



**Va. Физические
свойства и эффекты
самооблучения в
актинидах и их
сплавах**

Change in Flow Stress and Ductility of δ -Phase Pu-Ga Alloys due to Self-Irradiation Damage

A. Arsenlis, W. G. Wolfer, and A. J. Schwartz

Materials Science and Technology Division, Lawrence Livermore National Laboratory,
P.O. Box 808, L-371, Livermore, CA 94550, USA (arsenlis@llnl.gov)

An internal state variable model for the mechanical behavior of aged Pu-Ga alloys is developed and used to predict the change of the material with accumulated self-irradiation damage or age. The material model incorporates microstructural data such as the primary irradiation-induced defect density from cascades, the density and average size of helium bubbles, the initial dislocation density, and the initial average segment length of the dislocation density as input parameters, and then evaluates the stress-strain response of a representative volume element of the material. Given this response at a single material point, the deformation behavior of tensile specimens is predicted, and it forecasts increased strength, decreased strain hardening, and more strain localization with aging. Although the material point behavior showed some slight strain softening, this strain softening is expected to be masked by statistical variations of different volume elements and by the strain rate sensitivity of the material. Hence, it is not expected to appear in the stress-strain response of macroscopic tensile specimens, and only the increase in flow stress will be measured.

This work was performed under the auspices of the U.S. Department of Energy by University of California Lawrence Livermore National Laboratory under contract No. W-7405-Eng-48.

An Atomistic View of Radiation Damage in Plutonium Metal and Alloys

S. M. Valone, M. I. Baskes, M. Stan, and B. P. Uberuaga

Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, New Mexico, USA (smv@lanl.gov)

Using basic thermodynamic and mechanical properties of plutonium (Pu) metal and its gallium (Ga)-stabilized alloys, an atomistic model is generated from the Modified Embedded Atom Method (MEAM) of Baskes. The essential features of MEAM are that it uses a “universal binding energy relation” (UBER) to calibrate the energetics of the model, includes angular dependencies in the background density function, and uses an analytic, information-theoretic form (“ $x \ln x$ ”) for the embedding energy. The angular-dependence of the background density permits crystal of different symmetries, but the same number of nearest neighbors (e. g. fcc vs hcp), to have different energies. It is this feature that permits MEAM to achieve correct phase ordering in crystalline materials using just first nearest neighbor interactions.

In MEAM, each type of pairwise interaction must possess its own parameter set. Thus one set of parameters is needed for each combination: Pu-Pu, Ga-Ga, and Pu-Ga. In all three cases, a cubic structure is used as the basis for the UBER. For Pu and Ga, the fcc structure is used, while for Pu-Ga, the $L1_2$ structure, without tetragonal distortions, is used. The cohesive energy, bulk modulus, and atomic volume are the main properties needed to determine the UBER. For Pu-Pu and Ga-Ga, the pressure derivative of the bulk modulus is also included, resulting in a higher-order UBER.

The background density parameters are determined from other sources of information. The primary sources are the shear modulus for Ga-stabilized δ -Pu, the atomic volume of α -Pu, and the formation energy between the α and δ phases of Pu metal.

Once these interactions are determined, a phase diagram for the complete Pu-Ga composition range is calculated without any further modification to the parameters. The free energy of a candidate phase is calculated using the Einstein oscillator as an ideal reference.

Most of the “ f -electron” physics and how Ga effects the f electrons are contained in the background density, and in particular the symmetry properties of the background density. The model mimics Ga stabilization through the mixing of the Ga and Pu background density parameters. The most critical aspect of the mixing elements concerns how the presence or absence of inversion symmetry in the lattice affects the energy of a particular phase. By controlling sensitivity of the model to the loss of inversion symmetry, we can control the stability of the fcc structure relative to the monoclinic structure. In pure Pu metal at 0 K, the lack of inversion symmetry in the monoclinic structure makes it energetically more favorable. The addition of Ga reduces the relative stability of monoclinic over fcc structures and introduces a barrier to the reversion of Ga-stabilized δ -Pu to α -Pu.

