

doi:

Н.О. АТАМАСЬ, Л.А. БУЛАВІН, Г.М. ВЕРБИНСЬКА, А.В. БРИТАН
Київський національний університет ім. Тараса Шевченка, фізичний факультет
(Просп. Глушкова, 4-б, Київ 03022; e-mail: atamasphys@mail.univ.kiev.ua)

КОНЦЕНТРАЦІЙНІ ЗАЛЕЖНОСТІ ВЛАСТИВОСТЕЙ ВОДНОГО РОЗЧИНУ ХЛОРИДУ НАТРІЮ ПО ДАНИХ МЕТОДІВ МОЛЕКУЛЯРНОЇ ДИНАМІКИ ТА КВАЗІПРУЖНОГО РОЗСІЮВАННЯ НЕЙТРОНІВ

УДК 539

В роботі представлено результати досліджень впливу концентрації однозарядного електроліту на енергетичні, структурні та динамічні властивості водного розчину NaCl при $T = 300$ K за концентрацій $0,00 \leq X_{NaCl} \leq 0,28$ м.д. методами молекулярної динаміки та квазіпружного розсіювання нейтронів.

Ключові слова: водний розчин, електроліт, молекулярне моделювання, гідратна оболонка, час осідлого життя, коефіцієнт дифузії.

1. Вступ

Останніми роками було зроблено значний внесок у розробку мікроскопічних теорій рідинних систем, що дозволяють задовольнити запити хімії [1], біохімії [2] та молекулярної біології [3]. У зв'язку з тим, що, з одного боку, вода та іони є невід'ємною складовою блоків для розрахунків біомолекулярних систем, а, з іншого боку, прямо застосовуються для опису властивостей протеїнів, наприклад, опису проникнення іонів крізь мембрани у водних розчинах протеїнів [4], необхідність коректного опису їх взаємодії між собою не викликає сумнівів. Відомості про структурні, термодинамічні та динамічні властивості розчинів солей електролітів є надзвичайно важливими для розуміння та оптимізації чисельних процесів, насамперед тих, що пов'язані з реакціями у електрохімічних та біологічних рідинних системах. Так звані біологічні рідини на сьогодні часто використовують як експериментальні моделі під час розробки діагностичних методик та при створенні нових підходів,

які враховують особливості досліджуваних живих систем [5]. При цьому термін "біологічні рідини" включає в себе не тільки рідини, які існують в живих організмах (кров, лімфа, внутрішньоклітинна та міжклітинна рідина), а і штучно створені модельні рідини, однією із яких є водний розчин хлориду натрію, що широко використовується у медицині. Коректний опис взаємодії в біологічних рідинах вимагає розуміння процесів на молекулярному рівні, що можливо зробити з використанням чисельного моделювання, а саме з використанням методу Монте-Карло або методу молекулярної динаміки. Зважаючи на те, що вплив іонів, їх концентрації на процеси формування структури води є важливим для розуміння стабільності протеїнів, реакції ензимів дослідження концентраційних властивостей біологічних рідин, а саме водного розчину хлориду натрію за різних концентрацій є важливим та актуальним.

2. Опис методів дослідження

2.1. Модельні уявлення та деталі комп'ютерного експерименту

При проведенні досліджень було вибрано молекулярну модель рідини та парний потенціал, який є

© Н.О. АТАМАСЬ, Л.А. БУЛАВІН,
Г.М. ВЕРБИНСЬКА, А.В. БРИТАН, 2015

сумою леннард-джонсовської та кулонівської складових [6]:

$$U = U_{LJ} + U_C = \sum_{ij} 4\epsilon_{ij} \left[\left(\frac{\sigma_{ij}}{r_{ij}} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma_{ij}}{r_{ij}} \right)^6 \right] + \sum_{ij} \frac{q_i q_j}{r_{ij}}, \quad (1)$$

де ϵ_{ij} , σ_{ij} та q_i одержуються на основі модельних уявлень та з аналізу експериментальних даних, r_{ij} – відстань між взаємодіючими частинками. Параметри ϵ_{ij} , та σ_{ij} для взаємодії між атомами молекул розчинника із атомами молекул розчиненої речовини розраховуються з використанням комбінаційного правила Лоренца–Бертло [7]:

$$\sigma_{ij} = \frac{\sigma_i + \sigma_j}{2}, \quad \epsilon_{ij} = \sqrt{\epsilon_i \epsilon_j}. \quad (2)$$

