

## ПОВЕРХНОСТЬ ПОТЕНЦИАЛЬНОЙ ЭНЕРГИИ ОСНОВНОГО ТРИПЛЕТНОГО СОСТОЯНИЯ МОЛЕКУЛЫ ТРИОКСИДА УРАНА $\text{UO}_3$

Д. Н. МЕНЯЙЛОВА<sup>1)</sup>, М. Б. ШУНДАЛОВ<sup>1), 2)</sup>

<sup>1)</sup>Белорусский государственный университет, пр. Независимости, 4, 220030, г. Минск, Беларусь

<sup>2)</sup>НИИ «Институт прикладных физических проблем им. А. Н. Севченко» БГУ,  
ул. Курчатова, 7, 220108, г. Минск, Беларусь

На основе квантово-химических *ab initio* расчетов в многоконфигурационном приближении полного активного пространства самосогласованного поля (complete active space self-consistent field) CASSCF(6,8) построены поверхности потенциальной энергии основного и первого возбужденного состояний молекулы триоксида урана  $\text{UO}_3$ . Установлена плоская равновесная геометрическая конфигурация, промежуточная между Т- и Y-формой и имеющая симметрию  $C_{2v}$ . Выявлено наличие трех эквивалентных устойчивых конфигураций, разделенных невысокими ( $40 \text{ см}^{-1}$ ) потенциальными барьерами. Показано, что на рассматриваемом уровне теории вблизи минимумов поверхности потенциальной энергии, имеющей нетривиальную топологию, основным состоянием молекулы  $\text{UO}_3$  является триплетное. Триплетное состояние указывает на ненасыщенный характер химических связей молекулы и ее возможные парамагнитные свойства, что, в свою очередь, открывает перспективы для исследования таких молекул при помощи магнитооптических ловушек как альтернативы низкотемпературным матрицам инертных газов, взаимодействующих с изолированными в них молекулами.

**Ключевые слова:**  $\text{UO}_3$  (триоксид урана); поверхность потенциальной энергии; CASSCF.

## THE POTENTIAL ENERGY SURFACE OF THE TRIPLET GROUND STATE OF A URANIUM TRIOXIDE MOLECULE

D. N. MENIAILAVA<sup>a</sup>, M. B. SHUNDALAU<sup>a, b</sup>

<sup>a</sup>Belarusian State University, Niezaliežnasci Avenue, 4, 220030, Minsk, Belarus

<sup>b</sup>A. N. Sevchenko Institute of Applied Physical Problems, Belarusian State University,  
Kurčataŭ Street, 7, 220108, Minsk, Belarus

Corresponding author: D. N. Menailava (menailava@bsu.by)

The potential energy surfaces of the ground and first excited states of the uranium trioxide molecule  $\text{UO}_3$  were constructed on the basis of quantum-chemical *ab initio* calculations in the multi-configuration CASSCF(6,8) approximation. A planar equilibrium geometric configuration, which is intermediate between the T- and Y-form and having  $C_{2v}$

### Образец цитирования:

Меняйлова Д. Н., Шундалов М. Б. Поверхность потенциальной энергии основного триплетного состояния молекулы триоксида урана  $\text{UO}_3$  // Журн. Белорус. гос. ун-та. Физика. 2017. № 3. С. 20–25.

### For citation:

Menailava D. N., Shundalau M. B. The potential energy surface of the triplet ground state of a uranium trioxide molecule. *J. Belarus. State Univ. Phys.* 2017. No. 3. P. 20–25 (in Russ.).

### Авторы:

Дарья Николаевна Меняйлова – аспирантка кафедры физической оптики физического факультета. Научный руководитель – М. Б. Шундалов.

Максим Борисович Шундалов – кандидат физико-математических наук, доцент; доцент кафедры физической оптики физического факультета<sup>1)</sup>; старший научный сотрудник лаборатории физикохимии полимерных материалов и природных органических соединений<sup>2)</sup>.

