

# DISEÑO CONTROLADO DE PATRONES DE UNION DE MELAMINA

Petelski, Andre N., Martín, Leopoldo, Aguayo, José; Bessonne, Juan F.; Ortiz, Gonzalo; Nuñez, Ivan; Pamies, Silvana C. y Sosa, Gladis Laura.

Grupo de Investigación en Química Teórica y Experimental (QUITEX), Universidad Tecnológica Nacional, Facultad Regional Resistencia.  
French 414 (H3500CHJ), Resistencia, Chaco, Argentina. E-mail: npetelski@fre.utn.edu.ar

## INTRODUCCIÓN

El diseño y síntesis de materiales emergentes, tales como las redes orgánicas de enlaces de hidrógeno<sup>1</sup> (HOFs, por sus siglas en inglés), requiere un conocimiento muy fino y detallado de las interacciones puestas en juego. En este campo, es sabido que numerosos factores pueden afectar la estabilidad de las interacciones entre fragmentos moleculares.<sup>2</sup> Es por ello que en este trabajo se estudia el efecto de determinadas modificaciones covalentes sobre la formación de puentes de hidrógeno en dímeros de melamina (M).

## METODOLOGÍA

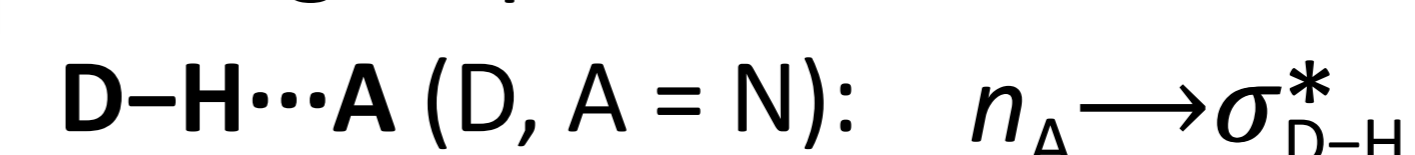
Cálculos DFT al nivel **BLYP-D3(BJ)/aug-cc-pVDZ**

**Energías**  $\Delta E_{\text{bond}} = \Delta E_{\text{int}} + \Delta E_{\text{def}} \cdot \Delta G_{\text{bond}}$

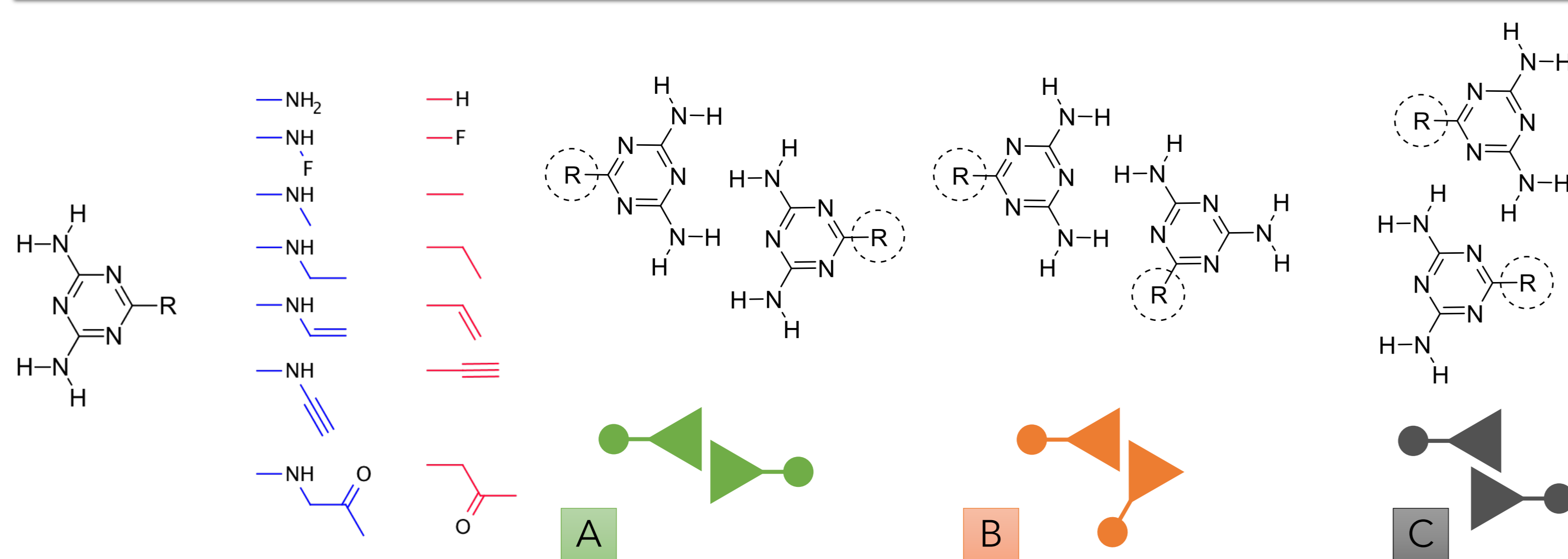
**LMOEDA** Descomposición de la energía de interacción

