



ID de Contribution: 240

Type: Contribution orale

Etude théorique et expérimentale du rôle de quelques molécules d'eau sur la réactivité de molécules prébiotiques.

jeudi 6 juillet 2023 09:00 (15 minutes)

Depuis plusieurs années, nous cherchons à comprendre et rationaliser les différents processus de micro-hydratation de petites molécules organiques.[1,2] Ainsi, dans la littérature, le concept de "séquestration de molécules d'eau" a été introduit pour décrire la propension de certains solutés à interagir avec de petits clusters d'eau, et nos études ont permis de rationaliser ce concept en montrant que cela était lié à la disponibilité ou non de sites plus électrophiles ou plus nucléophiles que l'eau sur le soluté.[2,3]

La compréhension du rôle que peut jouer une micro-hydratation sur la réactivité reste un défi majeur notamment pour pouvoir améliorer notre compréhension de la chimie atmosphérique et interstellaire.

Avec une double approche théorique et expérimentale, nous montrerons comment la présence de quelques molécules d'eau modifie la réaction de formation d'une liaison de type peptidique entre l'acide acétique et la méthylamine.[3,4]

Les expériences sur des agrégats formés dans un jet moléculaire et sélectionnés en masse, ont été réalisées avec le montage CERISES sur la ligne DESIRS du synchrotron SOLEIL. Ce montage nous a permis de sélectionner les ions d'intérêt en masse, et de réaliser une étude de réactivité ion-molécule. Les résultats montrent que la formation de complexes non covalents est favorisée dans les agrégats, au détriment de la formation d'une liaison covalente.

Nos études théoriques, réalisées en DFT avec un traitement explicite des molécules d'eau, et basées sur la théorie quantique de l'atome dans la molécule (QTAIM) suggèrent que cela serait le résultat de la délocalisation électronique dans les agrégats. Cette analyse théorique de la réactivité a été menée à la fois sur les complexes neutres et ionisés.

[1] : Zins. Microhydration of a carbonyl group: how does the molecular electrostatic potential (MESP) impact the formation of $(\text{H}_2\text{O})_n:(\text{R}_2\text{C}=\text{O})$ complexes? J. Phys. Chem. A (2020), 124, 1720.

[2] : Kalai et al. A theoretical investigation of water-solute interactions: from facial parallel to guest-host structures. Theor.Chem.Acc. (2017), 136, 1.

[3] : Derbali et al. On the relevance of the electron density analysis for the study of micro-hydratation and its impact on the formation of a peptide-like bond. Theor.Chem.Acc. (2022), 141, 34.

[4] : Derbali et al. Study of the Reactivity of $\text{CH}_3\text{COOH}^+\bullet$ and COOH^+ Ions with CH_3NH_2 : Evidence of the Formation of New Peptide-like C(O)-N Bonds. J. Phys. Chem. A . (2021), 125, 10006.

Affiliation de l'auteur principal

Laboratoire MONARIS, Sorbonne Université

Auteur principal: ZINS, Emilie-Laure (Sorbonne Université)

Co-auteurs: M. AROULE, Olivier (MONARIS, Sorbonne Université); M. SOLEM, Nicolas (Institut de chimie-physique d'Orsay); Dr ROMANZIN, Claire (Institut de chimie-physique d'Orsay); Prof. ALCARAZ, Christian (Institut de chimie-physique d'Orsay); Prof. THISSEN, Roland (Institut de chimie-physique d'Orsay)

Orateur: ZINS, Emilie-Laure (Sorbonne Université)

Classification de Session: Mini-colloques: MC13 Effets d'environnement et de solvation sur les processus moléculaires

Classification de thématique: MC13 Effets d'environnement et de solvation sur les processus moléculaires