

МАТЕМАТИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ В ЯДЕРНЫХ ТЕХНОЛОГИЯХ

УДК 538.9

ЗАРЯДОВЫЕ СВОЙСТВА ТОРИЯ, ИМПЛАНТИРОВАННОГО В ОКСИД КРЕМНИЯ

© 2020 г. У. Н. Курельчук^{a, *}, П. В. Борисюк^a, А. В. Николаев^{a, b}, Е. В. Ткаля^{a, c, d}

^aНациональный исследовательский ядерный университет МИФИ, Каширское шоссе 31, Москва, 115409 Россия

^bИнститут ядерной физики им. Д.В. Скобельцына МГУ им. М.С. Ломоносова,
Ленинские горы 1, Москва, 119991 Россия

^cФизический институт им. П.Н. Лебедева РАН, Ленинский пр. 53, Москва, 119991 Россия

^dИнститут проблем безопасного развития атомной энергетики РАН, Большая Тульская 52, Москва, 115191 Россия

*E-mail: UNKurelchuk@mephi.ru

Поступила в редакцию 02.12.2020 г.

После доработки 06.12.2020 г.

Принята к публикации 14.12.2020 г.

В рамках теории функционала плотности проведено исследование атомов тория, имплантированных в оксид кремния. Изучены зарядовые свойства Th в соединениях $\text{ThO}_2:n\text{SiO}_2$ и $\text{Th}:n\text{SiO}_2$, где Th выступает в качестве примеси внедрения и замещения в кристобалите. Проведена геометрическая оптимизация структур с учетом межэлектронных взаимодействий, исследовано самосогласованное распределение электронной плотности, оценены бейдеровские эффективные заряды.

Ключевые слова: торий-229, ядерный переход, фотоэлектронная спектроскопия, оксид кремния, теория функционала плотности, распределение электронной плотности, эффективный заряд

DOI: 10.1134/S2079562920040090

ВВЕДЕНИЕ

В спектре возбуждения ядра ^{229}Th есть уникальный низколежащий изомерный уровень, энергия которого в настоящее время оценивается в 8.10 ± 0.17 эВ [1]. За последние 30 лет в экспериментальных [2–5] и теоретических [6–28] исследованиях этого ядерного перехода был выявлен ряд необычных свойств, связанных с особенностями взаимодействия ядра с окружающей электронной оболочкой и химическим окружением. Среди них – распад и возбуждение изомера через электронный мост, возбуждение фотонами и электронами в лазерной плазме, конверсия на электронах проводимости в металле, относительно быстрый альфа-распад и многие другие.

Одна из интересных особенностей изомера – зависимость вероятности распада от зарядового состояния электронной оболочки атома тория. В работах [22, 23] было показано, что в ионах тория, имплантированных в диэлектрик с большой шириной запрещенной зоны, распад возбужденного состояния ядра ^{229m}Th происходит с излучением гамма-кванта, а канал внутренней электронной конверсии, доминирующий в обычных условиях, оказывается полностью подавленным в результате энергетического запрета. Указанное свойство ядерного перехода позволяет использовать его для

создания принципиально нового ядерного стандарта времени и частоты с относительной стабильностью на уровне 10^{-19} – 10^{-20} [24–26], а также в качестве источника когерентного гамма-излучения VUV диапазона (гамма-лазер) с длиной волны излучения около 150 нм [27, 28]. Таким образом, ядерный переход из состояния $^{229m}\text{Th}(3/2^+, 8.1 \text{ эВ})$ представляет интерес как для фундаментальной науки, так и для очень важных технологических приложений.

Так как вероятность распада зависит от зарядового состояния электронной оболочки тория, для прикладных задач важно, чтобы экспериментальные схемы позволяли дифференцировать процессы распада изомера по разным каналам, в соответствии с временем распада, с тем, чтобы подавлять или стимулировать один из них. В работе [29] была предложена оригинальная схема для наблюдения радиационного распада изомера с регистрацией излучения VUV диапазона – “ионы Th в матрице широкозонного VUV-прозрачного диэлектрика”. Методом импульсной лазерной имплантации осуществляется внедрение ионов Th в матрицу SiO_2/Si , полученную методом термического окисления. Большая ширина запрещенной зоны подложки (~ 9 эВ) позволяет подавить быстрый распад по каналу внутренней конверсии и увеличить время жизни изомера