$$\Delta E_{\text{int}} = \Delta E_{\text{elec}} + \Delta E_{\text{exc}} + \Delta E_{\text{rep}} + \Delta E_{\text{pol}} + \Delta E_{\text{disp}}$$

**NBO** Energías perturbativas de segundo orden E(2)



## RESULTADOS y DISCUSIÓN



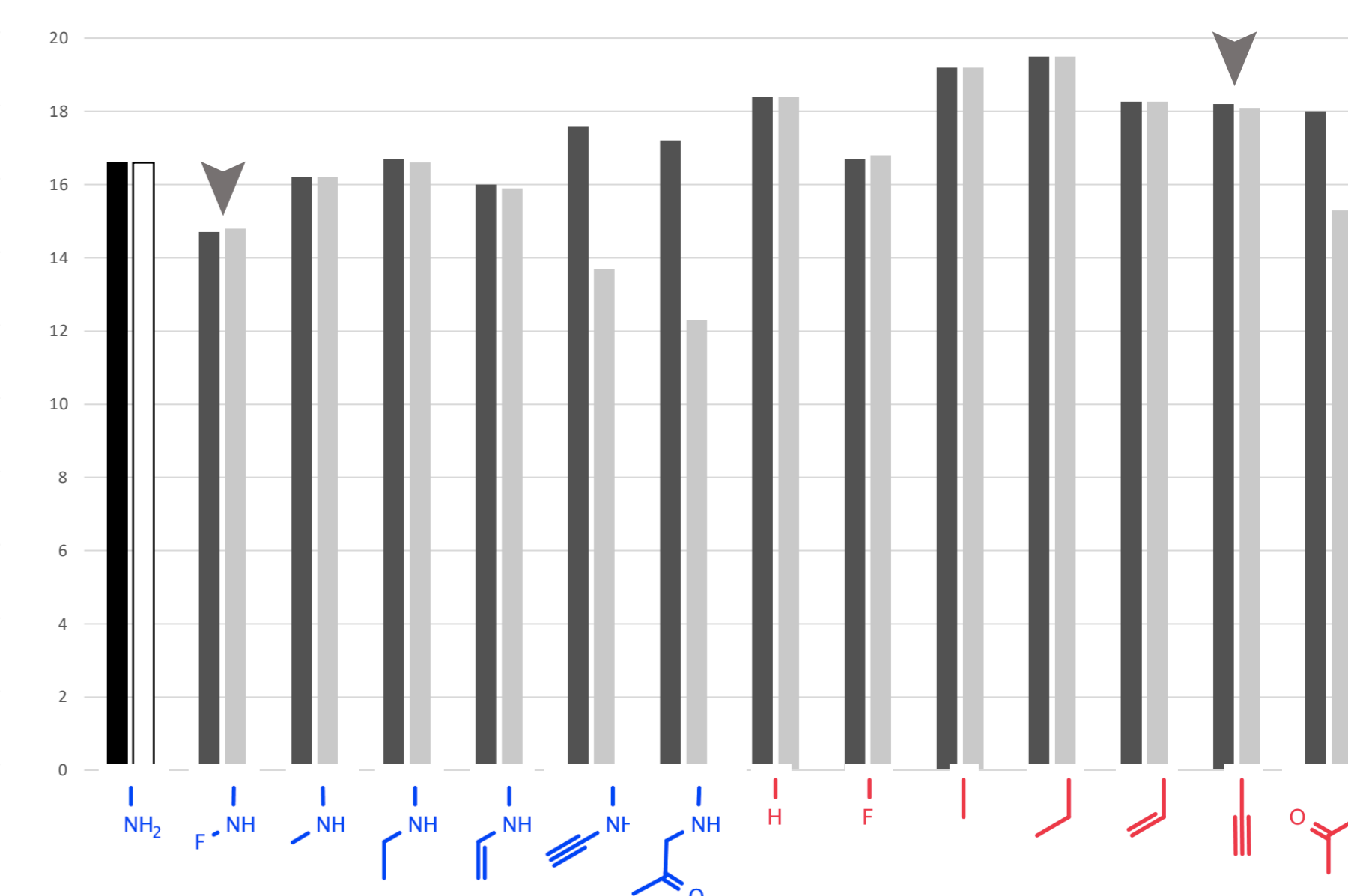