Значення зарядів та Леннард–Джонсівських параметрів σ і ϵ для води, аніонів і катіонів [7], а також їх маса наведені в табл. 1. Дослідження особливостей впливу концентрації електроліту на енергетичні, структурні та динамічні характеристики водного розчину проводилось методом молекулярної динаміки (МД), який було реалізовано за допомогою модифікованого програмного пакета DL_POLY [8] з часовим кроком 2 фс та періодичними граничними умовами. Атоми молекул води та іони являли собою тверді, заряджені модельні системи з фіксованою геометрією. Міжмолекулярні параметри взаємодії одержувались на основі атом-атомного уявлення для взаємодії між частинками різних сортів із використанням правила Лоренца–Бартло. Об'єм елементарної комірки відповідав експериментальним значенням густини водного розчину NaCl при $T = 300$ К. Опис атоматомних взаємодій за участю молекул води та іонів проводився за допомогою OPLS потенціалів для рідинних систем [10]. Взаємодія між молекулами води описувалась із використанням SPC/E потенціалів [9]. Стабілізація системи в NVT ансамблі проводилась із використанням методу, запропонованому в [10]. Електростатична взаємодія між частинками враховувалась використанням евальдового підсумовування [11]. Розрахунки проводились за такою схемою: стабілізація досліджуваної системи досягалась впродовж 10^6 кроків, після чого проводилось 10^6 кроків розрахунків. Усі радіальні

функції розподілу (РФР) були одержані з кроком 200 фс. Одне з чільних місць у дослідженнях з використанням чисельних методів займають розрахунки і аналіз РФР, що характеризують ймовірності розташування атомів [6] у системі, та дозволяють визначити густину ймовірності знаходження атомів сорту “y” навколо атомів сорту “x” і є функцією відстані:

$$G_{xy}(R) = \frac{\langle N_y(R, R + dR) \rangle}{\rho_y 4\pi R^2 dR}. \quad (3)$$

У виразі чисельник дорівнює середньому числу атомів сорту “y” в сферичному шарі з радіусом між R та $(R + dR)$, а знаменник нормує розподіл так, що $G_{xy} = 1$ при N_y і дорівнює чисельній густині $\rho_y = N/V$. Інтегрування РФР у межах першого максимуму дозволяє точно визначити кількість найближчих сусідів. Необхідно зазначити, що положення першого максимуму РФР ототожнюється з довжиною міжатомного зв'язку, а положення першого та другого мінімумів функції РФР ототожнюється з розмірами першої і другої гідратаційних сфер. Перша гідратаційна сфера визначається як простір, обмежений сферою з радіусом, який чисельно дорівнює положенню першого мінімуму РФР. Друга гідратаційна сфера визначається як простір сферичного шару між першим і другим мінімумами РФР. Для аналізу сітки водневих зв'язків між молекулами води використано такий критерій: утворення водневого зв'язку можливе на відстані між найближчими сусідніми атомами кисню молекул води не більший за 3,5 Å. За водневий зв'язок між найближчими сусідами вибирався такий, який має мінімальну відстань між атомами О та Н з усіх можливих міжмолекулярних відстаней. Кут водневого зв'язку визначався як кут між О–Н вектором зв'язку однієї молекули води і О–Н вектором водневого зв'язку іншої молекули води, що набуває значення від 130° до 180° [12].

Таблиця 1. Параметри моделювання

Атом	q, e	$\sigma, \text{Å}$	$\epsilon, \text{ккал/моль}$	$M, \text{а.о.м.}$
H	+0,41	1,0	0,15488	1,0
O	-0,82	3,166	0,65020	15,990
Cl ⁻	-1	4,75	0,1182	34,454
Na ⁺	+1	2,62	0,115661	22,9897

2.2. Квазіпружне розсіювання нейтронів (КПРН) для дослідження рідини

Дослідження динамічних властивостей водних розчинів NaCl за різних концентрацій проводилось із використанням методу квазіпружного розсіювання нейтронів (КПРН) [13]. Як відомо, метод КПРН особливо чутливий до динаміки молекул в рідинах, що містять водень, і дозволяє спостерігати за дифузійними рухами молекул протягом часових відрізків (10^{-10} – 10^{-12}) с і, таким чином, отримувати інформацію про колективні та одночастинкові рухи молекул. Вимірювання спектрів квазіпружного розсіювання повільних нейтронів за часом прольоту проводилось на багатодетекторному спектрометрі, розташованому на реакторі ВВР–МІЯД НАН України. Для виявлення величини і ролі колективного внеску в коефіцієнт самодифузії молекул розчинника нами проводились дослідження розсіювання повільних нейтронів у водних розчинах NaCl за різної концентрації іонів. Розширення квазіпружного піка в цих розчинах визначалось за методикою, викладеною в роботі [14]. Зазначимо, що розчинення солей у воді супроводжується гідратацією іонів. При цьому деяке число молекул розчинника вступає в безпосередню взаємодію з іонами, утворюючи гідратну оболонку навколо нього. Разом з тим вплив іонів на структуру рідини не обмежується лише ближньою гідратацією. У розчині вся маса води знаходиться

