

Evaluación del efecto de nanomateriales para mejorar la resistencia del cemento al ataque químico del CO₂ mediante técnicas de simulación en dinámica molecular.

Héctor Rojas Santos

Trabajo De Grado Para Optar Al Título Magister En Ingeniería De Hidrocarburos

Director

Gustavo Emilio Ramírez Caballero

Ph.D. en Ciencia de Materiales

Codirector

Emiliano Ariza León

Ph.D en Ingeniería de Química

Codirector

Universidad Industrial de Santander

Facultad de Ingenierías Físicoquímicas

Escuela de Ingeniería de Petróleos

Maestría en Ingeniería de Hidrocarburos

Bucaramanga

2025

Dedicatoria

A Dios, que me ha demostrado que las dificultades y los tropiezos son necesarios en el camino para avanzar en cada paso con mayor certeza y entusiasmo.

A mi madre, que día tras día me apoyó y alentó a no desfallecer en este proyecto, por recordarme que mis logros también son sus logros.

A mis hermanos y mi sobrina, que han estado acompañándome en casa paso, celebrando junto conmigo cada triunfo.

A todas aquellas personas que me han apoyado incondicionalmente durante estos años y que han contribuido en mi crecimiento personal y profesional.

Agradecimientos

A la Universidad Industrial de Santander, de la cual estoy siempre orgulloso y agradecido por ofrecerme los medios para crecer profesionalmente.

Al director de esta investigación Ph.D. Gustavo Emilio Ramírez Caballero y a los Codirectores Ph.D. Emiliano Ariza León y M.Sc. Andrés Camilo López Meza, por su constante orientación y apoyo.

A Texas A&M University, por facilitarme sus capacidades tecnológicas, para el mejor desarrollo de este trabajo de investigación.

Tabla de Contenido

	Pág.
1. Introducción	15
2. Fundamentos, métodos y modelos	18
2.1 Cementación de pozos	18
2.2 Cemento Portland.....	20
2.3 Hidratación del Cemento	21
2.4 Minerales análogos del Gel C-S-H	25
2.5 Estructura molecular del gel C-S-H.....	27
2.6 Relación Ca/Si	28
2.7 Contenido de agua y densidad	29
2.8 Efecto del CO ₂	30
2.9 Oxido de grafeno (OG).....	34
2.10 Métodos de simulación molecular	35
2.10.1 Mecánica Molecular.....	36
2.10.2 Campos de Fuerza.....	37
2.10.2.1 Campo de fuerza ClayFF	38
2.10.2.2 Campo de fuerza OPLS-AA	41
2.10.2.3 Campo de fuerza EPM2	42
2.10.3 Minimización de energía.....	43
2.10.4 Dinámica molecular (DM).....	44
2.10.4.1 Topología	45
2.10.4.2 Condiciones de frontera	46

2.10.4.3	Ensamblajes termodinámicos	46
3.	Objetivos	48
3.1	Objetivo General	48
3.2	Objetivos Específicos.....	48
4.	Metodología	49
4.1	Construcción de modelos de gel C-S-H.....	49
4.2	Construcción de modelos de gel C-S-H/CO ₂	50
4.3	Construcción de modelos de gel C-S-H/CO ₂ /OG	51
4.4	Detalles de simulación	52
4.5	Campos de fuerza.....	53
4.6	Cálculo de propiedades mecánicas	53
5.	Análisis de resultados	54
5.1	Evolución temporal de los modelos.....	54
5.2	Estructura molecular de los modelos	58
5.3	Propiedades mecánicas	63
5.3.1	Propiedades mecánicas gel C-S-H.....	63
5.3.2	Propiedades mecánicas gel C-S-H/CO ₂	70
5.3.3	Variaciones entre las propiedades mecánicas del gel C-S-H y gel C-S-H/CO ₂	75
5.3.4	Propiedades mecánicas gel C-S-H/CO ₂ /OG	79
5.3.5	Variaciones entre las propiedades mecánicas del gel C-S-H, gel C-S-H/CO ₂ y gel C-S-H/CO ₂ /OG	84
6.	Conclusiones	94
7.	Recomendaciones	96

8.	Referencias Bibliográficas	97
9.	Anexos	104

Lista de Tablas

	Pág.
Tabla 1 Parámetros no enlazantes del campo de fuerza ClayFF.	40
Tabla 2 Parámetros de enlace del campo de fuerza SPC.	40
Tabla 3 Parámetros de ángulo del campo de fuerza ClayFF.	41
Tabla 4 Valores de las propiedades mecánicas para el gel C-S-H con relación Ca/Si de 1.8	64
Tabla 5 Valores de las propiedades mecánicas para el gel C-S-H con relación Ca/Si de 1.9	65
Tabla 6 Valores de las propiedades mecánicas para el gel C-S-H con relación Ca/Si de 2.0	66
Tabla 7 Valores de las propiedades mecánicas para el gel C-S-H/CO ₂ con relación Ca/Si de 1.8	70
Tabla 8 Valores de las propiedades mecánicas para el gel C-S-H/CO ₂ con relación Ca/Si de 1.9	71
Tabla 9 Valores de las propiedades mecánicas para el gel C-S-H/CO ₂ con relación Ca/Si de 2.0	71

Lista de Figuras

	Pág.
Figura 1. Fuga de Fluidos en Pozos Petroleros. Adaptado de Ansarizadeh, Mehdí (2015)	18
Figura 2. Histograma de frecuencia de la relación C/S el cemento Portland.	24
Figura 3. Bandas de Carbonización. Nota: Adaptado de: Kutchko, B. et al. (2007)	31
Figura 4 Proceso de construcción de los modelos de gel C-S-H.	49
Figura 5 Método de inclusión de moléculas de CO ₂ en el gel C-S-H.....	50
Figura 6 Lamina de Óxido de grafeno obtenida con make-graphitics.....	51
Figura 7 Evolución temporal de los perfiles de Energía potencial, energía cinetica, volumen y densidad.	56
Figura 8 Snapshots del modelo de gel C-S-H durante los 7 ns de simulación.	58
Figura 9 Snapshots del modelo de gel C-S-H durante los 7 ns de simulación sin los átomos del gel C-S-H.	60
Figura 10 Snapshots del modelo de gel C-S-H con CO ₂ durante los 1 ns de simulación.....	61
Figura 11 Método de inclusión de moléculas de OG en el gel C-S-H.....	62
Figura 12 Módulos de Bulk para todos los modelos de gel C-S-H.	67
Figura 13 Módulos de Shear para todos los modelos de gel C-S-H.	67
Figura 14 Módulos de Young para todos los modelos de gel C-S-H.	68
Figura 15 Relación de Poisson para todos los modelos de gel C-S-H.....	69
Figura 16 Modulo de Bulk para todos los modelos de gel C-S-H/CO ₂	72
Figura 17 Modulo de Shear para todos los modelos de gel C-S-H/CO ₂	73
Figura 18 Modulo de Young para todos los modelos de gel C-S-H/CO ₂	74

Figura 19 Relaciones de Poisson para todos los modelos de gel C-S-H/CO ₂	75
Figura 20 Variación del módulo de Bulk entre el gel C-S-H con y sin CO ₂	76
Figura 21 Variación del módulo de Shear entre el gel C-S-H con y sin CO ₂	77
Figura 22 Variación del módulo de Young entre el gel C-S-H con y sin CO ₂	78
Figura 23 Variación de la Relación de Poisson entre el gel C-S-H con y sin CO ₂	79
Figura 24. Módulo de Bulk para todos los modelos de gel C-S-H/CO ₂ /OG	80
Figura 25 Modulo de Shear para todos los modelos de gel C-S-H/CO ₂ /OG	81
Figura 26 Modulo de Young para todos los modelos de gel C-S-H/CO ₂ /OG	82
Figura 27 Relación de Poisson para todos los modelos de gel C-S-H/CO ₂ /OG.	83
Figura 28 Variación porcentual del módulo de Bulk entre el gel C-S-H/ CO ₂ y gel C-S-H/ CO ₂ /OG.	85
Figura 29 Variación porcentual del módulo de Shear entre el gel C-S-H/ CO ₂ y gel C-S-H/ CO ₂ /OG.	86
Figura 30 Variación porcentual del módulo de Young entre el gel C-S-H/ CO ₂ y gel C-S-H/ CO ₂ /OG.	87
Figura 31 Variación porcentual de la relación de Poisson entre el gel C-S-H/ CO ₂ y gel C-S-H/ CO ₂ /OG.	88
Figura 32 Valores del módulo de Bulk para los modelos con todas las relaciones de W/Si.	89
Figura 33 Valores del módulo de Shear para los modelos con todas las relaciones de W/Si.	90
Figura 34 Valores del módulo de Young para los modelos con todas las relaciones de W/Si.	91
Figura 35 Valores de la relación de Poisson para los modelos con todas las relaciones de W/Si.	92

Lista de Apéndices

	pág.
Anexo A Algoritmo de entrada para LAMMPS	104

Glosario

- **Campos de Fuerza:** Modelos matemáticos que describen las interacciones entre partículas en un sistema molecular. Pueden ser utilizados en dinámica molecular para simular comportamientos y propiedades.
- **Campos de Fuerza Reactivos:** Variantes de campos de fuerza que consideran la formación y ruptura de enlaces químicos, esenciales para estudiar reacciones químicas en simulaciones de dinámica molecular.
- **Carbonatación:** Proceso de corrosión causado por la reacción del CO₂ con componentes alcalinos en el cemento, afectando sus propiedades mecánicas.
- **Difusión: Movimiento** aleatorio de moléculas, en este contexto, entre las interláminas del gel C-S-H, afectando la composición química del material.
- **Gel C-S-H (Gel de Silicato de Calcio Hidratado):** Material clave en la industria del cemento, formado por la reacción de silicatos y agua durante el proceso de hidratación del cemento Portland. Su estructura gelatinosa proporciona resistencia mecánica al cemento.
- **Módulo de Bulk:** Indicador de la compresibilidad de un material y su capacidad para soportar cargas uniformemente distribuidas.
- **Módulo de Shear:** Medida de la resistencia de un material a fuerzas cortantes.
- **Módulo de Young:** Medida de la rigidez de un material frente a deformaciones elásticas bajo tensión.

- **Óxido de Grafeno (OG):** Nanomaterial compuesto por átomos de carbono dispuestos en una sola capa. En este contexto, se incorpora al gel C-S-H para mejorar propiedades mecánicas y químicas.
- **Propiedades Mecánicas:** Características relacionadas con la respuesta de un material a fuerzas aplicadas, como elasticidad, resistencia y deformación.
- **Relación Agua/Silicio (W/Si):** Proporción de agua respecto al silicio en el sistema, afectando las propiedades del gel C-S-H.
- **Relación Calcio/Silicio (Ca/Si):** Proporción de calcio respecto al silicio en el sistema, influyendo en la estructura del gel C-S-H.
- **Sostenibilidad Ambiental:** Enfoque que busca minimizar el impacto ambiental a lo largo del ciclo de vida de un material o proceso.

Resumen

Título: Evaluación del efecto de nanomateriales para mejorar la resistencia del cemento al ataque químico del CO₂ mediante técnicas de simulación en dinámica molecular. *

Autor: Héctor Rojas Santos **

Palabras Clave: Dinámica molecular, dióxido de carbono (CO₂), matriz de cemento, carbonatación, propiedades mecánicas, gel de silicato de calcio (C-S-H), óxido de grafeno (OG), resistencia mecánica, interacciones moleculares.

Descripción: La investigación se centra en analizar la interacción dinámica entre el dióxido de carbono (CO₂) en fase acuosa y la matriz de cemento, desencadenando el proceso de carbonatación y afectando las propiedades mecánicas del gel de silicato de calcio (C-S-H). Los resultados, obtenidos mediante simulaciones por dinámica molecular utilizando los campos de fuerza ClayFF para el C-S-H, OPLS-AA para el óxido de grafeno (OG), y EPM2 para el CO₂, revelan que la difusión gradual del CO₂ impacta los módulos de Bulk, Shear, Young y la relación de Poisson, mostrando variaciones significativas con el tiempo de exposición. La inclusión de CO₂ en la estructura molecular del gel C-S-H conlleva reducciones considerables en el módulo de Young (48.2%), módulo de Shear (27.6%), módulo de Bulk (39.1%), y la relación de Poisson (17.8%), indicando una disminución en la resistencia y rigidez del material. Además, la introducción de OG en el sistema Gel C-S-H y CO₂ demuestra mejorar la resistencia química y mecánica.

Los resultados evidencian reducciones menos pronunciadas en los módulos y la relación de Poisson (31.7%, 13.2%, 17.6%, y 9.7%, respectivamente) en comparación con el sistema sin OG. Estos hallazgos cuantitativos respaldan la conclusión de que la presencia de OG mitiga los efectos adversos del CO₂, mejorando la resistencia química y mecánica del sistema.

* Trabajo de grado

** Facultad de Ingenierías Físicoquímicas. Escuela de Ingeniería de Petróleos. Director: Gustavo Emilio Ramírez Caballero. Ph.D. Ciencia y tecnología de los materiales. Codirectores: Emiliano Ariza León. Ph.D. Ingeniería Química. Andrés Camilo López Meza. Químico.

Abstract

Title: Evaluation of the effect of nanomaterials to improve the resistance of cement to chemical attack by CO₂ using molecular dynamics simulation techniques.*

Author: Héctor Rojas Santos^{††}

Key Words: Molecular dynamics, carbon dioxide (CO₂), cement matrix, carbonation, mechanical properties, calcium silicate gel (C-S-H), graphene oxide (GO), mechanical strength, molecular interactions.

Description: The research focuses on analyzing the dynamic interaction between carbon dioxide (CO₂) in aqueous phase and the cement matrix, triggering the carbonation process and affecting the mechanical properties of calcium silicate gel (C-S-H). The results, obtained through molecular dynamics simulations using the ClayFF force fields for C-S-H, OPLS-AA for graphene oxide (GO), and EPM2 for CO₂, reveal that the gradual diffusion of CO₂ impacts the Bulk, Shear, Young's moduli and Poisson's ratio, showing significant variations with exposure time. The inclusion of CO₂ in the molecular structure of the C-S-H gel leads to considerable reductions in the Young's modulus (48.2%), Shear modulus (27.6%), Bulk modulus (39.1%), and Poisson's ratio (17.8%), indicating a decrease in the strength and stiffness of the material. Furthermore, the introduction of OG into the Gel C-S-H and CO₂ system is shown to improve chemical and mechanical resistance.

The results show less pronounced reductions in moduli and Poisson ratio (31.7%, 13.2%, 17.6%, and 9.7%, respectively) compared to the system without OG. These quantitative findings support the conclusion that the presence of OG mitigates the adverse effects of CO₂, improving the chemical and mechanical resistance of the system.

* Degree Work

^{††}Facultad de Ingenierías Físicoquímicas. Escuela de Ingeniería de Petróleos. Director: Gustavo Emilio Ramírez Caballero. Ph.D. Ciencia y tecnología de los materiales. Codirectores: Emiliano Ariza León. Ph.D. Ingeniería Química. Andrés Camilo López Meza. Químico.

1. Introducción

La cementación de pozos en la industria petrolera desempeña un papel crucial al aislar las formaciones geológicas alrededor del pozo, asegurando que las tuberías de revestimiento queden firmemente cementadas a las profundidades adecuadas. Este proceso es fundamental para la seguridad y eficiencia de un pozo petrolero, ya que salvaguarda contra la contaminación de las aguas subterráneas, impide la intrusión de fluidos en la zona productora y previene la pérdida de hidrocarburos (Fang et al., 2023; Jiang et al., 2022; Z. Liu et al., 2023; Ye et al., 2023).

No obstante, la cementación de pozos presenta desafíos significativos. Estos desafíos incluyen situaciones como la canalización de lodo, donde el lodo de perforación fluye a través de los poros del cemento, creando espacios que permiten la comunicación entre las formaciones geológicas. Asimismo, el fraguado desigual del cemento puede generar un revoque grueso, dificultando el flujo de hidrocarburos. La filtración del lodo de perforación a través del cemento también puede provocar la pérdida de material de circulación, debilitando la estructura del pozo. La incompatibilidad entre el lodo de perforación y el cemento puede dar lugar a reacciones que forman productos insolubles, comprometiendo la integridad estructural del pozo (N. K. Bui et al., 2023; Jun et al., 2023; Reddy et al., 2022; Stefaniuk et al., 2023; Yan et al., 2023).

La presencia de dióxido de carbono (CO₂) en las formaciones agrava algunos de estos problemas al reaccionar con el cemento, generando productos insolubles que debilitan la estructura del pozo.

En los últimos años, ha surgido un creciente interés en el uso de nanomateriales para mejorar la cementación de pozos. Estos materiales, con dimensiones del orden de los nanómetros (10⁻⁹ nanómetros), presentan propiedades únicas, como una alta superficie específica, que pueden

ser aprovechadas para optimizar el desempeño de la cementación. Los nanomateriales investigados para la mejora de la cementación de pozos abarcan diversas tecnologías: Los nanotubos de carbono, reconocidos por su excepcional resistencia y ligereza, se han empleado para fortalecer el cemento mecánicamente y disminuir su permeabilidad a los fluidos. Las nanofibras, filamentos extremadamente delgados, han demostrado capacidad para potenciar la resistencia mecánica y la impermeabilidad del cemento. Las nanopartículas han mostrado la capacidad de mejorar la resistencia mecánica del cemento, reducir su permeabilidad a los fluidos y fortalecer la adherencia entre el cemento y la tubería de revestimiento. Sobre las mejoras en la cementación de pozos, se ha observado un marcado interés en la aplicación de nanomateriales, cuyas dimensiones a escala nanométrica los hacen altamente atractivos. Este campo ha sido objeto de atención en numerosos artículos científicos, que exploran cómo estas innovaciones pueden potenciar la eficacia de la cementación. Entre estos nanomateriales, se destacan los nanotubos de carbono, reconocidos por su resistencia y ligereza excepcionales, los cuales se han utilizado para fortalecer mecánicamente el cemento y reducir su permeabilidad a los fluidos (Al-Fakih et al., 2022; V. Bui, 2019; Laanaiya & Zaoui, 2020; Papatzani & Paine, 2018; Perera-Mercado et al., 2023; Potapov et al., 2022; Sun et al., 2023).

Además, las nanofibras, extremadamente delgadas, han demostrado la capacidad de mejorar la resistencia mecánica y la impermeabilidad del cemento, tal como se ha expuesto en varias investigaciones científicas relevantes. Otro avance prometedor se centra en el empleo de láminas de óxido de grafeno, tema de estudio en varios artículos recientes, que han resaltado su potencial para fortalecer y mejorar la adherencia entre el cemento y la tubería de revestimiento. Las nanopartículas, en otra vertiente, también han sido objeto de estudio detallado, evidenciando

su capacidad para mejorar la resistencia mecánica del cemento y reducir su permeabilidad a los fluidos, contribuyendo así a una cementación más efectiva en la industria petrolera.

La exploración y aplicación de nanomateriales en la cementación de pozos se enfrenta a desafíos experimentales considerables. La complejidad radica en la necesidad de manipular y comprender con precisión fenómenos a una escala tan diminuta como la nanométrica, así como en la dificultad de observar directamente estos materiales en entornos reales de pozos. Estos desafíos exigen una comprensión detallada a niveles microscópicos, un campo donde las herramientas experimentales a menudo encuentran limitaciones significativas (Mishra et al., 2022).

Es en este escenario que el papel de las herramientas computacionales, en particular la dinámica molecular, adquiere una importancia crucial. Estas herramientas permiten simular y predecir con precisión el comportamiento de los nanomateriales en entornos específicos de pozo, brindando una visión detallada y enriquecedora de cómo se desenvuelven mecánicamente en diferentes condiciones. El poder de la modelación computacional se traduce en un entendimiento más profundo de las interacciones y propiedades de estos materiales a nivel atómico y molecular, allanando el camino para avanzar en la optimización de la cementación en la industria petrolera (Ramézani et al., 2021).

En particular, esta tesis de investigación se enfocará en evaluar el impacto y la influencia de la introducción de láminas de óxido de grafeno en el gel CSH bajo diversas concentraciones de CO₂. Esta exploración detallada tiene como objetivo desentrañar cómo esta combinación específica de materiales responde y se comporta en entornos realistas de pozo, contribuyendo así al entendimiento y posible mejora de la cementación en la industria petrolera.

2. Fundamentos, métodos y modelos

En este capítulo, se presenta una introducción a los fundamentos teóricos y generalidades del cemento, desde una perspectiva macroscópica hasta una nanoscópica. Se discute el principal componente de hidratación del cemento, el gel C-S-H, y su relación con la dinámica molecular. Esta relación se utiliza para predecir propiedades mecánicas a partir de modelos de gel C-S-H.

2.1 Cementación de pozos

La cementación de pozos petroleros es un procedimiento que proporciona un sello hidráulico para establecer un aislamiento zonal, lo que impide la comunicación de los fluidos entre las zonas productivas del pozo y bloquea el escape de los fluidos hacia la superficie. Además, la cementación produce el anclaje y soporte de la sarta de revestimiento y la protege de la corrosión producida por los fluidos de las formaciones (Schlumberger and Nelson 2012).

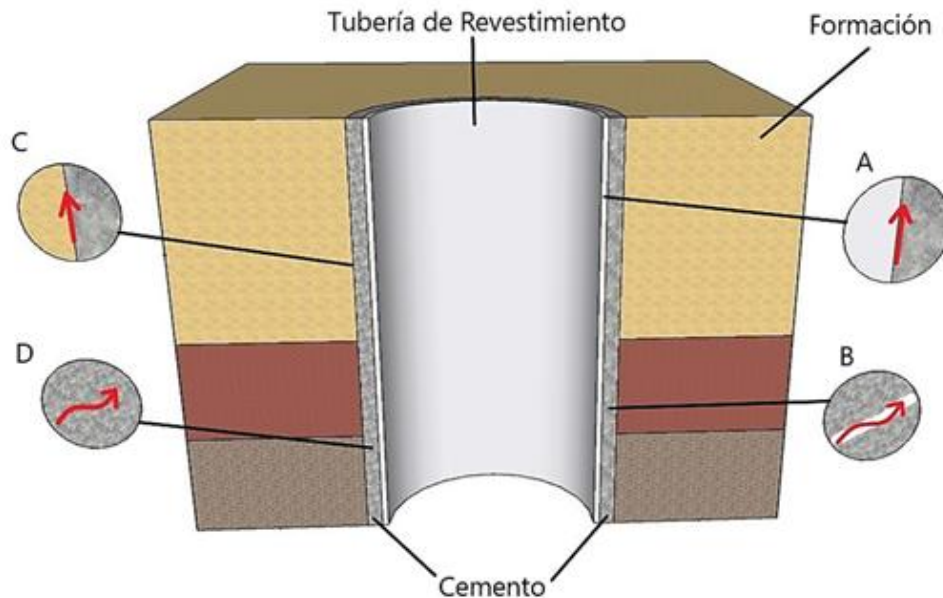


Figura 1. Fuga de Fluidos en Pozos Petroleros. Adaptado de Ansarizadeh, Mehdí (2015)

La figura 1 muestra cuatro posibles rutas de fuga de fluidos desde la formación hacia el pozo o hacia superficie en un pozo petrolero: (a) Entre la tubería de revestimiento y el cemento (b) por medio de fracturas en el cemento, (c) entre la formación y el cemento en el anular del pozo y (d) a través del espacio poroso en la matriz de cemento.

La cementación de pozos se presenta como un proceso intrincado que demanda el uso de cementos altamente eficientes capaces de enfrentar las condiciones extremas de un pozo, incluyendo elevadas temperaturas y presiones, la presencia de salmuera, gases ácidos y otros fluidos desafiantes.

Investigaciones han evidenciado que diversos factores físicos y químicos inciden directamente en el rendimiento del cemento en este entorno particular. Las altas temperaturas, por ejemplo, pueden menguar tanto la resistencia como la durabilidad del cemento, al acelerar reacciones químicas que comprometen su integridad. De manera similar, las elevadas presiones tienden a provocar grietas y desprendimientos en la estructura cementicia, debido a la compresión a la que se ve sometida (Kunhi Mohamed et al., 2018).

La salmuera, por su parte, al interactuar con el cemento, puede iniciar procesos químicos que reducen su resistencia. La presencia de otros fluidos, como el lodo de perforación, impacta la hidratación y la resistencia del cemento debido a interacciones químicas complejas que alteran su composición y comportamiento final. Además, la variabilidad y heterogeneidad del perfil de la pared del pozo no solo dificultan la penetración y asentamiento óptimos del cemento, sino que también pueden inducir variaciones en las condiciones químicas locales, afectando la capacidad del cemento para formar una unión sólida con la pared del pozo (Olsen et al., 2016).

Por consiguiente, la tecnología de producción, el diseño selectivo y la elección del tipo de cemento, junto con su formulación precisa y la ejecución meticulosa durante el proceso de

inyección, se vuelven críticos para asegurar el éxito de la labor de cementación y completamiento en un pozo, teniendo en cuenta tanto las complejidades físicas como las interacciones químicas involucradas en este proceso.

2.2 Cemento Portland

El cemento Portland, siendo uno de los materiales más utilizados en la industria de la construcción a nivel global, tiene una relevancia incomparable, solo superada por el agua en términos de utilización. A pesar de su prominencia, este material presenta imperfecciones significativas. Entre sus principales defectos se encuentra su baja resistencia a la tensión y flexión en comparación con su resistencia a la compresión, una disparidad que suele situarse en torno al 10% y 15% respectivamente. Además, el cemento hidratado experimenta una retracción química y autógena que varía según las condiciones ambientales en las que se encuentre (Kunhi Mohamed et al., 2018; Manzano et al., 2013; Pellenq et al., 2009).

No obstante, más allá de sus limitaciones mecánicas, la fabricación de cemento Portland tiene un impacto ambiental notable, generando aproximadamente 0.85 toneladas de CO₂ por cada tonelada de cemento producido. Además, la vulnerabilidad del material a los agresivos ambientales, particularmente a la acción de salmueras, conlleva la pérdida de cohesión y resistencia debido al ataque de iones que inducen expansión y fisuras en el material (Yin et al., 2005).

Sin embargo, la investigación y aplicación de avances en nanotecnología, junto con la introducción de materiales de refuerzo, ofrecen perspectivas prometedoras para superar estas limitaciones. Se ha demostrado que mejoras en la resistencia, la compensación de la retracción y la mejora de la durabilidad son posibles a través de la adición de minerales o polímeros. Asimismo, la introducción de materiales suplementarios puede servir para reemplazar parte del cemento

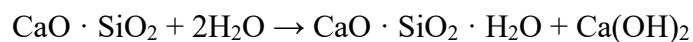
convencional, buscando alcanzar así un material más sostenible. Estudios recientes, como los realizados por (Hou, 2020b), respaldan estos enfoques para el mejoramiento y diseño renovado del cemento, apuntando hacia un material más resistente y respetuoso con el medio ambiente (Hou, 2020a).

2.3 Hidratación del Cemento

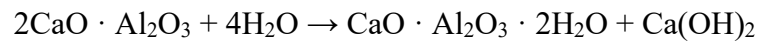
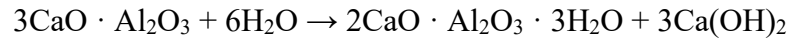
La hidratación del cemento Portland es un proceso químico fundamental en la producción de concreto. El cemento Portland consiste principalmente en silicatos y aluminatos de calcio que, al mezclarse con agua, inician una serie de reacciones que resultan en el endurecimiento y la resistencia del concreto.

