

УДК 538.955

**МАГНИТНАЯ ВОСПРИИМЧИВОСТЬ АМЕРИЦИЯ****Филанович А.Н., Волков А.Г., Повзнер А.А., Скорюнов Р.В.,  
Шумихина К.А., Мазуренко В.Г.***ФГАОУ ВПО «Уральский федеральный университет имени первого Президента России  
Б.Н. Ельцина», Екатеринбург, e-mail: a.n.filanovich@ustu.ru*

Америций, следующий непосредственно за плутонием в периодической системе, представляет собой стратегически важный элемент, вследствие чего исследование его магнитных свойств, в частности магнитной восприимчивости, имеет важное научное значение. В настоящей работе развивается самосогласованная процедура, объединяющая расчет электронной структуры в рамках метода LDA + U + SO с обобщенной спин-флуктуационной  $s(p)df$ -моделью. В рамках данного подхода рассчитаны плотности состояний и температурные зависимости магнитной восприимчивости америция. Полученные данные позволили объяснить экспериментальные данные из двух независимых источников. Показано, что наблюдающийся в америции необычный переход от кюри-подобной к паули-подобной магнитной восприимчивости обусловлен не наличием магнитной примеси, а изменением баланса между электронными состояниями локализованного и итинерантного типов. Поэтому полученные в работе результаты могут найти практическое применение при оценке концентрации примесей и дефектов (в том числе радиационных) в америции и системах на его основе.

**Ключевые слова:** магнитная восприимчивость, америций, спиновые флуктуации, актиниды, сильно-коррелированные системы

**MAGNETIC SUSCEPTIBILITY OF AMERICIUM****Filanovich A.N., Volkov A.G., Povzner A.A., Skoryunov R.V.,  
Shumikhina K.A., Mazurenko V.G.***Ural Federal University named after First President of Russia B.N. Yeltsin,  
Ekaterinburg, e-mail: a.n.filanovich@ustu.ru*

Americium, which stands directly after plutonium in the periodic table, represents a strategically important element. As a consequence investigations of its magnetic properties, particularly its magnetic susceptibility, are of great scientific importance. In the present study we develop a self-consistent procedure that combines ab-initio calculations of electronic structure in terms of LDA + U + SO method with the generalized spin-fluctuation  $s(p)df$ -model. In terms of this approach we have calculated the densities of states and temperature dependencies of magnetic susceptibility of americium. These calculations enabled to explain the experimental data from two independent sources. It is shown that the unconventional transition from Curie-like to Pauli-like magnetic susceptibility in americium is caused not by presence of magnetic impurities, but by the balance change in the number of localized and itinerant electronic states. Thus the results obtained can have practical applications for the estimations of concentration of impurities and defects (including radioactive) in americium and its compounds.

**Keywords** americium, magnetic susceptibility, spin fluctuations, actinides, strongly correlated systems

Исследование америция, который является ярким представителем ряда актинидов, представляет значительный научный интерес. Америций демонстрирует необычную температурную зависимость магнитной восприимчивости, при этом до сих пор отсутствуют работы, в которых бы давалось последовательное объяснение причин возникновения такой зависимости и её связи с особенностями электронной структуры америция.

В настоящей работе в рамках самосогласованной процедуры, объединяющей первопринципный расчет электронной структуры по схеме LDA + U + SO (в методе FP-LAPW) и модельные представления о тепловых спиновых и зарядовых флуктуациях в системе d-, f-электронов [1,4], рассчитывается электронная структура и температурная зависимость магнитной восприимчивости америция. При этом рассматривается обобщенная  $s(p)df$ -модель, в которой наряду с зонным движением s-, p-, d-, f-электронов и орбитальным расщеплением f-состояний

учитывается внутриузельные хаббардовские ff-, dd-взаимодействия и межузельное df-обменное взаимодействие.

