

# DOKTORI ÉRTEKEZÉS TÉZISEI

## A Cl/F + CH<sub>3</sub>NH<sub>2</sub> reakciók termokémiai és dinamikai vizsgálata elméleti módszerekkel

**Szűcs Tímea**

Témavezető:

**Dr. Czakó Gábor**

egyetemi docens

**SZEGEDI TUDOMÁNYEGYETEM**

Természettudományi és Informatikai Kar

Fizikai Kémiai és Anyagtudományi Tanszék

Kémia Doktori Iskola

MTA-SZTE Lendület Elméleti Reakciódinamika Kutatócsoport

Szeged

2024

## 1. Bevezetés

Az elméleti kémián belül matematikai módszerek és alapvető fizikai törvények segítségével határozzuk meg a vizsgált rendszer tulajdonságait. A számítások elvégzésével a kémiai folyamatokat molekuláris szinten is feltárhatjuk, ezáltal lehetőség nyílik célzott kísérletek tervezésére. Ennek következtében a drága mérések számát, valamint a kísérleti kockázatot is csökkenthetjük. A legmodernebb elektronszerkezet-számító módszerek alkalmazásával nagy pontossággal meghatározhatók például a reaktív kémiai rendszerekhez tartozó stacionárius pontok szerkezetei, harmonikus rezgési frekvenciái és relatív energiái. A számítások során kapott termokémiai paraméterek alapján további kísérleti és elméleti munkák könnyen tervezhetők. Ezen felül, a kémiai rendszerek legfontosabb energia régióiban felderített szerkezetek potenciálisenergia-felületek (PES) fejlesztéséhez szükséges illesztési készletek kulcsfontosságú pontjai lehetnek. A PES-ek felhasználásával reakciódinamikai vizsgálatok végezhetők. A szimulációkkal feltárhatók az egyes reakcióutak és mechanizmusok, de akár a reakciók kimenetele is jósolhatóvá válik. Az úgynevezett kvázi-klasszikus trajektória (QCT) módszeren alapuló reakciódinamika igen széles körben alkalmazott, jól bevált technika. A „klasszikus” kifejezés arra utal, hogy a módszer során az atommagok mozgása a klasszikus fizika törvényeivel kerül leírásra. Mivel azonban a kezdeti állapot kvantummechanikai rezgési-forgási szinteknek megfelelően kerül beállítására, így a „kvázi” előtag használata indokolt. Ezzel a módszerrel igen pontosan modellezhetjük a kémiai reakciókat és így atomi szinten követhetjük azok végbemenetelét lépésről lépésre.

Évtizedek óta jelentős tudományos érdeklődés övezi az atomok és molekulák között lejátszódó reakciók tanulmányozását. Az irodalomban számos kísérleti és elméleti kutatást találhatunk a  $F/Cl + H_2/H_2O/NH_3/CH_4/C_2H_6$  rendszerek széleskörű vizsgálatáról. Túllépve azonban ezeken a – kizárólag ekvivalens H atomokat tartalmazó – rendszereken, a legalább két funkciós csoportból álló molekulák és atomok között végbemenő reakciók során már igen sokféle, egymással versengő útvonal is megnyílhat. Ebbe a reakciócsaládba tartozik az aminos- ( $-NH_2$ ) és metilcsoportból ( $-CH_3$ ) álló metilamin ( $CH_3NH_2$ ) reakciója a klór- vagy a fluoratommal. Ezek esetében az irodalomban található kísérleti és elméleti munkák során a két funkciós csoport  $HCl/HF + CH_2NH_2/CH_3NH$  termékekhez vezető hidrogén-absztrakciós útvonalait tanulmányozták. Egy 2003-as kutatásban például kísérleti mérésekből határozták meg a  $Cl + CH_3NH_2$  hidrogén-absztrakciós reakciók során képződő HCl molekula forgási eloszlását. Emellett elméleti úton feltérképezték a fenti két reakciócsatornához tartozó

