

## Первопринципное исследование магнитного состояния плутония

Анисимов В.И., Коротин М.А., Лукоянов А.В., Шорицов А.О.



**Нашими исследованиями в рамках созданного расчетного метода LDA+U+SO установлено, что вследствие тонкого баланса между спин-орбитальным и обменным взаимодействиями в  $f$ -оболочке для чистого плутония реализуется немагнитное основное состояние с конфигурацией ионов  $f^6$  и с нулевыми спиновым  $S$ , орбитальным  $L$  и полным  $J$  моментами. При нарушении упомянутого баланса, например, введением примесей или дефектов в решетку плутония, последний начинает проявлять слабые магнитные свойства, обнаруживаемые в различных экспериментах.**

Обладает ли металлический плутоний магнитным моментом, до сих пор не ясно. Экспериментальные исследования в своей массе свидетельствуют о немагнитном состоянии плутония. Так называемые первопринципные расчеты электронной структуры в приближении функционала электронной плотности приводят к противоположному выводу. Окончательное решение этого вопроса до сих пор отсутствует, поскольку «сильные» аргументы в свою пользу высказывают оба, как экспериментальное, так и теоретическое сообщества.

Для наших исследований магнитного состояния плутония мы развили зонный расчётный метод, называемый LDA+U+SO. В его основе лежит приближение локальной плотности (LDA), включающее кулоновское (U) и спин-орбитальное (SO) взаимодействия в обобщённой матричной форме. Такая модификация стандартного

LDA подхода вызвана сравнимой величиной обменного и спин-орбитального взаимодействий, реализующейся в актинидах. Вычисленные значения одноузельного кулоновского (U), обменного (J<sub>H</sub>) и спин-орбитального (λ) взаимодействий для 5f-оболочки Pu, использованных в LDA+U+SO методе в качестве вводных параметров, составляют U=2.50эВ, J<sub>H</sub>=0.48эВ, λ=0.31эВ. Мы продемонстрировали: 1) чистый Pu в α и δ фазах является немагнитным, 2) Pu с дефектами типа примеси замещения и вакансии может быть слабо магнитным, что обнаруживается в различных экспериментах.

Происхождение немагнитного LDA+U+SO решения, например, для δ фазы Pu, может быть понято с помощью результатов стандартного LDA+SO расчёта без кулоновских корреляций, но со спин-орбитальным взаимодействием (рис. 1, середина). 5f-зона Pu расщеплена спин-орби-

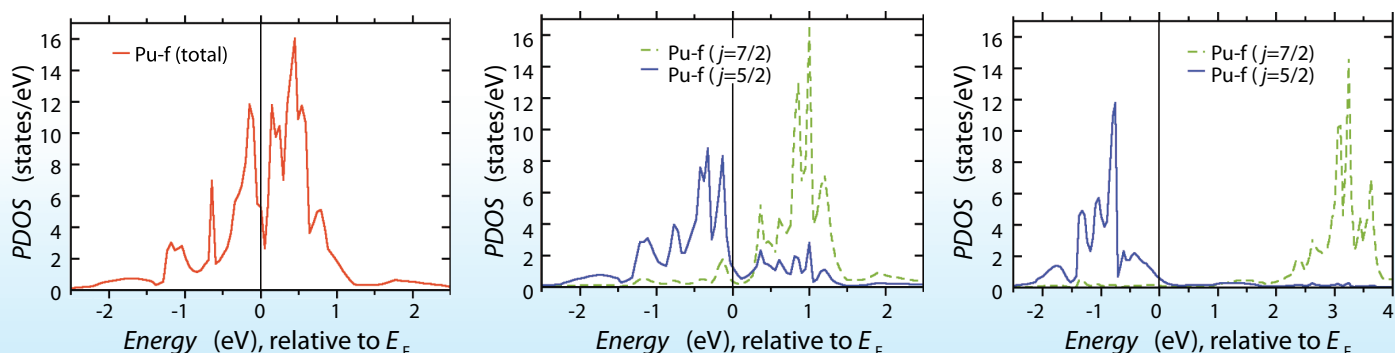


Рис. 1

Парциальные плотности 5f-состояний для чистого δ-Pu

левая панель - вычисленные в LDA; средняя панель - вычисленные в LDA+SO; правая панель - LDA+U+SO результаты

