

ОТЗЫВ

Официального оппонента на диссертационную работу

Сеитова Дастана

«Молекулярно-динамическое моделирование разупорядочения и массопереноса в нанокристаллах оксидного ядерного топлива»,

представленную на соискание учёной степени
кандидата физико-математических наук по специальности

1.3.8. - Физика конденсированного состояния.

Диссертационная работа направлена на исследование явлений разупорядочения и массопереноса в оксидном ядерном топливе методами молекулярно-динамического моделирования. Диоксидное топливо используется в реакторах на тепловых нейтронах и на быстрых нейтронах с натриевым теплоносителем, на которых планируется организация замкнутого ядерного топливного ядерного цикла, включающая переработку топлива после эксплуатации. Исследования поведения компонент топлива, включая получение характеристик их диффузионной подвижности, являются важными, что определяет **актуальность работы**.

Объектом исследований моделирования были используемое в настоящее время диоксидное уран-плутониевое топливо $(U,Pt)O_2$ и перспективное топливо ThO_2 , для каждого из которых подбирался свой потенциал взаимодействия, и проводились молекулярно-динамические расчеты.

Новизна заключается в:

- применении высокопроизводительного молекулярно-динамического моделирования, распараллеленного на графических процессорах архитектуры CUDA, в сочетании граничными условиями свободной поверхности, принятыми для изолированных монокристаллов;
- расчете коэффициентов диффузии урана и плутония в объёме смешанных оксидов $(U,Pu)O_2$, для температурного диапазона от 2650 К до плавления при 3100 К, а также тория в объёме кристалла ThO_2 , для температурного диапазона от 3100 К до плавления при 3600 К;
- описан новый механизм диффузии тория, заключающийся в сложном коллективном движении катионов навстречу вакансии, в котором задействованы их временные смещения в ближайшие к вакансии междоузельные позиции;

- предложены новые потенциалы взаимодействия, позволившие моделировать поведение радиогенных в кристаллах $(U,Pu)O_2$ при высоких энергиях частиц в условиях взаимодействия баллистических каскадов столкновений с газовыми пузырьками;

- с использованием новых потенциалов, рассчитаны коэффициенты междоузельной диффузии гелия и криптона в UO_2 . Показано, что промежуточными позициями атомов криптона при диффузионных прыжках были анионные вакансии, в отличие от прямой междоузельной диффузии гелия.

- проведено молекулярно-динамическое моделирование воздействия баллистических каскадов столкновений, вызываемых α -распадом плутония, на ксеноновые, гелиевые и смешанные ксенон-гелиевые пузырьки в PuO_2 . смешанные ксенон-гелиевые пузырьки исследованы впервые.

- впервые проведено моделирование взаимодействия приповерхностных баллистических каскадов с поверхностью нанокристаллов PuO_2 , имевших равновесную октаэдрическую форму.

Теоретическая и практическая значимость

- Рассчитанные значения коэффициентов диффузии урана, плутония, тория и радиогенных газов могут быть использованы для описания явлений переноса в оксидном ядерном топливе при высоких температурах, при проведении и планировании работ по его переработке .

- Значения коэффициентов диффузии гелия и криптона, новые данные о разрушении ксеноновых, гелиевых и смешанных пузырьков баллистическими каскадами столкновений могут быть использованы для описания явлений, связанных с накоплением и переносом радиогенных газов в оксидном топливе.

- Полученные данные о взаимодействии баллистических каскадов столкновений с поверхностью нанокристаллов PuO_2 могут быть использованы при построении моделей рекристаллизации и преобразования границ зерна в ядерном топливе под воздействием нейтронного облучения.

Диссертационная работа состоит из введения, пяти глав, заключения, библиографии из 149 наименований. Работа изложена на 127 страницах текста, содержит 42 рисунка и 14 таблиц.

Во Введении обсуждаются современное состояние проблемы и актуальность настоящего исследования, сформулированы его цель и задачи, защищаемые положения. Показаны научная новизна и практическая значимость работы.

