

## Zárójelentés a „Nagy pontosságú modellek az elméleti kémiában és spektroszkópiai alkalmazások” című, NF72194-es számú OTKA szerződéshez

Kutatásaink legfontosabb eredménye olyan nagy pontosságú elméleti módszerek kifejlesztése, amelyek alacsonyabb számításgénnel rendelkeznek, mint a korábban használt módszerek és így alkalmazási területük szélesebb. A számításgénnel mérséklését a módszerek egyenletiben szereplő numerikus paraméterek számának a csökkentésével valósítottuk meg, ügyelve arra, hogy a módszerek pontossága ne romoljon. Jelentős lépéseket tettünk olyan kvantumkémiai módszerek kifejlesztésének irányába, amelyek helyesen írják a molekulákat egyensúlyi állapotuktól távol is. Korábban kidolgozott nagy pontosságú kvantumkémiai módszereinket relativisztikus közelítésekkel is kombináltuk, és így lehetővé vált a molekuláris tulajdonságok nagy pontosságú számítása nehezebb atomokból felépülő molekulákra is. Az elméleti modellek fejlesztése mellett ezeket a módszereket spektroszkópiai technikákkal kombinálva számos kémiai probléma megoldására is alkalmaztuk.

Eredményeinket az alábbiakban foglalhatjuk össze:

1. Kiterjesztettük a korábban javasolt perturbációs közelítéseken alapuló magasrendű coupled-cluster módszereket tetszőleges referenciáfüggvényre különös tekintettel a nyílt héjú referenciadeterminánsokra. Demonstráltuk, hogy a kanonikus Hartree–Fock pályákon alapuló négyszeres és magasabb gerjesztéseket használó modellek kiterjesztése tetszőleges referenciára nem egyértelmű. A háromszoros gerjesztésekre épülő módszerekkel szemben, új típusú tagok jelennek meg, amelyek számítására többféle közelítés vezethető be, viszont nem lehet olyan módszert kidolgozni, amely konzisztens a kanonikus Hartree–Fock pályákra kidolgozott modellekkel. Számos közelítést megvizsgáltunk és bizonyítottuk, hogy a módszerek teljesítménye csak gyengén függ az alkalmazott közelítéstől. Tapasztalatainkat felhasználva sikerült olyan új, kanonikus Hartree–Fock determinánsra épülő közelítő módszereket is kidolgozni, amelyek számításgénnel nem különbözik a korábbi modellektől, azonban hibájuk jelentősen, kb. 50%-kal alacsonyabb.
2. Elvégeztük az 1-(2-karboximetil-6-etilfenil)-1H-pirrol-2-karbonsav elméleti számításokkal is alátámasztott CD spektroszkópiás abszolút konfiguráció meghatározását. A vegyület CD spektrumát összevetettük a már ismert abszolút konfigurációjú származékának, 1-(2-karboxi-6-trifluorometil-fenil)-pirrol-2-karbonsavnak a CD spektrumával, mely alapján a vegyület abszolút konfigurációja meghatározható volt. (A (+)-forgatású vegyület megfelelő CD sávjainak előjele megegyezett a (S)-trifluor-származék CD sávjainak előjelével, így a vegyület abszolút konfigurációja (S)-(+)). Eredményeinket alátámasztandó, az (S)-vegyületre végzett konformáció analízis (MMFF94 erőter, Monte-Carlo algoritmus), illetve a 2 legstabilabb konformerre (~83%) végzett geometria optimalás (DFT/BP-86/TZVP) után TD-DFT/TZVPP szinten (RI közelítéssel) számítottuk a két legstabilabb konformer CD spektrumát, mely számított CD spektrum jó egyezést mutatott a (+)-vegyület mért CD spektrumával, megerősítve az ismert abszolút konfigurációjú származék CD spektrumával való összehasonlítás alapján megállapított abszolút konfigurációt.
3. Meghatároztuk az 1-[(3-karboxi-1,10-bifenil)-2-il]-1H-pirrol-2-karbonsav abszolút konfigurációját, melyet elméleti számítások és a CD spektroszkópia módszerének kombinációjával végeztünk el. A vegyület két enantiomerjének kísérleti CD spektrumát összevetettük a vegyület (S)-enantiomerjének AM1 módszerrel optimalt geometriájára végzett ZINDO szintű számítások alapján nyert elméleti CD spektrummal. A (–)-forgatású vegyületre mért és az (S)-enantiomerre számított CD spektrum igen jó egyezést mutatott, mind a sávellőjeleket, mind a sávok helyét illetően így a vegyület abszolút konfigurációja

meghatározható volt ((S)-(-)). Az abszolút konfiguráció meghatározás helyességét röntgen-diffrakciós mérések is alátámasztották.