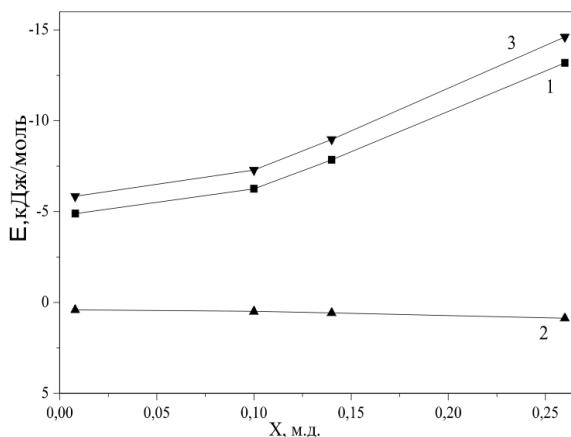


Рис. 1. Концентраційна залежність середньої сумарної енергії міжмолекулярної взаємодії ($E_{\text{сум}}$), Ван-дер-Ваальсовської ($E_{\text{ВдВ}}$) та кулонівської ($E_{\text{кулон}}$) складових у водному розчині NaCl при $T = 300$ К: 1 – $E_{\text{сум}}$, 2 – $E_{\text{ВдВ}}$, 3 – $E_{\text{кулон}}$

під впливом сильного електростатичного поля іонів. Для одержання більш детальної інформації про самодифузію необхідно знати також вплив іонів на структуру води, молекули якої не ввійшли в гідратні оболонки іонів, тобто на структуру так званої вільної води. Повна картина динаміки молекул розчинника в іонних розчинах складається з двох доданків [15]: колективного та одночастинкового. Швидкі одночасткові рухи вільних молекул води у розчині (“френкелівський” механізм дифузії) знайшли своє відображення в одночастинковому внеску в загальний коефіцієнт самодифузії. У ролі ж “лагранжевої” частинки у розчині виступає гідратований іон, який рухається як одне ціле з міцно зв’язаними з ним молекулами води (колективний механізм дифузії). Отже, молекули води можуть брати участь як в одночастинковому русі між гідратними оболонками або переміщуючись з одної гідратної оболонки в іншу, так і в колективному русі разом зі своєю гідратною оболонкою. Виходячи з ієрархії часових масштабів динамічних процесів у розширення квазіпружного піка $\Delta E = \Delta E(Q)$ може бути подано у вигляді:

$$\Delta E = \Delta E_K + \Delta E_O, \quad (4)$$

де ΔE_K , ΔE_O – відповідно колективний і одночастинковий внески в розширення квазіпружного піка. З рівняння [16] тоді для розширення квазіпружного піка, яке спостерігається в експерименті, можна визначити D_K , D_O – колективний і одночастинковий внески в коефіцієнт самодифузії $D = D_K + D_O$ та τ_0 – час осілого життя молекули в положенні рівноваги [14]:

$$\Delta E = 2\hbar D_K Q^2 + \frac{2\hbar}{\tau_0} \left[1 - \frac{\exp\{-2W\}}{1 + Q^2 D_O \tau_0} \right], \quad (5)$$

де D_K , D_O – колективний та одночастинковий внески в коефіцієнт самодифузії $D = D_K + D_O$, τ_0 – час осілого життя молекули в положенні рівноваги, $\exp\{-2W\}$ – фактор Дебая–Валлера.

3. Результати теоретичних та експериментальних досліджень

3.1. Енергетичні та структурні властивості водного розчину NaCl

В результаті проведеного комп’ютерного експерименту одержані енергетичні, структурні та динамічні характеристики водного розчину NaCl при