Для вычисления свободной энергии используется подход, который применительно к спин-флуктуационной  $s(p)df$ -модели Хаббарда развивался в работах [1, 4]. В рамках этого подхода гамильтониан взаимодействия включает слагаемые, отвечающие за внутриатомные ff- и dd-отталкивания, записываемые в рамках модели Хаббарда, а также слагаемое, ответственное за df-обменное взаимодействие. С помощью преобразования Стратоновича-Хаббарда задача о взаимодействующих электронах сводится к задаче о невзаимодействующих электронах, находящихся во флуктуирующих зарядовых и обменных полях. Далее выполняется расчет квантово-статистических средних, фигурирующих в получаемом для статистической суммы выражении с использованием теоремы Вика и суммирования получаемых при этом рядов в приближении однородных локальных полей. При этом полученные

выражения учитывают эффекты магнитного (спинового) ангармонизма в произвольных порядках по величине взаимодействия спин-флуктуационных мод. Вычисленная таким образом статистическая сумма позволяет получить выражения для магнитной восприимчивости и плотности электронных состояний при конечных температурах. Наряду со спиновыми магнитными моментами учитываются орбитальные магнитные моменты электронов, поэтому в выражении для магнитной восприимчивости наряду со спиновой восприимчивостью появляется слагаемое Ван-флековского типа:

$$\chi = \chi_s + \chi_{orb}, \quad (1)$$

$$\chi_{orb} = \sum_{l,\alpha,\alpha'} \frac{n^{(l)} [N^{(l)} - n^{(l)} / 2]}{N^{(l)} (\Delta^{(l)} + U^{(l)} m^{(l)} (\alpha - \alpha'))}; \quad (2)$$

$$\chi_s = \chi^{(f)} + \chi^{(d)} + \chi^{(sp)} + J \chi^{(f)} \chi^{(d)}, \quad (3)$$

$$\chi_{\perp}^{(l)} = \sum_{\alpha=\pm 1} \alpha \int d\epsilon g_0^{(l)}(\epsilon) f(\epsilon - \mu - U^{(l)} n^{(l)} / 2 - \alpha U^{(l)} m^{(l)}) / (2U^{(l)} m^{(l)}) \quad (7)$$

– соответствует поперечной, а

$$\chi_{\parallel}^{(l)} = \frac{2 \prod_{\alpha=\pm 1} g_0^{(l)}(\mu + U^{(l)} n^{(l)} / 2 + \alpha U^{(l)} m^{(l)})}{\sum_{\alpha=\pm 1} g_0^{(l)}(\mu + U^{(l)} n^{(l)} / 2 + \alpha U^{(l)} m^{(l)})}. \quad (8)$$

– продольной компонентам парамагнитной восприимчивости невзаимодействующих f- или d-электронов ( $l = f, d$ ), среднеквадра-

где  $N^{(l)}$  – величина орбитального вырождения состояний  $l$ -й зоны ( $l = f, d$ );  $\Delta^{(l)}$  – среднее энергетическое расстояние между энергиями мультиплетов  $l$ -й зоны (которые расщепляются за счет кулоновского и спин-орбитального взаимодействия);  $U^{(l)}$  – параметр Хаббардовского отталкивания электронов в  $l$ -й зоны;  $I$  – однородная часть межзубельного f-d-обменного взаимодействия,

$$\chi^{(sp)} = 2g_0^{(sp)}(\mu); \quad (4)$$

$$\chi^{(l)} = 2 \left( \frac{2}{3} \chi_{\perp}^{(l)} + \frac{1}{3} \chi_{\parallel}^{(l)} \right) D^{(l)} \quad (5)$$

– парамагнитные восприимчивости s-, p- (4) и d-, f-электронов (5),

$$D^{(l)-1} = 1 - \frac{2}{3} U^{(l)} \chi_{\perp}^{(l)} - \frac{1}{3} U^{(l)} \chi_{\parallel}^{(l)} \quad (6)$$

– фактор обменного усиления восприимчивости d- или f-электронов,

– тическая амплитуда спиновых флуктуаций (квадратный корень спин-спинового коррелятора на узле)

$$(m^{(l)})^2 = B^{(l)} \left( \frac{D^{(l)} T}{U^{(l)}} \right)^2 \left\{ 1 + 4 \frac{J^2}{U^{(f)} U^{(d)}} \frac{D^{(l)} D^{(l')}}{1 - B^{(l')} D^{(l')} / B^{(l)} D^{(l)}} \left( 2 + \frac{B^{(l')3} D^{(l')2}}{B^{(l)3} D^{(l)2}} \right) \right\}, \quad (9)$$

где  $n^{(l)}(T)$  – заполнение  $l$ -й зоны, зависящее в силу спин-флуктуационного расщепления от температуры.