stacionárius pontokat G2//MP2/6-311G(d,p) elméleti szinten, valamint néhány trajektóriát is kiszámítottak *on-the-fly* módszerrel. Szintén elméleti-kísérleti vizsgálatot végeztek Nielsen és munkatársai 2015-ben erre a rendszerre. Elméleti és kísérleti úton is meghatározták a két H-absztrakció (HA) sebességi állandóját. Számításaikkal feltárták a két HA-hoz tartozó stacionárius pontokat, ahol az MP2/cc-pVTZ elméleti szinten optimált szerkezetek energiáit CCSD(T)-F12a/aug-cc-pVTZ szinten határozták meg. A  $F + CH_3NH_2$  rendszer esetén a korai (80-as évek környéke) kísérleti vizsgálatokon túl – ahol a metil- és az aminocsoport szelektív deutérium-helyettesítéses reakcióiból származó HF/DF forgási eloszlásait határozták meg – Schaefer és munkatársai tanulmányozták ezt a rendszert 2013-ban elméleti úton. Számításaik során CCSD(T) módszert és aug-cc-pVnZ [ $n = 2(D), 3(T), 4(Q)$ ] báziskészleteket alkalmaztak a H-absztrakciós útvonalak stacionárius pontjainak meghatározásához.

Dolgozatom a  $Cl/F + CH_3NH_2$  rendszerek termodinamikai és reakciódinamikai vizsgálatának témájában íródott, a fent említett kutatómunkák tudományos útvonalának folytatásaként.

## 2. Célkitűzés

A doktori munka során célul tűztük ki, hogy mélyebb betekintést nyújtsunk a Cl/F + CH<sub>3</sub>NH<sub>2</sub> reakciók mechanizmusába a korábban vizsgált hidrogén-absztrakciós csatornákon túl. Terveink között szerepelt tehát az alábbi reakcióutak feltárása a stacionárius pontok feltérképezésével: a metil- és az aminocsoport, valamint e csoportok egyik H atomjának klór-/fluoratómmal történő szubsztitúciója. Mivel ezek a reakciók Walden-inverziós és előlről támadásos mechanizmusokkal is végbe mehetnek, így célunk volt ezekhez az útvonalakhoz tartozó átmeneti állapotok és minimum komplexek megkeresése is. Ezen felül, a korábbi tanulmányok által kapott eredmények pontosságát kívántuk javítani. Ezt az explicit-korrelált CCSD(T)-F12b módszer alkalmazásával, valamint az alábbi korrekciók számításával szándékoztuk elérni: báziskészlet effektus aug-cc-pVQZ-ig (Cl + CH<sub>3</sub>NH<sub>2</sub>) és cc-pV5Z-F12-ig (F + CH<sub>3</sub>NH<sub>2</sub>), post-(T) elektronkorrelációs effektus CCSDT(Q)-ig, törzselektron korrelációs energia-hozzájárulás, skaláris relativisztikus effektus, zérusponti energia (ZPE) korrekció, valamint a geometriától függő spin-pálya csatolási effektus.

A Cl/F + CH<sub>3</sub>NH<sub>2</sub> rendszerek termodinamikai vizsgálatain felül, a reakciódinamikára kiterjedő kutatásunk fő motivációját az adta, hogy az irodalomban ezekre a reakciókra nem találhatunk teljes dimenziós, analitikus potenciálisenergia-felületeket. Sőt mi több, habár születtek olyan kísérleti tanulmányok, melyekben a metil- (CH<sub>3</sub> HA) és az aminoszubsztitúciós (NH<sub>2</sub> HA) útvonalakat vizsgálták, az elméleti oldalról a reakciódinamikai elemzések igen hiányosak. Célunk volt tehát, hogy olyan teljes dimenziós, nagy pontosságú PES-eket fejlesszünk a két rendszerre, melyek lehetőséget nyújtanak a hatékony QCT szimulációk végrehajtására. Ezen felül a munkaterv része volt, hogy elvégezzük az ezekből kinyerhető adatok kísérleti eredményekkel történő összehasonlítását. Emellett a részletes elemzéseinkkel mélyebb betekintést nyújthatunk a F/Cl atomok és szerves molekulák között lejátszódó reakciók családjába tartozó rendszerek dinamikájába.

