

Особенности магнитного состояния f -электронов в стабилизированной δ -фазе сплава $\text{Pu}_{0.95}\text{Ga}_{0.05}$

С. В. Верховский¹⁾, В. Е. Архипов, Ю. Н. Зуев⁺, Ю. В. Пискунов, К. Н. Михалев, А. В. Королев,
И. Л. Святлов⁺, А. В. Погудин, В. В. Оглобличев, А. Л. Бузлуков

Институт физики металлов Уральского отделения РАН, 620041 Екатеринбург, Россия

⁺РФЯЦ - ВНИИТФ, Снежинск, Россия

Поступила в редакцию 27 июня 2005 г.

В сплаве $\text{Pu}_{0.95}\text{Ga}_{0.05}$, относящемся к области стабилизированной δ -фазы системы $\text{Pu}-\text{Ga}$, измерены спектры ЯМР ^{69}Ga в интервале температур (10–650) К и статическая магнитная восприимчивость (χ) в интервале $T = (20-350)$ К. В области $T > T^* = 235$ К зависящая от температуры магнитная часть сдвига $K(T)$ линии ЯМР Ga повторяет ход $\chi(T)$, следуя зависимости закона Кюри–Вейсса: $K(T) \sim (T + \Theta)^{-1}$ с $\Theta = 280(40)$ К, типичной для некогерентного режима спиновых флуктуаций локализованных f -электронов в концентрированных немагнитных кондо-системах. Оценка эффективного магнитного момента $\mu_{\text{эф},5f}(g_e = 2) = 0.15(5) \mu_B/\text{ат Pu}$ указывает на сильное подавление спинового магнетизма в сплаве, в котором конфигурация f -оболочки ионов Pu близка к атомноподобной f^6 . Различие $K(T)$ и $\chi(T)$ сплава при $T < T^*$ анализируется с использованием двухжидкостного описания кондорешеток, развитого Пайнсом и др. [15, 16] для области формирования когерентного состояния тяжелой ферми-жидкости. Обсуждаются возможные причины аномального роста длинноволновых вкладов пространственной дисперсии χ_{ff} локализованной компоненты спиновой восприимчивости f -электронов, обнаруженного в области температур ниже 50 К.

PACS: 71.27.1a, 75.30.Cr, 75.40.Gb, 76.60.2k

Электронные свойства плутония и сплавов на его основе интенсивно исследуются на протяжении многих лет, имея в виду исключительное положение этих материалов в современных технологиях и в фундаментальной физике актинидов. В ряду актинидов Pu находится между Np с явно выраженным зонным характером $5f$ -электронов и Am, демонстрирующим дальний магнитный порядок [1, 2]. Богатая фазовая диаграмма плутония [3] 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 $5f$ -электронной системы в δ -Pu и сплавах стабилизированной δ -фазы (ГЦК структура). Большая величина электронного вклада в удельную теплоемкость [4], высокое удельное электросопротивление $\rho(T)$ и его немонотонная температурная зависимость с максимумом ниже 200 К [5] – это те особенности электронных макросвойств, сближающие δ -Pu с тяжелофермионными

системами, в которых имеет место высокая степень локализации f -электронов [6].

Изменение с температурой магнитной восприимчивости $\chi(T)$ стабилизированной δ -фазы (сплавы $\text{Pu}_{0.94}\text{Ga}_{0.06}$, $\text{Pu}_{0.94}\text{Al}_{0.06}$ [5]) также носит немонотонный характер. В области высоких температур $\chi(T)$ следует модифицированному закону Кюри–Вейсса, свидетельствуя, по мнению авторов [5], в пользу локализации f -электронов с эффективным магнитным моментом $m_{\text{эф}} = 1.2 \mu_B$ в сплаве. При охлаждении $\chi(T)$ сплавов проходит через слабо выраженный максимум в той же области температур (100–150) К, что и $\rho(T)$. Наличие максимума $\chi(T)$ объяснено эффектом кондо-компенсации магнитных моментов локализованных f -электронов носителями заряда в области низких температур. Согласно приведенным в [5] оценкам, слабая зависимость $\chi(T)$ обусловлена тем, что подавляющий вклад в магнитную восприимчивость δ -Pu вносит не зависящий от температуры парамагнетизм Ван Флека частично заполненной $5f$ -зоны плутония. Однозначность такой интерпретации природы температурной зависимости $\chi(T)$ и соответствующих высоких оценок статического магнетизма электронов f -оболочки Pu была недавно поставлена под сомнение [7], имея в виду то обстоятельство, что столь слабые изменения с температурой маг-

