

**ΠΟΣΟΤΙΚΗ ΣΧΕΣΗ ΜΕΤΑΞΥ ΜΟΡΙΑΚΗΣ ΔΟΜΗΣ ΚΑΙ ΘΕΡΜΟΚΡΑΣΙΑΣ ΥΑΛΩΔΟΥΣ
ΜΕΤΑΠΤΩΣΗΣ ΟΡΓΑΝΙΚΩΝ ΣΥΣΤΑΤΙΚΩΝ ΤΩΝ ΑΤΜΟΣΦΑΙΡΙΚΩΝ ΣΩΜΑΤΙΔΙΩΝ****Π. Σιαχούλη^{1,2}, Β. Γ. Μαυραντζάς^{1,2,3}, Σ.Ν. Πανδής^{1,2,*}**¹Τμήμα Χημικών Μηχανικών, Πανεπιστήμιο Πατρών, Πάτρα GR 26500, Ελλάδα²Ινστιτούτο Επιστημών Χημικής Μηχανικής, ΙΤΕ/ΙΕΧΜΗ, Πλατάνι Πατρών, Ελλάδα³ Department of Mechanical and Process Engineering, ETH Zürich, Zürich CH-8092, Switzerland

* spyros@chemeng.upatras.gr

ΠΕΡΙΛΗΨΗ

Η παρουσία των ατμοσφαιρικών σωματιδίων στη φύση επηρεάζει σημαντικά το περιβάλλον και την ανθρώπινη ζωή. Μεγάλο ποσοστό αυτών των σωματιδίων αποτελείται από πληθώρα οργανικών ενώσεων οι οποίες περιλαμβάνουν μία ή και περισσότερες χαρακτηριστικές ομάδες. Οι περισσότερες από αυτές τις ενώσεις απαντώνται στην ατμόσφαιρα, ωστόσο μόνο ένα μικρό ποσοστό αυτών έχει ταυτοποιηθεί. Ένας τρόπος κατανόησης και ομαδοποίησής τους είναι ο υπολογισμός των φυσικοχημικών ιδιοτήτων τους, ιδιαίτερα της θερμοκρασίας υαλώδους μετάπτωσης (T_g) η οποία έμμεσα καθορίζει και την κατάσταση φάσης των σωματιδίων. Αυτό είναι σημαντικό καθώς μπορεί να βοηθήσει στην βαθύτερη κατανόηση φαινομένων όπως ο ρυθμός οξειδωσης, η ικανότητα του σωματιδίου να προσλαμβάνει νερό, η συμμετοχή του σε ετερογενείς αντιδράσεις, κλπ. Ωστόσο η πειραματική διερεύνηση του T_g είναι μία απαιτητική διαδικασία λόγω σημαντικών δυσκολιών που αφορούν στη σύνθεση αυτών των ενώσεων και στον καθαρισμό τους.

Οι προσομοιώσεις Μοριακής Δυναμικής (ΜΔ) αποτελούν μία υποσχόμενη υπολογιστική μέθοδο πρόβλεψης ιδιοτήτων με χαμηλό κόστος σε σχέση με τις πειραματικές διαδικασίες, ενώ ταυτόχρονα μπορεί να παρέχει πολύτιμη πληροφορία σε μοριακό επίπεδο. Στην παρούσα εργασία μελετάμε το T_g μέσω προσομοιώσεων ΜΔ για ένα μεγάλο φάσμα ενώσεων ατμοσφαιρικού ενδιαφέροντος. Ο υπολογισμός του T_g γίνεται μέσω εκτίμησης της θερμοκρασιακής εξάρτησης της πυκνότητας όπως και της δυναμικής ενέργειας που οφείλεται σε μη-δεσμικές αλληλεπιδράσεις. Η διαδικασία επαναλαμβάνεται για αρκετές ανεξάρτητες αρχικές απεικονίσεις της ένωσης ούτως ώστε να διασφαλιστεί η επαναληψιμότητα των αποτελεσμάτων. Οι υπό μελέτη ενώσεις διαφέρουν τόσο ως προς το μήκος του μορίου όσο και ως προς το είδος αλλά και πλήθος των χαρακτηριστικών ομάδων (αλκοολομάδες, καρβοξυλομάδες, κετονομάδες, κλπ) που περιέχουν. Η επιλογή των ενώσεων επιτρέπει την εξαγωγή συμπερασμάτων για την επίδραση της εκάστοτε χαρακτηριστικής ομάδας, όπως και την επιρροή της συνύπαρξής τους σε μία ένωση, στην τιμή του T_g . Μια άλλη παράμετρος που εξετάζεται είναι η αρχιτεκτονική δομή της ένωσης (γραμμική, κυκλική, κλπ).

Η συστηματική μελέτη του T_g για τις οργανικές ενώσεις ατμοσφαιρικού ενδιαφέροντος που επιλέχθηκαν στην παρούσα εργασία έχει ως στόχο την εξαγωγή μιας ποσοτικής σχέσης δομής-τιμής T_g που εν τέλει θα γενικεύει τα συμπεράσματα της ΜΔ. Τα αποτελέσματα των προσομοιώσεων συγκρίνονται επίσης με διαθέσιμα πειραματικά δεδομένα όπως και με εμπειρικές εξισώσεις εκτίμησης του T_g που υπάρχουν στη βιβλιογραφία.

ΛΕΞΕΙΣ ΚΛΕΙΔΙΑ: Θερμοκρασία υαλώδους μετάπτωσης, οργανικές ενώσεις, Ατμοσφαιρικά σωματίδια, Μοριακή Δυναμική, Ποσοτική σχέση δομής-ιδιότητας

ΒΙΒΛΙΟΓΡΑΦΙΑ

- [1] Koop, T., Bookhold, J., Shiraiwa, M., & Pöschl, U. (2011). *Phys. Chem. Chem. Phys.* 13: 19238-19255.
- [2] Rothfuss, N. E., & Petters, M. D. (2017). *Environ. Sci. Technol.* 51: 271-279.
- [3] DeRieux, W-S W., Li, Y., Lin P., Laskin, J., Laskin, A., Bertram, A.K., Nizkorodov, S.A., & Shiraiwa M. (2018). *Atmos.Chem.Phys.* 18:6331-6351.