

# Molekuláris mozi számítógépes szimulációja

Pápai Mátyás

Wigner FK RMI NAO

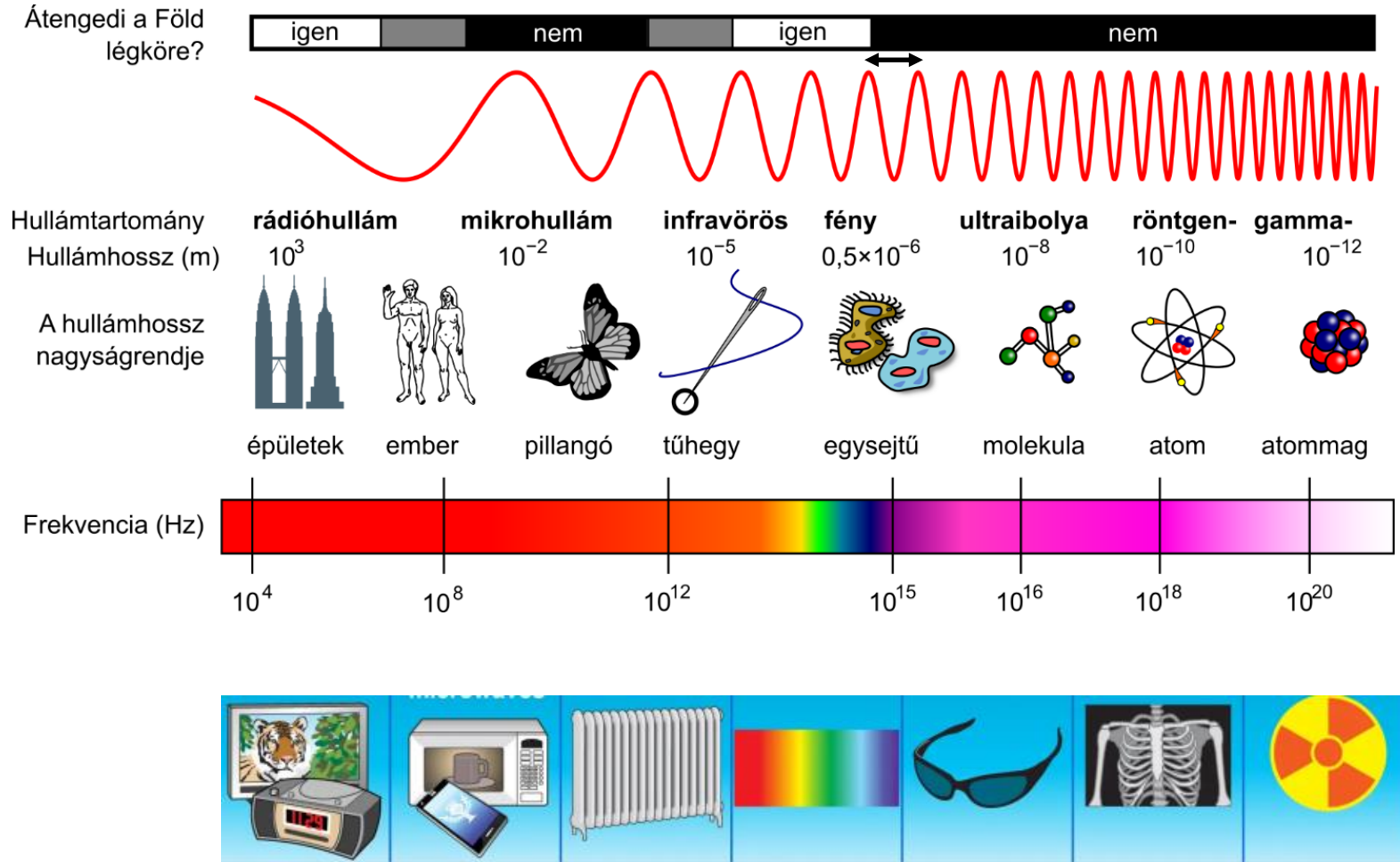
Femtosekundumos Spektroszkópiai és  
Röntgenspektroszkópiai „Lendület”  
kutatócsoport

Simonyi-nap

2022/10/18



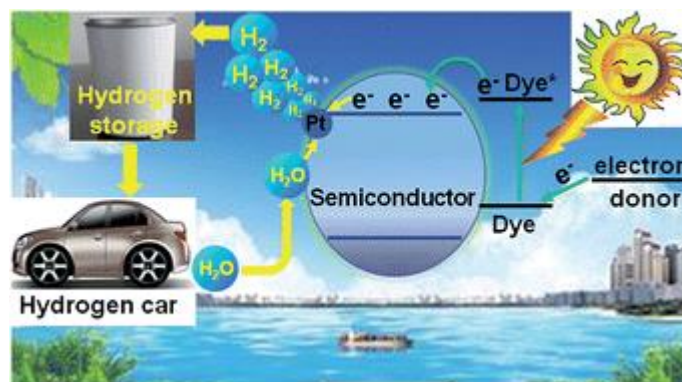
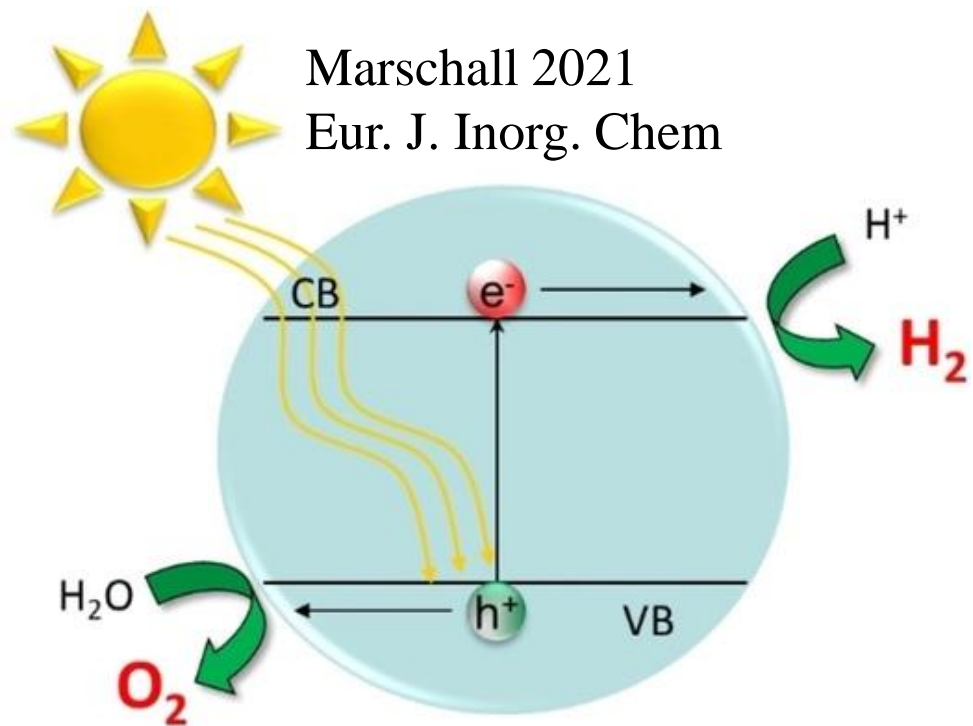
# Elektromágneses sugárzás (fény)



# Energetikai kihívások



# Energetikai kihívások

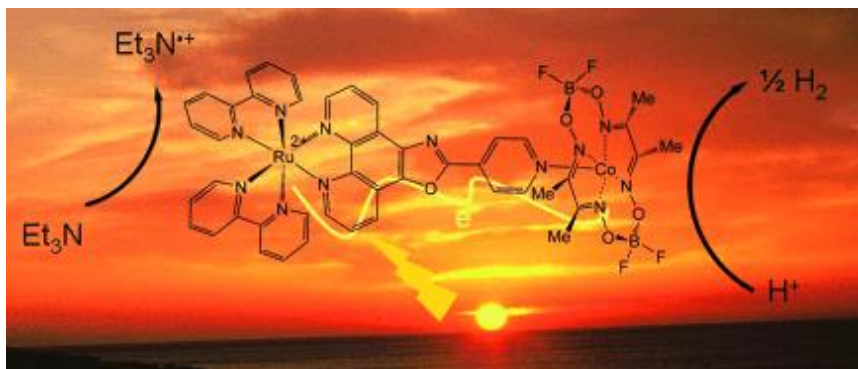


Zhang 2016  
J. Mat. Chem A

# Fénnyel aktiválható funkcionális molekulák

## Fényhasznosító molekulák

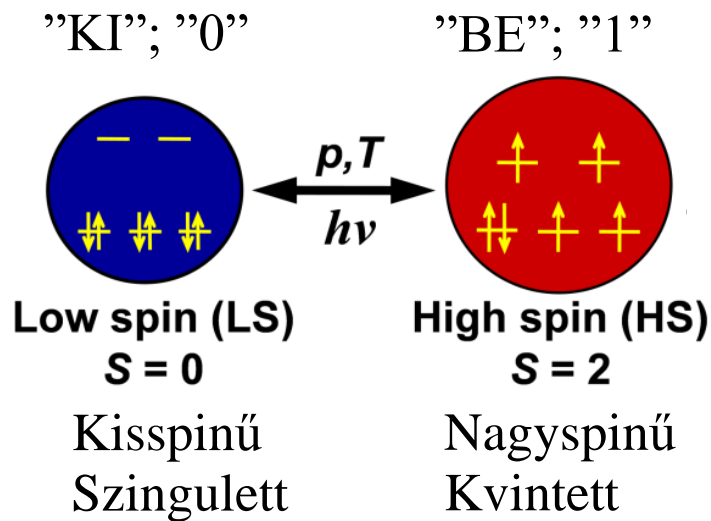
- napenergia tárolása és átalakítása  
kémiai vagy elektromos energiává



A. Fihri *et al.* ACIE (2008)

## Molekuláris adattárolás

- nagyon nagy adatsűrűség,  
ultragyors kapcsolás

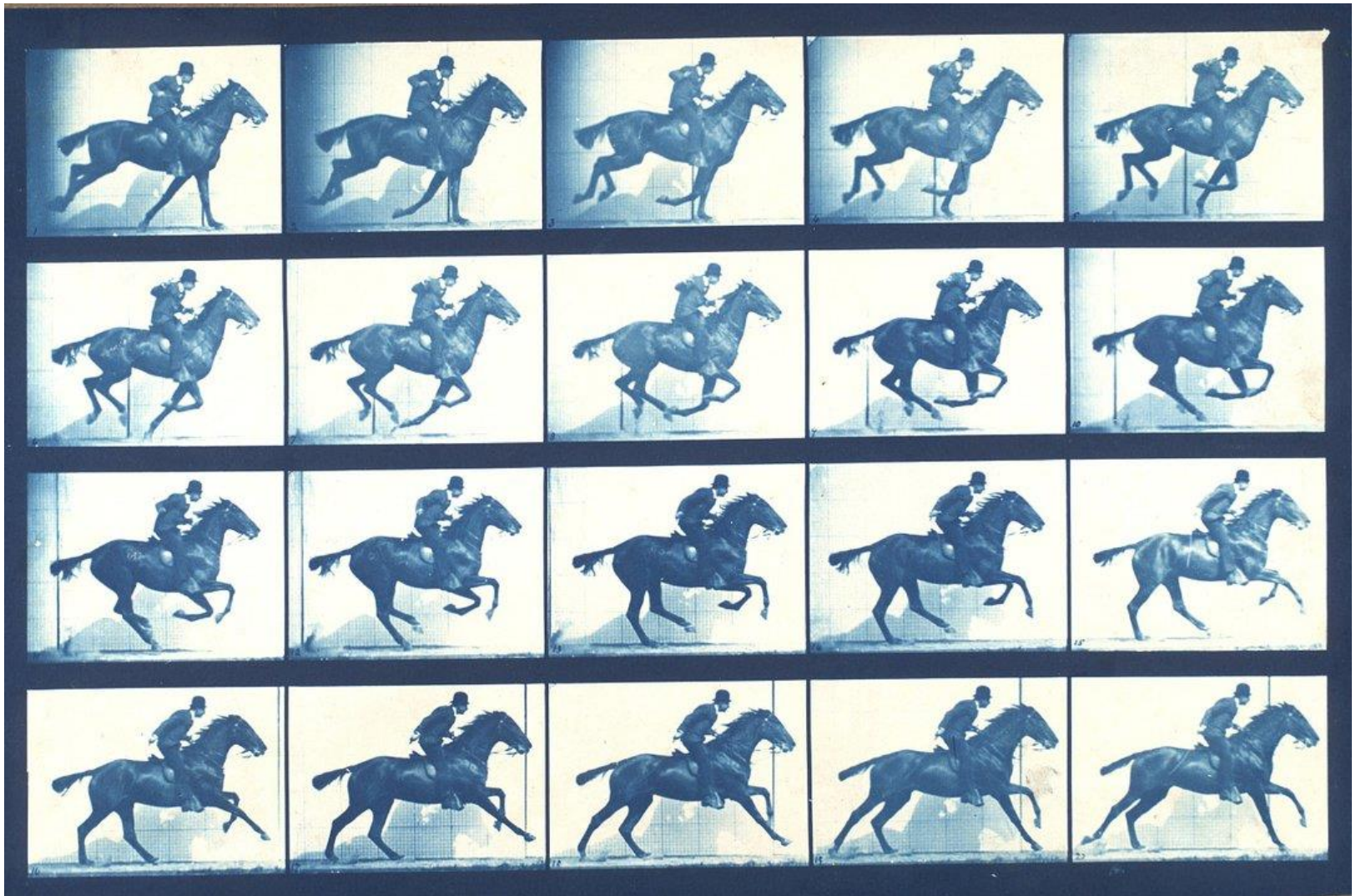


Pápai *et al.* JCTC (2013)

# Motiváció, főbb kérdések

- Milyen folyamatok játszódnak le a fényelnyelést követően?  
Hogyan, milyen közbülső állapotokon keresztül? (funkciók működésének feltérképezése)
- Hogyan befolyásolhatók a fény által kiváltott átalakulások?  
Új, hatékonyabb molekulák tervezése.