^{229m}Th до десятков минут за счет преобладания медленного радиационного канала [30]. В рамках данной концепции ведется подбор оптимальных параметров схемы, исследование энергетических уровней имплантата в SiO_2 . Так как энергия связи $4f_{7/2}$ электронов тория, полученная из линий рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии (РФЭС) [31] оказалась близкой к состояниям тория в ThSiO_4 [32], был сделан вывод о том, что эффективный заряд тория, имплантированного в подложку аморфного SiO_2/Si должен быть близок к +4, как и в ThSiO_4 . В той же работе было проведено моделирование ширины запрещенной зоны в структурах типа $\text{ThO}_2:n\text{SiO}_2$ методом функционала электронной плотности (ФЭП) с использованием псевдопотенциала тория, и показано, что теоретические результаты совпадают с экспериментальными при следующем соотношении на число атомов: $\text{Th}/\text{Si} < 0.4$. Отметим, что в экспериментальной работе [29] концентрация имплантированных атомов Th составляла меньше 1% ($\text{Th}/\text{Si} \sim 0.03$).

Основная цель данной работы – исследование состояния электронной оболочки ионов тория имплантированных в матрицу SiO_2 методом лазерной имплантации. Согласно полученным ранее данным, количество атомов и морфология получаемых при лазерной имплантации образцов соответствует соединению на основе силиката тория ThSiO_4 [31, 32]. Если доля имплантированных ионов тория существенно меньше единицы, то в приближении эффективной среды [33] исследуемый комплекс может быть записан в конфигурации $\text{ThO}_2:n\text{SiO}_2$, где атом тория участвует как примесь замещения. Расчет электронной структуры данной атомарной конфигурации позволит получить информацию об изменении оболочки тория под влиянием окружения SiO_2 , а также о зарядовом состоянии ионов тория после имплантации (окисление кислородом из атмосферы и имплантация в виде ThO_2). Альтернативная модель, когда ион тория при имплантации нейтрализуется за счет взаимодействия с поверхностью и внедряется в матрицу с полностью заполненной валентной оболочкой, может быть описана в приближении нейтрального атома тория, выступающего как примесь внедрения $\text{Th}:n\text{SiO}_2$. Модель торий–примесь внедрения использовалась в работе в качестве репера при сравнительном анализе перераспределения валентных электронов за счет влияния диэлектрической матрицы и использовалась.

Выходным результатом таких расчетов должны стать волновые функции валентных электронов Th, которые будут использованы для изучения каналов возбуждения и распада низлежащего изомерного состояния $3/2^+(8.10 \text{ эВ})$ ядра ^{229}Th в указанной матрице. Проверочными пара-

метрами таких расчетов могут служить, прежде всего, вычисленные эффективные заряды, которые также могут быть получены методом РФЭС по сдвигу остовных уровней [34].

В настоящей работе в рамках теории функционала плотности проведено исследование зарядового состояния тория, имплантированного в SiO_2 , в различных суперячейках. Эти ячейки, состоящие из SiO_2 , использовались для моделирования ближайшего окружения тория при его различных концентрациях и в различных положениях. При этом проводилась полная геометрическая оптимизация (релаксация) всего комплекса с учетом межэлектронных взаимодействий и рассчитывалась энергия его основного состояния. На основе полученной самосогласованной электронной плотности $n(\mathbf{r})$, анализировалось изменение электронной плотности в непосредственной близости от ядра тория и вычислялись эффективные заряды тория методом Бейдера [35, 36].

МЕТОДИКА РАСЧЕТОВ

Эффективным методом численного моделирования и исследования электронных свойств материалов сегодня является теория функционала электронной плотности (ТФЭП). В данной работе исследование влияния атомного окружения на зарядовое состояние тория проводилось в рамках ТФЭП с помощью программного пакета Quantum Espresso [37], использующего концепцию псевдопотенциала для остовных электронов и базис, состоящий из плоских волн. В качестве выходных результатов квантовых расчетов для периодических электронных систем выступает электронная зонная структура и плотность электронных состояний. На их основе получают ширину запрещенной зоны, которую можно сопоставить с экспериментальным РФЭС спектром. Существует особенность некоторых приближений ТФЭП – это, в первую очередь, недооценка ширины запрещенной зоны для широкозонных диэлектриков. Одной из причин расхождения является взаимодействие электронов и дырок, который относится к многоэлектронным эффектам, не учитываемых ТФЭП. Для корректного описания спектров РФЭС, фотоэмиссионных и обратно-фотоэмиссионных распространен подход несамосогласованной коррекции спектра собственных энергий E_i с учетом электронно-дырочных возмущений (приближения GW, G_0W_0) [38]. В данной работе мы не ставили задачу точного определения щели запрещенных состояний. В первую очередь мы анализировали теоретически точную величину – самосогласованную электронную плотность $n(\mathbf{r})$. Для количественных оценок вычислялись изменения зарядовой плотности и эффективные заряды атомов, используя метод Бейдера топологического анализа функции электронной плотности

