

Obravnavo strukture tekočega *n*-butanola s simulacijo molekulske dinamike in rentgenskim sipanjem

Jure Cerar¹, Andrej Lajovic², Andrej Jamnik¹, Matija Tomšič^{1,*}



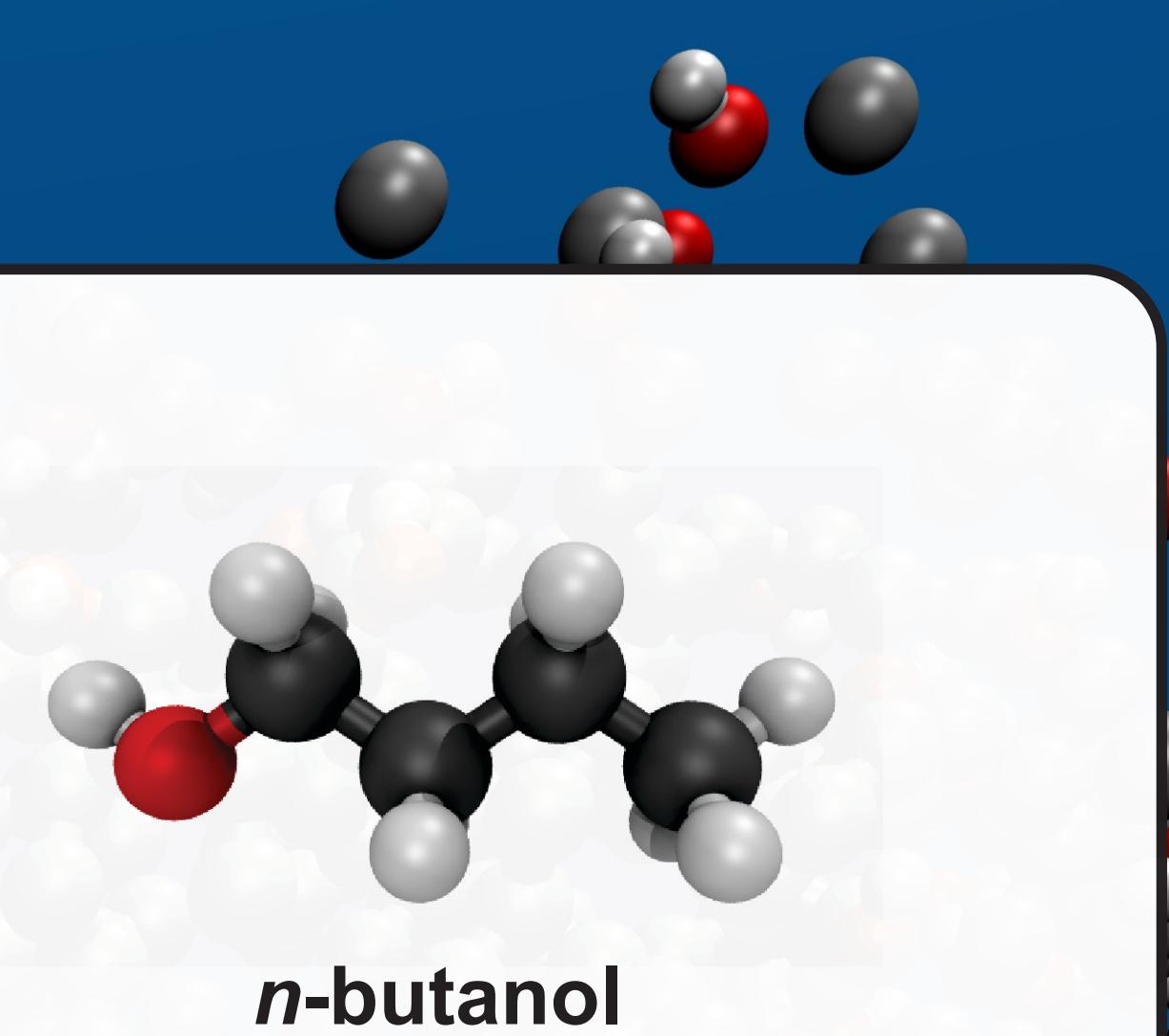
¹ Fakulteta za kemijo in kemijsko tehologijo, Univerza v Ljubljani, Večna pot 113, SI-1000 Ljubljana, Slovenija.