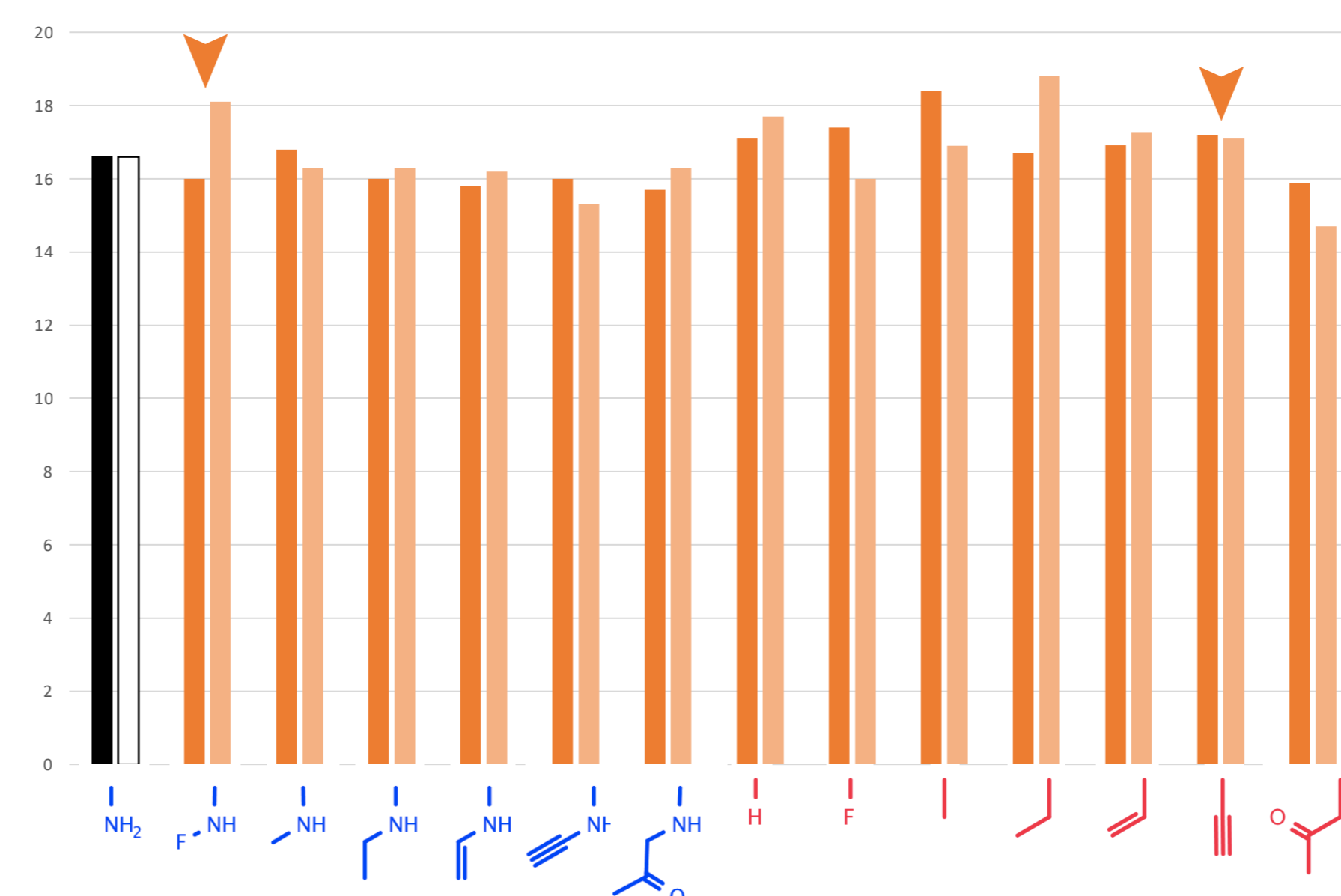
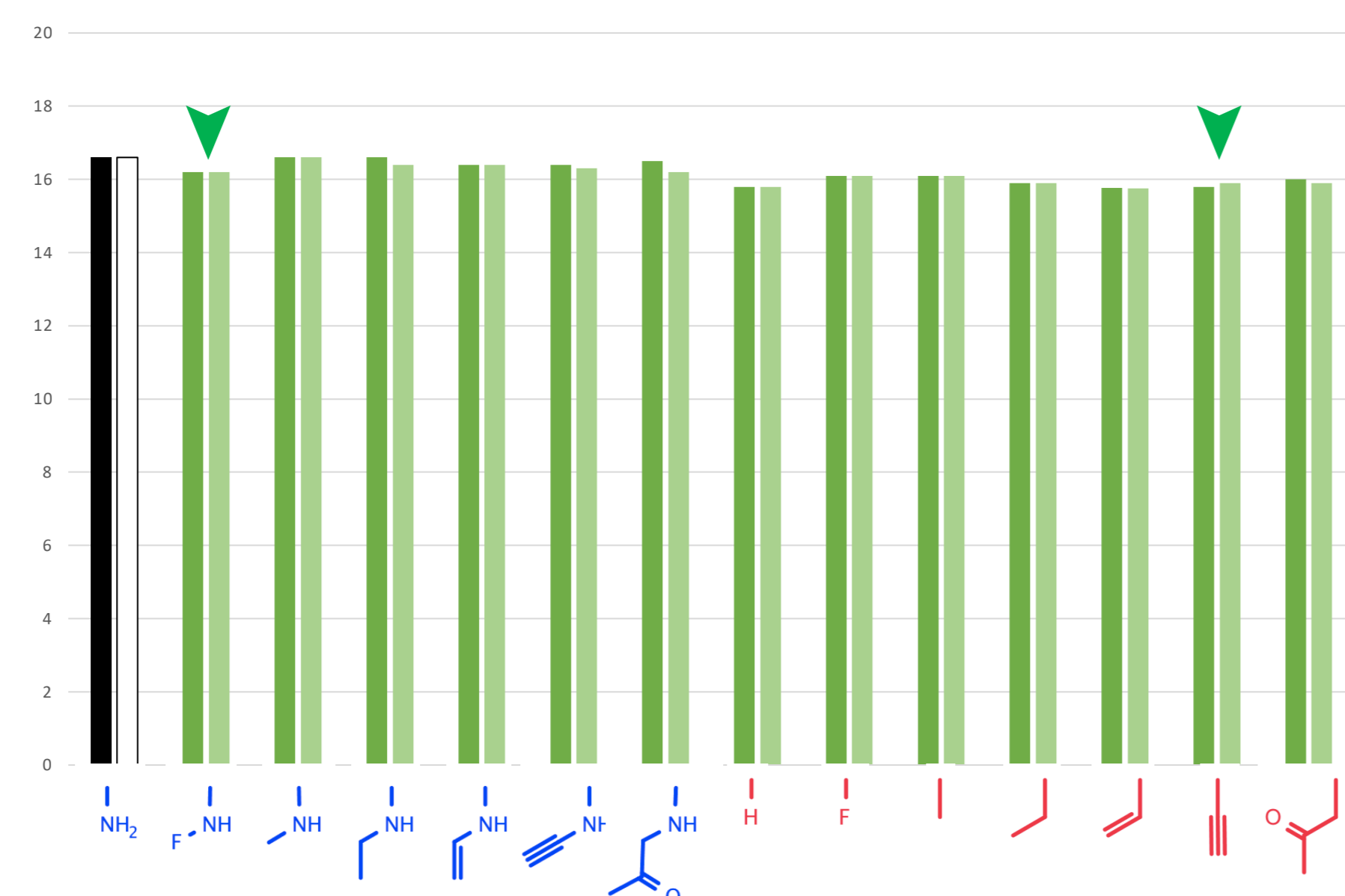
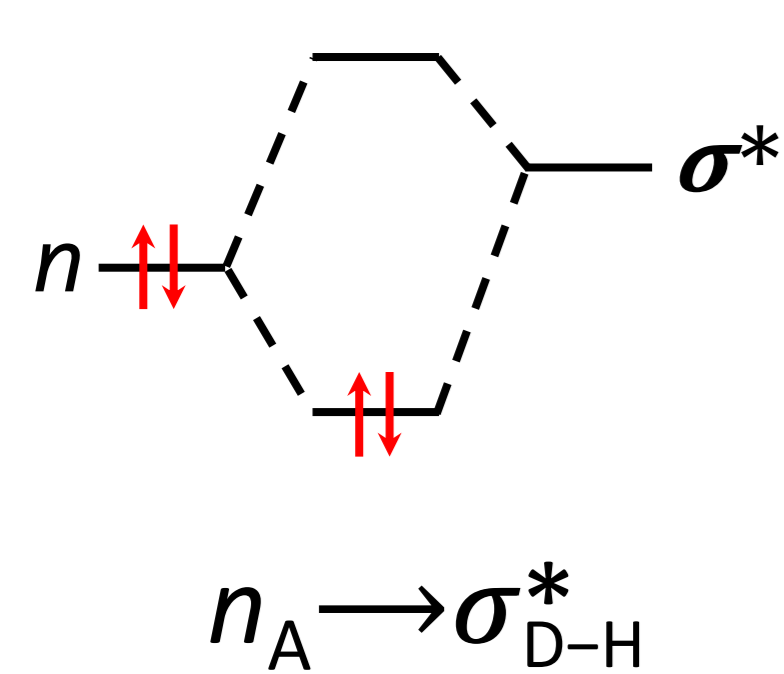
Estructura de la **M** y de los grupos R

