

Rapport Technique

Découverte de matériaux donneurs à l'aide de l'apprentissage automatique : une approche par réseau de neurones profonds

Membres :

AMADOU SOUMANOU OMONLABAKÈ RALIATOU
CHERIF WISSEM
CODO LOTH-MARIE JG
MEVAH MBELLE MARLENE TATIANA
RAOUMBE AXEL

Encadré par:

KEKELI N'KONOU

ACADEMIC YEAR : 2024 – 2025

Contents

1	Introduction	3
1.1	Contexte	3
1.2	Objectifs du projet	3
2	Architecture du modèle	4
2.1	Modèle de prédiction de propriétés (PCE)	4
2.1.1	Représentation de la molécule	4
2.1.2	Construction des orbitales atomiques de type gaussien	4
2.1.3	Combinaison linéaire des orbitales atomiques (LCAO)	4
2.1.4	Densité électronique et HK_map	4
2.1.5	PCE	5
2.2	Modèle de génération de molécules	5
2.3	Architectre globale du modèle	6
3	Datasets	7
3.1	Overview sur les Datasets	7
3.2	Datasets de coordonnées 3D	7
4	Prérequis	9
4.1	Vérification de la présence d'un GPU et installation de CUDA	9
4.2	Installation de Pytorch	9
5	Guide utilisateur	10
5.1	Arbre du projet	10
5.2	Séparation du dataset	11
5.3	Transformation des SMILES en coordonnées 3D	11
5.4	Préparation des données pour le modèle	12
5.5	Entraînement du modèle	12
5.6	Prédiction du PCE	14
5.7	Courbe d'apprentissage	14
5.8	Demo pour le modèle de prédiction	14
5.9	VAE	14
5.10	Conseils d'utilisation	15
5.10.1	GPU	15
5.10.2	Basis set	15
6	Axes d'améliorations	16
6.1	Suggestion modèle de prédiction	16
6.1.1	GPU	16
6.1.2	Hyperparamètres	16
6.1.3	Fonction de pertes du modèle et fontion d'activation	16
6.2	Modèle de génération	17
6.2.1	Traduction SMILES en SELFIES	17
6.2.2	Génération de molécules via NO-Operation (NOP)	17
7	Appendices	18
7.1	References	18
7.2	Définitions additionnelles ou figures complémentaires	18

1 Introduction

1.1 Contexte

La découverte de nouveaux matériaux joue un rôle central dans l'accélération de l'innovation technologique, en particulier dans le domaine de l'efficacité énergétique. Alors que la demande mondiale de solutions énergétiques durables augmente, les cellules solaires organiques (OSC) apparaissent comme une alternative prometteuse aux cellules photovoltaïques traditionnelles. Ces dispositifs se distinguent par leurs nombreux avantages, notamment leur faible coût de fabrication, leur flexibilité mécanique, leur facilité de production à grande échelle et leur faible toxicité. Cependant, l'amélioration de l'efficacité de la conversion de puissance (PCE) reste un défi majeur.

La qualité des matériaux constituant la couche active des OSC, composée de matériaux donneurs (polymères et petites molécules) et d'accepteurs, est un facteur décisif de leur performance. La découverte et l'optimisation de matériaux donneurs performants nécessitent des cycles expérimentaux longs, coûteux et gourmands en ressources, ce qui entrave l'adoption généralisée de cette technologie.

Dans ce contexte, l'intégration de techniques d'apprentissage automatique, en particulier l'apprentissage profond, offre une solution innovante. Celles-ci peuvent modéliser des données complexes et temporelles, ce qui les rend particulièrement adaptées à la prédiction des propriétés des matériaux et à la génération de nouvelles structures moléculaires optimisées pour maximiser le PCE.

1.2 Objectifs du projet

L'objectif principale de ce projet est d'accélérer la découverte de nouveaux matériaux donneurs pour les OSC en utilisant des techniques d'apprentissage automatique. En particulier, nous visons à développer un modèle basé sur l'apprentissage profond capable de prédire efficacement le PCE des matériaux donneurs. En parallèle, nous utiliserons des algorithmes de génération moléculaire pour créer de nouvelles structures moléculaires optimisées pour les OSC. En vu du développement de ce projet, nous écrivons un rapport technique dans le but de permettre à quiconque de prendre en main le modèle d'apprentissage développé et de l'utiliser pour prédire les propriétés des matériaux donneurs, en particulier le PCE.

2 Architecture du modèle

Pour répondre à la problématique de la découverte de nouveaux matériaux donneurs pour les OSC, nous nous appuyons sur les travaux de **Jinyu Sun et al.**¹ qui ont développé un modèle d'apprentissage profond pour la génération de molécules et du QuantumDeepField de **Masashi et al.**² capable de prédire les propriétés électroniques des molécules.

2.1 Modèle de prédiction de propriétés (PCE)

Dans ce modèle, nous parlerons du **Quantum Deep Field (QDF)** pour prédire les propriétés des matériaux donneurs telles que le PCE. L'architecture du modèle repose sur deux réseaux de neurones profonds majeurs : le réseau de neurones de prédiction de propriétés et le réseau de neurones basés sur des contraintes physiques. L'architecture du modèle est illustrée ci-dessous.

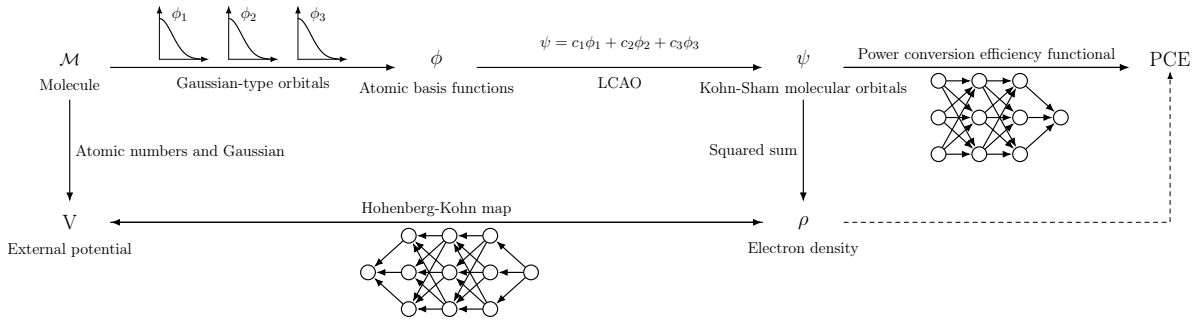


Figure 1: Quantum Deep Field (QDF) pour la prédiction de PCE

2.1.1 Représentation de la molécule

La molécule d'intérêt, notée \mathcal{M} , est d'abord représentée sous forme de coordonnées atomiques et de numéros atomiques. Cette représentation sert de point de départ pour la génération des fonctions de base atomiques.

