

Поиск новых высокоэнергетических веществ. Квантово-химическое исследование некоторых трис(пирроло)бензолов и трис(пирроло)-1,3,5-триазинов

Амосова Е. С., Волохов В. М., Парахин В. В., Лемперт Д. Б., Акостелов И. И.

Доклад посвящён поиску новых высокоэнергетических веществ с использованием квантово-химических методов и нейронных сетей. Исследование включало выбор группы исследуемых веществ, проведение квантово-химических расчетов, анализ зависимости «структура-свойство» и оценку физико-химических свойств веществ как компонентов топлива.

Для поиска новых высокоэнергетических соединений было выбрано несколько групп веществ, объединенных либо структурными особенностями, либо предполагаемыми физико-химическими качествами, делающими их перспективными в различных применениях. В данной работе фокус устанавливается на полностью незамещённых и сполна нитрованных трис(пирроло)бензолах и трис(пирроло)-1,3,5-триазилах, представляющих собой еще не синтезированные и, следовательно, не изученные вещества. Чтобы провести сравнение точности расчетов и изменение физико-химических свойств в зависимости от строения веществ, были также проведены квантово-химические расчеты для известных основоположников ряда тетрациклов – бензотрифуроксана и бензотрифуразана.

Квантово-химические расчеты проводились с использованием программных комплексов Gaussian 09 и NWChem наиболее точных методов (в рамках доступных для имеющихся ресурсов) G4 и G4MP2. Для известных соединений результаты наших расчётов показали небольшое отклонение (в пределах 4%) от литературных данных, а для новых, ещё не синтезированных тетрациклов, аннелированных пирролами, данные получены впервые. Квантово-химические расчеты позволили доказать возможность существования еще не синтезированных веществ и рассчитать структуру, энтальпию образования (ЭО) и ИК спектры. Установлена взаимосвязь структуры соединений (количества гетероатомов, наличие заместителей и изомерии) на величину энтальпии образования. Кроме того, проведено отнесение частот характеристических полос колебания к соответствующим структурным фрагментам исследуемых соединений. Для исследованных веществ был проведен анализ ряда эксплуатационных свойств, характеризующих возможность их успешного применения в решении некоторых

задач. Этот этап необходим для определения группы веществ, подлежащих в дальнейшем более детальным исследованиям.

Для ускорения и удешевления процесса расчёта ЭО было рассмотрено применение нейронных сетей для предсказания ЭО из структуры молекул. Для поиска наиболее перспективных нейронных сетей для обучения из всех представленных в литературе архитектур выбраны четыре наиболее точных и современных: Allegro (2023), DimeNet++ (2020), PaiNN (2021), TorchMD-NET ET (2022). На основе каждой архитектуры и наборов данных QM9, PC9, OD9 (и его двух подмножества), Alchemy, а также объединения QM9 и Alchemy- AIQM9 были обучены модели для предсказания энергии атомизации из геометрии молекул. Все наборы содержат порядка 100 тысяч геометрий молекул и соответствующих им рассчитанных квантово-химическими методами характеристик.

Все 28 обученных моделей были применены для предсказания энергии атомизации четырех тестовых групп веществ, ранжированных по структурной сложности. Из изученных моделей наиболее точной и обобщаемой оказалась архитектура TorchMD-NET ET, обученная на PC9. Её среднее абсолютное отклонение от расчётных данных составило 3.2 кДж/моль.

Расчёты проводились с использованием оборудования Суперкомпьютерного комплекса МГУ. Суммарно на квантово-химические и нейросетевые расчёты было израсходовано 9374 узлочаса.