Tipos de dímeros de M

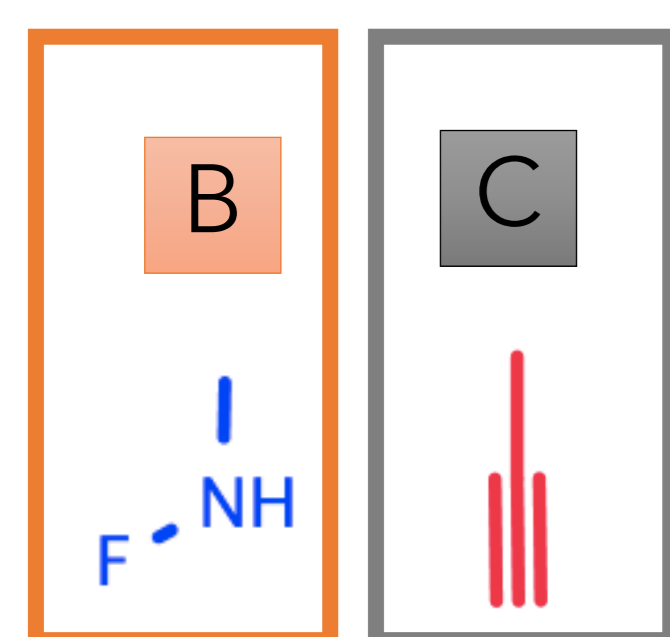
Energías de Interacción (▲: estructuras más favorecidas)

Energías Libres de Gibbs de Unión ( $\Delta G_{\text{bond}}$ )

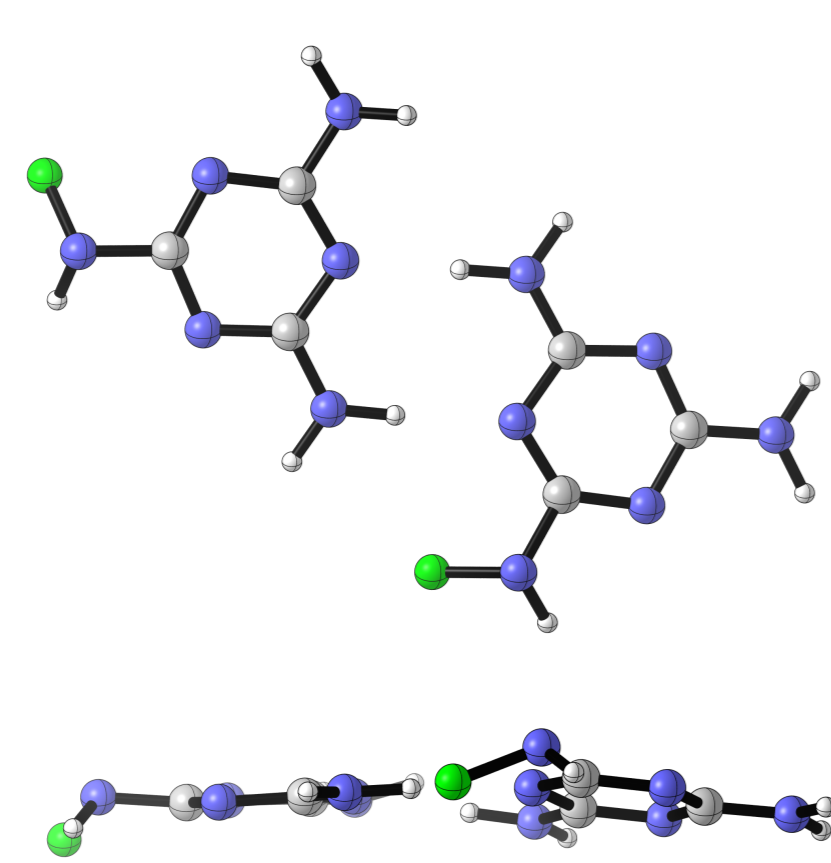
E(2) [kcal mol<sup>-1</sup>]