2.1.2 Construction des orbitales atomiques de type gaussien

À partir de la structure moléculaire, des orbitales atomiques de type gaussien ($\phi_1, \phi_2, \phi_3, \dots$) sont générées. Ces fonctions de base servent à décrire la distribution électronique autour de chaque atome.

2.1.3 Combinaison linéaire des orbitales atomiques (LCAO)

Les orbitales atomiques sont combinées linéairement pour former les orbitales moléculaires de Kohn-Sham (ψ), selon la méthode LCAO ($\psi = c_1\phi_1 + c_2\phi_2 + c_3\phi_3$). Cette étape permet de modéliser la structure électronique de la molécule.

2.1.4 Densité électronique et HK_map

La densité électronique (ρ) est obtenue en sommant les carrés des orbitales moléculaires. Cependant, minimiser uniquement la fonction de perte \mathcal{L}_{PCE} ne garantit pas que le modèle appris soit physiquement significatif.

En effet, en raison de la forte non-linéarité du réseau de neurones profond (DNN), il est possible d'obtenir un PCE correcte même si les orbitales de Kohn-Sham ψ ne sont pas valides.

Cela signifie que le modèle ne garantit pas que les orbitales $\psi(\mathbf{r})$ produisent la bonne densité électronique $\rho(\mathbf{r}) = \sum_{n=1}^N |\psi_n(\mathbf{r})|^2$.

Pour remédier à ce problème, une contrainte supplémentaire est imposée sur $\psi(\mathbf{r})$ basée sur le théorème de Hohenberg-Kohn, qui assure que le potentiel externe $V(\mathbf{r})$ est une fonction unique de la densité électronique.

2.1.5 PCE

Le PCE est calculé à partir des orbitales moléculaires. Il est exprimé par un DNN, ce qui permet d'évaluer l'efficacité de conversion d'énergie de la molécule.

2.2 Modèle de génération de molécules

Ce modèle repose sur une approche par modélisation générative utilisant un Auto-Encodeur Variationnel (VAE), combinée à une préparation des données chimiques. L'objectif est de créer un système capable de représenter fidèlement les structures moléculaires dans un espace latent continu, puis d'utiliser ces représentations pour générer de nouvelles structures prometteuses en termes d'efficacité photovoltaïque.

Le choix du VAE s'explique par sa capacité à encoder des données complexes dans un espace latent structuré, tout en permettant la génération d'exemples nouveaux par simple échantillonnage. Dans notre cas, cela permet de transformer des chaînes SMILES en vecteurs continus, puis de régénérer des chaînes moléculaires viables à partir de ces vecteurs. Le VAE est particulièrement utile pour éviter les erreurs syntaxiques communes lors de la génération de nouvelles molécules.

Le modèle VAE utilisé dans ce projet se compose de trois parties principales :

- **Encodeur** : transforme les SMILES vectorisés en une distribution latente gaussienne.
- **Espace latent** : échantillonnage dans cet espace pour produire des représentations moléculaires nouvelles.
- **Décodeur** : reconstruit des SMILES valides à partir des vecteurs latents.

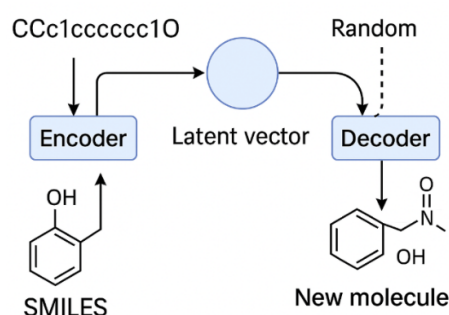


Figure 2: Architecture VAE

Cette architecture permet non seulement de reproduire fidèlement les molécules du dataset, mais aussi de générer des candidats inédits pour les OPV.

Chaque molécule passe par plusieurs étapes :

- **Nettoyage des données** : vérification de l'intégrité des SMILES, suppression des anomalies et standardisation.

- **Vectorisation** : conversion caractère par caractère ou via des embeddings, pour produire des vecteurs traitables par les modèles.
- **Normalisation** : application de padding et de mise à l'échelle, pour assurer une homogénéité des entrées.

Ces transformations permettent au réseau d'extraire les caractéristiques pertinentes des molécules tout en préservant leur validité chimique.

2.3 Architecture globale du modèle

L'architecture globale du modèle combine les deux parties précédentes : le modèle de prédiction de propriétés et le modèle de génération de molécules.

