

ปรารภชื่อ : ไชยสิทธิ์ : การจำลองพลวัตเชิงโมเลกุลไอออนัม-เอ็กซ์เอสของไอออนเมทิลแอมโมเนียมในสารละลายน้ำ (AN ONIOM-XS MD SIMULATION OF METHYLAMMONIUM ION IN AQUEOUS SOLUTION) อาจารย์ที่ปรึกษา : รองศาสตราจารย์ ดร.อนันต์ ทองระอา, 77 หน้า.

เทคนิคการจำลองพลวัตเชิงโมเลกุลที่ผสมผสานกลศาสตร์ควอนตัมและกลศาสตร์โมเลกุลบนพื้นฐานของวิธี ไอออนัม-เอ็กซ์เอส (ONIOM-XS MD) ถูกนำมาประยุกต์เพื่อศึกษาการเกิดพันธะไฮโดรเจนระหว่างไอออนเมทิลแอมโมเนียม (CH_3NH_3^+) กับตัวทำละลายที่เป็นน้ำ โดยเทคนิคการจำลองพลวัตเชิงโมเลกุลไอออนัม-เอ็กซ์เอสนี้ ระบบที่ศึกษาจะถูกแบ่งออกเป็นสองส่วน ได้แก่ ส่วนที่เป็นกลศาสตร์ควอนตัมซึ่งประกอบด้วยไอออน CH_3NH_3^+ และน้ำที่อยู่รอบ ๆ ไอออน และส่วนที่เหลือที่เป็นกลศาสตร์โมเลกุลซึ่งประกอบด้วยตัวทำละลายที่เป็นน้ำ ส่วนของระบบที่เป็นทรงกลมซึ่งประกอบด้วยไอออน CH_3NH_3^+ และน้ำที่อยู่รอบ ๆ ไอออนนั้น จะถูกอธิบายโดยใช้กลศาสตร์ควอนตัมในระดับฮาร์ตรี-ฟอก (HF) โดยใช้เบสิสเซตชนิด DZP ในขณะที่ส่วนที่เหลือของระบบจะถูกอธิบายโดยใช้ฟังก์ชันศักร์คู่ การเลือกใช้การคำนวณในระดับ HF และเบสิสเซตชนิด DZP พิสูจน์ว่าจะสามารถให้ผลการศึกษาที่น่าเชื่อถือและเหมาะสมกับเวลาที่ต้องใช้ในการจำลองพลวัตเชิงโมเลกุลดังกล่าว ผลลัพธ์ของการจำลองพลวัตเชิงโมเลกุลบนพื้นฐานของวิธี ไอออนัม-เอ็กซ์เอส แสดงให้เห็นความยืดหยุ่นของโครงสร้างไฮเดรชันของไอออน CH_3NH_3^+ ในสารละลายน้ำอย่างชัดเจน โดยมีจำนวนโมเลกุลน้ำที่หลากหลายแตกต่างกันตั้งแต่ 3 ถึง 8 โมเลกุล และตั้งแต่ 12 ถึง 19 โมเลกุลที่เข้ามาเกี่ยวข้องกับซอลเวชันชั้นแรกของหมู่แอมโมเนียม ($-\text{NH}_3^+$) และหมู่เมทิล ($-\text{CH}_3$) ตามลำดับ โดยหมู่ $-\text{NH}_3^+$ จะเกิดพันธะไฮโดรเจนกับน้ำที่อยู่ใกล้เคียงประมาณ 3.6 พันธะ และพบว่า พันธะไฮโดรเจนดังกล่าวจะมีความแข็งแรงน้อยกว่าพันธะไฮโดรเจนที่เกิดจากน้ำด้วยกันเอง นอกจากนี้ มีหลักฐานชัดเจนว่าผลของด้านที่ไม่ชอบน้ำของหมู่ $-\text{CH}_3$ มีผลให้พันธะไฮโดรเจนของโมเลกุลน้ำในบริเวณนี้มีความแข็งแรงมากขึ้น ลักษณะดังกล่าวสอดคล้องกับความสามารถในการสลายโครงสร้างของไอออน CH_3NH_3^+ ในสารละลายน้ำ

PRANGTHONG CHAIYASIT : AN ONIOM-XS MD SIMULATION OF
METHYLAMMONIUM ION IN AQUEOUS SOLUTION.

THESIS ADVISOR : ASSOC. PROF. ANAN TONGRAAR, Ph.D. 77 PP.

METHYLAMMONIUM ION/ HYDROGEN BOND/ ONIOM-XS / STRUCTURE-
BREAKING

Sophisticate QM/MM MD technique based on the ONIOM-XS (Own N-layered Integrated Molecular Orbital and Molecular Mechanics – Extension to Solvation) method, ONIOM-XS has been employed to study the CH_3NH_3^+ -water hydrogen bonds (HBs) in aqueous solution. By the ONIOM-XS MD technique, the system is partitioned into a small QM treated region, *i.e.*, a sphere which contains the CH_3NH_3^+ ion and its surrounding water molecules, and the remaining MM region, *i.e.*, the bulk water. The interactions within the QM subsystem were treated at the HF level of accuracy using the DZP basis set, while the rest of the system was described by classical pair potentials. The HF method and the DZP basis set employed in this study are proved to be suitable choices, compromising between the quality of the simulation results and the requirement of the CPU time. The ONIOM-XS MD results clearly reveal a flexible CH_3NH_3^+ solvation, showing various numbers of water molecules, ranging from 3 to 8 and from 12 to 19, cooperatively involved in the primary region of the $-\text{NH}_3^+$ and $-\text{CH}_3$ species, respectively. In this respect, it is observed that the $-\text{NH}_3^+$ group participates in about 3.6 HBs with its nearest-neighbor waters, and the HBs between the $-\text{NH}_3^+$ hydrogen atoms and their nearest-neighbor waters are relatively weaker than the HBs of bulk water. In addition, it is evident that the “hydrophobic effect” of the $-\text{CH}_3$ species results in slightly more attractive water-water HB interactions in this region

Such phenomenon corresponds to a clear “structure-breaking” ability of CH_3NH_3^+ in aqueous solution.