### 3. Módszerek

A stacionárius pontok energiáinak, szerkezeteinek és harmonikus rezgési frekvenciáinak meghatározására a MOLPRO programcsomag 2015-ös verziójában implementált másodrendű Møller–Plesset perturbációs (MP2) és megszorítás nélküli explicit-korrelált csatolt klaszter [UCCSD(T)-F12b] módszereket alkalmaztuk. A legpontosabb geometriákat és frekvenciákat UCCSD(T)-F12b/aug-cc-pVTZ elméleti szinten határoztuk meg, míg a potenciális energiákat ezeken a szerkezeteken számítottuk az UCCSD(T)-F12b módszerrel és az aug-cc-pVQZ (Cl + CH<sub>3</sub>NH<sub>2</sub>), illetve a cc-pV5Z-F12 (F + CH<sub>3</sub>NH<sub>2</sub>) báziskészletekkel. A még pontosabb eredmények elérése érdekében minden stacionárius pont esetén az alábbi energiakorrekciók számításokat is elvégeztük: poszt-CCSD(T) korreláció, törzselektron korreláció, skaláris relativisztikus effektus, spin-pálya korrekció és ZPE korrekció. A (T)-n túli energiahozzájárulások számítását a MOLPRO-hoz csatolt MRCC programmal végeztük.

A potenciálisenergia-felületeket a doktori munka alapját képező kémiai rendszerek legfontosabb energiarégióit leíró illesztési készlet permutációra invariáns polinom módszerrel történő illesztésével kaptuk meg. Az energiapontok számítása során a ManyHF módszert alkalmaztuk a bemeneti csatornáknak jelentkező Hartree–Fock konvergencia problémák kiküszöbölésére. A PES-ek minőségét a ROBOSURFER programcsomaggal javítottuk, mely automatizált módon bővíti az illesztési készletet kvázi-klasszikus trajektória szimulációkból származó geometriákkal. A fejlesztés során és a végső reakciódinamikai vizsgálatokhoz futtatott QCT szimulációkat a csoportunkban elérhető saját programokkal hajtottuk végre. A végső trajektóriák elemzésére FORTRAN90 programokat implementáltam. A trajektóriák vizualizációjára a MacMolPlt programot használtam. Néhány kisebb feladat megoldása (fájlkezelés, programok futtatása, adatok feldolgozása, stb.) AWK és Shell szkriptek írását is megkövetelte.

## 4. Eredmények

**T1. A Cl/F + CH<sub>3</sub>NH<sub>2</sub> rendszerek potenciálisenergia-felületeinek magas elméleti szintű feltérképezésével nem csak a korábban vizsgált absztrakciós reakcióutakat, hanem elsőként a szubsztitúciós útvonalakhoz tartozó stacionárius pontokat is feltártuk. Ezen szerkezetekhez tartozó relatív energiákat energiakorrekciók figyelembe vétele mellett határoztuk meg, így minden eddiginél pontosabban fedtük fel a reakciók termodinamikai sajátosságait.**

Mind a Cl + CH<sub>3</sub>NH<sub>2</sub>, mind a F + CH<sub>3</sub>NH<sub>2</sub> rendszerek potenciálisenergia-felületének feltérképezése során az alábbi hat reakciócsatornához tartozó stacionárius pontokat tártuk fel:

1. Metil-hidrogénabsztrakció (CH<sub>3</sub> HA)
2. Amino-hidrogénabsztrakció (NH<sub>2</sub> HA)
3. Metil-hidrogénszubsztitúció (CH<sub>3</sub> HS)
4. Amino-hidrogénszubsztitúció (NH<sub>2</sub> HS)
5. Metil-szubsztitúció (MS)
6. Amino-szubsztitúció (AS)