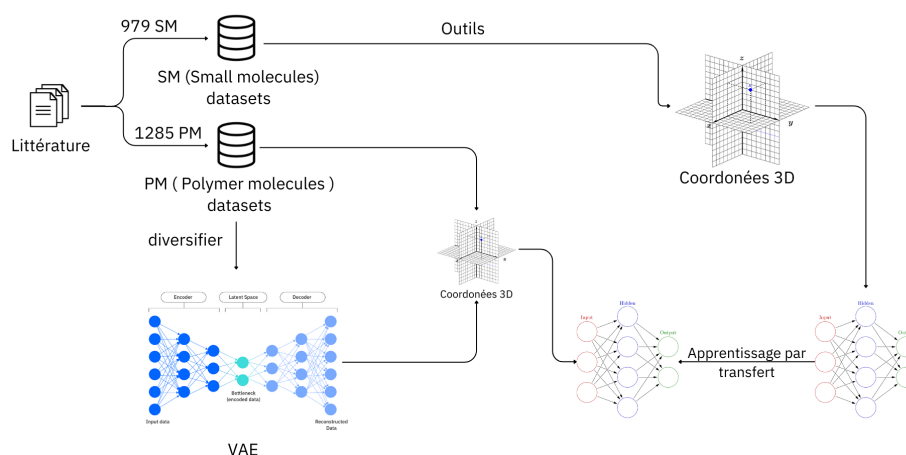


Figure 3: Architecture globale du modèle

On peut voir sur le modèle qu'il y a une série d'étape pour notre architecture :

- **Transformations des molécules en 3D** : La première chose à faire est de transformer les molécules en coordonnées pour l'entraînement du modèle.
- **Entrainement du modèle QDF-SM** : Entrainer dans un premier le modèle sur les molécules SM transformées.
- **Transfert Learning du modèle QDF-PM** : Faire de l'apprentissage par transfert sur les molécules PM transformées.
- **Génération de molécules** : Génération de nouvelles molécules qui sont à tester sur les modèles entrainés (pour la prédiction).

En résumé, l'architecture proposée combine un modèle génératif basé sur un Auto-Encodeur Variationnel (VAE) pour la création de nouvelles structures moléculaires et un modèle de prédiction de propriétés (Quantum Deep Field) pour évaluer leur efficacité photovoltaïque. Cette approche intégrée permet non seulement d'explorer efficacement l'espace chimique à la recherche de nouveaux matériaux donneurs, mais aussi de prédire les propriétés de matériaux tels que le PCE.

3 Datasets

3.1 Overview sur les Datasets

Les datasets utilisés dans ce projet sont issus du dépôt GitHub de Jinyu Sun et al.¹ sur le DeepDonor. Dans ce dépôt on trouve deux types de datasets : SM (Small Molecules) et PM (Polymer Molecules). Pour pouvoir évaluer le modèle plus tard il nous fallait les mêmes données que celles utilisées par Jinyu Sun et al.¹

Le dataset SM est constitué de **979 SM** tandis que le dataset PM est constitué de **1285 PM** et comportent des molécules qui proviennent de la littérature. Ils sont au format **csv** et dans chacun d'eux on retrouve les molécules encodées en **SMILES** et leurs **PCE** respectifs.

```
datasets > SM > SM.csv > data
1 SMILES, PCE
2 CCCCCC(CC)CC1(CC(CC)CCCC)C(C=C(/C=C(C#N)\C#N)S2)=C2C3=C1C=C(/C=C(C
3 CCCCCC(S1)=CC=C1C2=CC=C(S2)C3=CC=C(C4=CC=C(C5=CC=C(C6=CC=C(CCCC
4 CCCCCC(C1C2=C(C3=C1C=CC=C3)C=CC(C4=CC(C5=CC(C6=CC(C(CCCCCC)C)C
5 CCCCCC(CC)CC1(CC(CC)CCCC)C2C3=CC=C(C4=CC=CC=C4)C=C3C(CC(CC)CCCC)C
6 CCCCCC(S1)=CC=C1C2=C(C3=CC=C(CCCCC)S3)SC(C(S4)=CC=C4C5=C(C6=CC=
7 O=C1C2=CC=CC=C2N(CC(CC)CCCC)C3=C1C=C(N(CC(CC)CCCC)C(C=CC=C4)=C4C5
8 CCCCCC(CC)CN1C(C=CC(/C=C(C#N)\C#N)=C2)=C2C3=C1C=CC(/C=C(C#N)\C#N)=
9 O=C(C(C=CC=C1)=C1C/2=O)C2=C/C3=CC=C(S3)C(S4)=CC=C4N5C6=C(C=CC=C6)
10 CC12C3(C)SC(/C=C/C4=CC=C(N(C5=CC=C(/C=C/C6=CC=C(N(C7=CC=CC=C7)C8=
11 O=C(N(CC(CCCCC)CCCC)C1=CC(C2=CC(C=CC=C3)=C3O2)=CC=C1/4)C4=C/C=C5
12 CCN(C1=CC=CC=C1)C2=CC=C(/C=C/C(C(C)C)O/3)=C(C#N)C3=C(C#N)/C#N)C=
13 O=C1C2=CC(C)=CC=C2NC3=C1C=C(NC(C=CC(C)=C4)=C4C5=O)C5=C3, 0.07
14 C1(C2=CC=C(C(C3=CC=CN3[Pd]4)=C5N4CC=C5)S2)=CC=C(C(C=C6)=CC=C6N(C7
15 O=C1N(CC)C(S/C1=C\C=C=C2C=CN(CC)C3=C\2C=CC=C3)=S, 0.09
```

Figure 4: SMILES et PCE

Comme on peut le voir sur la figure ci-dessus, chaque ligne du fichier csv correspond à une molécule encodée en SMILES associée à leurs PCE respectif.

Un point important à noter est le fait qu'il y a une différence entre les PM et les SM. Cette différence réside au niveau de la masse moléculaires. Ainsi, ce point est intéressant à prendre en compte pour éviter toute confusion pour la suite.

3.2 Datasets de coordonnées 3D

Les datasets évoqués précédemment servent de point d'entrée pour le modèle de prédiction (Quantum Deep Field). Pour permettre au modèle de prédiction de capter la structure moléculaires des molécules il faut des données numériques d'où l'idée de transformer les SMILES en coordonnées 3D. De plus, à partir de ces données numériques ils pourraient être possibles de prédire d'autres propriétés électroniques liés aux molécules.

datasets > SM > train > train_m3d.txt

1	pce_0		
2	C	5.906343	-3.258060
3	C	5.298174	-1.940497
4	C	6.464118	-1.125586
5	C	6.021668	0.223239
6	C	5.004372	0.036389
7	C	3.690774	0.226154
8	C	2.825144	0.066511
9	C	1.389317	0.210458
10	C	0.779450	0.598519
11	C	-0.601222	0.732968
12	C	-1.316294	0.471361
13	C	-2.788099	0.636467
14	C	-3.577054	0.938575
15	C	-4.920918	1.022410
16	C	-5.895803	1.420031
17	C	-6.328508	2.845932
18	C	-5.108000	3.734601
19	C	-5.472442	5.179802
20	C	-5.383701	0.696500

Figure 5: Coordonnées 3D d'une molécule

Pour chaque molécules, on génère les coordonnées 3D de chaque atomes. Ensuite on récupère ces coordonnées 3D on effectue un prétraitement pour les transformer en fichier `.npy` pour qu'ils puissent enfin être utilisé par le modèle de prédiction.

