

# SKĀBEKĻA DIFŪZIJAS PROCESI UZ UN (001) VIRSMAS

D. Bočarovs<sup>\*,1,2,3</sup>, J. Žukovskis<sup>2</sup>,  
D. Grjaznovs<sup>2</sup>, J. Kotomins<sup>2</sup>

[\\*bocharov@latnet.lv](mailto:bocharov@latnet.lv)

<sup>1</sup>*Latvijas Universitātes Datorikas Fakultāte*

<sup>2</sup>*Latvijas Universitātes Cietvielu Fizikas Institūts*

<sup>3</sup>*Latvijas Universitātes fizikas un Matemātikas Fakultāte*

2011



\*Eiropas Sociālā fonda projekts

“Datorzinātnes pielietojumi un tās saiknes ar kvantu fiziku”

Nr.2009/0216/1DP/1.1.1.2.0/09/APIA/VIAA/044

# Motivācija

Urāna mononitrīds ir daudzsološs materiāls jaunajiem IV paaudzes kodolu reaktoriem.

## Nitrīdiem piemīt

- augstāka termiskā vadītspēja
- augstāks metāla blīvums nekā oksīdiem
- liela kušanas temperatūra (~2850 C°)
- laba šķīdība slāpekļskābē (degvielas pārstrādāšanas gadījumā)

# Problēma un pētījuma mērķi

UN reaktoriem sintezētajos paraugos ir ievērojams daudzums skābekļa (O) piemaisījumu, kuri būtiski ietekmē degvielas īpašības.

Tāpēc ir nepieciešams izprast

- O adsorbcijas procesu uz UN virsmas,
- defektu veidošanos uz UN virsmas,
- skābekļa mijiedarbību ar izveidojamām vakancēm
- turpmāko urāna nitrīda oksidēšanos, ieskaitot skābekļa difūziju uz kristālu

# Kas ir izdarīts, kur mēs esam?

Mēs pakāpeniski ieguvām informāciju par procesiem UN

[1] Bezdefektu UN (001) virsma

## A First-Principles DFT Study of UN Bulk and (001) Surface: Comparative LCAO and PW Calculations

R. A. EVARESTOV,<sup>1</sup> A. V. BANDURA,<sup>1</sup> M. V. LOSEV,<sup>1</sup> E. A. KOTOMIN,<sup>2</sup> Yu. F. ZHUKOVSKII,<sup>2</sup> D. BOCHAROV<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Department of Quantum Chemistry, St. Petersburg State University, 198504 St. Peterhof, University Prospect 26, Russia

<sup>2</sup>Institute for Solid State Physics, University of Latvia, 8 Kengaraga Str., Riga, LV-1063, Latvia

Received 13 January 2008; Revised 10 April 2008; Accepted 11 April 2008

DOI 10.1002/jcc.21023

Published online 21 May 2008 in Wiley InterScience (www.interscience.wiley.com).

[2] Atomāra skābekļa adsorbpcija uz UN (001)

Surface Science 603 (2009) 50–53



Contents lists available at ScienceDirect

Surface Science

journal homepage: [www.elsevier.com/locate/susc](http://www.elsevier.com/locate/susc)



First principles calculations of oxygen adsorption on the UN(001) surface

Yu.F. Zhukovskii<sup>a</sup>, D. Bocharov<sup>a,\*</sup>, E.A. Kotomin<sup>b</sup>, R.A. Evarestov<sup>c</sup>, A.V. Bandura<sup>c</sup>

<sup>a</sup>Institute for Solid State Physics, Kengaraga 8, LV-1063 Riga, Latvia

<sup>b</sup>European Commission, Joint Research Centre, Institute for Transuranium Elements, Hermann von Helmholtz Pl. 1, D-76344 Eggenstein-Leopoldshafen, Germany

<sup>c</sup>Department of Quantum Chemistry, St. Petersburg State University, Universitetskij Prosp. 26, 198504 St. Peterhof, Russia

# Kas ir izdarīts, kur mēs esam?

[3] Molekulāra skābekļa adsorbcija UN (001)


[4] Defekti uz UN (001) virsmas

[5] Skābekļa iekļaušana vakancēs uz UN (001)

(“statiskais” variants – skābeklis no aprēķina sakumā atrodas vakancē)


Journal of Nuclear Materials 393 (2009) 504–507

Contents lists available at ScienceDirect

 **ELSEVIER**

Journal of Nuclear Materials

journal homepage: [www.elsevier.com/locate/jnucmat](http://www.elsevier.com/locate/jnucmat)



---


Chemisorption of a molecular oxygen on the UN(0 0 1) surface: *Ab initio* calculations