Las fases principales del cemento Portland son el alita (C3S), la belita (C2S), la aluminato tricálcico (C3A) y la ferrita (C4AF). La alita y la belita son las fases que más contribuyen a la resistencia del concreto. La reacción química fundamental durante la hidratación del cemento Portland se puede describir mediante las siguientes ecuaciones:

Silicatos de calcio: Estos compuestos son los responsables de la resistencia inicial del cemento. Las principales reacciones de hidratación de los silicatos de calcio son las siguientes:



Aluminatos de calcio: Estos compuestos son los responsables de la resistencia final del cemento. Las principales reacciones de hidratación de los aluminatos de calcio son las siguientes:



Ferritatos de calcio: Estos compuestos son los responsables de la resistencia al calor del cemento. Las principales reacciones de hidratación de los ferritatos de calcio son las siguientes:



Además de estos compuestos, el cemento también contiene otros minerales que pueden reaccionar con el agua, como el tricalcio aluminato (C3A) y el tetracalcio aluminoferrito (C4AF).

La hidratación del cemento es un proceso complejo que se produce en varias etapas. La primera etapa, denominada hidratación rápida, se produce durante los primeros minutos después de mezclar el cemento con el agua. En esta etapa, los silicatos de calcio reaccionan rápidamente para formar gel de silicato de calcio hidratado (C-S-H). El C-S-H es una red tridimensional de iones calcio, silicatos y agua que es responsable de la resistencia inicial del cemento (Hou, 2020a).

La segunda etapa, denominada hidratación lenta, se produce durante los días y semanas posteriores a la mezcla del cemento con el agua. En esta etapa, los aluminatos de calcio y los ferritatos de calcio reaccionan para formar otros compuestos hidratados, como el ettringita (C3A · 3CaSO₄ · 32H₂O) y el monosulfato de calcio (CaSO₄ · 2H₂O). Estos compuestos son responsables de la resistencia final del cemento.

La importancia del clinker en la hidratación del cemento es fundamental. El clinker es el principal componente del cemento y contiene los compuestos que reaccionan con el agua para formar los productos hidratados que confieren las propiedades aglutinantes del cemento.

La hidratación del cemento es un proceso que puede verse afectado por varios factores, como la temperatura, la humedad, la relación agua/cemento y la presencia de otros materiales. La temperatura y la humedad son factores importantes que pueden acelerar o retrasar la hidratación del cemento. La relación agua/cemento es un factor importante que afecta la resistencia del cemento. La presencia de otros materiales, como la sal, puede inhibir la hidratación del cemento.

El C-S-H (gel de silicato de calcio hidratado) es el componente clave que contribuye a la resistencia y durabilidad del concreto, al formar una matriz sólida que une los agregados. El CH, o hidróxido de calcio, también contribuye a la resistencia, pero en menor medida (Morales-Cantero et al., 2022).

El clinker es la materia prima fundamental para la fabricación del cemento Portland. Es un material granulado, resultante de la cocción a altas temperaturas de una mezcla de caliza y arcilla. El clinker es molido para obtener el cemento, y la calidad y composición del clinker son críticas para determinar las propiedades del cemento final. Especificaciones como la cantidad de alita, belita y otros componentes en el clinker tienen un impacto directo en las características del cemento, incluyendo su resistencia y tiempo de fraguado.

La Figura 2 presenta un histograma de frecuencias que ilustra la evolución de la relación Ca/Si en microanálisis de TEM de gel C-S-H en pastas de cemento Portland endurecidas durante un período que abarca desde 1 día hasta 3 años y medio.

Se destaca una variación significativa en la relación Ca/Si a lo largo del tiempo de endurecimiento del cemento. En las pastas de 1 día, la relación Ca/Si se sitúa en aproximadamente 1,2, incrementándose gradualmente con la edad del cemento hasta alcanzar un valor cercano a 2,0 en las pastas de 3 años y medio (Richardson, 1999).

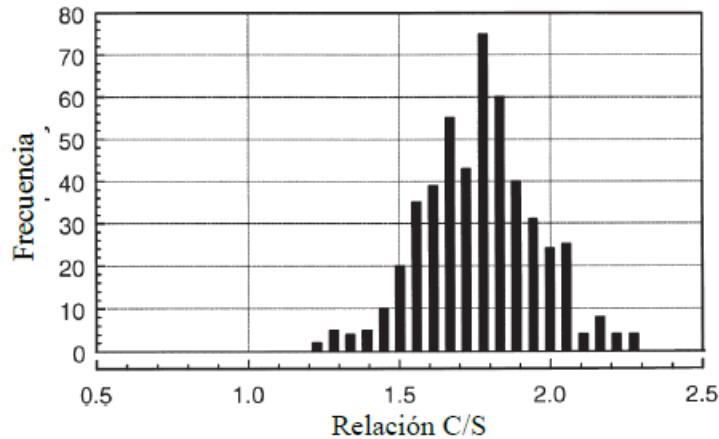


Figura 2. Histograma de frecuencia de la relación C/S el cemento Portland.

- La velocidad de la reacción de hidratación, donde las primeras etapas favorecen la formación de monosulfoaluminato de calcio hidratado (CSH), caracterizado por una baja relación Ca/Si. A medida que la hidratación progresa, se generan otros compuestos como el silicato tricálcico hidratado (C3S), que exhibe una relación Ca/Si más elevada.
- La presencia de otros componentes del cemento, como los sulfatos, que pueden interactuar con el silicato tricálcico para formar ettringita, poseedora de una relación Ca/Si considerablemente alta.
- Las condiciones de curado, incluyendo la temperatura y la humedad, las cuales pueden influir en la velocidad de la reacción de hidratación.

Esta variación en la relación Ca/Si impacta de manera significativa en las propiedades del cemento. Generalmente, una relación Ca/Si más alta se asocia con mayor resistencia mecánica y menor permeabilidad. No obstante, este aumento también puede traducirse en menor trabajabilidad

y mayor contracción (Cygan et al., 2004b; Kovačević et al., 2015; Manzano et al., 2012; Wang et al., 2020).

2.4 Minerales análogos del Gel C-S-H

Los minerales análogos al gel C-S-H, presentes tanto en la naturaleza como sintetizables en laboratorios, son compuestos inorgánicos que exhiben una estructura molecular similar a la del gel C-S-H. Este último, representado por su fórmula química general $\text{CaO} \cdot \text{SiO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$, constituye un entramado tridimensional de iones calcio (Ca^{2+}), silicatos (SiO_4) y moléculas de agua. Este compuesto se asemeja estructuralmente a otros silicatos inorgánicos naturales, como los silicatos de calcio (CaSiO_3), aluminio ($\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_7$) y hierro (Fe_2SiO_4) (Zhou & Xu, 2016).

La tobermorita, un mineral natural con su equivalente sintético, muestra similitudes estructurales con el gel C-S-H, pudiendo actuar como un sustituto en materiales cementantes. Su estructura se describe químicamente como $\text{Ca}_5\text{Si}_6\text{O}_{16}(\text{OH})_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$. La tobermorita se clasifica en tres tipos principales: tobermorita-9, -11 y -14. Estas variantes se diferencian por la distancia entre las cadenas de silicatos en su estructura molecular.

La tobermorita-9, con una fórmula similar a $\text{Ca}_5\text{Si}_6\text{O}_{16}(\text{OH})_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$, presenta una distancia más corta entre las cadenas de silicatos, lo que le confiere una estructura más compacta y una resistencia a la compresión más alta que los otros dos tipos de tobermorita. En contraste, la tobermorita-11, expresada como $\text{Ca}_6\text{Si}_6\text{O}_{18}(\text{OH})_2 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$, posee una distancia intermedia entre cadenas, otorgándole una resistencia a la compresión intermedia entre la tobermorita-9 y la tobermorita-14. Por último, la tobermorita-14, cuya fórmula química se aproxima a $\text{Ca}_4\text{Si}_6\text{O}_{15}(\text{OH})_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$, exhibe una estructura más abierta con una resistencia a la compresión más baja que los otros dos tipos de tobermorita (Kovačević et al., 2016).

Estos minerales comparten propiedades esenciales con el gel C-S-H, incluyendo resistencia a la compresión, durabilidad, impermeabilidad, y potencialmente, mayor resistencia a la corrosión y al fuego. Los minerales análogos al gel C-S-H son materiales cementantes artificiales que imitan las propiedades del hormigón. Permiten crear hormigones con características mejoradas, como mayor resistencia a la compresión, durabilidad e impermeabilidad.

En dinámica molecular, los minerales análogos al gel C-S-H se utilizan para estudiar el comportamiento de los materiales cementantes a escala atómica. Los estudios de dinámica molecular han permitido comprender mejor la estructura y las propiedades de estos materiales, lo que ha llevado al desarrollo de nuevos cementos con propiedades mejoradas.

Específicamente, estudios teóricos y computacionales han demostrado que los minerales análogos al gel C-S-H se forman por la reacción entre el cemento y el agua. La reacción produce un gel formado por una red tridimensional de moléculas de silicato y aluminato. La estructura y las propiedades de este gel dependen de la composición del cemento, así como de las condiciones de reacción. Los estudios de dinámica molecular han sido útiles para el desarrollo de nuevos cementos con propiedades mejoradas. Por ejemplo, han permitido desarrollar cementos con mayor resistencia a la compresión, durabilidad e impermeabilidad. También han permitido desarrollar cementos resistentes a la corrosión y al fuego.

En resumen, los minerales análogos al gel C-S-H son materiales cementantes artificiales con propiedades mejoradas. Los estudios de dinámica molecular han permitido comprender mejor la estructura y las propiedades de estos materiales, lo que ha llevado al desarrollo de nuevos cementos con propiedades mejoradas. La investigación activa sobre estos minerales tiene como objetivo mejorar las propiedades del hormigón y desarrollar nuevos materiales cementantes. Entre las áreas de estudio se encuentran la creación de nuevos minerales análogos del gel C-S-H con

propiedades mejoradas y la exploración de su influencia en la resistencia y durabilidad de materiales de construcción.

2.5 Estructura molecular del gel C-S-H

El gel C-S-H, conformado por una red tridimensional de moléculas de silicato y aluminato, despliega un papel crucial en el concreto. Los silicatos se componen de un átomo central de silicio rodeado por cuatro átomos de oxígeno, mientras que los aluminatos están constituidos por un núcleo de aluminio rodeado por seis átomos de oxígeno.

La génesis de este gel se produce a partir de la interacción entre el cemento y el agua, donde la combinación de minerales como óxido de calcio, óxido de silicio y óxido de aluminio en el cemento reacciona con el agua para generar las moléculas de silicato y aluminato. Estas moléculas, al entrelazarse mediante enlaces covalentes, brindan la tenacidad y durabilidad características al gel C-S-H.

Las propiedades mecánicas de este gel son un foco central en la literatura. Se ha demostrado que la proporción de sílice influye en su densidad, además, se ha estudiado detalladamente cómo dicha proporción afecta las propiedades mecánicas, como la resistencia a la compresión y la flexión del concreto. Por otro lado, la cantidad de aluminato tiene un impacto significativo en la resistencia mecánica del gel C-S-H y, en consecuencia, en la resistencia global del concreto.

La literatura científica revela que entender estas propiedades mecánicas no solo es esencial para el diseño de mezclas de concreto con características específicas, sino también para predecir y mejorar la durabilidad de las estructuras. Estudios detallados han explorado cómo las variaciones en la composición del gel C-S-H impactan en la longevidad y la resistencia del concreto a largo plazo, siendo esenciales para la ingeniería de estructuras más duraderas y seguras.

2.6 Relación Ca/Si

La relación Ca/Si en el gel C-S-H (calcio/silicio) emerge como un factor crítico en la formulación de mezclas de concreto, desempeñando un papel esencial en las propiedades fundamentales del gel y, por ende, en las características finales del concreto. Esta relación, que denota la proporción de átomos de calcio (Ca) con respecto a los átomos de silicio (Si) en la estructura del gel C-S-H, incide significativamente en diversas propiedades clave(Thomas et al., 1998).

En primer lugar, una relación Ca/Si baja sugiere una menor presencia de átomos de calcio en comparación con los átomos de silicio, lo que generalmente se asocia con una mayor densidad del gel C-S-H. Esta mayor densidad puede contribuir a una resistencia mejorada del concreto. Además, investigaciones han demostrado que una relación Ca/Si más baja tiende a correlacionarse con una mayor resistencia a la compresión del concreto, destacando la influencia directa de esta relación en las propiedades mecánicas del material.

La relación Ca/Si también se revela crucial en el ámbito de la durabilidad del concreto. Un equilibrio adecuado entre calcio y silicio puede contribuir a una mayor resistencia a la corrosión, un aspecto esencial, especialmente en ambientes corrosivos o en presencia de agentes agresivos. Asimismo, esta relación ha demostrado tener implicaciones en el comportamiento a largo plazo del concreto, afectando la evolución de sus propiedades con el tiempo. Este aspecto es esencial para la evaluación de la vida útil de las estructuras de concreto, subrayando la importancia de comprender y controlar la relación Ca/Si en el diseño de mezclas de concreto para garantizar propiedades específicas y la durabilidad a largo plazo de las estructuras(Zhang et al., 2018).

2.7 Contenido de agua y densidad

La evaluación del contenido de agua y su relación con la densidad en el gel C-S-H desempeña un papel crucial en la formulación de mezclas de concreto, con implicaciones directas en las propiedades mecánicas del material. La cantidad de agua presente en la mezcla influye directamente en la formación del gel C-S-H y, por ende, afecta significativamente las características finales del concreto.

En el proceso de hidratación, donde los minerales del cemento, como el óxido de silicio y el óxido de aluminio, reaccionan con el agua, se generan moléculas de silicato y aluminato en el gel C-S-H. La unión de estas moléculas mediante enlaces covalentes contribuye a la resistencia y durabilidad del gel. Sin embargo, un exceso de agua puede resultar en una estructura de gel menos densa, comprometiendo la resistencia mecánica del concreto.

La relación entre el contenido de agua y la densidad del gel C-S-H es crucial para entender las propiedades mecánicas del concreto. Un contenido de agua adecuado favorece la compactación del gel, mejorando la resistencia del concreto. Por otro lado, un exceso de agua puede conducir a una estructura de gel menos compacta, afectando negativamente tanto la densidad como la resistencia del concreto.

Los estudios indican que variar el contenido de agua impacta directamente en la resistencia a la compresión y a la flexión del concreto. Un control preciso de la relación entre contenido de agua y densidad es esencial para diseñar mezclas de concreto con propiedades mecánicas específicas, garantizando la resistencia y durabilidad deseadas en las estructuras de concreto. Este enfoque permite no solo entender cómo la manipulación del agua afecta la densidad del gel C-S-H, sino también optimizar las propiedades mecánicas del concreto para aplicaciones específicas en la construcción (Y. Liu & Shi, 2010).

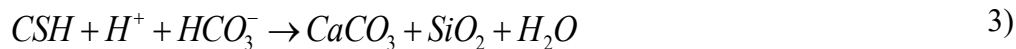
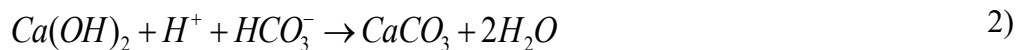
2.8 Efecto del CO₂

En el contexto de la industria petrolera, la presencia de CO₂ en los pozos petroleros puede tener un impacto considerable en el cemento utilizado en los revestimientos de pozos (casing). Este fenómeno se asocia comúnmente con la corrosión ácida inducida por el CO₂, que puede afectar adversamente las propiedades mecánicas y la integridad del cemento. A continuación, se aborda cómo este proceso puede deteriorar el cemento del casing (Churakov & Labbez, 2017):

Cuando el CO₂ se genera o está presente en el ambiente del pozo petrolero, puede reaccionar con el cemento al estar en contacto con el revestimiento. Esta reacción puede resultar en la acidificación del entorno circundante, lo que a su vez desencadena procesos de corrosión en el cemento del casing. La corrosión ácida puede disolver los componentes alcalinos del cemento, como el calcio, debilitando la estructura general del material.

Las moléculas de CO₂ penetran al cemento a través de los poros capilares no saturados de agua y posteriormente se disuelven en la fase acuosa contenida en esos poros. Los iones de CO₃²⁻ generados reaccionan con los iones de Ca²⁺ presentes formando carbonato de calcio (CaCO₃).

Las ecuaciones a continuación describen los procesos de reacción presentes en la oxidación por CO₂ del cemento en un medio hidratado, (Zhang et al. 2014):



La ecuación (1) describe la hidratación del CO₂, formando ácido carbónico y bicarbonato. Posteriormente, las ecuaciones (2), (3) y (4) muestran la transformación de los componentes bases del cemento Portland al reaccionar con componentes ácidos producidos por el CO₂. Puede verificarse que, en los tres procesos mencionados, se produce carbonato de calcio, es decir; se genera carbonización del cemento y el CaCO₃ precipita en la mayoría de los casos en forma de calcita, aunque en algunas condiciones puede generar también aragonito y vaterita (Galán, 2011).

La figura 3 muestra un esquema de la alteración de una muestra de cemento que ha sido

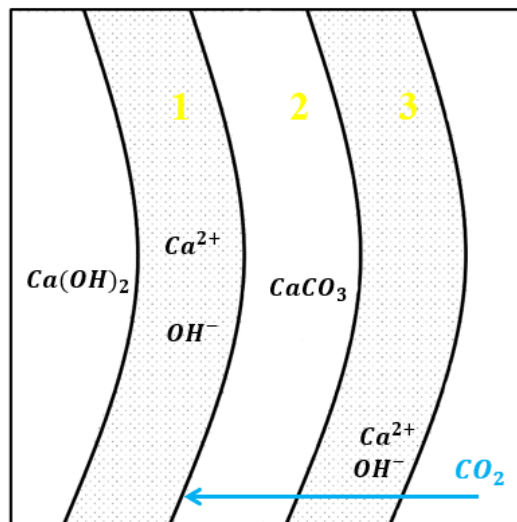


Figura 3. Bandas de Carbonización. Nota: Adaptado de: Kutchko, B. et al. (2007)

expuesta a CO₂. La banda 1 se caracteriza por ser enriquecida con iones de Ca²⁺ y OH⁻, la cual aporta los elementos para generar la banda 2, que se identifica por presentar un alto contenido de precipitados de carbonatos de calcio, lo que se traduce en una evidente disminución de la porosidad. Finalmente, se observa la banda 3, que está expuesta directamente al flujo de CO₂. A diferencia de las bandas 1 y 2, la banda 3 está conformada en su mayoría por C-S-H con presencia de algunos iones Ca²⁺ y OH⁻.

La degradación del cemento debida a la corrosión ácida tiene un impacto directo en las propiedades mecánicas del casing. La pérdida de componentes clave del cemento puede disminuir la resistencia y la capacidad de carga del revestimiento, comprometiendo su integridad estructural. Además, la formación de fisuras y porosidades inducidas por la corrosión ácida puede facilitar la migración de fluidos y gases no deseados a través del cemento, afectando la eficacia de las barreras de aislamiento(Chen & Gao, 2019). En este contexto, estimar la profundidad de la penetración de CO₂ a la matriz de cemento, permite comprender el grado de afectación causado.

Existen modelos matemáticos propuestos para predecir la profundidad de carbonatación del cemento (Tuutti, K., 1982; Bakker, R., 1994; Papadakis, V., 1991; Castellotte, et al., 2008; Parrott, L., 1994), los cuales coinciden en la manera de predecir ya que los modelos son basados en soluciones de la ecuación de difusión de la Ley de Fick, y cuyos resultados, son correspondientes con estudios experimentales (Nakano, K., et al., 2014; Kutchko, B. et al., 2007).

La correlación matemática básica de la ley de Fick es expresada así:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D \frac{\partial C}{\partial x} \right)$$

Donde C, representa la concentración de una sustancia, en este caso CO₂, D el coeficiente de difusión, t el tiempo y x la profundidad penetrada por la sustancia.

La resolución de esta ecuación varía dependiendo de las condiciones iniciales y de contorno que sean consideradas, generando diferentes modelos propuestos por autores, entre el que se destaca el modelo más sencillo al considerar que la profundidad de la carbonatación es proporcional a la raíz cuadrada del tiempo, esto es:

$$x = k * \sqrt{t}$$

Donde la profundidad de carbonatación (x) está medida en mm, k representa la velocidad de avance (mm/año^{1/2}) y t es el tiempo transcurrido medido en años.

La corrosión ácida inducida por el CO₂ en los pozos petroleros puede tener un impacto cuantificable en las propiedades mecánicas del cemento del casing. Aunque las tasas exactas de degradación varían según diversos factores, se pueden ofrecer estimaciones generales en términos porcentuales para ilustrar la magnitud del efecto.

En casos de corrosión ácida, se ha observado que la pérdida de resistencia mecánica del cemento puede oscilar entre el 10% y el 30%, dependiendo de la duración de la exposición al CO₂ y de las condiciones específicas del pozo. Esta pérdida de resistencia puede manifestarse a través de la disolución de componentes clave, como el calcio, y la generación de porosidades y fisuras en la matriz del cemento. La compresión, una propiedad mecánica fundamental del cemento, puede disminuir en alrededor del 15% al 25% debido a la corrosión ácida. Esto no solo afecta la capacidad de carga del casing, sino que también compromete la integridad estructural del revestimiento. En términos de módulo de elasticidad, que mide la rigidez del material, se ha observado una disminución del 10% al 20% en casos de corrosión ácida prolongada. Esta reducción puede indicar una mayor flexibilidad del cemento, lo que afecta su capacidad para soportar cargas externas y cambios ambientales (Moussa et al., 2020).

Estas estimaciones proporcionan una visión general del impacto porcentual en las propiedades mecánicas del cemento del casing debido a la corrosión ácida inducida por el CO₂. Es importante destacar que estos valores son aproximados y pueden variar según las condiciones específicas del pozo y las características del cemento utilizado. La mitigación de estos efectos requiere enfoques preventivos, como la selección de cementos resistentes a la corrosión y la

implementación de estrategias de monitoreo continuo para preservar la integridad del revestimiento y garantizar la seguridad de las operaciones petroleras.

2.9 Óxido de grafeno (OG)

El óxido de grafeno (OG) es un derivado del grafeno, que a su vez es una forma bidimensional de carbono organizada en una estructura de panal. El OG se obtiene mediante la oxidación del grafeno, introduciendo grupos funcionales oxigenados en su estructura. Estos grupos incluyen epóxidos, hidroxilos y carboxilos, que confieren propiedades específicas al OG (Long et al., 2018).

Químicamente, este material puede describirse como una capa de carbono con grupos oxigenados, lo que lo hace más reactivo que el grafeno puro.

La importancia del OG en la industria del cemento radica en sus propiedades mejoradas de refuerzo y en su capacidad para mejorar características cruciales del concreto. Cuando se incorpora OG al cemento, actúa como un refuerzo nanométrico debido a su estructura bidimensional única. En términos químicos, la interacción del OG con los componentes del cemento, como el silicato de calcio hidratado (C-S-H), mejora la cohesión y la resistencia mecánica de la matriz cementante.

La presencia de OG en la matriz del cemento puede representarse químicamente como una interacción entre los grupos oxigenados del OG y los componentes del cemento, fortaleciendo la estructura general. Esta interacción puede facilitarse mediante la formación de enlaces covalentes o mediante fuerzas de dispersión, dependiendo de la naturaleza específica del OG y del proceso de mezcla (Georgakilas et al., 2016).

En resumen, el OG, con su estructura única y grupos oxigenados, se convierte en un aditivo clave en la industria del cemento. Su incorporación puede fortalecer significativamente el

concreto, proporcionando una solución química innovadora para mejorar la resistencia y durabilidad de las estructuras de concreto en diversas aplicaciones constructivas.

2.10 Métodos de simulación molecular

Los métodos de simulación molecular son técnicas computacionales que permiten estudiar el comportamiento de moléculas y sistemas moleculares a escala atómica o molecular. Estos métodos se basan en la resolución numérica de las ecuaciones de la mecánica clásica o cuántica, que describen el movimiento de los átomos y moléculas (Jensen, 2017).

Los métodos de simulación molecular se utilizan en una amplia gama de aplicaciones, incluyendo la ciencia de materiales, la bioquímica, la física de superficies y la química cuántica. Estos métodos permiten estudiar el comportamiento de materiales a escala atómica, lo que puede ayudar a comprender sus propiedades y cómo estas propiedades cambian con las condiciones externas.

Existen dos tipos principales de métodos de simulación molecular:

- **Métodos clásicos:** Estos métodos se basan en la resolución numérica de las ecuaciones de la mecánica clásica, que describen el movimiento de los átomos y moléculas a escala macroscópica. Los métodos clásicos son más rápidos y eficientes que los métodos cuánticos, pero son menos precisos.
- **Métodos cuánticos:** Estos métodos se basan en la resolución numérica de las ecuaciones de la mecánica cuántica, que describen el movimiento de los átomos y moléculas a escala atómica. Los métodos cuánticos son más precisos que los métodos clásicos, pero son más lentos y requieren más recursos computacionales.

Algunos de los métodos de simulación molecular más utilizados son:

Dinámica molecular: Este método se utiliza para estudiar el movimiento de los átomos y moléculas en el tiempo. La dinámica molecular se basa en la resolución numérica de las ecuaciones de Newton, que describen el movimiento de las partículas bajo la influencia de fuerzas.

Métodos Monte Carlo: Estos métodos se utilizan para estudiar el comportamiento de sistemas moleculares en equilibrio. Los métodos Monte Carlo se basan en la generación de estados aleatorios del sistema y la evaluación de su probabilidad de ocurrencia.

Los métodos de simulación molecular son una herramienta poderosa que permite estudiar el comportamiento de moléculas y sistemas moleculares a escala atómica. Estos métodos se utilizan en una amplia gama de aplicaciones, y su importancia está creciendo a medida que los recursos computacionales se vuelven más potentes(Lewars, 2003).

2.10.1 Mecánica Molecular

La mecánica molecular representa una disciplina esencial dentro de la química teórica y la física, focalizada en la comprensión de sistemas moleculares mediante enfoques computacionales. Su objetivo primordial consiste en analizar y prever el comportamiento de moléculas y materiales a nivel molecular, desentrañando las complejas interacciones entre sus átomos y las fuerzas que gobiernan su dinámica.

En el núcleo de la mecánica molecular reside el modelado molecular, que emplea modelos matemáticos para representar la estructura y comportamiento de sistemas moleculares. Estos modelos detallan la disposición tridimensional de cada átomo, incorporando las diversas fuerzas intermoleculares como enlaces covalentes, iónicos, fuerzas de van der Waals y dipolo-dipolo(Jensen, 2017).

El marco conceptual de la mecánica molecular se sustenta en las ecuaciones de movimiento de Newton, fundamentales para prever la trayectoria de cada átomo en respuesta a las fuerzas

aplicadas. Los algoritmos de optimización desempeñan un papel crucial al ajustar las posiciones atómicas para alcanzar la estructura molecular más estable, minimizando así la energía potencial del sistema.

La aplicación práctica de la mecánica molecular se materializa a través de simulaciones computacionales, empleando métodos numéricos para resolver las ecuaciones de movimiento y simular el comportamiento dinámico de moléculas en diversas condiciones y escalas temporales. Este enfoque permite estudiar propiedades fundamentales como la geometría molecular, la energía de enlace, las frecuencias de vibración, transiciones de fase y reacciones químicas.

2.10.2 Campos de Fuerza

Los campos de fuerza en el contexto de la mecánica molecular se representan mediante ecuaciones que describen la energía potencial de un sistema molecular en función de las posiciones y orientaciones de los átomos que lo componen. Estas ecuaciones capturan las interacciones entre los átomos, modelando enlaces químicos, repulsiones y atracciones intermoleculares. Un ejemplo común de campo de fuerza es el potencial de Lennard-Jones, que describe la interacción atractiva y repulsiva entre átomos.

El potencial de Lennard-Jones se expresa mediante la siguiente ecuación:

$$V_{LJ}(r) = 4 \varepsilon \left[\left(\frac{\sigma}{r} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r} \right)^6 \right]$$

Donde $V_{LJ}(r)$ es la energía potencial entre dos átomos en función de la distancia r entre ellos, ε es la profundidad del pozo de potencial, que representa la fuerza de atracción entre los átomos, σ es el parámetro de distancia en la posición más baja del potencial, que influye en la repulsión entre átomos.

Esta ecuación describe una fuerza atractiva a largas distancias y una fuerza repulsiva a distancias cortas. La combinación de estas dos contribuciones modela de manera efectiva las interacciones de Van der Waals entre átomos.

