

## INVESTIGAÇÃO DA EVOLUÇÃO ESTRUTURAL DE CLUSTERS DE PLATINA UTILIZANDO DINÂMICA MOLECULAR MODIFICADA

OCTÁVIO RODRIGUES FILHO<sup>1</sup>; CELSO RICARDO CALDEIRA RÊGO<sup>2</sup>;  
MAURÍCIO JEOMAR PIOTROWSKI<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Universidade Federal de Pelotas – octaviorodriguesf@gmail.com

<sup>2</sup>Karlsruhe Institute of Technology – celso.rego@kit.edu

<sup>3</sup>Universidade Federal de Pelotas, Departamento de Física – mauriciomjp@gmail.com

### 1. INTRODUÇÃO

O estudo de materiais em nanoescala constitui um subcampo relevante da física da matéria condensada, sendo os nanoclusters (NCs) e nanopartículas um dos principais focos de investigação (FILHO, 2022; PIOTROWSKI, 2009; PIOTROWSKI, 2012). Esses sistemas apresentam propriedades eletrônicas, estruturais e energéticas que diferem significativamente de suas contrapartes em macroescala (ALONSO, 2000), abrindo perspectivas para novas aplicações tecnológicas e para o avanço do conhecimento fundamental.

A descrição precisa desses sistemas requer o uso da mecânica quântica (MQ), uma vez que envolvem problemas de muitos corpos sem solução analítica exata. Métodos como a Teoria do Funcional da Densidade – DFT (HOHENBERG & KOHN, 1964; KOHN & SHAM, 1965) têm se mostrado eficientes para a determinação de estados de mínima energia e otimização estrutural. No entanto, o custo computacional associado a essas técnicas pode ser elevado, tornando essencial a utilização de geometrias iniciais coerentes para evitar convergência para mínimos locais indesejados.

Embora diversas metodologias de minimização de energia estejam disponíveis (SCHNEIDER, 2008), a DFT permanece como a abordagem mais precisa e realista para descrever propriedades eletrônicas e estruturais em NCs. No entanto, o seu elevado custo computacional limita o tamanho dos sistemas estudados e o número de configurações exploradas. Estratégias recentes têm investigado o uso de aprendizado de máquina para acelerar a busca por geometrias estáveis (FILHO, 2023; VASCONCELOS, 2020). Ainda assim, essas técnicas exigem conjuntos de dados consistentes e coordenadas iniciais fisicamente plausíveis para garantir convergência adequada e evitar mínimos locais espúrios (PIOTROWSKI, 2012).

Nesse contexto, a dinâmica molecular clássica (MD) surge como uma ferramenta auxiliar eficaz para gerar configurações iniciais aproximadas (FRENKEL, 2023; SCHNEIDER, 2008). Apesar de utilizar potenciais clássicos e, portanto, não reproduzir com total realismo as interações quânticas, essa abordagem fornece geometrias iniciais coerentes, otimizando o uso posterior de métodos quânticos de maior precisão.

O objetivo deste trabalho é desenvolver, de forma exploratória, uma metodologia para a geração de coordenadas iniciais coerentes utilizando MD. Tais estruturas poderão futuramente servir como candidatos para otimização em *softwares* baseados em mecânica quântica. Para alcançar esse propósito, propõe-

se a criação de uma simulação capaz de manipular adequadamente as distâncias interatômicas e as forças fictícias aplicadas, conduzindo o sistema a configurações estruturalmente plausíveis.

## 2. METODOLOGIA

Com base nos estudos da literatura (CHAVES, 2017), definiu-se um modelo de interação que utiliza dois parâmetros principais: o raio mínimo ( $R_{min}$ ) e o raio máximo ( $R_{max}$ ). O  $R_{min}$  representa a distância de colisão entre dois átomos, impedindo que seus núcleos se sobreponham, enquanto  $R_{max}$  estabelece um limite para a atuação de forças atrativas de curto alcance, favorecendo a aproximação ordenada dos átomos. A equação 1 descreve essa força, sendo dada por:

$$\vec{F}_{contato} = \begin{cases} K_{contato} (2R_{max} - R_{ij}) \hat{r}_{ij}, & R_{ij} < 2R_{max} \\ 0, & R_{ij} \geq 2R_{max} \end{cases} \quad (1)$$

