



В
НИ
И
А

ПРЕДПРИЯТИЕ ГОСКОРПОРАЦИИ "РОСАТОМ"

ФГУП "ВСЕРОССИЙСКИЙ НАУЧНО-ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ИНСТИТУТ АВТОМАТИКИ им. Н.Л.Духова"

ЦЕНТР ФУНДАМЕНТАЛЬНЫХ И ПРИКЛАДНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

ОТДЕЛ КОМПЬЮТЕРНОГО МАТЕРИАЛОВЕДЕНИЯ

Первопринципные расчёты свойств урана методами псевдопотенциала и APW

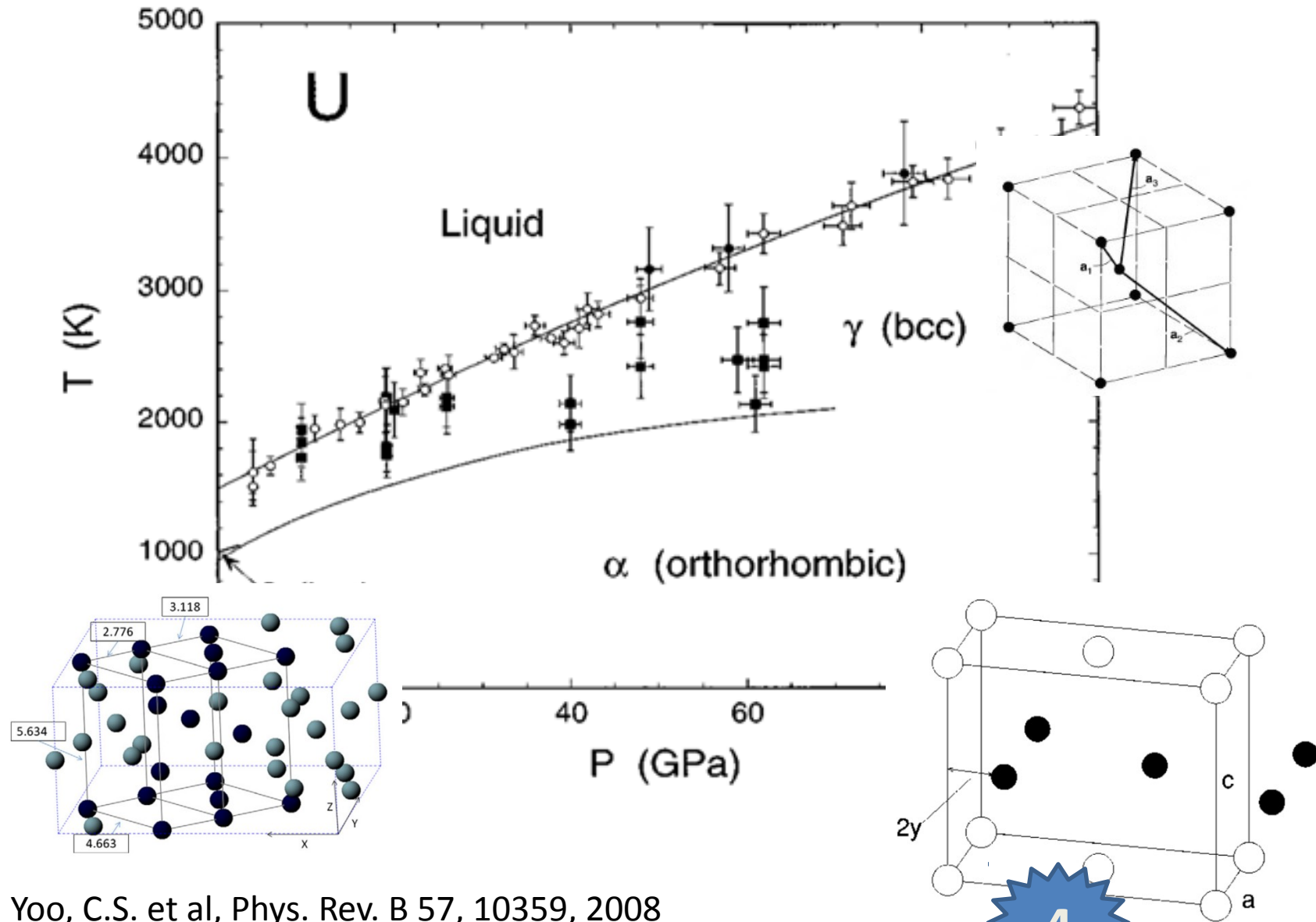
Мигдал К.П., А.В. Янилкин
ФГУП «ВНИИА им. Н.Л. Духова»
2017 г.

I. План доклада

- Цель исследования
- Вычислительные методы
- Фазы урана при $T=0$
- Тепловые эффекты в сжатом уране
- Заключение

