

Simulación de hidratos de dióxido de carbono

F. J. Blas

Laboratorio de Simulación Molecular y Química Computacional,
CIQSO-Centro de Investigación en Química Sostenible y Departamento de Ciencias Integradas,
Universidad de Huelva, 21006 Huelva

Los hidratos de dióxido de carbono (CO₂) son compuestos de inclusión no estequiométricos de enorme importancia desde la perspectiva del cambio climático, transporte y almacenamiento de este gas de efecto invernadero. Desde un punto de vista teórico, los mecanismos cinéticos y termodinámicos que controlan la nucleación de hidratos de CO₂ dependen críticamente de la energía libre interfacial hidrato – agua [1, 2]. Únicamente existen en la literatura dos medidas experimentales indirectas de la energía libre interfacial hidrato – agua [3, 4], debido a la dificultad para la determinación experimental de energías libres interfaciales sólido-líquido. En este trabajo se utiliza una combinación de modelos moleculares sencillos pero realistas, TIP4P/ice (agua) [5] y TraPPE (CO₂) [6], y la extensión de la metodología *Mold Integration* [7, 8] para determinar la energía libre del hidrato mediante simulación por primera vez en la literatura [9]. El uso de principios fundamentales de la Termodinámica y la Mecánica Estadística y la definición termodinámica de la energía interfacial, permite obtener un valor consistente de la energía libre interfacial del hidrato de CO₂ con resultados experimentales disponibles en la literatura. Esta metodología abre un nuevo camino para la determinación de energías libres interfaciales de fases sólidas complejas en condiciones de coexistencia mediante principios fundamentales.

[1] E. D. Sloan y C. A. Koh, *Clathrate Hydrates of Natural Gases*, 3ª Edición, CRC PRes, New York, (2008).

- [2] Z. M. Aman y C. A. Koh, *Interfacial phenomena in gas hydrate systems*, Chem. Soc. Rev. 45 1678 (2016).
- [3] T. Uchida, T. Ebinuma, S. Takeya, J. Nagao y H. Narita, *Effects of pore sizes on dissociation temperatures and pressures of methane, carbon dioxide, and propane hydrates in porous media*, J. Phys. Chem. B **106**, 802 (2002).
- [4] R. Anderson, M. Llamedo, B. Tohihi y R. W. Burgass, *Experimental measurement of methane and carbon dioxide clathrate hydrate equilibria in mesoporous silica*, J. Phys. Chem. B **107**, 3507 (2003).
- [5] J. L. F. Abascal, E. Sanz, R. G. Fernández y C. Vega, *A potential model for the study of ices and amorphous water: TIP4P/ice*, J. Chem. Phys. **122** 2345111 (2005).
- [6] J. J. Potoff y J. I. Siepmann, *Vapor – liquid equilibria of mixtures containing alkanes, carbon dioxide, and nitrogen*, AIChE J. **47** 1676 (2001).
- [7] J. R. Espinosa, C. Vega y E. Sanz, *The mold integration method for the calculation of the crystal – fluid interfacial free energy from simulations*, J. Chem. Phys. **141** 1347091 (2014).
- [8] J. R. Espinosa, C. Vega y E. Sanz, *Ice – water interfacial free energy for the TIP4P, TIP4P/2005, TIP4P/ice, and MW models as obtained from the mold integration technique*, J. Phys. Chem. C **120** 8068 (2016).
- [9] J. Algaba, E. Acuña, J. M. Míguez, B. Mendiboure, I. M. Zerón y F. J. Blas, *Simulation of the Carbon Dioxide Hydrate-Water Interfacial Energy*, submitted to J. Colloid Interface Sci. (2022).