

Релятивистская теория функционала плотности и моделирование химических свойств сверхтяжелых элементов

А.В.Зайцевский¹⁾, А.В.Титов²⁾

¹⁾*ИВЭИТ, РИЦ «Курчатовский институт» и ООО «Кинтех Лаб», Москва, e-mail: zaitsevskii@kintech.ru*

²⁾*Петербургский институт ядерной физики РАН, Гатчина, e-mail: titov@pnpi.spb.ru*

Анализируются возможности, основные достоинства и недостатки современных методов релятивистской теории функционала плотности (ТФП) как инструментов моделирования электронной структуры и свойств соединений сверхтяжелых элементов (СТЭ) из «острова стабильности». Специфика этих систем заключается в огромных амплитудах релятивистских эффектов, не имеющих аналогов в химии, и сложности картины их интерференции с кулоновскими корреляциями электронов. Особую роль, в том числе и для состояний с замкнутыми электронными оболочками, играют зависящие от спина релятивистские эффекты (в первую очередь спин-орбитальное взаимодействие). Это обстоятельство определяет малопригодность нерелятивистских или скалярных релятивистских моделей даже как средства построения стартовых приближений. Специфическая проблема связана с тем, что обычное для приложений ТФП в химии относительно легких элементов определение приближенных функционалов энергии через спиновые плотности в значительной степени теряет смысл, так как в этом случае результаты расчетов оказываются зависящими от выбора оси квантования проекции спина.

Представлен сравнительный анализ технологий моделирования, предполагающих явное описание всех электронов системы и использующих релятивистские псевдопотенциалы для имитации исключенных из расчета внутренних остовных электронных оболочек тяжелых атомов. Отмечено, что модели псевдопотенциалов, предполагающие явное описание части остовных оболочек (псевдопотенциалы «малых» остовов) и построенных на основании результатов прецизионных релятивистских расчетов свободных атомов с учетом конечности размеров атомных ядер, в принципе обеспечивает более чем достаточную для большинства приложений точность прогнозирования химических свойств СТЭ. Кроме того, в рамках подходов этой группы корректно использование нерелятивистских приближений для обменно-корреляционного функционала. Однако, как и во всех вариантах ТФП, надежность прогнозирования ограничивается сильной зависимостью результатов расчета от выбора конкретной модели функционала, что осложняется невозможностью подбора модели на основе экспериментальных данных. Обсуждается возможность оптимизации схемы ТФП с использованием результатов скалярно-релятивистских расчетов неэмпирическими методами теории многочастичных систем. Показана перспективность прямого комбинирования подобных методов и подходов, основанных на ТФП.

В качестве иллюстрации приводятся результаты моделирования взаимодействия атомов элементов 112 и 114 с атомами, кластерами и поверхностью кристалла золота; эти результаты сопоставляются с данными термохроматографии на золотой поверхности – пока единственного надежного метода экспериментальной идентификации СТЭ из «острова стабильности» по их химическим свойствам.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проекты 09-03-00655-а и 09-03-12255-офи-м) и программы «СКИФ-ГРИД» (договор # 2009-СГ-05).