Para implementar a MD, é necessário incluir forças adicionais que atuem globalmente no sistema. Nesse modelo, considerou-se uma força elástica que tende a puxar os átomos em direção ao centro da caixa de simulação, combinada com uma força repulsiva que atua quando os átomos se aproximam demasiadamente, prevenindo sobreposição. O processo não realiza minimização explícita de energia; em vez disso, utiliza um redutor de velocidade (fator 0,95 aplicado a cada passo de tempo) para evitar colapsos artificiais e permitir evolução estável do sistema. A equação 2 que rege a força global é expressa por:

$$\vec{F}_{Global} = -k_{atrativo} \vec{R} + K_{repulsivo} \frac{\hat{R}}{|\vec{R}|^2} \quad (2)$$

As simulações foram inicializadas com posições e velocidades aleatórias, porém controladas, para cada átomo. A evolução temporal é realizada integrando as equações de movimento clássicas (FRENKEL, 2023), atualizando iterativamente as posições e velocidades conforme as forças atuantes.

A caixa de simulação foi definida com dimensão de 22 Å, enquanto os valores  $R_{min} = 0,5$  Å e  $R_{max} = 1,25$  Å garantem distâncias interatômicas realistas para metais de transição. Todas as simulações foram implementadas em Python, com visualização 3D via VPython, permitindo calibração em tempo real das constantes  $K$  associadas às forças.

## 3. RESULTADOS E DISCUSSÃO

Verificou-se que o código, ao empregar três tipos de forças fictícias, tende a gerar estruturas aproximadamente esféricas. Esse comportamento decorre do modo como as forças atrativas e repulsivas atuam em direção ao centro da caixa de simulação, promovendo agregação atômica e reduzindo gradualmente sua intensidade ao longo do tempo.

As simulações foram conduzidas para clusters de platina com  $n = 2 - 16$  átomos, e as geometrias resultantes foram comparadas com aquelas reportadas na literatura (CHAVES, 2017; GUEVARA-VELA, 2023) a fim de verificar possíveis similaridades. Para o caso de  $Pt_2$ , observou-se concordância direta, uma vez que sua geometria é trivial. Já para  $Pt_3$ , a configuração triangular obtida está de acordo com estudos prévios, apesar de a literatura também reportar arranjos alternativos, como no caso de  $Ir_3$ .

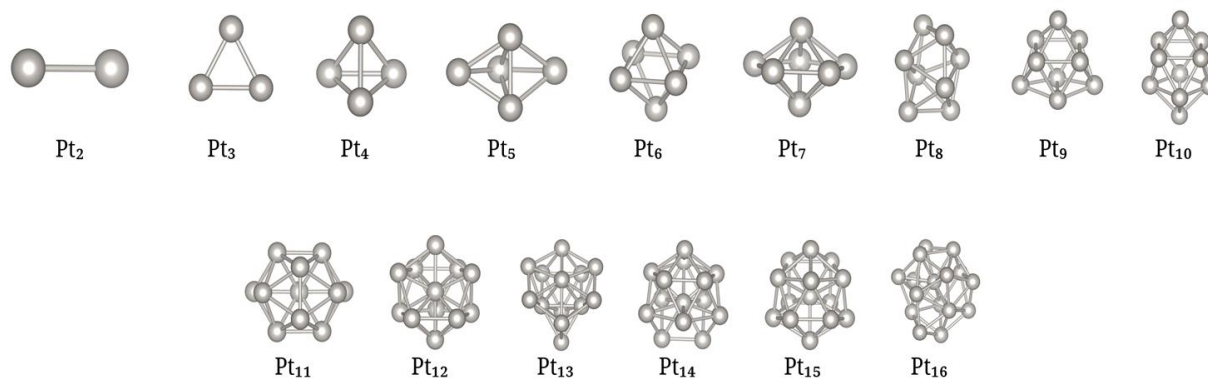


Figura 1: Evolução estrutural atômica de  $Pt_n$  ( $n = 2 - 16$ ) obtida com simulações de MD modificada.

Para clusters com  $n = 4 - 15$ , as estruturas geradas diferem parcialmente das reportadas para Pt, refletindo a limitação do método em não considerar efeitos quânticos. Entretanto, ao comparar com outros metais de transição, observam-se geometrias análogas:  $Pt_4 - Pt_8$ : semelhantes às encontradas para  $Pd_4 - Pd_8$ ;  $Pt_9$ : próxima à estrutura de  $Ni_9$ ;  $Pt_{10}$ : similar às de  $Ta_{10}$  e  $Hf_{10}$ ;  $Pt_{11}$ : comparável a  $Ta_{11}$ ,  $Hf_{11}$  e  $Fe_{11}$ ;  $Pt_{12}$ : próxima a  $Cr_{12}$ ;  $Pt_{13}$ : próxima a  $W_{13}$ , embora com pequenas diferenças;  $Pt_{15}$ : similar a  $Re_{15}$ , diferindo apenas por rotação.

