



OPIS ROZPRAWY DOKTORSKIEJ

Autor rozprawy doktorskiej: Michał Kordian Jurkowski

Tytuł rozprawy doktorskiej w języku polskim: Wpływ układu wiązań chemicznych na rozpad sześciocłonowych cząsteczek heterocyklicznych

Tytuł rozprawy w języku angielskim: The role of chemical bonds in the fragmentation of six-membered heterocyclic molecules

Język rozprawy doktorskiej: polski

Promotor rozprawy doktorskiej: dr hab. Tomasz Wąsowicz, prof. PG

Data obrony:

Słowa kluczowe rozprawy doktorskiej w języku polskim: tetrahydro-2H-piran

3,4-dihydro-2H-piran, energie progowe, przekroje czynne, ThreSpect, spektrometria mas, mechanizm „shake off”

Słowa kluczowe rozprawy doktorskiej w języku angielskim: tetrahydro-2H-pyran

3,4-dihydro-2H-pyran, thresholds energies, cross sections, ThreSpect, mass spectrometry, “shake off” mechanism

Streszczenie rozprawy w języku polskim: W niniejszej pracy przeanalizowano mechanizmy fragmentacji modelowych cząsteczek heterocyklicznych pirydyny, tetrahydro-2H-piranu, 3,4-dihydro-2H-piranu w jonizacji dysocjacyjnej indukowanej elektronami oraz oceniono skuteczność metod obliczeniowych w przewidywaniu tych procesów. Przebadano wpływ lokalizacji jonizacji (na atomach tlenu, azotu, węgla oraz w obrębie pierścienia aromatycznego) na preferencyjne ścieżki rozpadu, wykazując istotną zależność między miejscem inicjacji jonizacji a kierunkiem fragmentacji. Zbadano również, w jaki sposób struktura oraz stopień nasycenia pierścienia heterocyklicznego warunkują mechanizmy rozpadu. Oceniono działanie zaproponowanego algorytmu komputerowego, który wykazuje wyższą precyzję w wyznaczaniu energii pojawiania się jonów w porównaniu do metod tradycyjnych, choć jego skuteczność zależy od przyjętych parametrów. Przeprowadzono symulacje MD/QC_xMS, które pozwoliły na odtworzenie widm masowych z przyzwoitą zgodnością z wynikami eksperymentalnymi. Zbadano wpływ na jakość odwzorowania danych takich warunków symulacji jak energia zderzenia wiązki jonizującej, temperatura, wewnętrzna energia wzbudzenia oraz liczba analizowanych trajektorii. Oceniono również potencjał modeli opartych na uczeniu maszynowym do przewidywania przekrojów czynnych, wskazując zarówno na ich skuteczność jak i trudności z przeniesieniem wyników na inne grupy związków.

Streszczenie rozprawy w języku angielskim: This work focuses on the fragmentation mechanisms in electron-induced dissociative ionization of model heterocyclic molecules of pyridine, tetrahydro-2H-pyran, and 3,4-dihydro-2H-pyran. We assess the usefulness of computational methods in predicting these processes as well. The influence of ionization location (on oxygen, nitrogen, carbon atoms, and within the aromatic ring) on decay pathways was investigated, demonstrating a connection between the site of ionization and the fragmentation channels. The impact of the structure and degree of saturation of the heterocyclic ring on the decay mechanisms was also investigated. The new computer algorithm which demonstrates improved accuracy in determining cation appearance energies compared to traditional methods was verified. However, its effectiveness depends on the parameters used. MD/QC_xMS simulations were performed, which allowed the mass spectra to be reproduced with reasonable agreement to the experimental results. The influence of simulation conditions, such as the impact excess energy per atom, temperature, internal excitation energy, and the number of trajectories analysed, on the quality of data mapping was investigated. The potential of machine learning-based models for predicting cross sections was also evaluated, indicating their effectiveness but limited transferability between different groups of compound