

Potencial interatómico tipo EAM para U

EAM-type interatomic potential for U

Pascuet M.I.⁽¹⁾, Fernández J.R.^(1,2), Monti A.M.⁽²⁾

⁽¹⁾ CONICET

⁽²⁾ UNIDAD DE ACTIVIDAD DE MATERIALES, CENTRO ATÓMICO CONSTITUYENTES, CNEA
AV. DEL LIBERTADOR 8250 – BUENOS AIRES – ARGENTINA
e-mail : pascuet@cnea.gov.ar

El uranio transforma alotrópicamente a medida que aumenta la temperatura. La fase α (ortorrómbica) transforma a β (tetragonal) a $T=940\text{K}$. Luego de un rango relativamente reducido de temperaturas, ésta transforma a la fase γ (bcc) a $T=1045\text{K}$, estructura estable hasta la temperatura de fusión ($T=1405\text{K}$). En el presente trabajo se construye un potencial modelo de muchos cuerpos del tipo EAM para uranio puro. Dicho potencial reproduce la estabilidad de la fase α a bajas temperaturas y una transformación a la fase γ a temperaturas más altas. Se estudia la estabilidad de ambas fases con la temperatura así como las propiedades elásticas, expansión térmica y autodifusión. Se evalúa la calidad del potencial comparando los resultados obtenidos con otros extraídos de la literatura.

Palabras clave: uranio, transformación alotrópica, potencial de muchos cuerpos, simulación por computadora.

Uranium transforms allotropically with increasing temperature. The α phase (orthorhombic) transforms into β (tetragonal) at $T=940\text{K}$. After a relatively reduced temperature range, it transforms to γ (bcc) at $T=1045\text{K}$, which is stable up to the melting temperature ($T=1405\text{K}$). In the present work an EAM model potential is developed for pure uranium. The potential reproduces the stability of the α phase at low temperatures and a transformation to the γ phase at higher temperatures. The stability of both phases with temperature as well as the elastic properties, thermal expansion and selfdiffusion is studied. The quality of the potential is evaluated comparing the present results with those extracted from the literature.

Key words: uranium, allotropic transformation, many body potential, computer simulation.

I. INTRODUCCIÓN

El uranio es un metal que sufre diferentes transformaciones alotrópicas a medida que aumenta la temperatura. A bajas temperaturas ($T < 940\text{K}$) es estable la fase α (*strukturbericht* A20). Esta fase posee estructura ortorrómbica con dos átomos por celda en las posiciones atómicas $(\pm y, \mp y, \mp 1/4)$, expresadas en unidades de los vectores de red de la celda primitiva, $(a/2, -b/2, 0)$, $(a/2, b/2, 0)$ y $(0, 0, c)$ (figura 1). A temperaturas intermedias, y en un rango relativamente reducido ($940\text{K} < T < 1045\text{K}$), aparece la fase β , de estructura tetragonal bastante compleja. Finalmente, a temperaturas altas y hasta el punto de fusión ($T=1405\text{K}$), se presenta la fase γ , de estructura cúbica centrada en el cuerpo (bcc)⁽¹⁾. Esta última resulta de interés tecnológico particular en relación a los combustibles de bajo enriquecimiento para centrales nucleares, ya que presenta mejores propiedades (ampollado, dilatación térmica, resistencia a la corrosión, etc.) que la fase α .⁽²⁾

En este trabajo se desarrolla un potencial interatómico del tipo 'átomo embebido' o EAM (Embedded-Atom Model) para la fase α del uranio (o bien, U- α), que reproduce varias de las características experimentales

del uranio puro. La sección siguiente describe las aproximaciones realizadas y el procedimiento de ajuste. En la sección III se reportan los resultados obtenidos cuando se aplica el potencial ajustado al cálculo de propiedades del metal puro a través de diferentes técnicas computacionales. Finalmente, se presentan comparaciones con resultados experimentales y se enumeran algunas conclusiones.

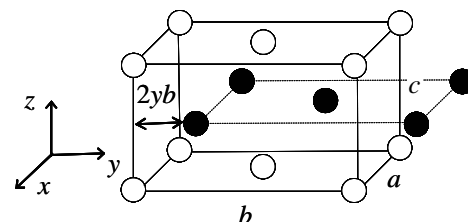


Figura 1: Estructura de la fase U- α . Los círculos vacíos (llenos) indican posiciones en $z=0$ y c ($z=c/2$).

