

3. FÉLÉVI BESZÁMOLÓ

Papp Eszter (eszter.papp@ttk.elte.hu)

Statisztikus Fizika, Biológiai Fizika és Kvantumrendszerek Fizikája PhD program

Témavezető: Prof. Vattay Gábor

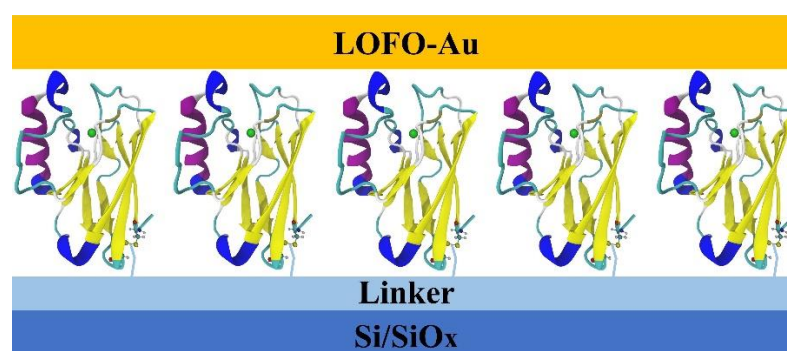
A dolgozat címe: Theory and Simulation of Anomalously High Conductance in Proteins

2022.02.20.

Kutatási tevékenység:

Ebben a szemeszterben az izraeli és spanyol kutatócsoportokkal közös cikkünk írása alatt két fontos részletet sikerült még megfigyelnünk:

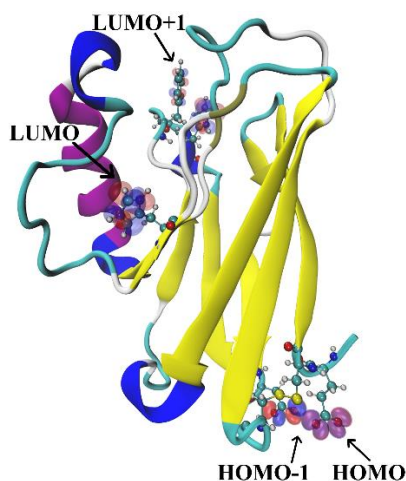
1. Más fehérjékkel végzett méréseik során Prof. David Cahen és kutatócsoportja azt találta, hogy ha a felületet - amire majd a későbbiekben a fehérjéket helyezik- rövidebb ideig kezelik, akkor a fehérje és a kezelt felület között erősebb csatolás jön létre a felületi pozitív töltések miatt. Ellenben ha a felületkezelés idejét pár perc helyett 30 percre növelték, a csatolás erőssége lecsökkent^[1]. Azt is megmutatták, hogy az erősebb csatolás a felület és a fehérje réteg között gyengébb hőmérsékletfüggést eredményez a kísérleti elrendezésen átfolyó áramban. Ezek összhangban vannak azzal, amit mi is feltételeztünk az Apo-Azurinhoz tartozó két, csak a felület kezelési idejében eltérő mérés kiértékelése során: ha kétféle viselkedést (magas- és alacsony hőmérsékletű) figyelhetünk meg az áramban, akkor a csatolás erőssége gyenge, és a magas hőmérsékletű tartományra a Marcus-elmélet érvényes, míg a másakra az általánosított Landauer-formula.



1. Kísérleti elrendezés

2. Nem csak a HOMO-HOMO-1, LUMO-LUMO+1 energiakülönbségek nagysága határozza meg, hogy mely részecskék (elektronok vagy lyukak) dominálják a transzportot; ugyanis fontos még ezeknek a pályáknak az elektródokhoz viszonyított helyzete is. Apo-Azurin esetében lyukak dominálta transzportot feltételeznénk a DFT

számolásokból kapott energiakülönbségek összehasonlítása alapján, viszont az illesztésekből kapott energiakülönbség a LUMO-LUMO+1-hez áll közelebb, ami elektronok dominálta áramot jelent. Ha megnézzük a hullámfüggvények elhelyezkedését az elektródokhoz képest, akkor azt találjuk, hogy a HOMO, illetve HOMO-1 pályák egyaránt az alsó elektródhoz vannak közel. Ettől eltérően a LUMO és LUMO+1 pályák csatolása átellenes elektródokhoz nagyobbban feltételezhető az elhelyezkedésük miatt, és mivel az energiakülönbség nem sokkal nagyobb, mint lyukak esetében, így összességében valóban elektronok dominálta transzportot kapunk.