# E. Muybridge: „mozi” pillanatsfelvételekből

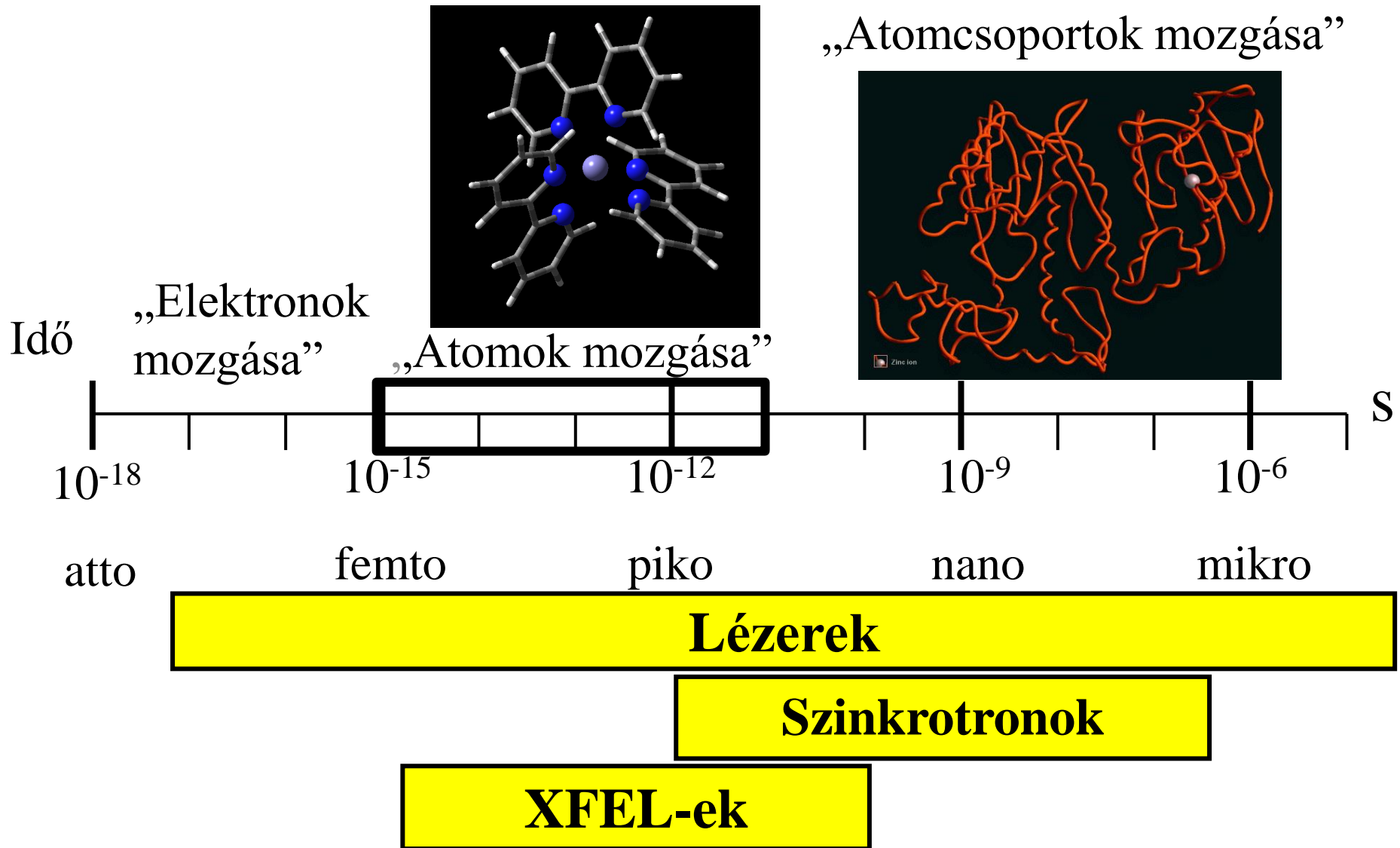


# E. Muybridge: „mozi” pillanatsfelvételekből

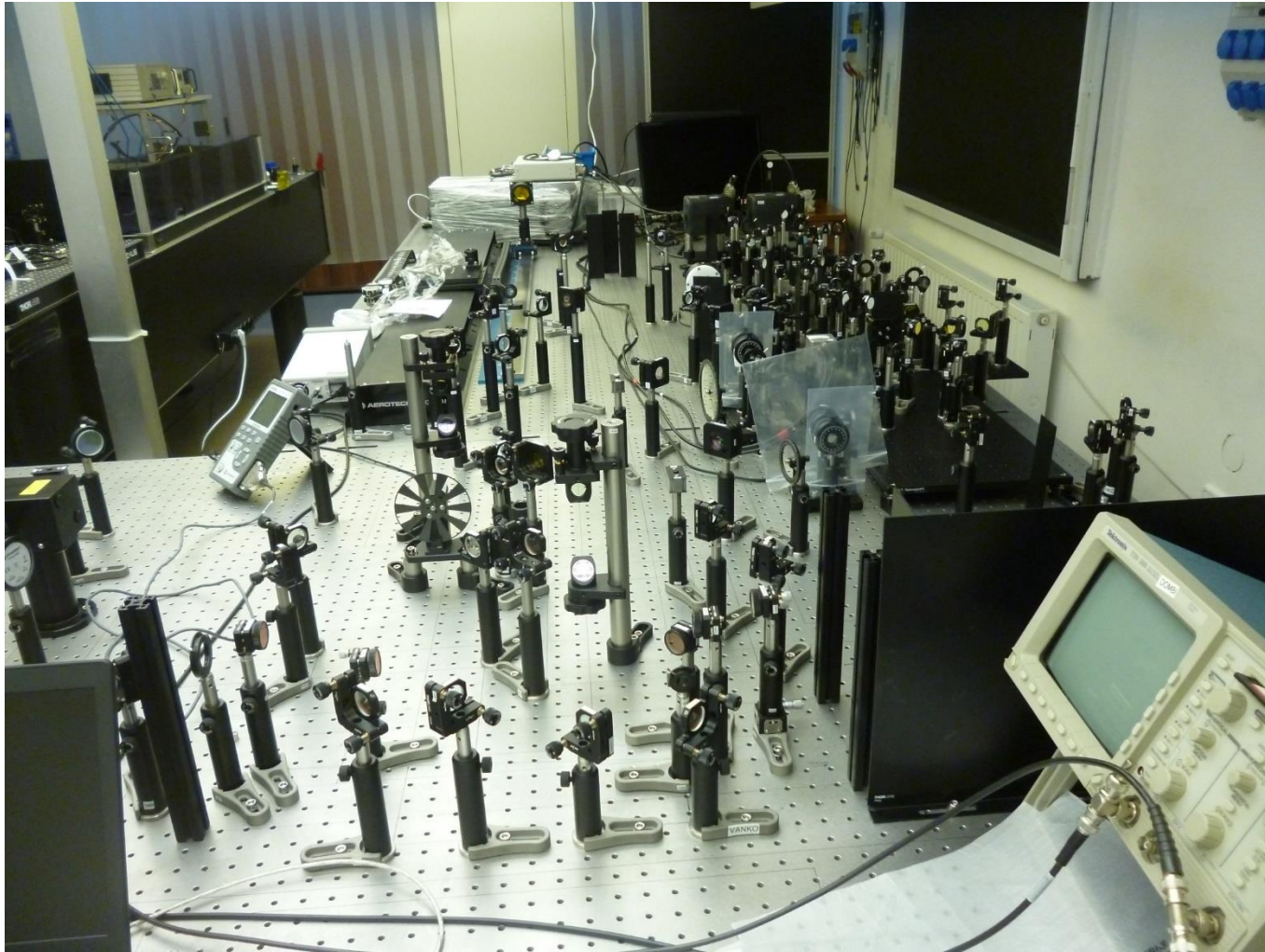




# Mozgások karakterisztikus ideje



# Ultragyors időfelbontott kísérletek



Wigner FK RMI Femtoszekundumos Lézerlaboratórium

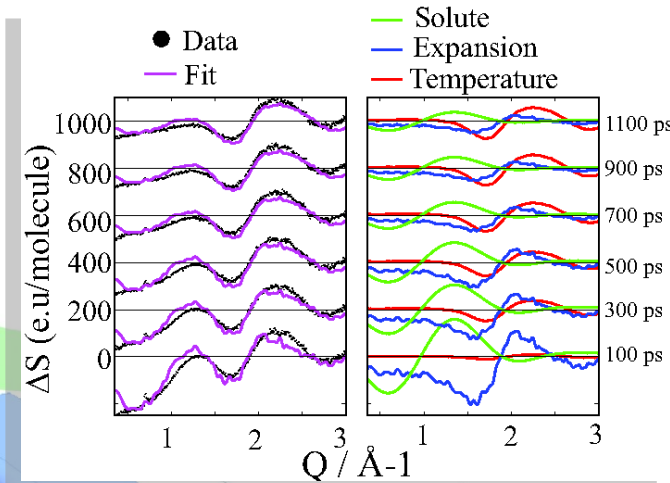
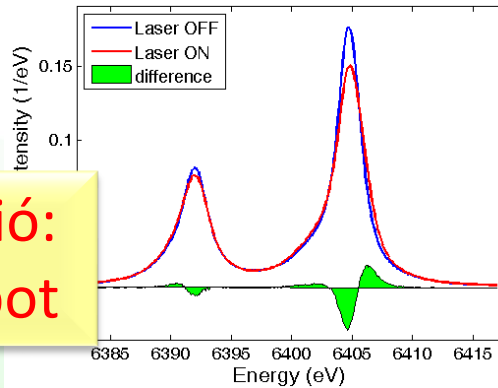
# Ultragyors időfelbontott kísérletek



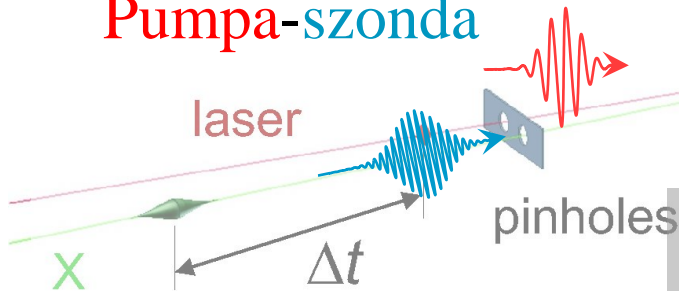
# Időfelbontott röntgenes kísérletek

Röntgenemisszió:  
Mágneses állapot

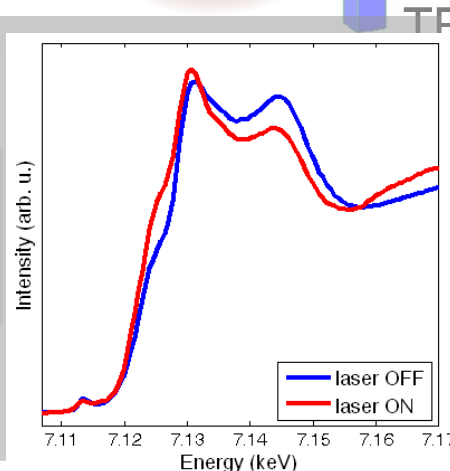
analyzer  
crystal



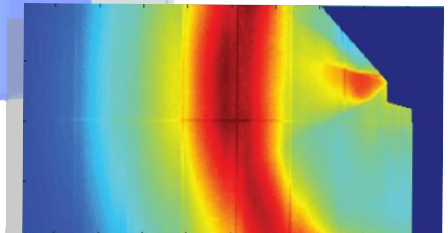
Pumpa-szonda



Röntgenabszorpció  
Lokális szerkezet



Röntgenszórás:  
Molekuláris szerkezet  
és oldószerburok



Készítette: Vankó Gy.