II. AJUSTE DEL POTENCIAL

En el marco del EAM, la energía total para un sistema de un solo componente se expresa como⁽³⁾:

$$E = \frac{1}{2} \sum_{i \neq j} V(r_{ij}) + \sum_i F_i(\rho_i), \quad (1)$$

donde $V(r_{ij})$ es la energía potencial entre los pares de átomos i y j , ubicados a una distancia $r_{ij} = |\vec{r}_j - \vec{r}_i|$, y $F_i(\rho_i)$ es la energía necesaria para ubicar un átomo i en un sitio con densidad electrónica ρ_i . Dicha densidad se calcula como:

$$\rho_i = \sum_{i \neq j} \phi(r_{ij}), \quad (2)$$

en donde $\phi(r_{ij})$ es la contribución de la nube electrónica 'rígida' del átomo j a la densidad del sitio i .

Para el potencial de pares se usa una función polinomial cúbica (*cubic splines*) con m tramos de la forma:

$$V(r) = \sum_{k=1}^m A_k (R_k - r)^3 H(R_k - r), \quad (3)$$

donde $H(r)$ es la función de Heaviside, R_k los puntos de empalme y A_k coeficientes a determinar en el proceso de ajuste. Para la contribución de la nube electrónica se usa la función de apantallamiento de Thomas-Fermi:

$$\phi(\chi) = \begin{cases} e^{-\beta\chi} / \chi & \chi \leq \chi_1 \\ (\chi - \chi_2)(h_1\chi^2 + h_2\chi + h_3) & \chi_1 \leq \chi \leq \chi_2 \\ 0 & \chi_2 \leq \chi \end{cases}, \quad (4)$$

donde $\chi = r/a_0$, a_0 el parámetro de red de equilibrio de la fase α en la dirección x (ver fig. 1), y h_i y χ_j cantidades convenientes para limitar el rango de alcance y empalmar suavemente a cero la función ϕ . La función de embebido puede definirse a través de la ec. (1) como:

$$F(\chi) = E(\chi) - \frac{1}{2} \sum_v n_v V(\chi r_v). \quad (5)$$

En esta expresión, y en otras que siguen más adelante en el texto, el índice v indica las diferentes capas atómicas a partir de una posición genérica en la fase α . La Tabla 1 reporta el número de átomos n_v y la distancia r_v correspondiente a cada capa en dicha estructura. La energía total $E(\chi)$ puede calcularse mediante la ecuación obtenida por Rose y col.⁽⁴⁾:

$$E(\chi) = -E_c (1 + \tilde{a}) e^{-\tilde{a}}; \quad \tilde{a} = 3 \sqrt{\frac{\Omega B}{E_c}} (\chi - 1), \quad (6)$$

donde Ω es el volumen atómico, B el módulo de volumen y E_c la energía de cohesión. De la misma forma, la densidad electrónica ρ en red perfecta puede

Tabla 1: Número de átomos n_v y distancia r_v para cada capa v en términos de los parámetros de red en U- α .

capa v	n_v	r_v^2
1	2	$(2yb)^2 + (c/2)^2$
2	2	a^2
3	4	$(a/2)^2 + (b/2)^2$
4	4	$(a/2)^2 + (b/2 - 2yb)^2 + (c/2)^2$
5	4	$a^2 + (2yb)^2 + (c/2)^2$
6	2	c^2
7	4	$(a/2)^2 + (b/2 + 2yb)^2 + (c/2)^2$
8	4	$(3a/2)^2 + (b/2)^2$

escribirse como $\rho(\chi) = \sum_v n_v \phi(\chi r_v)$. Así, la función $F(\rho)$ queda definida en forma paramétrica a través de χ . En la práctica, para realizar las simulaciones, se confecciona previamente una tabla numérica sobre la cual puede interpolarse el valor de la función F dado un valor de ρ .