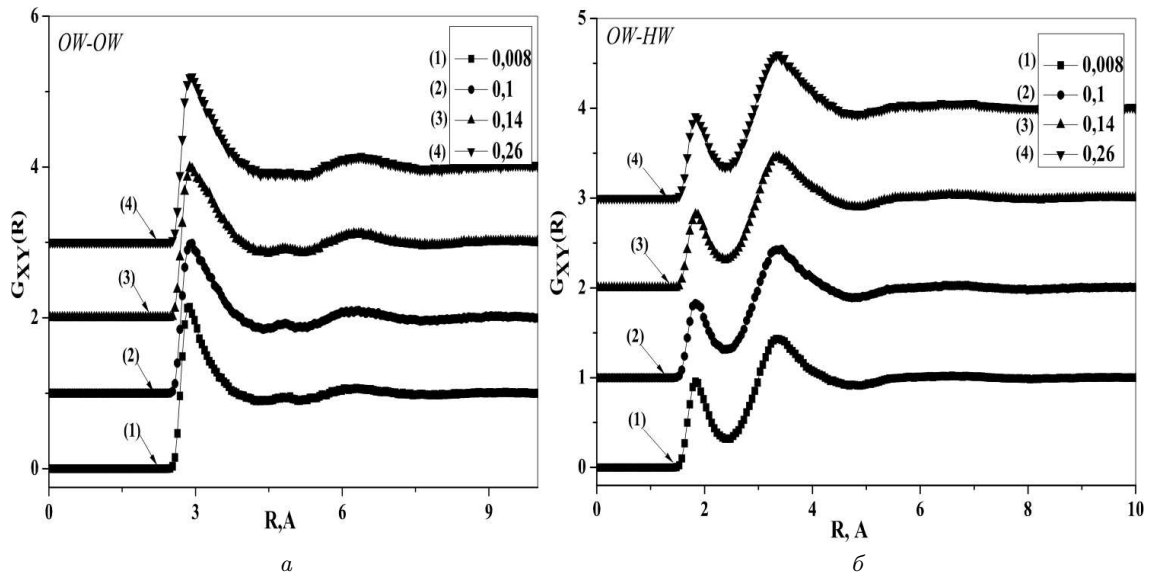


Рис. 2. Концентраційна залежність РФР $G_{XY}(R)^{OW-OW}$ (а) та $G_{XY}(R)^{OW-HW}$ (б) для розчину NaCl-H₂O при $T = 300$ К

$T = 300$ К. Насамперед, проаналізуємо вплив концентрації на значення середньої енергії міжмолекулярної взаємодії (рис. 1) та її Ван-дер-Ваальсівської і кулонівської складових у системах, що досліджуються.

Одержані дані показують, що збільшення концентрації солі призводить до зменшення $\langle E_{\text{сум}} \rangle$ та $\langle E_{\text{кулон}} \rangle$, яке свідчить про збільшення ролі близькодючих взаємодій у системі та може призводити до зменшення рухливості її компонент. Аналіз концентраційної залежності $\langle E_{\text{кулон}} \rangle$ та $\langle E_{\text{сум}} \rangle$ показує, що зменшення значень енергій відбувається нелінійно. Це дає можливість виділити декілька областей концентрацій: $0,00 \leq X_{\text{NaCl}} \leq 0,10$ м.д.; $0,10 \leq X_{\text{NaCl}} \leq 0,14$ м.д.; $0,14 \leq X_{\text{NaCl}} \leq 0,28$ м.д. Необхідно зазначити, що у областях $0,00 \leq X_{\text{NaCl}} \leq 0,10$ м.д. та $0,14 \leq X_{\text{NaCl}} \leq 0,28$ м.д. значення $\langle E_{\text{сум}} \rangle$ та $\langle E_{\text{кулон}} \rangle$ змінюються значним чином. В свою чергу, у області $0,14 \leq X_{\text{NaCl}} \leq 0,28$ м.д. спостерігається незначна зміна значень як $\langle E_{\text{сум}} \rangle$, так і $\langle E_{\text{кулон}} \rangle$, що свідчить про певну стабільність процесів структуроутворення у рідині.

Таким чином, слід очікувати існування особливостей формування локальної структури досліджуваних рідинних систем за концентрацій в околі $X_{\text{NaCl}} \approx 0,1$ м.д. та $X_{\text{NaCl}} \approx 0,14$ м.д., що повинно знайти своє відображення в особливостях пове-

дінки РФР. Визначення особливостей впливу концентрації NaCl на процеси формування локальної структури у воді доцільно почати з аналізу її впливу на взаємодію між молекулами води. На рис. 2 наведено концентраційну залежність РФР, що характеризують ймовірність взаємодії молекул води між собою.

Збільшення значень РФР (рис. 2, а) із збільшенням концентрації електроліту дозволяє стверджувати, що із збільшенням вмісту електроліту у системі зростає ймовірність взаємодії молекул води між собою без зміни відстані між взаємодіючими молекулами ($2,8 \pm 0,1$ Å). Починаючи із концентрації $X_{\text{NaCl}} \approx 0,14$ м.д. спостерігається збільшення розмірів першої гідратаційної оболонки та зменшення значення РФР для першого мінімуму, що свідчить про збільшення локальної густини досліджуваних систем із збільшенням концентрації. Незмінність положення першого максимуму РФР $G_{XY}(R)^{OW-HW}$ (див. рис. 2, б) показує, що із збільшенням концентрації солі у системі довжина водневих зв'язків між молекулами води не змінюється. Особливості впливу концентрації солі на формування локальної структури водних систем вода-NaCl дозволяють зробити аналіз РФР (рис. 3 та рис. 4), які описують ймовірності взаємодій $\text{Na}^+ \dots \text{H}^{\text{W}}$, $\text{Cl}^- \dots \text{H}^{\text{W}}$, $\text{Na}^+ \dots \text{O}^{\text{W}}$, $\text{Cl}^- \dots \text{O}^{\text{W}}$.