Para  $Pt_{14}$  e  $Pt_{16}$ , não foram encontradas estruturas análogas suficientemente próximas na literatura (GUEVARA-VELA, 2023). Ainda assim, considerando que o objetivo principal é a geração de configurações iniciais plausíveis, os resultados demonstram potencial para servir como ponto de partida para otimizações quânticas subsequentes.

#### 4. CONCLUSÕES

Conclui-se que o código desenvolvido é capaz de gerar estruturas iniciais próximas às geometrias reportadas na literatura, com bom desempenho para a maioria dos clusters analisados. Entretanto, para os casos de  $Pt_{14}$  a  $Pt_{16}$ , não foram obtidos resultados coerentes, refletindo a limitação do modelo, que considera apenas três tipos básicos de forças. A inclusão futura de interações adicionais e a implementação de algoritmos de relaxamento estrutural mais avançados poderão aumentar significativamente a precisão do método. Além disso, sua integração com técnicas de aprendizado de máquina poderá ampliar a eficiência na busca por geometrias de mínima energia. Apesar das restrições atuais, os resultados obtidos

demonstram coerência na maior parte dos casos, indicando bom potencial de aprimoramento e aplicabilidade em estudos posteriores.

## 5. REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- HOHENBERG, P.; KOHN, W. Inhomogeneous Electron Gas. **Phys. Rev. B**, v.864, p. 136, 1964.
- KOHN, W.; SHAM, L. J. Self-Consistent Equations Including Exchange and Correlation Effects. **Phys. Rev. A**, v. 40, p. 11331, 1965.
- ALONSO, J. A. Electronic and Atomic Structure, and Magnetism of Transition Metal Clusters. **Chem. Rev.**, v. 100, p. 637-677, 2000.
- CHAVES, A. S.; et al. Evolution of the structural, energetic, and electronic properties of the 3d, 4d, and 5d transition-metal clusters (30  $TM_n$  systems for  $n = 2 - 15$ ): a density functional theory investigation. **Phys. Chem. Chem. Phys.**, v. 19, p. 15484, 2017.
- VASCONCELOS, H.; ALMEIDA, R. Bayesian optimization for calibrating and selecting hybrid-density functional models. **J. Phy. Chem. A**, v.124, p. 4053, 2020.
- GUEVARA-VELA, J. M. et al. On the structure and electronic properties of  $Pt_n$  clusters: new most stable structures for  $n = 16 - 17$ . **Phys. Chem. Chem. Phys.**, v. 25, n. 42, p. 28835-28840, 2023.
- SCHNEIDER, R.; SHARMA, A. R.; RAI, A. Introduction to molecular dynamics. In: **Computational Many-Particle Physics**. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, p. 3-40, 2008.
- FRENKEL, D.; SMIT, B. Understanding molecular simulation: from algorithms to applications. **Elsevier**, 2023.
- FILHO, O. C.; et al. Rede Neural Artificial para previsão de propriedades de Nanoclusters de  $Pt_n$  ( $n = 2 - 15$  e 55 átomos) em Python com Tensorflow + Keras. **XXXII Congresso de Iniciação Científica**. 2023.
- FILHO, O. C.; et al. Nanoclusters subnanométricos de  $Pt_n$  ( $n = 2 - 7$  ÁTOMOS): Um estudo via DFT-PBE. **XXXI Congresso de Iniciação Científica**. 2022.
- PIOTROWSKI, M. J. Estudo de propriedades estruturais, eletrônicas e magnéticas de clusters de  $Rh_{13}$ ,  $Pd_{13}$  e  $Pt_{13}$ . 2009. Dissertação (Mestrado em Física) – **Universidade Federal de Santa Maria**, Santa Maria, 2009.
- PIOTROWSKI, M. J. Propriedades estruturais e eletrônicas de partículas de 13 e 55 átomos de metais de transição. 2012. Tese (Doutorado em Física) – **Universidade Federal de Santa Maria**, Santa Maria, 2012.