### Authors:

Darya Menailava, postgraduate student at the department of physical optics, faculty of physics.  
menailava@bsu.by

Maksim Shundalau, PhD (physics and mathematics), docent; associate professor at the department of physical optics, faculty of physics<sup>a</sup>; senior researcher at the laboratory of physical chemistry of polymer and natural organic compounds<sup>b</sup>.  
shundalov@bsu.by

symmetry, was established. The presence of three equivalent equilibrium configurations separated by low potential barriers ( $40 \text{ cm}^{-1}$ ) was reported. It was shown that at the considered level of theory near the minimum of the potential energy surface, which has a nontrivial topology, the ground state of the  $\text{UO}_3$  molecule is a triplet. The triplet state indicates the transient character of the molecule and predicts its possible paramagnetic properties, which offer the possibilities for studying of such molecules by magneto-optical traps as an alternative to low-temperature inert gas matrices interacting with molecules isolated in them.

**Key words:**  $\text{UO}_3$  (uranium trioxide); potential energy surface; CASSCF.

## Введение

Важным продуктом процессов обогащения урана и переработки ядерного топлива является триоксид урана  $\text{UO}_3$ , для которого в кристаллической фазе насчитывается не менее 6 полиморфических модификаций. В молекулярной форме триоксид урана впервые был экспериментально исследован в работе [1], где анализировались колебательные ИК-спектры молекул  $\text{UO}_2$  и  $\text{UO}_3$ , внедренных в низкотемпературную аргоновую матрицу. Далее, в работах [2–4] на основе анализа частот и интенсивностей в ИК-спектрах изотопомеров молекул  $\text{U}^{16}\text{O}_3$ ,  $\text{U}^{16}\text{O}_2^{18}\text{O}$  и др., изолированных в низкотемпературных криптоновой и аргоновой матрицах, была выявлена плоская Т-образная форма равновесной конфигурации молекулы в основном состоянии с двумя эквивалентными связями  $\text{U—O}$ . Такая структура молекулы обладает нетипичной для триоксидов симметрией  $C_{2v}$ , поскольку многие триоксиды ( $\text{SO}_3$ ,  $\text{CO}_3$ ,  $\text{NO}_3$  и др.) в молекулярной форме имеют более симметричное строение с тремя эквивалентными связями и относятся к точечной группе симметрии  $D_{3h}$ . Для объяснения  $C_{2v}$ -симметрии равновесной конфигурации молекулы  $\text{UO}_3$  в [2–4] предложено рассматривать триоксид урана  $\text{UO}_3$  как монооксид уранила  $(\text{UO}_2)^{2+}(\text{O})^{2-}$ , поскольку линейная форма иона уранила, характерная для его комплексных соединений, могла бы привести к Т-форме молекулы  $\text{UO}_3$ . Дальнейшие спектральные исследования нейтральных и частично ионизированных оксидов урана [5; 6], полученных в результате лазерной абляции металлического урана в атмосфере кислорода и затем изолированных в низкотемпературных криптоновой и неоновой матрицах, подтвердили принадлежность молекулы  $\text{UO}_3$  к точечной группе симметрии  $C_{2v}$ . Частоты колебаний, по данным [5; 6], соответствуют результатам исследований [2; 3] с учетом длинноволнового сдвига частот для криптоновой матрицы (относительно аргоновой) и коротковолнового – для неоновой. Следует особо подчеркнуть, что Т-образная форма молекулы определена на основе интерпретации колебательных спектров, а группа симметрии  $C_{2v}$  допускает не только Т-образную форму, но и более вытянутую, Y-образную, конфигурацию молекулы. Такая форма не противоречит интерпретации спектральных данных, полученных в [1–6].

Во всех названных выше работах подразумевается, что основное состояние молекулы  $\text{UO}_3$  является синглетным. Неустойчивость рассматриваемого соединения в мономерной молекулярной форме в обычных условиях может быть вызвана ненасыщенностью его связей, что, в свою очередь, не исключает возможности для основного триплетного состояния молекулы.