Yu.F. Zhukovskii, D. Bocharov <sup>a</sup>, E.A. Kotomin

Institute of Solid State Physics, University of Latvia, 8 Kengaraga Street, LV-1063 Riga, Latvia


Surface Science 605 (2011) 396–400

Contents lists available at ScienceDirect

 **ELSEVIER**

Surface Science

journal homepage: [www.elsevier.com/locate/susc](http://www.elsevier.com/locate/susc)




---

DFT calculations of point defects on UN(001) surface

D. Bocharov <sup>a,b,c,\*</sup>, D. Gryaznov <sup>a</sup>, Yu.F. Zhukovskii <sup>a</sup>, E.A. Kotomin <sup>a</sup>


<sup>a</sup> Institute for Solid State Physics, Kengaraga 8, LV-1063 Riga, Latvia  
<sup>b</sup> Faculty of Physics and Mathematics, University of Latvia, Zellu 8, LV-1002 Riga, Latvia  
<sup>c</sup> Faculty of Computing, University of Latvia, Raina blvd 19, LV-1586 Riga, Latvia

Contents lists available at ScienceDirect

 **ELSEVIER**

Journal of Nuclear Materials

journal homepage: [www.elsevier.com/locate/jnucmat](http://www.elsevier.com/locate/jnucmat)



---

*Ab initio* modeling of oxygen impurity atom incorporation into uranium mononitride surface and sub-surface vacancies

D. Bocharov <sup>a,b,c,\*</sup>, D. Gryaznov <sup>a</sup>, Yu.F. Zhukovskii <sup>a</sup>, E.A. Kotomin <sup>a</sup>

<sup>a</sup> Institute of Solid State Physics, Kengaraga 8, LV-1063 Riga, Latvia  
<sup>b</sup> Faculty of Physics and Mathematics, University of Latvia, Zellu 8, LV-1002 Riga, Latvia  
<sup>c</sup> Faculty of Computing, University of Latvia, Raina blvd. 19, LV-1586 Riga, Latvia

# Kas ir izdarīts, kur mēs esam?

6) Skābekļa difūzija un “dinamiskā” iekļaušana vakancēs uz UN (001)

Dotais referāts, tiek gatavota publikācija

7) UN (110) virsma, UN(001)/(110) virsmu termodinamiskais salīdzinājums

Dotajā brīdī mēs veicam aprēķinus. Materiāls tiks prezentēts FMNT-2011

8) Spin-orbitālas mijiedarbības uzskaitē UN (001) virsmai

Dotajā brīdī mēs veicam aprēķinus. Materiāls tiks prezentēts EMRS Spring Meeting - 2011

9) Procesi graudu robežas

Dotajā brīdī mēs veicam aprēķinus

# Izmantotās metodes

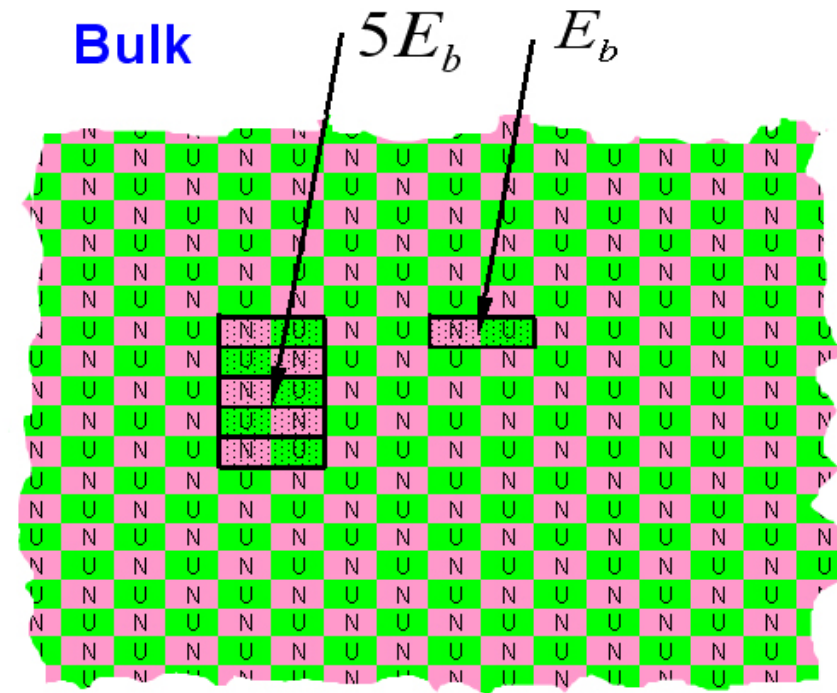
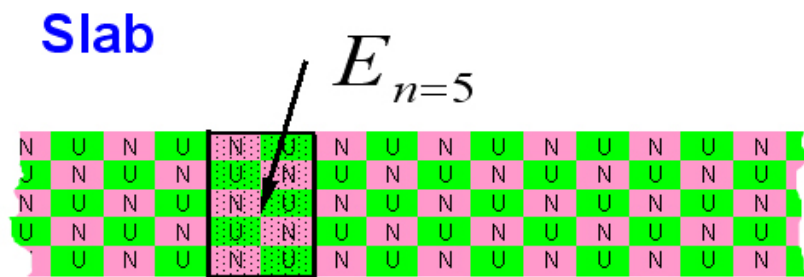
Tika izmantota kvantu ķīmijas **plakano viļņu metode** (*projector augmented-wave method*, PAW).