LMOEDA



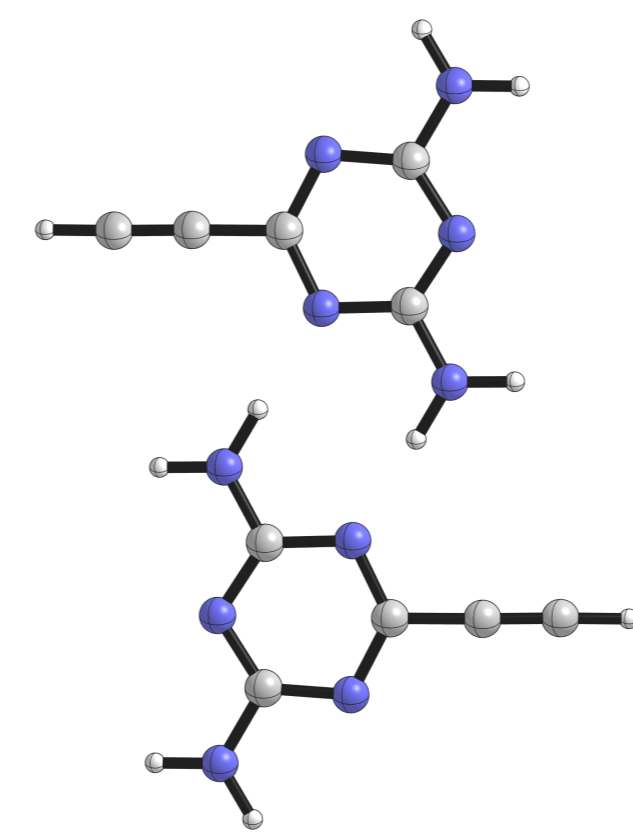
combinaciones más estables



Vista frontal y lateral

COMPONENTES	A	B	C
Electrostática	-11,7	-13,7	-10,4
Intercambio	-7,5	-7,1	-6,8
Repulsión	45,3	46,9	42,5
Polarización	-33,1	-35,0	-32,4
Dispersión	-7,5	-8,3	-7,3
TOTAL	-14,4	-17,3	-14,5

La mayor estabilidad está gobernada por las interacciones electrostáticas y orbitales



Vista frontal y lateral

COMPONENTES	A	B	C
Electrostática	-11,9	-13,8	-16,2
Intercambio	-7,5	-7,7	-7,9
Repulsión	44,8	46,9	48,8
Polarización	-32,3	-33,8	-35,4
Dispersión	-7,4	-7,7	-8,0
TOTAL	-14,2	-16,1	-18,6

Los resultados NBO son consistentes con las componentes  $\Delta E_{\text{pol}}$

## CONCLUSIONES

- Las modificaciones covalentes sobre la M afectan su auto-ensamblado
- El reemplazo completo del grupo amino resulta más efectivo que el reemplazo de un H.
- El grupo **-NH<sub>F</sub>** favorece al dímero tipo **B**, mientras que el grupo **-C<sub>H</sub>** favorece al dímero tipo **C**.
- La estabilidad está controlada por factores electrostáticos y orbitales

## REFERENCIAS

- [1] Han, Y.-F.; Yuan, Y.-X. Yuan; Wan, H.-B. Porous Hydrogen-Bonded Organic Frameworks. *Molecules*, **2017**, *22*, 266.
- [2] (a) S. C. C. van der Lubbe, C. Fonseca Guerra. The Nature of Hydrogen Bonds: A Delineation of the Role of Different Energy Components on Hydrogen Bond Strengths and Lengths. *Chem. Asian J.*, **2019**, *14*, 2760-2769. (b) S. C. C. van der Lubbe, A. Haim, T. van Heesch, C. Fonseca Guerra. Tuning the binding strength of even and uneven hydrogen-bonded arrays with remote substituents. *J. Phys. Chem. A*, **2020**, *124*, 9451-9463