En este esquema, el potencial de pares queda definido a menos de una función lineal en $\phi(r)$. Es conveniente adoptar una forma funcional tal que $F'(\rho)=0$ para la estructura en equilibrio (es decir, $\chi=1$). En este caso, el potencial de pares se dice 'efectivo'. Reemplazando las ec. (3) y (6) en (5) y sabiendo que $F'(\rho) = dF/d\rho = (dF/d\chi)/(d\rho/d\chi)$, la condición para que $V(r)$ sea un potencial efectivo queda expresada por:

$$\sum_k A_k [\sum_v n_v r_v (R_k - r_v)^2 H(R_k - r_v)] = 0. \quad (7)$$

Otras condiciones surgen de plantear el equilibrio de fuerzas y tensiones sobre la fase α . Las fuerzas sobre los átomos en las direcciones x y z son nulas puesto que la red posee planos de simetría perpendiculares a dichas direcciones. Por otro lado, el equilibrio de fuerzas en la dirección y arroja la siguiente ecuación:

$$\sum_k A_k [\sum_v \frac{(R_k - r_v)^2}{r_v} H(R_k - r_v) (\sum_{j \in v} y_{0j})] = 0. \quad (8)$$

La última suma se realiza sobre las componentes y de los vectores \mathbf{r}_{0j} con origen en el sitio de referencia '0' hacia cada uno de los átomos j de la capa v . En esta ecuación se ha considerado que el potencial $V(r)$ es efectivo.

En cuanto al equilibrio de tensiones, la existencia de un centro de inversión en la red perfecta anula idénticamente las tensiones de corte, mientras que las tensiones normales implican las tres ecuaciones:

$$\sum_k A_k [\sum_v \frac{(R_k - r_v)^2}{r_v} H(R_k - r_v) \sum_{j \in v} (r_{0j}^\alpha)^2] = 0, \quad (9)$$

donde $\alpha = 1, 2, 3$ y la última suma se extiende a todos los átomos j de la misma capa v .

A estas ecuaciones, se agrega una condición adicional no homogénea, que impone un valor para la energía de formación de la vacancia E_v^f :

$$E_v^f \approx -\frac{1}{2} \sum_v n_v [V(r_v) - F_0'' \phi^2(r_v)], \quad (10)$$

donde $F_0'' = d^2 F / d\rho^2$ evaluada para $a=a_0$.

Reemplazando $V(r)$ por su expresión, ec.(3), y reescribiendo términos se obtiene:

$$\sum_k A_k [\sum_v n_v (R_k - r_v)^3 H(R_k - r_v)] = \sum_v n_v \phi(r_v) F_0'' - 2E_v^f \quad (11)$$

Las ec. (7-9) y (11) forman un sistema de seis ecuaciones en las m incógnitas A_k . Debe destacarse que este sistema no es lineal, puesto que F_0'' depende implícitamente de los A_k a través de la ec. (5). No obstante, el sistema puede linealizarse y resolverse en forma iterativa. Si se utilizan los valores de los parámetros de red que se obtienen experimentalmente o calculados por primeros principios y valores arbitrarios

para los R_k , el sistema carece de solución ($m < 6$) o no arroja potenciales $V(r)$ físicamente aceptables ($m \geq 6$). En cambio, si se eligen parámetros de red tales que las distancias entre primeros y segundos vecinos y las de terceros y cuartos resulten correspondientemente iguales entre sí ($r_1=r_2$, $r_3=r_4$) y $r_6 > R_k > r_5$ ($k=1,2,\dots,m$), el número de ecuaciones independientes se reduce a tres y el sistema tiene solución única cuando $m=3$. La igualdad de las distancias $r_1=r_2$ y $r_3=r_4$ conduce a las siguientes relaciones entre los parámetros de red:

$$\frac{b}{a} = \frac{1}{\sqrt{2y}}; \quad \frac{c}{a} = 2\sqrt{1-2y} \quad (12)$$

a partir de las cuales el volumen atómico queda expresado por:

$$\Omega = \frac{1}{4} abc = \frac{1}{2} a^3 \sqrt{(1-2y)/2y} \quad (13)$$

Los parámetros de red elegidos para el ajuste conservan aproximadamente el valor de Ω observado experimentalmente y calculado por primeros principios. Aunque no se consideraron explícitamente otras ecuaciones, durante el ajuste se puso énfasis en obtener la mayor la estabilidad posible de la fase α frente a otras como la hexagonal simple, hcp, bcc y fcc. En particular, resulta crítico asegurar la estabilidad frente a las dos primeras, debido a que cambios pequeños en el parámetro de red y transforman la red cristalina de hexagonal simple ($y=0$) a hcp ($y = \sqrt{3}/12$).