4. A korábban kifejlesztett analitikus második deriváltak segítségével elektronikus g-tenzorokat implementáltunk tetszőleges coupled-cluster módszerekre és így lehetővé tettük az elektronspin rezonancia spektrumok paramétereinek nagy pontosságú számítását. Megvizsgáltuk a g-tenzor elemeinek függését a korreláció szintjétől, az atompálya bázis méretétől, az alkalmazott molekulapályáktól és a pályák relaxációjától. Tapasztalataink szerint az elektronkorreláció figyelembevétele elengedhetetlen a g-tenzor számításánál, de a számított értékek gyorsan konvergálnak az elektronkorreláció szintjével. A g-tenzor konvergenciája az atompálya bázis méretével meglehetősen lassú, viszont a számított értékek csak kis mértékben függenek a molekulapályák választásától (ROHF vagy UHF) és a pályarelaxáció kezelésétől. A számított nagy pontosságú értékeket összehasonlítottuk különböző sűrűségfüggő módszerrel és megállapítottuk, hogy csak a hibrid B3LYP funkcionál esetében várhatunk megbízható adatokat.
5. Megvizsgáltuk a királis szubsztituált 3-metil-3-foszfórolén-1-oxidok UV/látható abszorpciós és cirkuláris dikroizmus spektrumát és meghatároztuk a vegyületek abszolút konfigurációját. A molekulák konformációanalízisét és a geometriaoptimalizálást sűrűségfüggő módszerrel (DFT) végeztük, míg a gerjesztési energiákat, oszcillátor- és rotátorerősségeket időfüggő DFT-vel számítottuk. A spektrumok asszignációját egy új módszerrel végeztük, amely a hullámfüggvény paramétereinek a szingulárisérték-felbontásán alapszik. Megmutattuk, hogy a módszer nagyban megkönnyíti a spektrumok hozzárendelését.
6. Vizsgáltuk a metilénké (Mk) és szulfonált kalix(n)arének (n=4, 6, 8) komplexképzését abszorpciós és fluoreszcencia-spektroszkópiával. Megállapítottuk, hogy egyetlen kalixarén több metilénkét is képes komplexálni, nagy Mk felesleg esetén kettőnél is több Mk kötődik egyetlen kalixarénhez (ezt csak a legnagyobb, n=8 kalixarénre vizsgáltuk Raley-fényszórási módszerrel). Meghatároztuk a Mk:kalixarén 1:1 és 2:1 komplexek egyensúlyi állandóit különböző ionerősségű vizes oldatokban. Figyelemre méltó, hogy a második Mk kötődése minden esetben nagyobb egyensúlyi állandóval jellemezhető, mint az első Mk megkötése. Az egyensúlyi állandó ionerősség-függése jól értelmezhető a Debey-Hückel elmélet alapján. Más vizsgálatok eredményével összhangban kísérleteink rámutattak, hogy a pozitív töltésű Mk preferáltan kötődik a nagy lokális negatív töltéssel rendelkező kalixarénekhez, a komplexálás nagymértékben megváltoztatja a Mk dezaktiválódási folyamatait (az 1:1 komplex nem fluoreszkál, és a komplexből nem képződik Mk tripllett, holott szabad Mk jól fluoreszkál és tripllett képzési kvantumhatásfoka ~0,5).
7. Megvizsgáltuk, hogy a közelítő háromszoros gerjesztésekre épülő coupled-cluster módszer [CCSD(T)] skálázódása csökkenthető-e, ha az energianevezők Cholesky-felbontását kombináljuk az integrálista szinguláris érték felbontáson alapuló faktorizálásával. A kombinált módszert implementáltuk és tesztszámításokat végeztünk számos rendszerre. Eredményeink azt mutatják, hogy az energianevezők és a integrálista egyidejű faktorizálása numerikusan instabillá teszi a módszert és egy adott pontosság eléréséhez szükséges Cholesky- illetve szinguláris vektorok száma erősen rendszerfüggő. Ezek alapján a módszer használatát nem javasoljuk.
8. Implementáltuk a Mukherjee által korábban javasolt multi-referencia (MR) coupled-cluster (CC) módszert. Implementációnk teljesen általános, lehetővé teszi bármilyen aktív terek és tetszőleges gerjesztések használatát. Számos tesztszámítást végeztünk egyszeres és többszörös kötések disszociációjára és összevetettük a módszer és más multi-referencia módszerek eredményeit. Tapasztalataink szerint a módszer egyenleteinek a megoldásánál gyakran konvergenciaproblémák lépnek fel. Ezeket a hullámfüggvény bizonyos paramétereinek az eldobásával illetve regularizációs eljárások alkalmazásával küszöböltük ki. A módszer teljesítménye jó, ha lokalizált aktív pályákat használunk, viszont kanonikus

