

Záverečná karta projektu

Názov projektu Evidenčné číslo projektu **LPP-0110-07**

Výpočty elektrických vlastností atómov a molekúl; elektrické momenty a polarizovateľnosti, gradienty elektrického poľa a jadrové kvadrupólové momenty

Zodpovedný riešiteľ **Prof. RNDr. Vladimír Kellö, DrSc.**

Príjemca **Univerzita Komenského v Bratislave, Prír. fakulta**

Názov pracoviska, na ktorom bol projekt riešený

1. Katedra fyzikálnej a teoretickej chémie Prírodovedeckej fakulty UK v Bratislave
- 2.
- 3.
- 4.
- 5.

Názov a štát zahraničného pracoviska, ktoré spolupracovalo pri riešení

1. Department of Quantum Chemistry, Institute of Chemistry, Nicolaus Copernicus University, Toruń, Poľsko
2. Ústav organickej chémie a biochémie AV ČR, Praha. ČR
- 3.

Udelené patenty/podané patentové prihlášky, vynálezy alebo úžitkové vzory, ktoré sú výsledkami projektu

- 1.
- 2.
- 3.

Najvýznamnejšie publikácie (knihy, články, prednášky, správy a pod.) zhrňujúce výsledky projektu – uveďte aj publikácie prijaté do tlače

1. Dediková, P., Demovič, L., Pitoňák, M., Neogrady, P., Urban, M.: CCSD(T) calculations of the electron affinity of the uracil molecule. Chemical Physics Letters 481, 107-111 (2009).
2. Demovič, L., Kellö, V., Sadlej, A.J.: The quadrupole moment of the As nucleus from molecular microwave data and calculated relativistic electric field gradients. Chemical Physics Letters 498, 10-13 (2010).
3. Iliáš, M., Kellö, V., Urban, M.: Relativistic effects in atomic and molecular properties. Acta Physica Slovaca 60, 259-391 (2010).
4. Demovič, L., Kellö, V., Urban, M.: Relativistic effects in low-lying electronic states of iron.

5. Demovič L.: Výpočty vlastností atómov a molekúl v základných a excitovaných stavoch so zahrnutím relativistických efektov. Dizertačná práca v odbore 4.1.11 Chemická fyzika, Univerzita Komenského, Prírodovedecká fakulta, Bratislava 2012

Uplatnenie výsledkov projektu

Projekt mal charakter základného výskumu a preto uplatnenie jeho výsledkov je vo vedeckých publikáciách a následných citáciách. Podstatným prínosom je aj adekvátne uplatnenie vyškoleného doktoranda v praxi.

CHARAKTERISTIKA VÝSLEDKOV

Súhrn výsledkov riešenia projektu a naplnenia cieľov projektu v slovenskom jazyku (max. 20 riadkov)

Výsledky prezentované v prácach uvedených v zozname vyššie naplnili ciele projektu deklarované v jeho návrhu. Za najvýznamnejšie považujeme štúdium vplyvu skalárnych relativistických a spin-orbitálnych efektov na nízko ležiace elektronické stavy atómov železa, ruténia a osmia. Naše výsledky ukázali, že aj v tak pomerne ľahkom atóme ako je železo, zohrávajú skalárne relativistické efekty významnú úlohu, keď tvorili takmer 30% celkovej hodnoty prvej excitačnej energie. Tento jav je možné kvalitatívne vysvetliť stabilizáciou 4s orbitalov a destabilizáciou 3d orbitalov. Dosahli sme veľmi dobrú zhodu s experimentom, ako na skalárnej, najmä však na spin-orbitálnej úrovni. Taktiež sú podstatne presnejšie ako predošlé teoretické práce. Navyše, v prípade atómov s komplikovanou štruktúrou (Ru a Os) môžu pomôcť pri identifikácii a priradení experimentálne určených J hladín. V súlade s plánom sme sa venovali určeniu jadrových kvadrupólových momentov pomocou ab initio výpočtov gradientu elektrického poľa (EFG) na jadre v biatomických molekulách v kombinácii s experimentálnymi jadrovými kvadrupólovými interakčnými konštantami získanými z mikrovlnných spektier príslušných molekúl. Tento 'molekulový' prístup je v súčasnosti považovaný za najlepší. Presnosť EFG výpočtov musí byť veľmi vysoká a tak efekty elektrónovej korelácie sú zahrnuté pomocou metódy spriahnutých klastrov a relativistické efekty pomocou metódy IOTC v skalárnej aproximácii. Touto metódou sme určili hodnotu kvadrupólového momentu jadra ^{75}As ako 311 ± 2 mb pričom spadá do chybového intervalu aktuálnej odporúčanej hodnoty 314 ± 6 mb, získanej z mezónového spektra. Naš výsledok však má nižší interval chyby a preto ho navrhujeme ako novú odporúčanú hodnotu.

Súhrn výsledkov riešenia projektu a naplnenia cieľov projektu v anglickom jazyku (max. 20 riadkov)

Results presented in the papers mentioned above fulfilled the aims of this project, which were declared in the proposal. We consider the study of scalar and spin-orbit effects in the low-lying electronic states of iron, ruthenium and osmium atoms as the most important of them. Our results revealed that even at the level of the scalar relativistic theory the relativistic contribution to the first excitation energy represents almost 30% of the final excitation energy. This feature can be qualitatively understood already at the orbital level by considering stabilization of 4s orbitals and destabilization of 3d orbitals. The results agree excellently with the experiment, especially at the spin-orbit level of theory. We have also achieved much lower error interval than in any previous theoretical work. Moreover, in the case of atoms with the complicated electronic structure (Ru and Os) this treatment can help with identification of experimentally observed J levels. According to the project proposal we studied also nuclear quadrupole moments by ab initio calculations of electric field gradient at nuclei in diatomic molecules in combination with experimental data for quadrupole coupling constant obtained from microwave spectra. Nowadays, this 'molecular' approach is considered to be the best one. The required accuracy of these calculations is very high, therefore the CCSD(T) level of theory has been used. The relativistic effects were accounted for using the infinite-order two-component method in the scalar approximation. The value of the nuclear quadrupole moment of ^{75}As obtained in our work is 311 ± 2 mb and falls in the error interval of the previous

recommended value 314 ± 6 mb. Our result has, however, significantly lower error bars and we can propose it to replace the current recommended 'muonic' value.

Svojím podpisom potvrdzujem, že údaje uvedené v záverečnej karte sú pravdivé a úplné a súhlasím s ich zverejnením.

Zodpovedný riešiteľ

Prof. RNDr. Vladimír Kellö, DrSc.

V Bratislave 27. 04. 2012

Štatutárny zástupca príjemcu

Doc. RNDr. Milan Trizna, PhD.

V Bratislave 27. 04. 2012

.....
podpis zodpovedného riešiteľa

.....
podpis štatutárneho zástupcu príjemcu