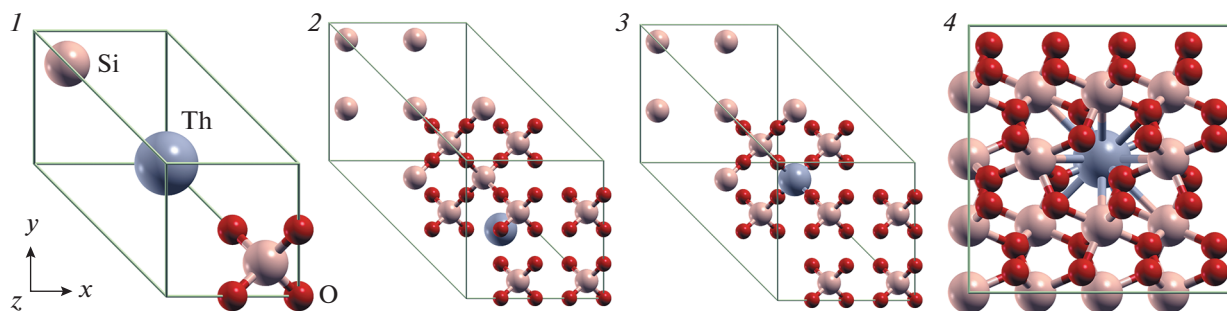


Рис. 1. Четыре модели локального окружения тория, имплантированного в SiO_2 : 1 – Th:2SiO_2 , 2 – Th:16SiO_2 , 3 – Th:15SiO_2 , 4 – $\text{ThO}_2\text{:31SiO}_2$.

$n(\mathbf{r})$. Отметим, что градиентный метод Бейдера позволяет разделить общее пространство на составные части, каждая из которых относится к определенному атому, и, таким образом, соотнести с каждым атомом определенный эффективный заряд.

В работе [29] изучалась имплантация ионов тория в матрицу аморфного оксида кремния, полученного методом термического окисления, на подложке $\text{Si}(001)$. Наблюдаемая плотность аморфного оксида кремния оказалась близкой к плотности кристаллита $\sim 2.3 \text{ г/см}^3$. Кроме того, в структуре аморфа сохранялись структурные тетраэдры SiO_4 , характерные для кристаллита и кварца. Поэтому в качестве приближения при моделировании аморфного состояния оксида кремния обычно используется кристаллит [39].

МОДЕЛИ ЛОКАЛЬНОГО ОКРУЖЕНИЯ И ЭФФЕКТИВНЫЙ ЗАРЯД ТОРИЯ

1. Результаты для нерелаксированных ячеек

Сначала мы изучали электронное состояние тория помещенного в периодические структуры, показанные на рис. 1. При этом геометрическое положение атомов в элементарных ячейках не менялось (то есть, геометрия ячеек не оптимизировалась). Торий рассматривался как примесь внедрения и замещения, с атомными соотношениями Th/Si от 1 до 0.03. Стоит заметить, что результаты тестовых моделей в отсутствии релаксации и с расчетами на минимальном количестве точек – неточны, однако, поскольку недостаточность сеток является систематической для всех, то они могут служить иллюстрацией того, как влияет величина модельной ячейки и характер примеси тория в них на его зарядовое состояние.

Модель с замещением одного атома Si атомом Th может описывать попадание иона Th^{n+} в образец в стадии релаксации в междоузлии, когда налетающие ионы к моменту имплантации уже присоединили кислород из атмосферы, и имеет место конфигурация $\text{ThO}_2:n\text{SiO}_2$. Модель с внедре-

нием $\text{Th}:n\text{SiO}_2$ может служить для сравнительной оценки изменения заряда в случае изначально нейтрального атома в нейтральном окружении.