² Samostojni raziskovalec.

* matija.tomsic@fkt.uni-lj.si

Motivacija

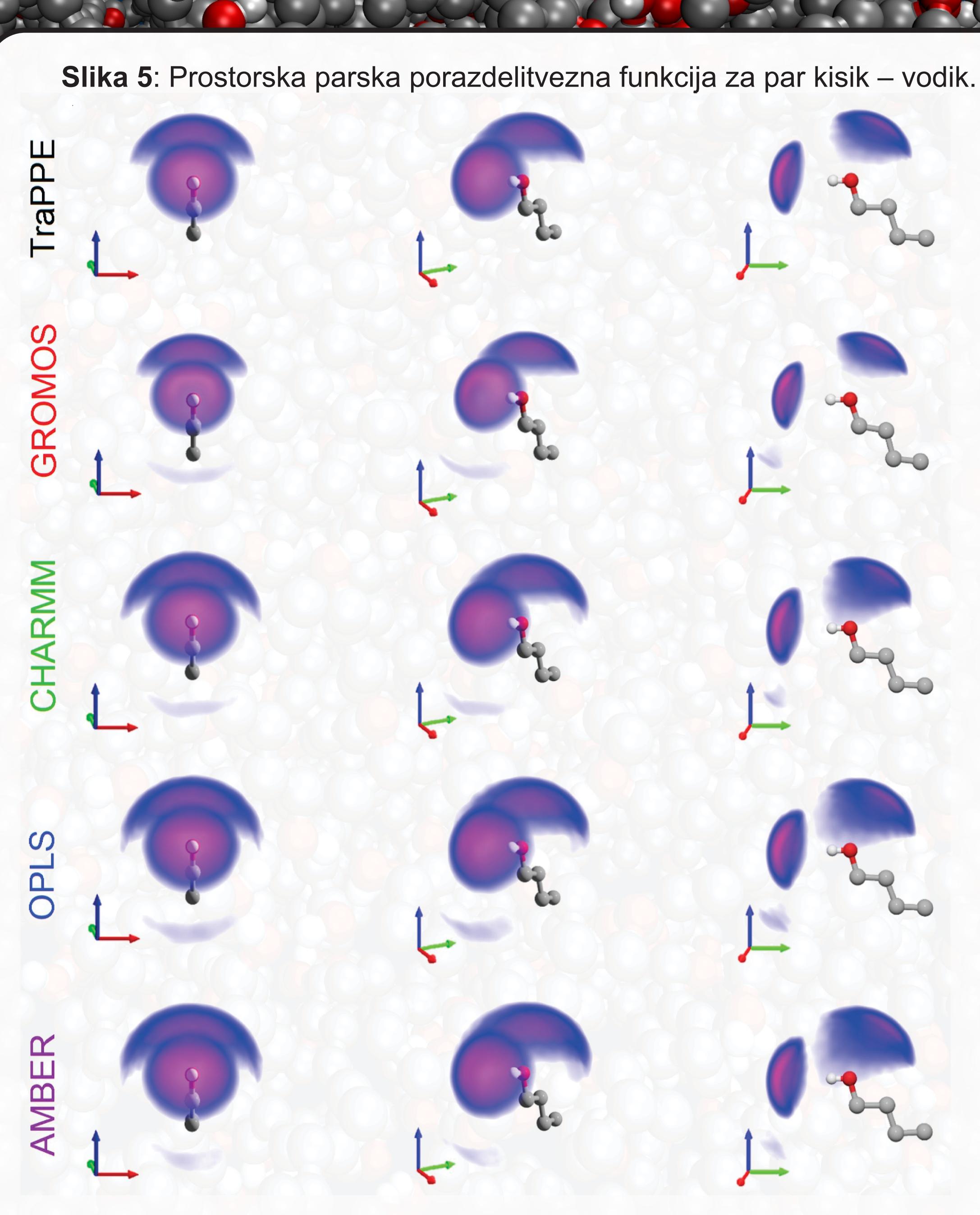
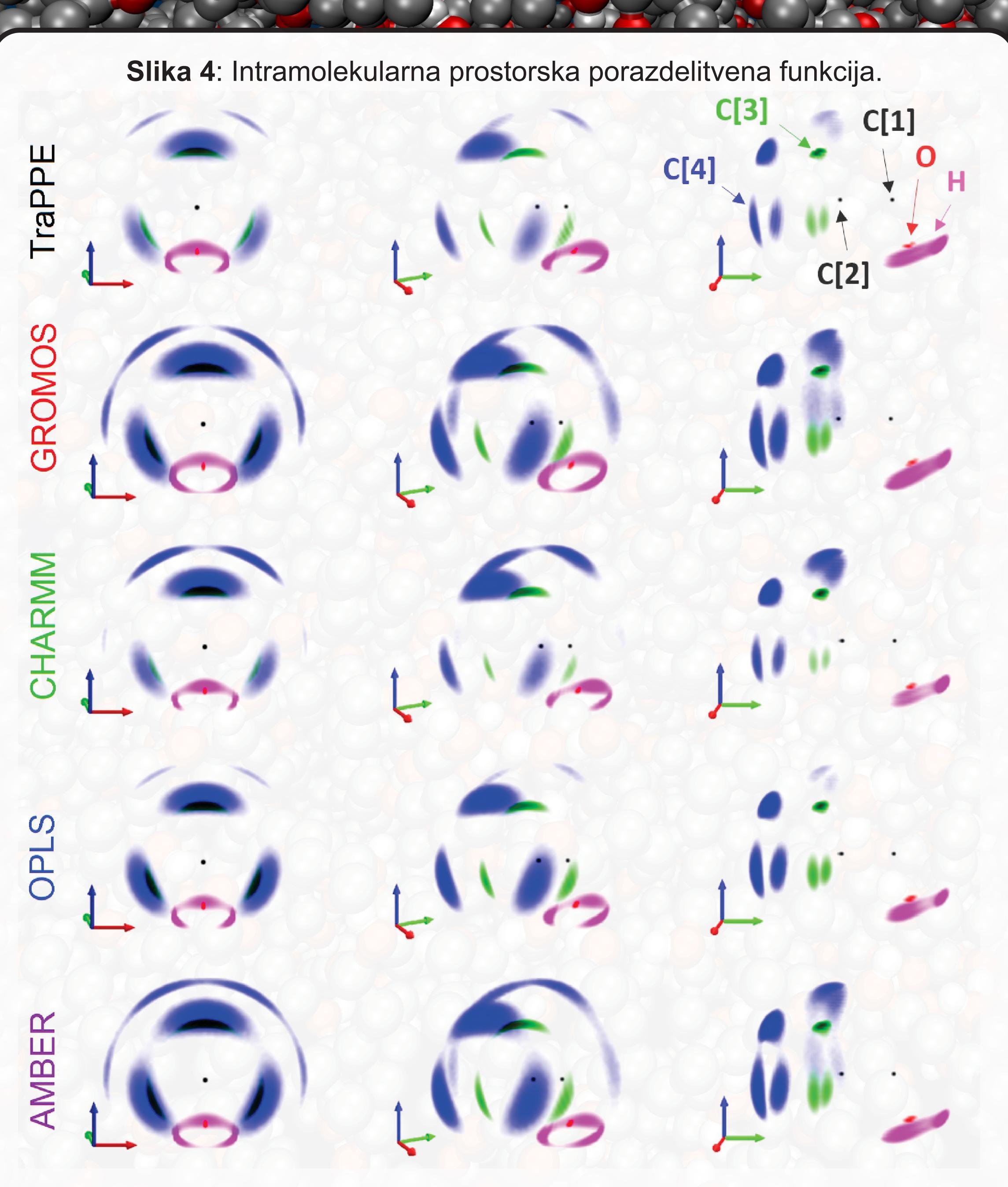
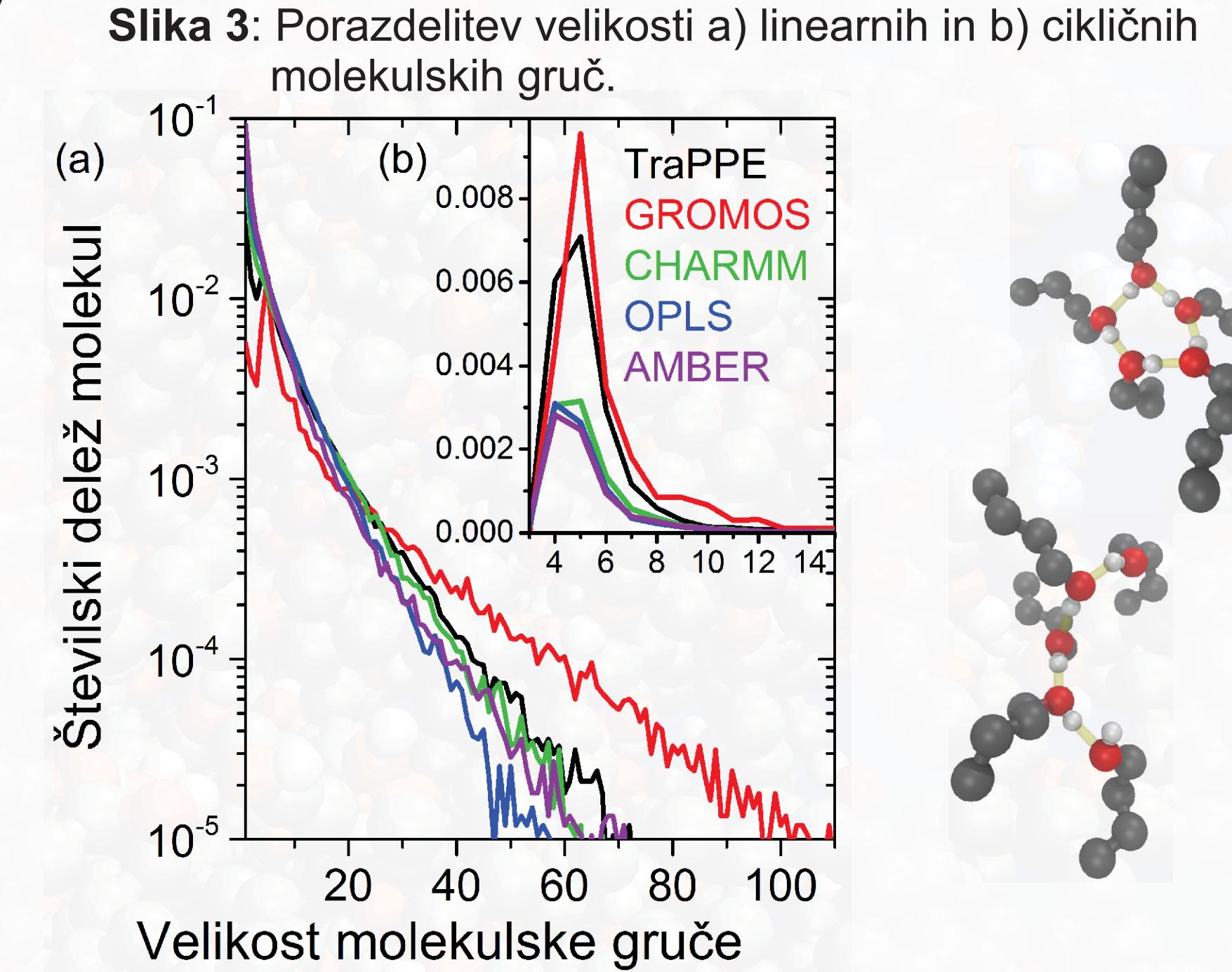
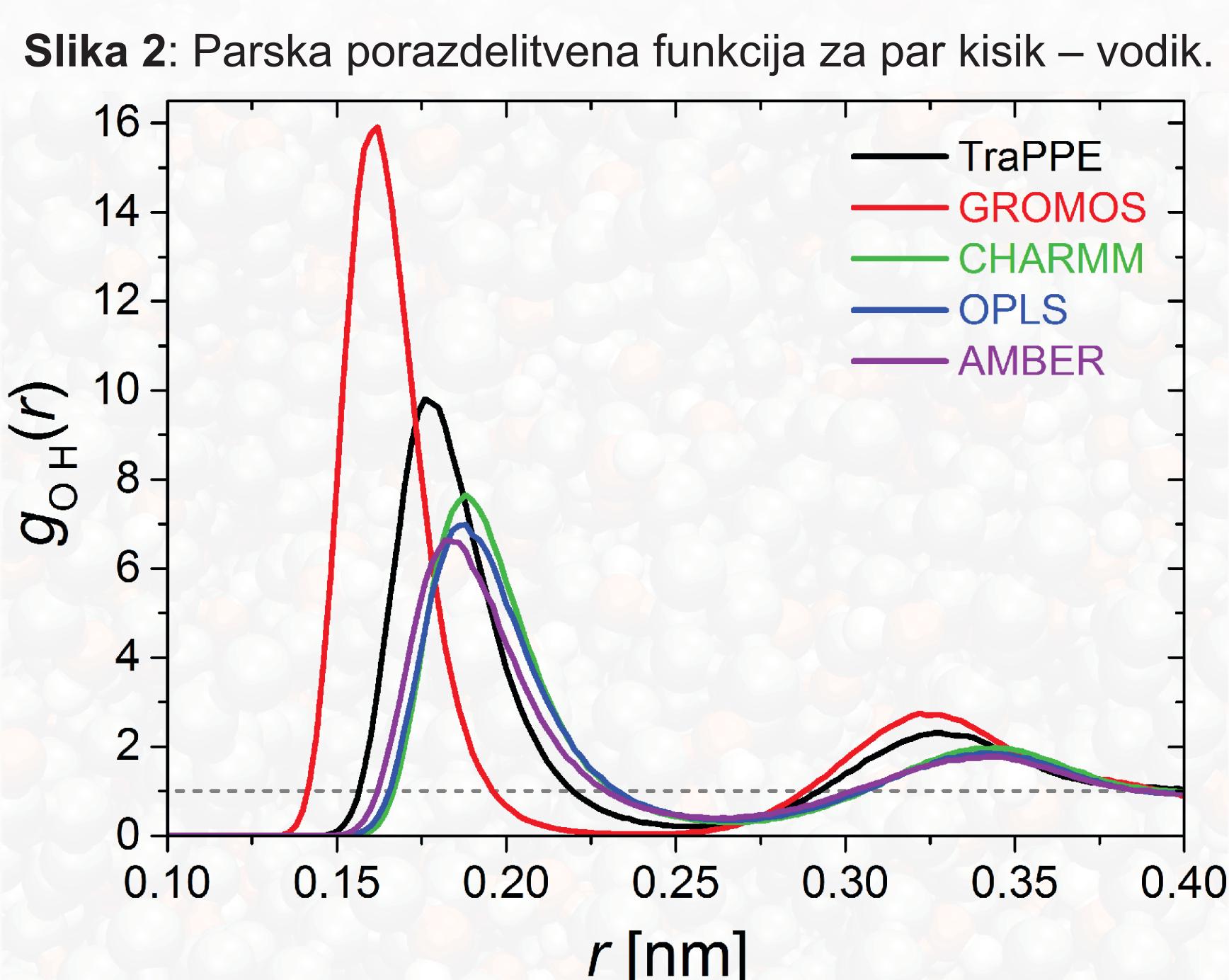
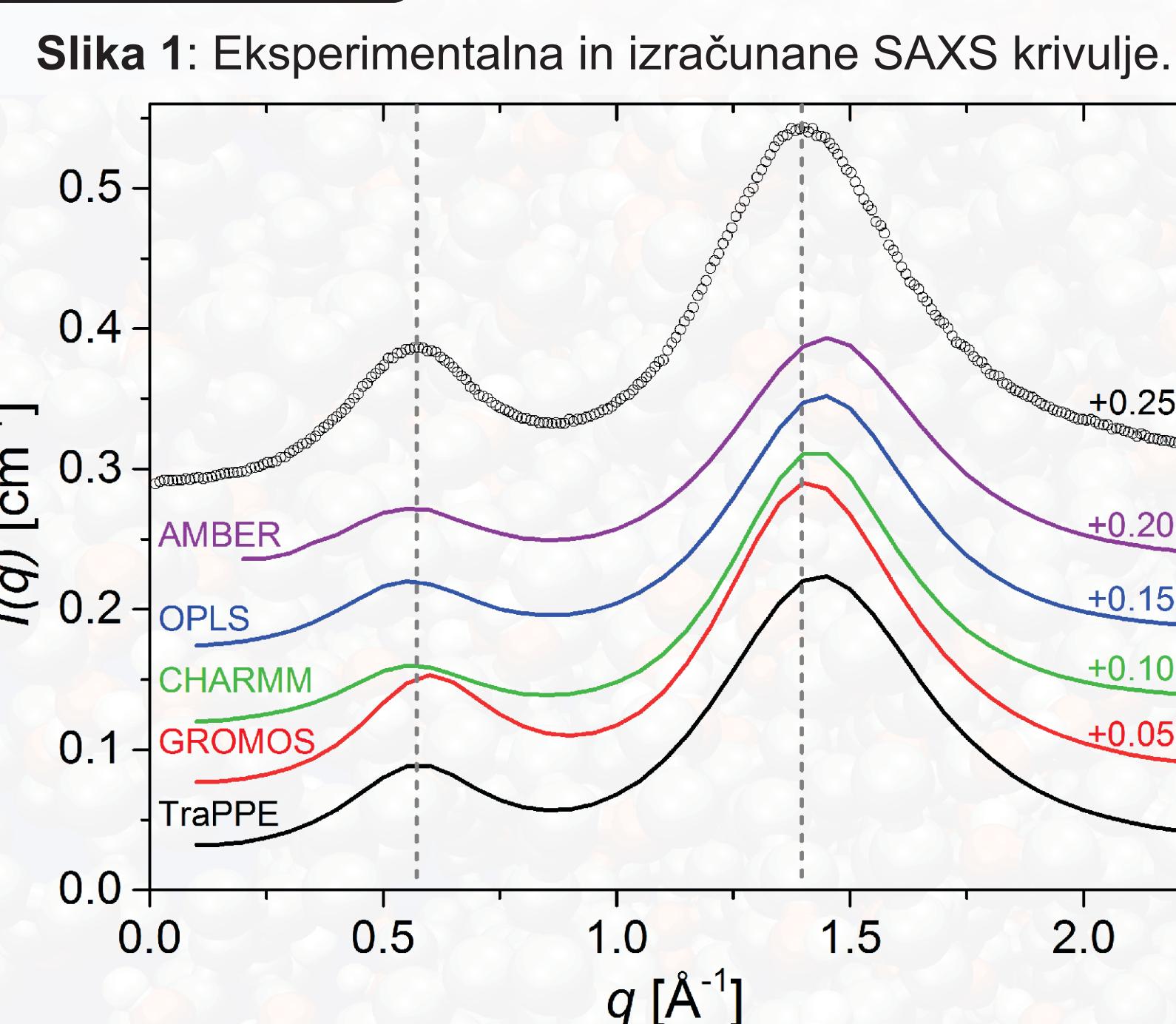
Z računalniškimi simulacijami modelnih kemijskih sistemov dobimo smiselne in uporabne rezultate le če **polja sil**, ki jih modeli vključujejo, dovolj dobro popišejo realne razmere. Na voljo je več različnih modelov. Ti običajno niso neposredno parametrizirani za obravnavo strukturnih lastnosti. V okviru obsežnejših raziskav enostavnih organskih tekočin nas je zanimalo, **kako dobro različni modeli polja sil popišejo strukturne lastnosti** preučevanega sistema. Kot modelni sistem smo uporabili tekoči *n*-butanol pri 25 °C.¹ Za kriterij ocenjevanja modelov *n*-butanola smo uporabili primerjavo med izračunanimi intenzitetami rentgenskega sipanja modelnih sistemov in eksperimentalnimi sipalnimi funkcijami, ki smo jih dobili z merjenjem **ozkokotnega rentgenskega sipanja (SAXS)**. Statistična obravnavo rezultatov simulacij nam je razkrila tudi določene razlike pri popisu vodikovih vezi v uporabljenih modelih butanola. Obravnavali smo modele TraPPE-UA², GROMOS96-54a7³, CHARMM27⁴, OPLS/AA⁵ in AMBER03⁶.



