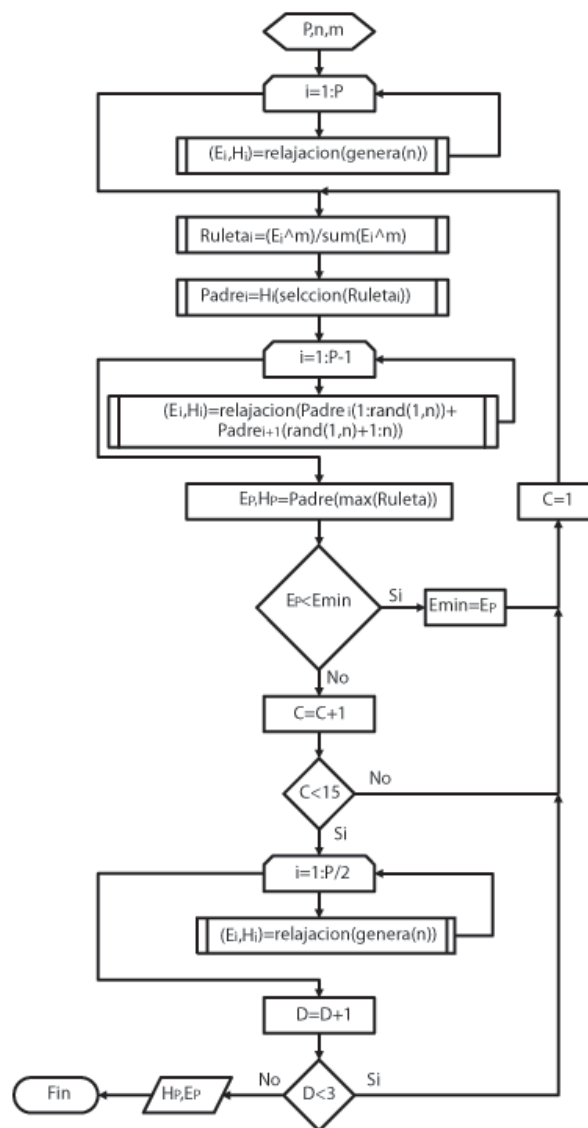


Fig. 3. Diagrama de flujo de Algoritmos Genéticos.

energía de 6 a 4; si el mínimo se conserva por otras 15 generaciones, se cambiará de nuevo el valor de la potencia de 4 a 2; si aún así se conserva el mínimo durante 15 generaciones más, se eliminará la mitad de las estructuras al azar y se introducirá el mismo número de estructuras nuevas, además de que se regresará la potencia a su valor original de 6. Este ciclo se repetirá hasta la tercera vez que se introduzca nueva población. En la figura 3 se puede ver un diagrama de flujo del funcionamiento de los algoritmos genéticos.

Se eligió el criterio de 15 generaciones, pues el método converge muy rápido a un mínimo local estable y permanece ahí la mayoría de las veces. En las

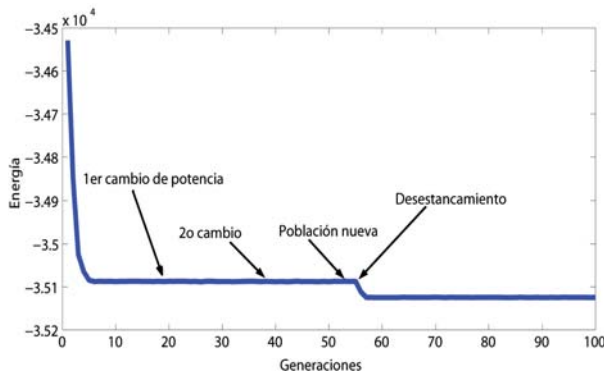


Fig. 4. Energía en cada generación con 19 átomos.

corridas de prueba, sin usar el criterio de renovación que ya se mencionó, se encontró que cuando un mínimo para 38 átomos se conservaba durante 15 generaciones, ese mismo mínimo se mantenía durante 100 generaciones el 100% de las ocasiones y durante 200 generaciones el 90% de las veces. Cuando se introdujeron los criterios de renovación el mínimo se mantuvo un 95% después del primer cambio de la potencia reguladora de la presión selectiva, un 90% después del segundo cambio de la misma potencia y un 87% después del tercer cambio. Cuando se introducían las nuevas estructuras, se conseguían nuevos mínimos antes de 15 generaciones en un 50% de los casos. En la figura 4 se ve una corrida típica en la que disminuir la presión selectiva provoca que se salga de un estancamiento.