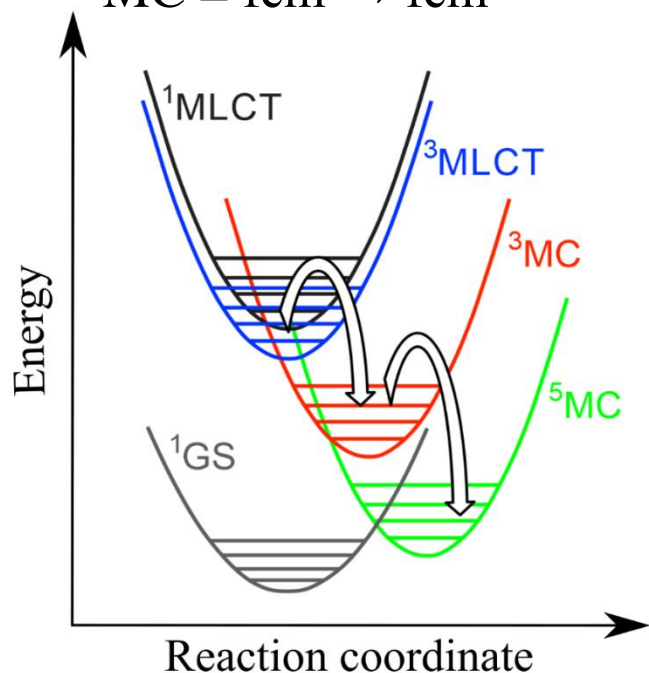
Simonyi-nap 2022



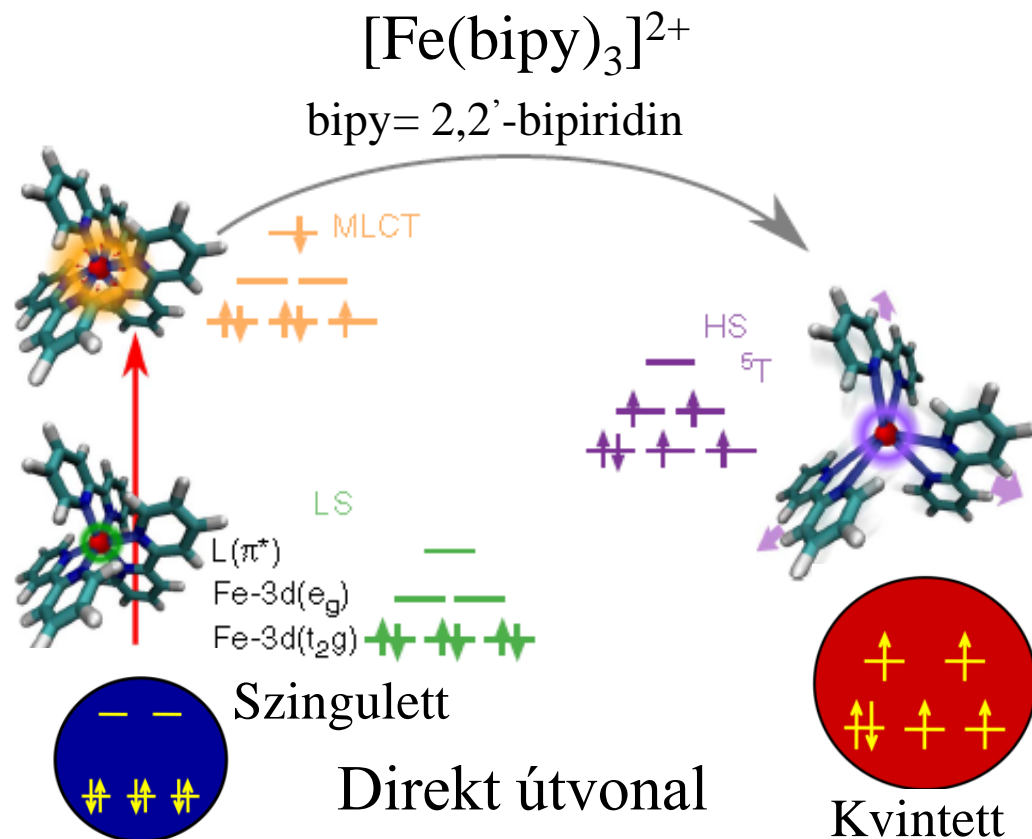
# Fény által kiváltott kapcsolás Fe(II) komplexekben

MLCT = fém → ligandum

MC = fém → fém

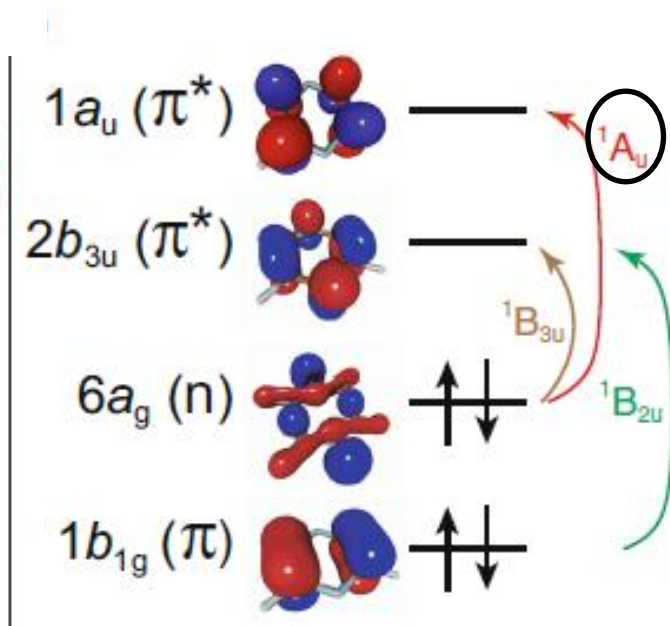
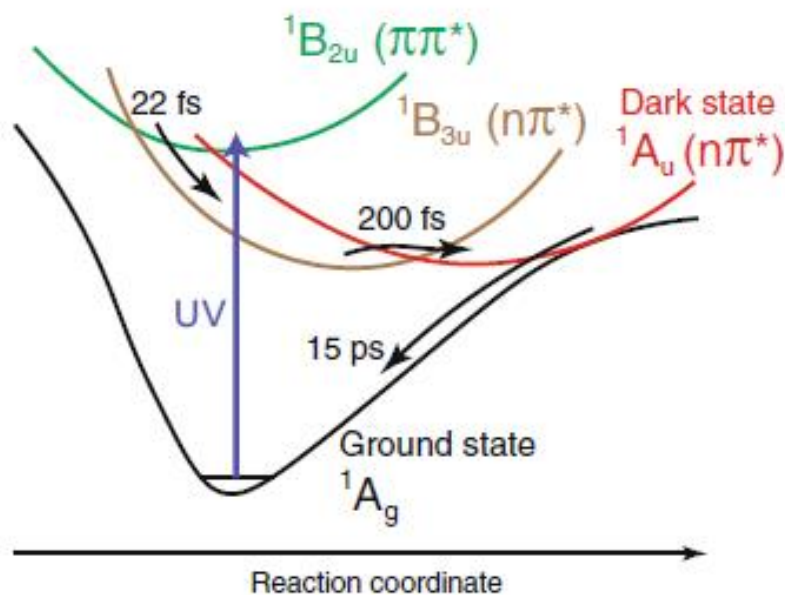
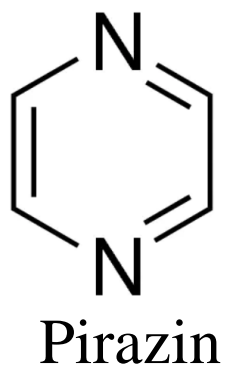


Szekvenciális útvonal



Nature (2014), Nat. Chem. (2015), Nat. Commun. (2017),  
Chem. Sci. (2019)

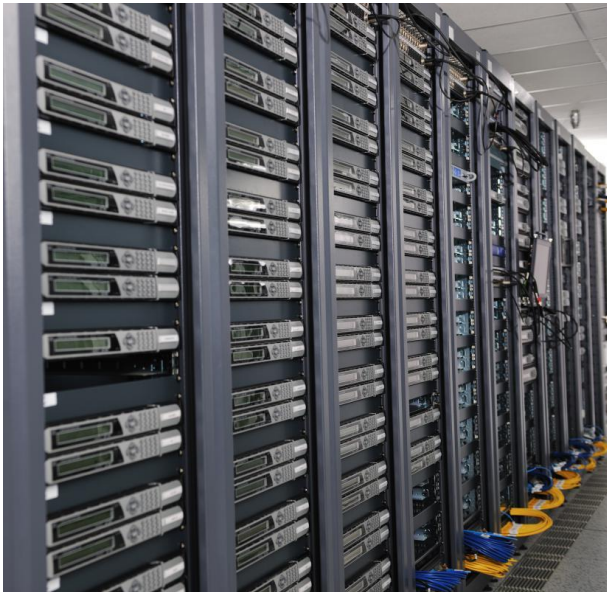
# Gerjesztést követő folyamatok: pirazin



Nat. Commun. (2021)

# Számítógépes szimulációk

## Mozgás leírása

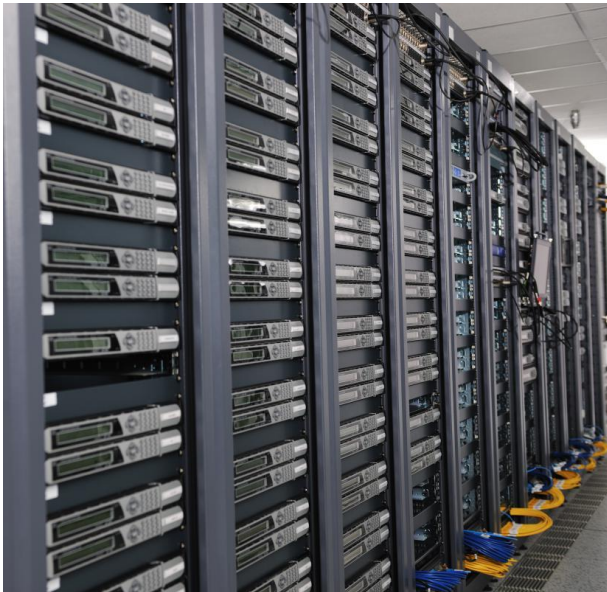


Teljesen kvantummechanikai, egzakt megoldás de csak erősen csökkentett dimenziójú számítás kivitelezhető.

Vegyes leírás: magok – klasszikus, elektronok – kvantumos. Teljes dimenziós számítások.

# Számítógépes szimulációk

## Mozgás leírása



Teljesen kvantummechanikai, egzakt megoldás de csak erősen csökkentett dimenziójú számítás kivitelezhető.

Vegyes leírás: magok – klasszikus, elektronok – kvantumos. Teljes dimenziós számítások.



