

Отчёт о работе на вычислительном комплексе ИВЦ НГУ

1. Тема работы

Квантово-химическое моделирование сокристалла пироксикама с янтарной кислотой: поиск причин механической неустойчивости и разложения на коформеры под воздействием давления

2. Состав коллектива (на момент выполнения работы)

- Артем Владимирович Голомолзин – выпускник бакалавриата Факультета естественных наук НГУ, ИГМ СО РАН. Контактный e-mail: a.golomolzin@g.nsu.ru

- Елена Владимировна Болдырева – д.х.н., проф., проф. каф. ХТТ ФЕН НГУ. Контактный e-mail: evboldy@mail.ru

3. Финансовая поддержка

Работа выполнена на базе кафедры химии твердого тела ФЕН НГУ и Института геологии и минералогии имени В. С. Соболева СО РАН при финансовой поддержке Российского научного фонда (грант 24-13-00140, <https://rscf.ru/project/24-13-00140/>).

4. Научное содержание работы

4.1. Постановка задачи

Целью работы было выявление атомистических причин механической неустойчивости сокристалла пироксикама с янтарной кислотой (состав 2:1), которая при сдвиговых нагрузках приводит к распаду кристалла на исходные коформеры (пироксикам и янтарную кислоту). Предполагалось методами теории функционала плотности (DFT) с периодическими граничными условиями исследовать эволюцию электронной структуры, систему водородных связей и упругие характеристики кристалла в диапазоне внешних давлений 0–5 ГПа для выявления термодинамического или кинетического механизма разложения.

4.2. Современное состояние проблемы (на момент начала работы)

На начало исследования сокристаллы пироксикама с дикарбоновыми кислотами рассматривались как перспективные твёрдые формы для повышения растворимости и биодоступности, а также как модельная система для изучения механохимической сокристаллизации оксикамов. Для сокристалла с янтарной кислотой 2:1 была экспериментально зафиксирована аномальная механическая нестабильность – под давлением он разлагается на кристаллические пироксикам и янтарную кислоту. Теоретические работы, которые бы объясняли это поведение на уровне электронной структуры и межмолекулярных взаимодействий, в литературе отсутствовали, что и определило актуальность моделирования с использованием ресурсов вычислительного кластера.

4.3. Подробное описание работы и используемые алгоритмы

Расчёты проводились на кластере ИВЦ НГУ с использованием пакета **CRYSTAL17** (метод Кона–Шэма, DFT). Применялся гибридный функционал PBE0 и базис 6-31G(d,p). Для моделирования кристаллов использовались периодические граничные условия; начальные геометрии взяты из результатов монокристалльного рентгеноструктурного анализа при 293 К. Выполнялась полная релаксация атомных позиций при фиксированных параметрах элементарной ячейки, соответствующей серии внешних давлений. Для проверки достижения минимума на поверхности потенциальной энергии рассчитывались частоты фононов в гармоническом приближении. Также были вычислены упругие постоянные (тензор жёсткости), объёмный модуль сжатия и проведён топологический анализ электронной плотности в рамках Квантовой теории атомов в молекулах для кристаллов (QTAIMAC) для обнаружения водородных связей, оценки их энергий и квантового электронного давления на межмолекулярных контактах.

4.4. Полученные результаты

На начальном этапе были получены равновесные геометрические параметры сокристалла при атмосферном давлении, которые хорошо воспроизводят экспериментальную структуру. Анализ изменения длин водородных связей при повышении давления показал постепенное ослабление части межмолекулярных контактов, однако однозначного механизма, объясняющего распад на коформеры, выявлено не было.

В связи с завершением учебного года и отсутствием ясной интерпретации расчёты были приостановлены. В течение последующего года (2025–2026) доступ к кластеру не использовался: коллектив принял решение сначала выполнить систематическое экспериментальное исследование данной системы. Экспериментальная часть успешно завершена, результаты опубликованы (см. раздел 6).

С учётом новых экспериментальных данных планируется возобновление моделирования, но

уже другим исполнителем. В отчётный период (последний год) вычислительная работа на кластере не велась.

5. Эффект от использования кластера в достижении целей работы

Вычислительный комплекс ИВЦ НГУ позволил в разумные сроки провести полномасштабные DFT-расчёты периодических структур сокристаллов (элементарная ячейка содержит более 50 атомов). Без доступа к кластеру получение релаксированных геометрий под давлением и расчёт упругих свойств были бы невозможны в рамках студенческой работы. Полученные предварительные данные послужили основой для постановки экспериментальных исследований и будут использованы при возобновлении вычислений новым специалистом.

6. Перечень публикаций, содержащих результаты работы

Голомолзин А. В., Хайновский М. А. Сравнительное исследование кристаллической структуры пироксикама и его сокристалла с янтарной кислотой комбинацией экспериментальных и расчетных методов // Химия : материалы 63-й Международной научной студенческой конференции (16–22 апреля 2025 г.) / Новосибирский государственный университет. – Новосибирск : ИПЦ НГУ, 2025. – С. 182. – 216 с.

Golomolzin A. V., Khainovskii M. A., Boldyreva E. V. Study of shear instability of piroxicam-succinic acid cocrystal: quantum chemical approach // Synchrotron Radiation Techniques for Catalysts and Functional Materials : III International Conference (Tomsk, 11–14 Nov. 2024) : book of abstracts. – Novosibirsk : Boreskov Institute of Catalysis SB RAS, 2024.

7. Впечатления от работы комплекса и деятельности ИВЦ НГУ

За время использования кластер работал нестабильно, происходили аварийные и плановые отключения, мы надеемся, что в будущем, особенно после переезда, кластер будет иметь большой аптайм. Кластер показал достаточную производительность для учебных и исследовательских задач. Операционная система, а также планировщик заданий и менеджер временных хранилищ, не создавали неудобств и работали исправно.

Аннотация к отчёту

Работа посвящена квантово-химическому моделированию сокристалла пироксикама и янтарной кислоты (2:1) с целью выявления структурных причин его механической нестабильности и распада на исходные коформеры при давлении. Расчёты выполнялись в пакете Crystal17 + topond14 методом теории функционала плотности с периодическими граничными условиями с использованием гибридного функционала PBE0. Были получены равновесные структуры при атмосферном давлении, исследована эволюция системы водородных связей и упругих свойств в диапазоне давлений. Однозначного механизма распада выявить не удалось, вычислительная работа была приостановлена, а фокус смещён на экспериментальное исследование системы. В течение последнего года (май 2025—июнь 2026) доступ к кластеру не использовался. Экспериментальная часть завершена и опубликована; дальнейшие расчёты по данной теме будут продолжены другим специалистом с учётом новых экспериментальных данных.