Otro componente común en los campos de fuerza es el término de energía de enlace armónico, que modela los enlaces químicos como osciladores armónicos y se expresa como:

$$V_{\text{enlace}}(r) = \frac{1}{2}k(r - r_0)^2$$

donde: $V_{\text{enlace}}(r)$ es la energía de enlace en función de la longitud del enlace r , k es la constante de fuerza del enlace, r_0 es la longitud de enlace de equilibrio.

Estas ecuaciones son solo ejemplos, y la elección específica del campo de fuerza dependerá del sistema molecular bajo estudio y de los detalles de las interacciones que se deseen modelar. La mecánica molecular utiliza campos de fuerza para aproximar el comportamiento molecular y permitir simulaciones eficientes de sistemas complejos a escalas de tiempo macroscópicas (Hou, 2020a).

2.10.2.1 Campo de fuerza ClayFF

ClayFF destaca como un campo de fuerza altamente eficaz en la simulación molecular de minerales cristalinos hidratados y sus interfaces con fases líquidas. Su fundamentación se cimienta en una descripción iónico-covalente de las interacciones metal-oxígeno inherentes a las fases hidratadas. Este campo de fuerza ha demostrado su eficiencia al modelar con éxito las estructuras de materiales de óxido e hidróxido, así como las interacciones de especies acuosas con superficies de óxido e hidróxido. Además, ha sido aplicado con éxito para explorar el comportamiento del agua y las especies iónicas en las capas intermedias de las fases de estructura de capas, según evidencian investigaciones previas (Cygan et al., 2004a)

En términos específicos de la representación del agua, ClayFF adopta el modelo de carga puntual simple flexible (SPC) (Berendsen et al., 1987). Para los enlaces covalentes entre oxígeno e hidrógeno (O-H), el campo de fuerza utiliza una forma funcional conocida como potencial armónico. Esta elección estratégica permite a ClayFF equilibrar la simplicidad necesaria para evaluaciones eficientes con la suficiente sofisticación para reproducir con precisión las propiedades fundamentales de los sistemas hidratados en estudio.

La representación de los enlaces covalentes entre oxígeno e hidrógeno puede llevarse a cabo utilizando una función funcional llamada potencial armónico.

$$U_{ij}^{HA} = \frac{1}{2} K_a (r - r_0)^2$$

Donde r_0 representa la longitud óptima del enlace entre los tres átomos, y K_a es la constante de fuerza de estiramiento. Las interacciones metal-oxígeno se describen mediante un potencial simple de Lennard-Jones 12-6, que se combina con interacciones coulómbicas. La energía potencial total de interacción intermolecular en el sistema simulado se calcula sumando un término electrostático para todas las interacciones de Coulomb entre las cargas atómicas parciales, junto con un término de Lennard-Jones (12-6) que modela las interacciones dispersivas de Van der Waals a corta distancia.

$$U = \sum_{i,j} \left(\frac{q_i q_j}{4\pi\epsilon_0 r} + 4D_{ij} \left[\left(\frac{R_{ij}}{r_{ij}} \right)^{12} - \left(\frac{R_{ij}}{r_{ij}} \right)^6 \right] \right)$$

La distancia r_{ij} entre los átomos i y j , las cargas parciales q_i y q_j ubicadas en estos átomos, y los parámetros D_{ij} y R_{ij} del potencial de interacción de Lennard-Jones, junto con ϵ_0 como la permitividad dieléctrica del vacío, constituyen elementos cruciales en la formulación.

Los parámetros de interacción entre átomos de distintos tipos se determinan aplicando la regla de la media aritmética para los parámetros de distancia R_0 y de energía D_0 .

$$R_{0,ij} = \frac{1}{2}(R_{0,i} + R_{0,j})$$

$$D_{0,ij} = \sqrt{D_{0,i}D_{0,j}}$$

En la Tabla 1 se presentan las distintas especies atómicas del ClayFF junto con sus correspondientes cargas y parámetros no enlazantes.

Tabla 1 Parámetros no enlazantes del campo de fuerza ClayFF.

Especie	Carga (e-)	Do (Kcal/mol)	Ro (Å)
Hidrógeno de agua (Hw)	0.41	0	0
Hidrógeno de hidroxilo (Ho)	0.425	0	0
Oxígeno de agua (Ow)	-0.82	0.1554	3.5532
Oxígeno de hidroxilo (Oh)	-0.95	0.1554	3.5532
Oxígeno puente (OB)	-1.05	0.1554	3.5532
Oxígeno puente con sustitución octaédrica (OBOS)	-1.1808	0.1554	3.5532
Silicio (Si)	2.1	1.84E-06	3.7064
Calcio Octaédrico (CaO)	1.36	5.03E-06	6.2484
Ion de calcio (CaW)	2	0.047	3.2237

La Tabla 2 se muestran los parámetros de enlace asociados a las moléculas de agua. Esto se debe a que, como se destacó anteriormente, este campo de fuerza carece de enlaces específicos y, por lo tanto, las moléculas de agua son abordadas mediante el campo de fuerza SPC (Fuentes-Azcatl et al., 2014).

Tabla 2 Parámetros de enlace del campo de fuerza SPC.

Especie i	Especie j	k1 (kcal/mol Å ²)	ro (Å)
Ow	Hw	554.1349	1
Oh	Ho	554.1349	1

En la Tabla 3 se muestran los parámetros de flexión correspondientes a la molécula de agua.

Tabla 3 Parámetros de ángulo del campo de fuerza ClayFF.

Especie i	Especie j	Especie k	k ₂ (kcal/mol rad ²)	θ ₀ (deg)
Hw	Ow	Hw	45.7696	109.47

2.10.2.2 Campo de fuerza OPLS-AA

El campo de fuerza OPLS-AA, aplicado al óxido de grafeno, utiliza ecuaciones para describir las interacciones atómicas y modelar adecuadamente sus propiedades. Para los enlaces covalentes, se emplea un término de energía potencial armónica, que se expresa mediante la siguiente ecuación:

$$U_{\text{enlace}} = \frac{1}{2} k_b (r - r_0)^2$$

donde U_{enlace} es la energía potencial del enlace, k_b es la constante de fuerza del enlace, r es la longitud del enlace real, y r_0 es la longitud de enlace ideal.

Para los ángulos entre enlaces, se utiliza un término que describe la energía potencial asociada con las deformaciones angulares, expresado por la ecuación:

$$U_{\text{ángulo}} = \frac{1}{2} k_{\theta} (\theta - \theta_0)^2$$

donde $U_{\text{ángulo}}$ es la energía potencial del ángulo, k_{θ} es la constante de fuerza del ángulo, θ es el ángulo real entre los enlaces, y θ_0 es el ángulo ideal.

En cuanto a las interacciones no enlazantes, como las fuerzas de Van der Waals y las interacciones electrostáticas, se emplean potenciales de Lennard-Jones y Coulomb, respectivamente. La ecuación para el potencial de Lennard-Jones es:

$$U_{\text{LJ}} = 4\epsilon \left[\left(\frac{\sigma}{r} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r} \right)^6 \right]$$

donde U_{LJ} es la energía potencial de Lennard-Jones, ϵ es la profundidad del pozo de energía, σ es el parámetro de distancia mínimo, y r es la distancia entre los átomos.

La energía potencial Coulombiana se describe mediante la ecuación:

$$U_{\text{Coulomb}} = \frac{q_i q_j}{4\pi\epsilon_0 r}$$

donde U_{Coulomb} es la energía potencial Coulombiana, q_i y q_j son las cargas de los átomos, ϵ_0 es la permitividad del vacío, y r es la distancia entre las cargas.

Para modelar las interacciones rotacionales alrededor de enlaces diédricos en el óxido de grafeno, el campo de fuerza OPLS-AA utiliza términos de energía potencial asociados con ángulos diédricos. La energía potencial diédrica se expresa mediante la siguiente ecuación:

$$U_{\text{diédrica}} = \frac{1}{2} V_n [1 + \cos(n\phi - \gamma)]$$

donde $U_{\text{diédrica}}$ es la energía potencial diédrica, V_n es la amplitud de la barrera de energía, n es el número de términos en la serie de Fourier, ϕ es el ángulo diédrico real, y γ es la fase.

Esta ecuación describe la energía asociada con las rotaciones alrededor de enlaces diédricos específicos en el óxido de grafeno. La incorporación de términos diédricos en el campo de fuerza OPLS-AA permite capturar las restricciones geométricas y las energías asociadas con las conformaciones diédricas específicas del sistema molecular en estudio (Siu et al., 2012).

2.10.2.3 Campo de fuerza EPM2

El campo de fuerza EPM2, es un modelo tricuerpo que considera las interacciones entre tres moléculas, consta de tres componentes esenciales. En primer lugar, el potencial Coulomb describe la interacción electrostática entre las cargas eléctricas de las moléculas, siendo proporcional al producto de las cargas e inversamente proporcional al cuadrado de la distancia entre ellas. En segundo lugar, el potencial de dispersión de Londres aborda la interacción atractiva

entre moléculas debido a las fluctuaciones de los campos eléctricos, siendo proporcional al cuadrado del producto de las polarizabilidades moleculares e inversamente proporcional al cuarto de la distancia entre ellas. Por último, el potencial de intercambio de Pauli describe la interacción repulsiva entre moléculas debido al principio de exclusión de Pauli, siendo proporcional al producto de las densidades electrónicas moleculares e inversamente proporcional al cuadrado de la distancia entre ellas. Este enfoque tricuerpo integral proporciona un marco detallado para representar las complejas interacciones entre moléculas en el sistema simulado (Kupgan et al., 2018).

2.10.3 Minimización de energía

La minimización de energía en dinámica molecular es un procedimiento crucial para determinar la configuración más estable y de menor energía potencial de un sistema molecular. Este proceso implica la iterativa adaptación de las coordenadas atómicas con el objetivo de alcanzar un estado de equilibrio. Entre los algoritmos utilizados para esta minimización se encuentra el gradiente conjugado, una técnica eficiente que busca el mínimo de la función de energía potencial.

El algoritmo de gradiente conjugado se basa en la dirección de descenso (d_k), que se calcula utilizando el gradiente de la energía potencial en esa iteración, junto con un término conjugado que garantiza la eficacia del descenso. La dirección de descenso se actualiza en cada iteración para evitar oscilaciones innecesarias durante la minimización. La longitud de paso (α_k), que determina cuánto avanzar en la dirección de descenso, se calcula considerando la conjugación de direcciones y la matriz Hessiana aproximada.

$$d_k = -\nabla E_k + \beta_k d_{k-1}$$

$$\alpha_k = \frac{\nabla E_k \cdot \nabla E_k}{\nabla E_k \cdot H_k \cdot \nabla E_k}$$

Estas ecuaciones describen el proceso iterativo mediante el cual las coordenadas atómicas son ajustadas de manera eficiente para alcanzar el mínimo de la energía potencial en dinámica molecular.

2.10.4 Dinámica molecular (DM)

La dinámica molecular es una técnica de simulación en la que modelamos el movimiento de átomos y moléculas a lo largo del tiempo, resolviendo las ecuaciones de movimiento de Newton. Este enfoque nos permite entender cómo se comportan y cambian los sistemas moleculares en condiciones específicas.

En el ámbito de la dinámica molecular, las condiciones de frontera son esenciales, ya que determinan cómo interactúa nuestro sistema con su entorno simulado. Por ejemplo, las condiciones periódicas de frontera nos permiten simular sistemas infinitos, lo que mejora la representación de sistemas más grandes.

Los ensambles termodinámicos son conjuntos de sistemas que comparten ciertas propiedades macroscópicas, como la temperatura y la presión. En nuestra simulación, seleccionamos un ensamble específico para replicar condiciones experimentales reales, como mantener constante el número de partículas, el volumen y la temperatura.

En cuanto a los algoritmos, utilizamos el algoritmo de Verlet para integrar las ecuaciones de movimiento. Este método numérico es conocido por su precisión y estabilidad a lo largo del tiempo, asegurando que nuestras simulaciones sean confiables y reflejen fielmente el comportamiento físico del sistema. La dinámica molecular implica resolver las ecuaciones de movimiento de Newton para predecir cómo las partículas (átomos o moléculas) de un sistema se

mueven en función del tiempo. Estas ecuaciones de movimiento son fundamentales en física y se expresan para cada partícula i como:

$$m_i \frac{d^2 r_i}{dt^2} = F_i$$

Dónde: m_i es la masa de la partícula i , r_i es su posición en el espacio tridimensional, t es el tiempo, y F_i es la fuerza neta actuando sobre la partícula i .

La fuerza neta, F_i , se obtiene a partir del gradiente negativo de la energía potencial del sistema en relación con las coordenadas de todas las partículas. Matemáticamente, esto se expresa como:

$$F_i = -\nabla_i U(r_1, r_2, \dots, r_N)$$

Donde U es la energía potencial del sistema y ∇_i representa el operador gradiente respecto a las coordenadas de la partícula i .

La integración numérica de estas ecuaciones de movimiento se realiza utilizando algoritmos como el de Verlet, que calcula las nuevas posiciones y velocidades en incrementos discretos de tiempo. Este proceso iterativo nos permite simular la evolución temporal del sistema y entender su comportamiento dinámico.

2.10.4.1 Topología

La topología en dinámica molecular se refiere a la representación de la conectividad entre átomos en una molécula. Esta descripción detallada incluye información sobre enlaces covalentes, ángulos de enlace y longitudes de enlace, que son cruciales para definir la estructura tridimensional de la molécula. En el contexto de simulaciones de dinámica molecular, donde se modelan las interacciones entre átomos y moléculas a lo largo del tiempo, la topología molecular sirve como la base para calcular fuerzas y energías asociadas con estas interacciones. Es esencial para

comprender y predecir el comportamiento dinámico de las moléculas en un sistema, ya que proporciona los parámetros necesarios para aplicar principios de mecánica molecular en el estudio de la evolución temporal de las estructuras moleculares. En resumen, la topología molecular desempeña un papel fundamental en la simulación y comprensión de las dinámicas moleculares al proporcionar información clave sobre la conectividad atómica en una molécula dada.

2.10.4.2 Condiciones de frontera

Las condiciones de frontera son parámetros críticos que definen la extensión y la naturaleza del sistema bajo estudio. Estas condiciones se aplican a los límites del espacio simulado y son esenciales para evitar efectos indeseados relacionados con el tamaño finito de la caja de simulación. Entre las condiciones de frontera comunes se encuentran las condiciones de contorno periódicas, donde las partículas que salen por un lado de la caja reaparecen en el lado opuesto, creando un entorno simulado infinito. Esto es crucial para evitar artefactos de borde que podrían afectar la representación precisa de las propiedades del sistema. Otras condiciones de frontera pueden incluir reflejo, absorción o condiciones aisladas, según la naturaleza del sistema y los objetivos de la simulación. En resumen, las condiciones de frontera son elementos esenciales en las simulaciones de dinámica molecular que influyen significativamente en la validez y la interpretación de los resultados obtenidos.

2.10.4.3 Ensamblés termodinámicos

La teoría termodinámica estadística utiliza ensambles termodinámicos como herramientas fundamentales para comprender el comportamiento de sistemas a nivel molecular. Estos ensambles, como el canónico, microcanónico y gran canónico, se aplican en diferentes situaciones. El ensamble microcanónico describe sistemas aislados con energía constante, el canónico se usa

en sistemas en contacto térmico a temperatura constante, y el gran canónico se aplica cuando hay intercambio de partículas y energía con un reservorio térmico y químico.

Estos ensambles establecen una conexión crucial entre las propiedades macroscópicas y microscópicas de las partículas en un sistema. A través de la teoría termodinámica estadística, permiten calcular probabilidades y distribuciones de energía, caracterizando así el estado termodinámico de un sistema. En resumen, los ensambles termodinámicos son herramientas clave para analizar el comportamiento estadístico de sistemas complejos, sirviendo como un puente entre la macroscopía y la microscopía en el contexto de la termodinámica.

En cuanto a los ensambles específicos, como el NVT (Número de partículas, Volumen, Temperatura), se utiliza para simular sistemas a temperatura constante, mientras que el NPT (Número de partículas, Presión, Temperatura) es útil para controlar tanto la temperatura como la presión en sistemas, como en estudios de equilibrio de fases. Por otro lado, el NVE (Número de partículas, Volumen, Energía) conserva la energía total en sistemas aislados y es común en simulaciones de dinámica molecular para estudiar la evolución temporal de sistemas cerrados. La elección del ensamble adecuado depende de las condiciones específicas del sistema en estudio.

3. Objetivos

3.1 Objetivo General

Evaluar el efecto de nanomateriales y aditivos en el mejoramiento de la resistencia del cemento Portland al ataque químico del CO₂ mediante técnicas de simulación en dinámica molecular.

3.2 Objetivos Específicos

- Analizar los efectos generados en el cemento Portland a escala macroscópica y microscópica producto de la interacción con el CO₂.
- Determinar los nanomateriales y aditivos adecuados para mejorar la resistencia del cemento Portland al ataque químico del CO₂.
- Estudiar el efecto del CO₂ en la integridad del cemento Portland por medio de técnicas de modelado molecular.
- Evaluar el efecto de nanomateriales y aditivos sobre la resistencia del cemento al ataque químico del CO₂ mediante técnicas de simulación en dinámica molecular.

4. Metodología

A continuación se detallará el proceso de construcción de los modelos de los geles C-S-H, CO₂ y OG, así como los parámetros y reglas utilizados para cada una de las simulaciones. Se describirá paso a paso cómo se llevaron a cabo los modelos y las consideraciones que fueron tenidas en cuenta.

4.1 Construcción de modelos de gel C-S-H

La obtención de los modelos de gel C-S-H se llevó a cabo mediante la manipulación del mineral análogo tobermorita 14A como punto de partida. Con el propósito de obtener un modelo más representativo del gel C-S-H, se procedió a realizar modificaciones estructurales específicas.

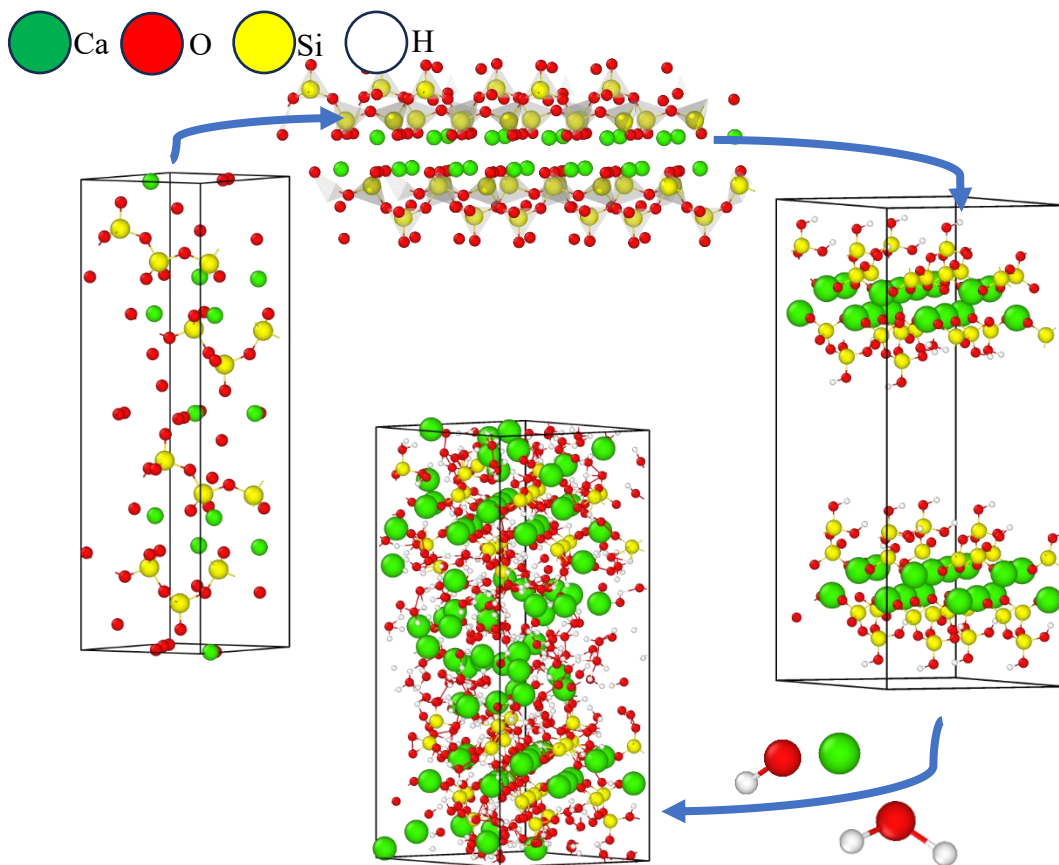


Figura 4 Proceso de construcción de los modelos de gel C-S-H.

Este modelo se caracteriza por su disposición tipo sándwich, donde la región superior exhibe la presencia de tetraedros de silicio y octaedros de calcio, mientras que en la parte intermedia se encuentran moléculas de hidróxido de calcio y agua.

El proceso de construcción de este modelo como se muestra en la Figura 4 implicó, en primer lugar, la modificación de la estructura de la tobermorita para adaptarla a las características deseadas. Posteriormente, se llevó a cabo la creación de un espacio interlaminar, crucial para la conformación de la estructura final del gel C-S-H. Finalmente, se procedió a la adición de moléculas de agua e hidróxido de calcio en el espacio interlaminar, culminando así con la creación del modelo de gel C-S-H de interés. Este enfoque meticuloso garantizó la representación adecuada de las características fundamentales de los geles C-S-H en el contexto de la simulación.

4.2 Construcción de modelos de gel C-S-H/CO₂

La incorporación de las moléculas de CO₂ se llevó a cabo después de obtener y relajar las estructuras de gel C-S-H. Este paso adicional fue necesario debido a que la estructura resultante exhibía propiedades porosas. La introducción controlada de las moléculas de CO₂ se realizó

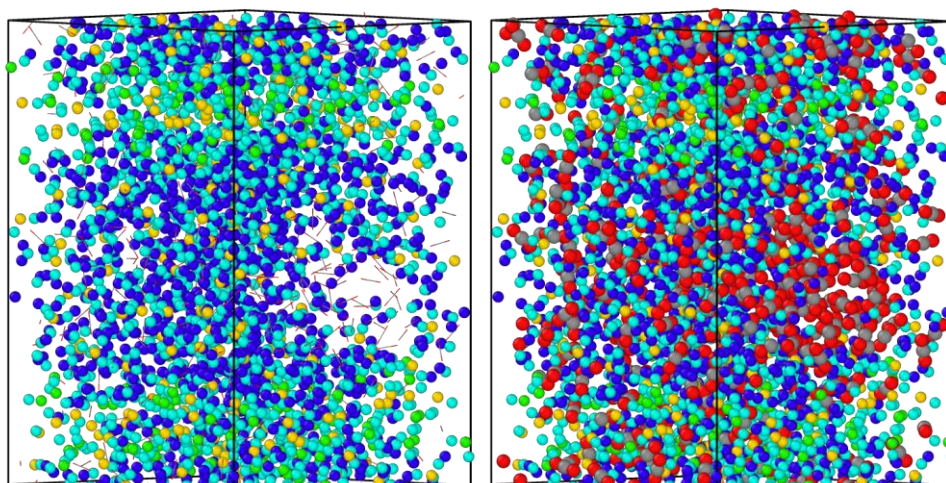


Figura 5 Método de inclusión de moléculas de CO₂ en el gel C-S-H.

mediante la implementación del Método Monte Carlo de sesgo configuracional, focalizándose

especialmente en las áreas vacías de los poros identificados en la estructura del gel C-S-H como se observa en la Figura 5. Este enfoque estratégico permitió gestionar de manera precisa la inclusión de las moléculas de CO₂ en las regiones porosas, garantizando así una representación más fiel y detallada de las interacciones moleculares en el sistema simulado.

4.3 Construcción de modelos de gel C-S-H/CO₂/OG

En el proceso de construcción de las láminas de óxido de grafeno, se implementó el algoritmo *make-graphitics* (Sinclair, 2019). Este método posibilitó la creación de láminas rectangulares de óxido de grafeno con dimensiones de 4 nm x 4 nm (Figura 6), al mismo tiempo que permitió ajustar la proporción de carbono a oxígeno (C/O) a un valor específico de 2.0.

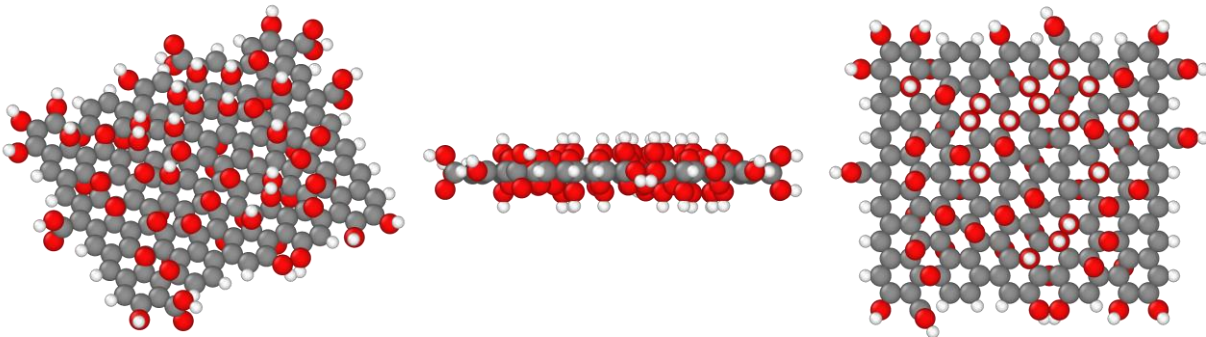


Figura 6 Lamina de Óxido de grafeno obtenida con *make-graphitics*.

Seguidamente, se llevó a cabo construcción del gel C-S-H con láminas de óxido de grafeno (OG). En este caso, se implementó la creación de una supercelda ampliada con dimensiones de 4x4x4 antes de la inclusión de las moléculas de agua e hidróxido de calcio. Esta estrategia se diseñó con el objetivo de proporcionar un espacio interlaminar adecuado para acomodar la lámina de óxido de grafeno de manera óptima dentro de la estructura del gel. Esta supercelda permitió no

solo asegurar la correcta inserción de las láminas, sino también ofrecer una perspectiva más amplia de la interacción entre el óxido de grafeno y el gel C-S-H.

Posteriormente, se procedió a la inclusión cuidadosa de las moléculas de agua e hidróxido de calcio, consolidando así la integración exitosa de las láminas de óxido de grafeno en la estructura global del gel C-S-H.

4.4 Detalles de simulación

Las simulaciones se llevaron a cabo empleando el software LAMMPS, usando un paso de tiempo de 1.0 fs y el método Particle-Particle-Particle-Mesh (PPPM) para la corrección de la energía de coulomb a largo alcance con una precisión de 1×10^{-4} . dividiéndose en tres etapas fundamentales. En la primera fase, se procedió a la generación de modelos de gel C-S-H con diversas relaciones de Ca/Si (1.7, 1.8 y 1.9) y W/Si (1.0 ... 2.0). La segunda etapa consistió en la simulación con la inclusión de moléculas de CO₂, mientras que la última se enfocó en la incorporación de láminas de óxido de grafeno (OG).

Para la primera fase, se implementó un proceso de recocido simulado, elevando la estructura a una temperatura de 1000 K durante 7 ps, manteniéndola a esta temperatura durante otros 7 ps. Posteriormente, se permitió que la estructura se enfriara durante 28 ps, con el objetivo de obtener una configuración desordenada y semejante al gel C-S-H. Finalmente, se llevó a cabo una etapa de producción durante 7 ns para permitir que la estructura alcanzara condiciones de equilibrio, asegurando así la estabilidad y coherencia del sistema simulado. Este enfoque secuencial proporciona una comprensión detallada de la evolución de la estructura molecular a lo largo de las diferentes fases de la simulación.