MCSCF pályák estén az eredmények gyakran nem kielégítőek. Ezek alapján a módszer használatát lokalizált pályákkal javasoljuk.

9. Olasz munkatársaink új diaril szubsztituált tetrapirrol származékokat állítottak elő illetve ezek citotoxicitását vizsgálták. A vegyületek fotodinamikus aktivitást mutattak bizonyos karcinoma sejtenyészeten, aktivitásuk más ismert fotoszenzibilizátornál (pl. Foscan) nagyobb volt. A vegyületek fotokémiai sajátságainak felderítését laboratóriumunkban végeztük el spektroszkópiai illetve lézervillanófény-fotolízis módszerek segítségével. Méréseinkkel a szenzibilizátorok következő jellemzőit határoztuk meg: abszorpciós és emissziós spektrumok, a triplétt állapot abszorpciós spektruma, a triplétt élettartama oxigén távollétében és jelenlétében, a triplétt állapot oxigén által történő kioltásának sebességi együtthatója, a szingulett oxigén képződésének kvantumhatásfoka. Ez utóbbi, mely a fotodinamikus hatás szempontjából a leglényegesebb, ezeknél a vegyületeknél más fotoszenzibilizátorokhoz hasonló értéket mutatott, így megállapítottuk, hogy az újonnan szintetizált vegyületek nagyobb aktivitásának nem fotokémiai, hanem biológiai okai vannak.
10. Nd-YAG lézerrel grafit-felületről indukált plazma emissziós spektrumát vizsgáltuk nanoszekundumos időfelbontásban. A spektrumban  $C_2$  gyököt,  $C^+$  és  $C_2^+$  ionokat azonosítottunk. Meghatároztuk a  $C_2$  gyök rezgési-forgási hőmérsékletét jellemző időállandót.
11. Nagy pontosságú kvantumkémiai számításokat végeztünk a légkörkémiai szempontból fontos fluorozott és klórozott metánszármazékokra ( $CF$ ,  $CF_3$ ,  $CH_2F$ ,  $CHF_2$ ,  $CF_2$ ,  $CF_4$ ,  $CH_2F_2$ ,  $CH_3F$ ,  $CHF$ ,  $CHF_3$ ,  $CH_2Cl$ ,  $CHCl_2$ ,  $CCl$ ,  $CCl_2$ ,  $CF_2Cl_2$ ,  $CFCl$ ,  $CH_2Cl_2$ ,  $CH_2FCl$ ,  $CH_3Cl$ ,  $CHCl$ ,  $CHFCI$ ,  $CFCl_2$ ,  $CHFCI_2$ ,  $CF_2Cl$ ,  $CHF_2Cl$ ,  $CFCl_3$ ,  $CF_3Cl$ ,  $CHCl_3$ ,  $CCl_3$ ,  $CCl_4$ ). Kiszámítottuk a vegyületek standard képződéshőjét 0 és 298.15 K-en és standard moláris entrópiáját 298.15 K-en. Elvégeztük a korábbi kísérleti és számítási eredmények kritikai értékelését. Számításaink alapján a vegyületek többségére új referenciaadatokat javasoltunk.
12. Megvizsgáltuk, hogy a közelítő négyszeres gerjesztésekre épülő coupled-cluster módszer [CCSDT(Q)] skálázódása csökkenthető-e az energianevezők Cholesky-felbontáson alapuló faktorizálásával. Automatizált technikáink segítségével levezettük a módszer egyenleteit. Megállapítottuk, hogy a módszer skálázódása az eredeti  $N^9$ -ről  $N^8$ -ra csökkenthető (ahol  $N$  a rendszer mérete), azonban az egyenletekben megjelenő nagy számú – mintegy 400 – tag miatt becsléseink szerint a módszer tényleges számításigénye csak olyan nagy rendszerekre lenne kedvezőbb az eredetinel, amelyekre jelenleg nem végezhető számítások. Ezek alapján a módszer használatát jelenleg nem javasoljuk, azonban a számítástechnika fejlődésével az elérhető rendszerek mérete nő és a módszer versenyképes lehet a közeli jövőben.
13. Megvizsgáltuk, hogy a magasrendű coupled-cluster módszerek számításigénye csökkenthető-e a molekulapálya-készlet módosításával. Egyrészt tanulmányoztuk az aktív terek alkalmazásainak a lehetőséget a módszerek skálázódásának a csökkentésére. Ebben az esetben a molekulapálya-készletet felosztjuk egy aktív és egy inaktív térre, és a hullámfüggvény paramétereinek bizonyos indexeit megszorítjuk, hogy csak az aktív tér pályáin futhassanak végig. Számos aktív tér típust teszteltünk mind iteratív, mind perturbatív coupled-cluster módszerek esetében. Eredményeink azt mutatják, hogy a módszerek számításigénye egy nagyságrenddel csökkenthető az aktív terek alkalmazásával. Másrészt tanulmányoztuk a transzformált virtuális pályák lehetséges alkalmazását. A módszer alapelve, hogy a korrelációban figyelembe vett virtuális pályák számát csökkentjük, de a virtuális tér csonkolása előtt egy transzformációt hajtunk végre a virtuális téren. Két különböző transzformációs technikát vizsgáltunk meg: az első az MP2 természetes pályákon, míg a másik az optimált virtuális pályák használatán alapszik. A két módszert tetszőleges coupled-cluster módszerre implementáltuk. Kiterjedt tesztszámításokat