Квантово-химические расчеты электронной структуры молекулы  $\text{UO}_3$  в приближении Хартри – Фока выполнены в работе [7] с использованием эффективных остоновых потенциалов (effective core potential, ECP) для атомов урана и кислорода. Расчеты подтвердили симметрию  $C_{2v}$  для равновесной (близкой к Т-образной) конфигурации молекулы; рассчитанные длины связей равны  $1,75 \text{ \AA}$  (эквивалентные, или ураниловые, связи) и  $1,83 \text{ \AA}$  (для третьей связи), угол между ураниловыми связями составил  $161^\circ$ . Более симметричная ( $D_{3h}$ ) конфигурация с равными длинами связей ( $1,806 \text{ \AA}$ ) соответствует седловой точке, лежащей выше минимума, отвечающего симметрии  $C_{2v}$ , на  $49 \text{ кДж/моль}$ . В [7] авторы предположили, что более низкая, чем  $D_{3h}$ , симметрия основного состояния молекулы триоксида урана может быть обусловлена эффектом Яна – Теллера. Расчеты [8], выполненные в приближении MP2 (метод теории возмущения второго порядка Меллера – Плессе), продемонстрировали похожие результаты: длины связей равны  $1,745$  и  $1,828 \text{ \AA}$ , угол между эквивалентными связями составил  $165,2^\circ$ . В [8] указывается на несоответствие рассчитанной геометрии и экспериментальной, т. е. полученной на основе интерпретации экспериментальных спектральных данных (полностью Т-образной, с углом между эквивалентными связями, равным  $180^\circ$ ), при этом не исключается возможность влияния матриц на полученную в эксперименте структуру молекулы.

Альтернативные приближению Хартри – Фока расчеты [6; 9], выполненные в рамках метода теории функционала плотности DFT (density functional theory) с функционалами B3LYP [6; 9] и PBE0 [9], ECP-базисными наборами для атома U и полноэлектронными базисами для атомов O, также приводят к устойчивой  $C_{2v}$  конфигурации молекулы. Данная конфигурация близка к Т-образной форме: длины

связей равны 1,81 Å (B3LYP [6]), 1,771 Å (PBE0 [9]) и 1,808 Å (B3LYP [9]) (эквивалентные связи), 1,850 Å (B3LYP [6]), 1,786 Å (PBE0 [9]) и 1,849 Å (B3LYP [9]); угол между эквивалентными связями составил 158,8° (B3LYP [6]), 161° (PBE0 [9]) и 157° (B3LYP [9]). Симметричная структура с тремя эквивалентными связями, по данным расчета [6], отвечает седловой точке, лежащей на 16 кДж/моль выше равновесной, менее симметричной конфигурации.

Ранее нами [10; 11] также в рамках метода DFT с использованием ECP-базиса для атома U и различных полноэлектронных базисов для атомов O было установлено, что, кроме Т-образной формы молекулярного триоксида урана в основном состоянии, соответствующей углу между эквивалентными связями, равному 156–160°, имеется дополнительная устойчивая конфигурация (Y-форма), для которой угол между эквивалентными связями лежит в диапазоне 88–89°. Длины связей при этом оказались равными 1,80 Å (Т-форма) и 1,83 Å (Y-форма) (ураниловые связи), 1,87 Å (Т-форма) и 1,80 Å (Y-форма). По данным расчета [10], Y-форма лежит на 216 см<sup>-1</sup> ниже Т-формы, а потенциальный барьер, разделяющий две конфигурации, соответствует углу 120° между ураниловыми связями; его высота равна 2731 см<sup>-1</sup>. Рассчитанные колебательные спектры обеих форм подтвердили их устойчивость (мнимые частоты отсутствуют), а значения колебательных частот в целом соответствуют наблюдаемым данным.

Все приведенные выше расчеты выполнялись в одноконфигурационном приближении, которое для молекулярных систем, содержащих тяжелые атомы с большим количеством электронов, оказывается не всегда приемлемым [12]. В таких случаях необходимо учитывать большое количество возбужденных электронных конфигураций различных степеней возбуждения. Результаты квантово-химического *ab initio* расчета молекулы UO<sub>3</sub> в многоконфигурационном приближении CASPT2 приводятся в [13]. Установлено, что равновесная конфигурация молекулы близка к Т-форме (длины связей равны 1,789 и 1,838 Å, угол между эквивалентными связями составил 161,3°), при этом мультиплетность основного состояния равна 1, а первое триплетное состояние лежит выше основного синглетного на 14 982 см<sup>-1</sup>. Отметим, что расчеты, выполненные в [13], осуществлялись только для одной точки поверхности потенциальной энергии (ППЭ) молекулы, соответствующей ее локальному минимуму.