4.5 Campos de fuerza

En la descripción de la estructura molecular, se utilizó el campo de fuerza ClayFF para modelar las interacciones en todos los componentes del gel C-S-H. Para las moléculas de CO₂, se recurrió al campo de fuerza EPM2, reconocido por su eficacia en la representación detallada del dióxido de carbono. En cuanto a las láminas de óxido de grafeno, se aplicó el campo de fuerza OPLS-AA, específicamente diseñado para capturar las características de las estructuras carbonáceas. A fin de asegurar la coherencia en las interacciones entre los diversos componentes, se implementaron reglas de combinación aritméticas.

4.6 Cálculo de propiedades mecánicas

La determinación de los módulos de elasticidad, tales como el módulo de Bulk, Shear, Young y la relación de Poisson, se lleva a cabo mediante un enfoque detallado.

Primero, se implementan ensambles NPT para mantener constante la presión y la temperatura del sistema, lo que posibilita la aplicación de deformaciones controladas. Estas deformaciones se aplican a lo largo de las seis componentes del tensor de presión, dividiéndose en dos grupos: las componentes principales (xx, yy, zz), asociadas con deformaciones uniaxiales, y las componentes secundarias (xy, xz, yz), relacionadas con deformaciones biaxiales.

A partir de estas deformaciones, se calculan las componentes del tensor de elasticidad, una matriz que describe la relación entre las deformaciones aplicadas y las tensiones resultantes. Esta matriz de elasticidad simétrica se utiliza para construir una matriz que contiene los módulos de elasticidad y la relación de Poisson.

El módulo de Bulk, que mide la resistencia del material a la compresión, se obtiene a partir de la componente volumétrica del tensor de elasticidad. Por otro lado, el módulo de Shear, que

cuantifica la resistencia del material a la cizalladura, se calcula a partir de las componentes cortantes del tensor de elasticidad.

El módulo de Young, que evalúa la resistencia del material a la tensión, se obtiene a partir de las componentes uniaxiales del tensor de elasticidad. Finalmente, la relación de Poisson, que mide la compresibilidad del material, se extrae de la diagonal secundaria de la matriz de elasticidad, proporcionando una medida de la relación entre la disminución del volumen unitario y la deformación axial. Este enfoque integral permite una evaluación detallada de las propiedades elásticas del sistema en estudio mediante la dinámica molecular.

5. Análisis de resultados

En el presente apartado, se exponen los resultados derivados de la evaluación del impacto ocasionado por la incorporación de dióxido de carbono en la matriz de gel C-S-H, constituyendo un elemento central en el desarrollo de esta tesis. Esta sección se estructura en una fase inicial, enfocada en la evaluación del sistema durante la etapa de preparación mediante un riguroso proceso de recocido simulado. Posteriormente, se desglosan etapas sucesivas que detallan los resultados alcanzados para el gel C-S-H, considerando tanto la presencia como la ausencia de CO₂, y evaluando, además, la influencia del óxido de grafeno en el comportamiento del sistema.

5.1 Evolución temporal de los modelos

Con el objetivo de evaluar las condiciones de equilibrio y comprender el comportamiento del sistema, la Figura 7 muestra perfiles temporales de energía potencial, cinética, densidad y volumen a lo largo de los 7 ns de simulación. Estos perfiles ofrecen una representación visual detallada de las variaciones en cada propiedad durante el transcurso de la simulación.

Es importante destacar que durante los primeros picosegundos de la simulación se aprecian alteraciones en los perfiles, directamente asociadas a los cambios en los ensambles durante el proceso de recocido simulado. Estas variaciones iniciales son fundamentales para comprender la estabilización del sistema a lo largo del tiempo simulado.

Además, los perfiles presentan las variaciones específicas para el modelo de gel C-S-H con una relación Ca/Si de 1.8, y se observa que los comportamientos son consistentes entre los diferentes sistemas analizados.

En relación con la energía potencial y cinética, se nota un aumento conforme crece el tamaño o el contenido de moléculas de agua. Este incremento en la energía se atribuye a la mayor complejidad del sistema, donde un mayor número de moléculas y una interacción más extensa entre ellas resultan en un incremento de la energía total del sistema.

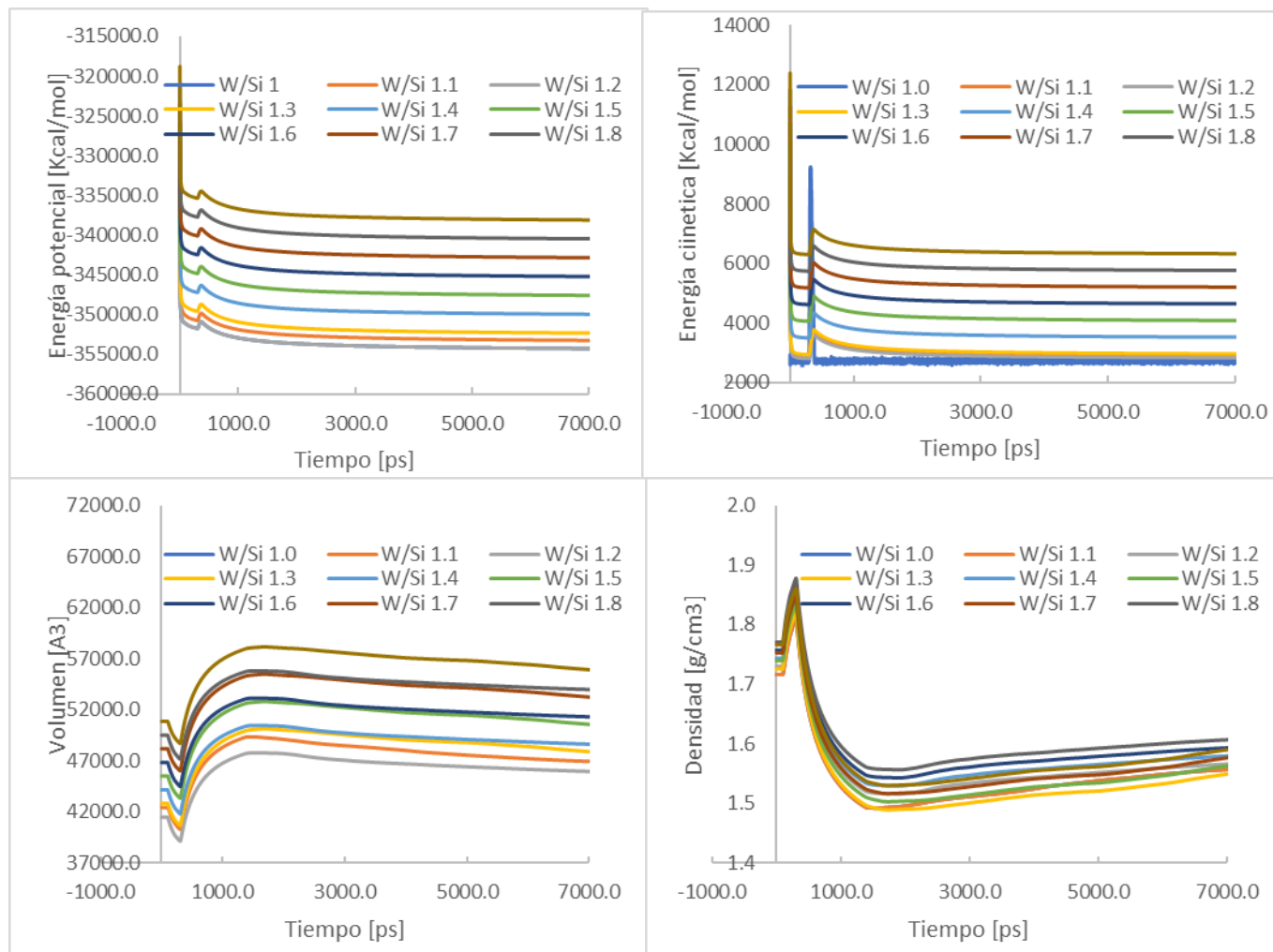


Figura 7 Evolución temporal de los perfiles de Energía potencial, energía cinética, volumen y densidad.

En contraste, los perfiles de densidad y volumen revelan una relación inversamente proporcional, indicando que a medida que la densidad aumenta, el volumen tiende a disminuir y viceversa.

De igual manera, las densidades registradas al considerar diversas relaciones de agua a sólidos (W/S) se sitúan en un rango estrecho, específicamente entre 1.5 y 1.6. Este intervalo contrasta de manera notable con los valores consignados en la literatura, los cuales suelen oscilar entre 1.7 y 2.6. La disparidad observada se atribuye principalmente a las variaciones en las relaciones Ca/Si. En términos generales, las densidades del C-S-H exhiben un aumento proporcional a la relación Ca/Si, ya que una mayor proporción de calcio conduce a la formación de una estructura más compacta.

Además de los perfiles mostrados para la relación Ca/Si de 1.8, se realizaron simulaciones similares para las relaciones Ca/Si de 1.7 y 1.9. Los resultados obtenidos fueron muy similares a los observados para la relación Ca/Si de 1.8, con aumentos similares en la energía potencial y cinética a medida que aumentaba el tamaño o el contenido de moléculas de agua. También se observó una relación inversamente proporcional entre la densidad y el volumen.

5.2 Estructura molecular de los modelos

A continuación, se evalúan los cambios en la estructura y composición del gel C-S-H a lo largo de los 7 ns de simulación, se examinan las transformaciones en la estructura y composición

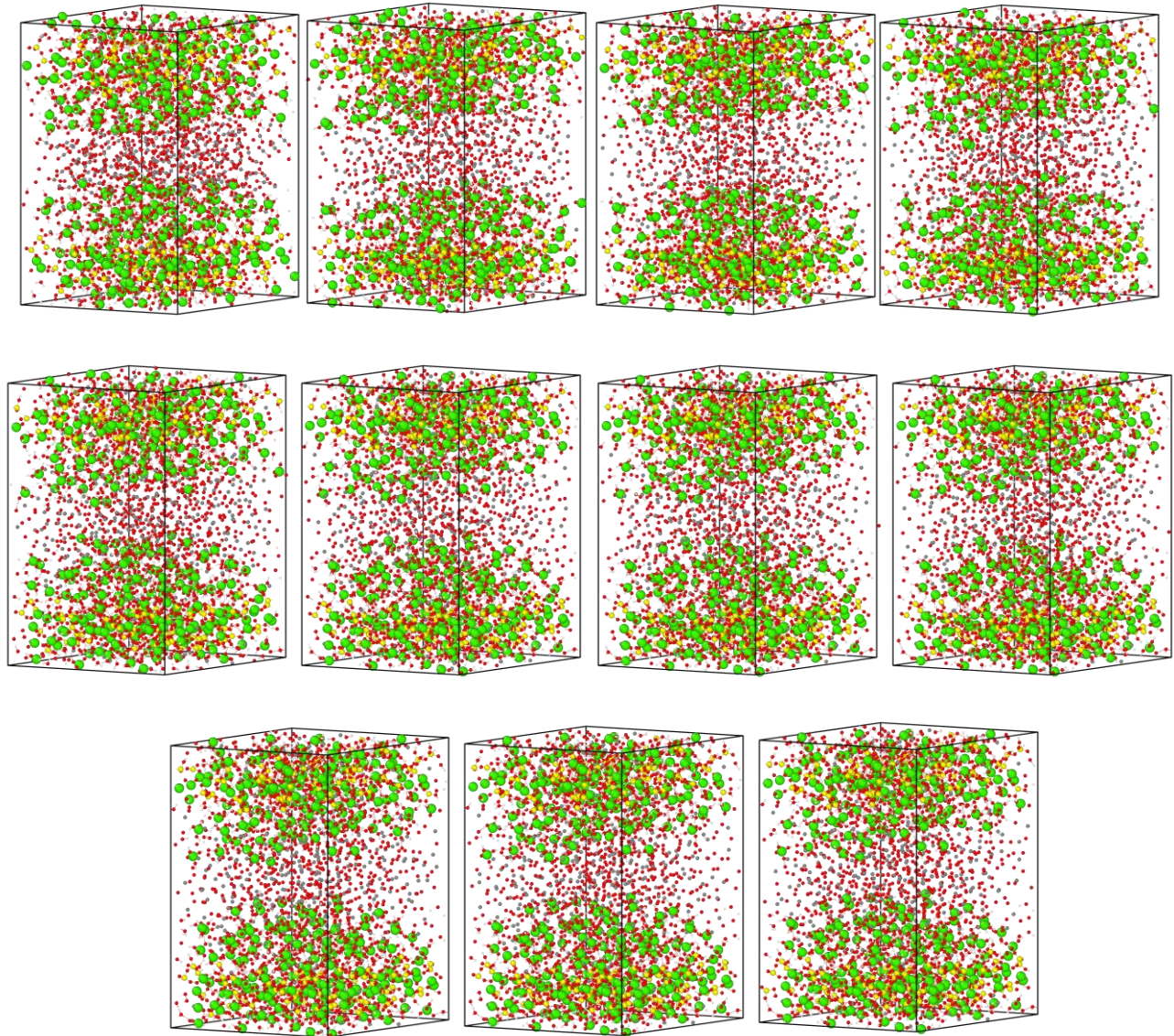


Figura 8 Snapshots del modelo de gel C-S-H durante los 7 ns de simulación.

del gel C-S-H. Las cadenas fundamentales de silicio tetraédrico y calcio octaédrico, constituyentes básicos del gel C-S-H, experimentan deformaciones durante el proceso. Estas deformaciones resultan de la interacción dinámica entre las cadenas y las moléculas de agua presentes en el gel

C-S-H. Las moléculas de agua tienen la capacidad de unirse a las cadenas de silicio tetraédrico y calcio octaédrico en diversos puntos. Estas uniones inducen cambios en la configuración de las cadenas, generando curvaturas, alineaciones distintas y la ocasional separación o fusión entre ellas. En la imagen, se ilustra cómo estas deformaciones se manifiestan en una variedad de formas, revelando la complejidad de las interacciones moleculares.

Asimismo, se observa que las moléculas situadas en las interláminas, las regiones entre las cadenas de silicio tetraédrico y calcio octaédrico experimentan un proceso de difusión a lo largo del tiempo. Este fenómeno se atribuye al movimiento aleatorio de las moléculas, permitiéndoles desplazarse entre regiones y modificar la composición química del gel C-S-H. La dinámica de estas interacciones y movimientos moleculares contribuye a una comprensión más profunda de la evolución del gel C-S-H en el transcurso de la simulación. La figura presenta el mismo modelo, pero sin la presencia de átomos de Ca, O y Si del gel C-S-H, permitiendo así una visualización más clara de los cambios y la difusión de las moléculas de agua durante la simulación.

En los primeros instantes de la simulación representados en la imagen, las moléculas de agua exhiben una distribución uniforme en el espacio. A medida que progresa la simulación, se observa un cambio significativo: las moléculas de agua tienden a concentrarse en las regiones donde hay más espacio disponible. Este fenómeno se atribuye a la naturaleza repulsiva de las moléculas de agua entre sí, lo que genera un movimiento hacia las áreas menos densas del sistema. La visualización sin los átomos de Ca, O y Si facilita la observación detallada de este proceso de difusión y sus efectos en la distribución espacial de las moléculas de agua en el gel C-S-H.

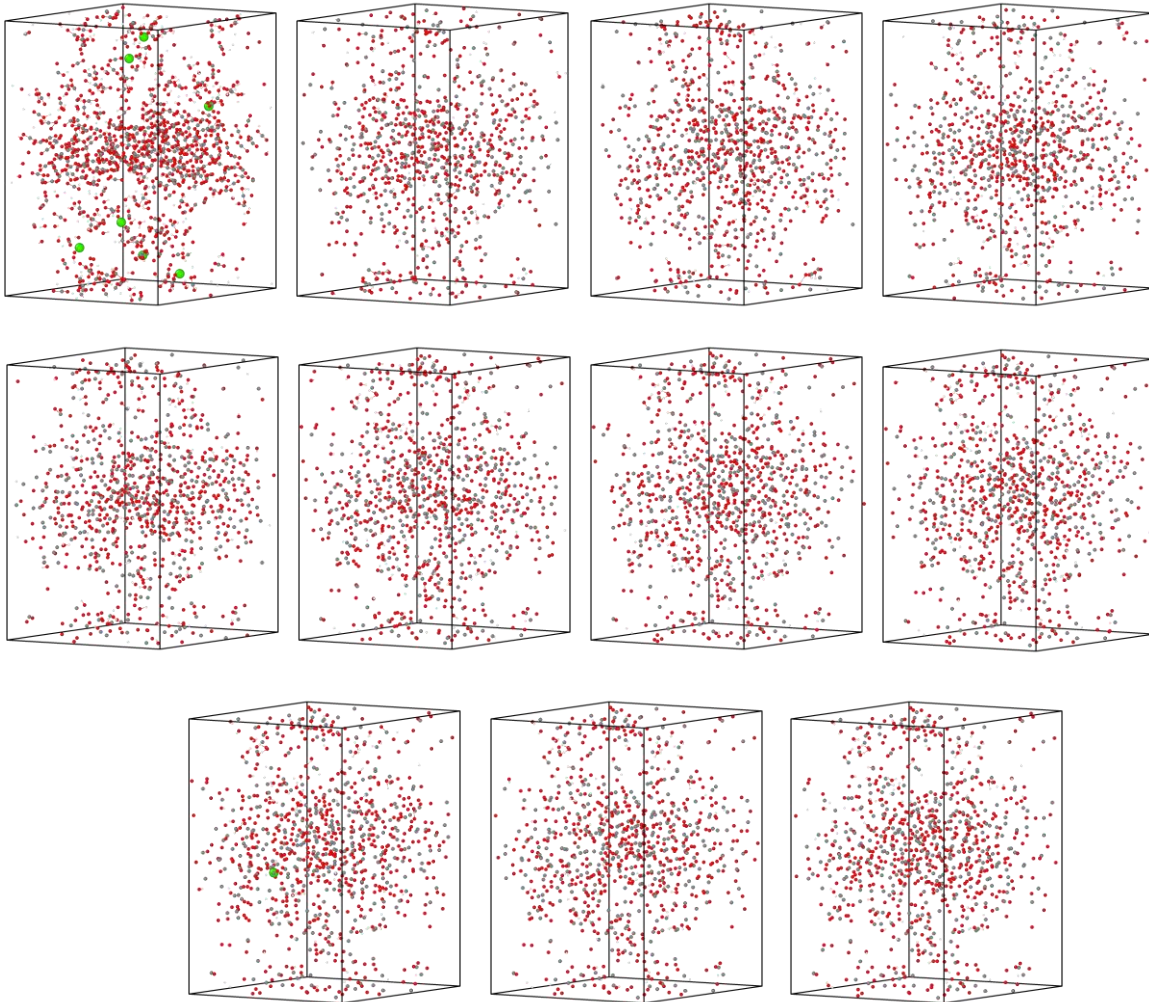


Figura 9 Snapshots del modelo de gel C-S-H durante los 7 ns de simulación sin los átomos del gel C-S-H.

Es importante destacar que esta concentración diferencial de moléculas de agua no solo impacta la distribución espacial, sino que también tiene efectos significativos sobre las cadenas de SiO₂ y los bloques de calcio octaédrico. La difusión de las moléculas de agua influye en la flexibilidad y configuración de estas cadenas, induciendo cambios en su estructura y conformación a lo largo del tiempo simulado. Estos efectos son fundamentales para comprender cómo la

presencia dinámica de moléculas de agua modifica la arquitectura interna del gel C-S-H, desencadenando adaptaciones y transformaciones en su estructura molecular.

En este análisis, se examinan los cambios en la estructura y composición del gel C-S-H en presencia exclusiva de CO₂ durante 1 ns de simulación, representados en cuatro snapshots. Las cadenas fundamentales de silicio tetraédrico y calcio octaédrico, constituyentes básicos del gel C-S-H, experimentan deformaciones dinámicas debido a la interacción con las moléculas de CO₂ presentes en el sistema. Estas moléculas de CO₂ tienen la capacidad de vincularse a las cadenas de silicio tetraédrico y calcio octaédrico, generando cambios en la configuración de las cadenas, tales como curvaturas, alineaciones distintas y, eventualmente, separación o fusión entre ellas. La imagen ilustra visualmente cómo estas deformaciones se manifiestan en diversas formas, resaltando la complejidad de las interacciones moleculares en el gel C-S-H en presencia de CO₂.

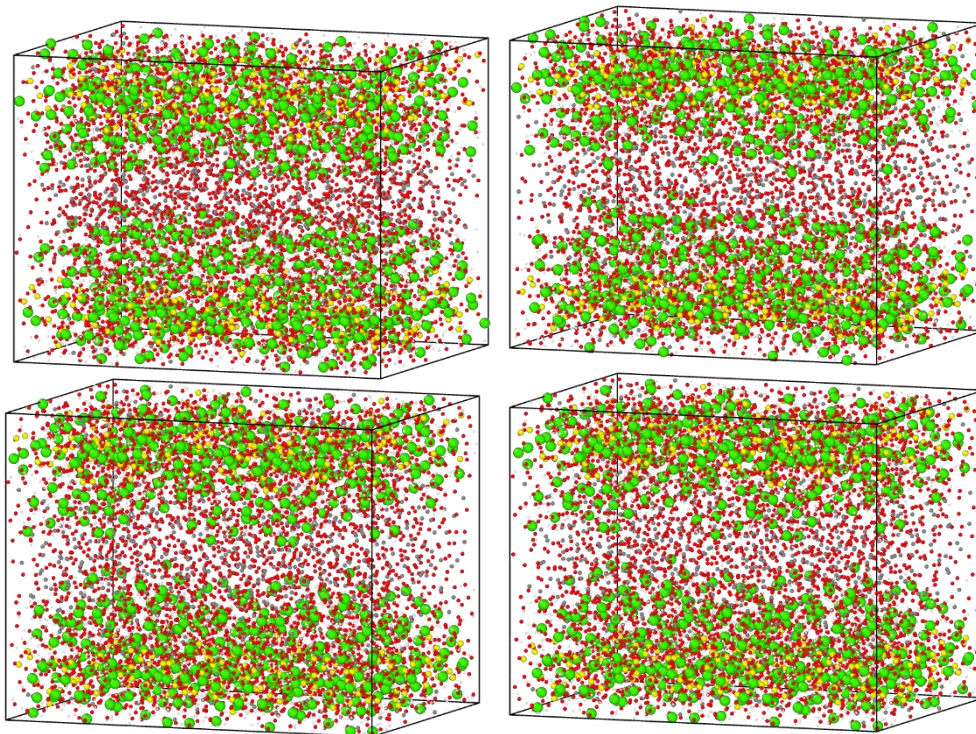


Figura 10 Snapshots del modelo de gel C-S-H con CO₂ durante los 1 ns de simulación.

Además, se observa que las moléculas situadas en las interláminas, las regiones entre las cadenas de silicio tetraédrico y calcio octaédrico, experimentan un proceso de difusión a lo largo del tiempo. Este fenómeno se atribuye al movimiento aleatorio de las moléculas de CO₂, permitiéndoles desplazarse entre regiones y modificar la composición química del gel C-S-H

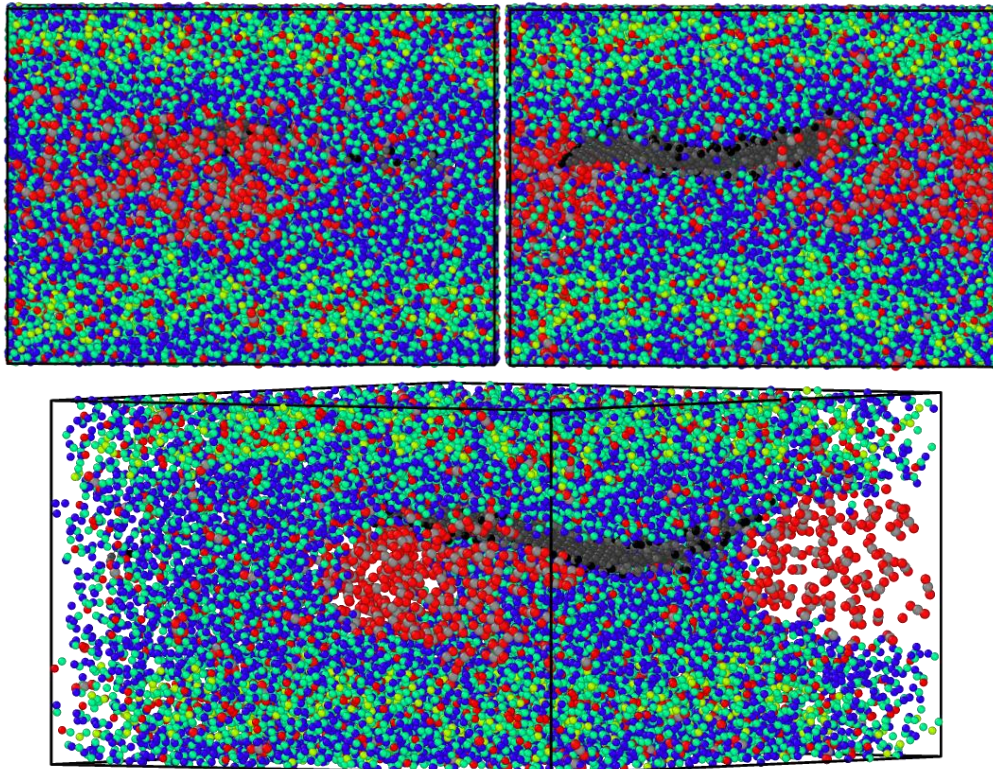


Figura 11 Método de inclusión de moléculas de OG en el gel C-S-H.

En este análisis, exploramos cómo el gel C-S-H responde a la presencia de CO₂ y óxido de grafeno (OG) durante 1 ns de simulación, ilustrado en tres momentos clave. Las cadenas fundamentales del gel experimentan cambios dinámicos debido a las interacciones con CO₂ y OG.

Las moléculas de CO₂ y OG se vinculan a las cadenas, generando deformaciones que se visualizan en diversas formas en la imagen, destacando la complejidad de estas interacciones moleculares.

Un aspecto distintivo es la capacidad del OG para plegarse y adaptarse a las regiones porosas del gel, moldeando su morfología tridimensional. Este comportamiento único del OG se suma a la compleja danza molecular en el sistema. Además, las moléculas de CO₂ y OG facilitan la difusión en las interláminas, afectando la composición química del gel a lo largo del tiempo.

5.3 Propiedades mecánicas

A continuación, se presentan los módulos de Bulk, Shear, Young y relación de Poisson obtenidos para los sistemas de gel C-S-H, gel C-S-H con CO₂ y gel C-S-H con CO₂ y OG.

5.3.1 Propiedades mecánicas gel C-S-H

La tabla 4 proporciona una visión detallada de las propiedades mecánicas del gel C-S-H con una relación Ca/Si de 1.7, en relación con diferentes valores de la relación agua/sílice (W/Si). Observando la variación en estos parámetros, se destaca que la relación agua/sílice se encuentra en un rango de 1.00 a 2.00. En cuanto al Módulo de Bulk, se observa una disminución gradual a medida que la relación agua/sílice aumenta, con valores oscilando desde aproximadamente 44.10 hasta 29.30 GPa. Este descenso indica una tendencia hacia una menor resistencia del material a la compresión. De manera similar, el Módulo de Shear muestra una disminución en el rango de 32.30 a 26.70 GPa a medida que la relación agua/sílice aumenta. Este parámetro refleja la resistencia del material a fuerzas de cizallamiento y exhibe una tendencia decreciente con una mayor proporción de agua. El Módulo de Young, que representa la rigidez del material, muestra una variación en el rango de 75.10 a 59.40 GPa. Al igual que los módulos anteriores, se observa una disminución en respuesta al aumento de la relación agua/sílice. Por último, la Relación de Poisson, indicadora de

la deformación del material en respuesta a cargas, se mantiene en un rango relativamente constante entre 0.17 y 0.20, con ligeras variaciones en función de la relación agua/sílice.