# Fény által kiváltott gyűrűfelynyílási kémiai reakció

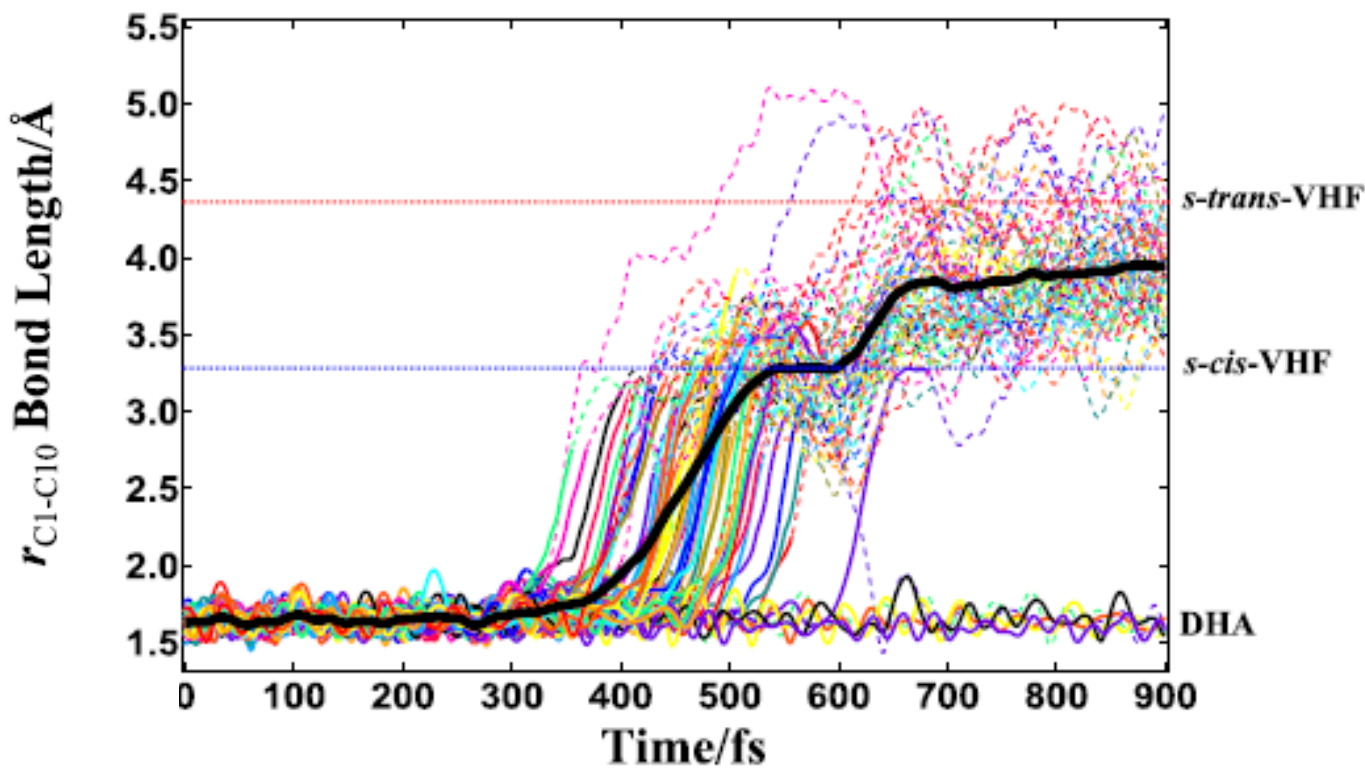
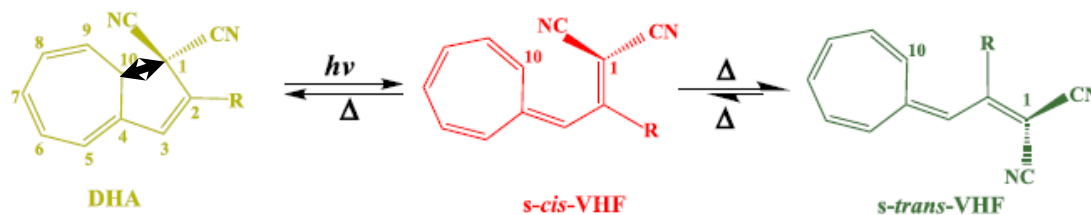


DHA = dihidroazulén

VHF = vinilheptafulvén

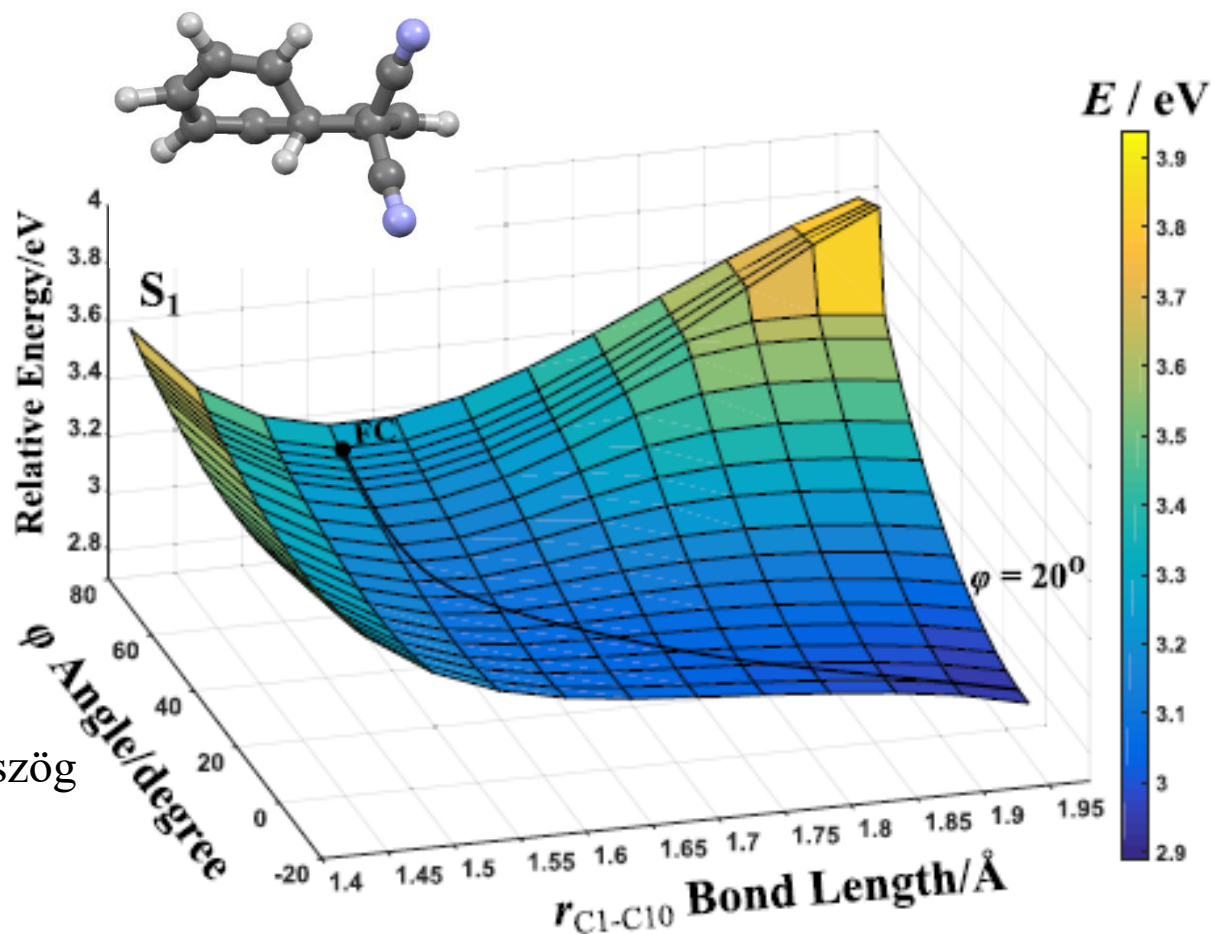
M. Abedi *et al.* J. Phys. Chem Lett. 2019, 10, 3944–3949

# Fény által kiváltott gyűrűfelynyílási kémiai reakció



M. Abedi *et al.* J. Phys. Chem. Lett. 2019, 10, 3944–3949

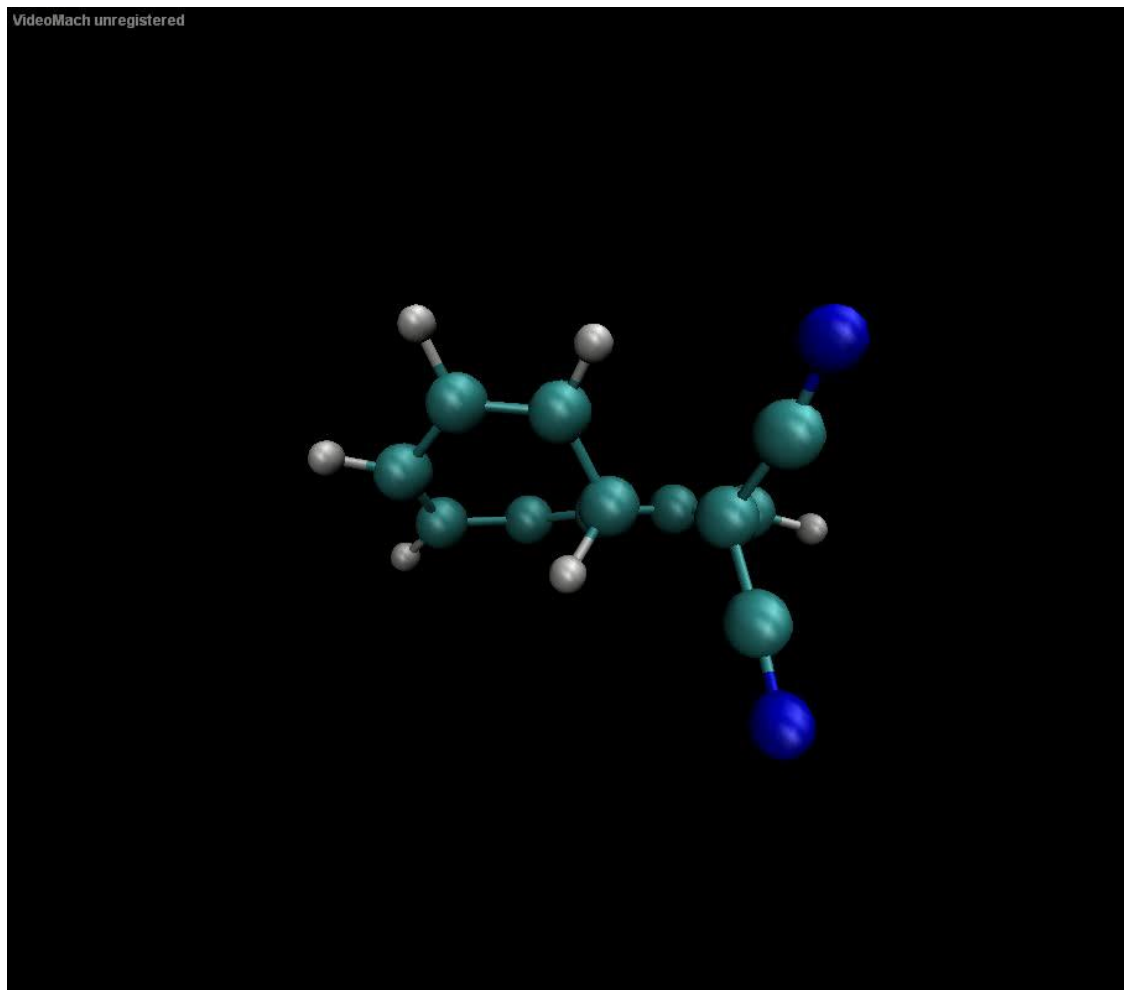
# Fény által kiváltott gyűrűfelnylési kémiai reakció