Los pasos de selección, cruce y mutación, se repitieron de forma cíclica hasta que se cumpla un criterio de convergencia.

RESULTADOS

La versión final de los algoritmos genéticos es con una población de 10, selección por ruleta en pares, presión selectiva variable al elevar la energía a potencias de 6, 4 o 2 según se requiera y con la mitad de la población renovándose cada 45 pasos que el mínimo no cambie. En la figura 5 se ven las gráficas de tres corridas típicas para las distintas cantidades de átomos analizadas.

Para todas las corridas se usó la versión R2011a de MATLAB en una PC genérica, con procesador Pentium Dual-Core de 2.70 GHz, 8 GB de RAM y sistema operativo Windows 7 profesional. Se intentó tener la memoria lo más limpia posible todo el tiempo y no correr nunca procesos en paralelo.

Una vez definidas todas las variables de diseño de AG, se intentó resolver para todos los cúmulos de 2 a 80 átomos de plata. Estos resultados se compararon con los resultados de la corridas bajo las mismas condiciones por el método de Monte Carlo BH.¹⁰ Para comparar la efectividad de los métodos mencionados, se calculan 20 corridas independientes de cada uno de ellos y se obtiene la cantidad de veces que se encontró el mínimo global. Los resultados de esta comparación se muestran en el tabla I. La rapidez de los métodos se toma la cantidad de pasos totales en el método Monte Carlo BH y la cantidad de generaciones totales en algoritmos genéticos. La cantidad de pasos de Monte Carlo BH está fija en 1000 para cualquier cantidad de átomos. Calculando el número de operaciones promedio se puede ver que una generación de AG, con población de 10,

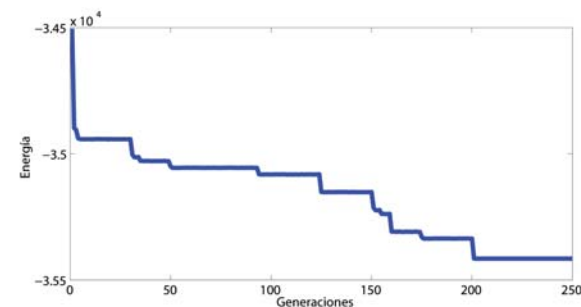
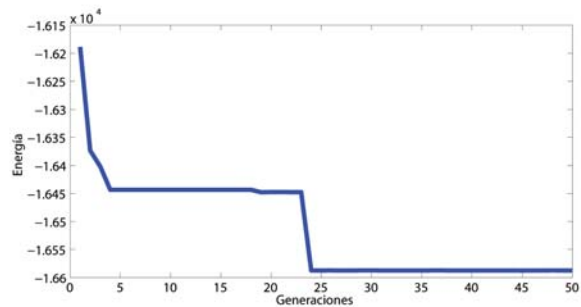
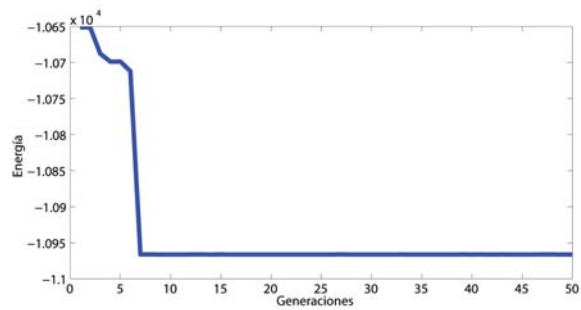


Fig. 5. Energía en cada generación para 13, 19 y 38 átomos respectivamente.

es lo mismo que 10 pasos de BH. Obviamente si los valores de la cantidad de pasos o el número de generaciones son modificados, el porcentaje de efectividad variará. Aunque no se realizó una búsqueda sistemática para encontrar la relación entre efectividad y número de pasos o generaciones, se ha visto que ésta no es una relación lineal y que depende del número de átomos involucrados.

