

Waterstofbindings tussen adenien en timien: Insig vanuit die perspektief van molekulewye en elektrondigtheid-gebaseerde chemiese binding (MOWED-CB)

L Cajada, J de Lange, I Cukrowski

Departement Chemie, Universiteit van Pretoria, Suid-Afrika

Korresponderende outeur: Lauren Cajada **E-pos:** u19088419@tuks.co.za

Hydrogen bonding between adenine and thymine: Insight from the perspective of molecular-wide and electron density based chemical bonding (MOWED-CB): An investigation into the nature of the bonding interaction between adenine and thymine was conducted using novel computational tools. The interaction was discovered to be highly stabilising through the quantum effect, proving that the bonding interaction is facilitated by sharing electron density and not by electrostatic interactions.

Daar word algemeen aanvaar dat DNS-stringe deur waterstofbindings tussen die stikstofbassis van DNS-nukleotiede bymekaargehou word. In hierdie navorsing word die model wat deur Watson en Crick in 1953 opgestel is, herbesoek deur van nuwe berekeningschemie-tegnieke gebruik te maak. FALDI (De Lange & Cukrowski, 2017) en REP-FAMSEC (Cukrowski, et al., 2019) is berekeningsprogrammatuur wat deur die berekeningschemie-navorsingspan van die Universiteit van Pretoria ontwikkel is. FALDI kwantifiseer gedelokaliseerde elektrone tot atoomvlak en illustreer die verspreiding van elektrondigtheid oor 'n molekule. REP-FAMSEC verskaf 'n diepgaande ontleding van die effek wat bindingsinteraksies op die energie van 'n molekule het. Integrasie van FALDI en REP-FAMSEC bied insig vanuit die perspektief van molekulewye en elektrondigtheid-gebaseerde chemiese binding (MOWED-CB) om sodoende chemiese bindingsinteraksies op 'n molekulewye vlak te verstaan (Cukrowski, 2022).

Hierdie navorsing dek die vier hoof konformasies van die adenien-timien-bindingspaar op die B3LYP/6-311++G(d,p) vlak van teorie, met fokus op die Watson-Crick-konformasie in die verduideliking van die data aangesien dieselfde tendens vir al vier konformasies geld.

Die interaksie tussen adenien en timien bring 'n gemiddelde stabilisasie van -71 kcal/mol vir al vier konformasies mee. Die kwantumeffek maak by verre die grootste bydrae tot die stabilisasie. Die bydrae van die uitruikrelasie-energie tot die stabilisasie is gemiddeld -52 kcal/mol, wat 73% van die totale stabilisering verteenwoordig. Die coulomb-elektrostatiese-effek dra die oorblywende 27% (gemiddeld -19.3 kcal/mol) by. Die oorheersing van die kwantumeffek eerder as die coulomb-elektrostatiese-effek weerspreek die huidige waterstofbindingsmodel. Die interaksie tussen adenien en timien, wat as 'n bindingsinteraksie beskou word, word dus hoofsaaklik deur die deling van elektrondigtheid gefasiliteer. Die REP-FAMSEC-data het die verdere onverwagte resultaat gelever dat die atoominteraksies, wat die grootste bydrae van rondom -300 kcal/mol elk tot die stabilisasie van die adenien-timien-bindingspaar gemaak het, slegs tussen stikstof- en suurstofatome plaasvind. Die bydrae tot stabilisering van die interaksies tussen atome wat in die twee klassieke waterstofbindingsinteraksies tussen adenien en timien betrokke is, is aansienlik minder met slegs 'n -90.3 kcal/mol en -61.5 kcal/mol stabilisering vir die Watson-Crick-konformasie.

Die deel van elektrondigtheid wat die hoofbydrae tot die stabiliseringsenergie van die bindingspaar maak, is deur FALDI as gedelokaliseerde elektrone gekwantifiseer. 'n Totaal van 3.11 elektrone is tussen adenien en timien gedelokaliseer, gelykstaande aan 'n 1.5 kovalente binding in klassieke terme.

Die onlangs uitgebreide waterstofbindingsinteraksie soos deur IUPAC gedefinieer (X-H---Y-Z) toon 'n totaal van 2.11 gedelokaliseerde elektrone tussen adenien en timien. Dit maak 68% van die 3.11 totale gedelokaliseerde elektrone tussen die Watson-Crick-bindingspaar op, terwyl die oorblywende elektron gedelokaliseer is oor die res van die bindingspaar-molekules, waarvan 0.68 elektrone deur langafstand-interaksies gedeel word. Dit is dus duidelik dat die deel van elektrondigtheid nie 'n geïsoleerde gebeurtenis is nie en nie beperk is tot die drie of selfs vier atome wat klassiek as die atome betrokke in waterstofbindings beskou word nie.

Elektrondigtheid word dus molekulewyd gedeel en die kwantumeffek is bewys as die primêre stabiliserende faktor in die bindingsinteraksie tussen adenien en timien.

Nota: 'n Seleksie van referaatopsommings: Studentesimposium in die Natuurwetenskappe, 3-4 November 2022, Akademia. Reëlingskomitee: Prof Rudi Pretorius (Departement Geografie, Universiteit van Suid-Afrika); Dr Hertzog Bisset (Suid-Afrikaanse Kernenergie-korporasie); Prof Hannes Rautenbach (Kantoor van die Besturende Direkteur, Akademia).

Bronnelys

- Cukrowski, I., 2022, A unified molecular-wide and electron density based concept of chemical bonding, *WIREs Computational Molecular Science* 12(3), e1579. <https://doi.org/10.1002/wcms.1579>.
- Cukrowski, I., Dhimba, G., Riley, D.L., 2019, Reaction energy profile and fragment attributed molecular system energy change (FAMSEC)-based protocol designed to uncover reaction mechanism: A case study of the proline catalysed aldol reaction, *Physical Chemistry Chemical Physica* 21(30), 16694-16705. <https://doi.org/10.1039/C9CP03046H>.
- De Lange, J., Cukrowski, I., 2017, Towards deformation densities for intramolecular interactions without radical reference states using the fragment, atom, localized, delocalized and interatomic (FALDI) charge density decomposition scheme, *Journal of Computational Chemistry* 38(13), 981-997. <https://doi.org/10.1002/jcc.24772>.