Анализ экспериментальных и теоретических данных позволяет утверждать, что даже в случае существования только одной симметричной равновесной конфигурации молекулы триоксида урана (Т- или Y-формы), находящейся на диагональном сечении ППЭ как функции углов  $\alpha_1$  и  $\alpha_2$  между ураниловыми связями и третьей, неэквивалентной, связью (т. е. при  $\alpha_1 = \alpha_2$ ), могут существовать и дополнительные, «боковые», формы, расположенные по обе стороны от диагонального сечения ППЭ (т. е. при  $\alpha_1 = \beta$  или  $\alpha_2 = \beta$ , где  $\beta$  – угол между «ураниловыми» связями). В случае же эффекта Яна – Теллера как возможной причины понижения симметрии молекулы триоксида урана [7] до C<sub>2v</sub> наличие боковых форм является обязательным.

Таким образом, основные цели настоящей работы – на базе расчета поверхностей потенциальной энергии основного и первого возбужденного состояний в многоконфигурационном приближении определить симметрию и форму молекулы триоксида урана в основном состоянии, его мультиплетность, а также выяснить возможность существования конформеров (т. е. наличие нескольких минимумов на ППЭ) рассматриваемой молекулы.

### Методика расчета

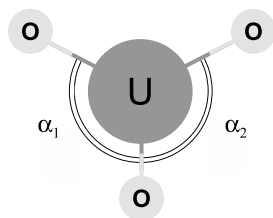


Рис. 1. Строение молекулы UO<sub>3</sub>  
Fig. 1. Structure of the UO<sub>3</sub> molecule

Расчеты поверхностей потенциальной энергии молекулы UO<sub>3</sub> выполнялись с помощью прикладного квантово-химического пакета GAMESS-US [14] в рамках многоконфигурационного метода CASSCF. Активное пространство включало 6 электронов на 8 орбиталях. Процедура усреднения матрицы плотности SA (state-averaged) осуществлялась для двух нижних состояний – синглетного и триплетного. Для описания атома урана использовался квазирелятивистский эффективный остоновый потенциал Stuttgart ECP80 [15], замещающий 80 внутренних электронов, и трехкратно расщепленный (TZ) базисный набор (7s6p5d2f) → [5s4p4d2f] для оставшихся 12 электронов. Для атомов кислорода применялся стандартный корреляционно-согласованный полноэлектронный TZ-базис cc-pVTZ: (1s5p2d1f) → [4s3p2d1f] [16].

В качестве координат использовались углы  $\alpha_1$  и  $\alpha_2$  между двумя эквивалентными связями и третьей, неэквивалентной (рис. 1). Эти углы фиксировались, по остальным внутренним координатам (кроме угла выхода связей из плоскости) осуществлялась оптимизация геометрических параметров. Поскольку спектральные исследования [1–6] предсказывают плоскую форму молекулы, при расчетах задавалась группа симметрии C<sub>s</sub>. Вычисления выполнялись на сетке 77,5–157,5° × 77,5–157,5° с шагом 2,5°. Для визуализации полученных результатов использовалась программа MacMolPlt [17].

## Результаты расчета и их обсуждение

Контурная карта рассчитанной ППЭ основного состояния молекулы триоксида урана как функции углов  $\alpha_1$  и  $\alpha_2$  представлена на рис. 2. Изоэнергетические линии проведены через  $53 \text{ см}^{-1}$ . Каждая конфигурация молекулы на ППЭ может быть задана парой углов ( $\alpha_1, \alpha_2$ ). Результаты расчетов демонстрируют, что устойчивая конфигурация молекулы имеет структуру, промежуточную между Т- и Y-формой (см. рис. 1), при этом рассчитанные длины связей равны  $2,25 \text{ \AA}$  (эквивалентные связи) и  $1,90 \text{ \AA}$ , угол между эквивалентными связями составил  $123,72^\circ$ . Рассматриваемая конфигурация молекулы расположена на диагональном сечении ППЭ при  $\alpha_1 = \alpha_2 = 118,14^\circ$ .

Диагональное сечение ППЭ изображено на рис. 3, а, из которого следует, что вблизи минимума ППЭ наиболее глубоко лежащим электронным состоянием молекулы  $\text{UO}_3$  является триплетное, а первое синглетное состояние расположено выше на  $15 \text{ см}^{-1}$ . С увеличением углов  $\alpha_1$  и  $\alpha_2$  (т. е. с приближением конфигурации молекулы к Y-форме) разность энергий синглетного и триплетного состояний возрастает (см. рис. 3, б), а при уменьшении углов (т. е. с приближением конфигурации молекулы