В главе 1 рассмотрены методика молекулярно-динамического моделирования а также потенциалы взаимодействия частиц в модельных системах. Описаны вычислительные эксперименты, приведены их результаты. С целью моделирования α -распада плутония, баллистические каскады инициировали созданием иона отдачи ^{235}U с кинетической энергией 87.7 кэВ. Эволюцию каскадов отслеживали в течение 15.6 пс. В работе предложены варианты новых потенциалов, описывающие взаимодействие гелия и криптона с ионами в кристаллах $(\text{U,Pu})\text{O}_2$, с различающихся глубиной минимума энергии и соответствующему ему межатомному расстоянию.

В главе 2 изучена диффузия собственных ионов урана, плутония, тория и кислорода в нанокристаллах $(\text{U,Pu})\text{O}_2$, ThO_2 , UO_{2-x} . Показано определяющее влияние поверхности на перенос катионов в объеме кристалла, осуществляющийся посредством диффузии катионных вакансий с поверхности через объем. Рассмотрена диффузия атомов топлива по вакансионному механизму, при этом полагается, что вакансии поступают с поверхности. Рассмотрен, также, механизм диффузии атомов топлива по межузельным позициям коррелированный с движением вакансии.

В главе 3 рассмотрена диффузия одиночных атомов гелия и криптона в объеме нанокристаллов UO_2 . Для гелия, зарегистрирован прямой междузельный механизм диффузии. Найденные значения энергий активации диффузии сопоставлены с результатами расчетов, проведенных другими авторами и находятся с ними в соответствии. Аналогичные расчеты проведены для криптона.

В главе 4 методом молекулярной динамики исследовано взаимодействие баллистических каскадов столкновений, инициированных альфа-распадами в кристаллах PuO_2 , с ксеноновыми, гелиевыми и смешанными Хе-Не пузырьками линейных размеров 1.2 – 2.2 нм. Пузырьки изученными каскадами не разрушались, однако отдельные быстрые атомы гелия и ксенона могли отрываться от пузырька, получая высокие энергии (до 90 % энергии первичного иона отдачи, составлявшей 87.7 кэВ). Обнаружена диффузионная миграция атомов гелия в поврежденную каскадом столкновений область кристаллической решетки. Атомы ксенона за время моделирования не диффундировали в разупорядоченную область. Тем не менее, ксеноновые пузырьки постепенно изменяли свою форму.

В главе 5 рассмотрено молекулярно-динамическое моделирование распыления вещества с поверхности нанокристаллов PuO_2

под воздействием баллистических каскадов столкновений, вызываемых альфа-распадом плутония. Зарегистрирован выход как одиночных ионов, так и кластеров, содержащих до нескольких сотен частиц. Полученные распределения кластеров по размерам характеризуются сравнительно высокими вероятностями образования больших кластеров. Суммарная кинетическая энергия высвобождаемого материала достигала десятков процентов от полной энергии каскада столкновений. Отдельные ионы, как плутония, так и кислорода, могли приобретать кинетические энергии до нескольких тысяч электрон-вольт. Электрический заряд кластеров в большинстве случаев был близок к нулю, изредка наблюдались кластеры со значительными отрицательными зарядами.

В Заключении подведены итоги проделанной работы и приведены рекомендации по дальнейшему развитию темы.

Результаты, полученные в ходе выполнения работы были доложены на 7 Российских и международных семинарах и конференциях. Полученные материалы опубликованы в 11 научных изданиях, из них 10 публикаций в журналах ВАК РФ. В совокупности это свидетельствует о большом объеме квалифицированно проведенных соискателем научных исследований. В то же время у работе есть ряд замечаний:

- Неудачно сформулирована «Цель исследований». Получение новых данных не является целью – это процесс, средство достижения цели. Целью может быть, например, «Описание явлений переноса в...» или «Разработка модели радиационного разупорядочения в облученных кристаллах...», или «Усовершенствование модели ... с тем же или другим продолжением».

- Аналогичное замечание к постановке задач. «Постановка вычислительных экспериментов» это не задача, а средство решения задачи. Задачей может быть «Уточнение механизмов....», «Получение количественных характеристик...» и пр.