Por otro lado, la vacancia exige especial atención puesto que en general se obtienen grandes desplazamientos de los dos átomos vecinos de la vacancia ubicados a lo largo de la dirección x (ver fig. 1). La minimización de

Tabla 2: Valores utilizados de la fase α del uranio en el ajuste del potencial. Los parámetros de red a , b y c se dan en \AA , el volumen atómico Ω en \AA^3 , la energía de cohesión E_c ⁽⁵⁾ en eV y el módulo de volumen B en eV/\AA^3 ⁽⁶⁾.

	ajustado	exp.	PP
a	2.7745	2.836	2.845
b	6.0718	5.866	5.818
c	4.9358	4.935	4.996
y	0.1044	0.1017	0.1025
Ω	20.79	20.52	20.67
E_c	5.773	---	5.773
B	0.83	0.846	0.83

Tabla 3: Valores ajustados de los puntos de empalme R_k (en \AA) y coeficientes A_k (en eV/\AA^3) para la función de pares V y constantes utilizadas para la función ϕ .

R_1	4.50	β	5
R_2	4.35	χ_1	1.75
R_3	4.20	χ_2	2.1
A_1	-2.6217703	h_1	-0.035708982
A_2	5.5043693	h_2	0.118645639
A_3	-2.8225308	h_3	-0.100383042

estos desplazamientos se logra a costas de la estabilidad de la fase α frente a las arriba mencionadas.

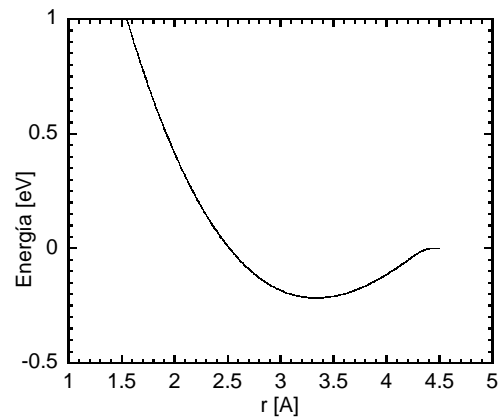


Figura 2: Potencial de pares efectivo ajustado para U- α .

Las cantidades utilizadas en el ajuste se dan en la Tabla 2 y los valores ajustados de r_k y A_k se muestran en la Tabla 3. Una gráfica del potencial ajustado se muestra en la figura 2.

III. CÁLCULO DE PROPIEDADES

A continuación, y con la finalidad de analizar la confiabilidad del potencial en cuanto a su utilización en otras aplicaciones, se compara un cierto número de propiedades calculadas del U con resultados extraídos de la literatura.

Para describir el comportamiento elástico de un cristal con simetría ortorrómbica frente a deformaciones arbitrarias son necesarias nueve constantes elásticas. Sin embargo, el potencial obtenido para U- α se ajustó de manera que reproduzca correctamente sólo el comportamiento elástico frente a cambios de volumen. Es necesario estudiar en este aspecto las diferencias entre el modelo adoptado y el metal real. Para calcular las constantes elásticas de la fase α se aplican pequeñas distorsiones a la red en equilibrio, y se determina el cambio resultante en la energía total. Las constantes elásticas son proporcionales a los términos de segundo orden en el desarrollo de Taylor de la energía en función de la distorsión ⁽⁷⁾. Los valores obtenidos se muestran en la tabla 4, junto a valores extraídos de la literatura ^(6,8). Si bien se observan diferencias importantes, se tiene que las constantes elásticas correspondientes a deformaciones normales C_{ii} son mayores que aquellas correspondientes a deformaciones de corte C_{ij} , como

Tabla 4: Constantes elásticas reproducidas por el potencial ajustado (en eV/\AA^3). También se dan valores calculados por primeros principios (PP) ⁽⁶⁾ y experimentales ⁽⁸⁾.

	C_{11}	C_{22}	C_{33}	C_{44}	C_{55}	C_{66}	C_{12}	C_{13}	C_{23}
EAM	1.19	0.88	1.07	0.16	0.14	0.13	0.68	0.81	0.67
PP	1.87	1.37	2.00	0.94	0.58	0.75	0.31	0.03	0.67
Exp.	1.31	1.34	1.85	0.91	0.59	0.54	-	-	-

predice el cálculo por primeros principios⁽⁶⁾ e indican los resultados experimentales⁽⁸⁾.