- végeztünk a CCSDT és CCSDT(Q) módszerekre és megállapítottuk, hogy a virtuális pályák 50-70% százalékát eldobhatjuk a módszer pontosságának lényeges csökkenése nélkül. Ezáltal a módszerek számításigényét nagymértékben, akár két nagyságrenddel is redukálhatjuk.
- Kidolgoztunk és implementáltunk egy új multi-referencia coupled-cluster módszert. Az új közelítés az általunk korábban implementált Mukherjee-féle MRCC módszeren alapul és annak hiányosságait küszöböli ki. Az új módszer esetében bizonyos háromszoros és négyszeres gerjesztéseket is figyelembe veszünk a hullámfüggvényben és így az egyenletekben megjelennek az eredeti módszer egyenleteiből hiányzó csatolási tagok. Számos tesztszámítást végeztünk egyszeres és többszörös kötések disszociációjára és összevetettük a módszer és más multi-referencia közelítések eredményeit. Az új módszer teljesítménye sokkal jobb, mint az eredetié és összemérhető a különböző közelítően méretkonzisztens MR konfigurációs kölcsönhatás módszerek teljesítményével.
  - Cirkuláris dikroizmus (CD) spektroszkópiai mérésekkel és kvantumkémiai számításokkal meghatároztuk új potenciális királis katalizátoroknak, a BME Szerves Kémiai Technológia Tanszékén előállított 1-arilpirrol származékoknak az abszolút konfigurációját.
  - Nagy pontosságú kvantumkémiai számításokat végeztünk a légkör- és égéskémiai szempontból fontos formaldehid-származékokra ( $\text{CF}_2\text{O}$ , FCO, HFCO, HCICO, FCICO, HOCO,  $\text{NH}_2\text{CO}$ ). Kiszámítottuk a vegyületek standard képződéshőjét 0 és 298.15 K-en és standard moláris entrópiáját 298.15 K-en. Elvégeztük a korábbi kísérleti és számítási eredmények kritikai értékelését. Számításaink alapján mindegyik vizsgált vegyületre új referenciaadatokat javasoltunk.
  - Kifejlesztettünk egy általános relativisztikus CC programot. Implementációnk Kramers-párokra alapul, kihasználja a kettős csoport szimmetriát és a Dirac-Coulomb és számos más közelítő relativisztikus Hamilton-operátorral alkalmazható. Az új program lehetővé teszi relativisztikus számítások végzését tetszőleges iteratív és perturbatív CC módszerrel. Első alkalmazásként teszt számításokat végeztünk a IV. főcsoport elemeinek oxidjaira és részletesen elemeztük az elektronkorreláció és a relativisztikus effektusok együttes hatását.
  - A kifejlesztett általános relativisztikus CC módszerekhez lineáris válaszfüggvényeket implementáltunk. Ezzel lehetővé tettük gerjesztett állapotok tulajdonságainak a pontos számítását is tetszőleges relativisztikus CC közelítéssel. Az új programot először az  $\text{Al}^+$  ion alap- és első gerjesztett állapotának tulajdonságaira alkalmaztuk. Kiszámítottuk a két állapot polarizálhatóságát és azok különbségét. A számított adatok hozzávetőleg ötször pontosabbak, mint a megfelelő spektroszkópiai mérésekkel meghatározott paraméterek. Eredményeink alapján az egyik legfontosabb atomóra, az  $\text{Al}^+$  ion atomóra pontossága jelentősen növelhető.
  - Különbéleg, újonnan szintetizált 1,1'-binaftil-azakorona-éter származékokat vizsgáltunk, amelyek katalizátorként viselkednek a nitrogénatomján védőcsoportot tartalmazó aminometilén-foszfónát akrilnitrilekre történő aszimmetrikus Michael-addíciójában. Az addíció termékeként jó diasztereo- és enantioszelektivitással keletkező addukt (alfa-aminofoszfónát) abszolút konfigurációját a termék kísérleti CD spektrumának és a vegyület diasztereomerjeire TD-DFT módszerrel számított CD spektrumok összevetésével állapítottunk meg.
  - Nagy pontosságú kvantumkémiai számításokat végeztünk számos, légkörkémiai szempontból fontos nitrogén-oxid származékra ( $\text{HOONO}$ ,  $\text{HOONO}_2$ ,  $\text{NH}_2\text{NO}_2$ , FNO,  $\text{FNO}_2$ , FONO,  $\text{FONO}_2$ , ClNO, ClONO, ClONO<sub>2</sub>, ClOONO). Azonosítottunk a vegyületek stabil izomerjeit, és kiszámítottuk standard képződéshőjüket 0 és 298.15 K-en és standard moláris entrópiájukat 298.15 K-en. Elvégeztük a korábbi kísérleti és számítási eredmények kritikai értékelését. Számításaink alapján a vegyületek többségére új referenciaadatokat javasoltunk.