Radiation damage and defects in plutonium (Pu) metal and its gallium (Ga)-stabilized alloys are modeled at an atomistic level using the Modified Embedded Atom Method (MEAM). For radiation damage modeling, we are concerned with the minimum displacement threshold energy in different crystallographic directions of fcc Pu, the damage production as a function of primary knock-on atom (PKA) energy, and the migration rates and energies of formation of small vacancy and interstitial clusters. We attempt to relate radiation damage properties to properties of the Pu-Ga phase diagram. The minimum displacement threshold is determined as a function of Ga concentration. In an earlier model of Pu metal, that threshold was no greater than 10 eV, which might be compared to 14 eV in lead (Pb). The migration rates of mono-vacancies and di-vacancies are estimated from accelerated molecular dynamics simulations. The acceleration technique that was used for Pu is called Parallel Replica Dynamics. This method takes advantage to the special nature of first-order rate processes. Multiple processors (CPUs) perform a dynamical simulation of a migration event on copies of the same cell of atoms assigned to different processors. The migration time is estimated from the cumulative time in all of the processors rather than from the simulation time on a single processor. The geometry and migration rates of an interstitial defect are also estimated from traditional molecular dynamics simulations.

The behavior of small helium (He) filled cavities in pure Pu metal is explored with respect to the effects of cavity size, He-Pu vacancy ratio, low hydrostatic compress (< 15 kbar), bubble

density, and temperature (300-500 K). In the cavity size range from the 1-10 Å diameter, the He over-pressure is adsorbed through interstitial emission. This relaxation mechanism results in local strain fields. Varying the He-Pu vacancy ratio between 2:1 and 6:1 constructed from monovacancies does not cause a change in this mechanism. When 2-Å bubbles at a 2:1 He-Pu ratio are compressed by 15 vol-%, long-range strain fields become apparent. The equivalent simulation for a cell with no He bubble shows no strain fields. When the bubble density is increased from $6 \times 10^{+17}/\text{cm}^3$ to $3 \times 10^{+19}/\text{cm}^3$ with 2-Å diameter bubbles, the strain fields become sufficiently close to provide a transformation pathway between δ -Pu and α -Pu. 10-Å diameter bubbles at 300 K increase the stability of the fcc lattice. The increased stability is such that these simulations can be performed at constant pressure boundary conditions, where as the radiation damage studies on pure Pu metal are conducted at constant volume. The presence of the bubble provides a pressurized free surface that can alleviate the tension in the pure metal lattice that otherwise would lead to a collapse to α -Pu. Finally, when a 10-Å diameter bubble is heated to 500 K, the strain fields almost completely disappear, resulting in a nearly pristine fcc structure. These results are consistent with (1) the 500 K temperature being above the stage V annealing temperature, and (2) the increased stability of the fcc phase at higher temperatures.

References

1. M. I. Baskes, Phys. Rev. B 46, 2727 (1992).
2. M. I. Baskes, Mater. Sci. Eng., A 261, 165 (1999).
3. M. I. Baskes, Phys. Rev. B 62, 15532 (2000).
4. M. I. Baskes, S. P. Chen, and F. J. Cherne, Phys. Rev. B 66, 104 (2002).
5. M. I. Baskes, K. Muralidharan, M. Stan, S. M. Valone, and F. J. Cherne, J. Metals 55, 41 (2003).
6. S. M. Valone, M. I. Baskes, M. Stan, T. E. Mitchell, A. C. Lawson, and K. E. Sickafus, J. Nucl. Mater. 324, 41 (2003).
7. B. P. Uberuaga, S. M. Valone, and M. I. Baskes, preprint, LA-UR-04-6201.

Спиновая восприимчивость стабилизированной галлием δ -фазы плутония по данным ЯМР $^{69,71}\text{Ga}$

С. В. Верховский*, Ю. В. Пискунов*, К. Н. Михалев*, В. Е. Архипов*,
Ю. Н. Зуев**, И. Л. Святков**, С. А. Лекомцев**, А. П. Геращенко*,
А. В. Погудин*, В. В. Оглобличев*, А. П. Танкеев*

* Институт физики металлов УрО РАН, Екатеринбург, Россия (verkhovskii@imp.uran.ru)

** РФЯЦ – ВНИИТФ, Снежинск, Россия

Богатая фазовая диаграмма плутония [1] с шестью последовательными полиморфными превращениями, уникальные транспортные и магнитные свойства обусловлены, во многом, изменением степени локализации электронов 5f-оболочки в различных структурных состояниях Pu. На настоящий момент наиболее широко обсуждается вопрос об основном состоянии f электронной системы в δ -Pu и в стабилизированной δ -фазе сплавов Pu-Ga, Pu-Al.