Planarizációs szög

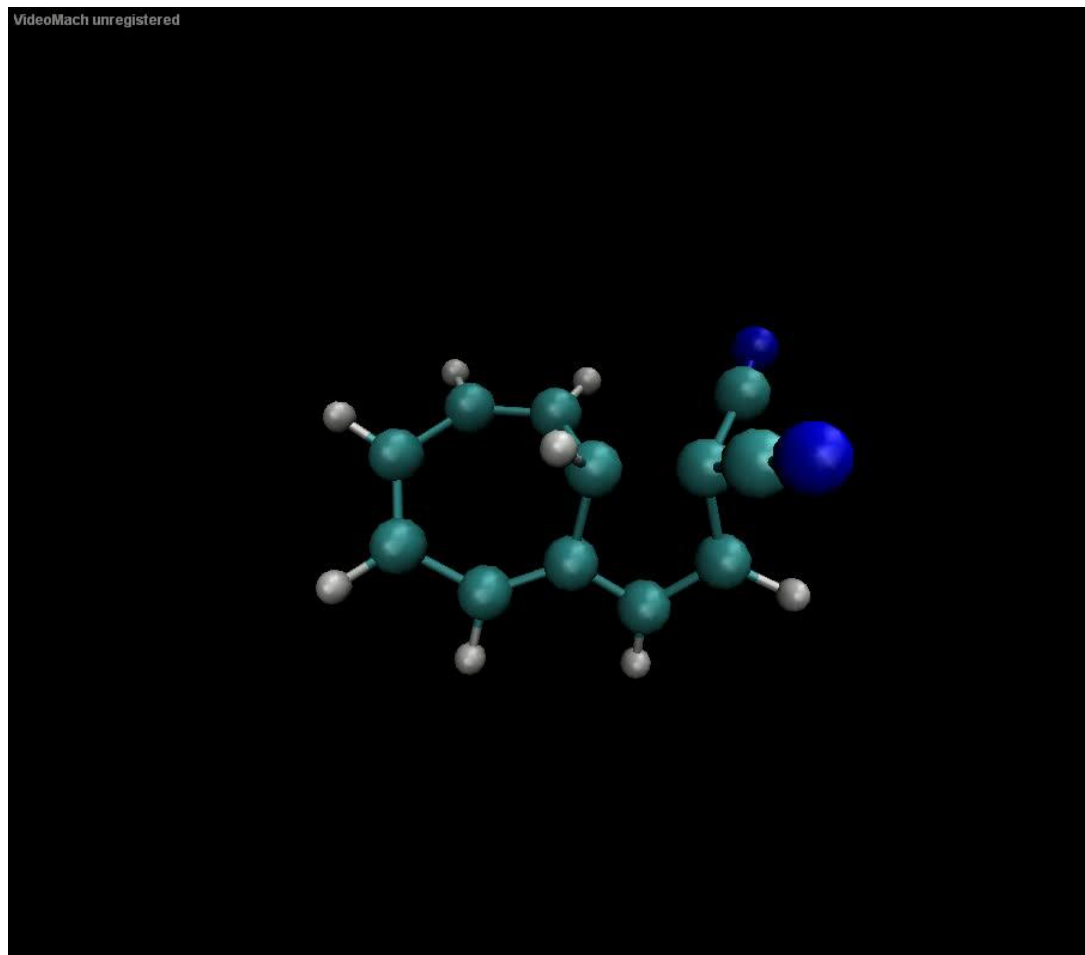
Magmozgás – gyűrű planarizációja

# Molekuláris „mozi”



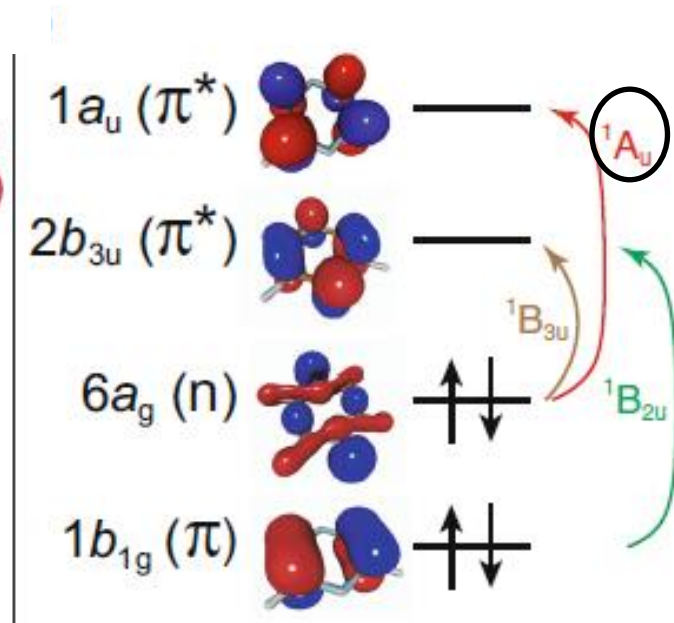
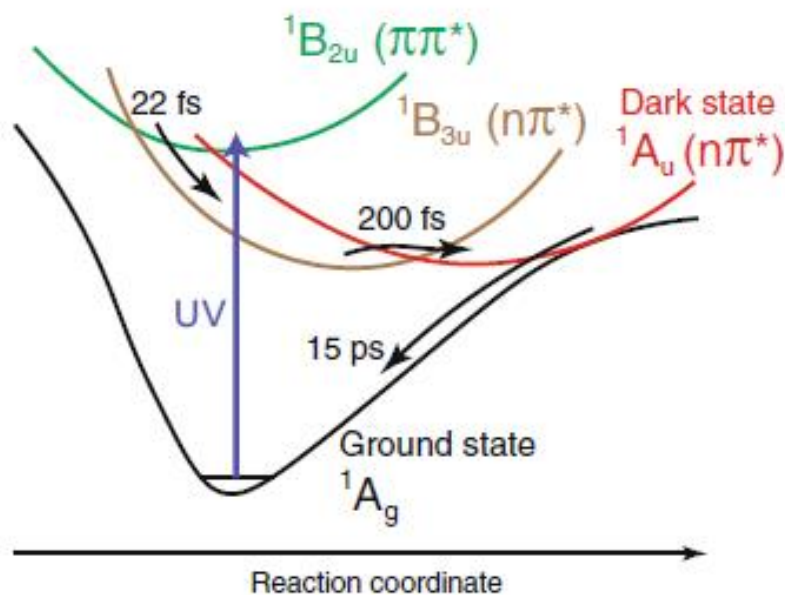
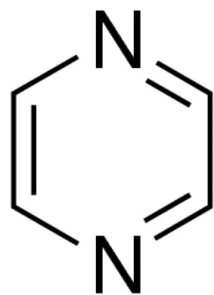
Gyűrű planarizációja

# Molekuláris „mozi”



## Gyűrűfelnyílás

# Gerjesztést követő folyamatok: pirazin

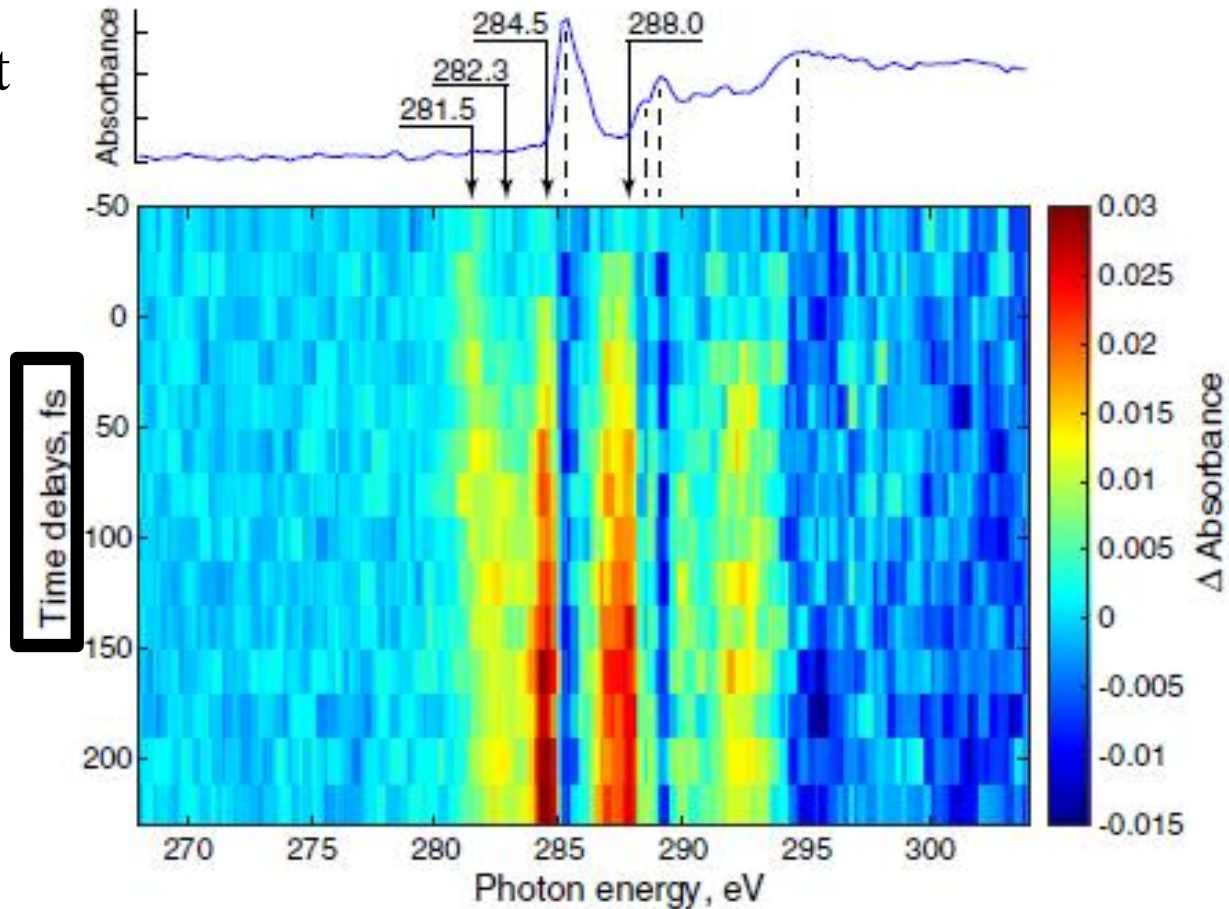


Nat. Commun. (2021)