Dotais formālisms ir iekļauts **VASP** programmatūras kodā.

Šajā formālistmā 3D kristālam daudzkārtēji tiek risināts Kona-Šema (Kohn-Sham) vienādojums (viens no Šrēdingera vienādojuma kvantu ķīmijas tuvinājumiem kristāliskām sistēmām), un iterāciju ceļā tiek minimizēta enerģija attiecībā pret atomu pozīcijām **paplašinātā šūnā**.

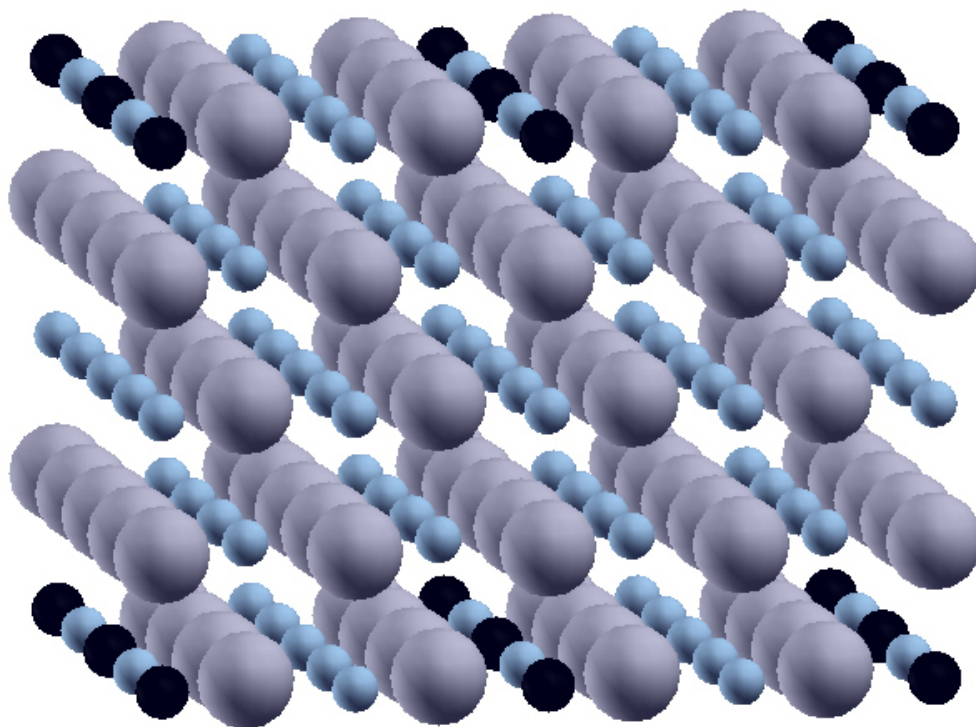
Visi atomi tika uzdoti ar pseidopotenciāliem.