Спиновая восприимчивость стабилизированной δ -фазы сплава Pu-Ga с содержанием галлия 1.5 % масс исследовалась посредством измерения спектров ЯМР $^{69,71}\text{Ga}$ и скорости ядерной спин-решеточной релаксации ($^{69}\text{T}_1^{-1}$) в интервале температур (5-700 K). Сдвиг (^{69}K) линии ЯМР центрального перехода ($-1/2 \leftrightarrow +1/2$), скорость спин-решеточной

релаксации ($^{69}\text{T}_1^{-1}$) определяются, соответственно, статической и флуктуирующей во времени частями локального магнитного поля, возникающем на немагнитном галлии вследствие сверхтонких взаимодействий с более магнитным ближайшим окружением из атомов Pu. Обнаружена немонотонная с максимумом ($T_{\text{max}} \sim 150$ К) температурная зависимость сдвига линии ЯМР галлия $^{69}\text{K} \sim \chi_{s,5f}(\text{Pu})$ – однородному ($q = 0$) вкладу в спиновую восприимчивость f электронов сплава. Обратимое с температурой поведение $^{69}\text{K}(T)$ свидетельствует о развитии с понижением температуры неустойчивости в f электронном спектре вблизи энергии Ферми, сопровождаемой псевдощелевым уменьшением $\chi_{s,5f}(\text{Pu})$ при $T < 150$ К [2] и, возможно, приводящей в метастабильных сплавах $\text{Pu}_{1-x}\text{Ga}_x$ ($x < 0.04$) при уменьшении концентрации галлия к частичному структурному δ - α' превращению мартенситного типа в этой области температур. Подобное уменьшение ^{69}K с температурой в области $T < 100$ К было обнаружено в стабилизированной δ -фазе сплава $\text{Pu}_{0.983}\text{Ga}_{0.017}$ [3]. Данные ЯМР, полученные при высоких температурах ($T > 200$ К) свидетельствуют в пользу преимущественно локализованного характера $5f$ -состояний в сплаве; при понижении T происходит рост коротковолновых статических и динамических вкладов в $\chi_{s,5f}$ сплава. Однако ЯМР свидетельств формирования статического магнитного порядка в магнитном поле 9.4Т для исследуемого δ -Pu не наблюдалось вплоть до $T = 5$ К.

Литература

1. S. S. Hecker and L. F. Timofeeva, *Los Alamos Sci.* **26**, 244 (2000)
2. Yu. Piskunov et al. *cond-mat/0404460*, submitted to *Phys. Rev. B*
3. N. J. Curro and L. Morales, *Mat. Res. Soc.* **802**, DD2.4.1 (2004)

Немагнитное состояние δ и α фаз плутония

М. А. Коротин*, А. О. Шориков*, А. В. Лукьянов**, В. И. Анисимов*

*Институт физики металлов УрО РАН, Екатеринбург, Россия (mkorotin@optics.imp.uran.ru)

**Уральский государственный технический университет — УПИ, Екатеринбург, Россия

В данной работе исследовались магнитное состояние и электронная структура плутония в δ и α фазах вычислительным методом $LDA+U$ [1] с матричным учётом спин-орбитального взаимодействия ($LDA+U+SO$). Для $5f$ оболочки параметр обменного взаимодействия Хунда $J_H = 0.48$ эВ был рассчитан методом констрэйна. Для этого значения J_H и параметра кулоновского взаимодействия $U = 2.5$ эВ вычисленный равновесный объём δ фазы плутония совпадает с экспериментальным. В расчётах обеих фаз было получено немагнитное основное состояние с ионами Pu в конфигурации f^6 с нулевыми спиновым S , орбитальным L и полным J моментами. Таким образом, в металлическом плутонии реализуется случай jj -связи. Недавно опубликованные экспериментальные данные подтверждают полученные теоретические результаты — отсутствие магнитных моментов в металлическом плутонии [2].