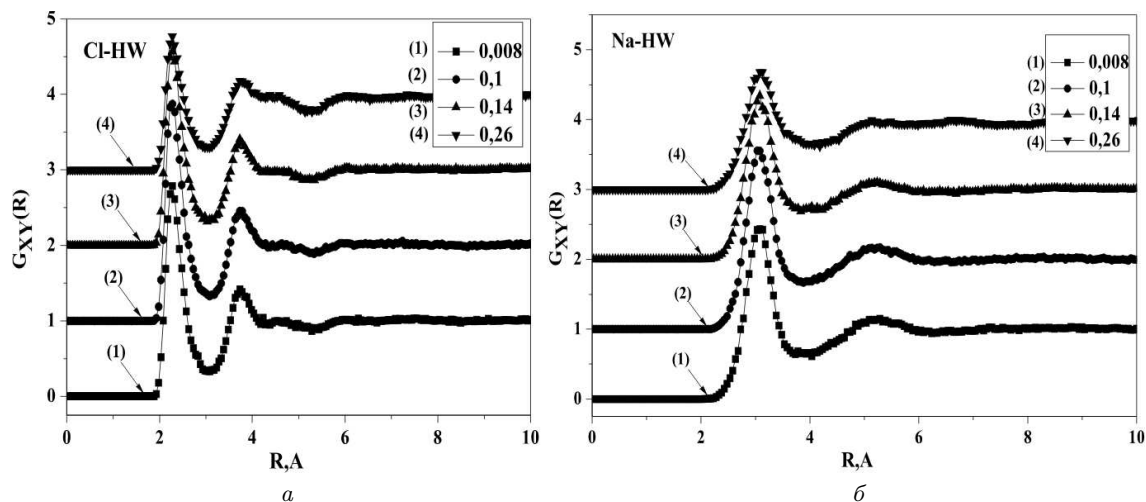


Рис. 3. Концентраційна залежність РФР $G_{XY}(R)^{Cl-HW}$ (а) та $G_{XY}(R)^{Na-HW}$ (б) для розчину $NaCl-H_2O$ при $T = 300$ К

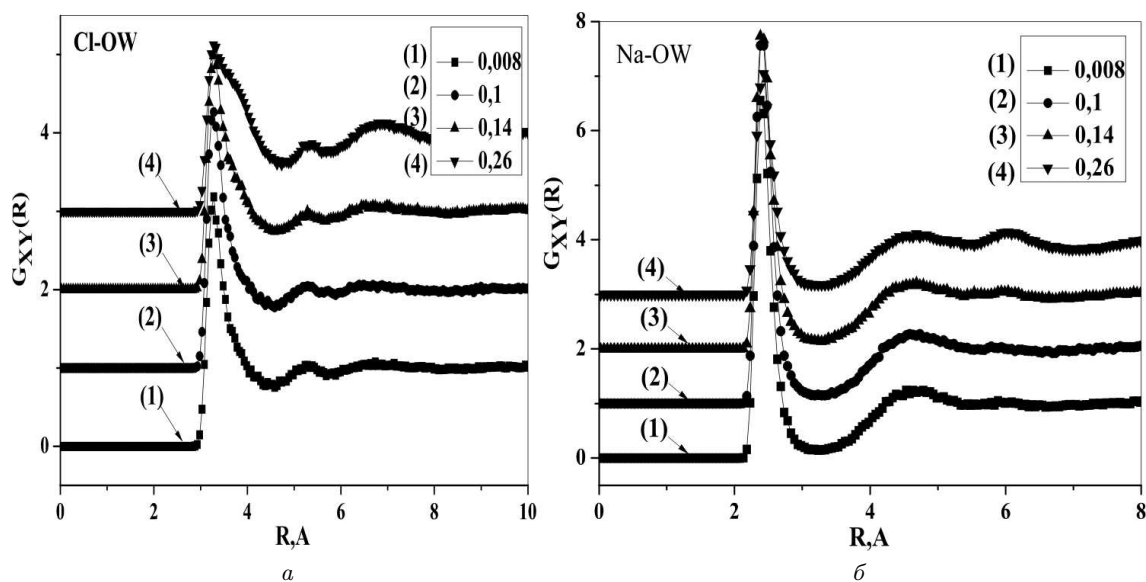


Рис. 4. Концентраційна залежність РФР $G_{XY}(R)^{Cl-OW}$ (а) та $G_{XY}(R)^{Na-OW}$ (б) для розчинів $NaCl-H_2O$ при $T = 300$ К

Особливу увагу привертає до себе взаємодія $Cl^- \dots H^W$, за рахунок якої утворюються стійкі воднево-зв'язані комплекси $Cl^- \dots H^W \dots O^W$ з довжиною $2,3 \text{ \AA}$, на яку не впливає зміна концентрації електроліту у розчині. Ймовірність таких взаємодій збільшується із збільшенням концентрації електроліту у системі.