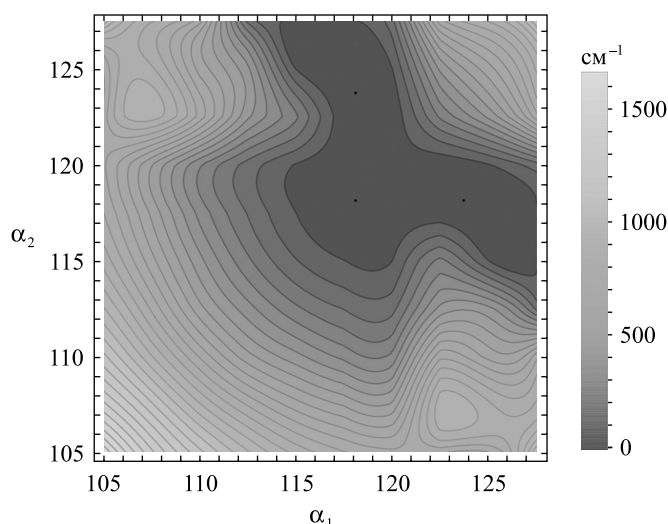


Рис. 2. Контурная карта ППЭ основного триплетного состояния молекулы  $\text{UO}_3$ , рассчитанной в приближении CASSCF(6,8)

Fig. 2. Contour map of the PES of the ground triplet state of the  $\text{UO}_3$  molecule calculated in CASSCF(6,8) approximation

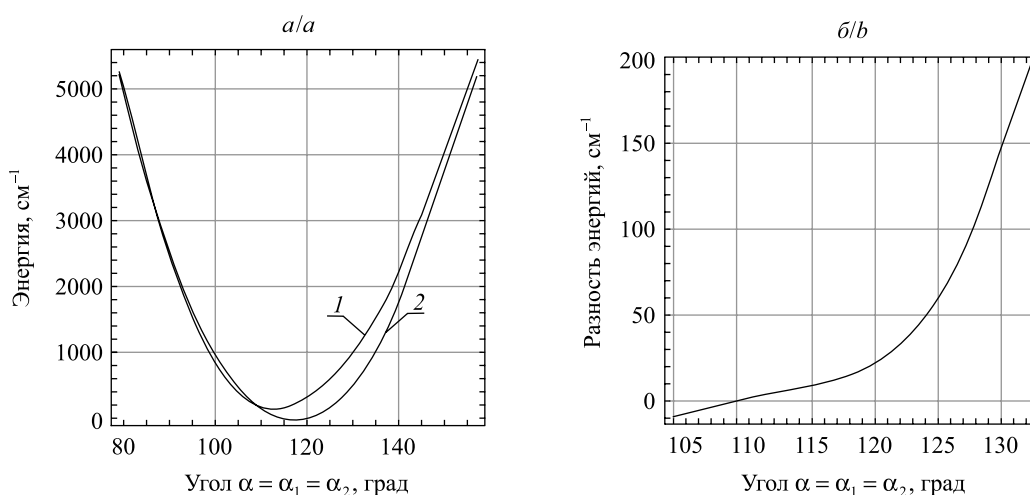


Рис. 3. Диагональное сечение ППЭ (а):

1 – синглетное состояние, 2 – триплетное состояние; разность энергий между ППЭ синглетного и триплетного состояний вдоль диагонального сечения (б)

Fig. 3. Diagonal intersection of the PESs (a):

1 – the singlet state, 2 – the triplet state; energy difference between PESs of the singlet and triplet states along the diagonal intersection (b)



к Т-форме) – понижается так, что при значениях углов  $\alpha_1$  и  $\alpha_2$  около  $109^\circ$  происходит коническое пересечение поверхностей, и нижним электронным состоянием оказывается синглетное. Обе ППЭ (триплетного и синглетного состояний) имеют похожую форму (на рис. 2 изображена ППЭ триплетного состояния).

Кроме этого, становится понятным, что эффект Яна – Теллера не может быть причиной понижения симметрии основного состояния с  $D_{3h}$  до  $C_{2v}$ , поскольку в этом случае наиболее симметричной конфигурации молекулы с углами  $\alpha_1 = \alpha_2 = 120^\circ$  и тремя эквивалентными связями соответствовал бы локальный максимум, расположенный на диагональном сечении ППЭ. Об отсутствии такого максимума свидетельствует рис. 3, а. Таким образом, причиной отличия структуры молекулярной формы триоксида урана от наиболее симметричной конфигурации и неэквивалентности трех его U—O-связей является, вероятнее всего, недостаток электронной плотности, локализованной на этих связях.