Уровень Ферми располагается на нижнем краю псевдощели между полностью заполненной $f^{5/2}$ и пустой $f^{7/2}$ подзонами. Псевдощель на уровне Ферми сформирована

уже спин-орбитальным расщеплением, что следует из расчёта без учёта эффектов электронных корреляций (методом $LDA+SO$).

В δ фазе плутония небольшое увеличение (менее, чем на 10 %) параметра обменного взаимодействия J_H приводит в расчёте к возникновению магнитного состояния. Для α фазы немагнитное состояние более стабильно (соответствующий рост J_H около 17 %).

Та же электронная конфигурация f^6 , но с ненулевыми магнитными моментами, была получена в соединениях плутония $PuCoGa_5$, $PuSi_2$ и $PuTe$. В остальных исследованных соединениях, PuN , $PuRh_2$ и $PuSb$, ион Pu находится в f^5 конфигурации с значительно большей величиной магнитного момента. В отличие от металлического плутония, для всех его соединений характерен тип связи, промежуточный между jj и ls .

Полученное в настоящем теоретическом исследовании немагнитное состояние металлического плутония является следствием правильного учёта деликатного баланса между спин-орбитальным и обменным взаимодействиями в рамках метода $LDA+U+SO$. Наши результаты демонстрируют, что оба эти взаимодействия должны учитываться в гамильтониане в общей матричной форме как для плутония, так и его соединений.

Литература

1. Anisimov V. I., Aryasetiawan F., and Lichtenstein A. I., *J. Phys.: Condens. Matter* **9** 767 (1997).
2. Lashley J. C., Lawson A. C., McQueeney R. J., and Lander G. H., *preprint cond-mat/0410634*.

Растворимость трифторидов актинидов/лантанидов в расплавленных композициях LiF , BeF_2 и NaF

М. В. Воложин, В. В. Меньшенин, А. В. Панов, В. Г. Субботин
РФЯЦ–ВНИИТФ, г. Снежинск, Челябинская обл., Россия (bkv@vniitf.ru)

Основная цель исследований – получение ключевой информации о физических и химических свойствах фторидов металлов, необходимой для разработки системы MOSART. Концепция MOSART представляет собой расплавную систему с топливом из фторидов трансурановых элементов без добавки UF_4 и ThF_4 . Исходя из пределов растворимости, концепция MOSART в основном будет иметь дело с трансурановыми и редкоземельными элементами в виде растворенных трифторидов. В исследовании MOSART основное внимание уделено новой Na , Li , Be/F композиции с уменьшенным содержанием BeF_2 и LiF .

Растворимость PuF_3 в расплавных композициях $2LiF-BeF_2$, $58NaF-15LiF-27BeF_2$, $58NaF-17LiF-25BeF_2$ была определена в интервале температур 525-675 °C. В экспериментах использован метод изотермического насыщения в расплавленной фазе с селективным измерением распределения PuF_3 с помощью γ -спектрометрии. Время выдержки до установления равновесия при заданной температуре составляло от 20 до 32 часов перед измерением с повышением температуры от 550 до 675 °C.

Экспериментальные данные по растворимости PuF_3 в расплавленной солевой системе $2LiF-BeF_2$ хорошо согласуются с более ранними данными ORNL. Что касается $NaF-LiF$ -

BeF₂ –содержащих систем, снижение содержания BeF₂ с 34 моль% до 25 моль% повышает растворимость PuF₃ в пять раз.

Результаты представлены как функция растворимости от температуры. Для расплавных композиций 58NaF-15LiF-27BeF₂ и 58NaF-17LiF-25BeF₂ (моль%) была получена растворимость PuF₃: 1,33 и 1,94 моль% при 550 °С и 1,94 и 3,00 моль% при 600 °С. Также представлены результаты измерения растворимости PuF₃ в присутствии трифторида (дифторида) лантанидов в Na, Li, Be/F системе. Измеренная растворимость PuF₃ вполне удовлетворяет требованиям для Na, Li, Be/F систем концепции MOSART.

Работа выполнена при финансовой поддержке МНТЦ (проект №1606).