Значення РФР зменшуються із збільшенням вмісту електроліту у системі, за винятком концен-

трації $X_{NaCl} \approx 0,10$ м.д. Найбільш суттєвий вплив на формування локальної структури розчину вносить взаємодія між аніонами та катіонами, ймовірність якої зменшується із збільшенням концентрації електроліту у досліджуваній системі, що пов'язано із зменшенням числа вільних аніонів та катіонів. Навколо іонів Cl^- та Na^+ (див. рис. 3, 4) можуть формуватись до чотирьох гідратних оболонок.

Таблиця 2. Коефіцієнти дифузії води, їх колективні внески та час осідлого життя у розчинах NaCl–H₂O різної концентрації

Речовина	Концентрація X, м.д.	Коефіцієнт дифузії води $D \cdot 10^9, \text{ м}^2/\text{с}$	Колективний внесок в коефіцієнт самодифузії $D_K \cdot 10^9, \text{ м}^2/\text{с}$	$\frac{D_K}{D} \cdot 100\%$	Час осідлого життя $\tau_0, 10^{-12} \text{ с}$
H ₂ O	–	$2,30 \pm 0,10$	$0,26 \pm 0,04$	11	$1,73 \pm 0,10$
NaCl–H ₂ O	0,6	$2,0 \pm 0,10$	$0,27 \pm 0,01$	13,5	$1,91 \pm 0,05$
	0,11	$1,73 \pm 0,09$	$0,32 \pm 0,02$	18	$2,05 \pm 0,05$
	0,17	$1,52 \pm 0,10$	$0,33 \pm 0,03$	22	$2,41 \pm 0,04$
	0,23	$1,34 \pm 0,08$	$0,35 \pm 0,02$	26	$2,80 \pm 0,03$

3.2. Динамічні властивості водного розчину NaCl за даними КПРН

Результати, отримані в нейтронному експерименті для водних розчинів NaCl за різних концентрацій, наведено в табл. 2. Слід зауважити, що переріз розсіяння повільних нейтронів на атомах водню приблизно в 20 разів більше перерізів розсіяння на інших атомах. Це призводить до того, що при розсіянні на молекулах води нейтрони “відчувають” головним чином рухи атомів водню і тому дають відомості про динаміку молекул води лише в тій мірі, в якій ця динаміка відображується в рухах водневих атомів.

Концентраційна залежність відносної величини колективного внеску в коефіцієнт дифузії води від концентрації розчину NaCl–H₂O наведена на рис. 5. Для розчинів NaCl–H₂O зі збільшенням концентрації (табл. 2) величина колективного внеску в коефіцієнт самодифузії збільшується при одночасному зменшенні повного коефіцієнта самодифузії, що, на наш погляд, пов’язано з ефектом гідратації. При цьому для молекул води, які знаходяться в гідратних оболонках, ускладнюється участь в самодифузії, в процесі обміну між молекулами вільної води і молекулами сусідніх гідратних оболонок. Крім того, з ростом концентрації в результаті гідратації збільшується число і розмір “лагранжевих” частинок, що збільшує ефект перешкод і приводить до росту колективного внеску в коефіцієнт самодифузії молекул води. В умовах позитивної гідратації сусідні молекули води проводять поблизу іона в середньому більше часу, ніж у зв’язку між собою.

При цьому час осідлого життя молекул води у положенні рівноваги збільшується у порівнянні з чистим розчинником. Визначити склад “лагранже-

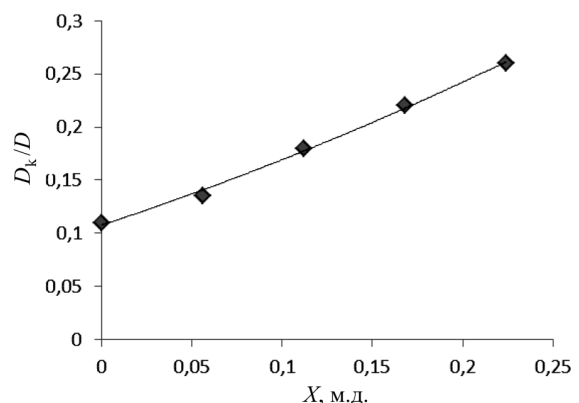


Рис. 5. Залежність відносної величини колективного внеску в коефіцієнт дифузії води від концентрації розчину NaCl–H₂O