El cambio de las propiedades del metal con la temperatura se estudió mediante la técnica de dinámica molecular (DM). Los resultados reportados a continuación corresponden a un sistema con $N=180$ átomos bajo condiciones periódicas. Simulaciones efectuadas con tamaños mayores arrojan resultados similares.

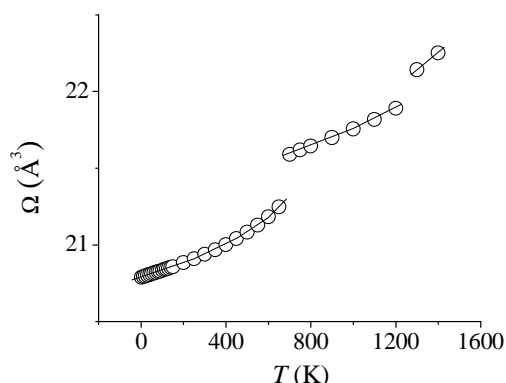


Figura 3: Volumen atómico Ω en función de la temperatura T en U- α .

La figura 3 muestra la variación del volumen atómico Ω en función de la temperatura T en el rango $0 \leq T \leq 1400$ K. Se observan dos discontinuidades alrededor de 650 K y 1200 K que corresponden a cambios de fase. La identificación de dichas fases en cada rango de temperatura puede realizarse mediante la función de correlación de pares. Si $n(r)$ es el número de átomos entre r y $r+\Delta r$ alrededor de un átomo de referencia, dicha función se calcula como:

$$g(r) = \Omega \frac{n(r)}{4\pi r^2 \Delta r} \quad (14)$$

Nótese que esta función tiende a la unidad cuando $r \rightarrow \infty$. La figura 4 muestra $g(r)$ para tres temperaturas arbitrarias en las que cada una de las fases observadas es estable. Las posiciones de los picos para $g(r)$ a $T=300$ y 700 K corresponden a las distintas capas que resultan de las estructuras de las fases α y γ , respectivamente. La curva a $T=1400$ K, con forma de senoide amortiguada, corresponde al líquido.

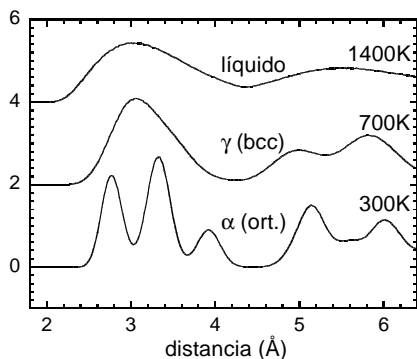


Figura 4: Función de correlación de pares para tres temperaturas típicas correspondientes a los tres regímenes de la fig. 3. Las curvas correspondientes a 700 y 1400 K se han desplazado verticalmente dos unidades para mayor claridad.

A partir de las simulaciones de bajas temperaturas, se calcula la expansión térmica lineal para la fase α , representada en la figura 5. Los resultados muestran que el parámetro de red b disminuye mientras que a y c aumentan cuando aumenta T , en concordancia con datos experimentales^(9,10).

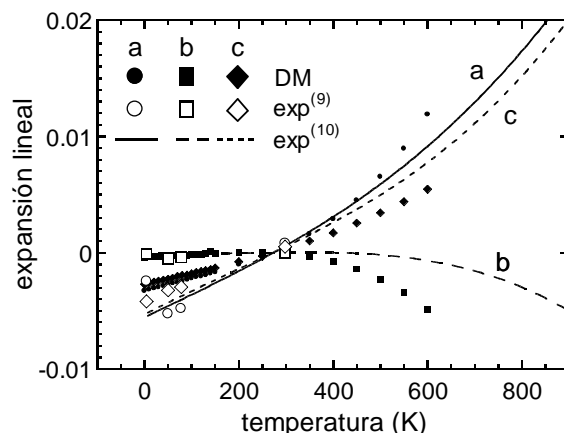


Figura 5: Dependencia de los parámetros de red de la celda ortorrómbica a , b , c del U- α con la temperatura. Los símbolos llenos indican los resultados del presente trabajo. Los símbolos vacíos⁽⁹⁾ y líneas⁽¹⁰⁾ corresponden a resultados experimentales.