Структурные особенности нелегированного урана после УВН, сопоставление данных световой и просвечивающей электронной микроскопии

Ю. Н. Зуев*, Е. А. Козлов*, И. В. Подгорнова*, В. В. Сагарадзе**

* РФЯЦ–ВНИИТФ, Снежинск, Россия (dep5@vniitf.ru)

**ИФМ УрО РАН, Екатеринбург, Россия (vsagaradze@imp.uran.ru)

Проведен анализ сопоставимости структурных данных сохраненных образцов нелегированного урана, полученных методами световой и просвечивающей электронной микроскопии (метод фольг). Использованы образцы после ударно-волнового нагружения (УВН) в диапазоне амплитуд 21...50 ГПа.

Показано, что для получения объективной информации о структурных особенностях крупнозернистого материала с высокой степенью анизотропии после УВН оба метода являются взаимодополняющими. Значимость и представительность анализа дислокационного строения (метод фольг) может быть дополнена с учетом данных световой микроскопии. Распределение откольных трещин определялось по данным световой микроскопии с привлечением некоторых данных о состоянии карбидной фазы, полученных с использованием электронного микроскопа.

Отмечено различие в способах обработки данных в зависимости от поставленной задачи:

- характеристика материала в целом (зерненная и деформационная структура),
- анализ не типичной структуры на локальных участках, которая определяет анализируемое свойство материала (образование и развитие трещин).

Структура образцов урана после ударно-волнового воздействия

Ю. Н. Зуев*, В. В. Сагарадзе**, Н. В. Подгорнова*, Н. Л. Печеркина**,
М. Л. Мухин**, С. А. Лекомцев*, А. В. Петровцев*, Е. А. Козлов*

* РФЯЦ ВНИИТФ, Снежинск, Россия

** ИФМ УрО РАН, Екатеринбург, Россия (vsagaradze@imp.uran.ru)

Выполнена электронная микроскопия фольг, приготовленных из сохраненных плоских урановых образцов после взрывного нагружения с разной интенсивностью. Материал имеет деформационную полосовую структуру, состоящую из чередующихся двойников, междвойниковых матричных участков и дислокаций. Известно, что плоскостями двойникования в уране могут быть плоскости $\{172\}$, $\{130\}$, $\{112\}$, $\{121\}$, $\{176\}$. Выполненный расчет по расположению основной сетки рефлексов на электронограмме показывает, что плоскостью фольги является плоскость (100) α -урана с параметрами $a = 2,836$, $b = 5,867$, $c = 4,936$ А. След двойника совпадает с направлением $[014]$, что свидетельствует о плоскости двойникования $(1\bar{7}2)$ или $(1\bar{2}1)$. Границы зерен являются зубчатыми. Высота зубцов на отдельных границах достигает 20-30 мкм. Имеются карбиды урана размером до 2-3 мкм. После взрыва формируются также поры, которые иногда объединяются в трещины.

По структуре образцы 1 и 2 (после меньшего и большего взрывного нагружения) отличаются друг от друга. В менее нагруженном образце 1 длинные кристаллы двойниковой ориентации имеют ширину 0,05-0,25 мкм. Дислокационная структура хаотична и соответствует структуре холодной деформации. В нижней части образца 1 количество двойников увеличивается, они часто пересекают друг друга. В образце 2 внутри двойников и соседних матричных участков видна дислокационная структура, соответствующая более высокой температуре разогрева при более интенсивном нагружении, чем в образце 1. На границах полос образуются скопления дислокаций, внутри них формируется ячеистая структура (размер ячеек ~ 25 нм). Кроме того, наблюдается появление субзерен с граничными дислокационными стенками и сетками. Микродифракция от такой структуры в области двойниковой или матричной полосы такая же, как от монокристалла, что свидетельствует об отсутствии рекристаллизации и развитии полигонизационных процессов в более нагруженном образце. Отсутствие рекристаллизации говорит о том, что температура нагрева при взрывном нагружении образца 2 не превышала 300-350 °С. Плотность дислокаций в фольге толщиной ~ 70 нм следующая (в см^{-2}): от 7×10^{10} до $1,1 \times 10^{11}$ (образец 1) и от $3,3 \times 10^{10}$ до 1×10^{11} (образец 2). Плотность дислокаций в стенке на границе субзерна в образце 2 составляет $3,7 \times 10^{11} \text{ см}^{-2}$.

Работа выполнена при финансовой поддержке ВНИИТФ (договор № 7/04), РФФИ (проект № 04-02-16053) и Программы поддержки научных школ (проект НШ-639.2003.2).