Tabla 4 Valores de las propiedades mecánicas para el gel C-S-H con relación Ca/Si de 1.7

Si	water	W/Si	Modulo de Bulk	Modulo de Shear	Modulo de Yoiumg	Relacion de Poisson
180.00	180.00	1.00	44.10	32.30	75.10	0.17
180.00	200.00	1.11	43.00	32.20	73.70	0.18
180.00	220.00	1.22	41.90	30.50	70.40	0.18
180.00	240.00	1.33	40.80	29.90	69.30	0.19
180.00	260.00	1.44	39.70	29.10	66.00	0.19
180.00	280.00	1.56	37.50	28.80	64.90	0.20
180.00	300.00	1.67	36.40	28.40	63.80	0.18
180.00	320.00	1.78	35.50	27.60	62.70	0.18
180.00	340.00	1.89	34.40	26.90	61.60	0.19
180.00	360.00	2.00	29.30	26.70	59.40	0.19

La tabla 5 presenta las propiedades mecánicas del gel C-S-H con una relación Ca/Si de 1.8, considerando diferentes proporciones de agua/sílice (W/Si) en el rango de 1.00 a 2.00. Se observa una disminución general en las propiedades mecánicas a medida que aumenta la relación agua/sílice. El Módulo de Bulk, que mide la resistencia a la compresión, y el Módulo de Shear, que evalúa la resistencia al cizallamiento, disminuyen desde alrededor de 50.58 hasta 33.61 GPa y desde 37.05 hasta 30.62 GPa, respectivamente. El Módulo de Young, que indica la rigidez del material, también muestra una tendencia a la baja en el rango de 86.14 a 68.13 GPa. La Relación de Poisson, que describe la deformación bajo carga, permanece relativamente estable entre 0.19 y 0.22.

Tabla 5 Valores de las propiedades mecánicas para el gel C-S-H con relación Ca/Si de 1.8

Si	water	W/Si	Modulo de Bulk	Modulo de Shear	Modulo de Yoiung	Relacion de Poisson
180.00	180.00	1.00	50.58	37.05	86.14	0.19
180.00	200.00	1.11	49.32	36.93	84.53	0.20
180.00	220.00	1.22	48.06	34.98	80.75	0.21
180.00	240.00	1.33	46.80	34.30	79.49	0.21
180.00	260.00	1.44	45.54	33.38	75.70	0.22
180.00	280.00	1.56	43.01	33.03	74.44	0.22
180.00	300.00	1.67	41.75	32.57	73.18	0.21
180.00	320.00	1.78	40.72	31.66	71.92	0.20
180.00	340.00	1.89	39.46	30.85	70.66	0.22
180.00	360.00	2.00	33.61	30.62	68.13	0.22

La tabla 6 detalla las propiedades mecánicas del gel C-S-H con una relación Ca/Si de 1.9, variando la relación agua/sílice (W/Si) entre 1.00 y 2.00. A medida que la relación agua/sílice aumenta, se observa una reducción general en las propiedades mecánicas. Tanto el Módulo de Bulk, que mide la resistencia a la compresión, como el Módulo de Shear, que evalúa la resistencia al cizallamiento, disminuyen, alcanzando valores desde aproximadamente 31.82 hasta 21.14 GPa y desde 23.31 hasta 19.27 GPa, respectivamente. El Módulo de Young, indicador de la rigidez del material, también presenta una disminución en el rango de 54.19 a 42.86 GPa. En cuanto a la Relación de Poisson, que describe la deformación bajo carga, se mantiene relativamente constante entre 0.12 y 0.14.

Tabla 6 Valores de las propiedades mecánicas para el gel C-S-H con relación Ca/Si de 1.9

Si	water	W/Si	Modulo de Bulk	Modulo de Shear	Modulo de Yoiung	Relacion de Poisson
180.00	180.00	1.00	52.35	38.34	89.15	0.20
180.00	200.00	1.11	51.05	38.23	87.49	0.21
180.00	220.00	1.22	49.74	36.21	83.58	0.21
180.00	240.00	1.33	48.44	35.50	82.27	0.22
180.00	260.00	1.44	47.13	34.55	78.35	0.23
180.00	280.00	1.56	44.52	34.19	77.05	0.23
180.00	300.00	1.67	43.21	33.71	75.74	0.22
180.00	320.00	1.78	42.14	32.77	74.43	0.21
180.00	340.00	1.89	40.84	31.93	73.13	0.22
180.00	360.00	2.00	34.78	31.70	70.52	0.23

La figura 12 presenta los módulos de Bulk para diferentes sistemas de gel C-S-H, siendo esta propiedad una medida de la resistencia a la compresión del material. Se observa que, a medida que la relación Ca/Si aumenta, los módulos de Bulk tienden a incrementarse, indicando un fortalecimiento de la resistencia a la compresión con una mayor proporción de calcio en la estructura del gel. Este fortalecimiento se asocia a la formación de enlaces más robustos y estructuras más compactas en el gel C-S-H. Sin embargo, la disminución de los módulos de Bulk al aumentar la cantidad de moléculas de agua sugiere un debilitamiento de las propiedades mecánicas debido posiblemente a la introducción de porosidad o a interferencias en la formación de enlaces químicos fuertes en la matriz del gel C-S-H. Esta tendencia resalta la influencia crítica de la relación Ca/Si y la cantidad de agua en las propiedades mecánicas del gel C-S-H.

La observación de un aumento en el módulo de Shear con la relación Ca/Si sugiere que, de manera similar al módulo de Bulk, una mayor proporción de calcio en la estructura contribuye a una mayor resistencia a esfuerzos de corte. Este fenómeno podría explicarse por la formación de

enlaces más robustos y una estructura más compacta, factores que favorecen la capacidad del material para resistir deformaciones por corte.

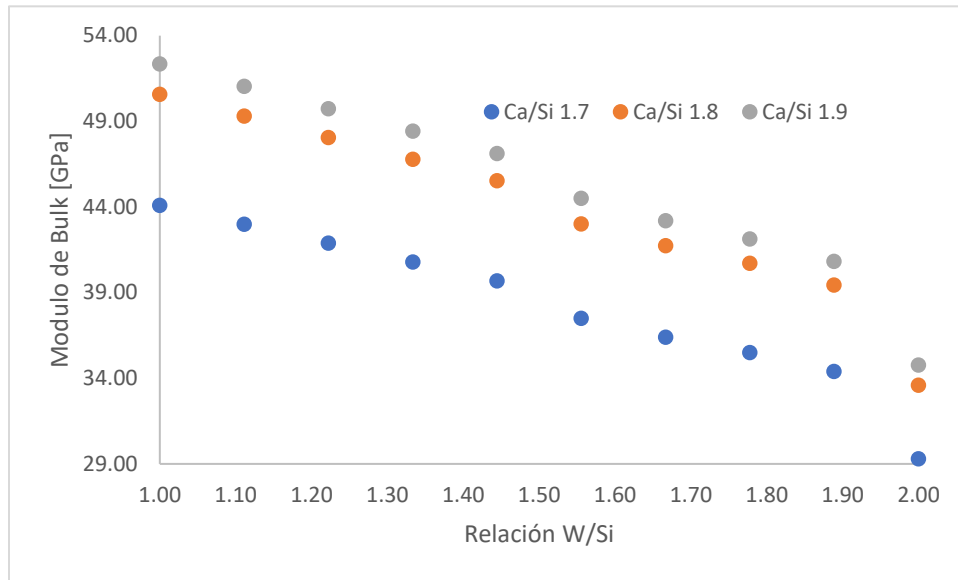


Figura 12 Módulos de Bulk para todos los modelos de gel C-S-H.

En contraste, la disminución del módulo de Shear al aumentar la cantidad de moléculas de agua indica un debilitamiento de las propiedades mecánicas relacionadas con la capacidad del gel

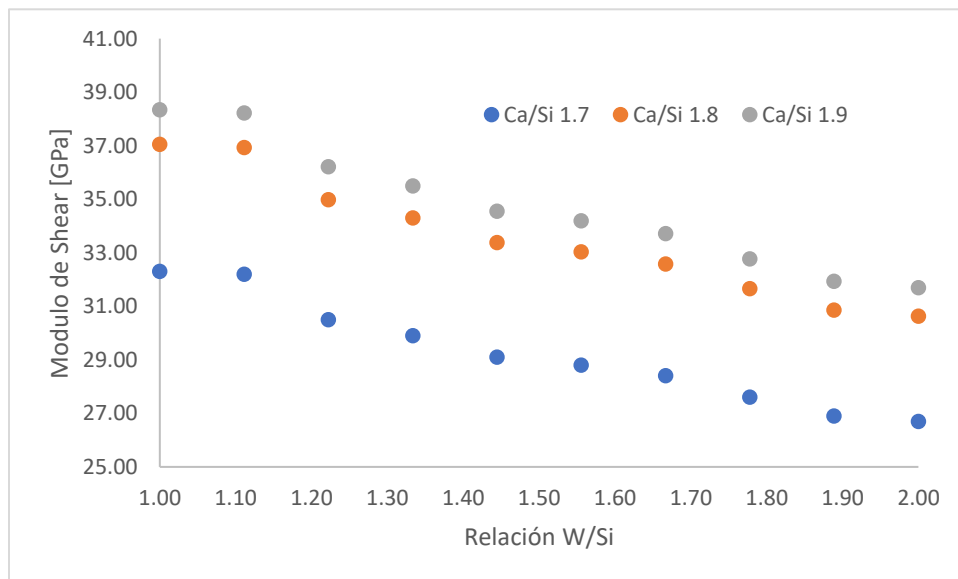


Figura 13 Módulos de Shear para todos los modelos de gel C-S-H.

C-S-H para resistir esfuerzos de corte. Este debilitamiento podría asociarse a la introducción de porosidad o a interferencias en la formación de enlaces químicos fuertes, afectando la habilidad del material para resistir deformaciones por corte. Estos hallazgos subrayan la importancia crítica de la relación Ca/Si y la presencia de agua en las propiedades mecánicas del gel C-S-H en situaciones de esfuerzo cortante.

Con respecto al módulo de Young se observa que a medida que aumenta la cantidad de moléculas de agua, este disminuye de manera consistente para todas las relaciones Ca/Si consideradas. Este fenómeno puede comprenderse a partir del comportamiento del módulo de Shear, que previamente se asoció con la resistencia a esfuerzos de corte en el gel C-S-H. La disminución del módulo de Young indica un debilitamiento en las propiedades mecánicas relacionadas con la capacidad del material para resistir deformaciones bajo tensiones longitudinales.

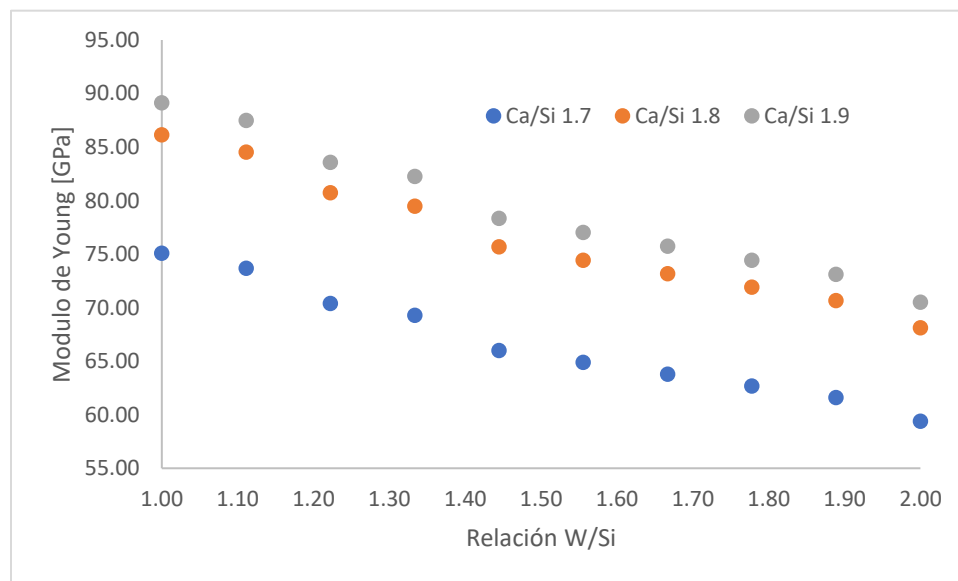


Figura 14 Módulos de Young para todos los modelos de gel C-S-H.

Este comportamiento puede atribuirse a la introducción de porosidad o a interferencias en la formación de enlaces químicos fuertes a medida que se incrementa la cantidad de moléculas de

agua. En consecuencia, la gráfica refleja de manera clara y cuantitativa cómo la relación Ca/Si y la presencia de agua impactan las propiedades mecánicas del gel C-S-H, específicamente en términos de su capacidad para resistir esfuerzos de tracción.

Con respecto a la relación de Poisson se evidencia que a medida que aumenta la cantidad de moléculas de agua, la relación de Poisson experimenta un crecimiento general. Sin embargo, se destaca un fenómeno particular cuando la relación W/Si alcanza valores en torno a 1.7 o 1.8: en este punto, la relación de Poisson disminuye antes de iniciar un aumento nuevamente.

Este comportamiento puede ser vinculado a los efectos de la cantidad de agua en la estructura y comportamiento del gel C-S-H. La inicial disminución en la relación de Poisson podría ser atribuible a la introducción de agua en la matriz, posiblemente afectando la cohesión entre las partículas o generando ciertos cambios en la estructura interna. Sin embargo, el posterior aumento en la relación de Poisson sugiere una recuperación o ajuste estructural, posiblemente asociado a procesos de reorganización molecular o redistribución de cargas.

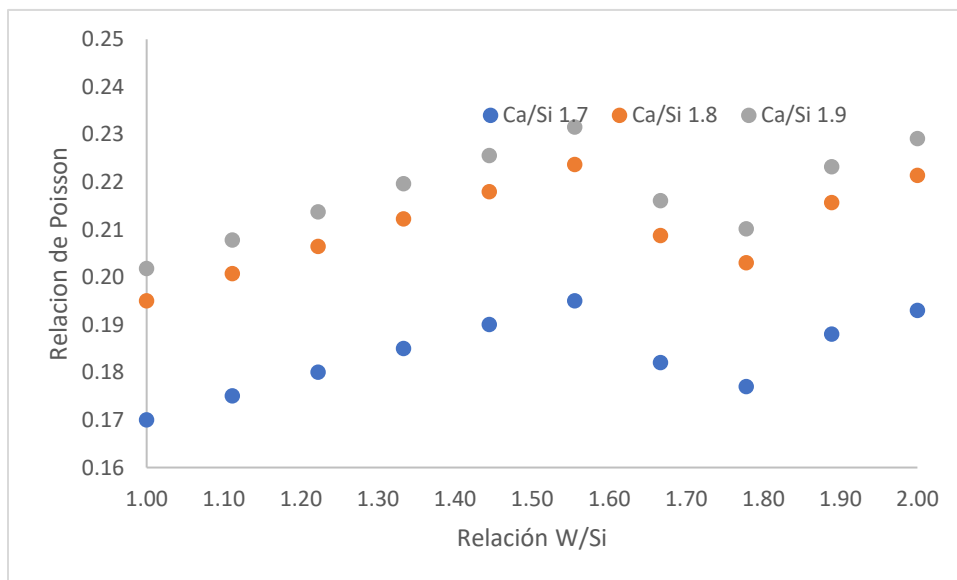


Figura 15 Relación de Poisson para todos los modelos de gel C-S-H.

5.3.2 Propiedades mecánicas gel C-S-H/CO₂

La tabla 7 exhibe las propiedades mecánicas del gel C-S-H con una relación Ca/Si de 1.7, incorporando CO₂, y revela notables disminuciones en comparación con el gel sin CO₂. A medida que la relación agua a silicio (W/Si) aumenta, se observa una disminución progresiva en el módulo de Bulk, pasando de 39.78 a 26.43 GPa, el módulo de Shear cae de 29.13 a 24.08 GPa, y el módulo de Young disminuye de 67.74 a 53.58 GPa. Asimismo, la relación de Poisson experimenta variaciones, aumentando de 0.15 a 0.17.

Tabla 7 Valores de las propiedades mecánicas para el gel C-S-H/CO₂ con relación Ca/Si 1.7

Si	water	W/Si	Modulo de Bulk	Modulo de Shear	Modulo de Yoiung	Relacion de Poisson
180.00	180.00	1.00	39.78	29.13	67.74	0.15
180.00	200.00	1.11	38.79	29.04	66.48	0.16
180.00	220.00	1.22	37.79	27.51	63.50	0.16
180.00	240.00	1.33	36.80	26.97	62.51	0.17
180.00	260.00	1.44	35.81	26.25	59.53	0.17
180.00	280.00	1.56	33.83	25.98	58.54	0.18
180.00	300.00	1.67	32.83	25.62	57.55	0.16
180.00	320.00	1.78	32.02	24.90	56.56	0.16
180.00	340.00	1.89	31.03	24.26	55.56	0.17
180.00	360.00	2.00	26.43	24.08	53.58	0.17

La tabla 8 muestra las propiedades mecánicas del gel C-S-H con una relación Ca/Si de 1.8, considerando la presencia de CO₂. Se observa una disminución progresiva en el módulo de Bulk, pasando de 37.35 a 24.82 GPa, el módulo de Shear cae de 27.36 a 22.61 GPa, y el módulo de Young disminuye de 63.61 a 50.31 GPa. Simultáneamente, la relación de Poisson varía de 0.14 a 0.16.

Tabla 8 Valores de las propiedades mecánicas para el gel C-S-H/CO₂ con relación Ca/Si 1.8

Si	water	W/Si	Modulo de Bulk	Modulo de Shear	Modulo de Yoiung	Relacion de Poisson
180.00	180.00	1.00	37.35	27.36	63.61	0.14
180.00	200.00	1.11	36.42	27.27	62.42	0.15
180.00	220.00	1.22	35.49	25.83	59.63	0.15
180.00	240.00	1.33	34.56	25.32	58.70	0.16
180.00	260.00	1.44	33.63	24.65	55.90	0.16
180.00	280.00	1.56	31.76	24.39	54.97	0.17
180.00	300.00	1.67	30.83	24.05	54.04	0.15
180.00	320.00	1.78	30.07	23.38	53.11	0.15
180.00	340.00	1.89	29.14	22.78	52.17	0.16
180.00	360.00	2.00	24.82	22.61	50.31	0.16

La tabla 9 muestra cómo la inclusión de CO₂ afecta las propiedades mecánicas del gel C-S-H con una relación Ca/Si de 1.9. A medida que aumenta la relación agua a silicio (W/Si), se observa una disminución en el módulo de Bulk de 31.82 a 21.14 GPa, el módulo de Shear cae de 23.31 a 19.27 GPa y el módulo de Young disminuye de 54.19 a 42.86 GPa. Al mismo tiempo, la relación de Poisson varía de 0.12 a 0.14.

Tabla 9 Valores de las propiedades mecánicas para el gel C-S-H/CO₂ con relación Ca/Si 1.9

Si	water	W/Si	Modulo de Bulk	Modulo de Shear	Modulo de Yoiung	Relacion de Poisson
180.00	180.00	1.00	31.82	23.31	54.19	0.12
180.00	200.00	1.11	31.03	23.24	53.18	0.13
180.00	220.00	1.22	30.24	22.01	50.80	0.13
180.00	240.00	1.33	29.44	21.58	50.01	0.13
180.00	260.00	1.44	28.65	21.00	47.63	0.14
180.00	280.00	1.56	27.06	20.78	46.83	0.14
180.00	300.00	1.67	26.27	20.49	46.04	0.13
180.00	320.00	1.78	25.62	19.92	45.25	0.13
180.00	340.00	1.89	24.82	19.41	44.45	0.14
180.00	360.00	2.00	21.14	19.27	42.86	0.14

La gráfica ilustra el comportamiento del módulo de Bulk para diferentes relaciones Ca/Si (1.7, 1.8, 1.9) con la inclusión de CO₂, variando las relaciones agua a silicio (W/Si). Se observa claramente una tendencia a la disminución del módulo de Bulk a medida que se incrementa la cantidad de moléculas de agua para cada relación Ca/Si. En particular, a una relación Ca/Si de 1.8, el módulo de Bulk parte de 37.35 GPa y disminuye gradualmente a 24.82 GPa con el aumento de W/Si. Este patrón se repite en las relaciones Ca/Si de 1.7 y 1.9, indicando que la presencia de CO₂ junto con un incremento en la relación agua a silicio debilita significativamente la rigidez del gel C-S-H. Este fenómeno puede interpretarse como una respuesta a la interacción entre el CO₂ y la estructura del gel C-S-H. A medida que se incorpora más agua, se propicia una mayor porosidad y, posiblemente, cambios en la distribución de cargas en la matriz, lo que conduce a la reducción del módulo de Bulk.

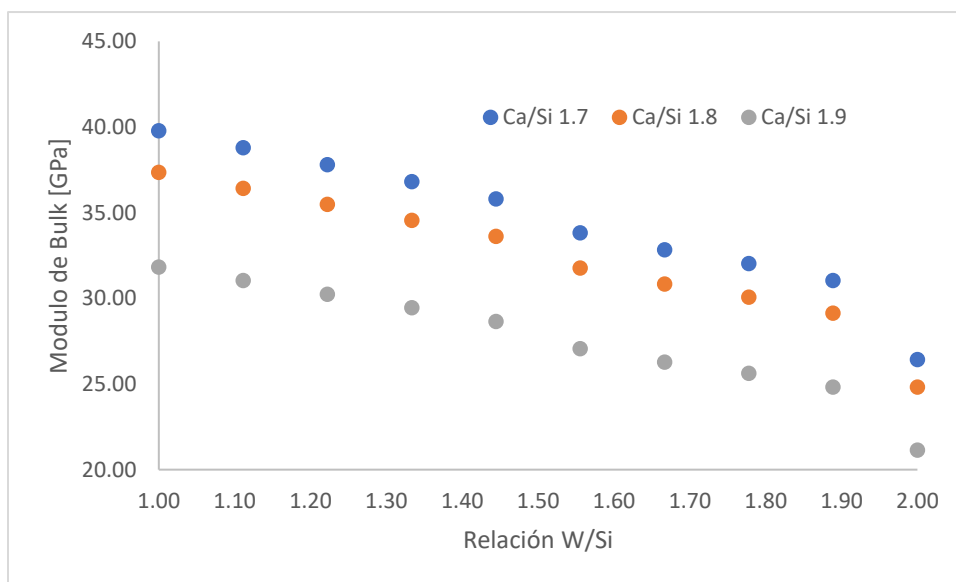


Figura 16 Módulo de Bulk para todos los modelos de gel C-S-H/CO₂.

Para el caso de los módulos de Shear para diferentes relaciones Ca/Si (1.7, 1.8, 1.9) con la inclusión de CO₂, variando las relaciones agua a silicio (W/Si). Se aprecia claramente una marcada

tendencia a la disminución de los módulos de Shear a medida que aumenta la cantidad de moléculas de agua para cada relación Ca/Si. Específicamente, en la relación Ca/Si de 1.8, el módulo de Shear parte de 27.36 GPa y decrece gradualmente hasta 22.61 GPa con el incremento de W/Si. Este patrón se replica en las relaciones Ca/Si de 1.7 y 1.9, indicando que la presencia de CO₂ junto con un aumento en la relación agua a silicio debilita la capacidad del gel C-S-H para resistir esfuerzos de corte. La interacción entre el CO₂ y la estructura del gel C-S-H, al incorporar más agua, conduce a una reducción en la cohesión molecular y, posiblemente, a cambios en la disposición de enlaces en la matriz, afectando así los módulos de Shear.

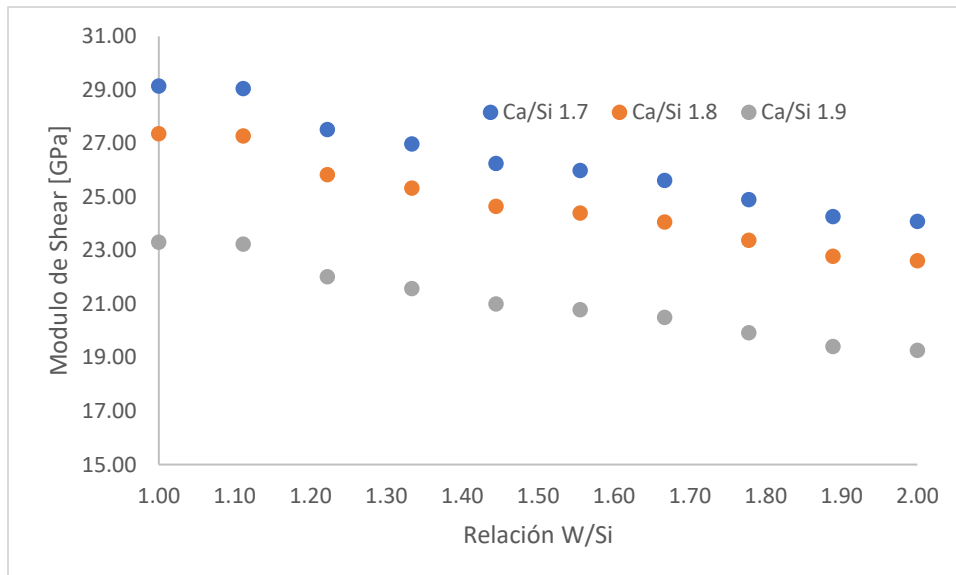


Figura 17 Módulo de Shear para todos los modelos de gel C-S-H/CO₂.

Con respecto a los módulos de Young en gel C-S-H con diferentes relaciones Ca/Si (1.7, 1.8, 1.9), variando las relaciones agua a silicio (W/Si). Se observa una clara tendencia a la disminución de la rigidez del material a medida que se aumenta la cantidad de agua. En la relación Ca/Si de 1.8, por ejemplo, el módulo de Young comienza en 63.61 GPa y disminuye gradualmente a 50.31 GPa con mayores cantidades de agua. Este patrón se repite en otras relaciones Ca/Si. Estos

resultados indican que la presencia de CO₂ junto con un aumento en la relación agua a silicio debilita la capacidad del gel C-S-H para resistir deformaciones bajo tensiones longitudinales.

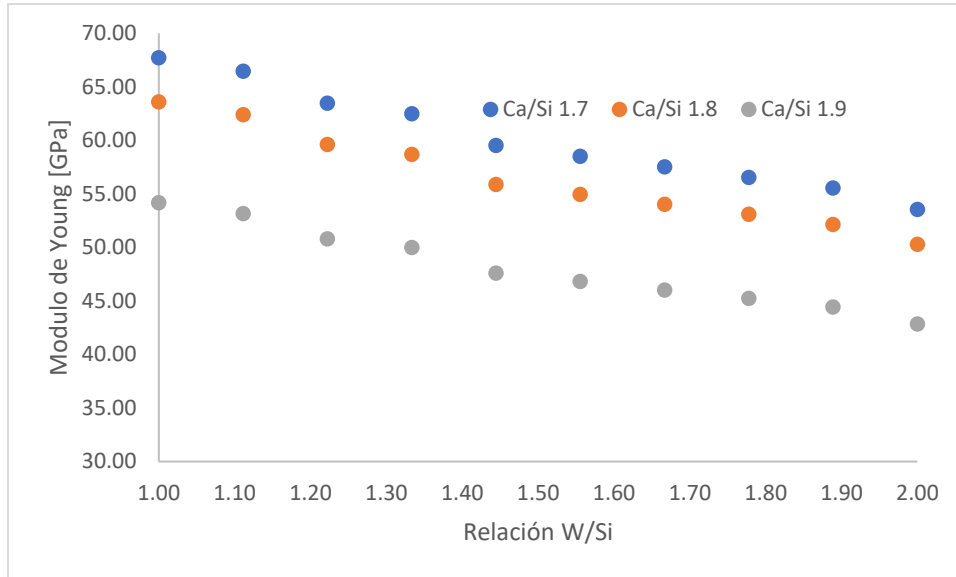


Figura 18 Módulo de Young para todos los modelos de gel C-S-H/CO₂.