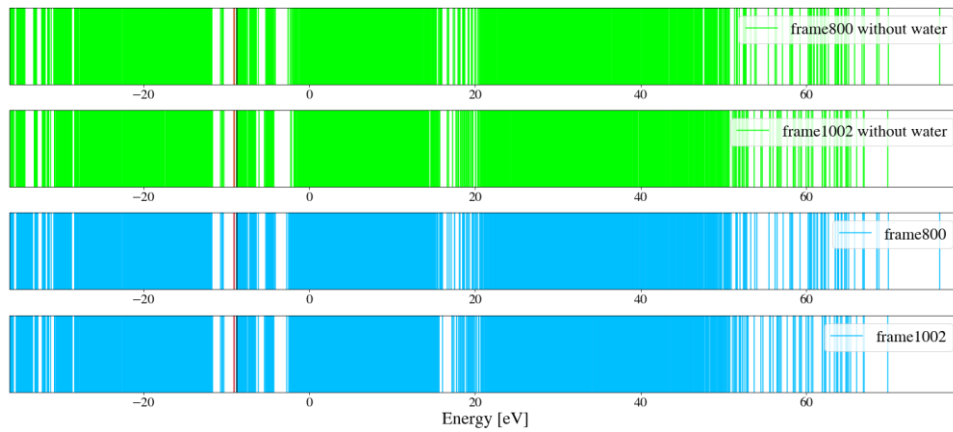


2. Apo-Azurin releváns molekulapályái

A félév során közös kutatásba kezdtünk a Richter Gedeon Szerkezetkutatási Osztály Molekulamodellező csoportjával. Célunk, hogy a fehérjék kvantumos vezetőképességének mélyebb megértésével és a ligandumjaik kvantumos tulajdonságainak felhasználásával olyan eredményeket érjünk el, amelyek a gyógyszerkutatás szempontjából hasznosak. A kvantumkémiai számolásaink alapját a YAEHMOP programcsomag képezi, mely a kiterjesztett Hückel módszeren alapul. Első lépésben azt kezdtük el vizsgálni, hogy az eddig használt, víz nélküli struktúrák számolása mennyiben tér el attól, ha a fehérjét szolvatált állapotában vizsgáljuk. Ehhez két időpillanatot (frame 800 és frame 1002) vettünk egy szolvatált fehérje-ligandum komplex molekuladinamikai szimulációjából. Ebből többféle struktúrát állítottam elő:

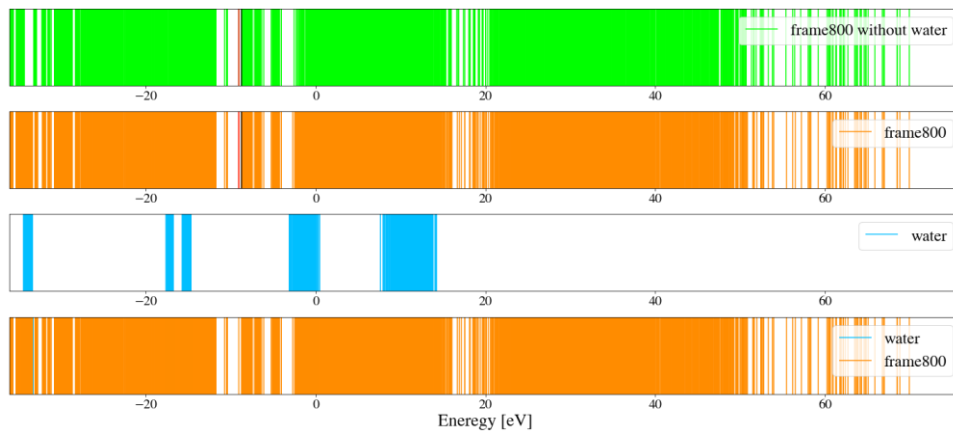
- frame 800/1002 vízzel
- frame 800/1002 víz nélkül
- csak a vízmolekulák mindkét frame-ből

Nem meglepő, hogy a két különböző frame spektruma nagyon hasonló, eltekintve a nagy energiájú lazító pályáktól. Minden spektrumban a piros és fekete vonalak a HOMO és LUMO pályákat jelölik.

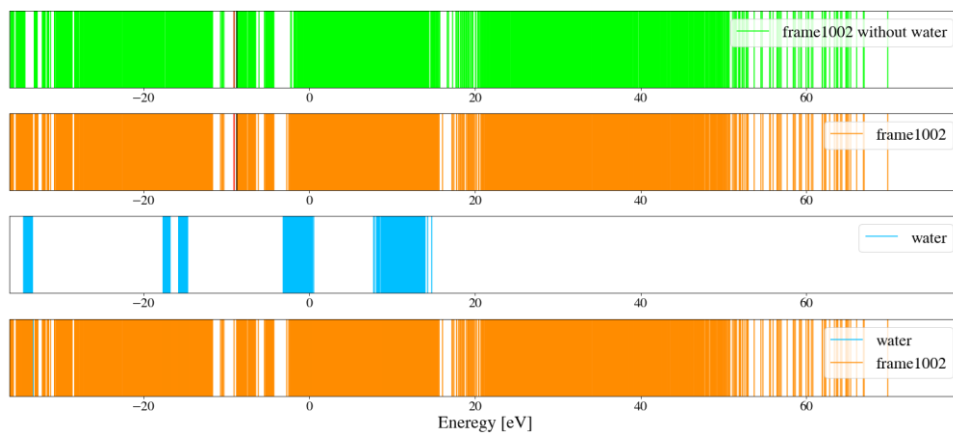


3. Két frame spektruma (vízzel és anélkül)

Ha megnézzük a két frame spektrumát vízzel és anélkül, akkor azt láthatjuk, hogy az általunk használt kvantumkémiai módszer a szolvatált fehérje esetében mintha ‘összefésülne’ a víz molekulák és a víz nélküli fehérje spektrumát.