Важно отметить, что при расчетах плотности электронных состояний методом LDA + SO + U учитывается Хаббардовский сдвиг энергий  $U^{(l)} n^{(l)}(0)$ . Поэтому при расчете плотности состояний и энергетического спектра f- и d-электронов при  $T^1 0$  учитывается только дополнительная поправка  $U^{(l)} \Delta n^{(l)}$ , обусловленная возможностью температурного изменения заполнения d- и f-зон (а не  $U^{(l)} n^{(l)}(0)$ ), что позволяет избавиться от двойного учета кулоновского взаимодействия. Параметры  $B^{(l)}$  и  $X^{(l)}$  являются коэффициентами разложения Паулиевской восприимчивости электронов в приближении эффективной массы,  $g_0^{(l)}(\epsilon)$  – одноэлектронная плотность состояний электронов  $l$ -й зоны ( $l = s(p), d, f$ ), рассчитываемая в приближении LDA + U + SO (в базисе FP-LAPW). Самосогласование

первопринципного и модельного расчетов достигается за счет того, что магнитная восприимчивость вычисляется с использованием плотности электронных состояний, полученных при том же значении  $U$ , что и в расчете магнитной восприимчивости.

Расчеты электронной структуры были выполнены в пакете Elk [3]. Использовались экспериментальные данные [9] о кристаллической структуре америция, согласно которым в основном состоянии америций обладает двойной ГПУ-структурой с группой симметрии R63/mmc и четырьмя атомами в элементарной ячейке. Самосогласованно найденное значение параметра  $U$  получилось равным 2,85 эВ для f-электронов и 1,80 эВ – для d-электронов, а значение  $J_H = 0,51$  эВ было определено в рамках метода, предложенного в [7], который базируется на использовании потенциала Юкавы и эффективной длины экранирования.

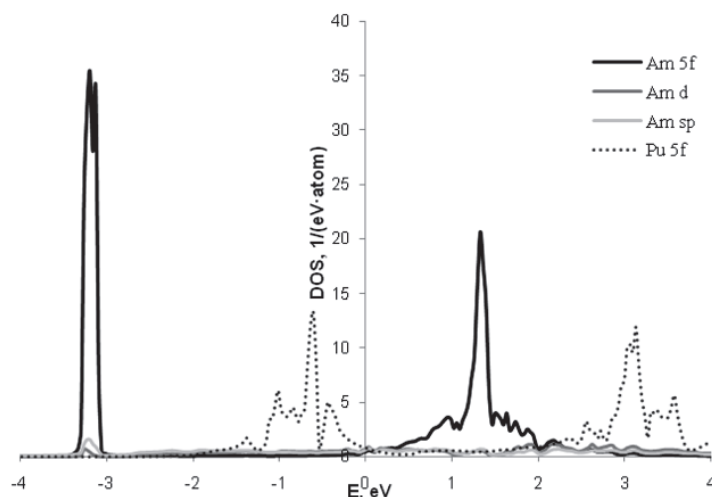


Рис. 1. Парциальные плотности электронных состояний америция; для сравнения показана также плотность состояний 5f-электронов плутония [4]

Полученные парциальные плотности электронных состояний америция показаны на рис. 1, откуда видны достаточно узкие пики, соответствующие 5f-электронам америция. Тем не менее, как видно из рис. 2, вблизи уровня Ферми плотность f-состояний становится сопоставима и на самом уровне Ферми

даже меньше, чем плотности состояний s-, p- и d-электронов. В этом отношении америций существенно отличается от идущего перед ним плутония (в его наиболее важной  $\delta$ -фазе), в случае которого плотность состояний f-электронов на уровне Ферми значительно выше плотности состояний d-электронов [4].