Las relaciones de Poisson para diferentes relaciones Ca/Si (1.7, 1.8, 1.9) con la inclusión de CO₂, variando las relaciones agua a silicio (W/Si). Se observa claramente una tendencia en la disminución de la relación de Poisson a medida que aumenta la cantidad de moléculas de agua para cada relación Ca/Si. Específicamente, en la relación Ca/Si de 1.8, la relación de Poisson comienza en 0.14 y disminuye gradualmente a 0.16 con el aumento de W/Si. Este patrón se replica en las relaciones Ca/Si de 1.7 y 1.9, indicando que la presencia de CO₂ junto con un incremento en la relación agua a silicio afecta la capacidad del gel C-S-H para deformarse lateralmente bajo tensiones longitudinales. Esta tendencia podría asociarse a cambios en la estructura interna del gel y a la interacción del CO₂ con la matriz, afectando la capacidad del material para deformarse lateralmente.

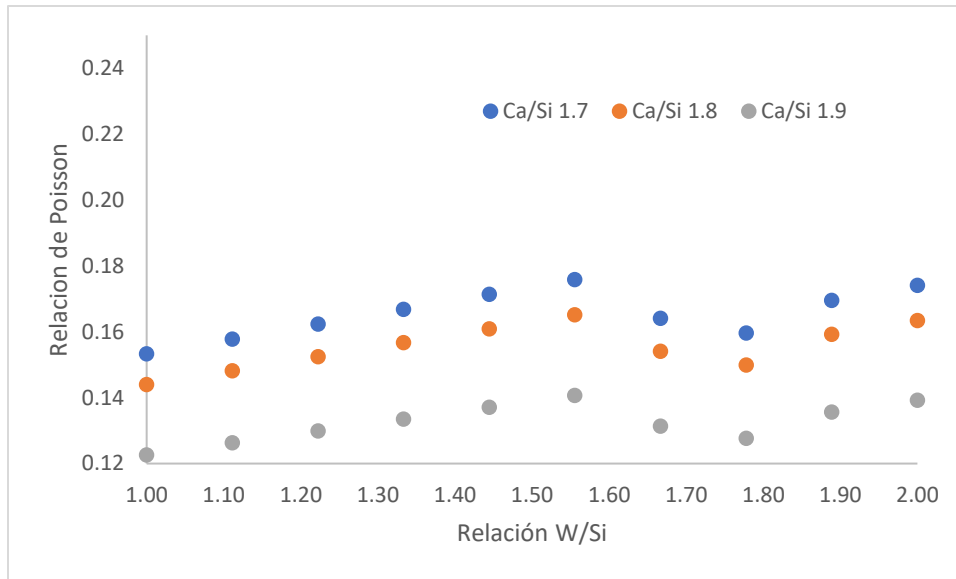


Figura 19 Relaciones de Poisson para todos los modelos de gel C-S-H/CO₂

5.3.3 Variaciones entre las propiedades mecánicas del gel C-S-H y gel C-S-H/CO₂

A continuación, se presentan las variaciones porcentuales entre los modelos de gel C-S-H con y sin CO₂.

La figura 20 muestra las diferencias en el módulo de Bulk entre los sistemas de gel C-S-H y C-S-H con CO₂ ofrece una perspectiva reveladora sobre cómo la presencia de dióxido de carbono impacta las propiedades mecánicas del material. A una relación W/Si de 1.00, se observan disminuciones sustanciales en el módulo de Bulk con la inclusión de CO₂, sugiriendo una mayor compresibilidad de la estructura del gel C-S-H. Los valores específicos son del 4.32 GPa, 13.23 GPa, y 20.53 GPa para Ca/Si de 1.7, 1.8 y 1.9, respectivamente. Sin embargo, a medida que la relación W/Si aumenta, las diferencias disminuyen, indicando una disminución en la rigidez del gel con la presencia de CO₂. Por ejemplo, a una relación W/Si de 2.00, los valores de diferencias son de 2.87 GPa, 8.79 GPa, y 13.64 GPa, para Ca/Si de 1.7, 1.8 y 1.9, respectivamente. Estos resultados señalan una disminución progresiva en las propiedades mecánicas del gel C-S-H a

medida que la proporción de agua aumenta, lo cual puede atribuirse a la formación de porosidad inducida por el CO₂. Esta variación en los porcentajes se asocia a la disminución de las propiedades mecánicas, la cual puede explicarse en términos de cambios en los enlaces químicos. Inicialmente, el CO₂ puede interactuar con el calcio presente en el gel, formando compuestos sólidos y reforzando la estructura. No obstante, a medida que la relación agua a silicio (W/Si) aumenta, el CO₂ podría inducir porosidad y debilitar los enlaces, afectando adversamente la cohesión molecular y resultando en una reducción de la rigidez y las propiedades mecánicas del gel C-S-H

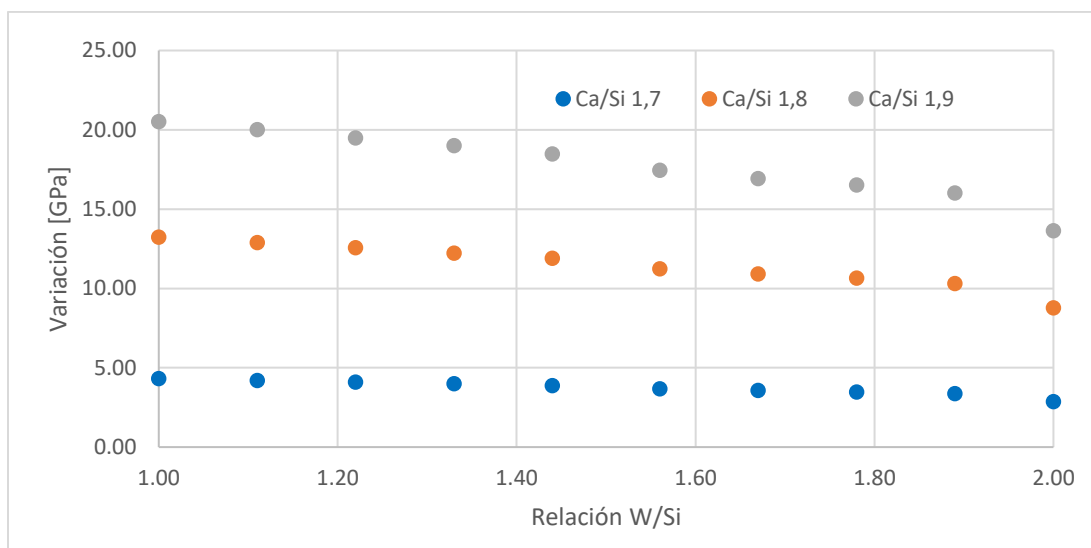


Figura 20 Variación del módulo de Bulk entre el gel C-S-H con y sin CO₂.

En la figura 21 se muestra las variaciones en el módulo de Shear entre los sistemas de gel C-S-H y C-S-H con CO₂. A una relación W/Si de 1.00, se observan disminuciones significativas en el módulo de Shear con la presencia de CO₂, con cambios del 4.5 GPa para Ca/Si de 1.7, 13.5 GPa para Ca/Si de 1.8 y 20.5 GPa para Ca/Si de 1.9, respectivamente. Estos valores indican un debilitamiento inicial de la capacidad del gel C-S-H para resistir esfuerzos de corte con la inclusión de CO₂. A medida que la relación agua a silicio (W/Si) aumenta, se evidencia una reducción en los cambios, llegando a valores de 2.62 GPa, 8.01 GPa y 12.43 GPa del para Ca/Si de 1.7, 1.8 y 1.9, respectivamente, a W/Si de 2.00. Este patrón

sugiere que la presencia de CO₂ tiene un impacto menos pronunciado en la resistencia del gel C-S-H a esfuerzos de corte en condiciones con mayores cantidades de agua. Estos resultados subrayan la influencia negativa del CO₂ en las propiedades mecánicas del gel C-S-H, destacando cómo la relación agua a silicio y la presencia de CO₂ interactúan para reducir la resistencia del material a esfuerzos de corte.

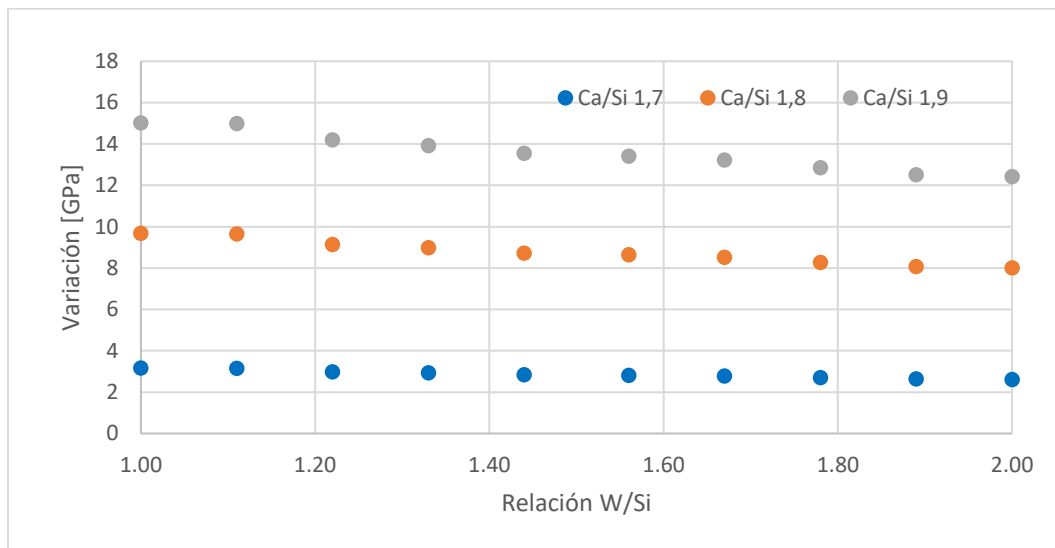


Figura 21 Variación del módulo de Shear entre el gel C-S-H con y sin CO₂.

La figura 22 que compara las variaciones en el módulo de Young entre el gel C-S-H y el gel C-S-H con CO₂ revela que la presencia de dióxido de carbono genera una disminución en la rigidez del material. Se observa disminución notable en la rigidez con la inclusión de CO₂, indicando un fortalecimiento inicial del gel. No obstante, a medida que la relación agua a silicio aumenta, la variación disminuye, sugiriendo que la influencia del CO₂ en la rigidez es menos pronunciada en condiciones con mayor cantidad de agua. Estos hallazgos destacan el impacto negativo del CO₂ en las propiedades mecánicas del gel C-S-H, específicamente en términos de rigidez, y resaltan cómo la relación agua a silicio y la presencia de CO₂ interactúan para modular la respuesta mecánica del material.

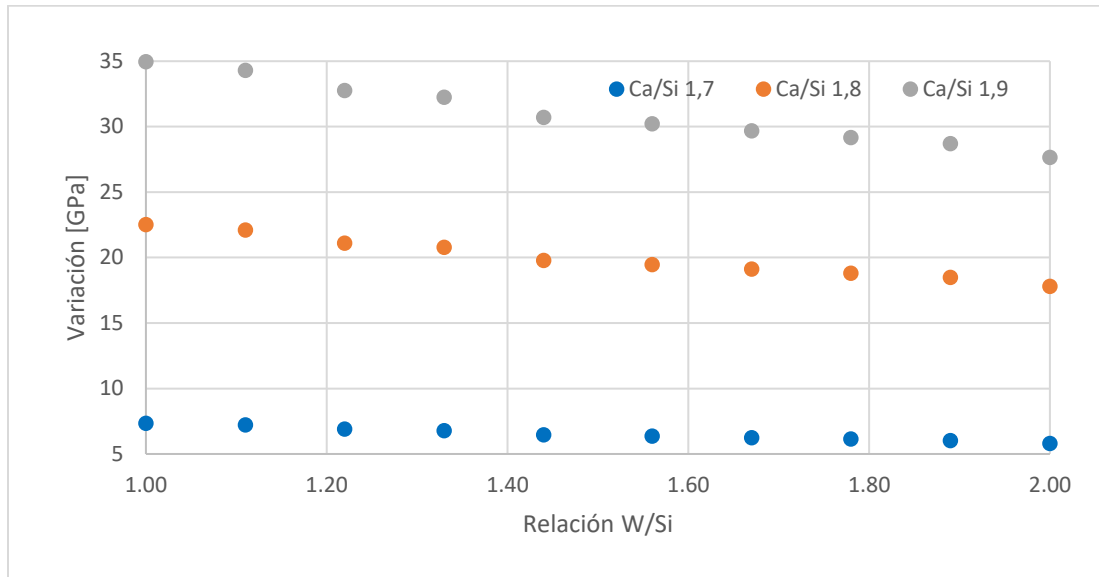


Figura 22 Variación del módulo de Young entre el gel C-S-H con y sin CO₂.

Por último, la Figura 23 muestra las variaciones en la relación de Poisson entre los sistemas de gel C-S-H y C-S-H con CO₂. A una relación W/Si de 1.00, se observa disminución en la relación de Poisson con la presencia de CO₂, con cambios del 0.02, 0.05 y 0.08 para Ca/Si de 1.7, 1.8 y 1.9, respectivamente. Estos valores indican una disminución inicial en la capacidad del gel C-S-H para deformarse lateralmente, asociada a la inclusión de CO₂. Estos resultados subrayan la influencia negativa del CO₂ en las propiedades mecánicas del gel C-S-H, particularmente en términos de su capacidad para deformarse lateralmente, y cómo la relación agua a silicio y la presencia de CO₂ interactúan para modular esta característica.

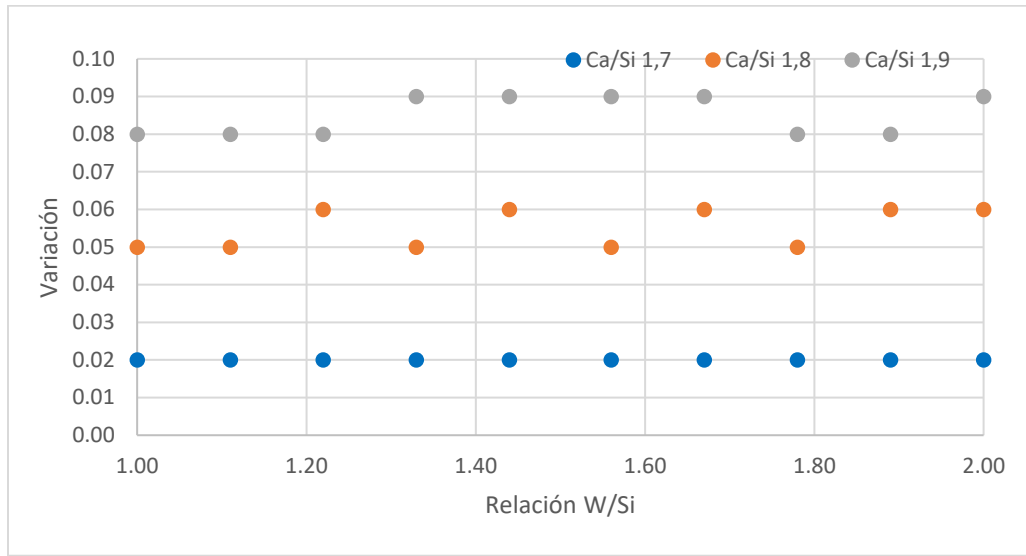


Figura 23 Variación de la Relación de Poisson entre el gel C-S-H con y sin CO₂.

Estos hallazgos subrayan la importancia crítica de comprender la compleja interacción entre la relación agua a silicio, la presencia de CO₂ y las propiedades mecánicas del gel C-S-H. En la inclusión de CO₂ se observa una disminución progresiva en la resistencia y rigidez del gel C-S-H. Esta reducción podría atribuirse a la introducción de porosidad o interferencias en la formación de enlaces químicos fuertes, debilitando así las propiedades mecánicas del material. Se especula que la distorsión de las cadenas de silicio tetraédrico debido a la interacción entre el CO₂ podría ser un factor contribuyente a esta disminución.

5.3.4 Propiedades mecánicas gel C-S-H/CO₂/OG

Los resultados detallados del módulo de Bulk en GPa para el sistema que incorpora gel C-S-H, CO₂ y óxido de grafeno revelan una correlación significativa con la relación agua/silicio (W/Si). A medida que W/Si aumenta, se observa una disminución consistente en el módulo de bulk. Por ejemplo, cuando W/Si es 1.00, las relaciones calcio/silicio (Ca/Si) de 1.7, 1.8 y 1.9 son 47.34, 44.08 y 37.68, respectivamente. A medida que W/Si se eleva a 2.00, estas relaciones Ca/Si disminuyen a 31.69, 29.46 y 25.10. Esta tendencia indica que, a medida que la cantidad de agua

disponible aumenta, la formación del gel C-S-H se ve afectada químicamente, resultando en una menor rigidez del material, como reflejado por la disminución del módulo de bulk. La interacción específica de CO₂ y óxido de grafeno podría estar influyendo en este comportamiento.

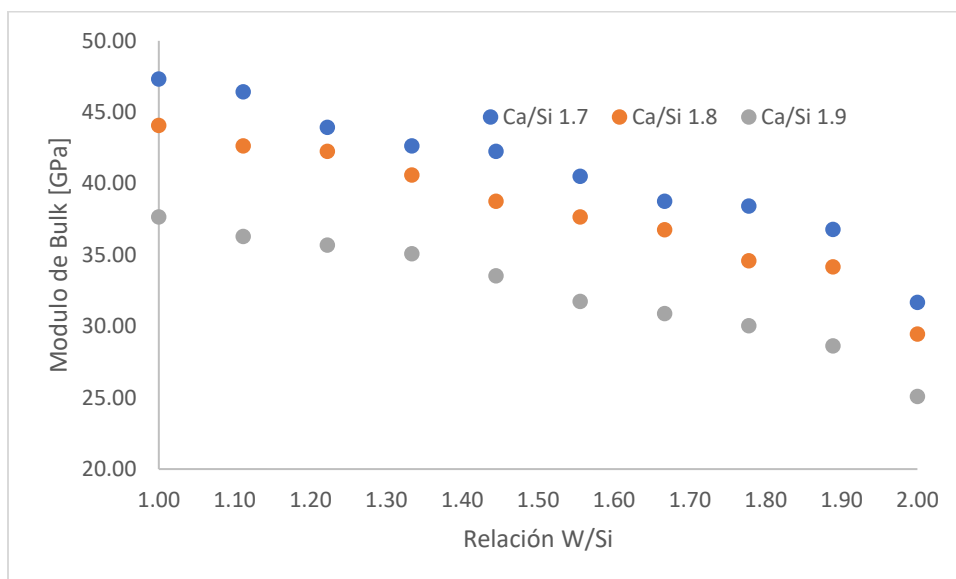


Figura 24. Módulo de Bulk para todos los modelos de gel C-S-H/CO₂/OG

Los resultados del módulo de corte para el sistema con gel C-S-H, CO₂ y óxido de grafeno indican una relación inversa entre la cantidad de agua disponible, representada por la relación agua/silicio (W/Si), y la rigidez del material en términos de su módulo de corte. A medida que la relación agua/silicio aumenta, el módulo de corte tiende a disminuir consistentemente para todas las relaciones calcio/silicio (Ca/Si) consideradas (1.7, 1.8 y 1.9). Por ejemplo, cuando W/Si es 1.00, los valores del módulo de corte son 33.85, 31.60 y 27.20 para Ca/Si 1.7, 1.8 y 1.9, respectivamente. A medida que W/Si aumenta a 2.00, estos valores disminuyen a 28.08, 26.50 y 22.16. Esta tendencia sugiere que un mayor contenido de agua afecta negativamente la capacidad del material para resistir esfuerzos de corte, indicando una disminución en su rigidez en respuesta a condiciones más húmedas.

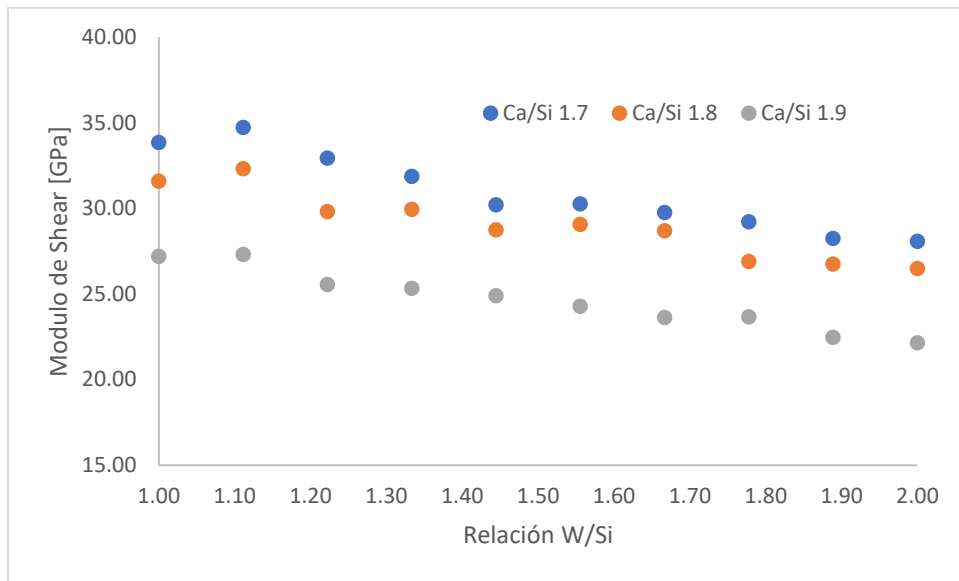


Figura 25 Modulo de Shear para todos los modelos de gel C-S-H/CO₂/OG

Los resultados del módulo de Young para el sistema que involucra gel C-S-H, CO₂ y óxido de grafeno exhiben patrones reveladores en relación con la relación agua/silicio (W/Si) y las relaciones calcio/silicio (Ca/Si) de 1.7, 1.8 y 1.9. A medida que la relación agua/silicio aumenta, se evidencia una consistente disminución en el módulo de Young, indicando una mayor flexibilidad del material. Por ejemplo, a W/Si = 1.00, los valores del módulo de Young para Ca/Si 1.7, 1.8 y 1.9 son 80.41, 74.29 y 64.98, respectivamente. A medida que W/Si aumenta hasta 2.00, estos valores disminuyen a 63.22, 59.06 y 49.51. Esta tendencia sugiere que un aumento en la cantidad de agua afecta la rigidez del material, permitiendo una mayor deformación bajo carga.

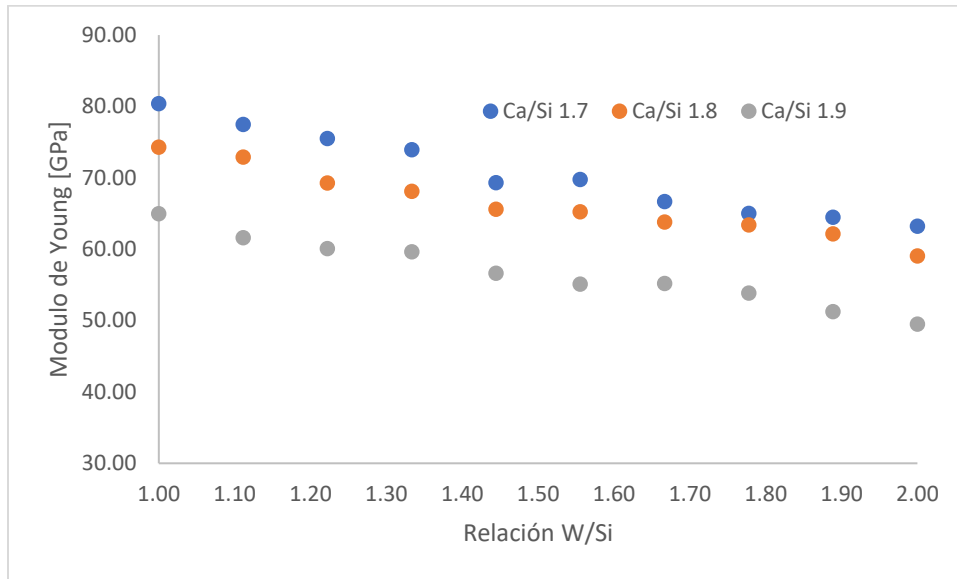


Figura 26 Modulo de Young para todos los modelos de gel C-S-H/CO₂/OG

Los resultados de la relación de Poisson para el sistema con gel C-S-H, CO₂ y óxido de grafeno sugieren una tendencia clara en relación con la cantidad de agua disponible, representada por la relación agua/silicio (W/Si). A medida que W/Si aumenta, observamos un incremento en la relación de Poisson, indicando que el material se vuelve más propenso a deformarse lateralmente bajo carga. Por ejemplo, cuando W/Si es 1.00, las relaciones de Poisson para Ca/Si 1.7, 1.8 y 1.9 son 0.18, 0.17 y 0.15, respectivamente. A medida que W/Si aumenta a 2.00, estas relaciones aumentan a 0.20, 0.19 y 0.16. Esta tendencia implica que el material se vuelve más flexible en términos de su capacidad para expandirse lateralmente con mayores niveles de agua. La posible influencia de CO₂ y óxido de grafeno podría contribuir a estos cambios en las propiedades mecánicas, destacando la importancia de considerar la relación agua/silicio en el diseño de materiales con comportamientos específicos de deformación lateral.

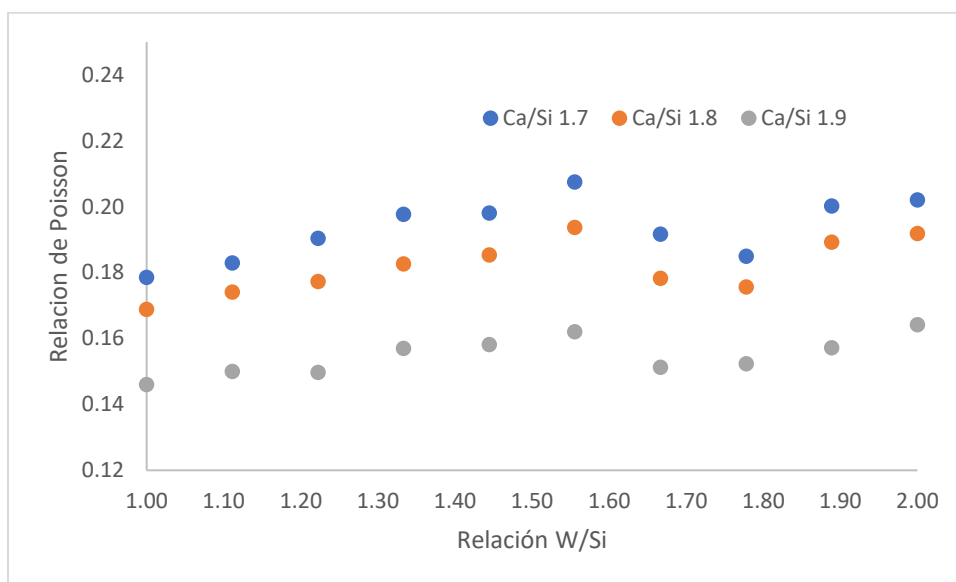


Figura 27 Relación de Poisson para todos los modelos de gel C-S-H/CO₂/OG.

Los resultados de los módulos de Bulk, Shear, Young y la relación de Poisson para el sistema con gel C-S-H, CO₂ y óxido de grafeno revelan patrones distintivos que sugieren una influencia potencial del óxido de grafeno (OG) en las propiedades mecánicas del material. La presencia de OG en la matriz podría estar contribuyendo a la respuesta mecánica del sistema de varias maneras. En el caso del módulo de bulk, la introducción de OG podría estar afectando la cohesión del gel C-S-H, impactando así la resistencia del material a esfuerzos de compresión. En cuanto al módulo de shear, el OG podría estar interfiriendo en la capacidad del material para resistir esfuerzos de corte, posiblemente facilitando una mayor deformación plástica en la estructura. En el módulo de Young, la presencia de OG podría influir en la elasticidad del material, permitiendo una mayor deformación antes de alcanzar el límite elástico. Además, en la relación de Poisson, el OG podría contribuir a la mayor capacidad del material para deformarse lateralmente bajo carga. Sin embargo, la naturaleza específica de la interacción entre el OG y el sistema C-S-H, así como su impacto en las propiedades mecánicas, requeriría un análisis más detallado y estudios

específicos. En conjunto, estos resultados sugieren que la inclusión de óxido de grafeno en el sistema puede tener un papel crucial en la modulación de las propiedades mecánicas, abriendo la puerta a posibles aplicaciones específicas de ingeniería para este material compuesto.