Tabla I. Comparación entre el método Monte Carlo BH y algoritmos genéticos

N	MC-BH		AG	
	(%)	Pasos	(%)	Generaciones
20	100	1000	100	117.4000
21	100	1000	100	115.5000
22	100	1000	100	119.4000
23	0	1000	15	147.1500
24	20	1000	5	160.7500
25	80	1000	15	158.2500
26	10	1000	30	146.4000
27	15	1000	10	143.5000
28	25	1000	5	150.5000
29	25	1000	5	167.7500
30	0	1000	0	148.4500
31	0	1000	25	154.4500
32	40	1000	40	160.3500
33	55	1000	15	181.9000
34	0	1000	20	177.7500
35	0	1000	0	163.5000
36	5	1000	0	168.8000
37	60	1000	30	175.3000
38	10	1000	20	168.6000
39	65	1000	10	178.3000
40	60	1000	20	193.2000
41	5	1000	0	189.1000
42	0	1000	0	200.4000
43	20	1000	10	195.3000
44	40	1000	15	178.6000
50	0	1000	0	180.7500
55	65	1000	55	206.9000
60	25	1000	40	242.0000
65	0	1000	0	255.1000
70	0	1000	0	241.3000
75	0	1000	0	190.8000
80	0	1000	0	210.5000

Para todas las estructuras de menos de 23 átomos, encontrar el mínimo global es prácticamente trivial para cualquiera de los dos métodos. Para 23 átomos hay un cambio abrupto en la efectividad de ambos métodos, pasando del 100% en 22 átomos a 0% para BH y 15% en AG, aumentando considerablemente la cantidad de generaciones promedio.

En la comparación se nota con claridad que en la mayoría de los casos el método Monte Carlo BH es superior en efectividad a los algoritmos genéticos, además de superarlos en rapidez notablemente en todos los casos. Los casos en los que AG supera a BH en efectividad (N=23,26,31,34,38,60) son geometrías que no están basadas en icosaedros, aunque en geometrías con las mismas características (N=37,39) BH es claramente superior. De hecho no se notan cambios significativos en la efectividad de AG, sino una disminución notable de la efectividad de BH en estas estructuras. Un punto de coincidencia en ambos métodos es su comportamiento en estructuras mayores de 45 átomos, pues ninguno encuentra mínimos globales reportados excepto en sistemas de 55 y 60 átomos.

CONCLUSIÓN

Haciendo un análisis estructural para los resultados de algoritmos genéticos, se ve que los isómeros más comunes son combinaciones de icosaedros más pequeños, por lo regular de 13 átomos, apilados entre sí. Esta manera de acomodo de las partículas, a veces puede producir estructuras compactas y otras no tanto. Esto tiene que ver con la forma de generar las partículas a base de juntar fracciones de otras partículas. En la tabla I se puede observar que los algoritmos genéticos son mucho más consistentes que el método BH, aunque su porcentaje de efectividad es, por lo regular, bajo. Un ejemplo se ve en la efectividad para la estructura de 38 átomos, en donde se ve claramente que el método BH baja mucho su efectividad debido al efecto de doble embudo que tiene esta estructura en particular,¹¹ mientras que AG mantiene una efectividad similar a las estructuras de 37 y 39 átomos.

Algo que se puede suponer es que el AG funcione particularmente bien en la predicción de partículas modeladas con potenciales truncados, como el potencial Dzugotov,¹² que modela el comportamiento

de partículas en líquidos y genera estructuras icosaedrales apiladas.¹³ Se podría mejorar el método al rotar a las partículas antes de combinarlas, de modo que coincidan los ejes de inercia principales, aunque encontrar dichos ejes, requiere un esfuerzo computacional adicional a considerar.