4 Prérequis

Pour la suite de ce document, l'ensemble du projet a été réalisé avec un environnement virtuel (conda).

4.1 Vérification de la présence d'un GPU et installation de CUDA

Pour profiter de l'accélération matérielle (ce qu'on vous recommande fortement) lors de l'entraînement de modèles, il est important de vérifier si votre ordinateur dispose d'un GPU compatible.

- **Sous Windows :** Ouvrez le gestionnaire de tâches (**Ctrl+Shift+Esc**) et vérifiez l'onglet "Performances" pour voir si un GPU nvidia est détecté.

```
lspci | grep -i nvidia
```

Installation de CUDA :

1. Rendez-vous sur le site officiel de NVIDIA : <https://developer.nvidia.com/cuda-downloads>. Pour l'Installer typeprenez la version local
2. Sélectionnez votre système d'exploitation et suivez les instructions d'installation.
3. Après installation, vérifiez la version de CUDA avec la commande :

```
nvcc --version
```

Remarque : Assurez-vous que la version de CUDA installée est compatible avec la version de PyTorch que vous souhaitez utiliser (voir la documentation officielle de PyTorch).

4.2 Installation de Pytorch

Avant de commencer, munissez vous d'un environnement virtuel et assurez-vous d'avoir installé les dépendances nécessaires. L'ensemble des dépendances se retrouvent dans un fichier `requirements.txt` et sont facilement installables via `pip` ou `conda`. Activez votre environnement virtuel et vous pourrez commencer à utiliser les commandes `bash` du guide utilisateur sur votre terminal. Par ailleurs, une dépendance importante à prendre en compte est la library avec laquelle sont écrit les réseaux de neurones profonds : **Pytorch**.

NOTE: Latest PyTorch requires Python 3.9 or later.

PyTorch Build	Stable (2.6.0)		Preview (Nightly)	
Your OS	Linux	Mac	Windows	
Package	Conda	Pip	LibTorch	Source
Language	Python		C++ / Java	
Compute Platform	CUDA 11.8	CUDA 12.4	CUDA 12.6	ROCm 6.2.4
Run this Command:	<code>pip3 install torch torchvision torchaudio --index-url https://download.pytorch.org/whl/cu118</code>			

Figure 6: Page de téléchargement de Pytorch

Pour vérifier la disponibilité du GPU avec PyTorch, lancez dans un terminal Python :

```
import torch
print(torch.cuda.is_available())
```

Si la commande retourne **True**, votre GPU est prêt à être utilisé.

5 Guide utilisateur

Dans cette section, nous allons vous guider sur la prise main de l'ensemble du projet. Nous allons vous expliquer comment utiliser le modèle QDF dans les grandes lignes en une série d'étapes pour assurer la cohérence de la pipeline et prédire les propriétés des matériaux donneurs, en particulier le PCE. En ce qui concerne l'explication du code des notebooks au format `.ipynb` ainsi que les commentaires présents dans le code, ont été mis à disposition pour comprendre le fonctionnement de ce derniers. Aussi, nous nous accentuerons sur les traitements des deux datasets principaux que sont les PM (polymers molecules) et les SM (small molecules) et comment on parvient à les utiliser dans le modèle.

NB : On tient à rappeler que l'ensemble des commandes qui seront présentées par la suite ont été effectuées sur windows.

5.1 Arbre du projet

L'Arbre du projet est organisé de manière à faciliter la navigation et l'utilisation des différents composants du projet. Voici un aperçu de la structure de l'arborescence :

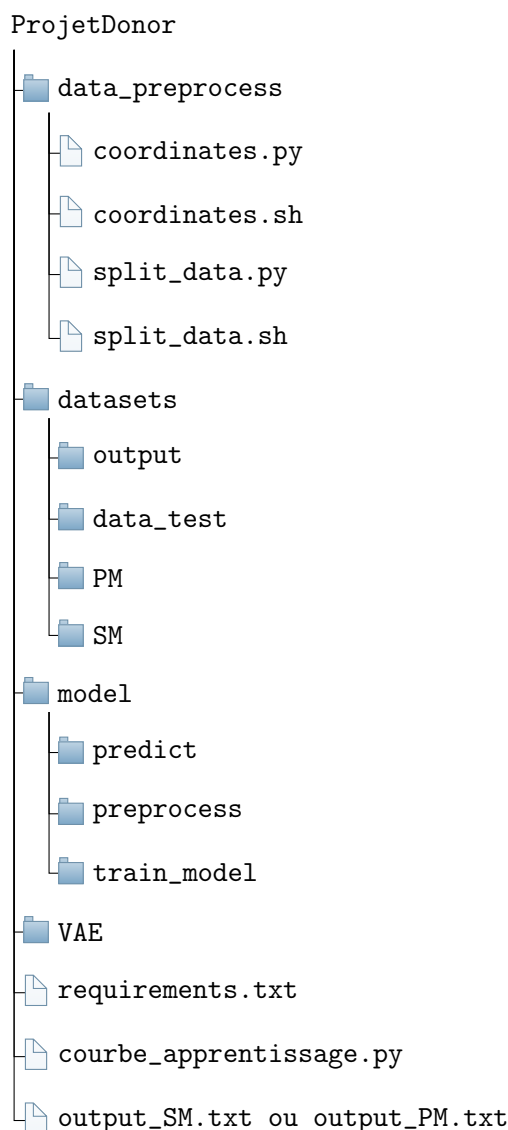


Figure 7: Arborescence du projet

Data_preprocess : Le dossier `data_preprocess` contient les scripts nécessaires pour pré-traiter les données. En effet, la forme principale des molécules des datasets pour les PM (polymers molecules) et SM (small molecules) sont au format **SMILES** il va donc falloir les traiter pour les passer sous forme de coordonnées 3D en utilisant **RdKit**.