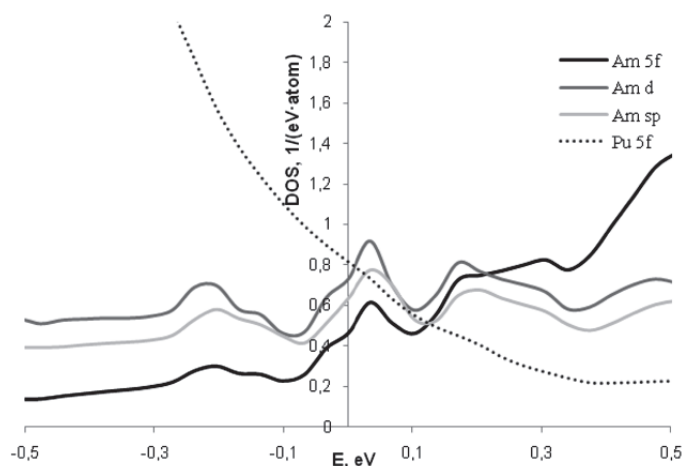


Рис. 2. Парциальные плотности электронных состояний америция вблизи уровня Ферми; для сравнения показана также плотность состояний 5f-электронов плутония [4]

На рис. 1 и 2 в целях сопоставления показана также плотность состояний 5f-электронов  $\delta$ -плутония [1], откуда видно, что в случае америция 5f<sup>5/2</sup>-подзона находится значительно дальше от уровня Ферми, чем в случае плутония, несмотря на не слишком большое отличие в параметрах хаббардовского отталкивания ( $U^f = 2,85$  эВ в случае америция и  $U^f = 2,67$  в случае  $\delta$ -плутония). Этот факт может быть объяснен тем, что при переходе от плутония к америцию происходит достаточно сильная локализация 5f-электронов [6].

Результаты самосогласованных расчетов температурной зависимости магнитной восприимчивости в сопоставлении с экспериментальными данными [5, 8] показаны на рис. 3 и 4. Из рис. 3 и 4 видно, что развитая модель позволяет корректно описывать данные из обоих имеющихся источников. При этом для образца, измеренного в [5], значение константы межэлектронного df-взаимодействия существенно выше, чем в случае образца, измеренного в [8]. Это можно объяснить тем, что эксперимент в [5] и [8] проводился на образцах различной

степени чистоты и различного «возраста», что может оказывать влияние на величину междузельного  $df$ -взаимодействия. Орбитальная восприимчивость америция составила порядка  $6,5 \cdot 10^{-4} \text{ emu} \cdot \text{mol}^{-1}$ , т.е.  $\sim 54\%$  при 0 К и  $\sim 83\%$  при 300 К от величины полной восприимчивости образца, измеренного в [7] и  $\sim 68\%$  при 0 К и  $\sim 81\%$  при 300 К от величины полной восприимчивости образца, измеренного в [8].

Величина спиновой восприимчивости больше в случае образца, измеренного в [5], однако в обоих случаях спиновая восприимчивость состоит из примерно одинаковых вкладов  $f$ - и  $d$ -электронов, а также составляющей, связанной с  $df$ -обменом и незначительного вклада  $s(p)$ -электронов.

Таким образом,  $f$ - и  $d$ -электроны америция играют примерно одинаковую роль в формировании спиновой составляющей его магнитной восприимчивости, что обусловлено сопоставимыми плотностями  $f$ - и  $d$ -состояний америция на уровне Ферми, и что существенно отличает его от плутония [4]. Следует отметить, что приведенные выше значения для орбитальной восприимчивости несколько превышают значения, получаемые непосредственно на основе формулы (9) и поэтому для получения наилучшего согласия с экспериментальными данными нами был учтен дополнительный постоянный вклад, который связан с орбитальным магнитным моментом.

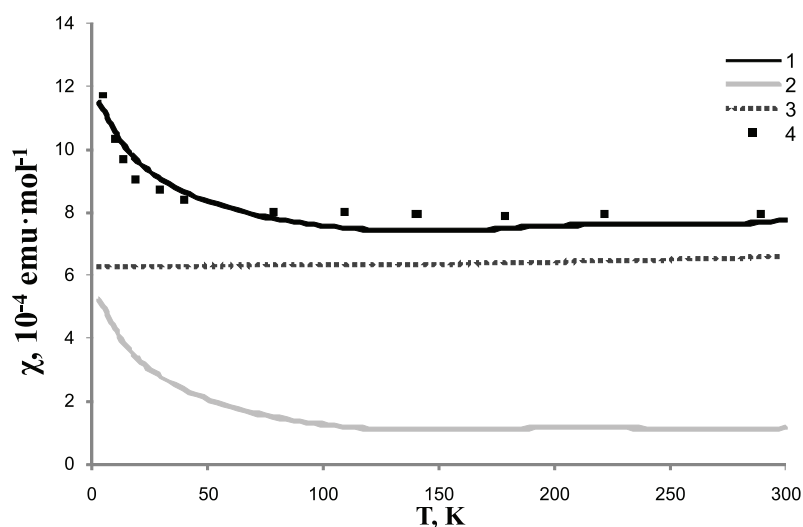


Рис. 3. Температурная зависимость магнитной восприимчивости америция:

