**Разработка полуэмпирического метода расчета КИЭ для реакций протонного обмена**

Руденко М.А., Елисеев А.А., Митрофанов А.А.

*Химический факультет МГУ имени М.В. Ломоносова, 119991, Москва, Россия,*

mikhail.rudenko@chemistry.msu.ru

 Задача разделения чистой (H2O) и тяжелой (HTO) воды является актуальной в настоящее время ввиду ее побочного образования на многих производствах. Перспективным методом очистки, ввиду его низкой энергозатратности, является использование материалов, обладающих кинетическим изотопным эффектом (КИЭ), заключающимся в различии скоростей протонного переноса 1H и 3H между молекулами воды и очистителя. Проведение эксперимента для определения значений КИЭ занимает длительное время, требует наличия дорогостоящих реактивов, а также приводит к избыточному облучению персонала. Использование квантово-химического моделирования может существенно снизить время определения КИЭ и исключить получение дополнительной дозовой нагрузки. В данной работе мы использовали полуэмпирические расчеты ввиду их высокой точности и малого времени расчета, для данного класса реакций.

Был разработан подход, реализованный с использованием программы MOPAC и языка программирования Python. Полуэмпирические расчеты проводились с использованием метода PM7. Суть подхода заключалась в моделировании пути реакции обмена протона, посредством его последовательного смещения от молекулы растворителя, к молекуле, вещества, выбранного в качестве очистителя. На каждом шаге производилась оптимизация геометрии, расчет гессиана, определение энергии нулевого колебательного уровня и теплоты образования системы. Затем атом водорода 1H заменялся на 2D/3T и с использованием уже рассчитанного гессиана и определялась энергия нулевого колебательного уровня изотопнозамещенной молекулы. Это позволило существенно сократить время расчета. После чего атом водорода смещался на 0.01 Å и повторялся предыдущий шаг. Затем по зависимости теплоты образования от смещения атома водорода определялась координата переходного состояния и с использованием ее энергии нулевого колебательного уровня рассчитывалась величина КИЭ [1,2].

Разработанный подход был протестирован на наборе, состоящем более чем из 15 экспериментальных литературных значений КИЭ и показал высокую корреляцию между предсказанными и экспериментальными величинами КИЭ.

1. Amnon Kohen Kinetic Isotope Effects as Probes for Hydrogen Tunneling in Enzyme Catalysis.// Progress in Reaction Kinetics and Mechanism. 2003. V. 28. P. 119–156.

2. À. González-Lafont and J. M. Lluch Kinetic isotope effects in chemical and biochemical reactions: physical basis and theoretical methods of calculation .//Wiley Interdiscip. Rev. Comput. Mol. Sci.. 2016. V. 6. P. 584–603