Datasets : Le dossier `datasets` contient les dossiers PM et SM eux même qui contiennent chacun les datasets (des PM et SM) encodés sous forme SMILES et les coordonnées 3D associées à ces datasets pour l'entraînement, la validation et le test. Le dossier `output` contient les résultats de la prédiction du PCE pour les PM et SM ainsi que les modèles d'entraînement associés.

Model : Le dossier `model` contient les scripts nécessaires pour l'entraînement du modèle QDF, la prédiction du PCE et le preprocess des données réalisés sur les datasets PM.csv et SM.csv.

Avant de commencer à expliquer les principales étapes du projet, il est important de prendre en compte le fait qu'au départ seuls les dossiers PM et SM contenant les fichiers PM.csv et SM.csv sont contenus dans le dossiers datasets. Au fur et à mesure qu'on effectue les étapes la strucutre change en rajoutant des dossiers.

5.2 Séparation du dataset

La première étape du projet consiste à réaliser une séparation du dataset (PM.csv ou SM.csv) que l'on veut utiliser en trois parties : une partie pour l'entraînement, une partie pour la validation et une partie pour le test. Pour cela on utilise le script `split_data.sh` qui se trouve dans le dossier `data_preprocess`.

Le contenu du script `split_data.sh` est le suivant :

```
data_preprocess > $ split_data.sh
1
2  datapath="../datasets/SM/SM.csv"
3  trainout="../datasets/SM/train/train_file"
4  valout="../datasets/SM/val/val_file"
5  testout="../datasets/SM/test/test_file"
6
7  python split_data.py $datapath $trainout $valout $testout
```

Figure 8: Contenu du script `split_data.sh`

Dans cette image on peut voir que l'on utilise le script `split_data.py` qui se trouve dans le même dossier. Le premier argument (`datapath`) est le nom du fichier CSV à traiter (PM.csv ou SM.csv) et les autres arguments sont les noms des dossiers de sortie.

Pour exécuter le script, il faut ouvrir un terminal **bash** sur un éditeur comme VS code, accéder au dossier `data_preprocess` avec la commande `cd data_preprocess` et lancer le script depuis ce terminal avec la commande : `bash split_data.sh` sur windows.

NB : Si on veut fait un split des données sur le dataset PM il faudra juste remplacer SM par PM.

5.3 Transformation des SMILES en coordonnées 3D

La deuxième étape du projet consiste à transformer les SMILES en coordonnées 3D. Pour cela, on utilise le script `coordinates.sh` qui se trouve dans le dossier `data_preprocess`. Cela permettra d'avoir une base numérique pour l'entraînement des données sur le QDF.

Le script `coordinates.sh` est le suivant :

```

data_preprocess > $ coordinates.sh
1
2 file_path="../../datasets/SM/train/train_file.csv"
3 output_file="../../datasets/SM/train/train_m3d.txt"
4
5 python coordinates.py $file_path $output_file
6
7 file_path="../../datasets/SM/val/val_file.csv"
8 output_file="../../datasets/SM/val/val_m3d.txt"
9
10 python coordinates.py $file_path $output_file
11
12 file_path="../../datasets/SM/test/test_file.csv"
13 output_file="../../datasets/SM/test/test_m3d.txt"
14
15 python coordinates.py $file_path $output_file

```

Figure 9: Contenu du script coordinates.sh

Sur l'image on peut voir que chaque variable `file_path` correspond au fichier créé lors de la séparation du dataset tandis que les variables `output_path` correspondent aux fichiers de sortie qui contiendront les coordonnées 3D des molécules.

5.4 Préparation des données pour le modèle

La troisième étape du projet consiste à préparer les données pour le modèle QDF. Pour cela, on utilise le script `preprocess.sh` qui se trouve dans le dossier `model/preprocess`.

```

model > preprocess > $ preprocess.sh
1 dataset="SM"
2
3 # Basis set,
4 basis_set="def2-SVP" # ou basis_set=6-31G,dvall-ae3z etc selon le choix dans le site : https://www.basissetexchange.org/
5
6 # Grid field.
7 radius=0.75
8 grid_inter=0.3
9
10 python preprocess.py $dataset $basis_set $radius $grid_inter

```

Figure 10: Contenu du script preprocess.sh

La première variable `dataset` sert à définir le nom du dataset sur lequel on souhaite faire du preprocessing. La deuxième variable `basis_set` sert à définir l'ensemble de fonctions de bases utilisé. Les variables `radius` et `grid_size` servent à définir le rayon et la taille de la grille utilisée pour le champ électrique associé à chaque atome.

5.5 Entraînement du modèle

La quatrième étape du projet consiste à entraîner le modèle QDF. Pour cela, on utilise le script `QDF_SM.sh` ou `QDF_PM.sh` qui se trouve dans le dossier `model/train_model`. Un ensemble de plusieurs paramètres sont à définir dans le script `QDF_SM.sh` ou `QDF_PM.sh` :

```

model > train_model > $ QDF_SM.sh
1 dataset="SM"
2
3 # Basis set and grid field used in preprocessing.
4 basis_set=def2-SVP
5 radius=0.75
6 grid_interval=0.3
7
8 # Setting of a neural network architecture.
9 dim=250 # To improve performance, enlarge the dimensions.
10 layer_functional=4
11 hidden_HK=250
12 layer_HK=3
13
14 # Operation for final layer.
15 operation=sum # For energy (i.e., a property proportional to the molecular size).
16 # operation=mean # For homo and lumo (i.e., a property unrelated to the molecular size or the unit is e.g., eV/atom).
17
18 # Setting of optimization.
19 batch_size=2
20 lr=1e-4
21 lr_decay=0.8
22 step_size=25
23 iteration=10
24
25 num_workers=0
26
27 # True to optimize hyperparams or False to use params that we put in this file
28 hyperparam_optimizer="true"
29
30 setting=$dataset--$basis_set--radius$radius--grid_interval$grid_interval--dim$dim--layer_functional$layer_functional--hidden_HK$hidden_HK--layer_HK$
31 python QDF_SM.py $dataset $basis_set $radius $grid_interval $dim $layer_functional $hidden_HK $layer_HK $operation $batch_size $lr $lr_decay $step_s