# Plātnes (slab) modelis (5 slāņi)

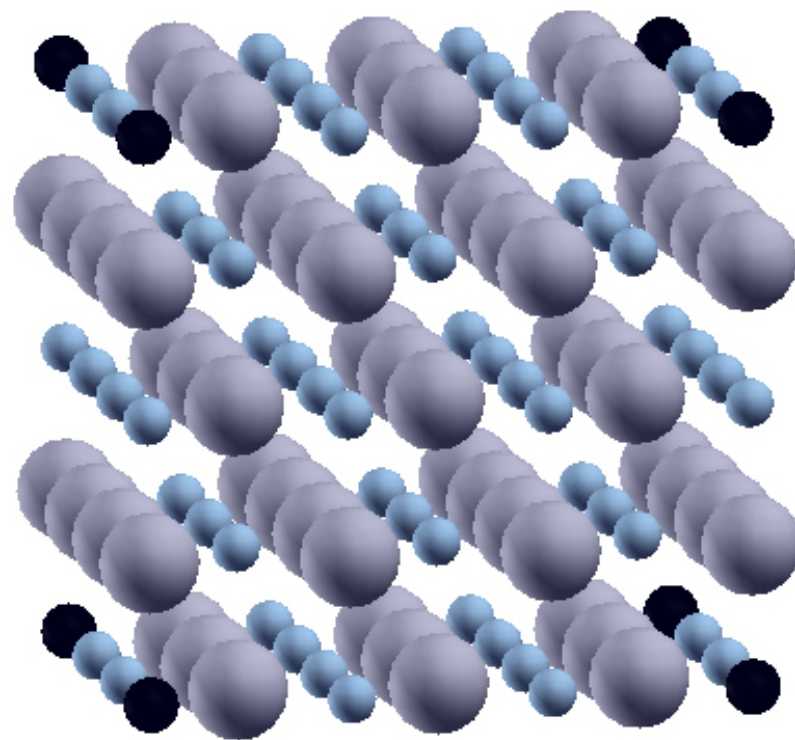




## Superšūnas: UN (001) virsmas ar iekļauto O

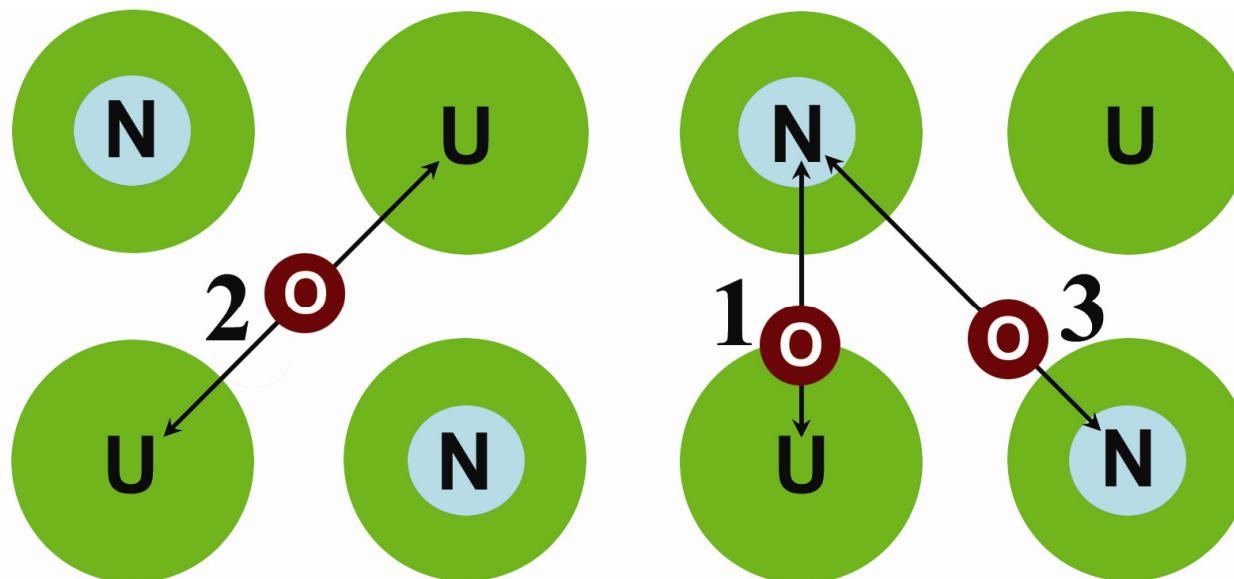


**2x2 paplašināta šūna**



**3x3 paplašināta šūna**

# Virsmas difūzija (7 slāņu slab)



The calculated binding energy

$$E_{\text{bind}} = \frac{1}{2} \left( E_{\text{tot}}^{\text{UN}} + 2E_{\text{tot}}^{\text{O}_{\text{triple}}^{\text{O}}} - E_{\text{tot}}^{\text{O/UN}} \right)$$