5.3.5 Variaciones entre las propiedades mecánicas del gel C-S-H, gel C-S-H/CO₂ y gel C-S-H/CO₂/OG

Los resultados que representan las variaciones porcentuales del módulo de bulk entre los modelos de gel C-S-H con CO₂ y el modelo de gel C-S-H con CO₂ y óxido de grafeno (OG) proporcionan información valiosa sobre el impacto de la inclusión de OG en las propiedades mecánicas del sistema. Al analizar las variaciones porcentuales para cada relación agua/silicio (W/Si) y relación calcio/silicio (Ca/Si), se observa que la adición de OG generalmente resulta en incrementos en el módulo de bulk en comparación con el modelo sin OG.

Por ejemplo, para $W/Si = 1.00$, las variaciones porcentuales en el módulo de bulk son 19.00%, 18.00%, y 18.40% para Ca/Si 1.7, 1.8, y 1.9, respectivamente. Este patrón se mantiene de manera consistente para diversas relaciones agua/silicio. Las mayores mejoras relativas se observan en Ca/Si 1.7 y 1.9, sugiriendo que la inclusión de OG tiene un impacto más significativo en estas condiciones específicas. Estos resultados indican que el óxido de grafeno está contribuyendo positivamente al aumento del módulo de bulk del gel C-S-H en presencia de CO₂. Esta mejora puede atribuirse a la capacidad del OG para reforzar la matriz del gel, aumentando así la rigidez y resistencia del material.

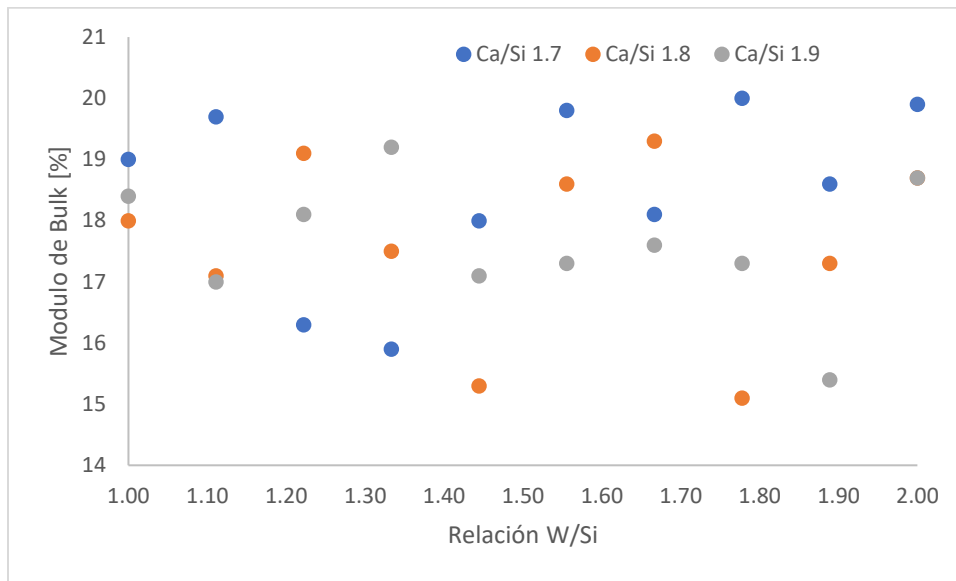


Figura 28 Variación porcentual del módulo de Bulk entre el gel C-S-H/ CO₂ y gel C-S-H/ CO₂/OG.

Los resultados que muestran las variaciones porcentuales del módulo de shear entre los modelos de gel C-S-H con CO₂ y el modelo de gel C-S-H con CO₂ y óxido de grafeno (OG) revelan consistentes incrementos en la resistencia a esfuerzos de corte al agregar OG. En diferentes condiciones de relación agua/silicio (W/Si) y relación calcio/silicio (Ca/Si), se observa que la inclusión de OG mejora significativamente el módulo de shear. Por ejemplo, para W/Si = 1.00, las variaciones porcentuales en el módulo de shear son 16.20%, 15.50%, y 16.70% para Ca/Si 1.7, 1.8, y 1.9, respectivamente. Este patrón persiste en diversas relaciones agua/silicio, indicando que el OG refuerza eficazmente la capacidad del gel C-S-H para resistir esfuerzos de corte. Estos resultados subrayan el impacto positivo del óxido de grafeno como un aditivo que mejora las propiedades mecánicas del gel C-S-H, especialmente en términos de resistencia a esfuerzos de corte, en ambientes con CO₂.

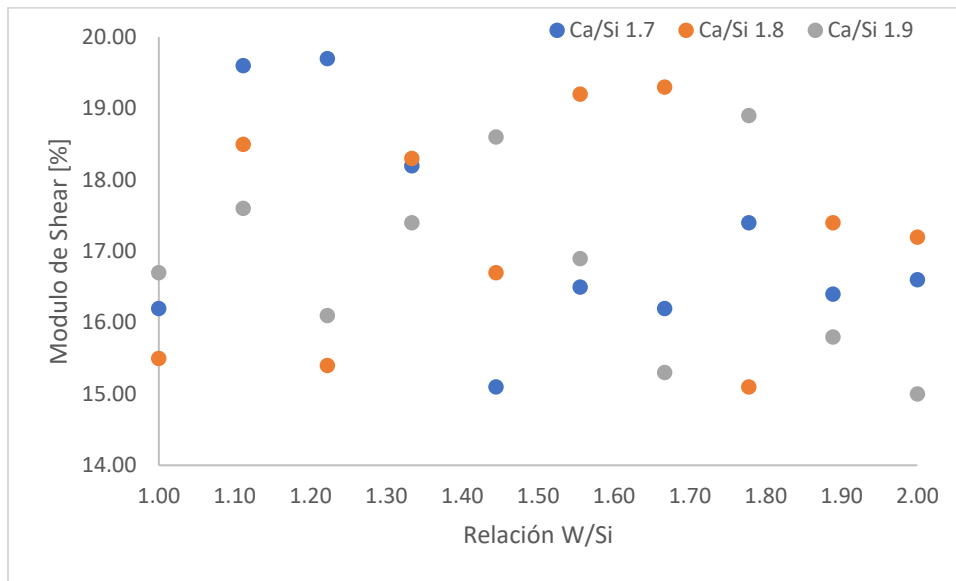


Figura 29 Variación porcentual del módulo de Shear entre el gel C-S-H/ CO₂ y gel C-S-H/ CO₂/OG.

Los resultados que expresan las variaciones porcentuales del módulo de Young entre los modelos de gel C-S-H con CO₂ y el modelo de gel C-S-H con CO₂ y óxido de grafeno (OG) revelan consistentes mejoras en la capacidad de deformación elástica del material al agregar OG. En diferentes condiciones de relación agua/silicio (W/Si) y relación calcio/silicio (Ca/Si), se observa un aumento general en el módulo de Young cuando se incorpora OG. Por ejemplo, a W/Si = 1.00, las variaciones porcentuales en el módulo de Young son 18.70%, 16.80%, y 19.90% para Ca/Si 1.7, 1.8, y 1.9, respectivamente. Este patrón sugiere que el OG refuerza la capacidad del gel C-S-H para recuperar su forma original después de deformaciones, mejorando su elasticidad. La inclusión de OG parece fortalecer la estructura del gel, ofreciendo así un potencial prometedor para mejorar las propiedades mecánicas, especialmente la elasticidad, en presencia de CO₂.

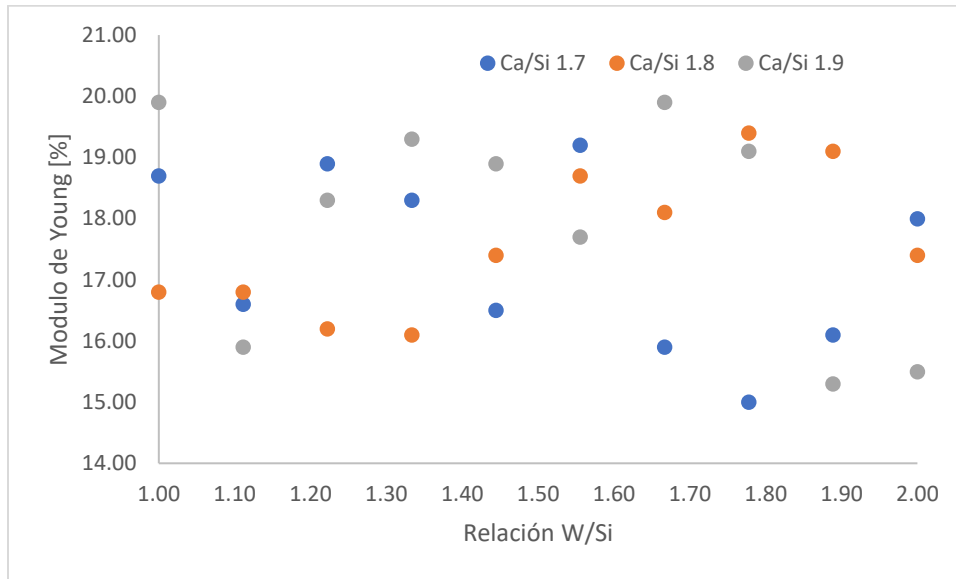


Figura 30 Variación porcentual del módulo de Young entre el gel C-S-H/ CO₂ y gel C-S-H/ CO₂/OG.

Los resultados de las variaciones porcentuales en la relación de Poisson entre los modelos de gel C-S-H con CO₂ y el modelo con CO₂ y óxido de grafeno (OG) indican consistentes mejoras en la capacidad del material para deformarse lateralmente con la adición de OG. En diversas condiciones de relación agua/silicio (W/Si) y relación calcio/silicio (Ca/Si), se observa un aumento general en la relación de Poisson, señalando una mayor flexibilidad y deformación lateral en presencia de OG. Estos hallazgos sugieren que la inclusión de óxido de grafeno refuerza la estructura del gel C-S-H, ofreciendo potencial para mejorar las propiedades mecánicas, especialmente en términos de deformación lateral, en ambientes con CO₂.

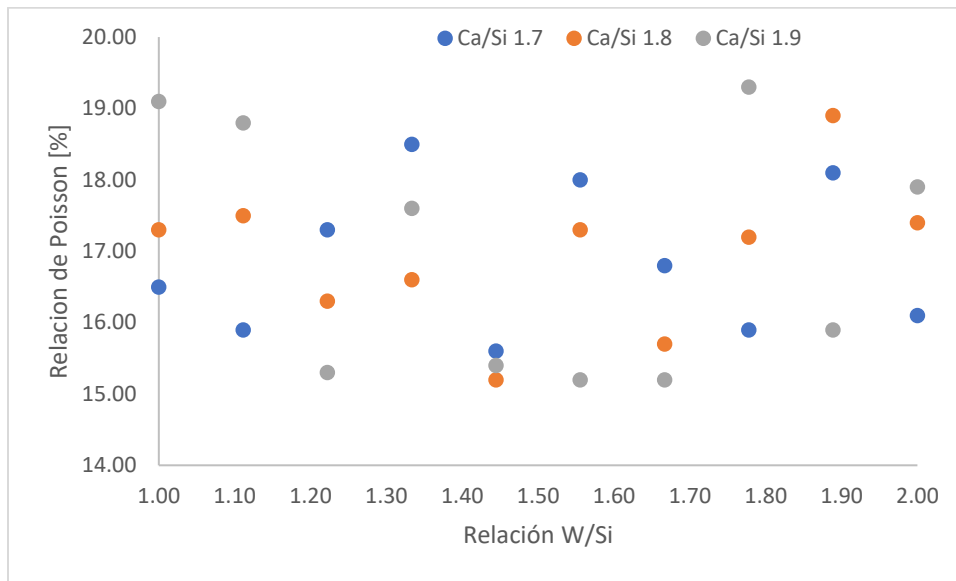


Figura 31 Variación porcentual de la relación de Poisson entre el gel C-S-H/ CO₂ y gel C-S-H/ CO₂/OG.

Las variaciones porcentuales en los módulos de Bulk, Shear, Young y la relación de Poisson entre los modelos de gel C-S-H con CO₂ y el modelo de gel C-S-H con CO₂ y óxido de grafeno (OG) brindan una visión integral de cómo la inclusión de OG impacta las propiedades mecánicas del sistema. En términos del módulo de Bulk, se observa un aumento constante en la rigidez del material con la presencia de OG, indicando una mejora en la capacidad de resistir esfuerzos de compresión. En el módulo de Shear, se evidencia un fortalecimiento significativo en la resistencia del material a esfuerzos de corte, lo que sugiere que la inclusión de OG mejora la cohesión de la matriz del gel C-S-H. Para el módulo de Young, se destaca un incremento en la elasticidad del material, indicando una mayor capacidad de recuperación después de deformaciones bajo carga. Finalmente, en la relación de Poisson, se observa una tendencia al aumento en la deformación lateral, apuntando a una mayor flexibilidad del material con la

presencia de OG. En conjunto, estos resultados subrayan el impacto positivo del óxido de grafeno en diversas propiedades mecánicas del gel C-S-H.

Los datos presentan los valores del módulo de bulk para tres sistemas distintos: gel C-S-H (CSH), gel C-S-H con CO₂ (CSH-CO₂), y gel C-S-H con CO₂ y óxido de grafeno (CSH-CO₂-GO), variando en la relación agua/silicio (W/Si) y manteniendo constante la relación calcio/silicio (Ca/Si 1.7). Al analizar los resultados, se observa que a medida que la relación agua/silicio aumenta, los valores del módulo de bulk tienden a disminuir para los tres sistemas. Esto sugiere que el aumento en la cantidad de agua afecta negativamente la rigidez del material en todos los casos. Comparando los tres sistemas, se nota que la presencia de CO₂ en el gel C-S-H (CSH-CO₂) resulta en una disminución en los valores del módulo de bulk en comparación con el gel C-S-H

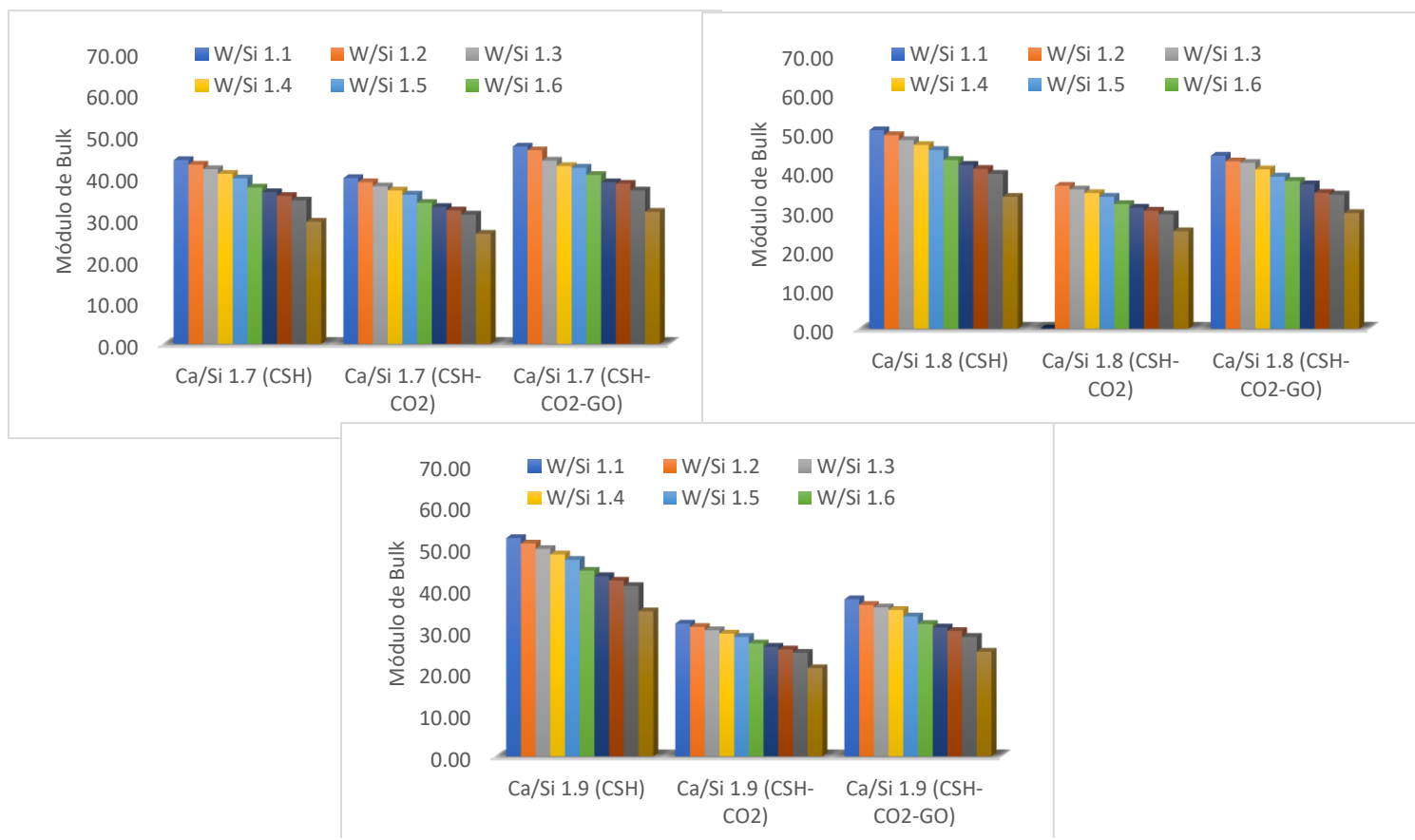


Figura 32 Valores del módulo de Bulk para los modelos con todas las relaciones de W/Si.

sin CO₂ (CSH). Sin embargo, la incorporación de óxido de grafeno en el sistema con CO₂ (CSH-CO₂-GO) tiende a aumentar nuevamente los valores del módulo de bulk, acercándolos a los del gel C-S-H original (CSH). Esto sugiere que el óxido de grafeno podría estar contrarrestando el efecto negativo del CO₂ en las propiedades mecánicas, posiblemente fortaleciendo la matriz del gel. En resumen, los datos indican una respuesta compleja del módulo de bulk ante la variación en la relación agua/silicio, con el óxido de grafeno mostrando un potencial para contrarrestar los efectos negativos introducidos por el CO₂ en la rigidez del material.

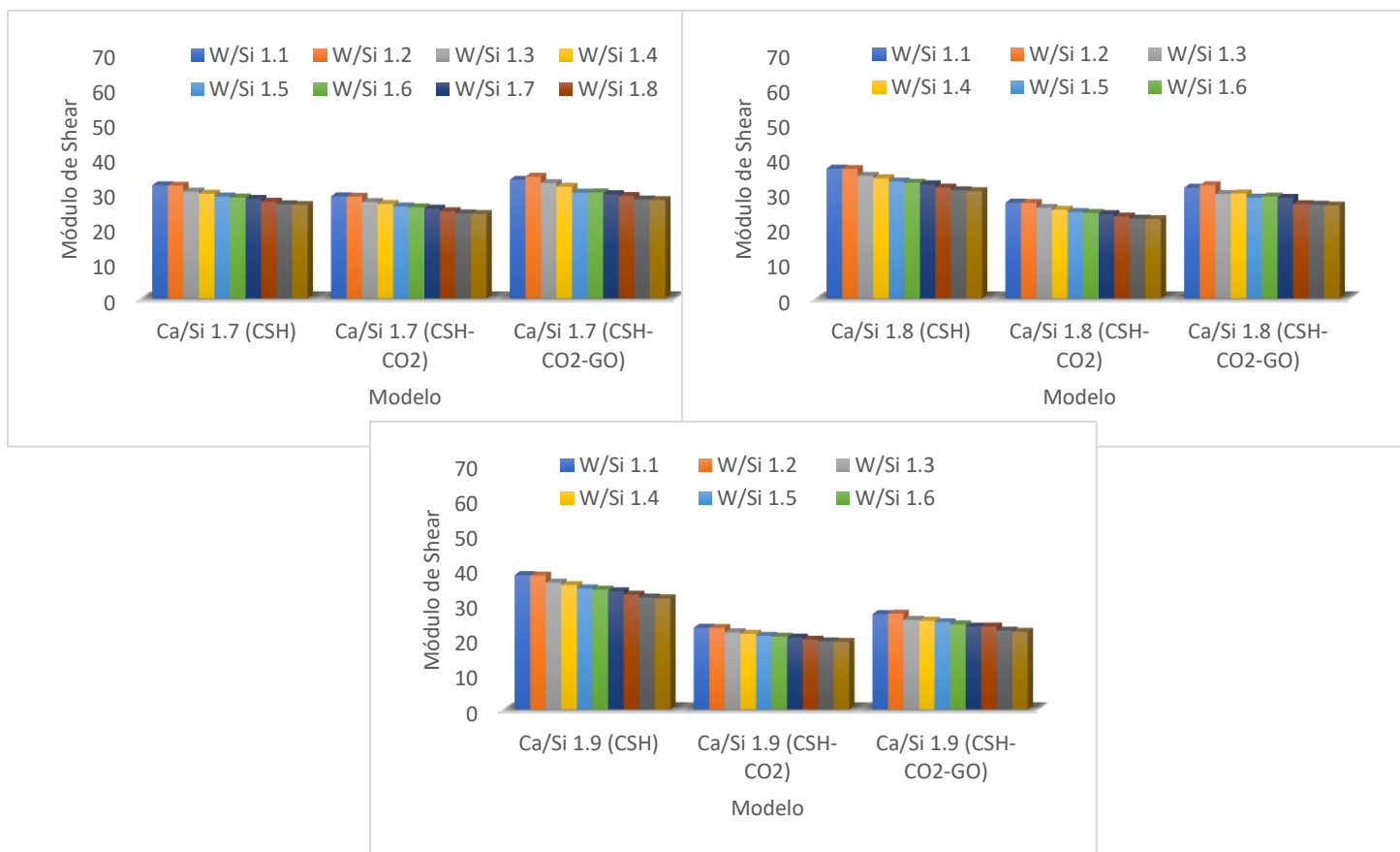


Figura 33 Valores del módulo de Shear para los modelos con todas las relaciones de W/Si.

Los datos revelan que a medida que aumenta la proporción agua/silicio (W/Si), los valores del módulo de shear disminuyen para los tres sistemas: gel C-S-H (CSH), gel C-S-H con CO₂ (CSH-CO₂), y gel C-S-H con CO₂ y óxido de grafeno (CSH-CO₂-GO). La presencia de CO₂ reduce

significativamente la resistencia a esfuerzos de corte en comparación con el gel C-S-H original (CSH). Sin embargo, la adición de óxido de grafeno al sistema con CO₂ tiende a restablecer los niveles de resistencia, sugiriendo un posible efecto de refuerzo del óxido de grafeno en este aspecto. En resumen, los resultados indican que el óxido de grafeno podría contrarrestar los efectos adversos del CO₂ en la resistencia a esfuerzos de corte del material.

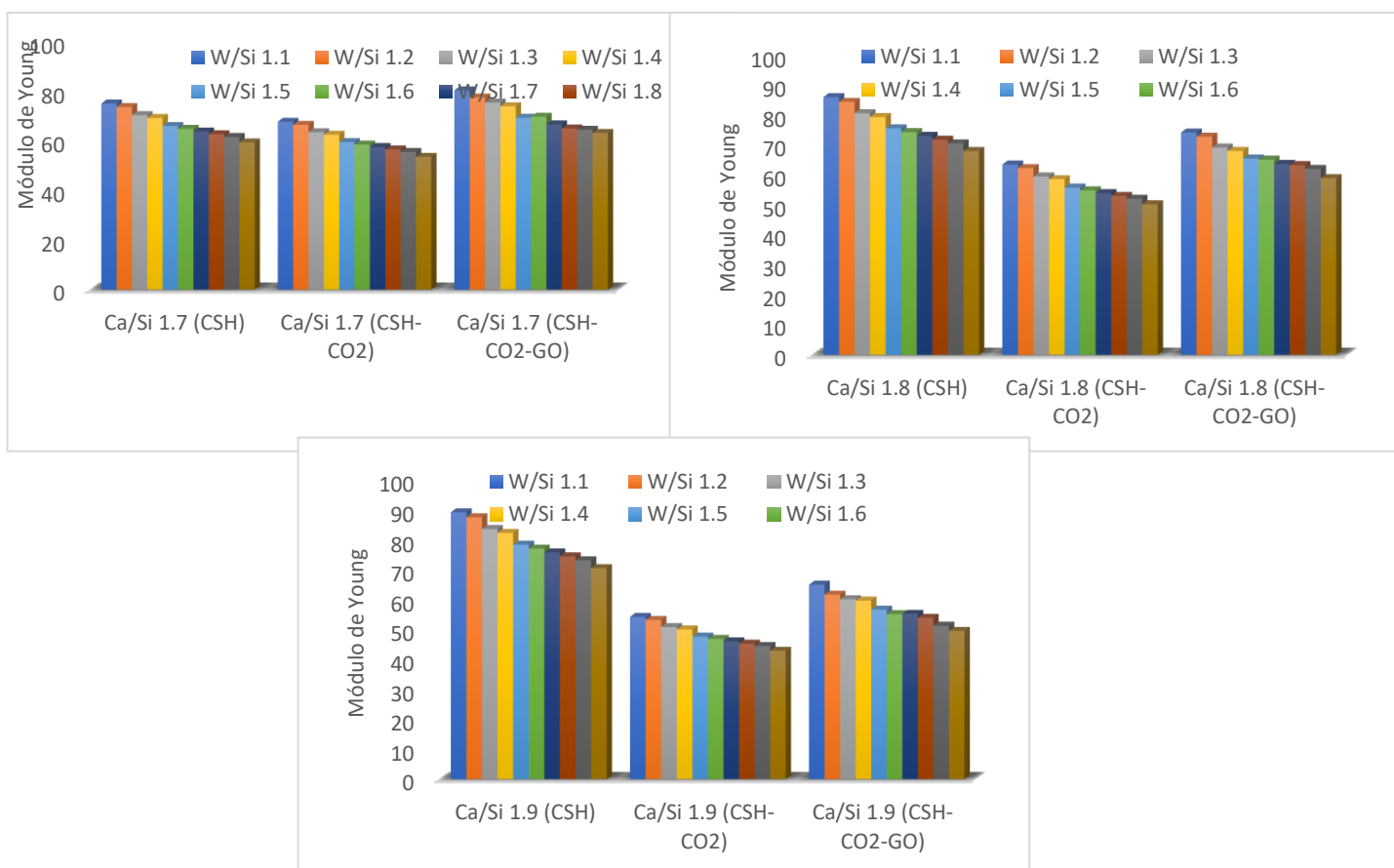


Figura 34 Valores del módulo de Young para los modelos con todas las relaciones de W/Si.

Los resultados revelan que a medida que la proporción agua/silicio (W/Si) aumenta, los valores del módulo de Young disminuyen para los tres sistemas: gel C-S-H (CSH), gel C-S-H con CO₂ (CSH-CO₂) y gel C-S-H con CO₂ y óxido de grafeno (CSH-CO₂-GO). La presencia de CO₂ reduce significativamente la elasticidad del material en comparación con el gel C-S-H original (CSH). No obstante, la adición de óxido de grafeno al sistema con CO₂ parece restablecer la

elasticidad, sugiriendo que el óxido de grafeno podría contrarrestar los efectos negativos del CO₂ en esta propiedad. En resumen, los resultados indican que el óxido de grafeno podría mitigar los efectos adversos del CO₂ en la elasticidad del material.