II. Цель исследования

Фазовая диаграмма U: $P < 100$ GPa

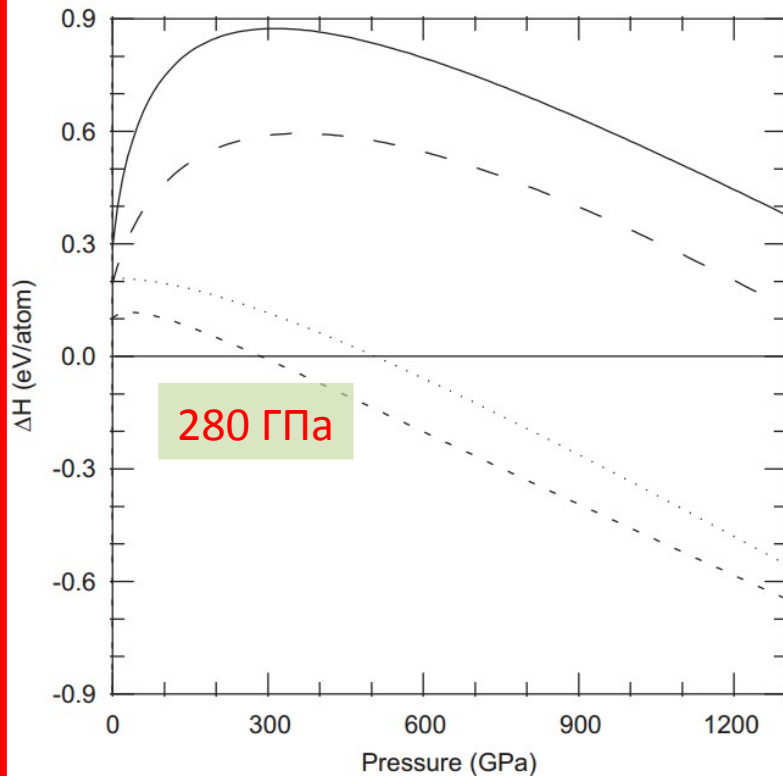


Yoo, C.S. et al, Phys. Rev. B 57, 10359, 2008

Фазовая диаграмма U: P>100 GPa

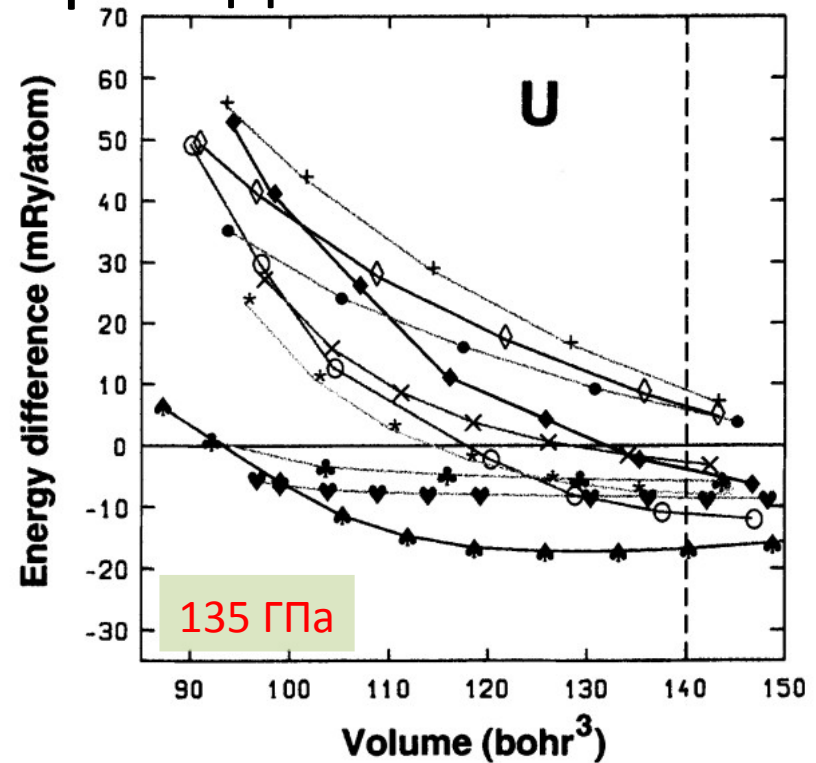
T=0

α -ОЦТ переход



PAW

S. Adak *et al*, Physica B. 433. 133. 2013



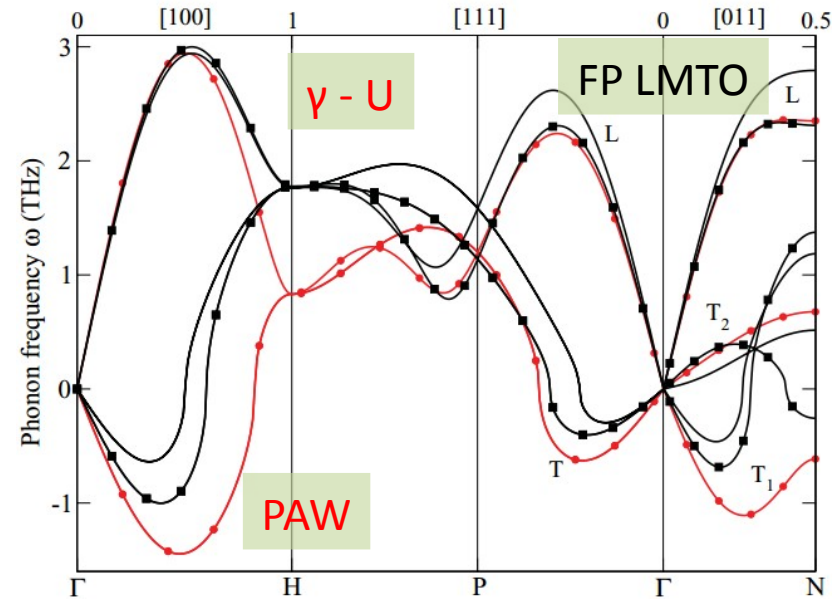
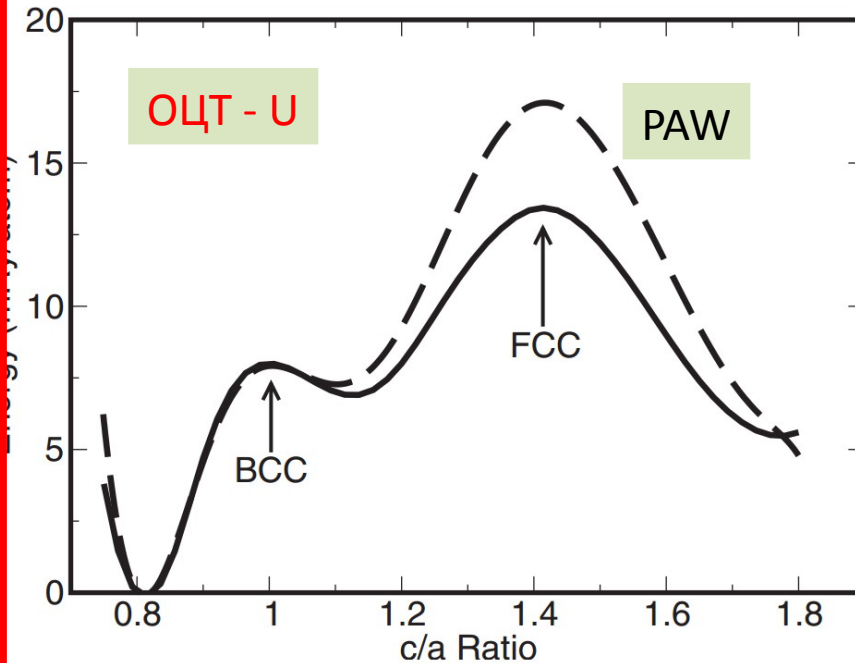
LAPW

M. Penicaud, J.Phys.: Cond. Matt. 14. 3575. 2002

Фазовая диаграмма: Стабильные структуры

T=0

T=500K



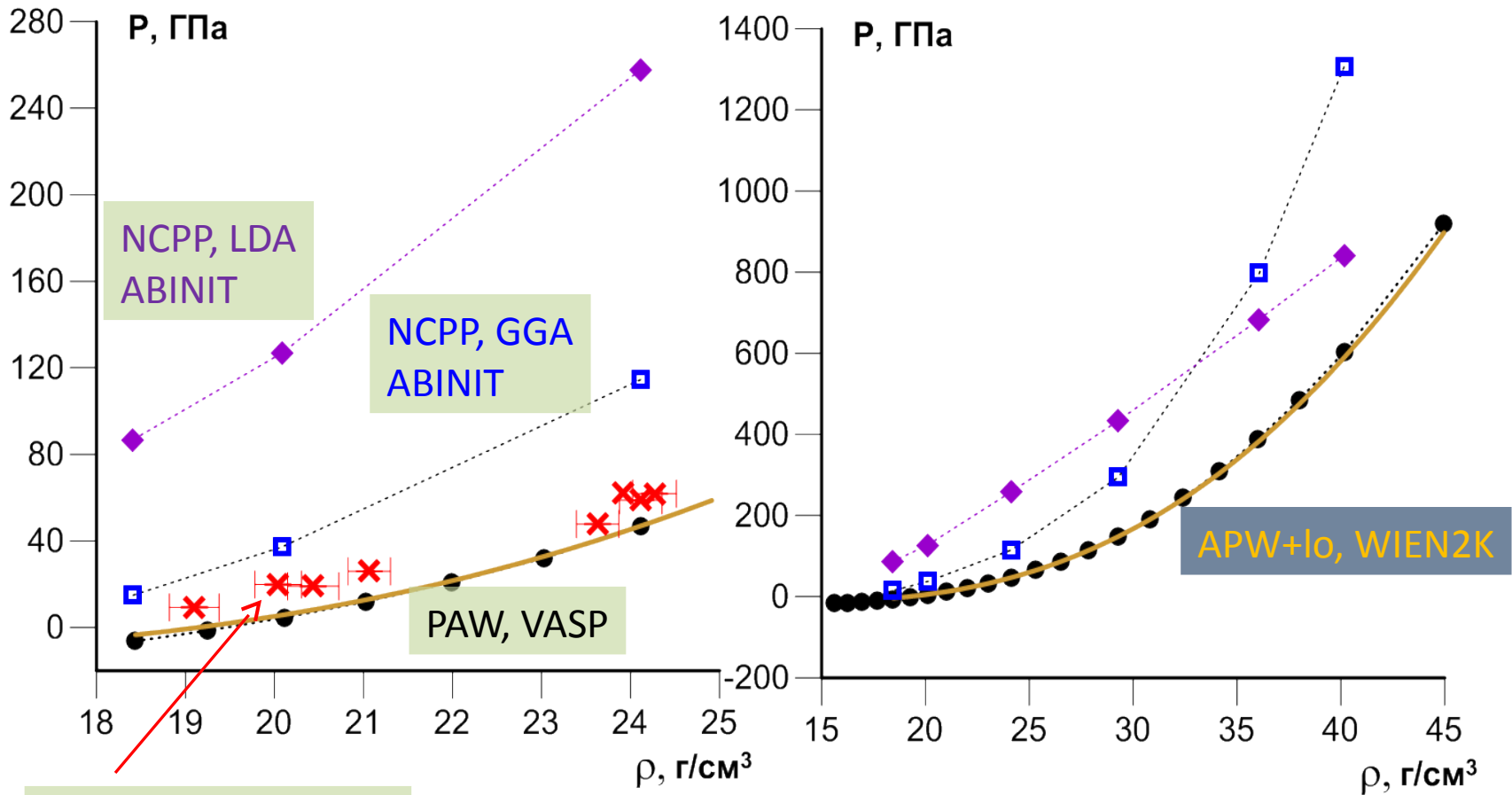
Равновесный объём $V_{\text{expt}} = 20.75 \text{ \AA}^3$

SCAILD – коррекция
DFT спектра

R.Q. Hood et al, Phys. Rev. B. 78. 024116. 2008

P. Soderlind, Phys. Rev. B. 85. 060301. 2012

Холодная кривая γU : тест подходов



DAC, $T=1300-2000K$:

Yoo, C.S. et al, Phys. Rev. B 57, 10359, 2008

ftp://ftp.abinit.org/pub/abinitio/Psps/LDA_TM.psp/92/92u.pspnc

ftp://ftp.abinit.org/pub/abinitio/Psps/GGA_FHI/92-U.GGA.fhi

Выводы по опубликованным данным:

- Есть расхождения между свойствами сильно сжатого урана, предсказанными методом псевдопотенциала и полноэлектронными расчётами;
- Основная часть данных относится к свойствам урана при давлении до 100 ГПа.

- 1) Проверка точности DFT расчётов методом псевдопотенциала с помощью полноэлектронных подходов.
- 2) Исследование параметров стабильного урана при холодном сжатии при давлении до 1 Тпа
- 3) Получение оценки точности расчёта тепловых вкладов в термодинамические потенциалы урана, включая вклад нагрева электронов

Выводы по опубликованным данным и цели исследования:

- Есть расхождения между свойствами сильно сжатого урана, предсказанными методом псевдопотенциала и полноэлектронными расчётами;
- Основная часть данных относится к свойствам урана при давлении до 100 ГПа.