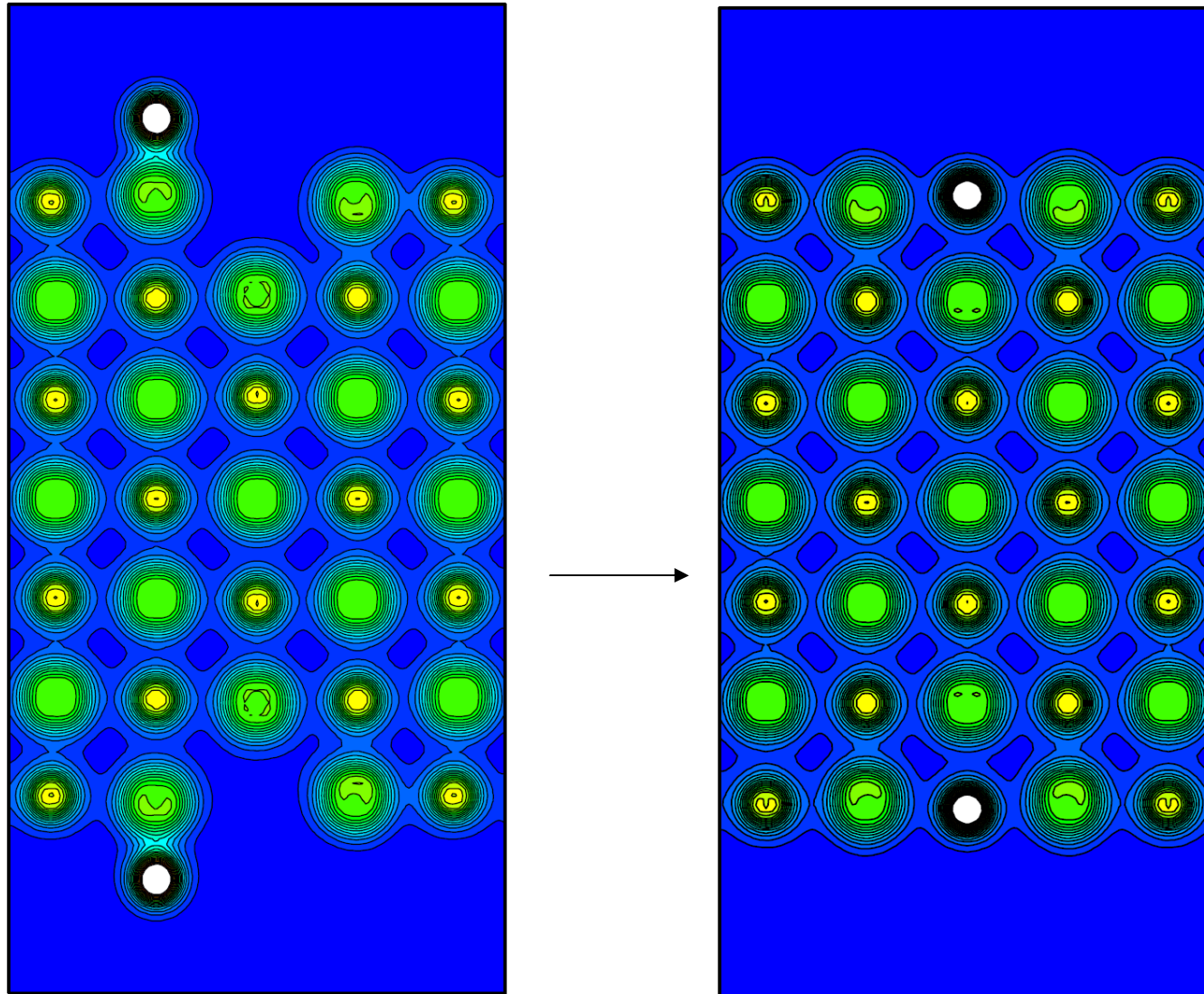
From U to N (way 1)			
<i>Number of layers:</i>	5	7	fixed spin, 5
atop U	7.57	7.50	6.9[*]
1/4 of distance U-N	7.39	7.39	
1/2 of distance U-N	6.97	6.98	
3/4 of distance U-N	5.91	5.93	
atop N	5.52	5.23	5.0[*]

[\*] Yu.F. Zhukovskii, D. Bocharov, E.A. Kotomin, R.A. Evarestov, and A.V. Bandura, First principles calculations of oxygen adsorption on the UN(001) surface. - Surf. Sci., 2009, 603, p. 50-53.

From hollow position to U (way 2)		
<i>Number of layers:</i>	5	7
atop h.p.	7.21	6.89
1/4 of distance h.p.-U	7.23	7.24
1/2 of distance h.p.-U	7.32	7.33
3/4 of distance h.p.-U	7.45	7.45
atop U	7.57	7.50

From hollow position to N (way 3)		
<i>Number of layers:</i>	5	7
atop h.p.	7.21	6.89
1/4 of distance h.p.-N	6.61	6.65
1/2 of distance h.p.-N	5.92	6.35
3/4 of distance h.p.-N	5.54	5.57
atop N	5.52	5.23