Поскольку для трех рассматриваемых углов ( $\alpha_1$ ,  $\alpha_2$  и  $\beta$ ) выполняется условие  $\alpha_1 + \alpha_2 + \beta = 360^\circ$ , это приводит к дополнительной симметрии ППЭ. Каждая из находящихся на диагональном сечении ППЭ конфигураций молекулы (т. е. все симметричные формы, для которых  $\alpha_1 = \alpha_2 = \alpha$ ) с координатами  $(\alpha, \alpha)$  имеет по два симметрично расположенных вне диагонали аналога:  $(\alpha, 360^\circ - 2\alpha)$  и  $(360^\circ - 2\alpha, \alpha)$  (выше и ниже диагонали соответственно). Единственным исключением является конфигурация с координатами  $(120^\circ, 120^\circ)$ , встречающаяся на ППЭ только один раз. Таким образом, кроме расположенной на диагонали ППЭ устойчивой конфигурации с координатами  $(118,14^\circ, 118,14^\circ)$ , имеются еще две – с координатами  $(118,14^\circ, 123,72^\circ)$  и  $(123,72^\circ, 118,14^\circ)$  (см. рис. 2). Каждая конфигурация, не находящаяся на диагонали (например, лежащая при  $\alpha_1 < \alpha_2$  выше диагонали конфигурация с координатами  $(\alpha_1, \alpha_2)$ ) кроме очевидного аналога, расположенного ниже диагонали  $(\alpha_2, \alpha_1)$ , имеет еще четыре дополнительных аналога: два – выше диагонали с координатами  $(\alpha_1, 360^\circ - \alpha_1 - \alpha_2)$  и  $(\alpha_2, 360^\circ - \alpha_1 - \alpha_2)$  и два – ниже диагонали с координатами  $(360^\circ - \alpha_1 - \alpha_2, \alpha_1)$  и  $(360^\circ - \alpha_1 - \alpha_2, \alpha_2)$ . Такие свойства симметрии приводят к следующей топологии ППЭ: диагональное сечение ППЭ в направлении от точки  $(120^\circ, 120^\circ)$  в сторону уменьшения (увеличения) углов (т. е. к точке с координатами  $(\alpha, \alpha)$ ) имеет по два эквивалентных сечения в направлениях точек  $(\alpha, 360^\circ - 2\alpha)$  и  $(360^\circ - 2\alpha, \alpha)$ . В результате этого формируется звездообразный рельеф поверхности потенциальной энергии, на которой выделяются шесть лучей, разделяющих пологие «долины», вблизи соединения которых в точке  $(120^\circ, 120^\circ)$  лежат три эквивалентных минимума ППЭ. Минимумы разделены невысоким потенциальным барьером, высота которого в «перевале» равна  $40 \text{ см}^{-1}$ .

### Заключение

На основе квантово-химических *ab initio* расчетов в многоконфигурационном приближении CASSCF(6,8) построены поверхности потенциальной энергии двух нижних электронных состояний молекулы триоксида урана. Установлено равновесное геометрическое строение молекулы, отвечающее плоской конфигурации, промежуточной между Т- и Y-формой и имеющей симметрию  $C_{2v}$ . Определена нетривиальная топология ППЭ и выявлено наличие трех эквивалентных устойчивых конфигураций, разделенных невысокими потенциальными барьерами. Показано, что на рассматриваемом уровне теории вблизи минимумов ППЭ основным состоянием молекулы  $\text{UO}_3$  является триплетное. Этот факт подчеркивает ненасыщенный характер химических связей молекулы и свидетельствует о ее возможных парамагнитных свойствах, что, в свою очередь, открывает потенциальные возможности для исследования таких молекул при помощи магнитооптических ловушек как альтернативы низкотемпературным матрицам инертных газов, взаимодействующих с изолированными в них молекулами.