Минимальная тестовая ячейка Th:2SiO_2 была задана из 6 атомов Si и O, и внедренного в междоузлие Th, так что отношение Th/Si составляет 1/2 (1, рис. 1). Вторая тестовая ячейка Th:16SiO_2 состоит из 48 атомов Si и O, и внедренного Th ($\text{Th}/\text{Si} = 16$) (2, рис. 1). В третьей ячейке $\text{ThO}_2\text{:15SiO}_2$, состоящей из 48 атомов, Th замещает один из атомов Si, примесь замещения локально представляет собой модель оксида тория ($\text{Th}/\text{Si} = 15$) (3, рис. 1). Четвертая ячейка $\text{ThO}_2\text{:31SiO}_2$ задана из 96 атомов с Th замещающим Si в центре и $\text{Th}/\text{Si} = 31$ (4, рис. 1). Ячейки 1 – 3 – ГЦК, 4 – кубическая.

Было рассчитано основное состояние ячеек, изображенных на рис. 1, методом ТФЭП в приближении GGA PBE с псевдопотенциалами в полнорелятивистском приближении. В качестве валентных электронных состояний, были взяты валентные и субвалентные состояния, которые описаны полнорелятивистскими PAW псевдопотенциалами Si ($3s^2 3p^2$), O ($2s^2 2p^4$), Th ($6s^2 7s^2 6p^6 6d^1 5f^1$) содержащие остовные функции, необходимые для восстановления полноэлектронной плотности [40, 41]. Самосогласованный расчет основного состояния (SCF) был проведен в точках (0 0 0) и (0 0.5 0) неприводимой зоны Бриллюэна (НЗБ) для ГЦК ячеек и точках (0 0 0) и (0.5 0.5 0.5) – для кубической. Энергия обрезания базиса плоских волн 1500 эВ.

Изменение зарядовой плотности тория по сравнению со свободным атомарным состоянием определим величиной N_{eff} в единицах электронного заряда e как $N_{\text{eff}} = N_{\text{pseudo}} - N_{\text{bader}}$, где N_{pseudo} – число псевдовалентных электронов свободного тория, заданных псевдопотенциалом (общее число – 12), а N_{bader} – число псевдовалентных электронов тория в окружении, вычисленное методом Бейдера. N_{eff} можно понимать и как ионность или эффективный заряд. Результаты показаны в табл. 1.

Таблица 1. Оценка эффективных зарядов Th в нерелаксированных модельных ячейках

Ячейка	(1) Th:2SiO ₂ Th примесь внедрения, Th/Si = 1/2	(2) Th:16SiO ₂ Th примесь внедрения, Th/Si = 1/16	(3) ThO ₂ :15SiO ₂ Th примесь замещения, Th/Si = 1/15	(4) ThO ₂ :31SiO ₂ Th примесь замещения, Th/Si = 1/31
$N_{\text{eff}} = N_{\text{pseudo}} - N_{\text{bader}}$	1.0	0.8	5.1	4.8

Из данных, показанных в табл. 1, следует, что Th в качестве примеси замещения теряет свою электронную плотность (N_{eff} составляет 4.8 и 5.1), что ожидаемо, поскольку его окружают 4 атома кислорода, за которыми следуют тетраэдры SiO₄ (см. рис. 1). В случае внедрения тория между тетраэдрами SiO₄ плотность его валентных электронов так же уменьшается, что соответствует примерно потере одного электрона. Можно также отметить, что электронная разность на тории уменьшается по мере увеличения размера модельной ячейки.

Стоит обратить внимание, что оценки эффективного заряда Th для тестовых ячеек, очевидно, систематически завышены, поскольку превышают число электронов атома Th за пределами радионовой оболочки — 4. Это вызвано, во-первых тем, что ячейки не были оптимизированы, а во-вторых, недостаточной точностью самосогласованного расчета в одной точке НЗБ и полноэлектронной плотности $n(\mathbf{r})$ на минимальной пространственной сетке. Поскольку сеточная недостаточность является систематической для всех приведенных моделей, то результаты могут служить лишь общей иллюстрацией поведения эффективного заряда. Для детального исследования необходимо оптимизировать координаты и уплотнить сетки.

Согласно РФЭ спектрам, приведенным в [31], энергия связи имплантированного в SiO₂ Th близка к энергии связи в ThSiO₄. В структуре

ThSiO₄, согласно данным базы Materials Project [42], длина связи Th—O составляет 2.4–2.9 Å, а Si—O в структурных тетраэдрах — около 1.6 Å. Рассмотрим более детально следующие модели окружения.