вих” частинок та оцінити вплив ефекту гідратації на процеси самодифузії у водному розчині хлориду натрію дозволяє аналіз числа найближчих сусідів, яке пропорційно площі під першим піком відповідних РФР [6]. Аналіз розрахованих нами значень чисел найближчих сусідів N_z у випадку концентрацій менших, ніж $X_{\text{NaCl}} \leq 0,05$ м.д. показує, що у розчині існують системи, що складаються з двох або трьох молекул води. Отриманий результат корелює з даними роботи [18], згідно з якою середня енергія міжмолекулярної взаємодії води, що складається з кластерів, утворених трьома молекулами, становить 1,6 ккал/моль. В результаті проведених нами розрахунків (рис. 1) повна сумарна енергія системи при концентраціях, менших $X_{\text{NaCl}} \leq 0,05$ м.д., становить $1,2 \pm 0,5$ ккал/моль. Тобто, можна вважати, що при $X_{\text{NaCl}} \leq 0,05$ м.д. у водному розчині іони і катіони не взаємодіють між собою, а лише приводять до розриву сітки водневих зв’язків між молекулами води. Це, в свою

чергу, веде до утворення систем із однієї, двох або трьох молекул води. При $0,1 \leq X_{\text{NaCl}} \leq 0,2$ м.д. збільшення числа Na^+ та Cl^- призводить до утворення іонно-катіонних пар. При цьому в розчині продовжують існувати вільні Na^+ та Cl^- , що оточені молекулами води. Тобто, всі ці системи (вільні Na^+ та Cl^- , іонно-катіонні групи, що оточені молекулами води), і є “лагранжевими” частинками. Збільшення вмісту електроліту в області $0,1 \leq X_{\text{NaCl}} \leq 0,2$ м.д. супроводжується зменшенням значень коефіцієнта самодифузії, яке зумовлено утворенням за рахунок взаємодії іонів з водою або між собою відносно великих за розміром систем. Можна вважати, що починаючи з $X_{\text{NaCl}} \geq 0,2$ м.д. переважна більшість іонів взяли участь у взаємодії між собою. При $X_{\text{NaCl}} \approx 0,24$ м.д. за рахунок взаємодії іонів між собою утворюються відносно великі за розміром системи з $N_z = (16 \pm 0,3)$ частинок. В цей самий час, наприклад, в околиці $X_{\text{NaCl}} \approx 0,24$ м.д. існують системи, що складаються із Na^+ , оточених $N_z = (6 \pm 0,3)$ молекулами води, із аніонів Cl^- , навколо яких розташовано $N_z = (4 \pm 0,3)$ молекул води та кластерів із молекул води. В області концентрації $X_{\text{NaCl}} \approx 0,24$ м.д. водні кластери складаються з трьох молекул. Це свідчить про стабілізацію локальних іонних і водно-іонних структур розчину у насиченому водно-солевому розчині та існування в ньому структури води, подібної до “чистої” води.

4. Висновки

Використання експериментальних (метод квазіпружного розсіювання нейтронів) і теоретичних (молекулярного моделювання) методів для дослідження концентраційних особливостей водних розчинів NaCl дозволило визначити структурні та динамічні властивості водного розчину NaCl при $T = 300$ К. Встановлено, що: при концентраціях менших, ніж $X_{\text{NaCl}} \leq 0,05$ м.д. рух не взаємодіючих між собою Na^+ та Cl^- приводить до розриву сітки водневих зв'язків між молекулами води і утворення систем з однієї, двох або трьох молекул води; в області концентрацій $0,05 \leq X_{\text{NaCl}} \leq 0,1$ м.д. утворюються іонно-катіонні пари та системи з Na^+ та Cl^- , що складаються $N_z = (7 \pm 0,3)$ частинок; при $0,1 \leq X_{\text{NaCl}} \leq 0,2$ м.д. зменшується значення коефіцієнта самодифузії іонів, що зумовлено утворенням за рахунок їх взаємодії з

водою і між собою щодо великих за розміром систем; при $X_{\text{NaCl}} \approx 0,2$ м.д. більшість Na^+ та Cl^- взяли участь у взаємодії між собою; в насиченому розчині при $X_{\text{NaCl}} \approx 0,26$ м.д. Na^+ та Cl^- утворюють системи з $N_z = (16 \pm 0,3)$ частинок. Результати розрахунків кількісно доповнюють експериментальні дані КІРН, згідно з якими в досліджуваній системі з збільшенням концентрації NaCl у воді спостерігається монотонне зменшення значень коефіцієнта самодифузії, його складових і значень часу осілого життя молекул в стані рівноваги. Зростання колективного внеску в коефіцієнт самодифузії свідчить про наявність в розчинах центрів коливань, якими служать Na^+ та Cl^- , оточені гідратними оболонками. У разі взаємодії іонів з водою, згідно з проведеними МД розрахунками, кількість гідратних оболонок досягає чотирьох.