Влияние самооблучения на ускорение диффузионных процессов в актинидах

Е. А. Смирнов

Московский инженерно-физический институт (smirnov@phm.mephi.ru)

В связи с необходимостью прогнозирования влияния самооблучения на ускорение диффузионных процессов в актинидах проведен анализ возможности радиационно-стимулированной диффузии (РСД) на примере α -фазы плутония с известной суммарной для всех изотопов плутония скоростью генерации радиационных дефектов $K_0 = 0,1056$ дпа/уг ($3,35 \cdot 10^{-9}$ сна/с) по данным [1].

Для оценки характеристик РСД в α -Pu при естественном самооблучении использовался метод, предложенный ранее [2] и заключающийся в использовании коэффициента ускорения R, оцениваемого по экспериментальным данным по РСД. Для предложенных в настоящей работе оценок коэффициент R определяется с помощью статистической обработки данных по влиянию α -излучения на диффузию в Ag, Au, Ni и Pb. С учетом полученной слабой зависимости R от K_0 температурная зависимость R при самооблучении α -частицами имеет следующий вид (для $T_{nl}^{\alpha-3\epsilon} = 567$ К):

$$R_{РСД}^{\alpha-Pu} = (4,12_{-2,29}^{+5,14}) \cdot 10^{-13} \exp[(14,30 \pm 0,41) \cdot \frac{T_{nl}^{\alpha-Pu}}{T}]$$

Рассчитанная с помощью этого выражения температурная зависимость $D_{РСД}$ в α -Pu имеет вид:

$$D_{РСД} = (1,12_{-0,67}^{+1,84}) \cdot 10^{-16} \exp[-\frac{0,175 \pm 0,024 \text{ эВ}}{k \cdot T}], \text{ см}^2/\text{с},$$

а оцененное значение $E_v^m = 0,35 \pm 0,05$ эВ, что согласуется с ранними оценками [3]. С использованием методик, учитывающих влияние замедляющей РСД примеси, а также границ зерен приведены соответствующие приближенные оценки [3-5].

Литература

1. W. Wolfer. Radiation Damage in Pu, CMS Workshop, LANL, 1998.
2. Е. А. Smirnov, А. А. Shmakov. Defect and Diffusion Forum, 2001, v.194-199, p.1451.
3. Е. А. Смирнов. Тез. Межд. Сем. "Фундаментальные свойства плутония", Саров, 2004, с. 86.
4. Е. А. Смирнов, А. А. Шмаков. Тез. V Межд. Уральского Семинара "Радиационная физика металлов и сплавов", Снежинск, 2003, с. 63.
5. Е. А. Смирнов. Тез. Рос. Научн. Конф. МАЯТ-ТЕМЭК, Агой, 2003, с. 95.

Magnetic Properties of Radiation Damage in Pu

M. J. Fluss, S. McCall, B. W. Chung, M. McElfresh, D. Jackson, and G. Chapline
Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore, California 94550, USA
(fluss1@llnl.gov)

Plutonium's unusual position in the actinide series places it directly between the light actinides with *f*-electron delocalization, and the heavy actinides with *f*-electron localization. Point- and extended-defects are expected to, and do exhibit extraordinary properties as a consequence of the unusual nature of plutonium's electronic structure. Recently, we observed and reported^I that vacancies and vacancy clusters in Pu (3.3 at% Ga) *fcc* delta-phase behave in an anomalous manner with respect to their specific resistance. The vacancy defect resistance was seen to follow a $-\ln(T)$ behavior from 250 to 10 K, suggesting the possibility of local moments with a low critical temperature. Unfortunately no magnetic studies were possible at the time.

Here we report in alpha-Pu, a preliminary study of our discovery of the magnetic susceptibility from radiation damage, as a function of time and temperature. First, using isochronal annealing, we observed annealing stages associated with the accumulated damage, in the form of an excess magnetic susceptibility. The first annealing stage begins above 30K, meaning that below that temperature the displacement damage from self-irradiation of the Pu alpha particle emission and the U recoil are 'frozen' in. These results are comparable and similar to resistivity data on alpha-Pu taken almost 40 years ago by Wigley.^{II} A detailed study was made of this excess magnetic susceptibility below the first annealing stage of alpha-Pu as a function of time (<45d) and temperature (<30 K), at a field of 2 Tesla. It revealed, at early times, a Curie-Weiss behavior with a small negative Weiss temperature that evolves into a power-law behavior with increasing time. Additionally, we will report annealing experiments that appear to differentiate between the magnetic properties of interstitials and vacancies in alpha-Pu.

