

Universidad Autónoma del Estado de Morelos

Estadística:

Braulio Rojas Mayoral

Febrero de 2014

En este trabajo se calculó las estructuras moleculares, las energías de amarre, las energías de hidratación y las energías libres de hidratación para $[\text{Ln}(\text{H}_2\text{O})_{n+m}]^{3+}$ con $n = 7, 8, 9$ y $n + m = 9$, para la serie de los lantánidos. Los cálculos se hicieron utilizando los pseudopotenciales que contienen a los electrones de la capa 4f y los efectos relativistas, el nivel de teoría fue SCS-MP2 y los efectos del disolvente se modelaron con un medio dieléctrico polarizable continuo. Los resultados obtenidos pueden considerarse cuantitativamente correctos ya que los números de coordinación de la primera capa de hidratación son los observados en los experimentos y las energías libres de hidratación son cercanas a las experimentales (un 3% de error en el peor de los casos). Se encontró que las distancias promedios de los lantánidos a los átomos de oxígeno son mayores a las experimentales si los efectos del disolvente no son agregados, a un nivel MP2, además si el nivel de cálculo es SCS-MP2 las distancias dan aún mayor. Si se agrega el efecto del disolvente, mediante un medio dieléctrico continuo y polarizable, las distancias promedios son menores a las experimentales, a un nivel de cálculo MP2. Por lo anterior se concluye que para encontrar geometrías en acuerdo con los datos experimentales de una manera autoconsistente, que con el mismo nivel de cálculo y hamiltoniano se logren tanto las distancias como los números de coordinación experimentales, es necesario hacer los cálculos a nivel SCS-MP2 y modelando los efectos del disolvente mediante el medio dieléctrico continuo y polarizable. También se encontró que al agregar los efectos del disolventes, tanto en las geometrías optimizadas en fase gas como aquellas optimizadas tomando en cuenta los efectos de bulto, sin volver a hacer la optimización, las diferencias en las energías de los sistemas con diferentes números de coordinación dan el signo esperado de las diferencias energéticas, aunque no ocurre lo mismo para las diferencias de las energías libres, a menos que la geometría sea la optimizada con el medio polarizable (*¿y qué pasa con el nivel de cálculo*). Por último se encontró que no es necesario utilizar los pseudopotenciales cortos, es decir, aquellos que toman en cuenta los efectos de los electrones de la capa 4f de manera explícita, pues las distancias obtenidas no son las correctas, son más cortas que las experimentales. Lo mismo ocurre si se utiliza la base extendida de los pseudopotenciales largos y los efectos del disolvente sin importar si el nivel de cálculo es MP2 o SCS-MP2 (*¿y qué efecto tiene en las energías?*).