# Pirazin

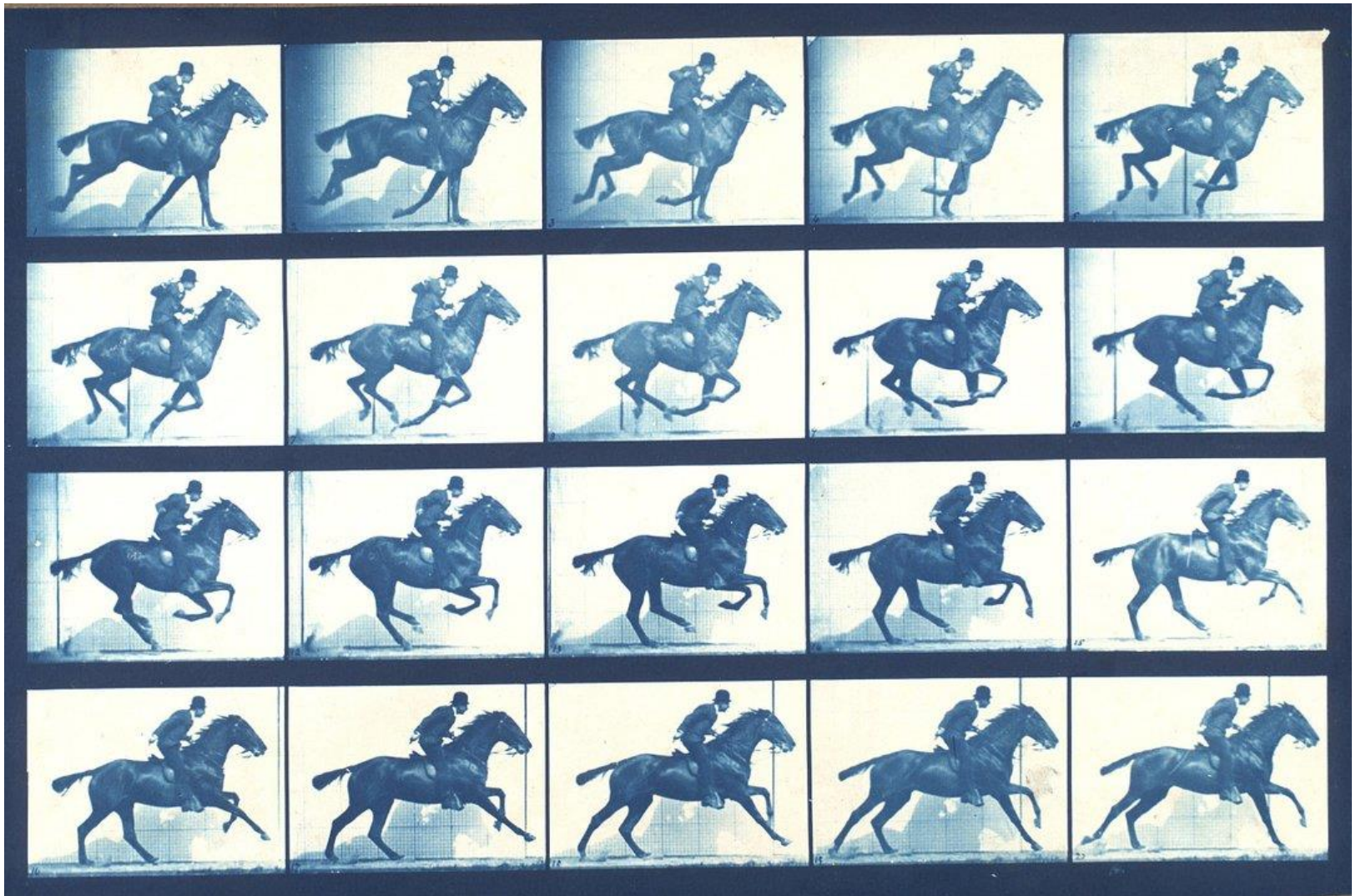
Időfelbontott  
röntgen-  
abszorpció

Késleltetési  
idő, fs



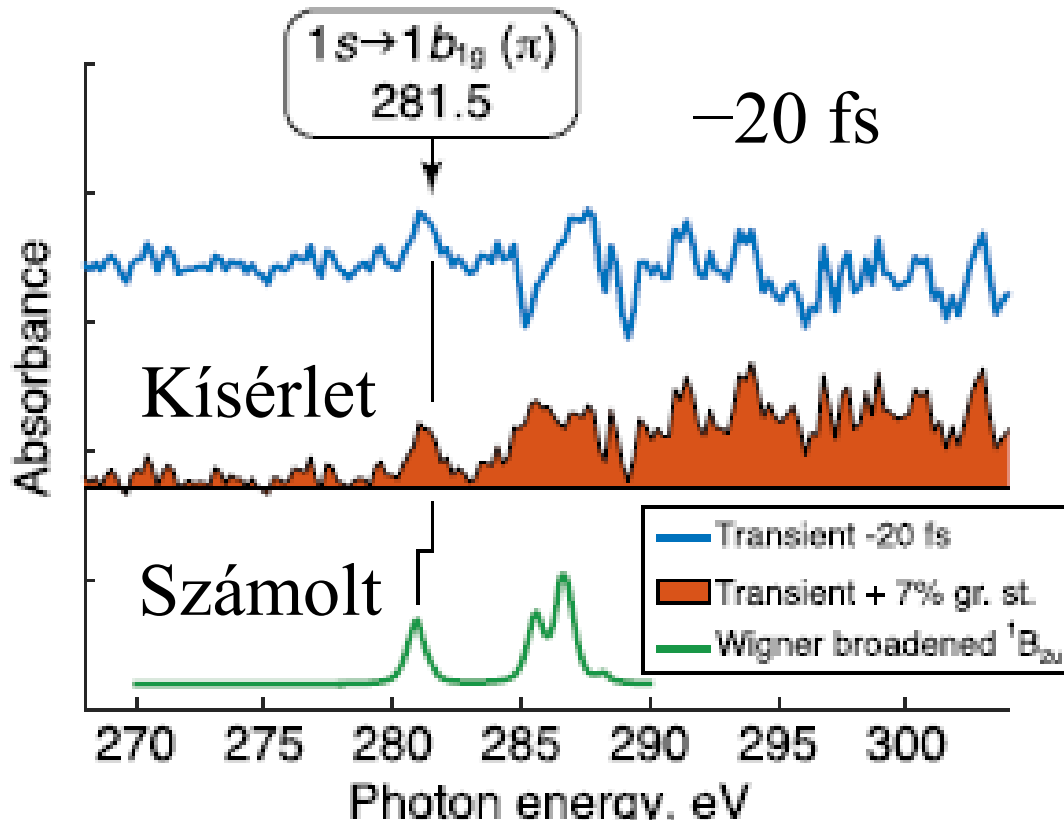
V. Scutelnic, M. Pápai, S. R. Leone  
*et al.* Nat. Commun. 2021, 12, 5003

# E. Muybridge: „mozi” pillanatsfelvételekből

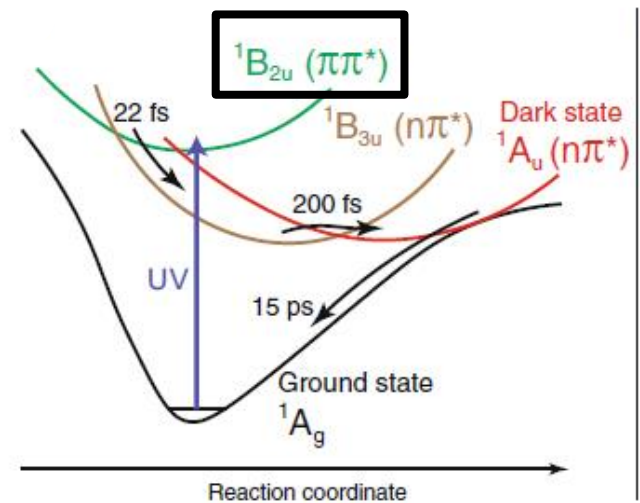




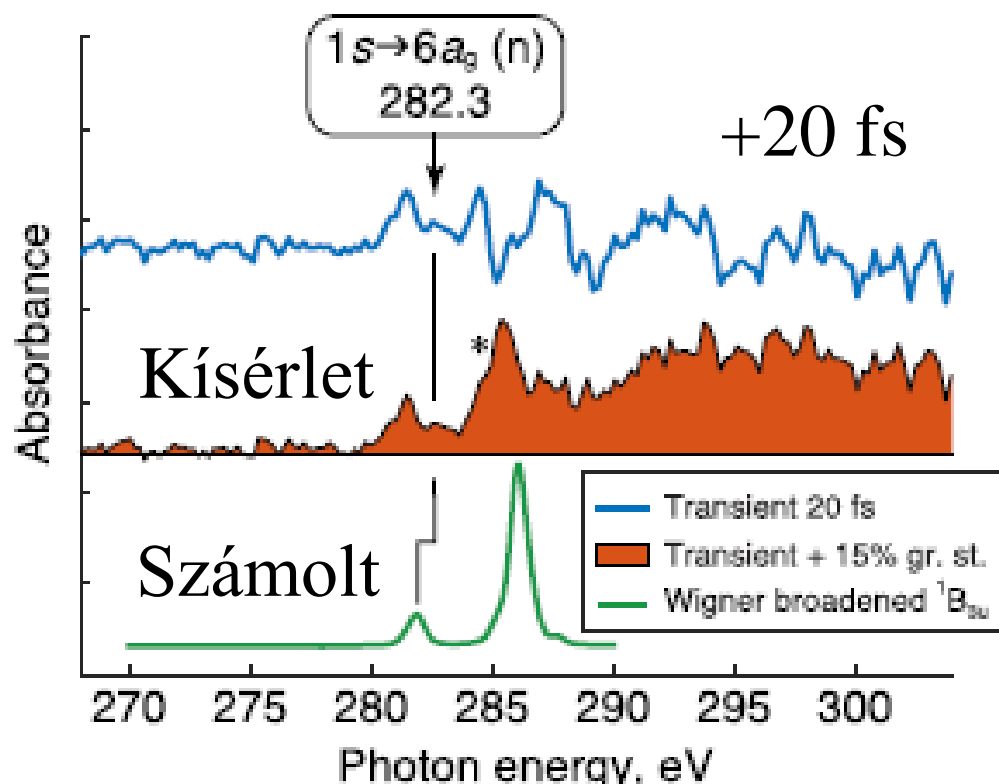
# Pirazin



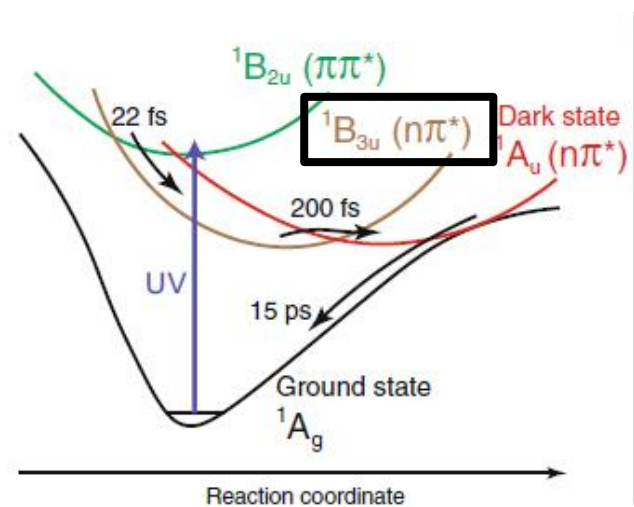
$^1B_{2u}$   
 Kiindulási  
 gerjesztett  
 állapot



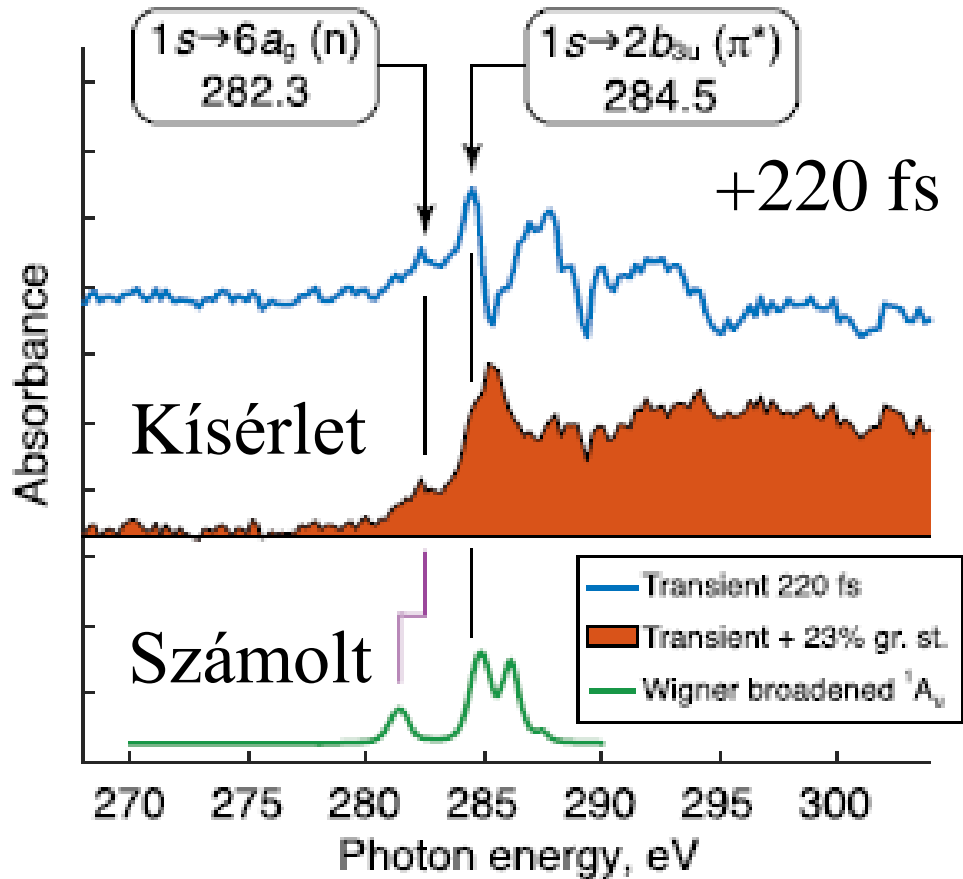
# Pirazin



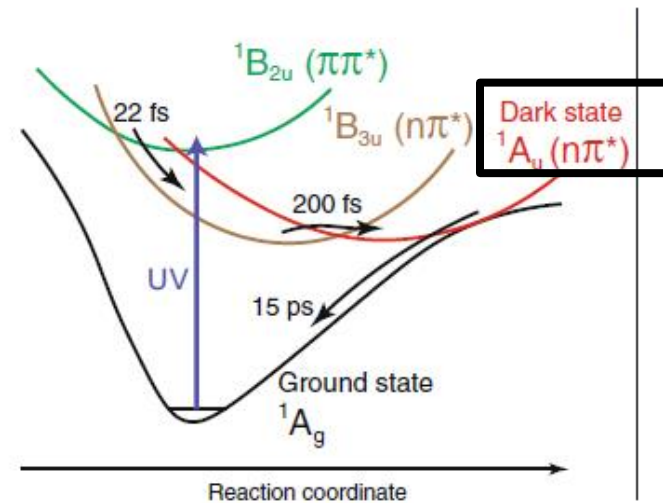
<sup>1</sup>B<sub>3u</sub>  
Közbülső  
gerjesztett  
állapot