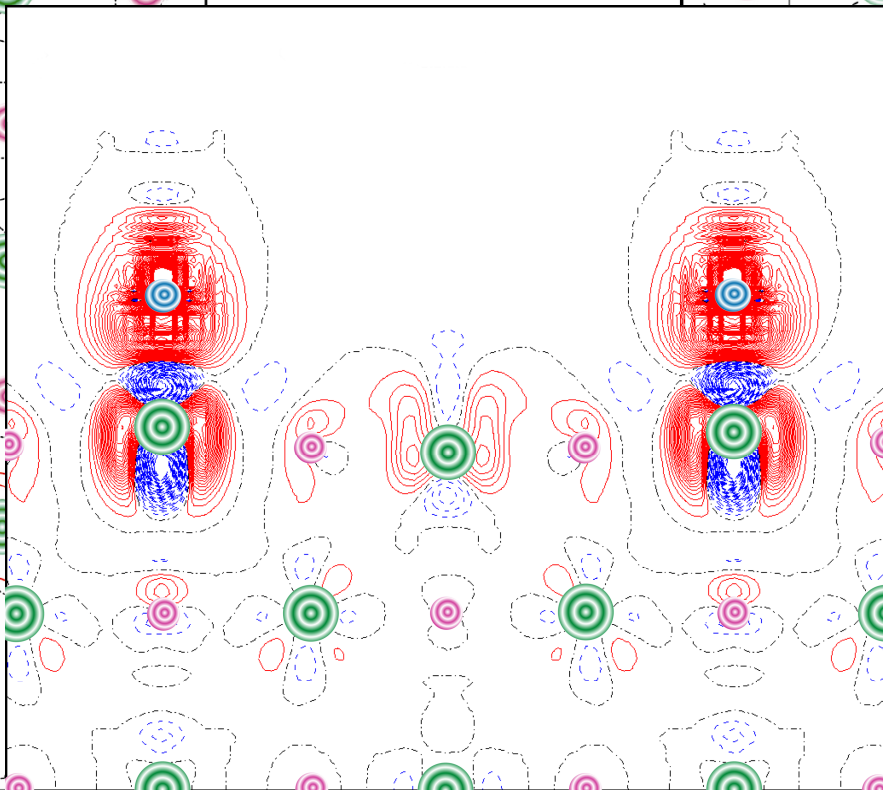
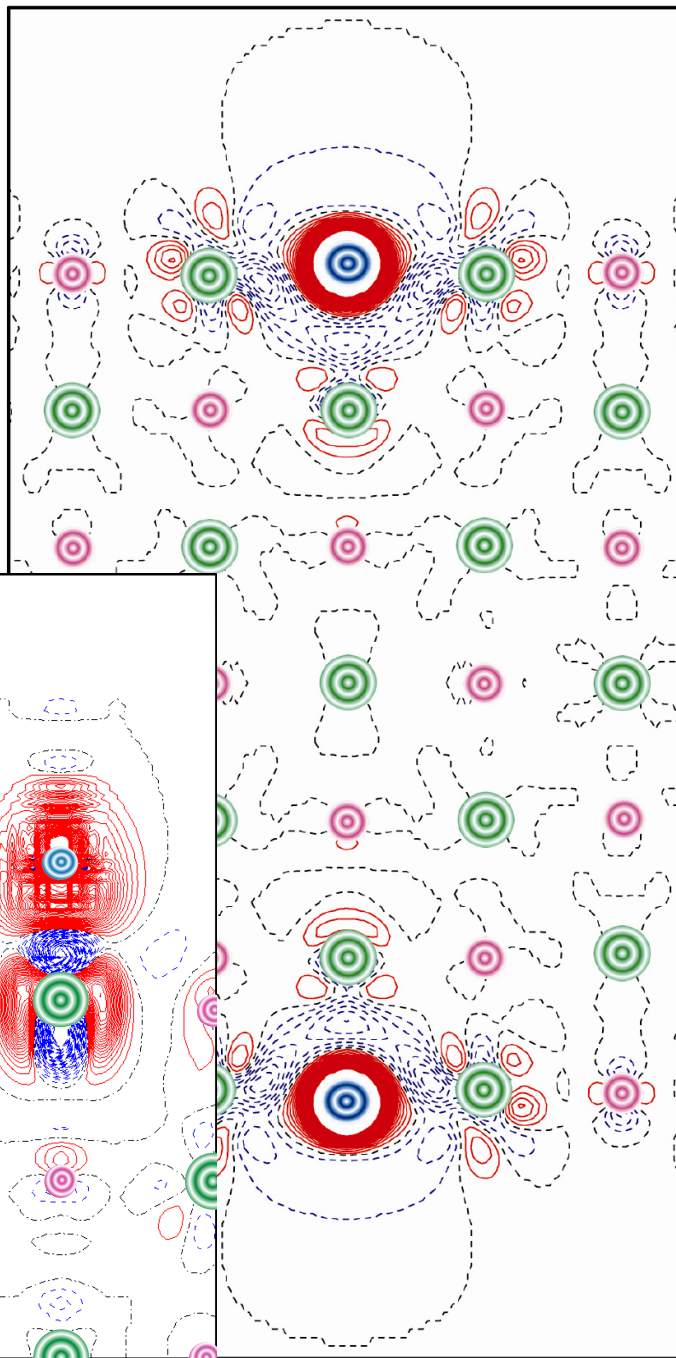
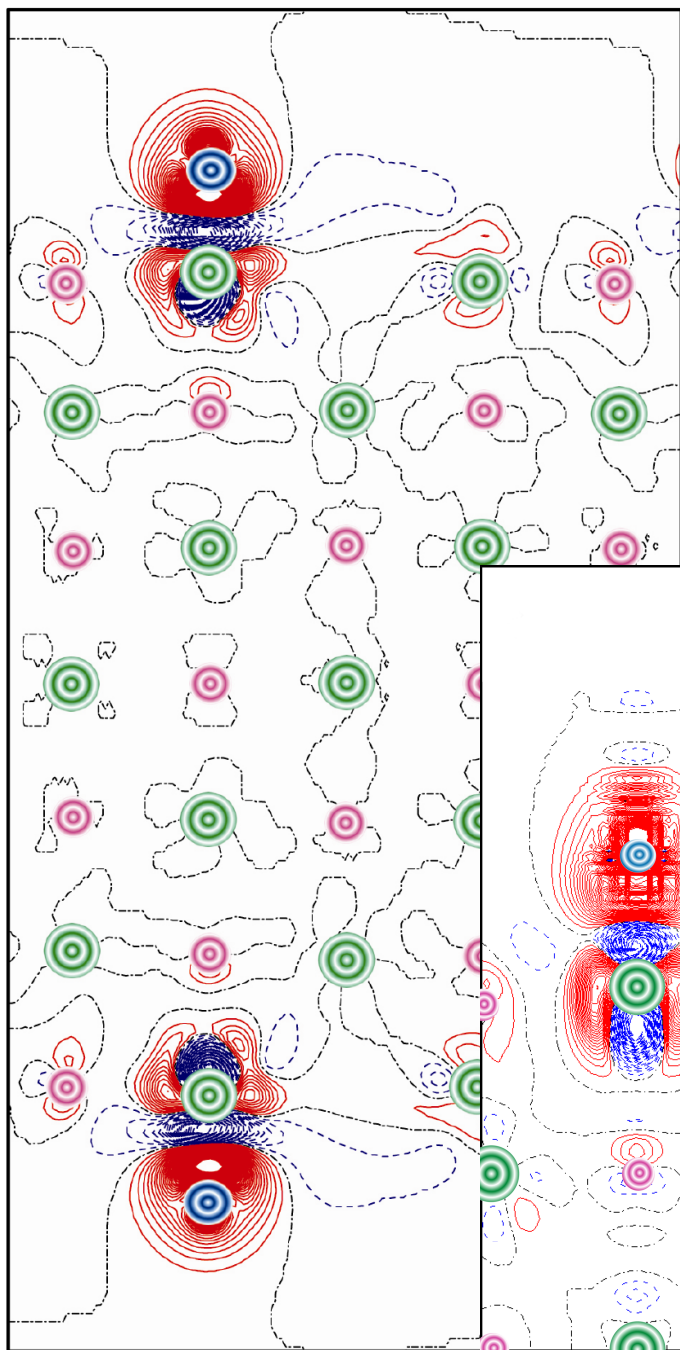
# O atoms vairs U atomam blakus N vakancei