- 1, 2, 3 — результат расчета в настоящей работе:  
 1 — полная величина восприимчивости; 2 — спиновая составляющая;  
 3 — орбитальная составляющая; 4 — экспериментальные данные [5]

Было обнаружено, что необычный ход температурной зависимости магнитной восприимчивости америция обусловлен сосуществованием в нем электронных состояний двух типов. При низких температурах доминируют состояния с преобладающей поперечной компонентой магнитной восприимчивости, что эквивалентно наличию локальных магнитных моментов [2, 4] — этим объясняется возникновение при низких температурах кюри-подобной магнитной восприимчивости. С возрастанием температуры начинают преобладать состояния, обуславливающие рост продольной восприимчивости (причем это происходит быстрее для образца, измеренного в [8]), в то время как состояния, ответственные за формирование кюри-подобной восприимчивости, ослабевают. Состояния, обуславливающие рост продольной вос-

приимчивости подобны итинерантным электронным состояниям, магнитная восприимчивость которых практически не зависит от температуры, т.е. является паулиевской. В этом отношении америций демонстрирует поведение, обратное плутонию и ряду других почти магнитных металлов [2, 4], для которых наблюдается обратный переход — от паулиевской к кюри-подобной температурной зависимости магнитной восприимчивости.

Важно подчеркнуть, что согласно полученным нами данным, участок на температурной зависимости магнитной восприимчивости америция, где она практически является постоянной, не является «хвостом» кюри-вейссовской восприимчивости, обусловленной, например, присутствием магнитной примеси, как предполагалось ранее [5], а является результатом увеличения

числа итерационных электронных состояний, которое приводит к подавлению формирования температурно-индуцированных локальных магнитных моментов. Поэтому

полученные результаты необходимо учитывать для корректных оценок концентрации примесей и дефектов (в том числе радиационных) в америции и системах на его основе.

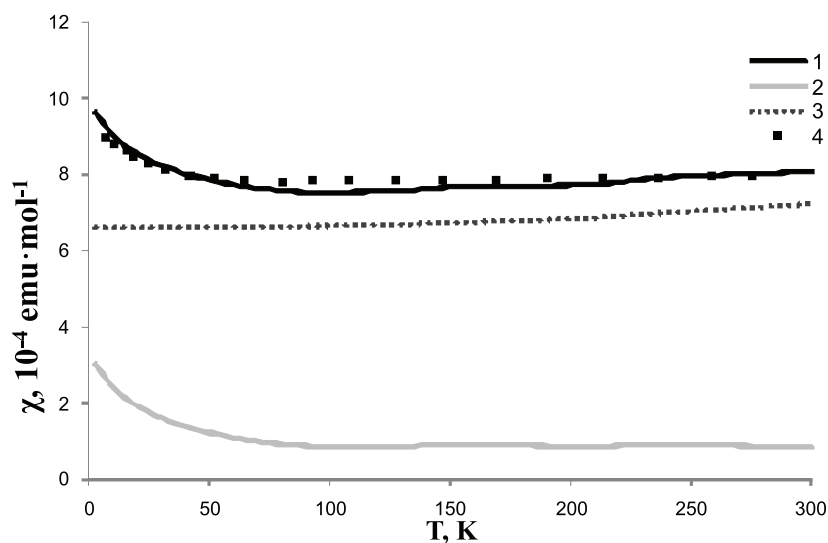


Рис. 4. Температурная зависимость магнитной восприимчивости америция:

1, 2, 3 – результат расчета в настоящей работе: 1 – полная величина восприимчивости, 2 – спиновая составляющая, 3 – орбитальная составляющая; 4 – экспериментальные данные [8]

Работа выполнена при поддержке ФЦП «Научные и научно-педагогические кадры инновационной России» на 2009–2013 годы (Соглашение № 14.А18.21.0737).