1. M. Gugliotti and M. Politi, *J. Biophys. Chem.* **89**, 243 (2001).
2. S.E. Mclain, S. Imberti, and A.K. Soper, *Phys. Rev. B.* **74**, 094201 (2006).
3. B. Alberts, A. Johnson, J. Lewis, et al., *Ion Channels and Electrical Properties of Membranes. Molecular Biology of the Cell. 4th edition* (Garland Science, New York, 2002).
4. G. Roy, *J. Membr. Biophys.* **6**, 329 (1971).
5. A.G. Lee, *Nat. Struct. Biol.* **10**, 411 (2003).
6. M.P. Allen and D.Y. Tildesley, *Computer Simulation of Liquids* (Clarenton Press, Oxford, 2010).
7. P.B. Balbuena, K.P. Johnston, and P.J. Rossky, *J. Phys. Chem.* **100**, 2706 (1996).
8. T.R. Forester, *The DL-POLY-2.0. User Manual* (Daresbury Lab., Daresbury, UK, 2013).
9. P.B. Balbuena, K.P. Johnston, and P.J. Rossky, *J. Phys. Chem.* **99**, 5196 (1995).
10. J.R. Grigera and T.P. Straatsma, *J. Phys. Chem.* **91**, 6269 (1987).
11. H.J.C. Berendsen, J.R. Grigera, and T.P. Straatsma, *J. Phys. Chem.* **91**, 6269 (1987).
12. T. Schlick, *Molecular Modeling and Simulation: An Interdisciplinary Guide* (Springer, New York, 2002).
13. M. Branka, B.M. Ladanyi, and M. Maroncelli, *J. Chem. Phys.* **109**, 3204 (1998).
14. Л.А. Булавін, Т.В. Кармазіна, В.В. Клепко, *Нейтронная спектроскопия конденсированных сред* (Академпериодика, Киев, 2005).
15. В.Т. Крогенько, А.К. Дорош, П.Г. Іваницький, *Журн. струк. хим.* **33**, 72 (1992).
16. В.С. Оскотский, *ФТТ* **5**, 1082 (1963).

17. Т.В. Локотош, Н.П. Маломуж, К.П. Панкратов, ЖФХ **85**, 1892 (2011).

18. S.S. Xantheas, J. Chem. Phys. **258**, 225 (2000).

Одержано 24.10.14

*Н.А. Атамасъ, Л.А. Булавин,
Г.Н. Вербинская, А.В. Брытан*

КОНЦЕНТРАЦИОННЫЕ ЗАВИСИМОСТИ
СВОЙСТВ ВОДНОГО РАСТВОРА ХЛОРИДА НАТРИЯ
ПО ДАННЫМ МЕТОДОВ МОЛЕКУЛЯРНОЙ
ДИНАМИКИ И КВАЗИУПРУГОГО
РАССЕЯНИЯ НЕЙТРОНОВ

Резюме

В работе представлены результаты экспериментальных (метод квазиупругого рассеивания нейтронов) и теоретическо-расчетных (молекулярная динамика) исследований влияния концентрации на структурно-динамические свойства водных растворов NaCl при $T = 300$ К при концентрациях $0,0 \leq X_{\text{NaCl}} \leq 0,28$ м.д. Использование метода молекулярной динамики позволило получить и проанализировать концентрационную зависимость энергетических и структурных характеристик водного раствора NaCl. Экспериментальным путем показано, что в исследуемой систе-

ме с увеличением концентрации наблюдается монотонное уменьшение значений коэффициента самодиффузии. Анализ полученных данных дал возможность выделить области концентраций, имеющие различные количественные характеристики локальной структуры.

*N.A. Atamas, L.A. Bulavin,
G.N. Verbinskaya, A.V. Brytan*

CONCENTRATION DEPENDENCES
OF THE DYNAMIC PROPERTIES OF NaCl
AQUEOUS SOLUTION ON THE BASIS
OF THE RESULTS OF MOLECULAR
DYNAMICS AND QUASI-ELASTIC
NEUTRON SCATTERING RESEARCHES

Summary

The results of researches concerning the influence of the concentration on the structural and dynamic properties of a NaCl aqueous solution in the concentration interval $0.00 \leq X_{\text{NaCl}} \leq 0.28$ m.f. at the temperature $T = 300$ K obtained using the molecular dynamics and quasi-elastic neutron scattering methods are reported.