```

Figure 11: Variable contenu dans QDF_SM.sh

Une variable importante qui influence la façon dont le modèle va apprendre est `hyperparam_optimizer`. Les hyperparamètres sont enregistrés dans un fichier qui servira de transfert learning pour l'entraînement du modèle QDF pour les PM.

```

model > train_model > best_hyperparameters.txt
1 Best hyperparameters:
2 batch_size=5
3 dim=150
4 hidden_HK=200
5 iteration=200
6 layer_HK=2
7 layer_functional=2
8 lr=0.020127
9 lr_decay=0.555957
10 step_size=2
11 Best MAE: 2.229424238204956
12

```

Figure 12: Hyperparamètres optimisés

On utilise les hyperparamètres optimisés pour le modèle QDF sur les SM pour entrainer le modèle QDF sur les PM.

```

odel > train_model > $ QDF_PM.sh
1 dataset="PM"
2
3 # Basis set and grid field used in preprocessing an args which are not modified
4 basis_set=def2-SVP
5 radius=0.75
6 grid_interval=0.3
7 operation=sum
8 num_workers=0
9
10 # args to modify if we use hyperparameter optimization
11 batch_size=5
12 dim=150
13 hidden_HK=200
14 iteration=200
15 layer_HK=2
16 layer_functional=2
17 lr=0.020127
18 lr_decay=0.555957
19 step_size=2
20
21 predataset="SM" # Extrapolation.
22
23 setting=$dataset--$basis_set--radius$radius--grid_interval$grid_interval--dim$d
24 python QDF_PM.py $dataset $basis_set $radius $grid_interval $dim $layer_functio

```

Figure 13: Variable contenu dans QDF_PM.sh

Il suffit juste de faire un copier de la partie surligner dans le fichier des hyperparamètres générés lors de l'entraînement du modèle QDF sur les SM et de le coller dans le fichier QDF_PM.sh. Les modèles d'entraînement sont sauvegardés dans le dossier `datasets/output`.

5.6 Prédiction du PCE

La dernière étape du projet pour le modèle de prédiction consiste à prédire le PCE des PM et SM grâce au modèle qu'on a pu entraîner. Pour cela, on utilise le script `predict.sh` qui se trouve dans le dossier `model/predict`. Avant cela, il y a un prétraitement de données à faire, si les données reçues sont sous forme de SMILES, avec le script `preprocess_predict.sh` se trouvant dans le même répertoire que `model/predict`.

5.7 Courbe d'apprentissage

La courbe d'apprentissage est un outil essentiel pour évaluer la performance d'un modèle au fil du temps. Pour pouvoir la visualiser, il faut exécuter script python `courbe_apprentissage.py` qui se trouve à la racine. Avant de le faire il faudrait s'assurer que le fichier `output_SM.txt` ou `output_PM.txt` contiennent des données si ce n'est pas le cas il faut aller dans dossier `datasets/output` et faire un copier-coller du fichier `SM-def2-SVP-radius0.75...` dans `output_SM.txt` ou `output_PM.txt`.

```
datasets > output > F SM--def2-SVP--radius0.75--grid_interval0.3--dim200--layer_functional1--hidden_HK200--layer_HK3--s
```

1	Epoch	Time(sec)	Loss_PCE	Loss_V	MAE_val(SM)	MAE_test(SM)	Acc_val(SM)
2	0	1.77738059999999813	116.93929290771484	3.6192049980163574	173.94134521484375	973.0284423828125	
3	1	4.0441234999999955	1529.330810546875	3.2063369750976562	148.37893676757812	1016.4052734375	0
4	2	5.750595599999997	701.3773193359375	1.9248249530792236	122.9163589477539	879.2620874023438	0
5	3	7.457661499999972	233.96875	1.3276323080062866	98.09133911132812	675.9686279296875	0.0
6	4	9.238991199999987	74.156356799999912	0.8020928502082825	78.78373718261719	333.6962280273437	0
7	5	11.156356799999912	Col 3: Loss_PCE	1.050991415977478	84.75944519042969	125.6599044799804	0
8	6	12.969546899999955	241.84622192382812	1.1403656005859375	55.636688232421875	159.9360504150390	0
9	7	14.774868599999999	107.0981674194336	0.7589944005012512	32.60282516479492	192.8910064697265	0
10	8	16.625091099999963	148.8047637939453	0.9209372401237488	30.5946044921875	162.3507080078125	0
11	9	18.347586099999944	95.59933471679688	0.956247866153717	38.82440948486328	82.0031509399414	0
12	10	20.03835159999994	35.67166519165039	0.6742594242095947	59.839439392089844	82.08391571044922	0
13	11	21.813433399999894	40.31548309326172	0.8505983948707581	34.44364547729492	107.3407211303711	0
14	12	23.521208099999967	22.682964324951172	0.8898800611495972	26.702064514160156	179.1140747070312	0
15	13	25.221491899999933	4.090410232543945	0.7223723530769348	40.75896453857422	216.3515014648437	0
16	14	26.929018099999894	31.80722427368164	0.7240160703659058	64.1640625	168.348876953125	0.0
17	15	28.676618299999973	49.98815155029297	0.8390151262283325	79.44902038574219	117.2020492553711	0
18	16	30.389331899999989	53.774864196777344	0.7063614726066589	69.64967346191406	115.0082626342773	0
19	17	32.114787999999976	42.92646026611328	0.7060925960540771	46.08359909057617	77.39715576171875	0.0
20	18	33.793101299999999	37.15785598754883	0.7863596081733704	32.28407669067383	83.859375	0.0

Figure 14: Contenu des données d'entraînement de `datasets/output` à copier-coller

On peut voir sur le graphe que les métriques utilisés pour ce modèle sont la perte et l'accuracy.

