

Optimisation bayésienne avec variables mixtes pour la chimie

Théo Rabut¹, Thomas Galeandro-Diamant², Hamamache Kheddouci¹

¹ Université Lyon 1, LIRIS, UMR5205, France theo.rabut@univ-lyon1.fr

² ChemIntelligence, Lyon, France

Mots-clés : *Optimisation globale, optimisation de réaction chimique, optimisation de boîte noire, variables catégorielles, variables mixtes*

1 Introduction

L'optimisation d'une réaction chimique est une étape indispensable avant le passage à l'échelle industrielle. Ce processus d'optimisation consiste à réaliser des expériences avec différents paramètres réactionnels (e.g. température, temps de résidence, etc.) afin d'atteindre un optimum (e.g. rendement maximal).

Les méthodes les plus couramment utilisées pour l'optimisation de réactions sont les méthodes "One-Variable-At-a-Time" et le plan d'expériences. Malgré leur simplicité d'utilisation, elles demandent souvent trop d'expériences pour atteindre les optima. L'optimisation bayésienne est de plus en plus utilisée pour l'optimisation de réactions et elle s'avère être particulièrement efficace et robuste aux différentes contraintes qui peuvent être amenées par la problématique chimique (bruit de mesure, coût des expériences, etc.).

Pour de nombreuses réactions, les variables catégorielles font partie du processus d'optimisation. Le choix d'un catalyseur est un bon exemple puisque utiliser un catalyseur plutôt qu'un autre peut avoir un impact important sur le résultat d'une réaction chimique.

Certains travaux de la littérature proposent des algorithmes pour l'optimisation de réactions chimiques avec des variables mixtes [2]. Néanmoins les implémentations traditionnelles d'optimisation bayésienne sont peu efficaces après l'ajout de variables catégorielles. Elles sont généralement basées sur un encodage "one-hot" et ont tendance à rester bloquées dans des optima locaux.

Nous nous sommes dirigés, premièrement, vers une application d'une fonction de covariance présenté par [1] pour le modèle utilisé par l'optimisation bayésienne (processus gaussien) et, deuxièmement, vers une évaluation de différents algorithmes pour l'optimisation de la fonction d'acquisition.

2 Définition du problème

Les problèmes d'optimisation auxquels répondent nos travaux ont une forme donnée par :

$$\text{Minimiser } f(z) \text{ en un minimum d'expériences} \quad (1)$$

où $z = (x, h)$ et $x \in \mathbb{R}$, $h \in C$ avec C pour l'espace catégoriel défini par le problème.

Nous considérons ici uniquement une mixité catégorielle-continue et une fonction mono-objectif.

3 Proposition

Nos algorithmes sont évalués sur des simulations de réactions chimiques. Nous créons ces simulations à partir de données chimiques publiques [3] et grâce à des modèles de régression.

3.1 Noyau mixte pour processus gaussien

La popularité des processus gaussiens en tant que modèle substitut est principalement due leur faculté à fournir, avec la prédiction, une incertitude (variance) qui sera directement utilisée pour l’exploration durant l’optimisation. Notre proposition repose sur l’utilisation de la fonction de covariance originellement proposée par [1] et donnée par l’équation 2.

$$K(z, z) = (1 - \lambda) \times (K_{cont}(x, x) \times K_{cat}(h, h)) + \lambda \times (K_{cont}(x, x) + K_{cat}(h, h)) \quad (2)$$

Cette fonction de covariance est composée par deux sous-fonctions. La première, K_{cont} , est définie pour l’espace continu. La deuxième fonction, K_{cat} , est donnée pour l’espace catégoriel. On la retrouve définie par l’équation 3.

$$K_{cat}(h, h) = \sigma \times \frac{1}{D} \sum_{d=1}^D \alpha(h_d, h_d) \quad (3)$$

- D est le nombre de variables catégorielles
- $\alpha(a, b)$ est égal à 0 si $a = b$ et 1 si $a \neq b$
- σ est un paramètre de variance

L’introduction du paramètre λ , qui joue le rôle d’équilibre entre l’addition et le produit, apporte une évolution de la prise en compte des variables catégorielles au fil de l’optimisation.

3.2 Optimisation de la fonction d’acquisition

Le comportement d’une méthode d’optimisation avec des variables continues change lors de l’ajout de variables catégorielles. Nous avons utilisé une approche expérimentale pour mesurer les performances de différentes méthodes d’optimisation de la fonction d’acquisition et nous présentons une comparaison de ces résultats.

4 Conclusion

Le problème d’optimisation de réaction chimique avec des variables continues et catégorielles est adressé ici. Nous montrons qu’une fonction de covariance adaptée pour les variables mixtes permet d’obtenir des performances élevées sur des simulations de réaction chimique. Nous montrons, dans un deuxième temps, que l’optimisation de la fonction d’acquisition influe sur les performances. Nous envisageons plusieurs ouvertures pour la suite de nos travaux, avec notamment une étude des différentes fonctions d’acquisition dans le but de créer une variante adaptée aux variables catégorielles ou des modifications de la fonction de covariance appliquée ici.

Références

- [1] Ru, Binxin and Alvi, Ahsan and Nguyen, Vu and Osborne, Michael A and Roberts, Stephen Bayesian optimisation over multiple continuous and categorical inputs. International Conference on Machine Learning 2020.
- [2] Häse, F., Aldeghi, M., Hickman, R. J., Roch, L. M., and Aspuru-Guzik, A. Gryffin : An algorithm for Bayesian optimization of categorical variables informed by expert knowledge. Applied Physics Reviews 2021.
- [3] Shields, B. J., Stevens, J., Li, J., Parasram, M., Damani, F., Alvarado, J. I. M., and Doyle, A. G. Bayesian reaction optimization as a tool for chemical synthesis. Nature 2021.