2. Результаты для релаксированной ячейки ThO₂:15[SiO₂]

Рассмотрим ГЦК-ячейку кристобалита, состоящую из 48 атомов, с Th, замещающим один атом Si в центре: такую конфигурацию можно представить как ThO₂:15(SiO₂), с концентрацией оксида тория (ThO₂) 2%, Th/Si = 1/15 (3, рис. 1). Методически, сначала были оптимизированы координаты ячейки без тория методом Бройдена—Флетчера—Гольдфарба—Шанно (BFGS) и ТФЭП [43–46]. Релаксация проводилась до достижения порога сил, действующих на атом 0.01 эВ/Å, энергии 10^{–3} эВ, с самосогласованным решением уравнений Кона—Шема в точке Г (000) с критерием сходимости по энергии 10^{–6} эВ. Затем один атом Si в центре заменен на Th и проведена дополнительная оптимизация (релаксация) решетки и координат атомов ячейки с теми же параметрами плюс с пороговым значением давления в ячейке 0.5 кбар. При релаксации валентные состояния описывались ультрамягкими псевдопотенциалами Si (3s2 3p2), O (2s2 2p4), Th (6s2 7s2 6p6 6d1 5f1), энергия обрезки базиса плоских волн 1500 эВ. Ячейка после релаксации и ее структурные характеристики показаны на рис. 2.

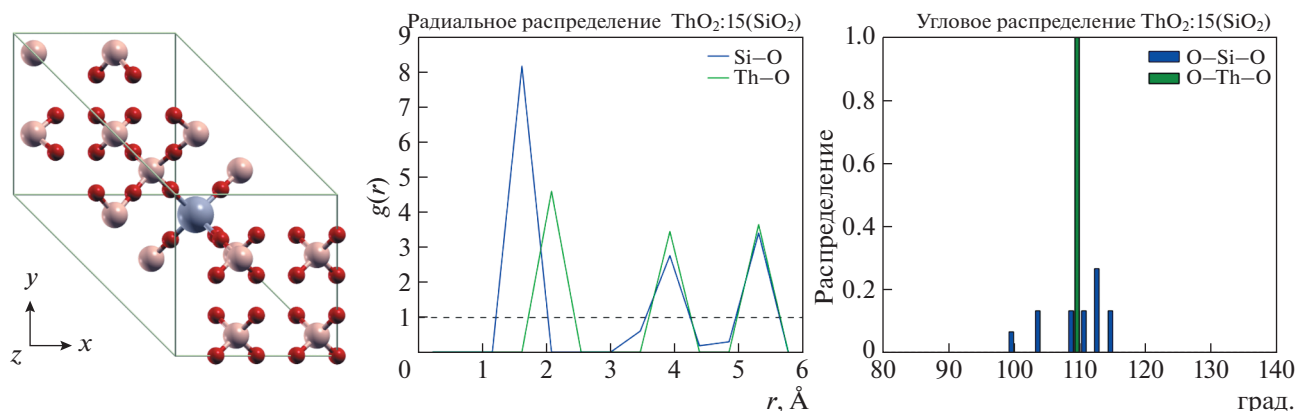


Рис. 2. Модельная ячейка ThO₂:15SiO₂ и ее морфологические характеристики: распределение длин связей Si—O и Th—O, углов связей O—Si—O и O—Th—O.