### Библиографические ссылки

1. Gabelnick S. D., Reedy G. T., Chasanov M. G. The infrared spectrum of matrix-isolated uranium oxide vapor species // Chem. Phys. Lett. 1973. Vol. 19, issue 1. P. 90–93.
2. Gabelnick S. D., Reedy G. T., Chasanov M. G. Infrared spectra of matrix-isolated uranium oxide species. I. The stretching region // J. Chem. Phys. 1973. Vol. 58, issue 10. P. 4468–4475.
3. Gabelnick S. D., Reedy G. T., Chasanov M. G. Infrared spectra of matrix-isolated uranium oxide species. II. Spectral interpretation and structure of  $\text{UO}_3$  // J. Chem. Phys. 1973. Vol. 59, issue 12. P. 6397–6404.
4. Green D. W., Reedy G. T., Gabelnick S. D. Infrared spectra of matrix-isolated uranium oxide species. III. Lowfrequency modes // J. Chem. Phys. 1980. Vol. 73, issue 9. P. 4207–4216.
5. Hunt R. D., Andrews L. Reactions of pulsed-laser evaporated uranium atoms with molecular oxygen: Infrared spectra of  $\text{UO}$ ,  $\text{UO}_2$ ,  $\text{UO}_3$ ,  $\text{UO}_2^+$ ,  $\text{UO}_2^{2+}$ , and  $\text{UO}_3\text{—O}_2$  in solid argon // J. Chem. Phys. 1993. Vol. 98, issue 5. P. 3690–3686.
6. Zhou M., Andrews L. Infrared spectra of  $\text{UO}_2$ ,  $\text{UO}_2^+$ , and  $\text{UO}_2^-$  in solid neon // J. Phys. Chem. A. 2000. Vol. 104, issue 23. P. 5495–5502.

7. Pyykkö P., Li J., Runeberg N. Quasirelativistic pseudopotential study of species isoelectronic to uranyl and the equatorial coordination of uranyl // *J. Phys. Chem.* 1994. Vol. 98, issue 18. P. 4809–4813.
8. Privalov T., Schimmelpfennig B., Wahlgren U., et al. Structure and thermodynamics of uranium(VI) complexes in the gas phase: a comparison of experimental and ab initio data // *J. Phys. Chem. A*. 2002. Vol. 106, issue 46. P. 11277–11282.
9. Zaitsevskii A. V. Molecular anions of uranium fluorides and oxides: first principle based relativistic calculations // *Radiochemistry*. 2013. Vol. 55, issue 4. P. 353–356.
10. Shundalau M. B., Zajogin A. P., Komiak A. I., et al. A DFT modeling of the uranium trioxide vibration spectra characteristics // *J. Spectrosc. Dyn.* 2012. Vol. 2. P. 19–24.
11. Shundalau M. B., Umreiko D. S. Quantum chemical analysis of uranium trioxide conformers // *J. Appl. Spectrosc.* 2014. Vol. 80, issue 6. P. 807–812.
12. Jensen F. *Introduction to Computational Chemistry*. Chichester, 2007.
13. Kovács A. Relativistic multireference quantum chemical study of the electronic structure of actinide trioxide molecules // *J. Phys. Chem. A*. 2017. Vol. 121, issue 12. P. 2523–2530.
14. Schmidt M. W., Baldridge K. K., Boatz J. A., et al. General atomic and molecular electronic structure system // *J. Comput. Chem.* 1993. Vol. 14, № 11. P. 1347–1363.
15. Moritz A., Cao X., Dolg M. Quasirelativistic energy-consistent 5f-in-core pseudopotentials for divalent and tetravalent actinide elements // *Theor. Chem. Acc.* 2007. Vol. 118, issue 5. P. 845–854.
16. Schuchardt K. L., Didier B. T., Elsethagen T., et al. Basis set exchange: A community database for computational sciences // *J. Chem. Inf. Model.* 2007. Vol. 47, № 3. P. 1045–1052.
17. Bode B. M., Gordon M. S. MacMolPlt: a graphical user interface for GAMESS // *J. Mol. Graph. Model.* 1998. Vol. 16, № 3. P. 133–138.