#### Список литературы

1. Повзнер А.А., Волков А.Г., Филанович А.Н. Влияние фононного и магнитного ангармонизма на тепловые и упругие свойства почти магнитного δ-плутония // Физика твердого тела. – 2011. – Т. 53., Вып. 9. – С. 1672–1678.
2. Повзнер А.А., Волков А.Г., Филанович А.Н. Электронная структура и магнитная восприимчивость почти магнитных металлов (на примере палладия и платины) // Физика твердого тела. – 2010. – Т. 52, Вып. 10. – С. 1879–1884.
3. Elk. Программный пакет, реализующий метод FP-LAPW + lo. URL: <http://elk.sourceforge.net> (дата обращения 05.09.2012).
4. Filanovich A.N., Povzner A.A., Volkov A.G. The peculiarities of δ-plutonium electronic structure and magnetic susceptibility // J. Phys.: Conf. Ser. – 2011. – Vol. 286. – 012047.
5. Kanellakopoulos B., Blaise A., Fournier J. M., Muller W. The magnetic susceptibility of Americium and curium metal // Solid State Communications. – 1975. – Vol. 17. – P. 713.
6. Moore K.T., van der Laan G. Nature of the 5f states in actinide metals // Rev. Mod. Phys. – 2009. – Vol. 81. – P. 235.
7. Norman M.R. Calculation of effective Coulomb interaction for Pr<sup>3+</sup>, U<sup>4+</sup>, and UPt<sub>3</sub>. // Phys. Rev. B. – 1995. – Vol. 52. – P. 1421.
8. Troc R., Suski W.: 3.1.2.2.2 Magnetic properties / Wijn, H.P.J. (ed.) // SpringerMaterials – The Landolt-Börnstein Database. URL: <http://www.springermaterials.com>. (дата обращения 20.04.2011).
9. Wyckoff R.W.G. Crystal Structures. Vol. 1. John Wiley & Sons, New York, London, 1963.

#### References

1. Povzner A.A., Volkov A.G., Filanovich A. N. Effect of the phonon and magnetic anharmonicity on the thermal and

elastic properties of nearly magnetic delta-plutonium. – Phys. Of Solid State. 2011, Vol. 53, pp. 1761–1768.

2. Povzner A.A., Volkov A.G., Filanovich A.N. Electronic structure and magnetic susceptibility of nearly magnetic metals (palladium and platinum). – Phys. Of Solid State. 2010. Vol. 52, pp. 2012–2018.

3. Elk. An all-electron FP-LAPW + lo code, available for free at <http://elk.sourceforge.net>.

4. Filanovich A.N., Povzner A.A., Volkov A.G. The peculiarities of δ-plutonium electronic structure and magnetic susceptibility. – J. Phys.: Conf. Ser. 2011, Vol. 286, 012047.

5. Kanellakopoulos B., Blaise A., Fournier J. M., Muller W. The magnetic susceptibility of Americium and curium metal. – Solid State Communications. 1975, Vol. 17, pp. 713.

6. Moore K.T., van der Laan G. Nature of the 5f states in actinide metals. – Rev. Mod. Phys. 2009. Vol. 81, pp. 235

7. Norman M.R. Calculation of effective Coulomb interaction for Pr<sup>3+</sup>, U<sup>4+</sup>, and UPt<sub>3</sub>. – Phys. Rev. B. 1995. Vol. 52, pp. 1421.

8. Troc R., Suski W.: 3.1.2.2.2 Magnetic properties. In: Wijn, H.P.J. (ed.). SpringerMaterials – The Landolt-Börnstein Database. <http://www.springermaterials.com>. doi: 10.1007/10008848\_9.

9. Wyckoff R.W.G. Crystal Structures. Vol. 1, pp. 7–83. John Wiley & Sons, New York, London, 1963.

#### Рецензенты:

Ивлиев А.Д., д.ф.-м.н., профессор кафедры физики ФГАОУ ВПО «Российский государственный профессионально-педагогический университет», г. Екатеринбург;

Сидоренко Ф.А., д.ф.-м.н., профессор кафедры физики ФГАОУ ВПО «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина», г. Екатеринбург.

Работа поступила в редакцию 26.10.2012.