5.8 Demo pour le modèle de prédiction

En ce qui concerne la démo pour le modèle de prédiction, l'utilisateur pourra exécuter les fichiers `.ipynb` qui se trouvent dans les dossiers `data_preprocess` et `model/preprocess` dans l'ordre des étapes décrites précédemment. Une fois traitement des données réalisés une autre notebook présent dans le dossier `model/train_model` sert uniquement à expliquer certaines composantes du projet. Pour avoir une démonstration de l'entraînement, faire du transfert learning et prédire il faudrait alors utiliser les scripts `QDF_SM.sh` et `QDF_PM.sh` qui se trouvent dans le dossier `model/train_model` ainsi que ceux dans le dossier `predict`.

5.9 VAE

Le pipeline d'entraînement est structuré en plusieurs modules opérationnels :

- **Chargement et nettoyage** : lecture des fichiers, suppression des erreurs et normalisation.
- **Encodage vectoriel** : transformation des SMILES en séquences compatibles avec le réseau neuronal.

- **Modélisation** : apprentissage d'une représentation latente des molécules à l'aide d'un modèle génératif.
- **Prédiction** : estimation de la Power Conversion Efficiency (PCE) en sortie du modèle.
- **Analyse et visualisation** : évaluation des performances, affichage graphique, génération de nouvelles structures.

Pour pouvoir exécuter le modèle, il faut se rendre dans le dossier **VAE** et exécuter le script `vae_essaie.py` qui se trouve dans ce dossier depuis un terminal bash avec `python vae_essaie.py` en activant l'environnement virtuel avant. Un notebook est présent pour expliquer les fonctions du modèle en plus des commentaires.

5.10 Conseils d'utilisation

5.10.1 GPU

Lors de l'entraînement du modèle de prédiction, il est crucial d'utiliser un GPU suffisamment puissant et de disposer d'une quantité de mémoire RAM adaptée, que ce soit sur un PC personnel ou sur un serveur distant. En effet, l'entraînement de modèles de deep learning, en particulier sur des jeux de données volumineux ou des architectures complexes, nécessite des ressources matérielles importantes pour garantir des temps de calcul raisonnables et permettre l'utilisation de batchs de grande taille. Pour l'entraînement de notre modèle de prédiction on a utilisé un serveur en ligne (OVHCloud) avec une **NVIDIA L40 S** avec 45 Go de mémoire GPU.

5.10.2 Basis set

Le choix de la base de fonction est important pour la prédiction du PCE. Pour ce projet on a utilisé la base de fonction **def2-SVP** mais il est possible de le changer en fonction de la préférence. On l'a utilisé dans ce projet, car il couvrait un grand nombre d'éléments chimiques et est plus précis que le **6-31G**.

6 Axes d'améliorations

6.1 Suggestion modèle de prédiction

6.1.1 GPU

Comme il a été mentionné précédemment, on utilise une **Nvidia L40 S**. Même avec cette configuration, on est limité en ce qui concerne la **batch_size** de notre modèle. La taille du lot (batch size) est un hyperparamètre qui détermine le nombre d'échantillons à traiter avant de mettre à jour les poids du modèle. Pour l'augmenter, il faudrait utiliser plusieurs GPU et faire probablement de l'entraînement distribué pour permettre de traiter plusieurs lots et potentiellement améliorer le modèle.

NB : Si le GPU n'est pas assez puissant lors de l'exécution du modèle, il sera possible que des erreurs liées à la mémoire apparaissent. Souvent des erreurs de type **CUDA out of memory** apparaissent.

6.1.2 Hyperparamètres

Pour ce projet, on a utilisé un algorithme d'optimisation des hyperparamètres (ex : **batch_size**) via la librairie **hyperopt**. Cependant, on a été limité en termes de temps ce qui a valu une diminution de l'espace de recherche de ces hyperparamètres. À l'avenir il serait utile d'agrandir l'espace de recherche des hyperparamètres avec des valeurs plus grandes dans l'espace de recherche pour étendre la recherche des meilleures hyperparamètres.

```
print("Commence l'optimization des hyperparamètres.\n")

# Définir l'espace d'hyperparamètres
space = {
    'dim': hp.quniform('dim', 100, 500, 50),
    'layer_functional': hp.quniform('layer_functional', 1, 5, 1),
    'hidden_HK': hp.quniform('hidden_HK', 50, 300, 50),
    'layer_HK': hp.quniform('layer_HK', 1, 4, 1),
    'lr': hp.loguniform('lr', -10, -3),
    'lr_decay': hp.uniform('lr_decay', 0.5, 0.99),
    'step_size': hp.quniform('step_size', 2, 24, 2),
    'iteration': hp.quniform('iteration', 200, 400, 50),
    'setting': setting,
    'operation': operation,
    'N_orbitals': len(orbital_dict),
    'N_output': N_output,
    'batch_size': hp.quniform('batch_size', 2, 5, 1),
    'data': {
        'train': dir_dataset + 'train/train_' + field,
        'val': dir_dataset + 'val/val_' + field,
        'test': dir_dataset + 'test/test_' + field
    }
}
```

Figure 15: Espace de recherche des Hyperparamètres

6.1.3 Fonction de pertes du modèle et fonction d'activation

La fonction de perte est un élément clé dans l'entraînement d'un modèle d'apprentissage automatique. Elle mesure la différence entre les prédictions du modèle et les valeurs réelles. Dans le cas de la prédiction de PCE, la fonction de perte utilisée est la **MAE** (Mean Absolute Error). Le MAE est une mesure linéaire de la différence entre les valeurs prédites et les valeurs réelles. Pour espérer mieux extrapoler les données, il serait intéressant d'utiliser une fonction de perte

non linéaire comme la **Huber Loss** ou **RMSE** qui est moins sensible aux valeurs aberrantes que la MAE.