1) Проверка точности DFT расчётов методом псевдопотенциала с помощью полноэлектронных подходов.

2) Исследование параметров стабильного урана при холодном сжатии при давлении до 1 Тпа

3) Получение оценки точности расчёта тепловых вкладов в термодинамические потенциалы урана, включая вклад нагрева электронов

Выводы по опубликованным данным и цели исследования:

- Есть расхождения между свойствами сильно сжатого урана, предсказанными методом псевдопотенциала и полноэлектронными расчётами;
- Основная часть данных относится к свойствам урана при давлении до 100 ГПа.

1) Проверка точности DFT расчётов методом псевдопотенциала с помощью полноэлектронных подходов.

2) Исследование параметров стабильного урана при холодном сжатии при давлении до 1 ТПа.

3) Получение оценки точности расчёта тепловых вкладов в термодинамические потенциалы урана, включая вклад нагрева электронов

Выводы по опубликованным данным и цели исследования:

- Есть расхождения между свойствами сильно сжатого урана, предсказанными методом псевдопотенциала и полноэлектронными расчётами;
- Основная часть данных относится к свойствам урана при давлении до 100 ГПа.

- 1) Проверка точности DFT расчётов методом псевдопотенциала с помощью полноэлектронных подходов.
- 2) Исследование параметров стабильного урана при холодном сжатии при давлении до 1 ТПа.
- 3) Получение оценки точности расчёта тепловых вкладов в термодинамические потенциалы урана, включая вклад нагрева электронов

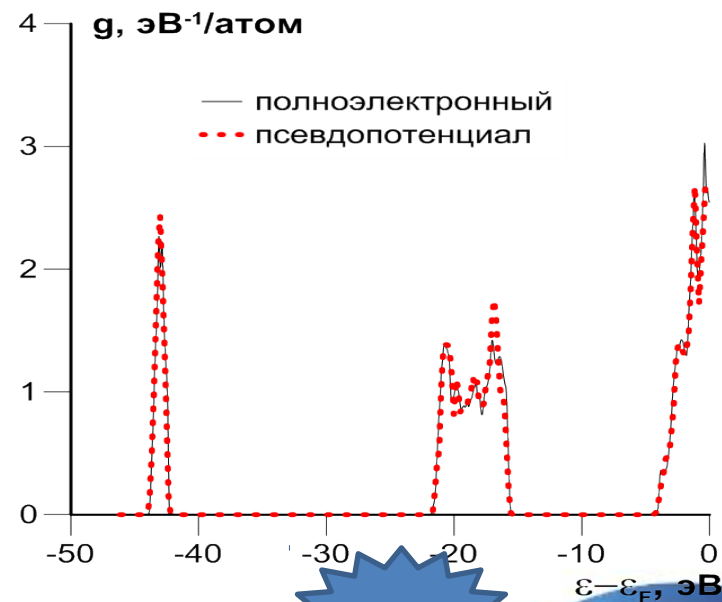
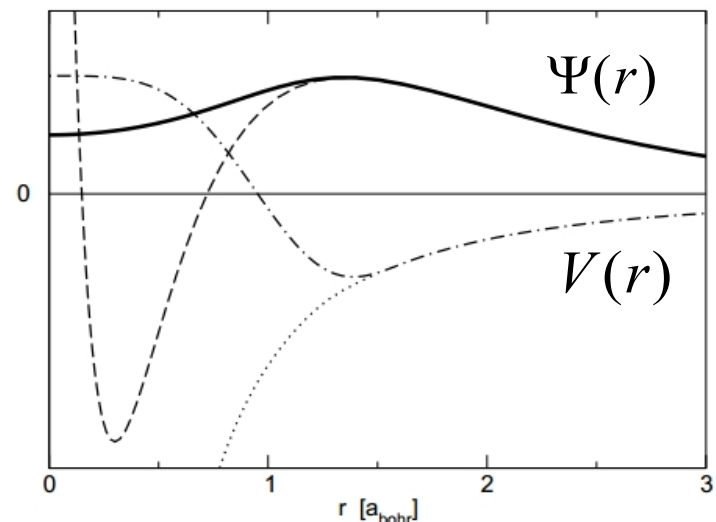
III. Вычислительные методы



Подходы в рамках МФП

Псевдопотенциалы
(NCPP, USPP, PAW)

Полноэлектронные
(APW, LMTO, LAPW,
GTO, APW+lo)



* P.E. Bloechl, arXiv:1104v1

Параметры псевдопотенциального расчёта

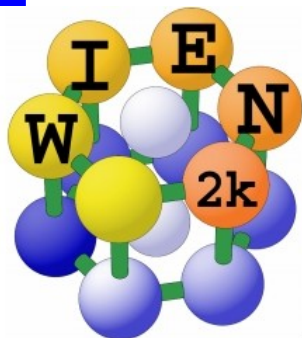


Представление электронной структуры	PAW
Обменно-корреляционный функционал	PBE
Вычислительный код	VASP
Число атомов в ячейке ($\alpha/\text{ОЦТ}/\gamma$)	4/2/1
Структура валентных электронных уровней	$6s^2 6p^6 6d^1 7s^2 5f^3$
Радиус области кора, a_B	2.2
Обрезание по импульсу базиса плоских волн	500 эВ
Сетка точек Монхорста-Пэка	$11 \times 11 \times 11$

* G. Kresse *et al*, Comput. Mater. Sci. 6. 15. 1996

* G. Kresse *et al*, Phys. Rev. B. 59. 1758. 1999.

III Параметры полноэлектронного расчёта

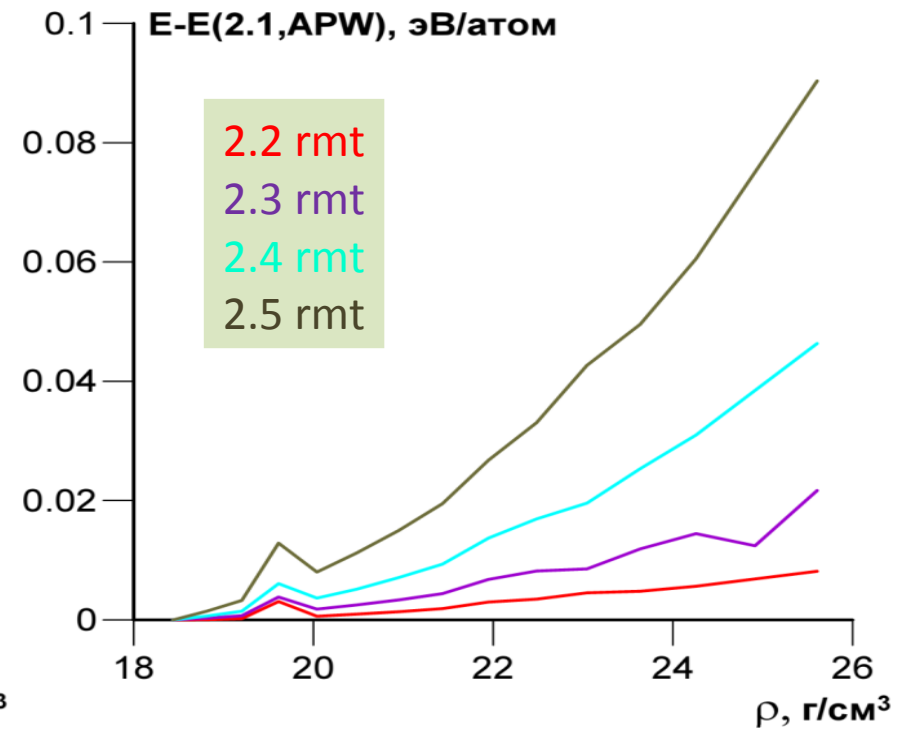
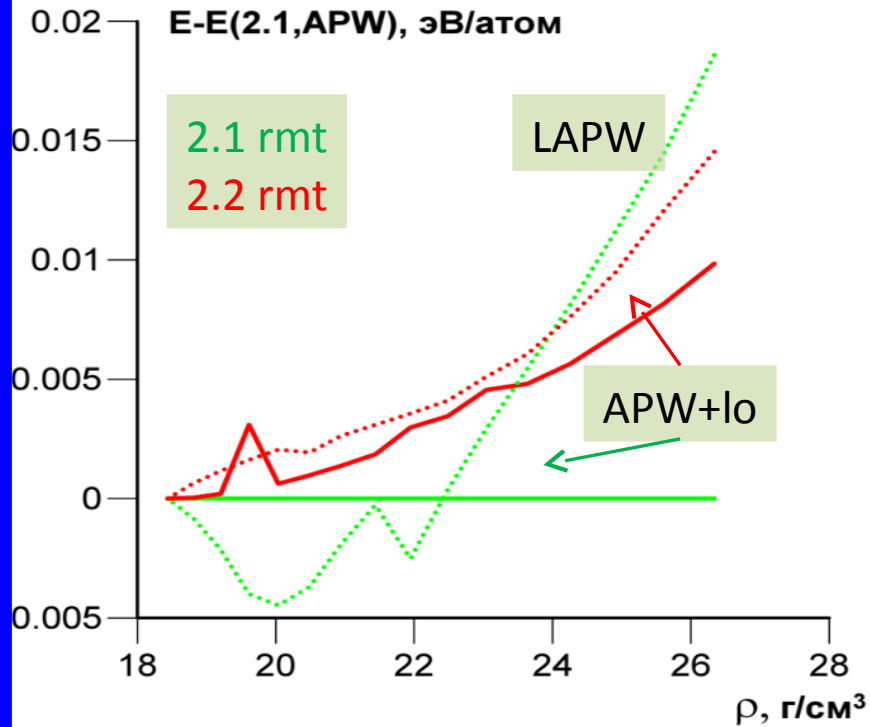