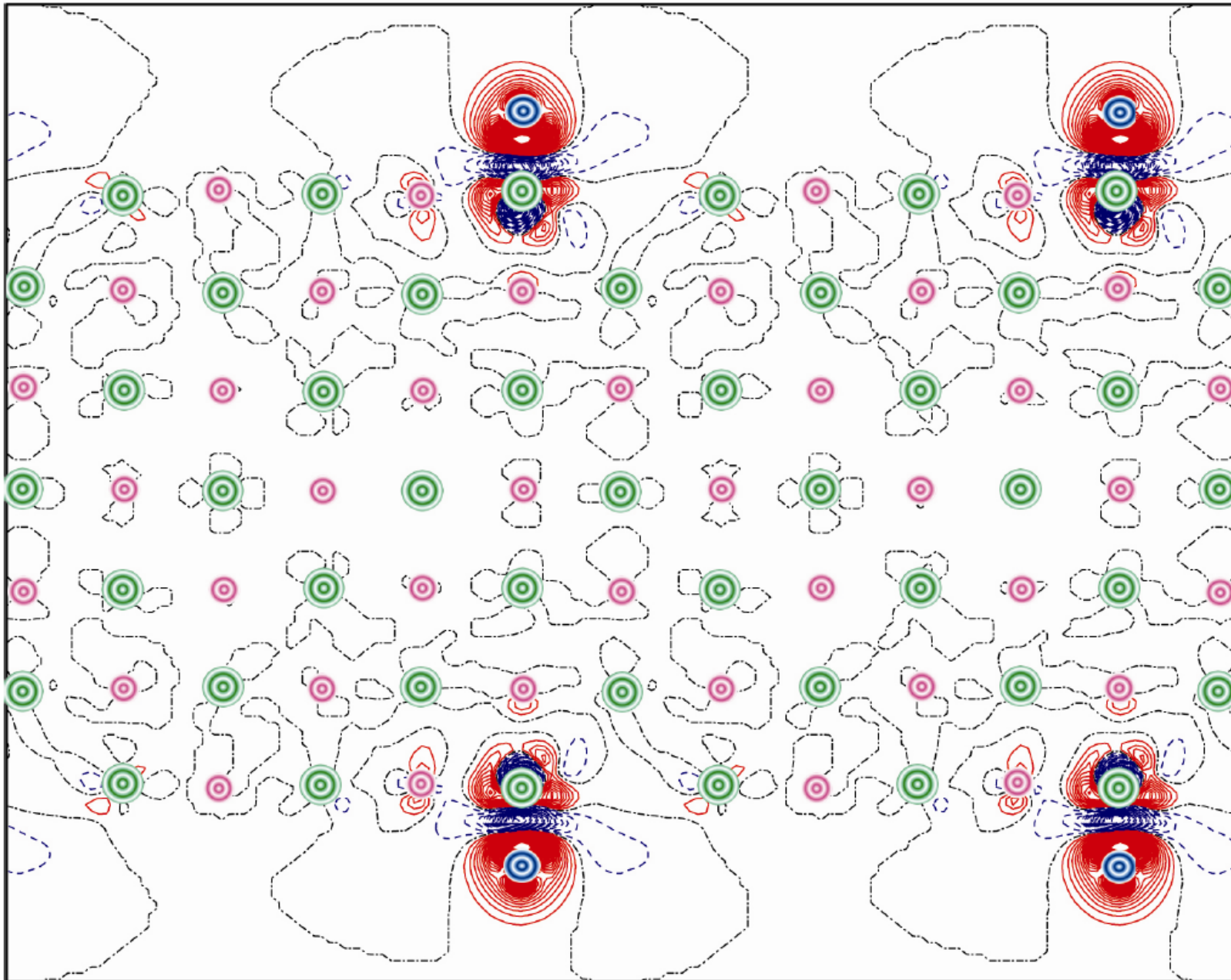
Enerģētiskais izdevīgums:

-2.00 eV per O 2x2 superšūnai (7 layers)

-1.94 eV per O 3x3 superšūnai (7 layers)



# O atoms virs U atomam: ECHD



# Kopsavilkums

-Mēs demonstrējam lielu skābekļa kustīgumu gar virsmu, kas ir saistīta ar salīdzinoši zemām migrācijas barjerām ( $\sim 0.5$  eV).

- Mēs parādām, ka skābekļa inkorporēšana uz N vakanci no sākotnējās pozīcijas virs blakus U atomam var notikt spontāni

Šie rezultāti izskaidro UN ātro oksidāciju gaisā.

# Nakamie soļi

6) Skābekļa difūzija un “dinamiskā” iekļaušana vakancēs uz UN (001)

Dotais referāts, tiek gatavota publikācija

7) UN (110) virsma, UN(001)/(110) virsmu termodinamiskais salīdzinājums

Dotajā brīdī mēs veicam aprēķinus. Materiāls tiks prezentēts FMNT-2011

8) Spin-orbitālas mijiedarbības uzskaitē UN (001) virsmai

Dotajā brīdī mēs veicam aprēķinus. Materiāls tiks prezentēts EMRS Spring Meeting - 2011

9) Procesi graudu robežas

Dotajā brīdī mēs veicam aprēķinus

# Pateicības

Darba autors ir pateicīgs Robertam Evarestovam, Aleksejam Kuzminam, Jurijam Mastrikovam, Vjačeslavam Kaščejevam, Sergejam Piskunovam, Aleksejam Gopejenko un par vērtīgām rekomendācijām un auglīgām diskusijām darba sagatavošanas laikā.

Aprēķini ir veikti, izmantojot VASP kodu, instalētu paralēlā režīmā uz LASC superdatora (Latvian Super Cluster, <http://www.cfi.lu.lv/lasc>).