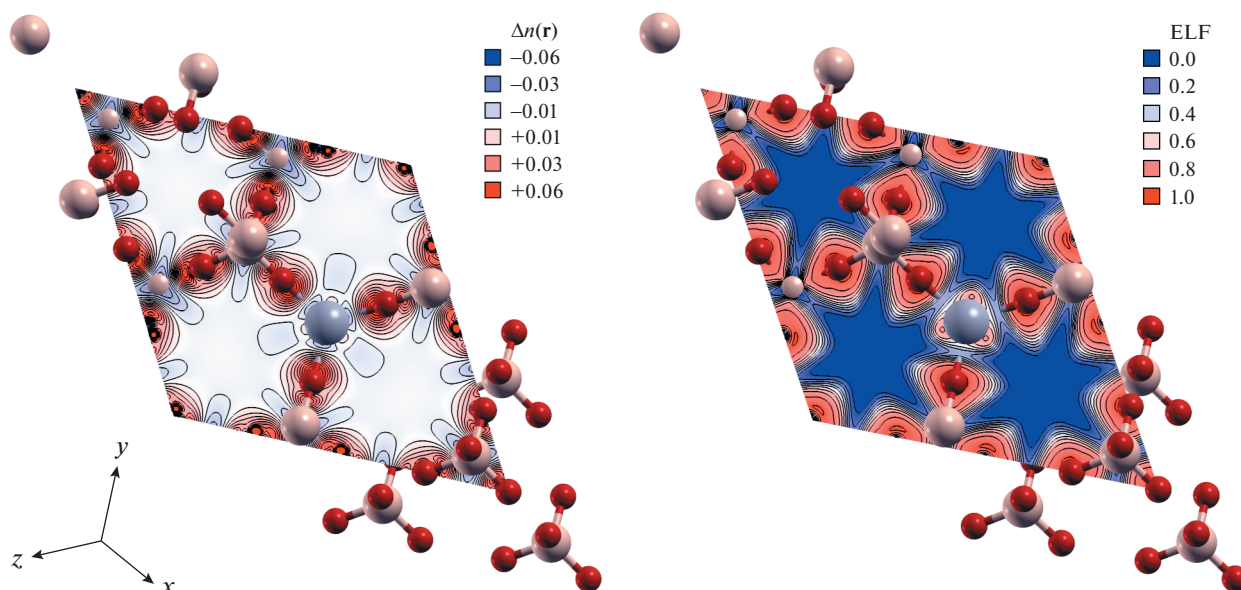


Рис. 3. Карта деформации электронной плотности $\Delta n(\mathbf{r})$ (слева) и функции локализации электронов ELF в ячейке $\text{ThO}_2:15\text{SiO}_2$ (справа). Плоскость сечения $[yz]$ проходит через координаты Th, черным цветом показаны изолинии, соответствующие цветовой сетке.

После релаксации с произвольным параметром решетки плотность изменилась с 2.37 до 2.19 г/см³, длина связи Th—O составила ~ 2.1 Å, Si—O ~ 1.6 Å, при этом в ближайшем окружении атома Th по-прежнему находились 4 атома кислорода. Как видно из рис. 2, координация кристобалита — структурные тетраэдры SiO_4 — при этом практически не изменилась, углы связей O—Si—O 100° – 115° оказались слабо меняющимися за счет молекулярного комплекса O—Th—O.

Для полученной структуры был проведен расчет основного состояния методом самосогласованного поля со скалярно-релятивистскими PBE–PAW псевдопотенциалами, на сетке $240 \times 240 \times 240$ в прямом пространстве и k -сетке $4 \times 4 \times 4$ в обратном (НЗБ). Были получены валентная самосогласованная плотность основного состояния $n(\mathbf{r})$, а также плотность $n_{\text{val}}(\mathbf{r})$ валентных электронов и восстановленная с помощью PAW-псевдопотенциалов полноэлектронная плотность $n_{\text{tot}}(\mathbf{r})$. На рис. 3 изображена карта величины деформации электронной плотности $\Delta n(\mathbf{r})$ — разности зарядовой плотности $n(\mathbf{r})$ ячейки и суперпозиции плотностей изолированных атомов. Для иллюстрации перераспределения электронной плотности также вычислена функция локализации электронов ELF — двухэлектронное условное распределение вероятности, которое описывает вероятность нахождения электрона на расстоянии r от заданного электрона с тем же спином [47, 48].

На рис. 3 областям с большими значениями ELF соответствуют области локализации элек-

тронных пар. Количественное изменение зарядовой плотности Th за счет окружения в ячейке $\text{ThO}_2:15\text{SiO}_2$ по сравнению со свободным атомом рассчитывалось как N_{eff} разность числа электронов в псевдопотенциале и бейдеровского числа псевдовалентных электронов, и составила $-2.8e$.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Изучено зарядовое состояния тория, имплантированного в оксид кремния. Рассчитывались структуры Th в соединениях $\text{ThO}_2:n\text{SiO}_2$ и $\text{Th}:n\text{SiO}_2$, где Th выступает в качестве примеси внедрения и замещения. Проведена геометрическая оптимизация структур с учетом межэлектронных взаимодействий, исследовано самосогласованное распределение электронной плотности, оценены бейдеровские эффективные заряды. Исследовано перераспределение электронной плотности нейтрального тория и окисленного ThO_2 за счет окружения SiO_2 . Оценочные расчеты показывают, что в обоих случаях имеет место утечка электронной плотности тория, слабая для нейтрального имплантата и значительная для окисленного. Для модели $\text{ThO}_2:15\text{SiO}_2$ проведено полное исследование методом ТФЭП: релаксация межатомных сил со свободным параметром решетки, а затем самосогласованный расчет электронной плотности основного состояния $n(\mathbf{r})$ на угаданных сетках в прямом обратном пространстве. Получен бейдеровский эффективный заряд Th (+2.8) и карта

распределения дефекта электронной плотности и функции электронной локализации, характеризующую образование электронных пар в окружении Th.