WIEN2k

Представление электронной структуры	APW+lo
Обменно-корреляционный функционал	PBE
Вычислительный код	Wien2K
Число атомов в ячейке ($\alpha/\text{OЦТ}/\gamma$)	4/2/1
Структура валентных электронных уровней	$5d^{10}6s^26p^66d^17s^25f^3$
Радиус области кора, a_B	2.1 (1.9, $\rho > 26$ г/см ³)
Обрезание по импульсу базиса плоских волн	11
Сетка точек Монхорста-Пэка	20×20×20

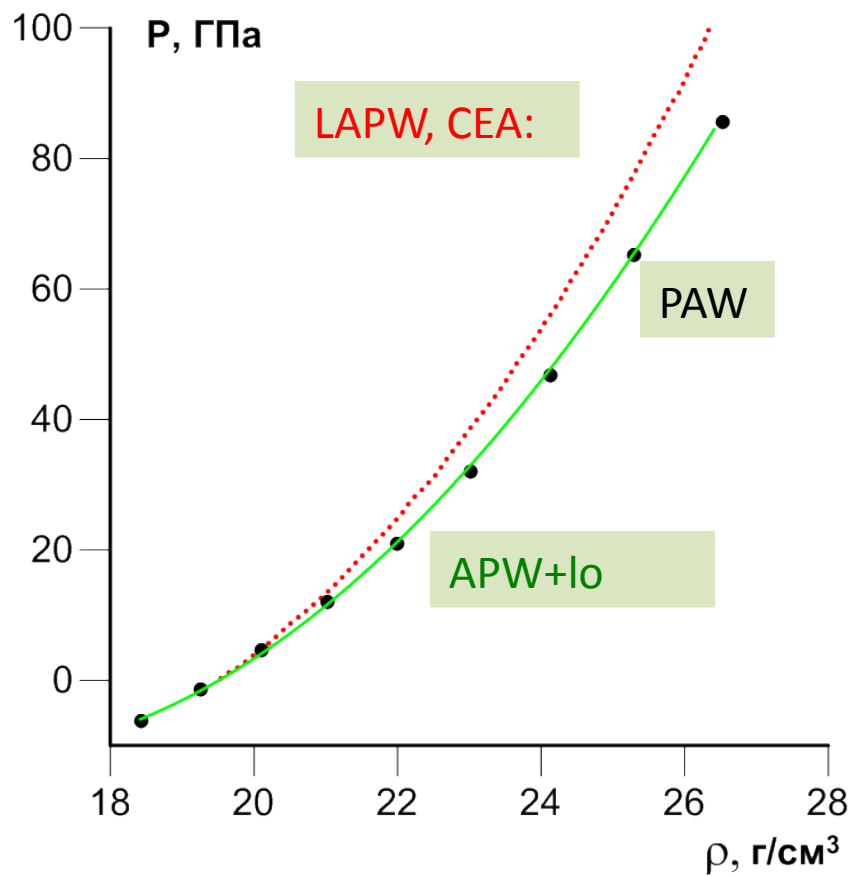
* G.K.H. Madsen *et al*,
PRB, **64**, 195134 (2001)

Тестирование APW+lo и LAPW подходов



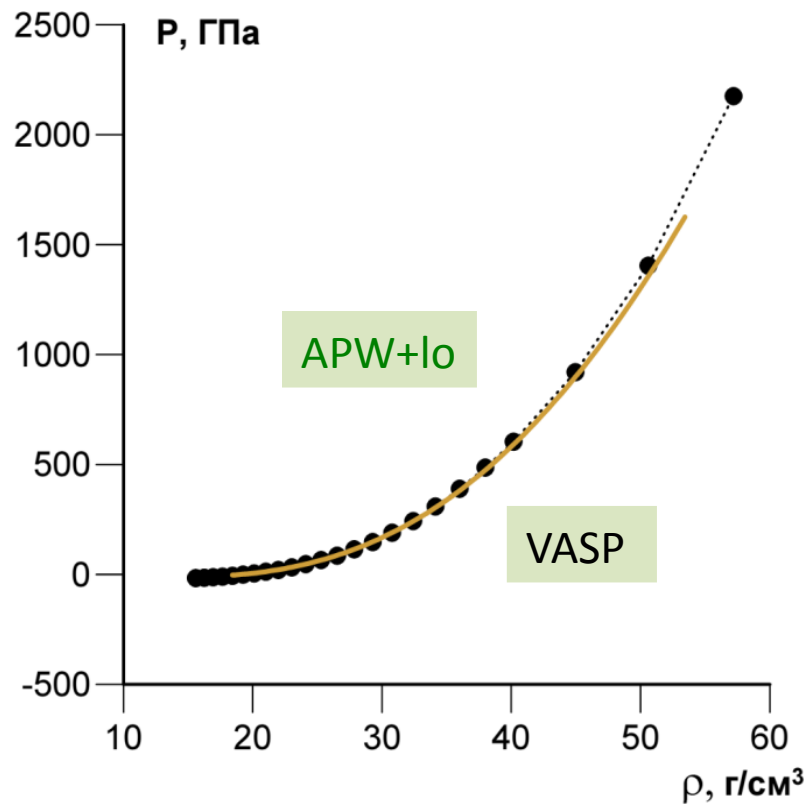
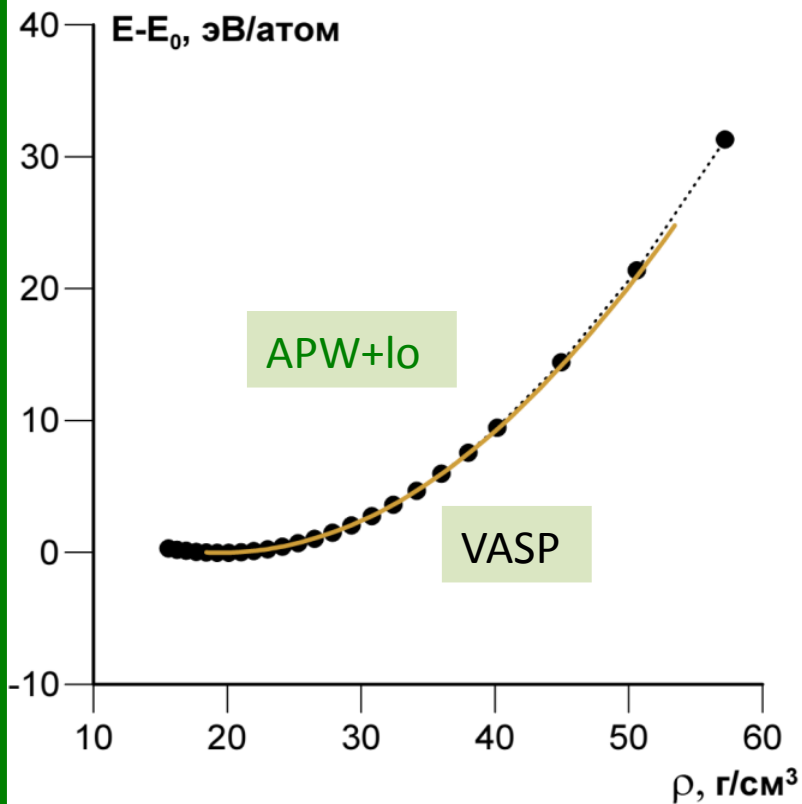
IV. Результаты

