

Pályázat az ELTE Kémiai Intézet Tudományos Díjára

Túri László

Jelen pályázatomban alapjául a 2015-ben a *Journal of Chemical Theory and Computation* című folyóiratban megjelent "Hydrated Electrons in Water Clusters: Inside or Outside, Cavity or Noncavity?" című dolgozatom szolgál.¹ Ennek a dolgozatnak az előzménye egy 2010-ben a *Science* című folyóiratban megjelent számítógépes szimuláción alapuló mű,² amely nagy feltűnést keltett a hidratált elektronnal foglalkozó csoportok körében.^{3,4} Ez a cikk ugyanis alapvetően kérdőjelezte meg a hidratált elektronnal kialakított tradicionális képet, az üregmodellt, mely szerint a hidratált elektron egy vízmolekulákkal körülvett, jól definiált üregben lokalizálódik. A javasolt új szerkezeti modell szerint az elektron számos vízmolekulán delokalizálódva stabilizálódik oly módon, hogy lokálisan megnöveli a víz sűrűségét.

A pályázatomban benyújtott publikációban több, különböző elméleti szempont alapján vizsgáltam meg a hidratált elektron fizikai tulajdonságait. Az elemzés kulcsmomentuma az alkalmazott szimulációs technika (egy-elektronos kevert kvantumklasszikus molekuladinamikai módszer) legfontosabb részének, az elektron-vízmolekula pszeudopotenciálnak az analízise. A pszeudopotenciál írja le a kvantummechanika törvényei szerint kezelt elektronok és a klasszikus potenciállal modellezett vízmolekulák között létrejövő kölcsönhatást. Az elemzés során a nem-üreg szerkezetet eredményező potenciált, a Larsen-Glover-Schwartz (LGS) potenciált,² vettem össze az általunk korábban kidolgozott üregszerkezetet jósoló Turi-Borgis (TB) potenciállal.⁵ Az összehasonlítás elvi alapjául az szolgál, hogy mind az LGS, mind a TB potenciál ugyanazt a vízmodellt használja, és a két potenciál kidolgozása ugyanazt az elvet, a sztatikus-kicserélődési pszeudopotenciál-elméletet alkalmazza.⁵ Az összehasonlítás során a következő három aspektust vettem figyelembe: *a)* egyszerű, de egzakt elektron-vízmolekula kvantummechanikai modellszámításokon keresztül hasonlítottam össze a két potenciál jóslatait; *b)* a két potenciál alkalmazásával kevert kvantumklasszikus szimulációk segítségével jellemeztem véges méretű vízmolekulafürt anionok szerkezeti, energetikai és spektroszkópiai tulajdonságait, és *c)* a szimulációk során kinyert vízkonfigurációkra elvégzett kvantumkémiai számítások eredményeivel hasonlítottam össze a pszeudopotenciálokkal számolt energiákat.

A vizsgálatok során bebizonyosodott, hogy az LGS modell által jósolt tulajdonságok számos esetben drámai módon eltérnek a kísérleti eredményektől és más elméleti módszerek

által jóslott mennyiségektől. Részleteiben: *a)* az LGS által számított tulajdonságok nem teljesítik a pszeudopotenciál-elméletnek a potenciál megalkotásához megkövetelt kritériumait, *b)* a vízmolekulafürt anionok szimulációs vizsgálatai során számolt fizikai tulajdonságok és azok fürtmérettől való függése inkonzisztens a rendelkezésre álló molekulafürt kísérleti eredményekkel, és *c)* megbízható kvantumkémiai számítások azt jósolják, hogy azokban a konfigurációkban, ahol az LGS potenciál erősen köti a felesleg elektront, az elektron valójában csak alig, vagy nagyon gyengén kötött állapotot tölt be. Ezzel szemben, a TB modell viselkedése mindhárom vizsgálati csoportban kielégítő eredményt adott.

Konklúzióként megfogalmazható, hogy a tanulmány megmutatta, hogy az a szimulációs munka, amely forradalmian új hidratált elektron szerkezetet jósol, olyan modellen alapul, amely számos esetben erősen megkérdőjelezhető fizikai tulajdonságokat eredményez kis méretű negatívan töltött vízmolekulafürtökben.² Ezzel szemben, az a modell, mely üregszerkezetet jósol hidratált elektron szimulációkban,⁵ konzisztens módon írja le az itt vizsgált fizikai tulajdonságokat. Összességében megállapíthatjuk, hogy a 2010-es tanulmány,² bármennyire is rangos folyóiratban jelent meg, nem helyesen megalkotott modellen alapul, ezért eredményeit és konklúzióit (mint például a hidratált elektron nem-üreg szerkezete) csak nagy óvatossággal és kritikusan szabad csak kezelni.

Befejezésként megjegyzem, hogy a pályázat alapjául szolgáló mű egy magas impakt faktorú (5,498) folyóiratban megjelent "egyszerűs" publikáció. Érdeme, hogy egy befolyásos folyóiratban publikált, új szemléletet közvetítő eredményesorról mutatja meg, hogy azok nagy valószínűséggel nem helytállóak, s ezzel támogatja a korábban felállított tradicionálisnak mondható szerkezeti modellt.

Referenciák

¹ Turi, L. *J. Chem. Theory Comput.*, **2015**, *11*, 1745.

² Larsen, R. E.; Glover, W. J.; Schwartz, B. J. *Science*, **2010**, *329*, 65.

³ Turi, L.; Madarász, Á. *Science*, **2011**, *331*, 1387-c.

⁴ Jacobson, L. D.; Herbert, J. M. *Science*, **2011**, *331*, 1387-d.

⁵ Turi, L.; Borgis, D. *J. Chem. Phys.* **2002**, *117*, 6186.