Por otro lado, se estudió la dependencia del módulo de volumen B con la temperatura. Dicha constante elástica se define por:

$$B = -V \left. \frac{\partial p}{\partial V} \right|_{T=\text{cte}} \quad (15)$$

donde V es el volumen de equilibrio y p la presión. El cálculo de B se lleva a cabo realizando simulaciones de DM a distintas presiones para cada temperatura deseada. A partir de la curva p vs. V a $T=\text{cte}$. se obtiene la derivada de la ec. (13). La figura 6 muestra que el módulo de volumen disminuye con la temperatura en la fase α y que, en la transición de fase $\alpha \rightarrow \gamma$, B_α es mayor que B_γ , en acuerdo con resultados experimentales⁽¹¹⁾.

La técnica de estática molecular, en la que la energía total de un sistema con N átomos se minimiza como función de las $3N$ coordenadas atómicas, se utilizó para calcular las energías de formación E^f y migración E^m de

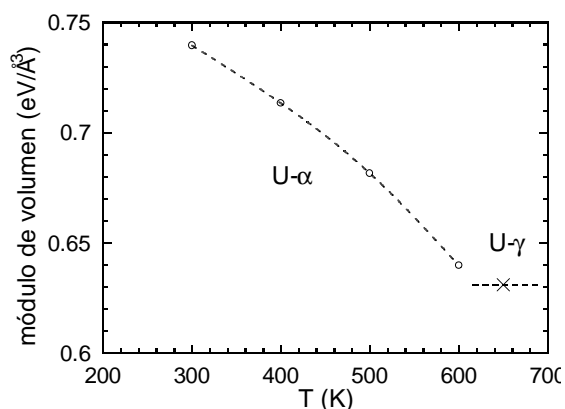


Figura 6: Variación del módulo de volumen en función de la temperatura T .

la vacancia en la fase α . E^f se define como la diferencia entre la red relajada con una vacancia y la red perfecta. Para un sistema con $N \sim 4000$ átomos se obtiene $E^f = 1.36 \text{ eV}$. Por otro lado, E^m se calcula como la diferencia de energía entre la red relajada con el defecto en el punto de ensilladura y la red relajada con el defecto en la posición de equilibrio. La posición de ensilladura se obtiene minimizando la energía en el hiperplano de dimensión $3N-1$ perpendicular a la coordenada de reacción. Cabe destacar que, para la fase α , existen diferentes configuraciones de salto. En este trabajo, hemos considerado saltos de la vacancia hasta cuartos vecinos. La figura 7 muestra una proyección (001) de la celda ortorrómbica de la figura 1, en la que se esquematizan los saltos propuestos, y se indican las energías de migración obtenidas.

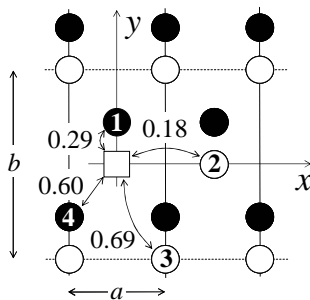


Figura 7: Configuraciones de saltos considerados para U- α . Los círculos vacíos (llenos) indican átomos en $z=0$ ($z=c/2$) y el cuadrado representa a la vacancia. Los números dentro de los círculos indican la capa a la que pertenecen los átomos y el resto de los números corresponden a las energías de migración (en eV).

A partir de los valores obtenidos de E^f y E^m , se estudia la autodifusión por el mecanismo de vacancias en fase α mediante la técnica de Monte Carlo, considerando tiempos de residencia. Ésta consiste en realizar N_{MC} pasos en los que la vacancia ejecuta un salto efectivo por paso hacia alguna de sus Z posiciones atómicas vecinas. La probabilidad $P_{j \rightarrow i}$ de que la vacancia, supuesta inicialmente en el sitio j , se intercambie con su vecino i está dada por:

$$P_{j \rightarrow i} = \Gamma_{i \rightarrow j} / \sum_{l=1}^Z \Gamma_{l \rightarrow j} \quad (16)$$

siendo $\Gamma_{i \rightarrow j} = v_i \exp(-E_{i \rightarrow j}^m / kT)$, $E_{i \rightarrow j}^m$ y v_i la frecuencia de saltos, la energía de migración y la frecuencia de intentos del salto atómico $i \rightarrow j$, respectivamente. En cada paso, el salto de la vacancia se decide generando un número aleatorio r , tal que $0 \leq r \leq 1$. Si la vacancia se encuentra en el sitio j y se cumple $R_{k-1}/R_Z < 0 < R_k/R_Z$, donde $R_k = \sum_{n=1}^k \Gamma_{n \rightarrow j}$, la vacancia se intercambiará con el átomo en la posición k . Simultáneamente, el tiempo se incrementa en una cantidad $\Delta t = 1/R_Z$ (tiempo de residencia promedio de la vacancia en el sitio j). Para cuantificar el transporte atómico se acumulan a cada paso las tres componentes del vector de salto atómico $\mathbf{r}_{i \rightarrow j}$. Una caminata aleatoria del defecto dará lugar entonces a una secuencia de saltos $\mathbf{r} = \sum \mathbf{r}_{i \rightarrow j}$ para cada