Холодная кривая γU : $P < 100$ ГПа

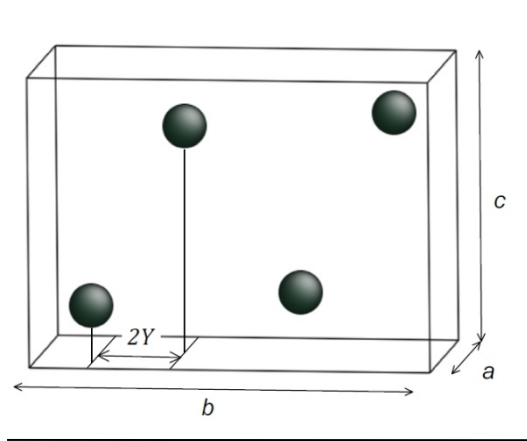


M. Penicaud, J.Phys.: Cond. Matt. 14. 3575. 2002

Холодная кривая γU : $P \sim 1$ ТПа



Параметры стабильного αU при $T=0$ К



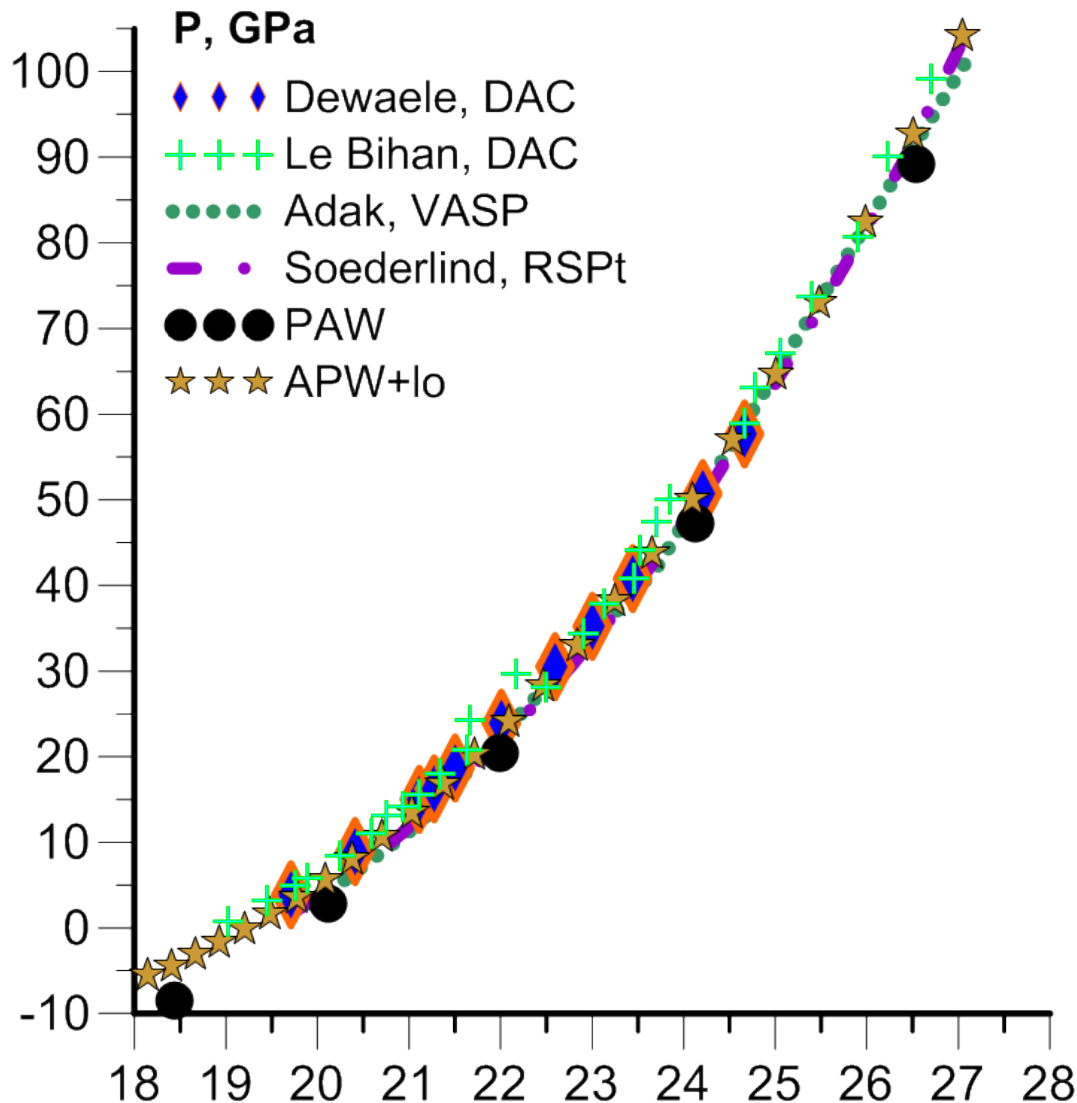
VASP:

Плотность, г/см ³	a , Å	b , Å	c , Å	$2Y$
18.4	2.8735	6.0268	4.9515	0.1961
20.1	2.7387	5.8691	4.8954	0.1977
24.1	2.5806	5.3978	4.7098	0.2021
29.3	2.4467	4.9111	4.4941	0.2093
36.0	2.3050	4.5397	4.1960	0.2270
40.1	2.2402	4.3703	4.0212	0.2419

$E(\text{WIEN2K}) - E(\text{VASP})$:

Плотность, г/см ³	Направление деформации	Изменение энергии, мэВ/атом
18.4	(11 $\bar{1}$)	-1.1
20.1	(1 $\bar{1}\bar{1}$)	-20.9
24.1	(10 $\bar{1}$)	-16.4
29.3	(1 $\bar{1}$ 1)	-2.7
36.0	(01 $\bar{1}$)	-5.1
40.1	(01 $\bar{1}$)	-1.5

Холодная кривая αU



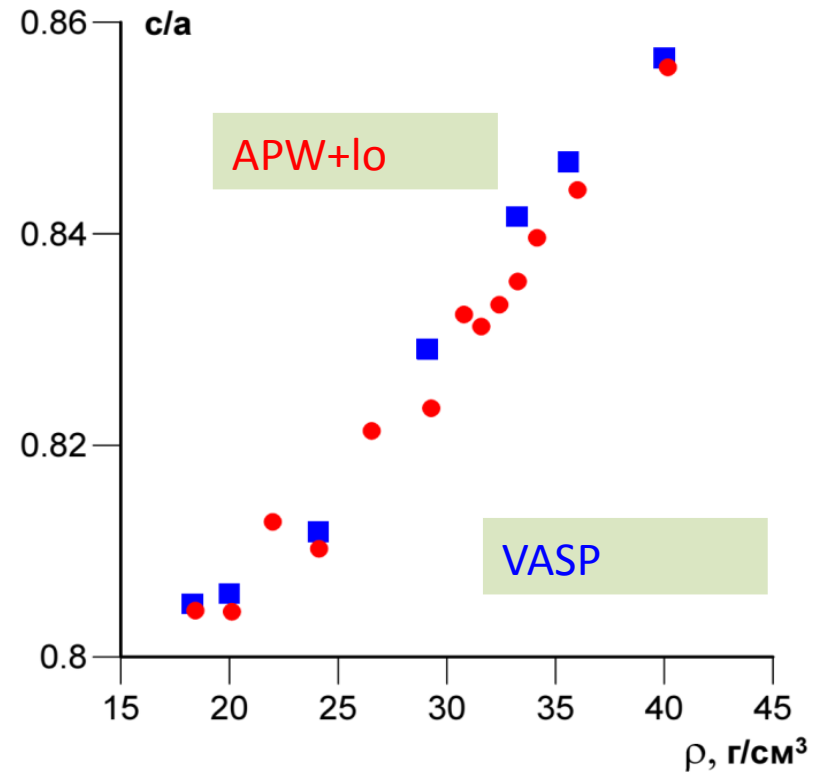
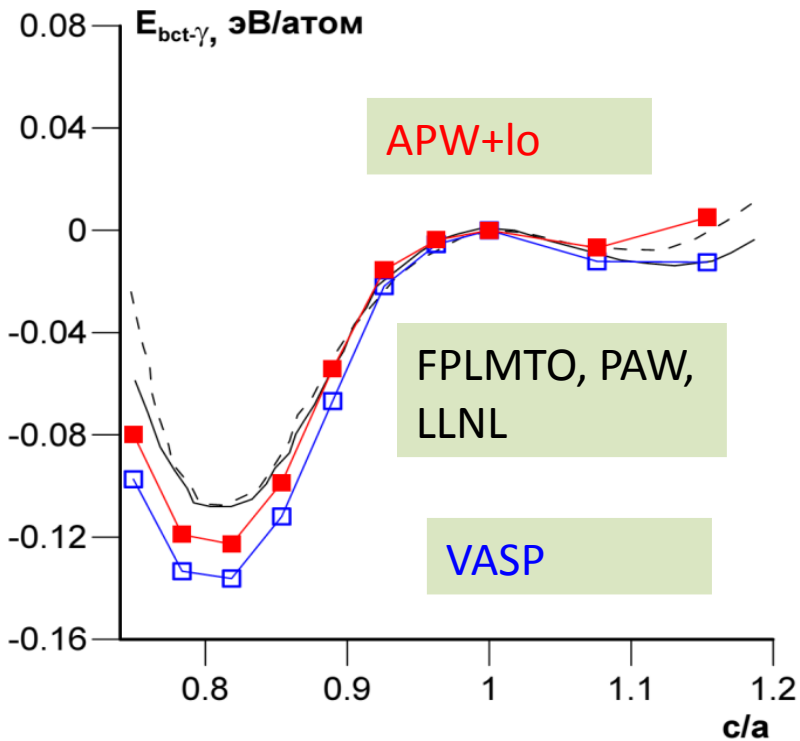
S. Adak *et al.*, Physica B. 433. 133.

