

Table 1S The results of calculations of relative energy and dipole moments of the monomers N-alkyl urea, and N-alkyl-thiourea with, respectively, one and two solvent molecules,

		<u>1xCHCl₃</u>		<u>2xCHCl₃</u>		<u>1xC₂H₄Cl₂</u>		<u>2xC₂H₄Cl₂</u>		
		ΔE [kcal/mol]	μ [D]	ΔE [kcal/mol]	μ [D]	ΔE [kcal/mol]	μ [D]	ΔE [kcal/mol]	μ [D]	
urea	propyl	trans	-5,44	5,88	-8,81	6,43	-3,47	4,42	-5,26	4,75
		cis	-5,76	6,74	-10,31	6,99	-3,66	5,21	-6,76	5,16
	butyl	trans	-5,41	5,88	-8,84	6,42	-3,48	4,37	-6,10	4,64
		cis	-5,78	6,85	-10,32	7,10	-3,67	5,31	-6,74	5,27
thiourea	propyl	trans	-4,09	6,57	-7,14	6,95	-2,80	5,49	-4,50	5,49
		cis	-4,43	7,42	-8,24	7,28	-3,10	6,44	-5,90	6,34
	butyl	trans	-4,09	6,53	-7,90	7,13	-3,59	5,45	-5,25	5,46
		cis	-4,32	7,13	-8,24	7,46	-2,58	6,21	-5,90	6,47
	heksyl	trans	-4,10	6,62	-7,13	6,87	-2,80	5,49	-4,50	5,49
		cis	-4,41	7,06	-8,87	7,53	-3,12	6,23	-6,49	6,62

Table 2S Results of the calculations of relative energy and dipole moments of *N*-alkyl urea and *N*-alkyl thiourea aggregates in two different conformations with DFT B3LYP method.

DFT calculations	Type of conformer	Monomers		Dimers		Trimers		Tetramers	
		ΔE^* [kcal/mol]	dipole moment [D]	ΔE [kcal/mol]	dipole moment [D]	ΔE [kcal/mol]	dipole moment [D]	ΔE [kcal/mol]	dipole moment [D]
NPU	cis	0,95	4,75	0,00	0,20	0,00	4,52	0,00	1,21
	trans	0,00	3,96	5,32	9,08	5,82	11,50	6,80	10,93
NPTU	cis	0,00	6,27	0,00	0,26	5,43	5,20	8,90	2,19
	trans	0,52	5,25	3,33	10,01	0,00	0,73	0,00	0,44
NBU	cis	0,12	4,85	0,00	0,13	0,00	4,73	0,00	1,43
	trans	0,00	3,93	3,35	8,45	3,53	11,73	3,56	10,64
NBTU	cis	0,00	6,37	0,00	0,11	6,77	5,59	12,38	3,27
	trans	1,33	5,22	1,24	9,03	0,00	1,91	0,00	0,55
NHTU	cis	0,02	6,12	0,00	1,27	2,80	5,66	7,58	3,28
	trans	0,00	5,17	3,13	9,05	0,00	1,96	0,00	0,52