- Нелогичная терминология, например «создание достоверных моделей». Любая модель содержит определенные приближения и допущения. Использование модели для прогнозирования каких-либо изменений может давать значения совпадающие с результатами эксперимента с точностью, например, 10 % или 50 % или «порядка величины». А что дает «достоверная модель»?

- Формулировки, в разделе «Новизна» говорится о коэффициентах диффузии U и Pt, но о диффузии катионов Th, а U и Pt разве не катионы?

- В разделе Теоретическая и практическая значимость. Тезис «Рассчитанные значения коэффициентов диффузии урана, плутония и тория могут быть использованы для описания явлений переноса в оксидном

ядерном топливе...» следует уточнить «...после эксплуатации». Поскольку при эксплуатации в процессе нейтронного облучения значения этих характеристик изменятся.

-В Положениях, выносимых на защиту. Тезис: «Вакансионный механизм реализуется движением катионной вакансии с поверхности через объём». Почему не учитываются вакансии, образующиеся в значительных количествах в баллистических каскадах? Надо бы сделать расчет количества поступающих с поверхности термических вакансий с интенсивностью образования каскадных вакансий. Без этого тезис выглядит необоснованным.

-Еще один тезис: «Междоузельная диффузия криптона с предложенными потенциалами характеризовалась энергией активации, равной 4.8 эВ. Диффузионные прыжки происходили через анионную вакансию за время порядка 2 пс.». Среднее время прыжка в вакансию существенно зависит от температуры. Для какой температуры приведена величина 2 пс? Кроме того, согласно уравнениям статистической термодинамики (например, Л.Жирифалько, Статистическая термодинамика твердого тела, М.,1975) частота перескоков в соседнее состояние отделенного энергетическим барьером E (энергия активации) составляет $n = \nu \cdot \exp(-E/kT)$, (где $\nu = 10^{13} \text{ с}^{-1}$ - частота Дебая), что при 1600 К и 3025 К составит соответственно. $n(1600\text{K}) = 0,013 \text{ с}^{-1}$; $n(3025\text{K}) = 1,3 \cdot 10^5 \text{ с}^{-1}$. Это означает, что среднее время до перескока составляет $t(1600\text{K}) = 48 \text{ с}$; $t(3025\text{K}) = 7,5 \cdot 10^{-6} \text{ с}$. В чем причина таких различий?

-В разделе Достоверность, тезис: «Достоверность обеспечивается использованием эмпирических потенциалов». Эмпирических потенциалов взаимодействия не бывает. Это спекулятивный термин. Никто не измерял сил, действующих на атом в решетке, да еще и сильно искаженной. Можно строить потенциалы, используя классические законы электродинамики или же законы квантовой физики. При этом, в лучшем случае, рассчитывают следствия, которые проявляются в макроскопических изменениях, поддающихся экспериментальной проверке, при которой могут быть большие расхождения, а могут быть небольшие. В последнем случае модель считается удовлетворительно соответствующей конкретным экспериментам. Но, если рассчитать другие следствия, то они вполне могут значительно расходиться с экспериментальными результатами

Сделанные замечания относятся либо к терминологическим, либо имеют уточняющий характер и не снижают ценности полученных результатов. Диссертационная работа Сеитова Дастана

«Молекулярно-динамическое моделирование разупорядочения и массопереноса в нанокристаллах оксидного ядерного топлива» является завершённым научным трудом, который полностью удовлетворяет требованиям п. 9 «Положения о присуждении ученых степеней в УрФУ», предъявляемым к кандидатским диссертациям, а её автор Сеитов Дастан заслуживает присуждения ученой степени кандидат физико-математических наук по специальности 1.3.8. – Физика конденсированного состояния.

Главный научный сотрудник

АО «Институт реакторных материалов

Доктор техн. наук по спец. 05.16.01

Кандидат физ.-мат. наук по спец. 01.04.07

Тел. +7 34377 35093, +79826073578

E-mail: kozlov_alv@rosatom.ru,

sashok-k48@mail.ru

624250, г. Заречный Свердловской обл.,

а/я 29

Подпись Козлова А. В. заверяю

Заместитель директора по НИИД

Кандидат техн. наук по спец.



А.В. Варивцев

А.В. Козлов
19.05.2023

Козлов Александр

Владимирович