A klór + metilamin rendszerénél a 3. és a 6. reakciócsatornák, a fluor + metilamin rendszerénél pedig a 6. reakciócsatorna esetén a Walden-inverziós és az előlről támadásos mechanizmusokhoz tartozó stacionárius állapotokhoz tartozó magkonfigurációkat is beazonosítottuk. A reakcióhők pontos meghatározásával megmutattuk, hogy míg a fluor + metilamin esetén a két hidrogén-absztrakciós (HA) reakción túl az amino- és a metil-hidrogénszubsztitúció is exoterm, addig a klór + metilamin esetén kizárólag a két HA exoterm, az összes szubsztitúciós útvonal endoterm. Amellett, hogy minden reakcióút mentén feltérképeztük az átmeneti állapot és termék szerű minimum komplex szerkezetét, mind a fluoros, mind a klóros rendszer bemeneti csatornájában találtunk egy mély minimumot (PREMIN). A Cl + CH<sub>3</sub>NH<sub>2</sub> rendszer felületén ez a szerkezet a klasszikus globális minimum, míg a rezgésileg adiabatikus felület legmélyebb relatív energiájú pontja a metil-hidrogénabsztrakció termékcsatornájában található komplex (CH<sub>3</sub> HA MIN’’). Ez utóbbi szerkezetet a F + CH<sub>3</sub>NH<sub>2</sub> rendszerénél is azonosítani tudtuk, ahol a klasszikus és adiabatikus PES-nek is ez a globális minimuma.

**T2. A kiszámított energiakorrekciók elemzésével igazoltuk, hogy ezek figyelembe vétele elengedhetetlen a kémiai pontosság elérése érdekében. Megmutattuk, hogy a  $F + CH_3NH_2$  reakció feltérképezése során alkalmazott elméleti szint  $0,1 \text{ kcal mol}^{-1}$ -on belüli báziskonvergenciát mutat, tehát kiváló választásnak bizonyul a nagy pontosságú számításainkhoz.**

A stacionárius pontok legpontosabb potenciális energiáinak számításához használt CCSD(T)-F12b módszer a háromszoros gerjesztéseket perturbatív módon veszi figyelembe. A magasabb gerjesztések hatása azonban igen jelentős, hiszen a (T)-n túli korrekciós számításainkkal megmutattuk, hogy a  $\delta[T]$  és a  $\delta[(Q)]$  hozzájárulások abszolút értékeinek összege  $1 \text{ kcal mol}^{-1}$  körüli érték. Mivel a korrelációs módszerek alapértelmezett beállítás mellett kizárólag a vegyértékhéj elektronok korrelációját veszi figyelembe, így törzselektron korrelációs ( $\Delta_{\text{törzs}}$ ) számításainkkal a vegyértékhéj alatti héjon lévő elektronok korrelációjának a hozzájárulását is meghatároztuk. A relativisztikus hatásokat a skaláris relativisztikus effektus ( $\Delta_{\text{rel}}$ ) és a spin-pálya csatolásból (SO) eredő energiaeltolódás mértékének számításával vettük figyelembe. Habár mind a  $\Delta_{\text{törzs}}$ , mind a  $\Delta_{\text{rel}}$  hatása néhány tized  $\text{kcal mol}^{-1}$ , ezeket is érdemes számításba venni a kellően nagy pontosságú eredmények eléréséhez. A reaktáns aszimptota klóratom SO hasadásából eredő  $0,84 \text{ kcal mol}^{-1}$ -os és a fluor esetén  $0,37 \text{ kcal mol}^{-1}$ -os eltolódását kiválóan sikerült reprodukálni számításainkkal. Az  $1 \text{ kcal mol}^{-1}$ -on belüli pontossághoz tehát ezek sem elhanyagolhatók.

A  $F + CH_3NH_2$  rendszer vizsgálatánál kutatásunk az UCCSD(T)-F12b módszerrel meghatározott eredményeink báziskészlettől való függésének tanulmányozására is kiterjedt. Megvizsgáltuk, hogy a *benchmark* értékek meghatározásához használt UCCSD(T)-F12b/cc-pV5Z-F12 módszerrel számított relatív energiákhoz viszonyítva hogyan alakulnak az UCCSD(T)-F12b/aug-cc-pVnZ ( $n = D, T, Q$ ) és cc-pVnZ-F12 ( $n = D, T, Q, 5$ ) relatív energiák. A vártak megfelelően az eltérések a báziskészlet növelésével csökkentek. A legfontosabb következtetésünk pedig az volt, hogy a cc-pVQZ-F12 és cc-pV5Z-F12 energiák közötti különbségekre kapott  $0,07 \text{ kcal mol}^{-1}$  átlagos négyzetes eltérés alapján a számításaink igen megbízhatóak, hiszen a báziskonvergencia  $0,1 \text{ kcal mol}^{-1}$ -on belüli.