En general, puede concluirse que el método de algoritmos genéticos no genera mejores resultados que el método de Monte Carlo BH, excepto en estructuras con poca simetría radial. Por esta razón los AG serían una buena opción para predecir estructuras que se sabe *a priori* o se sospecha que no tienen una simetría radial, o que pueden considerarse como la unión de cúmulos menores, como es el caso de nanoalambres y de partículas de menos de 100 átomos.

BIBLIOGRAFIA

1. A. P. Sutton and J. Chen, Long-range Finnis-Sinclair potentials, *Philosophical Magazine Letter* 61, 139 (1990).
2. Jonathan P. K. Doye and David J. Wales, Global minima for transition metal clusters described by Sutton-Chen potentials, *New Journal of Chemistry* 22, 733 (1998).
3. L. T. Wille and J. Vennik, Computational complexity of the ground-state determination of atomic clusters, *Journal of Physics A Mathematical General* 18, L419–L422 (1985).
4. M. Locatelli and F. Schoen, Global Minimization Of Lennard-Jones Clusters By A Two-Phase Monotonic Method, Tech. Rep. (Università di Torino, 1999) citeseer.ist.psu.edu/606053.html.
5. H. Rafii-Tabar and A. P. Sutton, Long-range Finnis–Sinclair potentials for fcc metallic alloys, *Philosophical Magazine Letters* 63, 217–224 (1991).
6. Yoshitaka Kimura, Yue Qi, Tahir Cagin and William A. Goddard III, The Quantum Sutton-Chen Many-Body Potential for Properties of fcc Metals, Tech. Rep. (California Institute of Technology, 1998) <http://citeseer.ist.psu.edu/150963.html>.
7. David E. Goldberg, *Genetic Algorithms in Search, Optimization and Machine Learning* (Addison-Wesley Longman Publishing Co., Inc., Boston, MA, USA, 1989) ISBN 0201157675.
8. Erik Bitzek, Pekka Koskinen, Franz Gahler, Michael Moseler, and Peter Gumbsch, Structural relaxation made simple, *Physical Review Letters* 97, 170201 (2006).
9. Nazim Dugan and Sakir Erko, Genetic algorithms in application to the geometry optimization of nanoparticles, *Algorithms* 2, 410–428 (2009).
10. Enrique Guevara, Optimización geométrica de nanopartículas metálicas por métodos numéricos, Masters thesis, Universidad Autónoma de Nuevo León (2009).
11. Jonathan P. K. Doye, Mark Miller, and David J. Wales, The double-funnel energy landscape of the 38-atom Lennard-Jones cluster, *Journal of Chemical Physics* 110, 6896 (1999), doi:10.1063/1.478595.
12. M. Dzugutov and U. Dahlborg, Molecular dynamics study of the coherent density correlation function in a super cooled simple one component liquid, *Journal of Non-Crystalline Solids* 62, 131–133 (1991).
13. Jonathan Doye and David Wales, Polytetrahedral clusters, *Physical Review Letters* 86, 5719 (2001), doi:10.1103/PhysRevLett.86.5719.
14. Lixin Zhan, Jeff Z. Chen, and Wing-Ki Liu, Monte carlo basin paving: An improved global optimization method, *Physics Review E* 73, 015701 (2006).
15. Roy Johnston, Thomas Mortimer-Jones, Christopher Roberts, Sarah Darby, and Frederick Manby, Application of genetic algorithms in nanoscience: Cluster geometry optimization, in *Applications of Evolutionary Computing, Lecture Notes in Computer Science*, Vol. 2279, edited by Stefano Cagnoni, Jens Gottlieb, Emma Hart, Martin Middendorf, and Günther Raidl (Springer Berlin / Heidelberg, 2002) pp. 25–61, ISBN 978-3-540-43432-0.