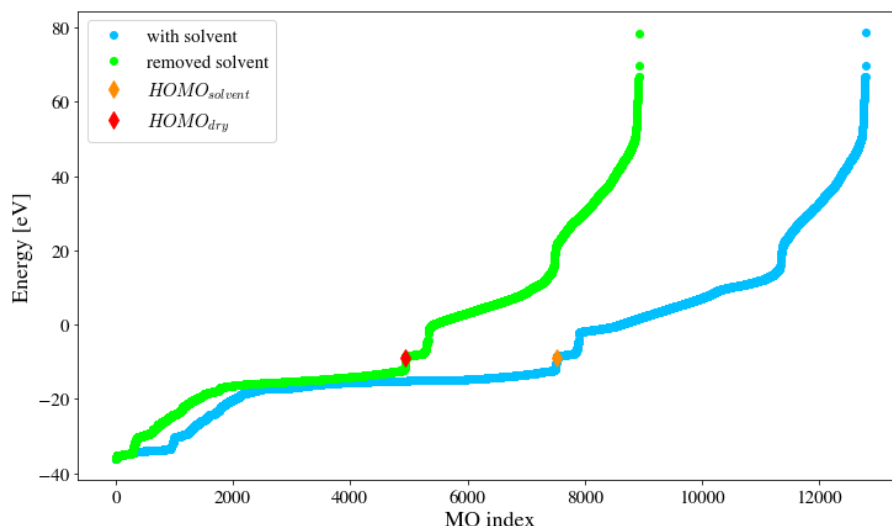


4. Frame 800-hoz tartozó spektrumok



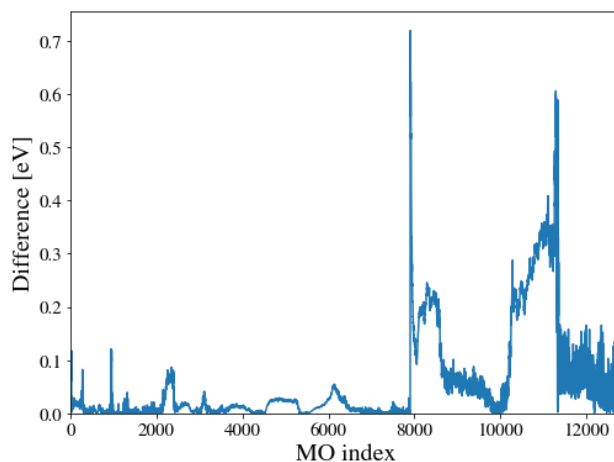
5. Frame 1002-höz tartozó spektrumok

Azonban érdemes másképp is vizsgálni, például az energiaszinteket ábrázolni az indexek függvényében:



6. 1002-es frame energiaszintjei

Látható, hogy a HOMO szintek energiában nem térnek el túlságosan. Ha viszont azt szeretnénk ellenőrizni, hogy valóban egy ‘összefésülés’ eredménye-e a szolvatált fehérje spektruma, akkor érdemes a víz és a fehérje spektrumait egymás mellé fűznünk, sorbarendezniük, majd megnézni, hogy ez a manuálisan előállított spektrum mennyiben tér el a szolvatált fehérjéétől:



7. A két spektrum különbsége (HOMO = 7514)

Ezek fényében nem lehet egyértelműen kijelenteni, hogy a víz elhanyagolható-e az esetünkben; ehhez további elemzésekre van szükség. A Richter csapata küldött még nekünk ehhez a fehérjéhez bedokkolt aktív és inaktív ligandumokat is, amiket kvantumkémiai módszerekkel tervezek vizsgálni a következő szemeszterben.

Tanulmányi tevékenység:

A félév során az alábbi kurzusokat végeztem el:

- Soktestprobléma II. (jeles)
- Polimerek és membránok statisztikus fizikája (még nem értékelt)

Szakmai közéleti tevékenység:

- Kísérletek bemutatása az Atomcsillen
- ELTE TTK podcast felvételen való részvétel, mint reporter

A félévben elnyert ösztöndíjak:

Richter Talentum Kiválósági PhD ösztöndíj

Publikációk:

Folyamatban van egy közös cikk írása az említett két kutatócsoporttal.

Hivatkozások:

- [1] Garg, K., Raichlin, S., Bendikov, T., Pecht, I., Sheves, M., & Cahen, D. (2018). Interface electrostatics dictates the electron transport via bioelectronic junctions. ACS applied materials & interfaces, 10(48), 41599-41607.