A. Dewaele. PRB. 88. 134202, 2013 ρ , g/cm^3

T. Le Bihan *et al.* PRB, 67, 134102. 2003. P. Soderlind. PRB, 66, 235112, 2002

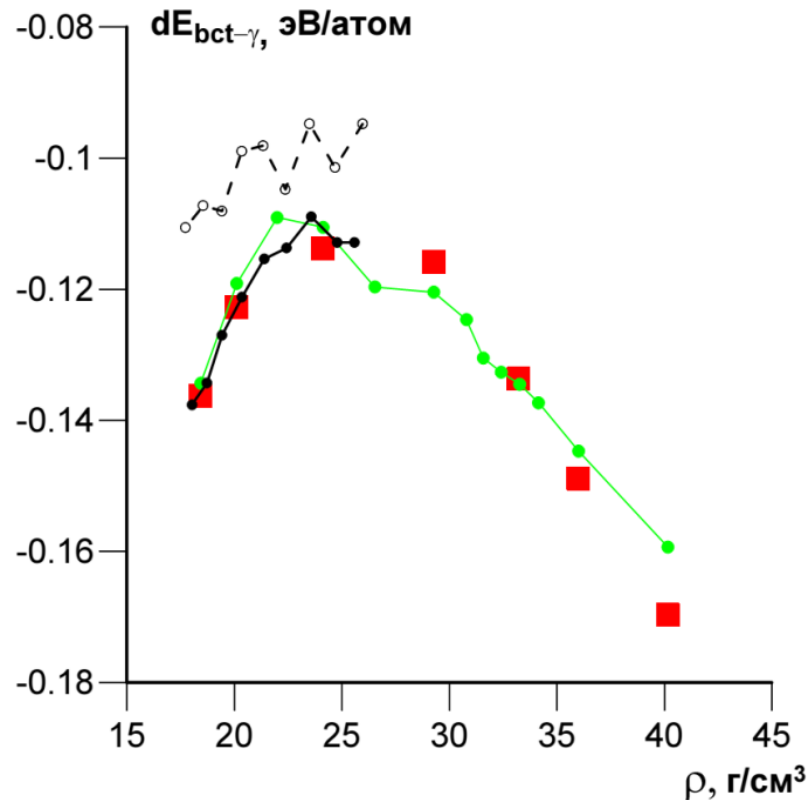
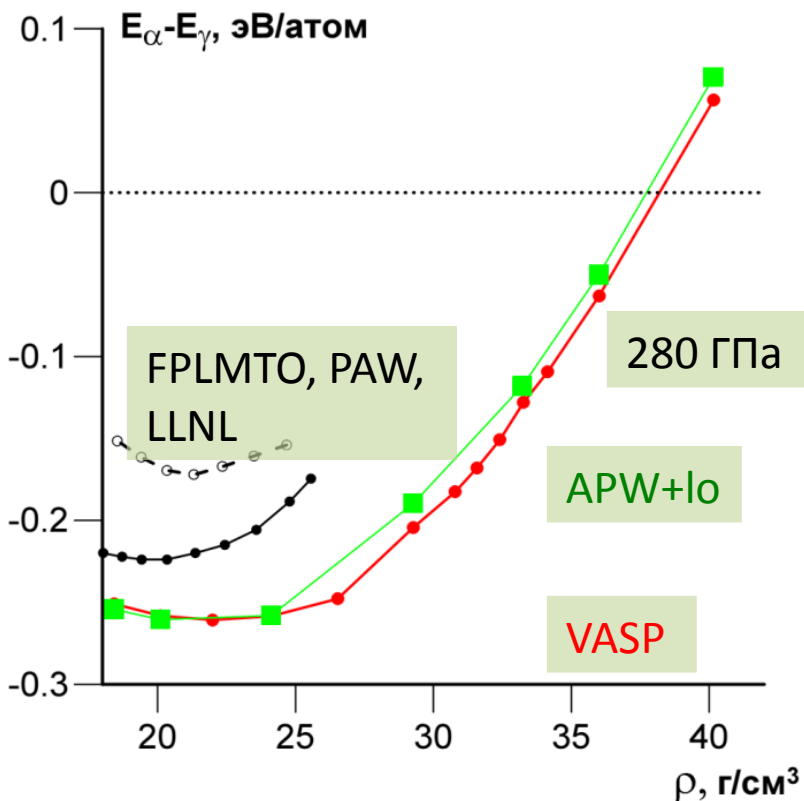
Параметры стабильного ОЦТ U при T=0 K

IV



R.Q. Hood et al, Phys. Rev. B. 78. 024116. 2008

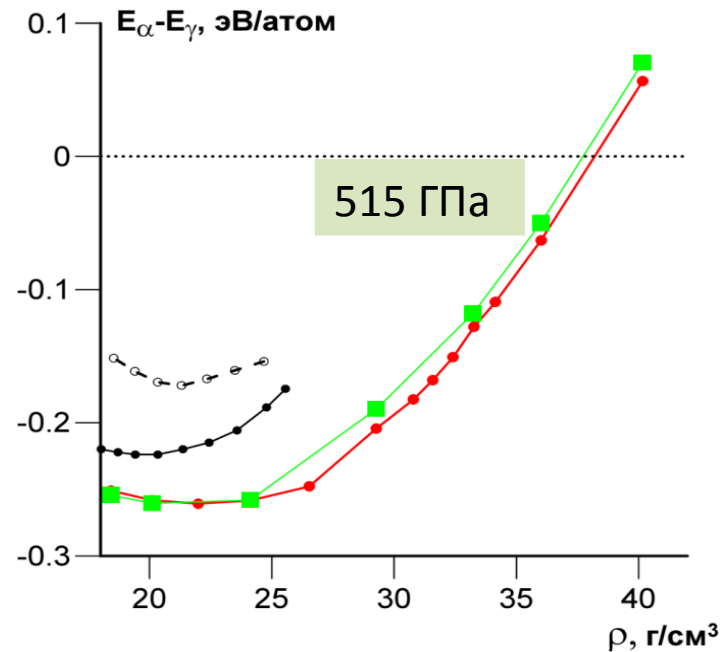
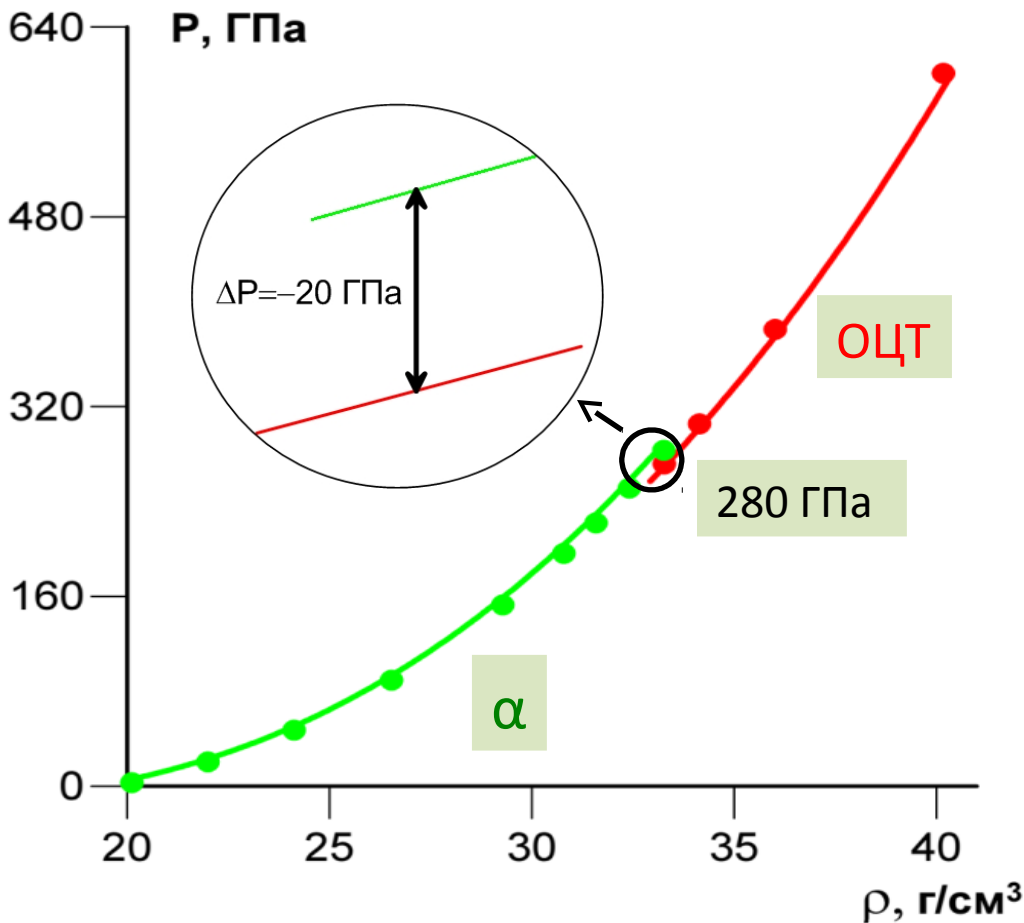
Переход между α и ОЦТ ураном