átomo. Para realizar la simulación se construye un cristalito de $8 \times 4 \times 4$ celdas ortorrómbicas. Luego, se genera una vacancia en un sitio dado y se comienza a mover el defecto, imponiendo condiciones periódicas. El cálculo se realiza haciendo estadística sobre $\sim 10^2$ trayectorias, cada una con $10^8 - 10^9$ saltos. El coeficiente de difusión se calcula como:

$$D = \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{\langle r^2(t) \rangle}{6t} = \frac{1}{N} \sum_i^N |\mathbf{r}_i(t)|^2 / 6t \quad (17)$$

donde t es el tiempo transcurrido, $\langle r^2(t) \rangle$ es el desplazamiento cuadrático medio al tiempo t , y la suma se efectúa sobre todos los átomos del bloque de simulación.

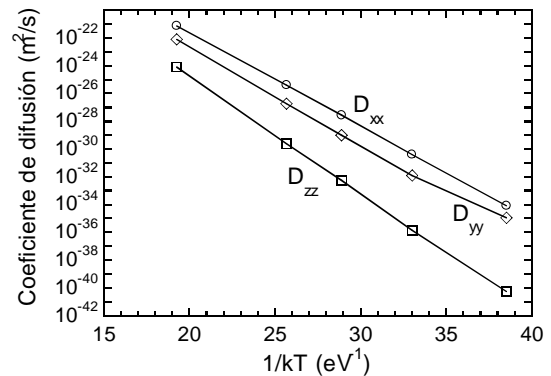


Figura 8: Autodifusión por mecanismo de vacancias en U- α para cada una de las direcciones principales correspondientes a la fig. 1.

En el gráfico de la figura 8 se muestra la dependencia de las componentes del tensor de difusión D_{ii} en función de la inversa de la temperatura. En la literatura existe cierta controversia con respecto a la anisotropía de la autodifusión medida en la fase α ^(12,13). Los valores calculados resultan dos órdenes de magnitud menores que los correspondientes a la observación experimental y predicen una anisotropía muy marcada. Los valores de D_0 y Q extraídos del ajuste a un comportamiento de Arrhenius se reportan en la tabla 5, junto con valores experimentales⁽¹⁴⁾.

Tabla 5: Factores preexponenciales D_0 y energías de activación Q para la autodifusión por mecanismo de vacancias en U- α .

	D_0 (m ² /s)	Q (eV)
x	7.74×10^{-9}	1.55
y	1.05×10^{-8}	1.93
z	4.03×10^{-10}	1.54
total	9.14×10^{-9}	1.55
exp. ⁽¹⁴⁾	2×10^{-7}	1.78

IV-CONCLUSIONES

En comparación con estructuras metálicas más sencillas, la fase α del uranio posee una estructura que tiene pocas simetrías. En principio, tal estructura requiere de un esquema de interacción más elaborado que el de los potenciales de muchos cuerpos utilizados en la literatura puesto que estos últimos representan mejor a las

estructuras compactas. Sin embargo, en el presente trabajo se ha logrado desarrollar un potencial del tipo EAM que estabiliza dicha estructura frente a otras de mayor simetría (hcp, hexagonal simple, bcc, fcc). Esta estabilidad pudo comprobarse a través de simulaciones a temperaturas finitas.

Las discontinuidades registradas en la evolución del volumen a 700K y a 1300K se corresponden con la transformación de la fase α (ortorrómbica) a la γ (bcc) y con el desordenamiento de esta última (posible fusión del material), respectivamente. La función de correlación de pares corrobora lo anterior.

El potencial reproduce el comportamiento elástico del material frente a cambios de volumen, y sólo aproximadamente frente a distorsiones más generales. En acuerdo con lo observado experimentalmente, resulta una disminución del módulo de volumen B con la temperatura y, en el cambio de fase $\alpha \rightarrow \gamma$, se obtiene $B_\alpha > B_\gamma$.