**T3. Megmutattuk, hogy a ManyHF módszer alkalmazásával sikeresen megoldhatjuk a Cl/F + CH<sub>3</sub>NH<sub>2</sub> rendszerek bemeneti csatornájában jelentkező Hartree–Fock konvergencia problémákat, majd teljes dimenziós, nagy pontosságú analitikus potenciálisenergia-felületeket fejlesztettünk a két reakcióra.**

A PES fejlesztéshez szükséges illesztési készlet létrehozásának első lépéseként a feltérképezésekből nyert optimált stacionárius pontok koordinátáinak véletlenszerű kitérítésével további pontokat generáltunk. Az ezekre végrehajtott kvantumkémiai számítások során azonban a reaktáns régióban a MOLPRO-ban implementált, alapértelmezett HF módszer irreálisan magas energiájú elektronállapothoz konvergál az esetek döntő többségében. Erre nyújtott megoldást a csoportunkban fejlesztett ManyHF módszer, mely a korrelációs számítások alapjául szolgáló referenciát több Hartree–Fock számítás megoldásából választja ki, mégpedig azt, amelyik a legmélyebb energiát adja. Így a PES fejlesztést ManyHF alapú kompozit elméleti szinten végeztük. Ennek alapját az explicit-korrelált csatolt klaszter módszerrel és kétszeres zeta báziskészlettel (ManyHF-UCCSD(T)-F12a/cc-pVDZ-F12) végzett számítások adták, amit háromszoros zeta báziskorrekciónal egészítettünk ki az RMP2-F12 módszer alkalmazása mellett (ManyHF-RMP2-F12/cc-pVTZ-F12 – ManyHF-RMP2-F12/cc-pVDZ-F12). Az így kapott felületek megfelelő pontossággal írják le a F/Cl + CH<sub>3</sub>NH<sub>2</sub> komplex rendszerek fontosabb stacionárius pontjait, így kiválóan alkalmazhatóak reakciódinamikai szimulációk elvégzéséhez.

**T4. Reakciódinamikai szimulációk végrehajtásával és elemzésével kimutattuk, hogy habár magas ütközési energiákon a szubsztitúciós útvonalak is megnyílnak, mégis a két hidrogén-absztrakció a Cl/F + CH<sub>3</sub>NH<sub>2</sub> reakciók domináns csatornája. Ez utóbbiak esetén azt is megmutattuk, hogy az ütközési energia növelésével a reakciók egyre direktebbek és jellemzően azon a funkciós csoporton mennek végbe, mely felől a halogénatom a metilamint támadja.**

A kifejlesztett felületek felhasználásával különböző ütközési energiákon ( $E_{\text{ütk}}$ ) és ütközési paraméterek mellett mind a két rendszer esetén közel 800 000 trajektóriát szimuláltunk és elemeztünk. Az első tézispontnál bemutatott hat reakciócsatornára meghatározott valószínűségek és integrális hatáskeresztmetszetek alapján megmutattuk, hogy a magasabb ütközési energiákon megnyíló szubsztitúciós reakcióknál sokkal nagyobb jelentőséggel bírnak az összes ütközési energián lejátszódó metil- és amino-hidrogénabsztrakciós csatornák. Ezek



alapján a részletes dinamikai jellemzéseket e két reakcióra végeztük el mind a klóros, mind a fluoros rendszer esetén. A számításaink eredményeként kapott támadási szögeloszlások rávilágítottak arra, hogy az absztrakciók során a H atom a metilamin azon funkciós csoportjából származik, mely felől a támadó halogénatom megközelíti a molekulát. Azáltal, hogy meghatároztuk a termékek szórási szögeloszlásait, a reakciók mechanizmusára tudunk következtetni. Mind a CH<sub>3</sub> HA, mind az NH<sub>2</sub> HA esetén az ütközési energia növelésével a termékek előre szóródása válik dominánssá, mely a direkt lehasításos mechanizmusra enged következtetni. Ezzel szemben alacsonyabb ütközési energiákon az izotrópabb eloszlások azt mutatják, hogy a mechanizmusok indirekt jellegűek.