Переход в стабильную до 1 ТПа
ОЦТ фазу

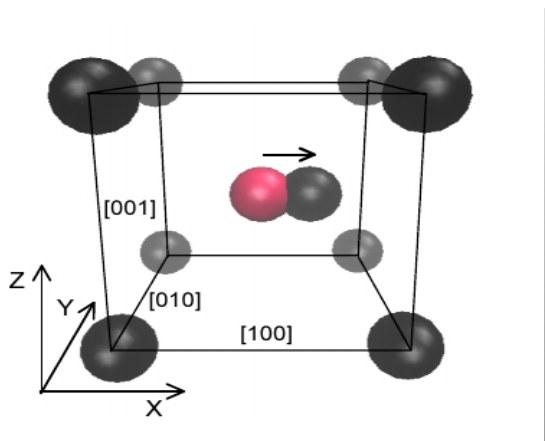
R.Q. Hood et al, Phys. Rev. B. 78. 024116. 2008

Итоговая холодная кривая урана при $P < 1$ ТПа

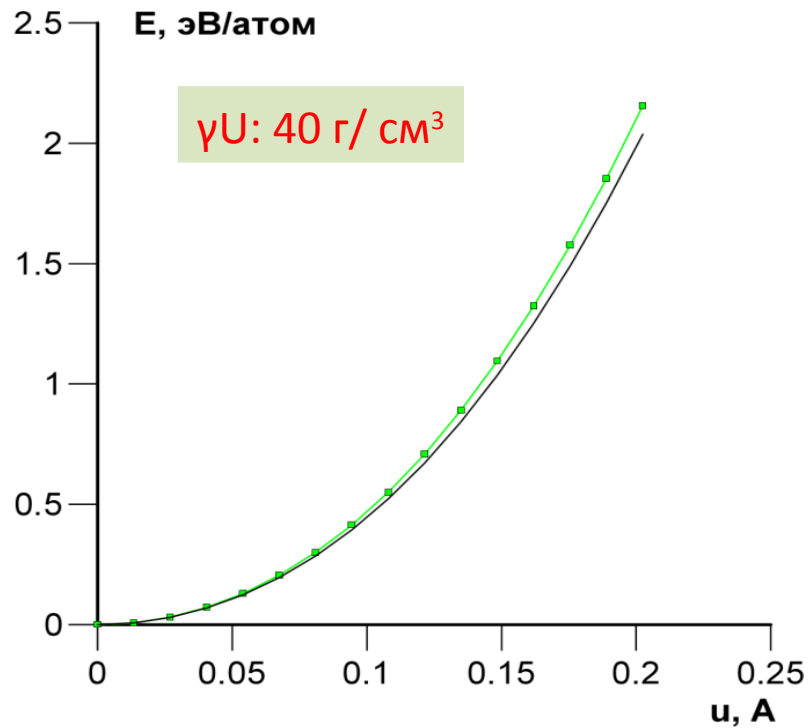
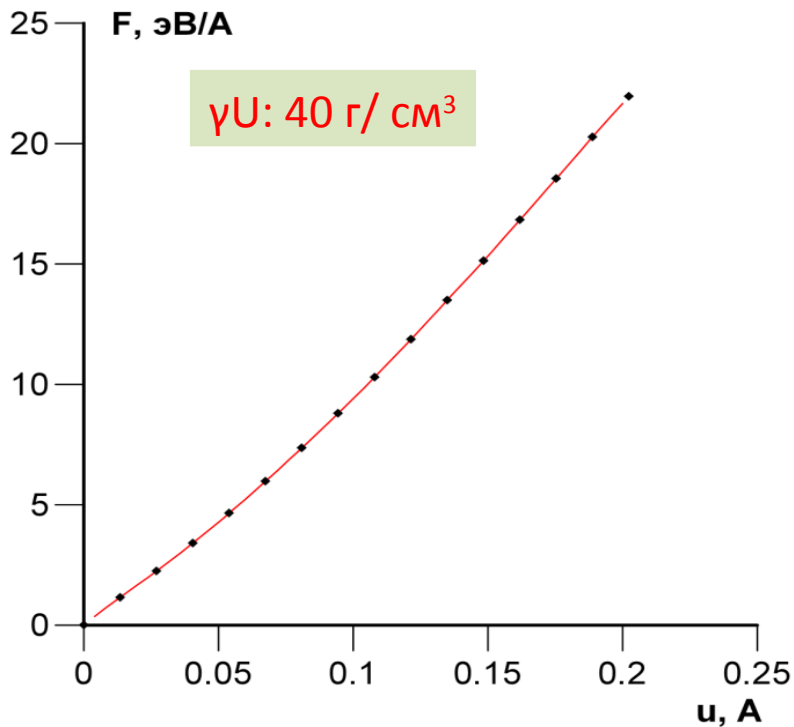


R.Q. Hood et al, Phys. Rev. B. 78. 024116. 2008

Соответствие энергий и сил

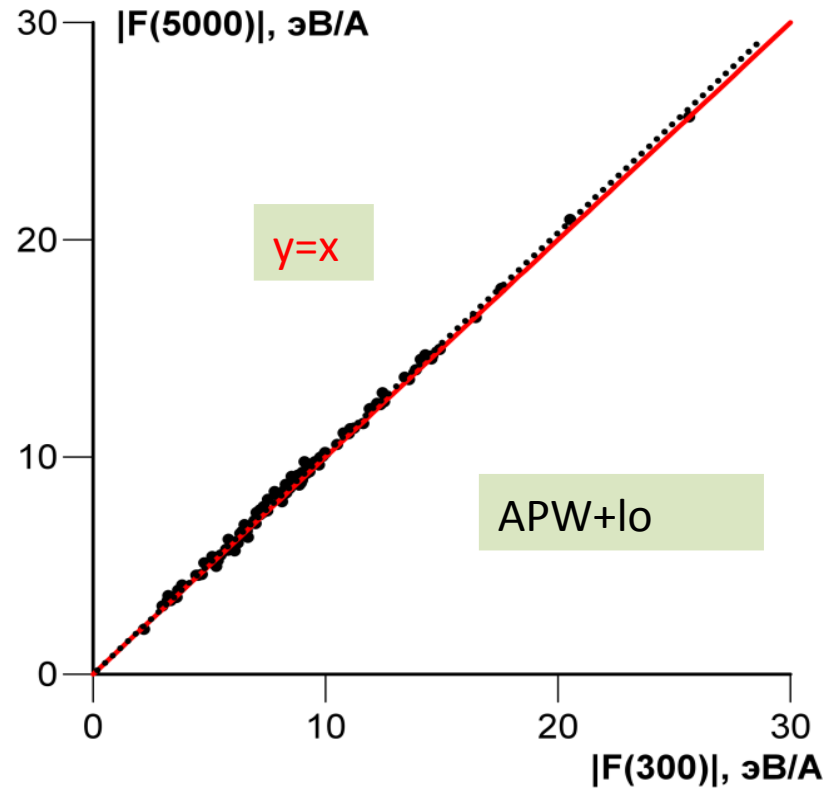
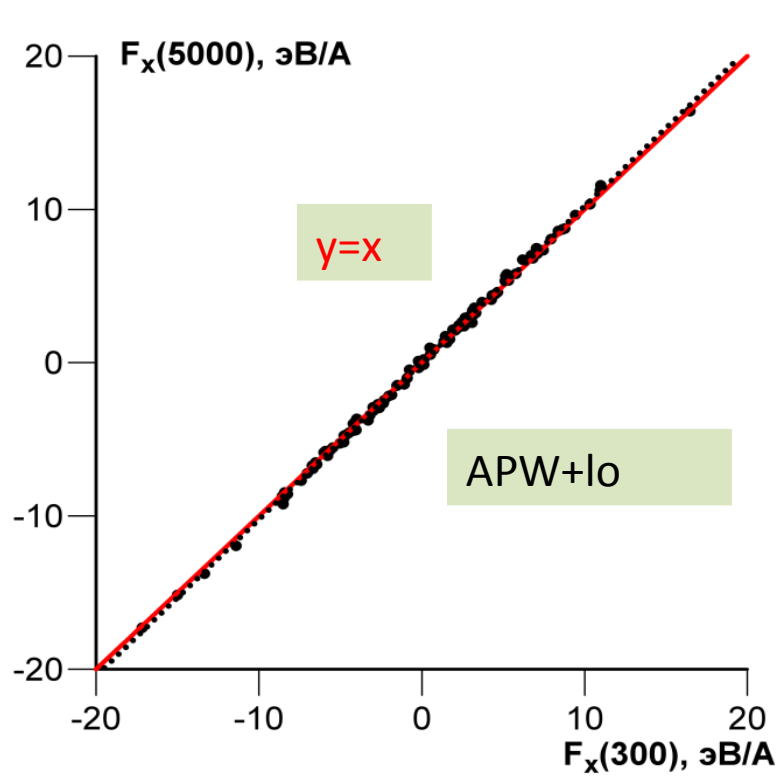


$$E_A^{(a)} - E_B^{(a)} = - \int_{A \rightarrow B} \vec{F}^{(a)} d\vec{\tau}_{A \rightarrow B}$$