## References

1. Gabelnick S. D., Reedy G. T., Chasanov M. G. The infrared spectrum of matrix-isolated uranium oxide vapor species. *Chem. Phys. Lett.* 1973. Vol. 19, issue 1. P. 90–93. DOI: 10.1016/0009-2614(73)87070-8.
2. Gabelnick S. D., Reedy G. T., Chasanov M. G. Infrared spectra of matrix-isolated uranium oxide species. I. The stretching region. *J. Chem. Phys.* 1973. Vol. 58, issue 10. P. 4468–4475. DOI: 10.1063/1.1679009.
3. Gabelnick S. D., Reedy G. T., Chasanov M. G. Infrared spectra of matrix-isolated uranium oxide species. II. Spectral interpretation and structure of  $\text{UO}_3$ . *J. Chem. Phys.* 1973. Vol. 59, issue 12. P. 6397–6404. DOI: 10.1063/1.1680018.
4. Green D. W., Reedy G. T., Gabelnick S. D. Infrared spectra of matrix-isolated uranium oxide species. III. Lowfrequency modes. *J. Chem. Phys.* 1980. Vol. 73, issue 9. P. 4207–4216. DOI: 10.1063/1.440704.
5. Hunt R. D., Andrews L. Reactions of pulsed-laser evaporated uranium atoms with molecular oxygen: Infrared spectra of  $\text{UO}$ ,  $\text{UO}_2$ ,  $\text{UO}_3$ ,  $\text{UO}_2^+$ ,  $\text{UO}_2^{2+}$ , and  $\text{UO}_3-\text{O}_2$  in solid argon. *J. Chem. Phys.* 1993. Vol. 98, issue 5. P. 3690–3686. DOI: 10.1063/1.464045.
6. Zhou M., Andrews L. Infrared spectra of  $\text{UO}_2$ ,  $\text{UO}_2^+$ , and  $\text{UO}_2^-$  in solid neon. *J. Phys. Chem. A*. 2000. Vol. 104, issue 23. P. 5495–5502. DOI: 10.1021/jp000292q.
7. Pyykkö P., Li J., Runeberg N. Quasirelativistic pseudopotential study of species isoelectronic to uranyl and the equatorial coordination of uranyl. *J. Phys. Chem.* 1994. Vol. 98, issue 18. P. 4809–4813. DOI: 10.1021/j100069a007.
8. Privalov T., Schimmelpfennig B., Wahlgren U., et al. Structure and thermodynamics of uranium(VI) complexes in the gas phase: a comparison of experimental and ab initio data. *J. Phys. Chem. A*. 2002. Vol. 106, issue 46. P. 11277–11282. DOI: 10.1021/jp0260402.
9. Zaitsevskii A. V. Molecular anions of uranium fluorides and oxides: first principle based relativistic calculations. *Radiochemistry*. 2013. Vol. 55, issue 4. P. 353–356. DOI: 10.1134/S1066362213040012.
10. Shundalau M. B., Zajogin A. P., Komiak A. I., et al. A DFT modeling of the uranium trioxide vibration spectra characteristics. *J. Spectrosc. Dyn.* 2012. Vol. 2. P. 19–24.
11. Shundalau M. B., Umreiko D. S. Quantum chemical analysis of uranium trioxide conformers. *J. Appl. Spectrosc.* 2014. Vol. 80, issue 6. P. 807–812. DOI: 10.1007/s10812-014-9848-2.
12. Jensen F. *Introduction to Computational Chemistry*. Chichester, 2007.
13. Kovács A. Relativistic multireference quantum chemical study of the electronic structure of actinide trioxide molecules. *J. Phys. Chem. A*. 2017. Vol. 121, issue 12. P. 2523–2530. DOI: 10.1021/acs.jpca.7b01344.
14. Schmidt M. W., Baldridge K. K., Boatz J. A., et al. General atomic and molecular electronic structure system. *J. Comput. Chem.* 1993. Vol. 14, No. 11. P. 1347–1363. DOI: 10.1002/jcc.540141112.
15. Moritz A., Cao X., Dolg M. Quasirelativistic energy-consistent 5f-in-core pseudopotentials for divalent and tetravalent actinide elements. *Theor. Chem. Acc.* 2007. Vol. 118, issue 5. P. 845–854. DOI: 10.1007/s00214-007-0330-6.
16. Schuchardt K. L., Didier B. T., Elsethagen T., et al. Basis set exchange: A community database for computational sciences. *J. Chem. Inf. Model.* 2007. Vol. 47, No. 3. P. 1045–1052. DOI: 10.1021/ci600510j.
17. Bode B. M., Gordon M. S. MacMolPlt: a graphical user interface for GAMESS. *J. Mol. Graph. Model.* 1998. Vol. 16, No. 3. P. 133–138. DOI: 10.1016/S1093-3263(99)00002-9.

Статья поступила в редколлегию 17.05.2017.  
Received by editorial board 17.05.2017.