**T5. A Cl/F + CH<sub>3</sub>NH<sub>2</sub> reakciók esetén a termékek energieloszlásainak kiszámításával rávilágítottunk arra, hogy az ütközési energia jelentős része a termékek translációs energiájába folyik, továbbá a kétatomos termékek közül a HF rezgésileg gerjesztett formában képződik. A számításaink során kapott HF molekula forgási kvantumszám-eloszlásai jó egyezést mutatnak a szimulációinkhoz hasonló körülmények között végzett kísérleti módszer eredményeivel.**

A reakciódinamikai vizsgálatok során a termékek translációsenergia-eloszlásainak erős ütközésienergia-függéséből megállapítottuk, hogy a szimulációk során alkalmazott  $E_{\text{ütk}}$  jelentős része a termékek haladómozgási energiájába folyik. Abból, hogy az eloszlások csúcsai az  $E_{\text{ütk}}$  növelésével a nagyobb energiák felé tolódnak, az előző tézispontban megállapított mechanizmusváltás igazolható, hiszen a direkt reakciókból keletkező termékek nagyobb translációs energiával rendelkeznek, mint az indirekt reakciókból származók. A reaktív trajektóriák során képződő kétatomos molekulák, valamint gyöktermékek belső energiáit is kiszámítottuk és felbontottuk rezgési-, illetve forgásienergia tagokra. Ezek jellemzésével rávilágítottunk arra, hogy a F + CH<sub>3</sub>NH<sub>2</sub> hidrogén-absztrakciós reakciói során képződő HF rezgésileg gerjesztett. Ez jól magyarázható egyrészt a termodinamikai vizsgálatunk során meghatározott energiák segítségével, hiszen megmutattuk, hogy ezek a reakciók exoterm jellegűek. Másrészt a szerkezetoptimálásokkal kapott eredményeink is erre engednek következtetni, hiszen a HF molekula egyensúlyi kötéhosszához képest az átmeneti állapotban található H–F kötés jelentősen megnyúlik. Ennek következtében a hidrogén lehasítása után a kétatomos molekula rezgésileg gerjesztett formában képződik.

Végül arra is lehetőségünk nyílt, hogy a hidrogén-kloridra és a hidrogén-fluoridra meghatározott forgási kvantumszám eloszlásokat összevevük az irodalomban található

kísérleti eredményekkel. A szimulációink eredményei igen jó egyezést mutatnak az úgynevezett gátolt relaxációs kísérletekkel, hiszen ennél a módszernél a képződő HF relaxációjának és a másodlagos reakciók végbemenetelének megakadályozására törekednek a kísérletek elvégzése során.

## 5. Tudományos közlemények

### A doktori értekezés alapját képező közlemények listája

1. T. Szűcs and G. Czakó, Benchmark *ab initio* stationary-point characterization of the complex potential energy surface of the multi-channel Cl + CH<sub>3</sub>NH<sub>2</sub> reaction, *Physical Chemistry Chemical Physics* 23(17), 10347–10356 (2021), IF<sub>2021</sub> : 3,945
2. T. Szűcs and G. Czakó, Benchmark *ab initio* potential energy surface mapping of the F + CH<sub>3</sub>NH<sub>2</sub> reaction, *Physical Chemistry Chemical Physics* 24(34), 20249–20257 (2022), IF<sub>2022</sub> : 3,3
3. T. Szűcs and G. Czakó, ManyHF-based full-dimensional potential energy surface development and quasi-classical dynamics for the Cl + CH<sub>3</sub>NH<sub>2</sub> reaction, *Journal of Chemical Physics* 159(13), 134306 (2023), IF<sub>2023</sub> : 3,1
4. T. Szűcs and G. Czakó, Automated potential energy surface development and comprehensive dynamics for the F + CH<sub>3</sub>NH<sub>2</sub> reaction, *Journal of Chemical Physics* 160(6), 064304 (2024), IF<sub>2023</sub> : 3,1