Pour les fonctions d'activation, il serait utile de les changer pour vérifier l'effet obtenu sur la prédiction. Notamment, celle présente à la couche de sortie du DNN pour prédire de PCE, puisque le PCE doit être strictement positif on pourrait envisager une fonction d'activation comme **ReLU** par exemple.

6.2 Modèle de génération

6.2.1 Traduction SMILES en SELFIES

L'une des principales difficultés rencontrées concerne la conversion des représentations SMILES en SELFIES (Self-Referencing Embedded Strings). Bien que SELFIES soit plus robuste pour la génération de structures valides, sa conversion depuis des SMILES complexes n'est pas toujours triviale. Certains encodages échouent ou génèrent des représentations ambiguës, nécessitant une étape supplémentaire de validation et de correction. Cela introduit une complexité additionnelle dans le pipeline de traitement et peut réduire la qualité des entrées pour le modèle génératif.

6.2.2 Génération de molécules via NO-Operation (NOP)

Lors de la génération de nouvelles structures moléculaires, nous avons observé que certains modèles avaient tendance à produire un grand nombre de caractères de type NO-Operation (NOP), c'est-à-dire des éléments neutres ou répétitifs sans signification chimique. Cela peut résulter d'un mauvais apprentissage des règles syntaxiques moléculaires ou d'un sur-apprentissage sur les motifs fréquents. La présence excessive de NOP réduit la diversité et la qualité des molécules générées, ce qui compromet leur validité et leur pertinence.

7 Appendices

7.1 References

References

- [1] Jinyu Sun, Dongxu Li, Yue Wang, Ting Xie, Yingping Zou, Hongmei Lu and Zhimin Zhang, *J. Mater. Chem. A*, 2024, DOI: 10.1039/D4TA03944K
- [2] Tsubaki, Masashi and Mizoguchi, Teruyasu, *Quantum Deep Field: Data-Driven Wave Function, Electron Density Generation, and Atomization Energy Prediction and Extrapolation with Machine Learning*, Phys. Rev. Lett. **125**(20):206401, 2020, doi: 0.1103/PhysRevLett.125.206401

7.2 Définitions additionnelles ou figures complémentaires

InChI (Identifiant International des Composés Chimiques)

Définition : Une représentation textuelle normalisée d’une molécule chimique, offrant une structure plus rigoureuse que SMILES.

Exemple : Benzène : InChI=1S/C6H6/c1-2-4-6-5-3-1/h1-6H

Orbitales de type gaussien (GTOs)

Définition : Une Orbitale de Type Gaussien (GTO) est une fonction mathématique utilisée comme fonction de base en chimie quantique pour approximer les orbitales atomiques. Au lieu d’utiliser une décroissance exponentielle pure, les GTOs emploient une fonction gaussienne, ce qui simplifie le calcul des intégrales dans les calculs de structure électronique moléculaire.

Formule :

$$\phi(r) = R_l(r)Y_{lm}(\theta, \phi)$$

$\phi(x)$: La fonction orbitale unidimensionnelle, où x est la coordonnée spatiale.

$R_l(r) = Nr^l e^{-\alpha r^2}$: La partie radiale du GTO, où r est la distance au noyau.

N : La constante de normalisation.

l : Un entier positif ou nul déterminant le type (par exemple, $l = 0$ pour s, $l = 1$ pour p).

α : Un paramètre positif contrôlant l’étalement (largeur) de la gaussienne.

$e^{-\alpha r^2}$: La partie gaussienne, assurant une décroissance rapide lorsque $|r|$ augmente.

$Y_{lm}(\theta, \phi)$: Les harmoniques sphériques, qui dépendent des angles θ et ϕ et décrivent la partie angulaire de l’orbitale.

Autoencodeur variationnel : VAE

Définition : Un autoencodeur variationnel est un modèle génératif profond utilisé en apprentissage automatique. Il apprend une représentation latente probabiliste des données d’entrée à l’aide de deux réseaux de neurones :

Un **encodeur** qui projette les données d’entrée vers une distribution latente.

Un **décodeur** qui échantillonne à partir de cette distribution latente pour générer de nouvelles données similaires à l'ensemble d'entraînement.

Les VAE sont particulièrement utiles pour générer de nouvelles structures (molécules, etc.) et explorer l'espace afin de découvrir des motifs intéressants.

Réseau de neurones profond : DNN

Définition : Un réseau de neurones profond (DNN) est un réseau de neurones artificiel composé de plusieurs couches de neurones entre l'entrée et la sortie. Contrairement à un réseau simple avec une ou deux couches cachées, un DNN contient un grand nombre de couches cachées qui lui permettent de modéliser des relations très complexes et de détecter des motifs subtils dans les données. Cela le rend très efficace pour de nombreuses tâches, telles que la reconnaissance d'images, la traduction automatique et la prédiction de comportements.

Quantum Deep Field : QDF

Définition : Le Quantum Deep Field (QDF) est une méthode qui combine la chimie quantique avec des réseaux de neurones profonds pour prédire les propriétés de molécules ou de matériaux. Elle utilise des informations issues de calculs quantiques (telles que les distributions électroniques) et les intègre dans un modèle d'apprentissage profond, permettant des prédictions plus précises et fiables que les approches traditionnelles.

PCE : Rendement de conversion de puissance

Définition : Le rendement de conversion de puissance (PCE, pour Power Conversion Efficiency) est une mesure de l'efficacité avec laquelle un dispositif (par exemple, une cellule solaire) convertit l'énergie incidente (comme la lumière) en énergie utilisable (comme l'électricité).

Fonctionnelles

Définition : En chimie quantique, une fonctionnelle est une fonction qui prend une fonction (par exemple, la densité électronique) comme argument et retourne une valeur scalaire. Les fonctionnelles sont essentielles dans la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) pour approximer l'énergie totale d'un système.

Base de fonctions (Basis-set)

Définition : Un ensemble de base (basis-set) est un ensemble de fonctions mathématiques utilisées pour décrire les orbitales électroniques dans les calculs de chimie quantique. Le choix de l'ensemble de base influence la précision et le coût des calculs.