

ОТЗЫВ

официального оппонента на диссертационную работу
Сеитова Дастана

«Молекулярно-динамическое моделирование разупорядочения и массопереноса в нанокристаллах оксидного ядерного топлива»,
представленную на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук по специальности

1.3.8. – Физика конденсированного состояния

На сегодняшний день, оксидное ядерное топливо является основным горючим энергетических ядерных реакторов, включая реакторы на быстрых нейтронах. Для прогнозирования свойств топлива применяют механистические коды с эффективными параметрами, определяемыми из экспериментальных данных. Интерпретация таких данных требует изучения процессов разупорядочения и переноса в кристаллах топлива на атомарном уровне, чему и посвящена диссертационная работа Дастана Сеитова «Молекулярно-динамическое моделирование разупорядочения и массопереноса в нанокристаллах оксидного ядерного топлива». Вычислительное моделирование кристаллов UO_2 , PuO_2 и ThO_2 было реализовано ранее в очень многих работах. Тем не менее, такие исследования остаются востребованными, поскольку быстрый рост производительности вычислительных систем позволяет получать новые данные. Работа Д. Сеитова **актуальна**, поскольку её основные результаты получены именно благодаря исследованию сравнительно больших систем при длительных временах эволюции, ставших доступными для моделирования лишь в настоящее время.

Диссертационная работа состоит из пяти глав, введения и заключения. Во **введении** обоснована актуальность исследования, сформулированы задачи работы и положения, выносимые на защиту, обсуждаются новизна и значимость. В **первой главе** обсуждаются общие принципы моделирования ионных кристаллов методом классической молекулярной динамики, а также особенности рассматриваемой работы. В качестве основного объекта исследования описаны модельные нанокристаллы UO_2 , PuO_2 и ThO_2 , имевшие форму октаэдров со свободной поверхностью, граничившей с вакуумом. Предложены парные потенциалы взаимодействия собственных ионов урана, плутония, тория и кислорода, модифицированные для моделирования баллистических столкновительных каскадов с энергиями до 100 кэВ. Построены новые потенциалы взаимодействия гелия с ионами урана, плутония и кислорода, предполагающие сильное (химическое) связывание гелия с многозарядными катионами. Обоснован выбор графических процессоров архитектуры CUDA в качестве инструмента для высокопроизводительных параллельных расчетов.

Вторая глава посвящена моделированию самодиффузии в объёме нанокристаллов $(U, Pu)O_2$, ThO_2 и UO_{2-x} , имевших свободную поверхность. Показано, что поверхность оказывала определяющее влияние на диффузию катионов урана, плутония и тория, будучи источником катионных вакансий. Диффузия катионов урана и плутония изучена при более низких температурах, чем в предыдущих работах. В качестве основного механизма диффузии описано прямое перемещение катионов навстречу вакансии по цепочке. Диффузия катионов тория в нанокристаллах ThO_2 методом молекулярной динамики изучена впервые. Зарегистрирован сложный механизм вакансионной диффузии катионов тория, включавший их совместное движение с выходом катионов в междоузельные позиции, окружавшие вакансию. При моделировании диффузии кислорода в нанокристаллах UO_{2-x} , независимо от выбора потенциалов взаимодействия, коэффициента диффузии выходил на «плато» в диапазоне значений x от 0.05 до 0.3. Этот эффект подтвержден существующими экспериментальными данными.

В **третьей главе** рассмотрено моделирование диффузии одиночных атомов гелия и криптона в UO_2 с применением новых потенциалов взаимодействия, описывавших предполагаемое сильное связывание пар гелий – уран и криптон – кислород. Как следствие, расчетные коэффициенты диффузии гелия и криптона понизились по сравнению с предыдущими работами, что приблизило результаты моделирования к экспериментальным данным. В случае гелия получен прямой междоузельный механизм диффузии, для криптона – диффузия по междоузельным позициям через анионные вакансии.

В **четвёртой главе** представлено моделирование взаимодействия баллистических столкновительных каскадов с гелиевыми, ксеноновыми и смешанными гелий-ксеноновыми пузырьками в кристалле PuO_2 . Сопоставлены два набора потенциалов взаимодействия атома ксенона с окружением, показано существенное влияние выбора потенциалов на количество энергии, передаваемой от каскада пузырьку. В качестве механизмов перерастворения газов зарегистрированы выбивание отдельных атомов гелия и ксенона из пузырька, а также диффузия гелия в разупорядоченную каскадом кристаллическую решетку. Обнаружен эффект изменения формы ксенонового пузырька в разупорядоченной области. Качественно, результаты совпадают с полученными ранее для диоксида урана.

