

De Onderzoeksgroep

Algemene Chemie

nodigt U graag uit op de openbare verdediging van het proefschrift van

**Tom Bettens**

ter behaling van de graad van Doctor in de Wetenschappen

Titel van het proefschrift:

**Quantum Chemical Modeling of Mechanochemical Reactivity:  
Insights from Conceptual DFT and Modified Potential Energy Surfaces**

Promotors:

**Prof. dr. Frank De Proft**

**Prof. dr. Mercedes Alonso**

Co-promotor:

**Em. Prof. Dr. Paul Geerlings**

De verdediging heeft plaats op

**Maandag 13 december 2021 om 17u30**

De verdediging kan via een livestream gevolgd worden. Contacteer [tom.bettens@vub.be](mailto:tom.bettens@vub.be) voor meer informatie.

**Samenstelling van de jury**

Prof. dr. Ulrich Hennecke (VUB, voorzitter)

Prof. Dr. Ir. Freija De Vleeschouwer (VUB, secretaris)

Prof. Dr. Ir. Wim Versées (VUB)

Prof. Dr. Andreas Dreuw (Ruprecht-Karls-Universität)

Prof. Dr. Célia Fonseca Guerra (Vrije Universiteit Amsterdam)

Prof. Dr. Christophe Morell (Université de Lyon)

### Curriculum vitae

Tom Bettens behaalde de graad van Master of Science in Chemistry in 2017 alvorens de ALGC groep te vervoegen voor een doctoraat in de computationele chemie.

Zijn doctoraat was gewijd aan het begrijpen van de mechanische activering van moleculaire systemen om nieuwe mechanochemische experimenten te ontwikkelen. Dit onderzoeken en verschillende neven-activiteiten resulteerden in een totaal van zeven aan peer review onderworpen wetenschappelijke artikels en een boekhoofdstuk.

### Abstract van het doctoraatsonderzoek

De gangbare manieren om mechanische kracht uit te oefenen op een chemisch systeem zijn kogelmolens of ultrasoon experimenten. Zulke proeven activeren het bulk systeem en de eigenlijke activering van het chemische proces als direct gevolg van de absorptie van mechanische energie door de reagentia in een chemische reactie wordt overschaduwd door een complex geheel van chemische processen, zoals oppervlakte-effecten en lokale opwarming. Recente baanbrekende experimenten op basis van krachtmicroscopie hebben de mogelijkheid om mechanische vervorming in individuele moleculen te verwezenlijken alsook het bestuderen van unieke mechanochemische reacties aangetoond. Betrouwbare methodes voor het berekenen van door kracht gewijzigde moleculaire structuren zijn prachtige hulpmiddelen om mechanistische inzichten te verkrijgen in door kracht geïnduceerde chemische reacties. Er werd echter maar weinig aandacht besteed aan het grondig begrijpen van mechanische activering en de daarbij geassocieerde veranderingen in de chemie en elektronische eigenschappen van moleculen. Voorafgaand aan deze thesis waren slechts enkele middelen beschikbaar voor de identificatie van de chemische reacties die geïnitieerd kunnen worden door mechanische activatie; traditioneel zijn chemische intuïtie en vallen en opstaan veeleer vertrouwde instrumenten.

In deze thesis werden twee methodes aangewend om de mechanochemische reactiviteit van individuele moleculen te begrijpen. In een eerste methode werd de reactiviteit van chemische bindingen en bindingshoeken bestudeerd met reactiviteitsindices bij respectievelijk het verstoren van bindingsafstanden en hoekvervormingen. In een tweede methode werden de mechanische veranderingen van moleculaire potentiaaloppervlakken bestudeerd. Wij hebben aangetoond dat de richting waarlangs een kracht wordt aangewend, gebruikt kan worden om verschillende chemische veranderingen uit te lokken. Met andere woorden, een molecule reageert naargelang de vervorming die uit de oriëntering van de kracht volgt. Met behulp van een systematische aanpak werden structurele verstoringen van moleculaire structuren voorspeld om een verscheidenheid aan chemische reacties te initiëren, en deze werden ondersteund met kwantumchemische berekeningen: ringopeningen, topologische interconversies en bimoleculaire reacties. Terwijl het volledige bereik van toepassingen van moleculaire mechanochemie progressief in kaart gebracht wordt, zijn nu twee nieuwe methodes gebaseerd op kwantumchemische principes beschikbaar voor het identificeren van nieuwe mechanochemische reacties.