

## Estudo teórico da adsorção de amônia em zeólita Y trocada com íons metálicos: Efeito do cátion de compensação.

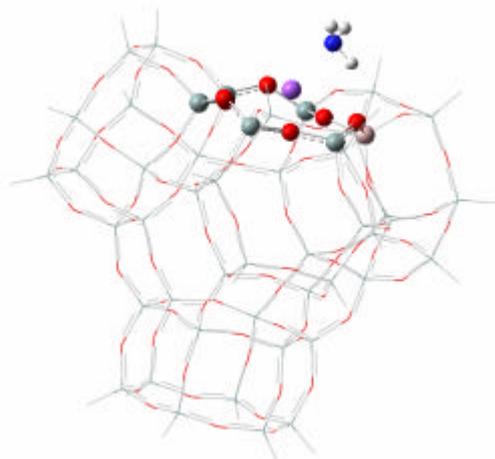
Alex P. A. dos Santos(PG)<sup>1</sup>, Cláudio J. A. Mota (PQ)<sup>1</sup>, Nilton Rosenbach Jr. (PG)<sup>1</sup> Marcelo Franco (PQ)<sup>1</sup>.

1 – Instituto de Química – Universidade Federal do Rio de Janeiro (IQ/UFRJ)

Palavras Chave: Zeólita, Carbocátion, ONIOM

### Introdução

Os métodos mais utilizados na caracterização da acidez de sólidos se baseiam em medidas espectroscópicas ou calorimétricas da adsorção ou dessorção de moléculas sonda. A amônia (NH<sub>3</sub>) é uma das mais usuais. Porém, os resultados são controversos e dependem das técnicas e das moléculas sonda utilizadas durante a caracterização. Por outro lado, os métodos teóricos possibilitam o cálculo direto das entalpias de adsorção de moléculas sonda; porém, as abordagens mais sofisticadas não se aplicam às zeólitas, em razão do elevado custo computacional despendido no tratamento desses sistemas que incluem um número elevado de átomos. O método ONIOM constitui uma alternativa bastante promissora, na medida em possibilita a divisão do sistema molecular em duas camadas. Assim, os átomos do sítio ativo (camada alta ou *high layer*) podem ser descritos por métodos teóricos mais sofisticados, enquanto os demais átomos (camada baixa ou *low layer*) podem ser descritos por métodos menos dispendiosos (clássicos ou semi-empíricos).



**Figura 1.** Estrutura do complexo de adsorção de amônia em NaT<sub>48</sub> determinada em ONIOM (PBE1PBE/6-31G(d,p):MND0).

Neste trabalho, o efeito do cátion de compensação sobre a entalpia de adsorção de NH<sub>3</sub> em um modelo que corresponde à estrutura cristalina da zeólita Y trocada com íons metálicos (Li<sup>+</sup>, Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, Be<sup>2+</sup>, Mg<sup>2+</sup>)

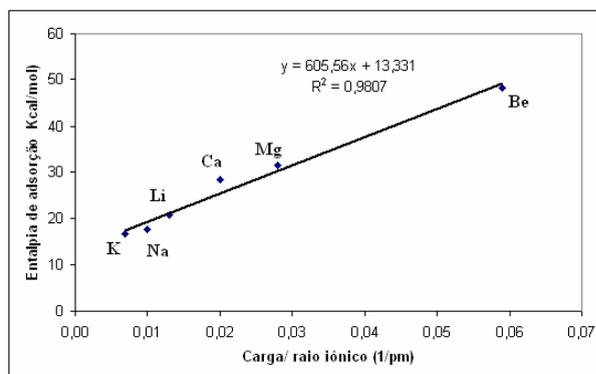
30ª Reunião Anual da Sociedade Brasileira de Química

e Ca<sup>2+</sup>) foi investigado, utilizando-se o método ONIOM.

O modelo T<sub>48</sub> (T corresponde a um átomo de silício ou alumínio), mostrado na figura 1, foi dividido em duas camadas: os átomos da camada alta e da molécula de NH<sub>3</sub> foram descritos pelo funcional PBE1PBE e função de base 6-31G(d,p) e os demais átomos (camada baixa) foram descritos pelo método semi-empírico MNDO.

### Resultados e Discussão

A figura 2 mostra que a entalpia de adsorção de NH<sub>3</sub> em MT<sub>48</sub> (M= Li<sup>+</sup>, Na<sup>+</sup>, K<sup>+</sup>, Be<sup>2+</sup>, Mg<sup>2+</sup> e Ca<sup>2+</sup>) depende linearmente da razão carga/raio iônico; ou seja, a adsorção de moléculas sonda em zeólitas trocadas com íons metálicos é regida pela dureza do cátion de compensação. Assim, os cátions mais duros (maior razão carga/raio iônico) apresentam entalpias de adsorção maiores.



**Figura 2** Dependência entre entalpia de adsorção de NH<sub>3</sub> em zeólitas Y trocadas com íons metálicos e razão carga/raio iônico.

### Conclusões

Os resultados mostram que a acidez de zeólitas trocadas com íons metálicos depende da razão carga/raio iônico. Assim, as zeólitas trocadas com cátions mais duros (maior razão carga/raio iônico) apresentam maior acidez de Lewis.

### Agradecimentos

Os autores agradecem ao CNPq, CAPES e ANP pelo apoio.