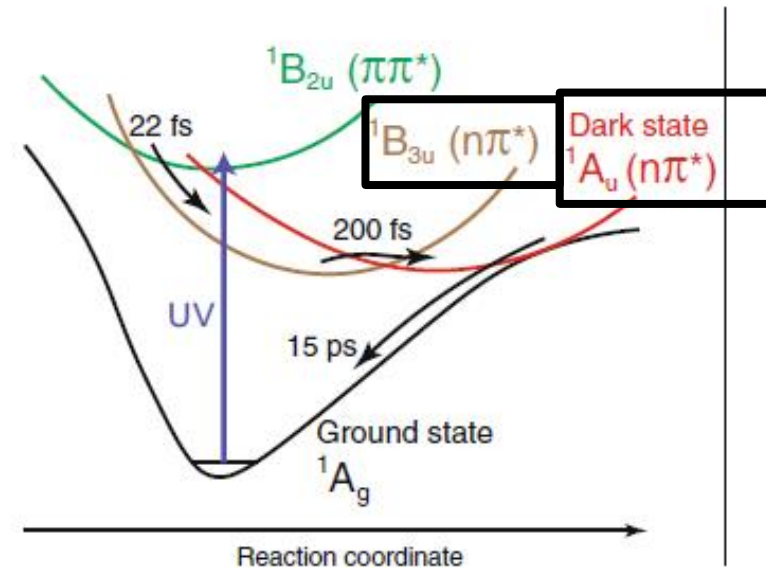
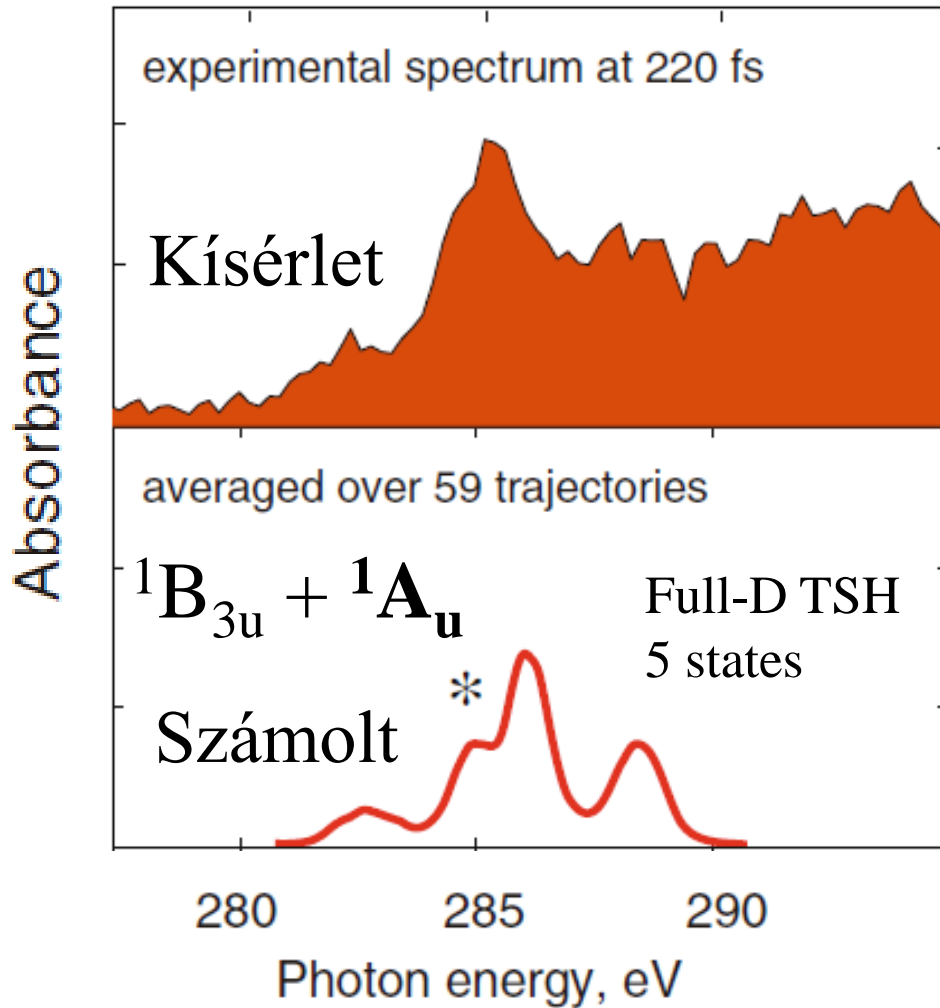
# Pirazin



${}^1A_u$   
Közbülső  
gerjesztett  
állapot



# Pirazin

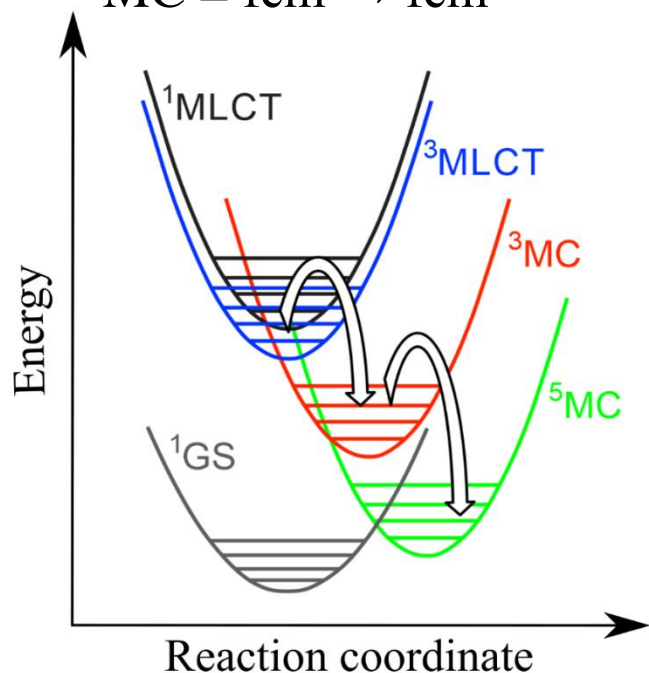


V. Scutelnic, M. Pápai, S. R. Leone  
*et al.* Nat. Commun. 2021, 12, 5003

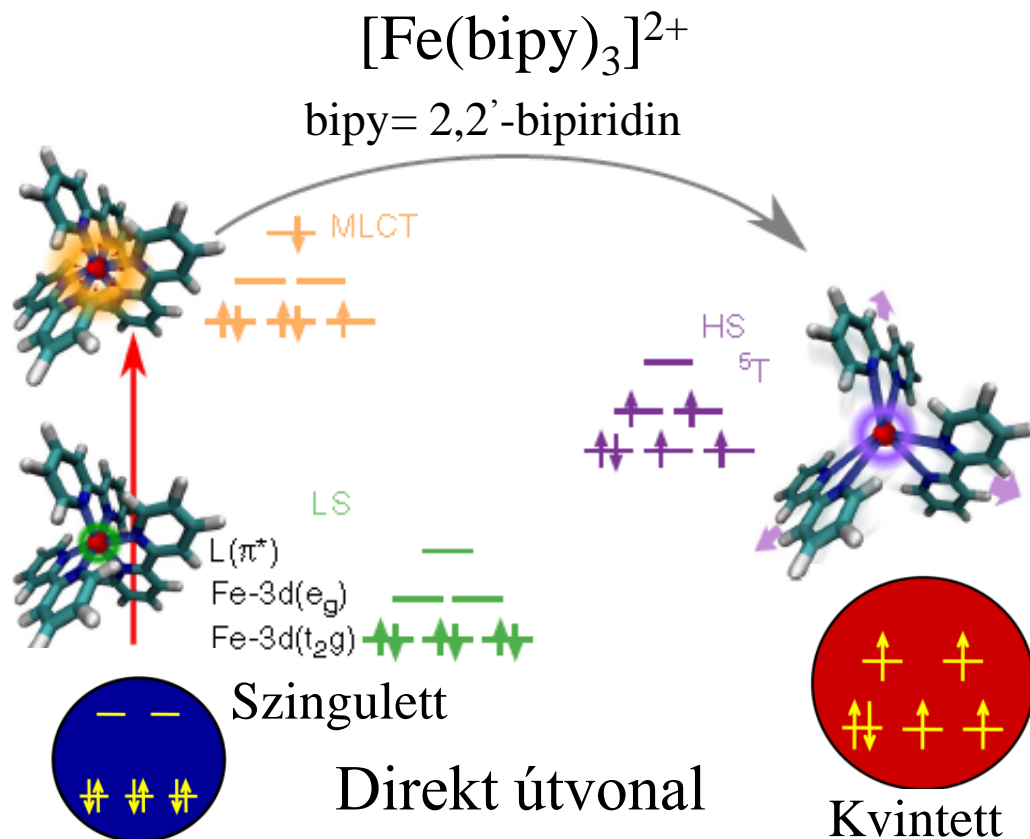
# Fény által kiváltott kapcsolás Fe(II) komplexekben

MLCT = fém → ligandum

MC = fém → fém



Szekvenciális útvonal



Nature (2014), Nat. Chem. (2015), Nat. Commun. (2017),  
Chem. Sci. (2019)

MLCT = fém → ligandum

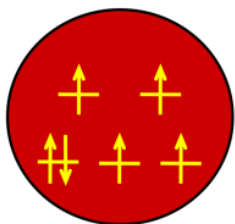
MC = fém → fém



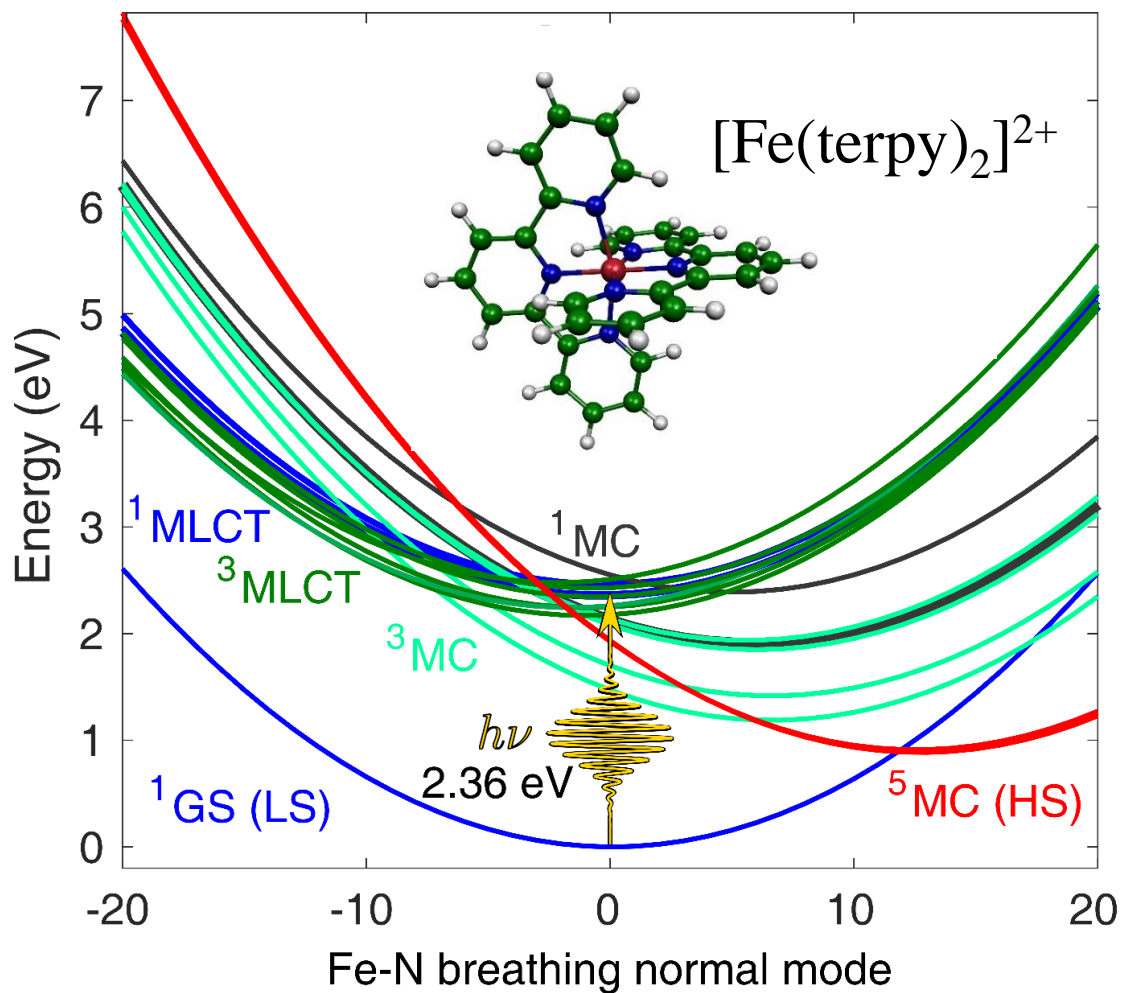
1.82	1.92	2.02	2.12	2.22	Fe-N <sub>eq</sub> (Å)
1.76	1.84	1.92	2.00	2.08	Fe-N <sub>ax</sub> (Å)