Следующей ступенью уточнения расчетных моделей является получение энергетического спектра, корректного описывающего спектр эмиссионных рентгеновских фотоэлектронов в широкозонном диэлектрике: например методом несамосогласованной коррекция спектра собственных энергий E_i с учетом электронно-дырочных возмущений. В этом случае могут быть предсказаны и сравнены с экспериментальными и частично-энергетические величины — энергии связи уровней и атомов в молекуле, плотность электронных состояний и зонная структура, щель запрещенных состояний.

БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена при финансовой поддержке гранта Российского научного фонда No. 19-72-30014.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

1. Sikorsky T., Geist J. // Phys. Rev. Lett. 2020. V. 125. P. 142503.
2. Helmer R.G., Reich C.W. // Phys. Rev. C. 1994. V. 49. P. 1845.
3. Beck B.R., Becker J.A., Beiersdorfer P. et al. // Phys. Rev. Lett. 2007. V. 98. P. 142501.
4. Von der Wense L., Seiferle B., Laatiaoui M. et al. // Nature (London). 2016. V. 533. P. 47.
5. Seiferle B., Von der Wense L., Bilous P.V. et al. // Nature (London). 2019. V. 573. P. 243.
6. Strizhov V.F., Tkalya E.V. // Sov. Phys. JETP. 1991. V. 72. P. 387.
7. Tkalya E.V. // Sov. J. Nucl. Phys. 1992. V. 55. P. 1611.
8. Tkalya E.V. // JETP Lett. 1992. V. 55. P. 211.
9. Kalman P., Keszthelyi T. // Phys. Rev. C. 1994. V. 49. P. 324.
10. Tkalya E.V., Varlamov V.O., Lomonosov V.V., Nikulin S.A. // Phys. Scr. 1996. V. 53. P. 296.
11. Porsev S.G., Flambaum V.V., Peik E., Tamm C. // Phys. Rev. Lett. 2010. V. 105. P. 182501.
12. Muller R.A., Volotka A.V., Surzhykov A. // Phys. Rev. A. 2019. V. 99. P. 042517.
13. Borisyuk P.V., Kolachevsky N.N., Taichenachev A.V., Tkalya E.V., Tolstikhina I.Y., Yudin V.I. // Phys. Rev. C. 2019. V. 100. P. 044306.
14. Dzyublik A.Y. // Phys. Rev. C. 2020. V. 102. P. 024604.
15. Dykhne A.M., Tkalya E.V. // JETP Lett. 1998. V. 67. P. 549.
16. Flambaum V.V. // Phys. Rev. Lett. 2006. V. 97. P. 092502.
17. Tkalya E.V. // Laser Phys 2004. V. 14. P. 360.
18. Arutyunyan R.V., Bolshov L.A., Vikharev V.D. et al. // Sov. J. Nucl. Phys. 1991. V. 53. P. 23.
19. Tkalya E.V. // Phys. Rev. A. 2007. V. 75. P. 022509.
20. Tkalya E.V. // Phys. Rev. Lett. 2018. V. 120. P. 122501.
21. Tkalya E.V. // Phys. Rev. Lett. 2020. V. 124. P. 242501.
22. Tkalya E.V. // JETP Lett. 2000. V. 71. P. 311.
23. Tkalya E.V., Zherikhin A.N., Zhudov V.I. // Phys. Rev. C. 2000. V. 61. P. 064308.
24. Peik E., Tamm C. // Europhys. Lett. 2003. V. 61. P. 181.
25. Campbell C.J., Radnaev A.G., Kuzmich A. et al. // Phys. Rev. Lett. 2012. V. 108. P. 120802.
26. Peik E., Okhapkin M. // C. R. Phys. 2015. V. 16. P. 516.
27. Tkalya E.V. // Phys. Rev. Lett. 2011. V. 106. P. 162501.
28. Tkalya E.V., Yatsenko L.P. // Laser Phys. Lett. 2013. V. 10. P. 105808.
29. Borisyuk P.V., Chubunova E.V., Kolachevsky N.N., Vasiliev O.S., Tkalya E.V. // Phys. Status Solidi A. 2020. V. 217. P. 1900551.
30. Beck B.R. et al. // Report LLNL-PROC-415170.
31. Borisyuk P.V., Chubunova E.V., Lebedinskii Y.Y., Tkalya E.V., Vasilyev O.S., Yakovlev V.P., Strugovshchikov E., Mamedov D., Pishishev A., Karazhanov S.Z. // Laser Phys. Lett. 2018. V. 15. P. 056101.
32. Teterin Y.A., Utkin I.O., Melnikov I.V., Lebedev A.M., Teterin A.Y., Ivanov K.E., Nikitin A.S., Vukchevich L. // J. Struct. Chem. 2000. V. 41. P. 1167.
33. Bruggemann A.G. // Ann. Phys. 1935. V. 24. P. 636.
34. Бруэгс Д., Сух М.П. // Анализ поверхности методами Оже- и рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии. 1987. Москва: Мир.
35. Sanville E., Kenny S.D., Smith R., Henkelman G. // J. Comput. Chem. 2007. V. 28. P. 5.
36. Tang W., Sanville E., Henkelman G. // J. Phys.: Comput. Mater. 2009. V. 21. P. 084204.
37. Giannozzi P. et al. // J. Phys.: Condens. Matter. 2017. V. 29. P. 465901.
38. Aulbur W.G., Jönsson L., Wilkins J.W. // Solid State Phys. 2000. V. 54. P. 1.
39. Martin-Samos L., Bussi G., Ruini A., Molinari E., Caldas M. // J. Phys. Status Solidi B. 2011. V. 248. P. 1061.
40. Prandini G., Mazzaro A., Castelli I.E., Mounet N., Marzari N. // npj. Comput. Mater. 2018. V. 4. P. 72.
41. Lejaeghere K. et al. // Science (Washington, DC, USA). 2016. V. 351 (6280). P. 1415.
42. Materials Data on ThSiO₄ <https://materialsproject.org/docs/calculations> <https://doi.org/10.17188/1295645>
43. Broyden C.G. // IMA J. Appl. Math. 1970. V. 6(1). P. 76.
44. Fletcher R. // Comput. J. 1970. V. 13. P. 317.
45. Goldfarb D. // Math. Comput. 1970. V. 24. P. 23.
46. Shanno D.F. // Math. Comput. 1970. V. 24. P. 647.
47. Becke A.D., Edgecombe K.E. // J. Chem. Phys. 1990. V. 92. P. 5397.
48. Fuentealba P., Chamorro E., Santos J.C. // Theor. Comput. Chem. 2007. V. 19. P. 57.