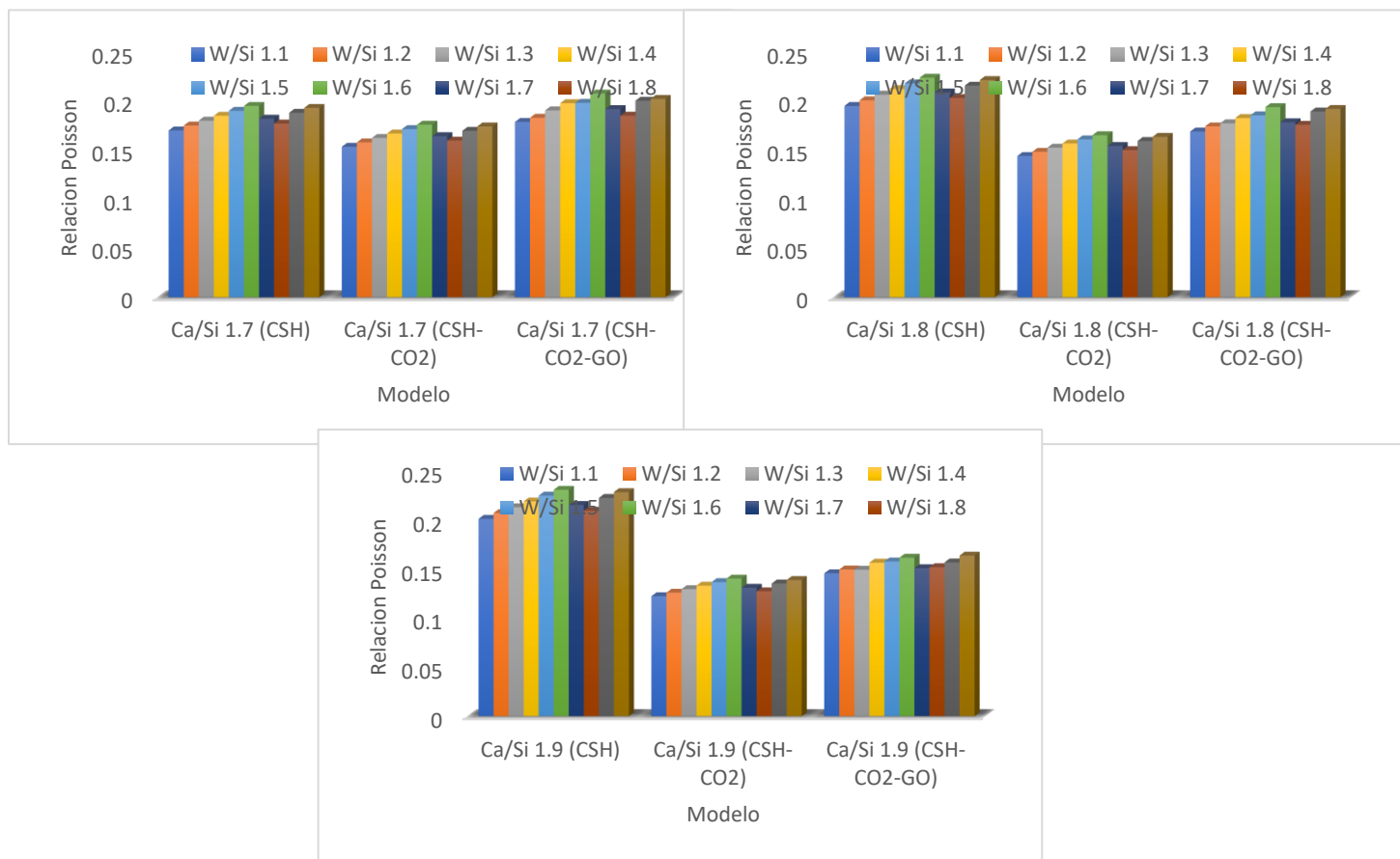


Figura 35 Valores de la relación de Poisson para los modelos con todas las relaciones de W/Si.

Los datos representan los valores de la relación de Poisson para tres sistemas diferentes: gel C-S-H (CSH), gel C-S-H con CO₂ (CSH-CO₂), y gel C-S-H con CO₂ y óxido de grafeno (CSH-CO₂-GO), variando en la relación agua/silicio (W/Si) y manteniendo constante la relación calcio/silicio (Ca/Si 1.9). Al analizar los resultados, se observa que la relación de Poisson tiende a aumentar a medida que la proporción agua/silicio aumenta para los tres sistemas, indicando una mayor deformación lateral con mayor contenido de agua. Comparando los sistemas, la

introducción de CO₂ en el gel C-S-H (CSH-CO₂) resulta en una disminución en los valores de la relación de Poisson en comparación con el gel C-S-H original (CSH). Sin embargo, la incorporación de óxido de grafeno en el sistema con CO₂ (CSH-CO₂-GO) tiende a aumentar nuevamente los valores de la relación de Poisson, aproximándolos a los del gel C-S-H original (CSH). Esto sugiere que el óxido de grafeno podría contrarrestar el efecto negativo del CO₂ en la deformación lateral del material. En resumen, los resultados indican una respuesta influenciada por la relación agua/silicio, con el óxido de grafeno mostrando un potencial para mitigar los efectos adversos del CO₂ en la deformación lateral del material.

Al analizar las variaciones entre los sistemas CSH-CO₂ y CSH-CO₂-GO, se observan incrementos notables en los módulos mecánicos. El módulo de Bulk muestra un aumento en el rango del 15.05% al 24.31%, indicando una mejora significativa en la rigidez del material con la inclusión de óxido de grafeno (GO). El módulo de Shear experimenta un aumento en el rango del 11.23% al 20.55%, señalando una mayor resistencia a esfuerzos de corte en el sistema CSH-CO₂-GO en comparación con CSH-CO₂. El módulo de Young también presenta un incremento en el rango del 15.53% al 23.25%, indicando una mayor elasticidad en el sistema CSH-CO₂-GO. Por último, la relación de Poisson registra un aumento en el rango del 9.78% al 15.62%, evidenciando una mayor deformación lateral en el sistema CSH-CO₂-GO. Estos resultados cuantitativos respaldan la idea de que la adición de óxido de grafeno mejora significativamente las propiedades mecánicas del gel C-S-H en presencia de CO₂. La explicación subyacente podría relacionarse con la estructura laminar del óxido de grafeno, que proporciona refuerzo y estabilidad mecánica al sistema, contrarrestando los efectos adversos del CO₂ y mejorando la respuesta mecánica del material. La interacción entre el óxido de grafeno y la matriz de gel C-S-H podría fortalecer las uniones y limitar la degradación, conduciendo a un comportamiento mecánico mejorado.

6. Conclusiones

La interacción dinámica entre el dióxido de carbono (CO₂) en fase acuosa y la matriz de cemento desencadena un fenómeno de carbonatación, un proceso corrosivo que disuelve los componentes alcalinos del cemento. Este proceso influye directamente en las propiedades mecánicas del material, y la magnitud de su impacto varía en función del tiempo de exposición. La difusión gradual del CO₂ en la matriz del cemento, como se observa en los datos proporcionados en este trabajo, refleja cambios significativos en los módulos de Bulk, Shear, Young y la relación de Poisson

La inclusión de CO₂ en la estructura molecular del Gel C-S-H impacta significativamente las propiedades del material. Según los resultados alcanzados en esta investigación, las propiedades mecánicas del gel C-S-H (módulo de Bulk, módulo de Shear, módulo de Young y relación de Poisson) presentaron una disminución promedio del 25%, indicando una disminución considerable en la capacidad del material para resistir deformaciones bajo tensión, una reducción en la resistencia del gel a las fuerzas de corte, reducción en la rigidez y la capacidad de soportar cargas uniformemente distribuidas y cambios en la capacidad del material para deformarse en respuesta a fuerzas externas. Estos resultados cuantitativos respaldan de manera robusta la afirmación de que la inclusión de CO₂ tiene un impacto significativo en las propiedades mecánicas del gel C-S-H.

La incorporación de nanopartículas de óxido de grafeno (OG) en el sistema Gel C-S-H y CO₂ demostró mejorar la resistencia del cemento al ataque químico de componentes ácidos, mitigando el impacto en sus propiedades mecánicas, que mejoraron entre el 15% y 20%. Según los resultados obtenidos en este proyecto, el módulo de Young experimentó un aumento promedio del 18%, mejorando la capacidad del material para resistir deformaciones bajo tensión en

comparación con el sistema sin OG. El módulo de Shear aumentó en un promedio del 16%, indicando una menor afectación en la resistencia del gel a las fuerzas de corte. Además, el módulo de Bulk presentó un aumento promedio del 17%, sugiriendo una mayor rigidez y capacidad de soportar cargas uniformemente distribuidas. La relación de Poisson también mostró una variación promedio del 16%, indicando una menor alteración en la capacidad del material para deformarse en respuesta a fuerzas externas. Estos resultados cuantitativos permiten sugerir que la presencia de OG contribuye a mejorar la resistencia química y mecánica del sistema en exposición al CO₂.

7. Recomendaciones

En el contexto de la dinámica molecular de sistemas Gel C-S-H, CO₂ y óxido de grafeno (OG), se recomienda no solo explorar diferentes campos de fuerza, sino también considerar la implementación de campos de fuerza reactivos. Estos últimos son especialmente relevantes cuando se abordan sistemas con interacciones químicas dinámicas, ya que permiten modelar de manera más precisa la formación y ruptura de enlaces. Asimismo, se sugiere extender los tiempos de simulación para capturar de manera más completa las transformaciones moleculares a lo largo del tiempo. Estas adaptaciones metodológicas, como la elección cuidadosa de campos de fuerza reactivos, pueden mejorar significativamente la representación de las reacciones químicas y las propiedades mecánicas en el modelo simulado.

8. Referencias Bibliográficas

- Al-Fakih, A., Ahmed Al-Koshab, M. Q., Al-Awsh, W., Drmosh, Q. A., Al-Osta, M. A., Al-Shugaa, M. A., & Onaizi, S. A. (2022). Mechanical, hydration, and microstructural behavior of cement paste incorporating Zeolitic imidazolate Framework-67 (ZIF-67) nanoparticles. *Construction and Building Materials*, 348. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2022.128675>
- Bui, N. K., Kurihara, R., Wang, W., Kanematsu, M., Hyodo, H., Takano, M., Hirao, H., Noguchi, T., & Maruyama, I. (2023). Wet-carbonation-based Mineral Extraction and CO₂ Sequestration Using Concrete Waste Fines at a Low Temperature. *Journal of Advanced Concrete Technology*, 21(3), 166 – 188. <https://doi.org/10.3151/jact.21.166>
- Bui, V. (2019). Innovative nanoparticle-based admixture for sustainable construction materials and technologies. *Sustainable Construction Materials and Technologies*, 1. <https://www.scopus.com/inward/record.uri?eid=2-s2.0-85071082950&partnerID=40&md5=14083fd33593b8269ee4341623928863>
- Chen, T., & Gao, X. (2019). Effect of carbonation curing regime on strength and microstructure of Portland cement paste. *Journal of CO₂ Utilization*, 34, 74 – 86. <https://doi.org/10.1016/j.jcou.2019.05.034>
- Churakov, S. V., & Labbez, C. (2017). Thermodynamics and Molecular Mechanism of Al Incorporation in Calcium Silicate Hydrates. *Journal of Physical Chemistry C*, 121(8), 4412–4419. <https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.6b12850>
- Cygan, R. T., Liang, J.-J., & Kalinichev, A. G. (2004a). Molecular models of hydroxide, oxyhydroxide, and clay phases and the development of a general force field. *The Journal of Physical Chemistry B*, 108(4), 1255–1266.
- Cygan, R. T., Liang, J. J., & Kalinichev, A. G. (2004b). Molecular models of hydroxide,

- oxyhydroxide, and clay phases and the development of a general force field. *Journal of Physical Chemistry B*, 108(4), 1255–1266. <https://doi.org/10.1021/jp0363287>
- Fang, S., Zhao, L., Rong, G., Chen, B., Xu, X., Qiu, H., & Cao, X. (2023). Converting coastal silt into subgrade soil with biochar as reinforcing agent, CO₂ adsorbent, and carbon sequestering material. *Journal of Environmental Management*, 344. <https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2023.118394>
- Fuentes-Azcatl, R., Mendoza, N., & Alejandre, J. (2014). *Improved SPC rigid force field of water based on the dielectric constant: SPC/*.
- Georgakilas, V., Tiwari, J. N., Kemp, K. C., Perman, J. A., Bourlinos, A. B., Kim, K. S., & Zboril, R. (2016). Noncovalent functionalization of graphene and graphene oxide for energy materials, biosensing, catalytic, and biomedical applications. *Chemical Reviews*, 116(9), 5464–5519.
- Hou, D. (2020a). *Molecular simulation on cement-based materials*. Springer.
- Hou, D. (2020b). Molecular Simulation on Cement-Based Materials. In *Molecular Simulation on Cement-Based Materials*. <https://doi.org/10.1007/978-981-13-8711-1>
- Jensen, F. (2017). *Introduction to computational chemistry*. John Wiley & sons.
- Jiang, L., Wu, Q., Gu, Q., Zhong, D., & Wang, L. (2022). Utilization of CO₂-Cured Waste Cement Powder to Enhance the Properties and Microstructure of Cement Mortar and Paste. *Journal of Materials in Civil Engineering*, 34(10). [https://doi.org/10.1061/\(ASCE\)MT.1943-5533.0004416](https://doi.org/10.1061/(ASCE)MT.1943-5533.0004416)
- Jun, Y., Han, S. H., & Kim, J. H. (2023). Performance of CO₂-Cured Alkali-Activated Slag Pastes During Curing and Exposure. *International Journal of Concrete Structures and Materials*, 17(1). <https://doi.org/10.1186/s40069-022-00563-3>

- Kovačević, G., Nicoleau, L., Nonat, A., & Veryazov, V. (2016). Revised atomistic models of the crystal structure of C-S-H with high C/S ratio. *Zeitschrift Fur Physikalische Chemie*, *230*(9), 1411–1424. <https://doi.org/10.1515/zpch-2015-0718>
- Kovačević, G., Persson, B., Nicoleau, L., Nonat, A., & Veryazov, V. (2015). Atomistic modeling of crystal structure of Ca_{1.67}SiHx. *Cement and Concrete Research*, *67*, 197–203. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2014.09.003>
- Kunhi Mohamed, A., Parker, S. C., Bowen, P., & Galmarini, S. (2018). An atomistic building block description of C-S-H - Towards a realistic C-S-H model. *Cement and Concrete Research*, *107*(March 2017), 221–235. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2018.01.007>
- Kupgan, G., Abbott, L. J., Hart, K. E., & Colina, C. M. (2018). Modeling amorphous microporous polymers for CO₂ capture and separations. *Chemical Reviews*, *118*(11), 5488–5538.
- Laanaiya, M., & Zaoui, A. (2020). Preventing cement-based materials failure by embedding Fe₂O₃ nanoparticles. *Construction and Building Materials*, *260*. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2020.120466>
- Lewars, E. (2003). Computational chemistry. *Introduction to the Theory and Applications of Molecular and Quantum Mechanics*, 318.
- Liu, Y., & Shi, X. (2010). Molecular dynamics study of interaction between corrosion inhibitors, nanoparticles, and other minerals in hydrated cement. *Transportation Research Record*, *2142*, 58–66. <https://doi.org/10.3141/2142-09>
- Liu, Z., den Heede, P., Zhang, C., Shi, X., Wang, L., Li, J., Yao, Y., Lothenbach, B., & De Belie, N. (2023). Carbonation of blast furnace slag concrete at different CO₂ concentrations: Carbonation rate, phase assemblage, microstructure and thermodynamic modelling. *Cement and Concrete Research*, *169*. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2023.107161>

- Long, W.-J., Gu, Y., Xing, F., & Khayat, K. H. (2018). Microstructure development and mechanism of hardened cement paste incorporating graphene oxide during carbonation. *Cement and Concrete Composites*, *94*, 72 – 84. <https://doi.org/10.1016/j.cemconcomp.2018.08.016>
- Manzano, H., Masoero, E., Lopez-Arbeloa, I., & Jennings, H. M. (2013). Shear deformations in calcium silicate hydrates. *Soft Matter*, *9*(30), 7333–7341. <https://doi.org/10.1039/c3sm50442e>
- Manzano, H., Moeini, S., Marinelli, F., Van Duin, A. C. T., Ulm, F. J., & Pellenq, R. J. M. (2012). Confined water dissociation in microporous defective silicates: Mechanism, dipole distribution, and impact on substrate properties. *Journal of the American Chemical Society*, *134*(4), 2208–2215. <https://doi.org/10.1021/ja209152n>
- Mishra, G., Warda, A., & Shah, S. P. (2022). Carbon sequestration in graphene oxide modified cementitious system. *Journal of Building Engineering*, *62*. <https://doi.org/10.1016/j.jobbe.2022.105356>
- Morales-Cantero, A., Cuesta, A., la Torre, A. G., Santacruz, I., Mazanec, O., Borralleras, P., Weldert, K. S., Gastaldi, D., Canonico, F., & Aranda, M. A. G. (2022). C-S-H seeding activation of Portland and Belite cements: An enlightening in situ synchrotron powder diffraction study. *Cement and Concrete Research*, *161*. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2022.106946>
- Moussa, H., Jiang, W., Alshegri, A., Mansour, A., Hadad, A. E., Pan, H., Tang, R., Song, J., Vargas, J., McKee, M. D., & Tamimi, F. (2020). High strength brushite bioceramics obtained by selective regulation of crystal growth with chiral biomolecules. *Acta Biomaterialia*, *106*, 351–359. <https://doi.org/10.1016/j.actbio.2020.01.047>

- Olsen, R., Leirvik, K. N., Kvamme, B., & Kuznetsova, T. (2016). Effects of Sodium Chloride on Acidic Nanoscale Pores between Steel and Cement. *Journal of Physical Chemistry C*, *120*(51), 29264–29271. <https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.6b10043>
- Papatzani, S., & Paine, K. (2018). Lowering cement clinker: A thorough, performance based study on the use of nanoparticles of SiO₂ or montmorillonite in portland limestone nanocomposites. *European Physical Journal Plus*, *133*(10). <https://doi.org/10.1140/epjp/i2018-12305-6>
- Pellenq, R. J. M., Kushima, A., Shahsavari, R., Van Vliet, K. J., Buehler, M. J., Yip, S., & Ulm, F. J. (2009). A realistic molecular model of cement hydrates. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, *106*(38), 16102–16107. <https://doi.org/10.1073/pnas.0902180106>
- Perera-Mercado, Y., Zhang, N., Hedayat, A., Figueroa, L., Saucedo-Salazar, E., Clements, C., Bolaños Sosa, H. G., Tupa, N., Morales, I. Y., & Canahua Loza, R. S. (2023). Production and Incorporation of Calcium-Hydrolyzed Nanoparticles in Alkali-Activated Mine Tailings. *Nanomaterials*, *13*(12). <https://doi.org/10.3390/nano13121875>
- Potapov, V., Efimenko, Y., Fediuk, R., & Gorev, D. (2022). Performances of Concrete Modified with Hydrothermal SiO₂ Nanoparticles and Basalt Microfiber. *ACI Materials Journal*, *119*(5), 139 – 151. <https://doi.org/10.14359/51735952>
- Ramézani, H., Jeong, J., Bhatia, S. K., & Papadakis, V. G. (2021). Assessment of CO₂ adsorption capacity in Wollastonite using atomistic simulation. *Journal of CO₂ Utilization*, *50*. <https://doi.org/10.1016/j.jcou.2021.101564>
- Reddy, K. C., Seo, J., Yoon, H. N., Kim, S., Kim, G. M., Son, H. M., Park, S., & Park, S. (2022). Supercritical CO₂-Induced Evolution of Alkali-Activated Slag Cements. *Materials*, *15*(17). <https://doi.org/10.3390/ma15175873>

- Richardson, I. G. (1999). The nature of CSH in hardened cements. *Cement and Concrete Research*, 29(8), 1131–1147.
- Sinclair, R. C. (2019). *No Title*. <https://github.com/velocirobbie/make-graphitics>
- Siu, S. W. I., Pluhackova, K., & Böckmann, R. A. (2012). Optimization of the OPLS-AA force field for long hydrocarbons. *Journal of Chemical Theory and Computation*, 8(4), 1459–1470.
- Stefaniuk, D., Hajduczek, M., Weaver, J. C., Ulm, F. J., & Masic, A. (2023). Cementing CO₂ into C-S-H: A step toward concrete carbon neutrality. *PNAS Nexus*, 2(3). <https://doi.org/10.1093/pnasnexus/pgad052>
- Sun, Y., Meng, X., Liu, W., & Ren, Y. (2023). Study on the properties of C-S-H/epoxy nanocomposite structure doped with silica nanoparticles. *Journal of Building Engineering*, 74. <https://doi.org/10.1016/j.jobbe.2023.106894>
- Thomas, J. J., Jennings, H. M., & Allen, A. J. (1998). The Surface Area of Cement Paste As Measured By Neutron. *Science*, 28(6), 897–905.
- Wang, L., Tian, Z., Ma, G., & Zhang, M. (2020). Interlayer bonding improvement of 3D printed concrete with polymer modified mortar: Experiments and molecular dynamics studies. *Cement and Concrete Composites*, 110, 103571. <https://doi.org/10.1016/j.cemconcomp.2020.103571>
- Yan, W., Wei, H.-G., Muchiri, N. D., Li, F.-L., Zhang, J.-R., & Xu, Z.-X. (2023). Degradation of chemical and mechanical properties of cements with different formulations in CO₂-containing HTHP downhole environment. *Petroleum Science*, 20(2), 1119 – 1128. <https://doi.org/10.1016/j.petsci.2023.03.012>
- Ye, J., Liu, S., Zhao, Y., Li, Y., Fang, J., Zhang, H., & Guan, X. (2023). Development of Ultrafine Mineral Admixture from Magnesium Slag and Sequestration of CO₂. *Buildings*, 13(1).

<https://doi.org/10.3390/buildings13010204>

Yin, J., Zhao, Y.-P., & Zhu, R.-Z. (2005). Molecular dynamics simulation of barnacle cement. *Materials Science and Engineering A*, 409(1–2), 160–166.
<https://doi.org/10.1016/j.msea.2005.05.107>

Zhang, J., Hou, D., Hafiz, R. B., Han, Q., & Ma, H. (2018). Effects of internally introduced sulfate on early age concrete properties: Active acoustic monitoring and molecular dynamics simulation. *Construction and Building Materials*, 188, 1014–1024.
<https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2018.08.187>

Zhou, Y., & Xu, G. (2016). Molecular dynamics study of the interaction of C-S-H and chloride ions. *Key Engineering Materials*, 711, 1061–1068.
<https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/KEM.711.1061>

9. Anexos

Anexo A Algoritmo de entrada para LAMMPS

```
# Title

clear

# -----other settings -----

variable fs index 0.01 # 0.1 fs

variable ps index 100000 # 100 ps

variable nfrequ index 100 # = Nevery * Nrepeat

variable nstep equal ${ps}/${fs}

variable nstep2 equal ${ps}/(2*${fs})

variable heatnpt equal 2000

variable heatnvt equal ${heatnpt}*7

variable tdamp equal ${fs}*100

variable pdamp equal ${fs}*1000

# ----- Structure settings -----

units real

atom_style full

dimension 3

boundary p p p

timestep ${fs}

# ----- Potential settings -----

pair_style lj/cut/coul/long 10.0 10.0

special_bonds lj/coul 0.000000 1.000000 1.000000 angle yes dihedral no
```

```
pair_modify      mix arithmetic

bond_style       harmonic

angle_style      harmonic

box tilt large

#read data C-S-H

read_data 300p.dat extra/atom/types 2 extra/bond/types 1 extra/angle/types 1 extra/dihedral/types 0
extra/improper/types 0

set type 1 charge 1.3600 #CA0
set type 2 charge 2.0 #Caw
set type 3 charge 0.4250 #Ho
set type 4 charge -1.05334 #Ob
set type 5 charge -1.1819 #Obos
set type 6 charge -0.9500 #Oh
set type 7 charge 2.100 #st
set type 8 charge 0.425119 #How
set type 9 charge 0.410 #Hw
set type 10 charge -0.9500 #Ohw
set type 11 charge -0.8200 #Ow

group water type 5 10

group ohw type 4 9

group caw type 2

group oh type 3 8

group law type 1 6 7 11

group csh type 1 2 3 4 5 6 7 8 9 10 11
```

```
# read data CO2

read_data CO2.dat add append offset 11 2 1 0 0

set type 12 charge 0.6512 #C
set type 13 charge -0.3256 #O

group CO2 type 12 13

kspace_style ppm 1e-4

neighbor 5.0 bin

neigh_modify every 1 delay 5 check yes

# ----- Output setting -----

thermo_style custom step etotal temp lx vol press density
thermo          ${nfrequ}

# ----- Relax calculation (0 K) -----

print "----- Relax calculation (0 K) -----"

fix          f1 all box/relax iso 0.0

minimize     1.0e-10 1.0e-10 20000 200000

unfix       f1

write_data  min.dat

# ----- reset timestep and dt -----

reset_timestep 0

timestep     ${fs}
```

```
# ----- Output setting -----  
  
dump          md all custom 10000 md.lampstrj id mol type x y z ix iy iz  
  
compute       msd water msd com yes average yes  
  
compute       msd1 ohw msd com yes average yes  
  
compute       msd2 caw msd com yes average yes  
  
compute       msd3 CO2 msd com yes average yes  
  
  
variable Energy equal etotal  
  
variable pe equal pe  
  
variable ke equal ke  
  
variable evdwl equal evdwl  
  
variable ecoul equal ecoul  
  
variable epair equal epair  
  
variable elong equal elong  
  
variable etail equal etail  
  
variable temp equal temp  
  
variable press equal press  
  
variable vol equal vol  
  
variable lx equal lx  
  
variable ly equal ly  
  
variable lz equal lz  
  
variable density equal density  
  
  
# ----- Check equilibration setting -----
```

```
fix      fout2 all ave/time 1 1000 1000 v_pe v_ke v_evdwl v_ecoul v_epair v_elong v_etail v_temp
v_press v_vol v_lx v_ly v_lz v_density ave  running file min.profile

fix      fout1 all ave/time 1 1000 1000 v_pe v_ke v_evdwl v_ecoul v_epair v_elong v_etail v_temp
v_press v_vol v_lx v_ly v_lz v_density ave window 1 file min2.profile

fix      msd water ave/time 1 1000 1000 v_temp v_Energy v_density c_msd[4] file
msddumpfile_water

fix      msd1 ohw ave/time 1 1000 1000 v_temp v_Energy v_density c_msd[4] file
msddumpfile_ohw

fix      msd2 caw ave/time 1 1000 1000 v_temp v_Energy v_density c_msd[4] file
msddumpfile_caw

fix      msd3 CO2 ave/time 1 1000 1000 v_temp v_Energy v_density c_msd[4] file
msddumpfile_CO2

fix      msd4 CO2 ave/time 1 1000 1000 v_temp v_Energy v_density c_msd[4] ave window 1
file msddumpfile_CO22

fix      msd5 CO2 ave/time 1 1000 1000 v_temp v_Energy v_density c_msd[4] ave  running
file msddumpfile_CO23

velocity      all create 300.0 123456789

#fix f2 csh rigid molecule force * on on on torque * on on on

#fix ab all shake 0.0001 20 0 b 3 a 2

#fix zero csh setforce 0.0 0.0 0.0

# ----- Equilibration (NVT) -----

print "----- Equilibration (NVT) start -----"

fix      f1 all nvt temp 300.0 300.0 ${tdamp}

run      500000

unfix    f1

write_data nvt_eq.dat

write_restart nvt_eq.restart

fix f2 csh rigid molecule force * on on on torque * on on on
```

```
# ----- Equilibration (NVT) -----  
print "----- Equilibration (NVT) start -----"  
fix          f1 all nvt temp 300.0 300.0 ${tdamp}  
run          500000  
unfix        f1  
write_data  nvt_eq2.dat  
write_restart nvt_eq2.restart  
  
include mech.mod
```