$$\sum \text{IF} = 13,445$$

### A doktori értekezéshez kapcsolódó közlemények

1. P. Tóth, T. Szűcs, and G. Czakó, Benchmark *ab initio* characterization of the abstraction and substitution pathways of the Cl + CH<sub>3</sub>CN reaction, *Journal of Physical Chemistry A* 126(18), 2802–2810 (2022), IF<sub>2022</sub> : 2,9
2. B. Ballay, T. Szűcs, D. Papp, and G. Czakó, Phosphorus-centered ion-molecule reactions: benchmark *ab initio* characterization of the potential energy surfaces of the X<sup>-</sup> + PH<sub>2</sub>Y [X, Y = F, Cl, Br, I] systems, *Physical Chemistry Chemical Physics* 25(42), 28925–28940 (2023), IF<sub>2023</sub> : 2,9

3. P. Tóth, T. Szűcs, T. Győri, and G. Czakó, Dynamics of the Cl + CH<sub>3</sub>CN reaction on an automatically-developed full-dimensional *ab initio* potential energy surface, *Journal of Chemical Physics*, megjelenés alatt (2024), IF<sub>2023</sub> : 3,1

$$\frac{\sum \text{IF} = 8,9}{\sum \sum \text{IF} = 22,345}$$

## A doktori értekezéshez nem kapcsolódó közlemények

1. R. Ambrus, P. Szabó-Révész, T. Kiss, E. Nagy, T. Szűcs, T. Smausz, and B. Hopp, Application of a suitable particle engineering technique by pulsed laser ablation in liquid (PLAL) to modify the physicochemical properties of poorly soluble drugs, *Journal of Drug Delivery Science and Technology* 57, 101727 (2020), IF<sub>2020</sub> : 3,981
2. I.Z. Papp, A. Szerlauth, T. Szűcs, P. Béltéky, J.F.G. Perez, Z. Kónya, and Á. Kukovecz, Fabrication and characterization of a bifunctional zinc oxide/multiwalled carbon nanotube/poly(3,4-ethylenedioxythiophene): Polystyrene sulfonate composite thin film, *Thin Solid Films* 778, 139908 (2023), IF<sub>2023</sub> : 2,0

$$\frac{\sum \text{IF} = 5,981}{\sum \sum \sum \text{IF} = 28,326}$$

## 6. Előadások és posztetek

2021. október 21-22.: MTA Reakciókinetikai és Fotokémiai Munkabizottsági Ülés, Mátrafüred, Szűcs Tímea és Czakó Gábor, A Cl + CH<sub>3</sub>NH<sub>2</sub> reakció potenciálisenergia-felületének nagypontosságú *ab initio* feltérképezése (előadás)

2022. július 10-15.: Gordon Research Conference on Molecular Interactions and Dynamics, Stonehill College, Easton, MA, USA, Tímea Szűcs and Gábor Czakó, High-level *ab initio* stationary-point characterizations of atom + molecule multi-channel reactions (poszter)

2023. június 8-9.: MTA Reakciókinetikai és Fotokémiai Munkabizottsági Ülés, Balatonvilágos, Szűcs Tímea és Czakó Gábor, A Cl + CH<sub>3</sub>NH<sub>2</sub> reakció dinamikájának elméleti modellezése (előadás)

2023. november 12-17.: International Conference on Molecular Energy Transfer in Complex Systems, Jaipur, India, Tímea Szűcs and Gábor Czakó, Spin-orbit-corrected full-dimensional *ab initio* potential energy surface development and dynamics for the Cl/F + CH<sub>3</sub>NH<sub>2</sub> reactions (poszter)

2023. november 24-25.: MTA Anyag- és Molekulaszerkezeti Munkabizottsági Ülés, Mátrafüred, Tímea Szűcs and Gábor Czakó, Automated potential energy surface developments and dynamics simulations for the Cl/F + CH<sub>3</sub>NH<sub>2</sub> reactions (előadás)

2024. május 30-31.: MTA Reakciókinetikai és Fotokémiai Munkabizottsági Ülés, Balatonvilágos, Szűcs Tímea és Czakó Gábor, S<sub>N</sub>2 reakció két reaktív centrummal: A CN<sup>-</sup> + CH<sub>3</sub>I rendszer dinamikája egy globális potenciálisenergia-felületen (előadás)