En cuanto a la autodifusión en la fase α , se analizaron los diferentes saltos de la vacancia a primeros vecinos mediante estática molecular. Se observa que la vacancia puede moverse rápidamente a lo largo de los ejes a y c , mientras que a lo largo de b la migración resulta bastante más lenta. La simulación del transporte por mecanismo de vacancias mediante el método de Monte Carlo cinético confirma estos resultados indicando una autodifusión muy anisotrópica.

Agradecimientos

Este trabajo se realizó con el apoyo parcial de los proyectos PIP-5062 (CONICET) y A-C032 (UNSAM). Los autores agradecen a los Dres. V. Ramunni y R. C. Pasianot por fructíferas discusiones y facilitar los códigos de cálculo.

Referencias

- 1 - "CRC Handbook of Chemistry and Physics", ed. D.R. Lide (79^a ed., CRC Press, Cleveland, 1998).
- 2 - M. K. Meyer, G. L. Hofman, S. L. Hayes, C. R. Clark, T. C. Wiencek, J. L. Snelgrove, R. V. Strain y K. -H. Kim, "Low temperature irradiation behavior of uranium-molybdenum alloy dispersion fuel", J. Nucl. Mater. **304** (2002), 221-236.
- 3 - M. S. Daw y M. I. Baskes, "Embedded-atom method: Derivation and application to impurities,

surfaces, and other defects in metals", Phys. Rev B **29** (1984), 6443-6453; M. W. Finnis y J. E. Sinclair, "A simple N-body potential for transition metals", Philos. Mag. A **50** (1984), 45-55.

- 4 - J. H. Rose, J. R. Smith, F. Guinea, J. Ferrante, "Universal features of the equation of state of metals", Phys. Rev. B **29** (1984), 2963-2969.
- 5 - El valor de E_c para U- α se estimó a partir de la diferencia $E_c(\text{U-}\alpha) - E_c(\text{bcc}) = 0.223 \text{ eV/át.}$, calculada por Söderlind [6], y el valor $E_c(\text{bcc}) = 5.55 \text{ eV}$ calculado por J. E. Garcés, A. C. Marino y G. Bozzolo, 24th Int. Meeting on RERT, S. C. de Bariloche, 2002.
- 6 - P. Söderlind, "First-principles elastic and structural properties of uranium metal", Phys. Rev. B **66** (2002), 085113.
- 7 - P. Ravindran, L. Fast, P. A. Korzhavyi, V. Johansson, J. M. Wills, O. Eriksson, "Density functional theory for calculation of elastic properties of orthorhombic crystals: Application to TiSi_2 ", J. Appl. Phys. **84** (1998), 4891-4904.
- 8 - E. S. Fisher, H. J. McSkimin, "Adiabatic elastic moduli of single crystal alpha-uranium", J. Appl. Phys. **29** (1958), 1473-1484.
- 9 - C. S. Barrett, M. H. Mueller, R. L. Hitterman, "Crystal structure variations in alpha uranium at low temperatures", Phys. Rev. **129** (1963), 625-629.
- 10 - H. H. Chiswick, A. E. Dwight, L. T. Lloyd, M. V. Nevitt, S. T. Zegler, "Advances in the physical metallurgy of uranium and its alloys", Proc. 2nd U. N. Int. Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy (Naciones Unidas, Génova, Suiza, 1958).
- 11 - P. E. Armstrong, D. T. Eash, J. E. Hockett, "Elastic moduli of alpha, beta and gamma polycrystalline uranium", J. Nucl. Mater. **45** (1972/73), 211-216.
- 12 - S. J. Rothman, J. J. Hines, J. Gray Jr., A. L. Harkness, "Anisotropy of self-diffusion in alpha uranium", J. Appl. Phys. **33** (1962), 2113-2116.
- 13 - R. Resnick, L. L. Seigle, "The self-diffusion of alpha-uranium", J. Nucl. Mater. **5** (1962) 5-11.
- 14 - P. Ehrhart, P. Jung, H. Schultz, H. Ullmaier, en "Atomic Defects in Metals", ed. H. Ullmaier, Landolt-Börnstein, New Series, Group III, Vol. 25 (Springer-Verlag, Berlin, 1991).