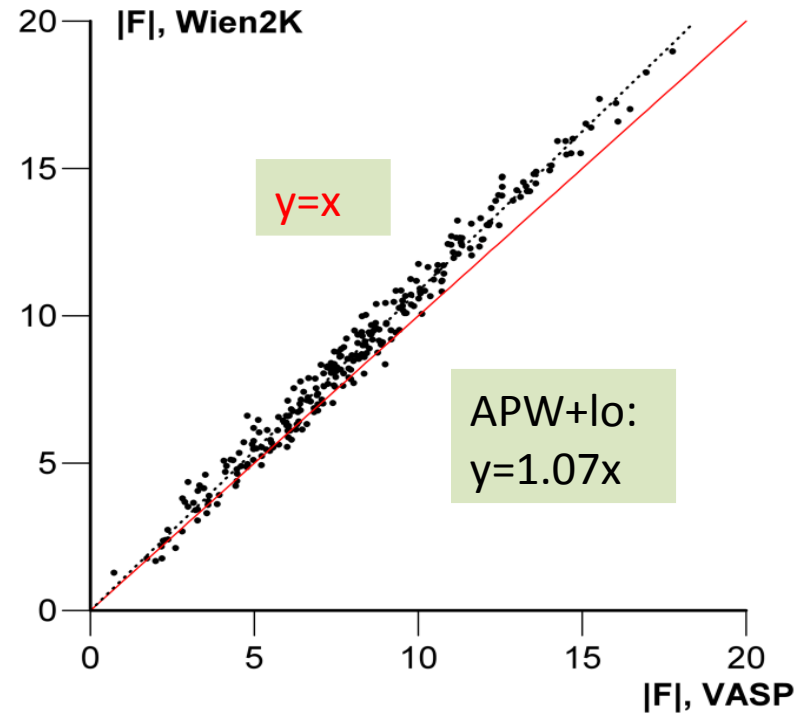
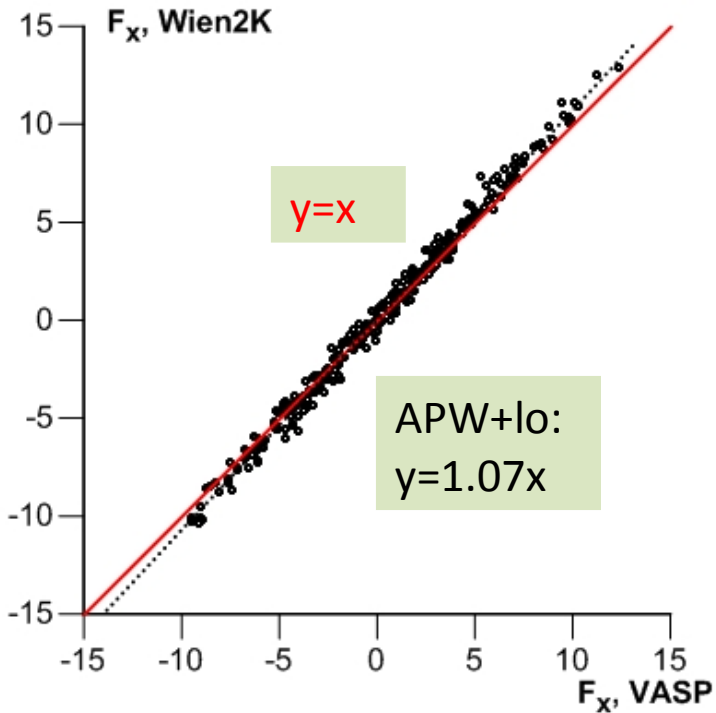
Тепловые эффекты в γ -U при $T < 5000$ K

IV

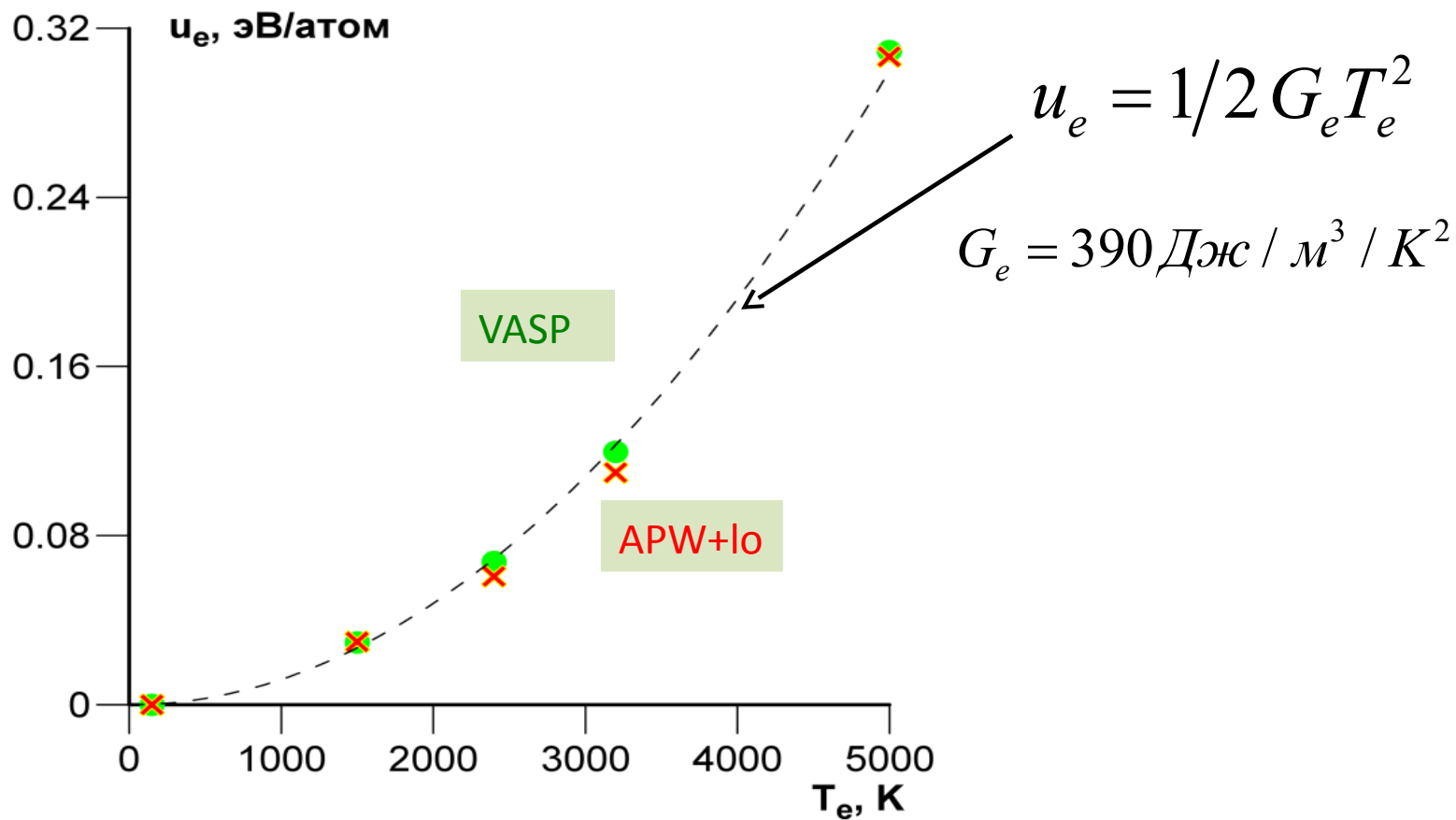


Тепловые эффекты в γ -U при $T < 5000$ K

IV



Эффект электронного нагрева при $T < 5000$ К



Оценка расхождения тепловой энергии

IV

$$F - F_0 \approx \langle U - U_0 \rangle_i - \frac{1}{2k_B T} \left\langle \left(U - U_0 - \langle U - U_0 \rangle_i \right)^2 \right\rangle_i$$

$$F_{FE}^{(c)} - F_{psp}^{(c)} \approx \left\langle U_{FE}^{(c)} - U_{FE}^{(c)} \right\rangle_i - \frac{1}{2k_B T} \left\langle \left(U_{FE}^{(c)} - U_{FE}^{(c)} - \left\langle U_{FE}^{(c)} - U_{FE}^{(c)} \right\rangle_i \right)^2 \right\rangle_i$$

T, K	ΔE_1 , мэВ/атом	ΔE_{54} , мэВ/атом
1500	6(-0.05)	17(-0.05)
5000	-5(-0.015)	11(-0.015)

Выводы

- Метод функционала плотности позволяет дать количественное описание фазовой диаграммы твёрдого урана при сжатии до 1ТПа, если заранее известны фазы-кандидаты:

α -ОЦТ переход при 280 ГПа, стабильность ОЦТ при $P < 1$ ТПа

- Результаты псевдопотенциальных расчётов, использованных для разработки фазовой диаграммы урана, подтверждаются полноэлектронными вычислениями:

холодные кривые, энергии Фаз, путь Бейна, соответствие сил, свободная энергия, электронная внутренняя энергия

Спасибо за внимание!