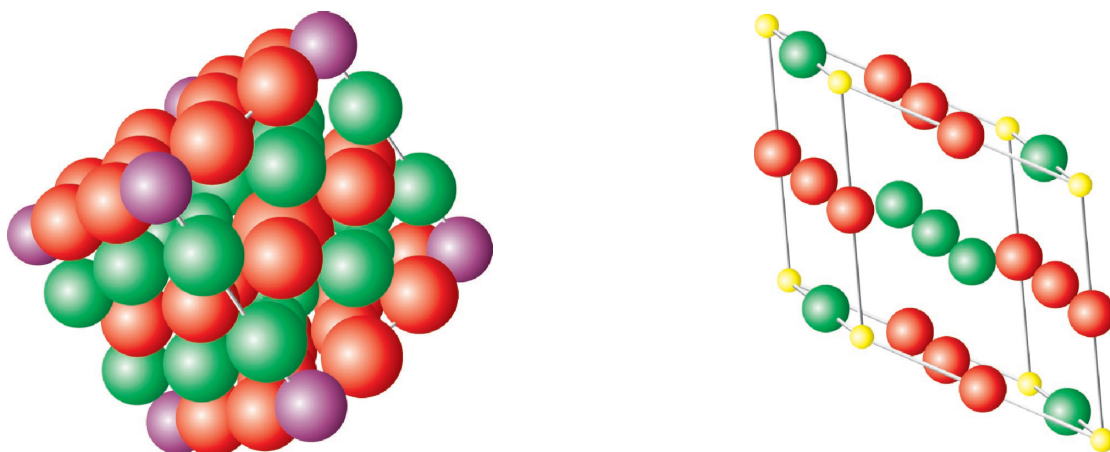
тальным взаимодействием на хорошо различимые  $f^{5/2}$  и  $f^{7/2}$  подзоны с расстоянием между их центрами  $\sim 1.5\text{ЭВ}$ . При сравнении центральной и правой частей *рис.1* видно, что учёт кулоновских корреляций посредством LDA+SO+U потенциала качественно не меняет электронную структуру. Главным эффектом является увеличение расщепления зон от  $1.5\text{ЭВ}$  до  $4\text{ЭВ}$ , что соответствует величине  $U=2.5\text{ЭВ}$ . Другим эффектом учёта кулоновского взаимодействия является почти чистый орбитальный характер  $f^{5/2}$  и  $f^{7/2}$  подзон в LDA+U+SO расчёте по сравнению с заметным примешиванием  $f^{5/2}$  орбиталей к формально пустой  $f^{7/2}$  зоне и наоборот в LDA+SO результатах. Можно сказать, что немагнитное  $J=0$  решение с  $f^{5/2}$  подзоной, заполненной шестью электронами, и пустой  $f^{7/2}$  зоной уже «заложено» в LDA+SO решении. Роль кулоновских корреляций в LDA+U+SO методе заключается в том, чтобы сделать это более отчётливым в отношении уменьшения смешивания  $f^{5/2}$  и  $f^{7/2}$  зон и увеличения энергетического расщепления между ними.

Метод LDA+U+SO сконструирован таким образом, что он подходит для исследования магнитной структуры неколлинеарных магнетиков. При старте с произвольного (например, ферро-) магнитного порядка процесс самосогласования приводит к новому взаимному упо-

рядочению моментов, соответствующему минимальной полной энергии. Нами установлено, что примесь замещения и вакансии порождают значения и направления магнитных моментов по-разному. Как нами исследовано для сверхъядейки, состоящей из 32 атомов Pu, изначально находившихся в позициях  $\delta$  фазы, плюс примесь внедрения в одну из окта-дыр ГЦК решётки (затем атомные позиции были в ней срелаксированы), сама по себе примесь внедрения поляризует 5f-оболочки соседних атомов тем больше, чем они дальше (усредненный  $\mu_{\text{eff}} \sim 0.26 \mu_B/\text{атом}$ ). Сама по себе вакансия (в сверхъядейке из 8 атомов Pu, изначально находившихся в позициях  $\delta$ -фазы, минус один Pu) привносит противоположную тенденцию: ближайшие соседи обладают наибольшим магнитным моментом, величина которого спадает с расстоянием (усредненный  $\mu_{\text{eff}} \sim 0.28 \mu_B/\text{атом}$ ).

Существует ещё один интересный аспект результатов. Если примесь внедрения формирует в сверхъядейке ферромагнитный порядок, близкий к АФМ А-типа, вакансии изменяют этот порядок на С-тип. (*рис.2*).

Более подробно с представленными результатами и выводами можно ознакомиться в публикациях [1-2].



**Рис. 2**

Вычисленные магнитные структуры для случаев примеси замещения (слева) и вакансии (справа)

Слева: розовые шары обозначают примесь внедрения. Размер шара пропорционален величине магнитного момента

Справа: вакансия обозначена желтыми шарами

На обеих панелях красные и зеленые шары обозначают разные направления  $J$ .

<sup>1</sup> Shorikov A.O., Lukoyanov A.V., Korotin M.A., and Anisimov V.I. Phys. Rev. B 72 (2005) 024458

<sup>2</sup> Korotin M.A., Shorikov A.O., Anisimov V.I., Dryomov V.V., Sapozhnikov Ph.A. A topical Conference on Plutonium and Actinides «Plutonium Futures – The Science 2006», Abstracts, p. 160