Szingulett

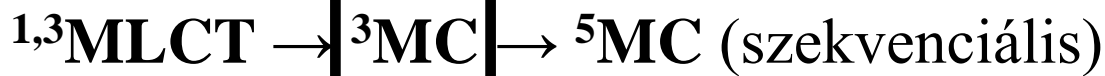


Kvintett

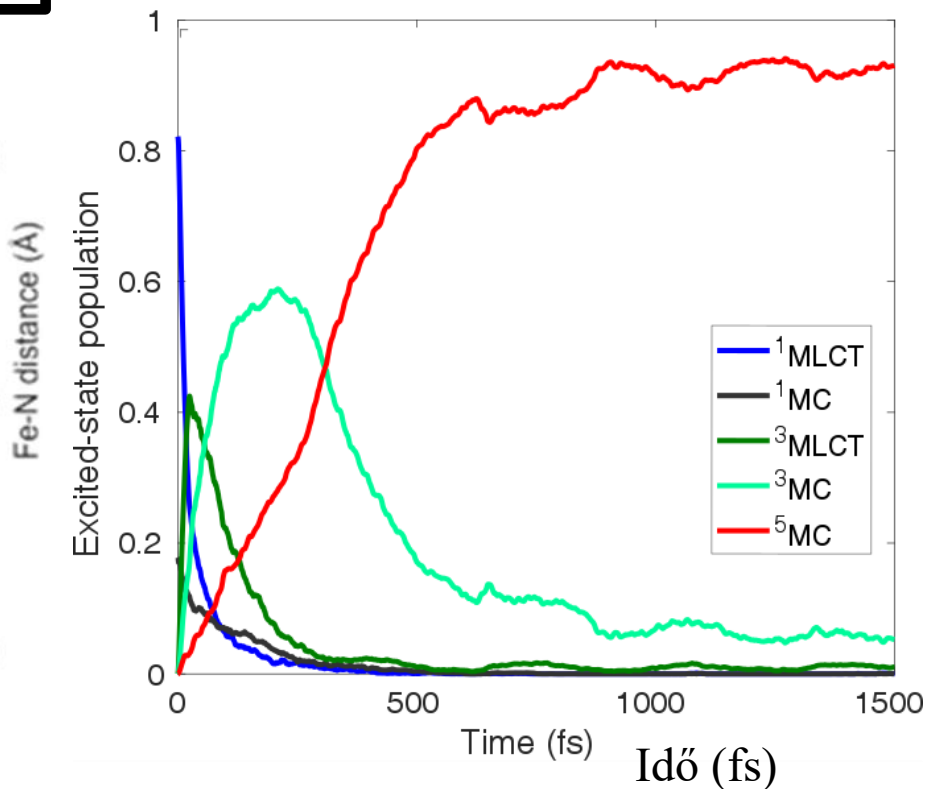
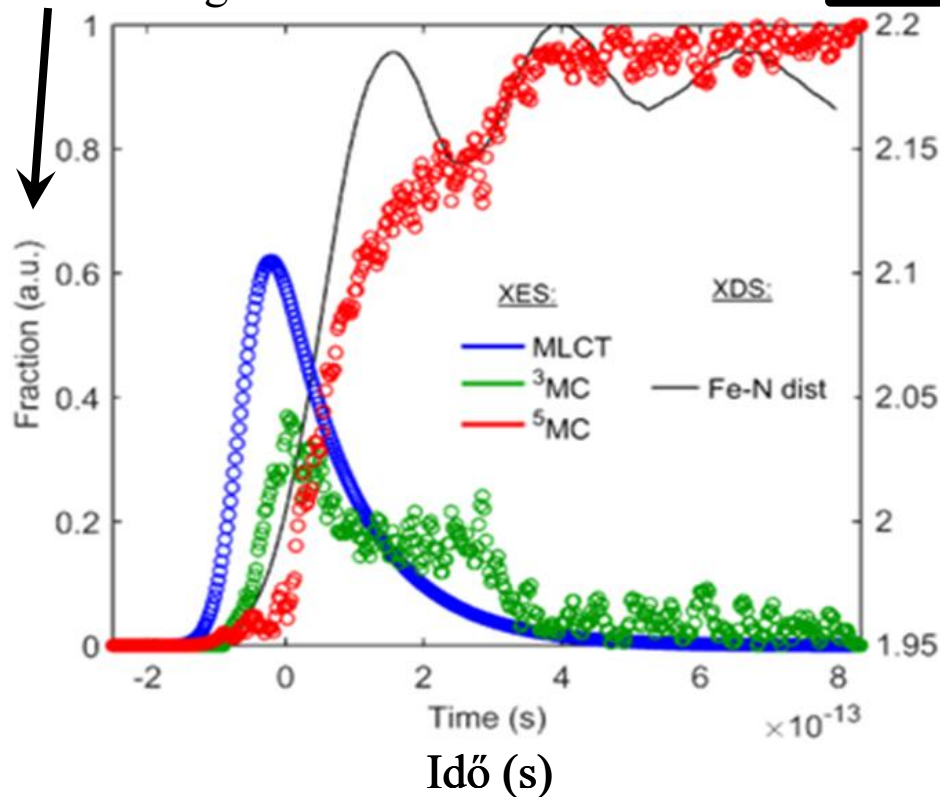


8 Szingulett  
13 Triplett  
3 Kvintett

# [Fe(terpy)<sub>2</sub>]<sup>2+</sup> – Teljes dimenziós szimuláció



Állapotok  
betöltöttsége



Kísérlet – röntgenemisszió  
Kjær *et al.* Chem. Sci. 2019

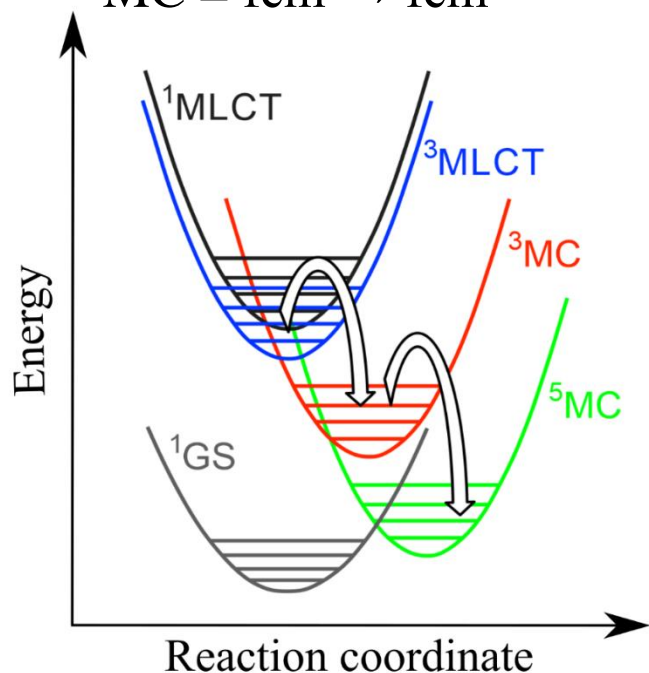
Szimuláció  
Rozgonyi, Vankó, Pápai  
submitted

DOI: 10.26434/chemrxiv-2022-nc1vt

# Fény által kiváltott kapcsolás Fe(II) komplexekben

MLCT = fém → ligandum

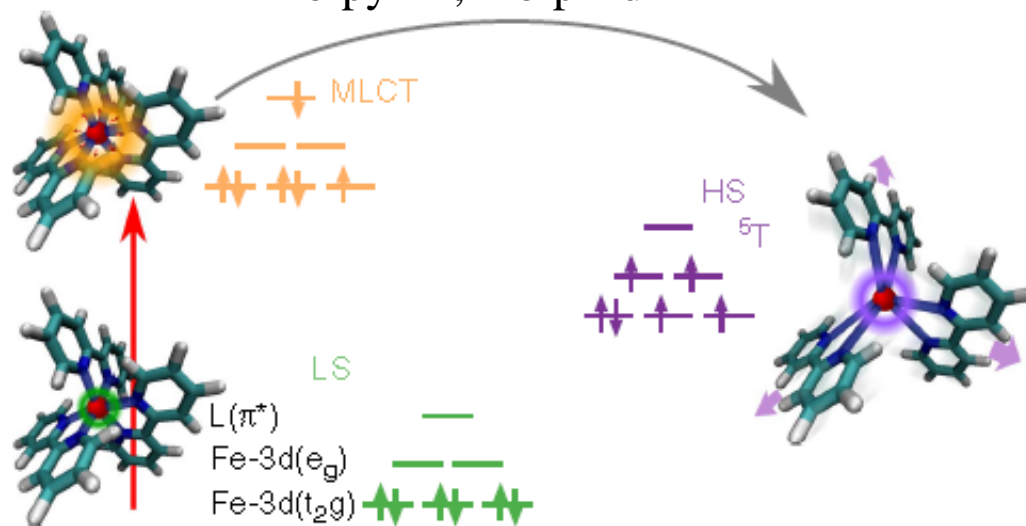
MC = fém → fém



**Szekvenciális útvonal**



bipy = 2,2'-bipiridin

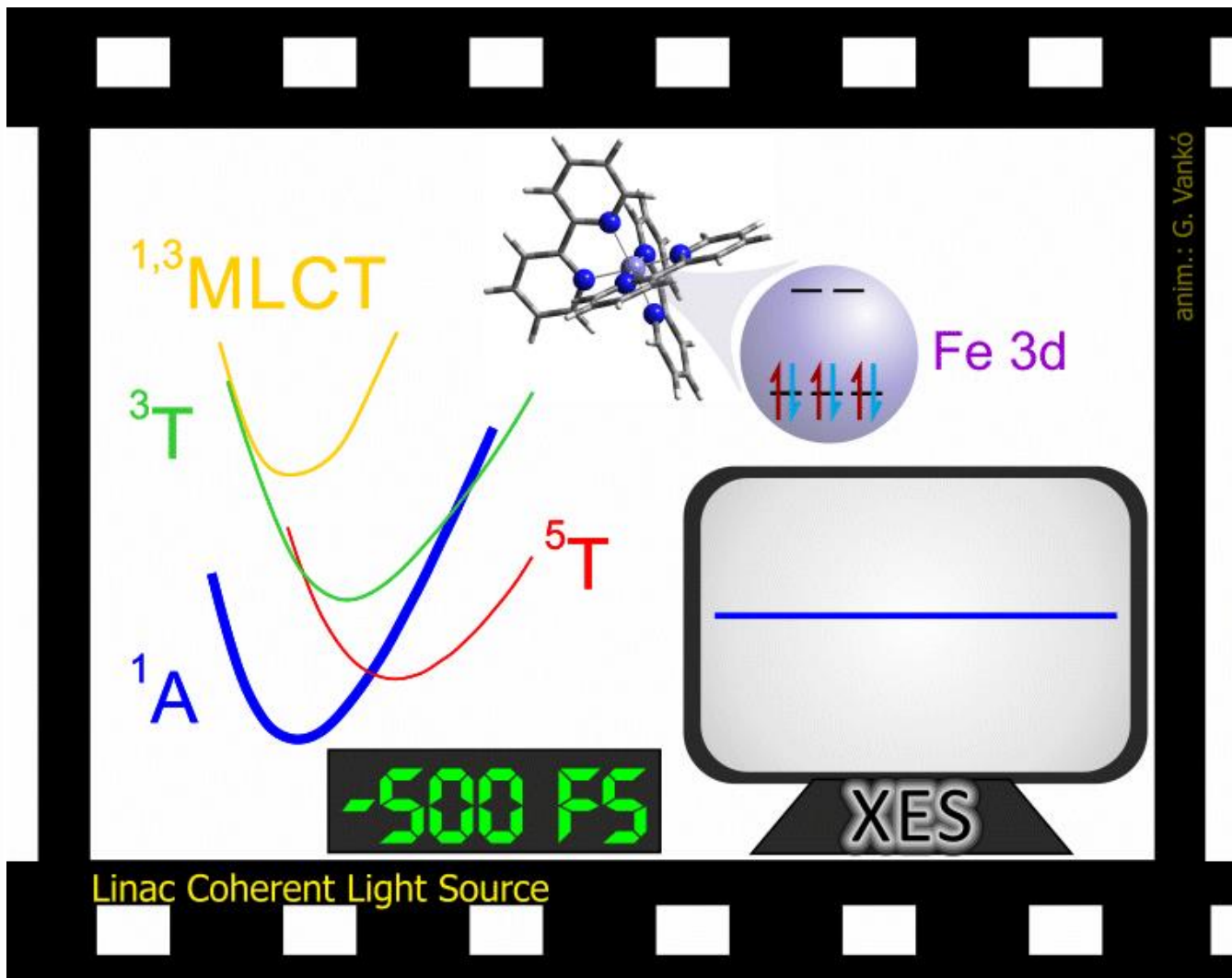


Direkt útvonal

Nature (2014), Nat. Chem. (2015), Nat. Commun. (2017),  
Chem. Sci. (2019)



# Molekuláris mozi



# Köszönetnyilvánítás

## Wigner FK

Vankó György

Rozgonyi Tamás

Femtosekundumos Spektroszkópai  
és Röntgenspektroszkópai „Lendület” kutatócsoport



Bolyai János  
Kutatási  
Ösztöndíj

## DTU Chemistry

Klaus B. Møller

Mostafa Abedi

Niels E. Henriksen

Sonia Coriani

Shota Tsuru



NKFIH PD 134976



SZÉCHENYI 2020

MAGYARORSZÁG  
KORMÁNYA

VEKOP-2.3.2-16-2017-00015



DANMARKS FRIE  
FORSKNINGSFOND  
INDEPENDENT RESEARCH  
FUND DENMARK