В **пятой главе** исследовано разрушение поверхности кристалла PuO_2 баллистическими каскадами с энергией 87.7 кэВ. Рассмотрены кристаллиты кубической и октаэдрической форм, ограниченные плоскостями (100) и (111). Зарегистрировано распыление вещества с поверхности в форме одиночных ионов, молекул, а также кластеров, содержавших до 1000 частиц. Получены распределения

кластеров по размерам. Показано, что распыление вещества с поверхности могли вызывать каскады, возникавшие на глубине до 10 нм под поверхностью кристалла.

В **заключении** приведены основные результаты работы, предложены рекомендации по дальнейшей разработке темы.

Научная новизна диссертационной работы Дастана Сеитова состоит в исследовании механизмов термического и радиационного разупорядочения, процессов переноса собственных ионов и радиогенных газов в изолированных нанокристаллах $(U,Pu)O_2$ и ThO_2 , имевших свободную поверхность, при увеличенных, по сравнению с предыдущими работами, временах моделирования либо размерах модельных систем. В частности, впервые рассчитаны коэффициенты вакансионной диффузии собственных катионов кристаллов $(U,Pu)O_2$ у нижней границы суперионного перехода (2650 К); рассчитан коэффициент диффузии тория в ThO_2 в диапазоне температур от плавления до нижней границы суперионного состояния, предложен новый механизм вакансионной диффузии катионов тория с выходом в междоузельные позиции; впервые исследовано влияние предполагаемого сильного связывания гелия и криптона в кристалле UO_2 на диффузию этих радиогенных газов; получены новые данные о взаимодействии баллистических столкновительных каскадов с пузырьками гелия и ксенона в кристаллах PuO_2 , имевших свободную поверхность, а также о разрушении поверхности этого кристалла каскадами столкновений.

Достоверность и обоснованность утверждений обеспечены детальным анализом молекулярно-динамической модели, использованием эмпирических потенциалов взаимодействия, верифицированных в предыдущих работах и в настоящем исследовании, близким совпадением результатов моделирования с экспериментальными данными и расчетами других авторов.

Диссертационная работа Дастана Сеитова имеет **теоретическую значимость**, поскольку демонстрирует механизмы влияния поверхности на разупорядочение, перенос собственных ионов и распространение баллистических каскадов в кристаллах. **Практическая значимость** работы связана с возможностью использования данных о коэффициентах самодиффузии, диффузии гелия и криптона, перерастворении газовых включений в кристаллах UO_2 , PuO_2 и ThO_2 для прогнозирования свойств облученного ядерного топлива, совершенствования топливных кодов.

Исследование **апробировано** на всероссийских и международных конференциях, результаты опубликованы в 10 статьях, проиндексированных международными системами научного цитирования «Сеть науки» (Web of Science) и Скопус (Scopus).

Диссертационная работа и автореферат оформлены грамотно, имеют логичную структуру.

Вопросы и замечания

1. Результаты расчетов диоксида урана из первых принципов свидетельствуют о том, что точечные дефекты в кристаллической решетке могут быть заряженными. Причем заряды дефектов могут зависеть от особенностей микроструктуры кристалла. В какой степени используемы в работе эмпирические модели межатомного взаимодействия передают подобные эффекты? Насколько корректным можно считать с этой точки зрения применение парных потенциалов для диоксида и иных аналогичных оксидов, рассмотренных в работе?

2. Существует ли возможность сопоставления результатов моделирования баллистических каскадов с экспериментальными данными? Можно ли считать соответствующие результаты диссертационной работы достоверными?

Сделанные замечания не снижают ценности основных результатов работы. Диссертационная работа Сеитова Дастана «Молекулярно-динамическое моделирование разупорядочения и массопереноса в нанокристаллах оксидного ядерного топлива» является завершенным 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.

Официальный оппонент,

Стегайлов Владимир Владимирович

доктор физико-математических наук по специальности 1.3.8. («Физика конденсированного состояния»), доцент

заведующий отделом 14 многомасштабного суперкомпьютерного моделирования,

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Объединенный институт высоких температур Российской академии наук (ОИВТ РАН),

125412, г. Москва, ул. Ижорская, д.13, стр.2,

тел: +7 (495) 485-85-45

e-mail: stegailov.vv@mipt.ru

Стегайлов Владимир Владимирович

Подпись Стегайлова В.В. заверяю

Заместитель директора ОИВТ РАН, д.ф.м.н.



22 мая 2023 г.

А.В.Гавриков