Charge Properties of Thorium Implanted in Silicon Oxide

U. N. Kurelchuk^{1, *}, P. V. Borisjuk¹, A. V. Nikolaev^{1, 2}, and E. V. Tkalya^{1, 3, 4}

¹ National Research Nuclear University MEPhI (Moscow Engineering Physics Institute), Moscow, 115409 Russia

² Skobeltsyn Institute of Nuclear Physics, Lomonosov Moscow State University (SINP MSU), Moscow, 119991 Russia

³ Lebedev Physical Institute of the Russian Academy of Sciences, Moscow, 119991 Russia

⁴ Nuclear Safety Institute of the Russian Academy of Sciences (IBRAE RAN), Moscow, 115191 Russia

*e-mail: UNKurelchuk@mephi.ru

Received December 2, 2020; revised December 6, 2020; accepted December 14, 2020

Abstract—A study of thorium atoms implanted in silicon oxide was carried out using the density functional theory method. The charge properties of Th in the $\text{ThO}_2:n\text{SiO}_2$ and $\text{Th}:n\text{SiO}_2$ compounds, where Th acts as an interstitial and substitutional impurity in cristobalite, have been studied. Geometric optimization of structures is carried out with allowance for electron-electron interactions, self-consistent distribution of electron density is investigated, and Bader effective charges are estimated.

Keywords: thorium-229, nuclear transition, silicon oxide, electron spectroscopy, density functional theory, charge density, Bader charges