Eksperiment

Izvedli smo **simulacije molekulske dinamike** *n*-butanola ($N = 6600$, $a = 10.029 \text{ nm}$) in za vsak modelni sistem pridobili več neodvisnih konfiguracij simulacijske škatle. Po metodi **dopolnjenega sistema**⁷ smo izračunali odgovarajoče sipalne krivulje in jih **primerjali z eksperimentalnimi rezultati**. Na osnovi rezultatov simulacije smo izračunal še: parske porazdelitvene funkcije, prostorske porazdelitvene funkcije in porazdelitev velikosti molekulskih gruč.

Rezultati



Ugotovitve

- Preizkušeni modeli kvalitativno dobro napovedo **karakteristična sипalna vrhova** (Slika 1) med njimi pa obstajajo kvantitativne razlike – **boljša je napoved** notranjega vrha, ki izvira iz **korelacji med OH skupinami**, slabša pa **napoved** zunanjega vrha, ki ustreza **korelacijam med CH_x skupinami**. Ujemanje izračunanih in izmerjenih absolutnih intenzitet ni najboljše.
- Med modeli se pokažejo razlike pri obravnavi **vodikovih vezi** (Slika 2).
- Porazdelitev velikosti molekulskih gruč se močno razlikuje med modeli. V splošnem je favorizirana tvorba **4 in 5 členskih cikličnih gruč**.
- Med modeli obstajajo kvantitativne razlike v **intramolekularni razporeditvi atomov** (Slika 4) in **prostorski porazdelitvi vodikovih vezi** (Slika 5).

[1] M. Tomšič, A. Jamnik, G. Fritz-Popovski, O. Glatter, L. Vlček, *J. Phys. Chem. B* **2007**, 111 (7), 1738-1751.

[2] N. Schmid, et al., *European Biophysics Journal* **2011**, 40 (7), 843-856.

[3] P. Bjelkmar, P. Larsson, M. A. Cuendet, B. Hess, E. Lindahl, *Journal of Chemical Theory and Computation* **2010**, 6 (2), 459-466.

[4] W. Jorgensen, D. S. Maxwell, J. Tirado-Rives, *J. Am. Chem. Soc.* **1996**, 118 (45), 11225-11236.

[5] J. M. Wang, R. M. Wolf, J. W. Caldwell, P. A. Kollman, D. A. Case, *Journal of Computational Chemistry* **2004**, 25 (9), 1157-1174.

[6] B. Chen, J. J. Potoff, J. I. Siepmann, *J. Phys. Chem. B* **2001**, 105 (15), 3093-3104.

[7] A. Lajovic, M. Tomšič, A. Jamnik, *J. Chem. Phys.* **2010**, 133 (17), 174123.