We will discuss all these results in terms of the complex nature of plutonium's electronic structure and discuss the notion that the properties of local disorder may provide information about the organizing principles of plutonium itself.

This work was performed under the auspices of the U. S. DOE by Lawrence Livermore National Laboratory, under contract W-7405-Eng-48.

References

- ^I M. J. Fluss *et. al*, *Journal of Alloys and Compounds* **368** (2004) 62–74
- ^{II} D. A. Wigley, *Proc. R. Soc. A* **284** (1964) 344

Investigating the δ/α' Phase Transformation in Pu-Ga Alloys

K. J. M. Blobaum, C. R. Krenn, M. A. Wall, and A. J. Schwartz

Chemistry and Materials Science Directorate

Lawrence Livermore National Laboratory

Livermore, CA 94550, USA

(schwartz6@llnl.gov)

The δ to α' phase transformation in Pu-Ga alloys is intriguing for both scientific and technological reasons. On cooling, the ductile fcc δ -phase transforms martensitically to the brittle monoclinic α' -phase at ~ 160 K (depending on composition). This exothermic transformation involves a 20 % volume contraction and a significant increase in resistivity.

Complete transformation to the α' phase is not observed; typically a maximum of 30% is formed. Furthermore, time-temperature-transformation diagrams found in the literature indicate that the kinetics of this transformation involve “double-C-curve” behavior, and the two maximum rates of transformation are a function of composition. The reversion of α' to δ involves a large temperature hysteresis; reversion begins at ~ 310 K. In an attempt to better understand the underlying thermodynamics and kinetics responsible for these unusual features, we examined the α'/δ transformations in a 0.6 wt% Pu-Ga alloy using optical microscopy, transmission electron microscopy, resistometry, and differential scanning calorimetry as shown in Figs 1-4.

At this composition, the martensite start temperature is ~ 154 K and the austenite start temperature is ~ 310 K. Differential scanning calorimetry shows evidence of α' formation and reversion to δ . The feature corresponding to the reversion contains a series of “oscillations” which are the subject of much investigation. These “oscillations” are periodic, and their periodicity with respect to temperature does not vary with heating rate. Thermal cycling of a single sample shows highly reproducible transformation and reversion behavior, provided that the sample is alloyed to “rest” at room temperature after a high temperature anneal. Possible reasons for these observations will be discussed. Elucidating the thermodynamics and kinetics of the δ/α' phase transformation are important for understanding how Pu-Ga alloys can change over time and under a variety of thermal conditions.

This work was performed under the auspices of the U.S. Department of Energy by the University of California, Lawrence Livermore National Laboratory under Contract No. W-7405-Eng-48.

Characterization of Aging Phenomena in Pu-Alloys

Adam J. Schwartz
Chemistry and Materials Science Directorate
Lawrence Livermore National Laboratory
Livermore, CA 94550, USA (schwartz6@llnl.gov)

The time-dependence of the properties of aging plutonium has been the focus of investigation for the past five years. The origin of these aging phenomena is the α -decay process, which produces a 5 MeV α particle and an 85 keV uranium recoil. The U recoil produces significant short-term lattice damage that may lead to volume swelling and the potential for void swelling. The α particle loses energy to electronic excitations before coming to rest as a helium atom. Our first-principles modeling indicates that Pu should be highly resistant to void swelling and in situ dilatometry experiments are underway to evaluate the time dependent behavior of old material. Transmission electron microscopy characterization of new and old material reveals the presence of helium bubbles in line with predictions using rate equations.

An experimental and modeling effort is underway to evaluate the effects of radioactive decay on the equation of state. Two independent methods have been applied to predict the effects of helium on the equation of state: first principles and classical. Both methods predict insignificant changes in the equation of state over time frames of interest. We have also conducted diamond anvil cell experiments to compare the compressibility of new and old material. The preliminary experiments indicate insignificant changes as a function of age.

This work was performed under the auspices of the U.S. Department of Energy by the University of California, Lawrence Livermore National Laboratory under contract No. W-7405-Eng-48.