21. A normál-bután *gauche* és *transz* konformerjei közötti entalpiakülönbségre számos ellentmondó adat található a szakirodalomban. Nemlineáris regresszióanalízissel újraértékeljük az irodalomban fellelhető legpontosabb kísérleti eredményeket és megmutattuk, hogy ezekben az esetekben a lineáris kiértékelések torzították, mind a várható értéket, mind a 95%-os konfidencia intervallumot; ennek megfelelően a 133–196 K és 223–297 K hőmérsékleti tartományokra új referencia értékeket,  $668 \pm 20$  cal/mol és  $653 \pm 125$  cal/mol, határoztunk meg a *gauche-transz* entalpiakülönbségre. Nagy pontosságú *ab initio* számításokkal szintén igazoltuk a korábbi kísérleti értékek revízióját. A fenti hőmérsékleti intervallumokra a számítások – kivételes egyezésben az újraértékeléssel, azonban lényegesen kisebb hibával terhelve – rendre  $668 \pm 3$  cal/mol és  $650 \pm 6$  cal/mol entalpiaértékeket szolgáltatottak.
22. Együttműködésben a BME Szerves Kémia és Technológia Tanszék szintetikus kémikusaival, több általuk előállított új vegyület részletes spektroszkópiai vizsgálatát végeztük el. Ezek között voltak királis foszforsav-észter származékok, amelyeket új királis koronaéter katalizátort alkalmazva állítottak elő a katalitikus hatás jellemzése céljából. Mi meghatároztuk a termékek abszolút konfigurációját CD-spektroszkópiai mérések és TD-DFT kvantumkémiai számítások alapján. Fluoreszcencia-spektroszkópiai mérésekkel tanulmányoztuk új, akridin fluorofórból és királis koronaéterből felépülő királis receptorok komplexképzését királis aminokkal, és több esetben jelentős enantioszelektivitást állapítottunk meg. Szintén fluoreszcencia-spektroszkópiai kísérletekkel vizsgáltuk új, akridon, vagy akridin fluorofór csoportból, és spinjelzett koronaéter egységből felépülő receptorok komplexképzését fémionokkal. Ezek a receptorok  $\text{Ca}^{2+}$  és  $\text{Zn}^{2+}$  ionok kimutatására bizonyultak alkalmasnak.
23. Tanulmányoztuk egy fotokróm modellvegyület, a 6-nitro-benzospirán fotoindukált gyűrűhasadását és komplexképzését fémionokkal. Meghatároztuk a reakciók kinetikai és termodinamikai jellemzőit. A kísérleti adatok értékeléséhez kvantumkémiai számításokat is végeztünk. Az eredmények azért érdekesek, mert fotokróm anyagokat optikai kapcsolókban és optikai szenzorok hatóanyagaként is alkalmaznak.
24. Teszt számításokat végeztünk a klórmolekula disszociációs energiájára. A korábbiaknál jóval pontosabb elméleti értéket adtunk meg a disszociációs energiára, amely jól egyezik a kísérletek alapján javasolt értékkel és így megerősíti azt. A klórmolekula példáján elemeztük a 3. periódus elemeiből álló molekulák pontos elméleti leírásának korlátait.
25. Nagy pontosságú számításokat végeztünk a benzolmolekula atomizációs energiájára és képződéshőjére. Elemeztük a nagy molekulák pontos elméleti leírását befolyásoló tényezőket és rámutattunk, hogy a számítások legkritikusabb lépése a rezgési energiajárulékok számítása, amely a rendszer méretének kilencedik hatványával skálázódik.
26. Nagy pontosságú kvantumkémiai számításokat végeztünk számos, légkörkémiai szempontból fontos kénszármazékra ( $\text{HSO}$ ,  $\text{HOS}$ ,  $\text{HOSO}_2$ ,  $\text{HSNO}$ ,  $\text{SH}$ ,  $\text{CH}_2\text{SO}$ ,  $\text{CH}_2\text{SH}$ ,  $\text{S}_2\text{COH}$  és  $\text{SCSOH}$ ). Azonosítottunk a vegyületek stabil izomerjeit, és kiszámítottuk standard képződéshőjüket 0 és 298.15 K-en és standard moláris entrópiájukat 298.15 K-en. Elvégeztük a korábbi kísérleti és számítási eredmények kritikai értékelését. Számításaink alapján a vegyületek többségére új referenciaadatokat javasoltunk. Rámutattunk, hogy a kénatom kísérletek alapján javasolt képződéshője feltehetően hibás, és új referenciaértéket javasoltunk erre a fontos termodinamikai paraméterre.
27. Kifejlesztettünk egy általános lokális CC közelítést, amely lehetővé teszi tetszőleges CC módszerek alkalmazását nagy molekulákra. A módszer a „klaszter a molekulában” közelítésen és természetes pályák alkalmazásán alapul. A természetes pályák segítségével a korábbi lokális CC közelítésekhez képest csak kisebb lokális molekulapálya-doméneknél kell megoldani a CC egyenleteket, amely különösen magasrendű CC módszerek esetében előnyös. Megmutattuk, hogy a gyakorlatban elegendő csupán egy nagy molekula kémiai

