

Desempenho de Potenciais Interatômicos Universais na Predição de Isotermas de Adsorção de CO₂ em Estruturas Metal-Orgânicas

Thiago Mateus Reschützeggger Ippoliti, Cíntia Soares, Natan Padoin*

Universidade Federal de Santa Catarina, Centro Tecnológico, Departamento de Engenharia Química e Engenharia de Alimentos, Programa de Pós-Graduação em Engenharia Química, Florianópolis-SC, Brasil

*natan.padoin@ufsc.br

RESUMO

A captura e o armazenamento de dióxido de carbono (CO₂) são estratégias essenciais para a mitigação das mudanças climáticas. Estruturas metal-orgânicas (MOFs) se apresentam como materiais promissores para esta aplicação devido à sua elevada área superficial, porosidade ajustável e afinidade química configurável. Contudo, a triagem computacional de MOFs para captura de CO₂ tradicionalmente depende de simulações de Monte Carlo em *ensemble* grande-canônico (GCMC) (Frenkel e Smit, 2002), com campos de força clássicos que frequentemente falham em capturar interações específicas entre adsorbato e sítios metálicos abertos. Com base no exposto, este trabalho investiga a aplicação de potenciais interatômicos de aprendizado de máquina universais (*Machine-Learned Interatomic Potentials*, MLIPs) (Behler e Parrinello, 2007) como alternativa para predição de propriedades termodinâmicas de adsorção com precisão próxima a métodos *ab initio*, mas com custo computacional significativamente reduzido. A metodologia emprega simulações GCMC acopladas a modelos MLIP de última geração, incluindo MACE-MP (Batatia *et al.*, 2024), CHGNet (Deng *et al.*, 2023), entre outros. Para cada sistema MOF-CO₂, isotermas de adsorção em múltiplas temperaturas e pressões foram calculadas. Adicionalmente, inserções de Widom foram realizadas para obtenção dos coeficientes de Henry e entalpias isostéricas de adsorção. Os MOFs investigados incluem CALF-20, MgMOF-74 e NbOFFIVE-1-Ni, selecionados por representarem diferentes mecanismos de interação com CO₂. Simulações foram conduzidas tanto em regime rígido quanto flexível, permitindo avaliação do efeito da relaxação estrutural nas propriedades de adsorção. Os resultados preliminares demonstram variabilidade significativa entre os modelos MLIP na predição de entalpias de adsorção, com diferenças de até 15 kJ/mol entre modelos para o mesmo sistema. Comparações com dados experimentais da literatura indicam que modelos treinados especificamente em conjuntos de dados de adsorção apresentam melhor concordância quantitativa. As isotermas preditas reproduzem qualitativamente o comportamento experimental, capturando a saturação em altas pressões e a dependência térmica esperada. A principal limitação deste estudo reside no foco exclusivo em propriedades termodinâmicas de equilíbrio, desconsiderando aspectos cinéticos como coeficientes de difusão. Perspectivas futuras incluem a extensão para simulações de dinâmica molecular para caracterização de propriedades de transporte, bem como a incorporação de misturas gasosas para avaliação de seletividade CO₂/N₂.

Palavras-chave: potenciais de interação atômica, captura de CO₂, MOFs, simulação molecular.

Agradecimentos: Os autores agradecem à CAPES e ao CNPq (Processos 305472/2025-9 – C.S. e 312247/2022-2 – N.P.) pelo apoio financeiro e ao Laboratório Nacional de Computação Científica (LNCC) pelos recursos computacionais disponibilizados.

Referências

- I. Batatia, P. Benner, Y. Chiang, A. M. Elena, D. P. Kovács, J. Riebesell *et al.*: A Foundation Model for Atomistic Materials, *Chemistry Journal of Chemical Physics* (163), 184110, 2025.
J. Behler e M. Parrinello: Generalized Neural-Network Representation of High-Dimensional Potential-Energy Surfaces, *Physical Review Letters* (98), 146401, 2007.
B. Deng, P. Zhong, K. Jun, J. Riebesell, K. Han, C. J. Bartel e G. Ceder: CHGNet as a Pretrained Universal Neural Network Potential for Charge-Informed Atomistic Modelling, *Nature Machine Intelligence* (5), 1031–1041, 2023.
D. Frenkel e B. Smit: *Understanding Molecular Simulation: from algorithms to applications* (2.^a Ed.), Academic Press, 2002.