

Estudo teórico da adsorção de H₂ em íons oxocarbonos

*Heitor Avelino de Abreu(PQ), Wagner Batista de Almeida(PQ) e Hélio Anderson Duarte(PQ)

heitorabreu@ufmg.br

Universidade Federal de Minas Gerais *¶* Departamento de Química - ICEX

Palavras Chave: íons oxocarbonos, adsorção, estocagem de hidrogênio

Introdução

O hidrogênio como fonte de energia tem atraído grande atenção nos últimos anos. Dessa forma, a estocagem de hidrogênio é largamente reconhecida como uma tecnologia crítica para possibilitar a comercialização e aceitação de hidrogênio como combustível. Duarte e colaboradores¹ mostraram que a energia de dispersão é a principal responsável pela fisisorção de H₂ em MOF (metal organic frameworks). Os íons oxocarbonos são sistemas que apresentam elevada simetria e grande conjugação eletrônica, como pode ser visto na figura 1. Dessa forma, estes compostos são candidatos ideais para serem estudados visando a fisisorção de H₂ através da interação com a densidade eletrônica do sistema conjugado.

Resultados e Discussão

Todas as possíveis formas de coordenação da molécula de H₂ com os íons oxocarbonos foram estudadas. Com o intuito de comparação também foram estudados complexos com benzeno e o íon ciclopentadienil, que apresentam estruturas moleculares similares aos oxocarbonos e também são sistemas ressonantes. Os cálculos foram realizados utilizando o nível de cálculo MP2/6-311++G(2d,2p). O pacote computacional Gaussian 03 foi utilizado para realizar todos os cálculos.

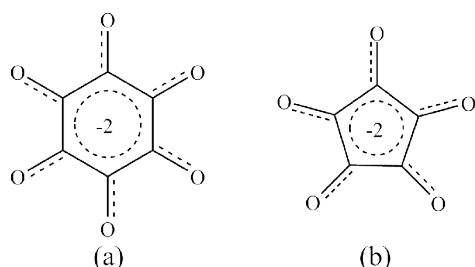


Figura 1. Estrutura dos íons oxocarbonos (a) rodizonato e (b) croconato.

Foram estudadas espécies de complexação em forma **T**, na qual a molécula de H₂ está perpendicular ao composto aromático e duas formas **P**, nas quais a molécula de H₂ está paralela ao anel aromático (Figura 2). A tabela 1 contém os valores da energia de adsorção de H₂ nas distintas moléculas estudadas.

33^a Reunião Anual da Sociedade Brasileira de Química

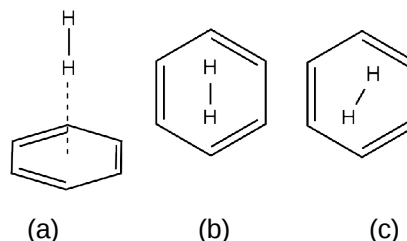


Figura 2. Formas de coordenação do H₂ nas diferentes espécies estudadas (a) **T**, (b) **P1** e (c) **P2**.

Tabela 1. Energias de adsorção de H₂ em diferentes espécies. Os valores já estão corrigidos com o erro de superposição de base.

	$\psi E^{\text{adsorção}}/\text{kcal mol}^{-1}$		
	T	P1	P2
H ₂ + Ciclopentadienil	-3,04	---	---
H ₂ + Croconato	-1,77	---	---
H ₂ + Benzeno	-0,91	-0,56	---
H ₂ + Rodizonato	-1,28	---	---

É interessante notar que para os anéis de 5 membros apenas a forma **T** foi encontrada. Entretanto, para os anéis de 6 membros foram encontradas tanto a forma **T** quanto a forma **P1**. O complexo **P1** com o íon rodizonato também foi encontrado, porém a estrutura do oxocarbono está muito distorcida. Cálculos de mais alto nível de teoria serão realizados a fim de calcular com mais exatidão estas energias de interação.

Conclusões

De acordo com os dados obtidos podemos observar que a energia de adsorção dos íons oxocarbonos é da mesma ordem de grandeza de compostos aromáticos mais usuais tais como o íon ciclopentadienil e o benzeno. Este comportamento pode ser um indício da potencial capacidade de armazenamento de H₂ destes compostos.

Agradecimentos

FAPEMIG, CNPq e CAPES

¹ Duarte, H. A.; Kuc, A.; Heine, T.; e Seifert, G. *Chem. Eur. J.* **2008**, *14*, 6597.