szempontból érdekes részét – pl. egy hasadó kötést és környezetét – a magasabb szinten kezelni, a molekula többi részét akár a Hartree-Fock szinten is leírhatjuk. Így a CC módszerek számításiigénye drasztikusan csökkenthető.

28. Szintetikus szerves kémikusokkal együttműködve kifejlesztettünk egy új, biomolekulákhoz és fluoreszcens jelzővegyületekhez közvetlenül kapcsolható benzociklooktin származékot. Elméleti kémiai számításokkal vizsgáltuk a ciklooktinszármazék reaktivitását az ún. rézmentes, gyűrűfeszültség által hajtott 1,3-dipoláris cikloaddíciós reakcióban. Megállapítottuk, hogy az eddig leírt ciklooktinszármazékok közül reagensünk az egyik legreaktívabb vegyület. Eredményeink jól egyeznek a kísérleti adatokkal.
29. Megvizsgáltuk az eredeti és az általunk kidolgozott módosított Mukherjee-féle MRCC módszer teljesítményét lokalizált pályákkal. Számos tesztszámítást végeztünk egyszeres és többszörös kötések disszociációjára és összevetettük a módszer és más multi-referencia közelítések eredményeit. Megállapítottuk, hogy az eredeti módszer egyenleteiből hiányzó csatolási tagok sokkal kisebbek lokalizált pályák használatával, és ezért a módszer teljesítménye sokkal jobb, mint az kanonikus pályákkal. A lokalizált bázisban már az eredeti MRCC módszer teljesítménye is és összemérhető a különböző közelítően méretkonzisztens MR konfigurációs kölcsönhatás módszerek teljesítményével, míg a módosított MRCC módszerek sokkal pontosabb eredményeket adnak.

Budapest, 2012. április 26.

Kállay Mihály  
vezető kutató