¹⁾e-mail: verkhovskii@imp.uran.ru

нитной восприимчивости: $\{\chi(150 \text{ K}) - \chi(600 \text{ K})\} \sim \sim 0.05\chi(150 \text{ K})$ могут быть вызваны другими причинами. Действительно, одной из альтернативных причин может являться температурная зависимость паулиевского вклада электронных состояний зоны проводимости в δ -Pu, поскольку по данным электронной фотоэмиссии [8] спектральная плотность состояний $g(E)$ вблизи E_F имеет узкий пик шириной $\sim 700 \text{ K}$. Однако следует отметить, что одночастичная природа подобной аномалии $g(E)$ не находит своего обоснования в теоретических расчетах зонной структуры δ -Pu [9].

Дополнительные осложнения при анализе слабой T -зависимости χ могут быть обусловлены низкотемпературной магнитной нестабильностью, имеющей место при радиационном старении δ -Pu [10] и, возможно, связанной с квантовой неустойчивостью электронной конфигурации Pu в основном состоянии δ -фазы. Для δ -Pu имеет место деликатный баланс между спин-орбитальным и обменным взаимодействиями электронов f -оболочки актинида, и незначительные ($\sim 15\%$) вариации величины обменного интеграла определяют магнитную или немагнитную реализацию основного состояния системы f -электронов в сплаве [9].

В этой связи локальные методы рассеяния нейтронов и ЯМР являются предпочтительными для изучения зарождения и развития с температурой электронной неустойчивости в сплавах стабилизированной δ -фазы плутония. В результате экспериментов по ЯМР, выполненных на ядрах ^{27}Al [11], $^{69,71}\text{Ga}$ [11–13], было показано, что сдвиг линии ЯМР (K), скорость релаксации ядерного спина непереходного металла определяются локальными магнитными полями, возникающими на ядре ЯМР зонда за счет спиновой поляризации, переданной с электронных f -оболочек соседних атомов актинида. Таким образом, изменение сдвига линии ЯМР галлия, K , отражает развитие с температурой спиновых вкладов различной природы в магнитную восприимчивость. В частности, для сплава $\text{Pu}_{0.95}\text{Ga}_{0.05}$ была обнаружена немонотонная с максимумом $T \sim 150 \text{ K}$ температурная зависимость сдвига линии галлия $^{69}\text{K}(T)$ [13]. Ее обратимое с температурой поведение свидетельствует о развитии в электронном спектре δ -фазы с понижением температуры неустойчивости, сопровождаемой уменьшением спиновых вкладов в восприимчивость сплава при $T < 150 \text{ K}$. Однако ЯМР данные, полученные в ограниченном интервале температур 5–350 K, не позволяли установить особенности состояния электронной системы в области высоких температур.

В данной работе приведены детальные измерения температурной зависимости сдвига линии ЯМР ^{69}Ga , выполненные в широкой области температур существования δ -фазного состояния сплава $\text{Pu}_{0.95}\text{Ga}_{0.05}$. Полученные данные позволили дать независимую оценку вклада спинового магнетизма f -электронов в статическую магнитную восприимчивость сплава и внести необходимую ясность в вопрос о степени их локализации в высокотемпературной области существования δ -Pu. В работе приведен также совместный анализ данных ЯМР и статической восприимчивости, полученных на массивных образцах сплава с одной и той же термической предысторией. Различие температурных зависимостей сдвига Найта $^{69}\text{K}_s(T)$ и $\chi(T)$ обсуждается в рамках двухжидкостного описания систем с тяжелыми фермионами в области зарождения и развития с температурой когерентного состояния, предложенного в [14] и развитого для ЯМР приложений в [15].

Образцы в виде набора изолированных пластин ($15 \times 2.5 \times 0.2 \text{ мм}$) для ЯМР экспериментов и параллелепипеда ($8 \times 2.5 \times 2.5 \text{ мм}$) для измерений магнитной восприимчивости были вырезаны из слитка сплава $\text{Pu}_{0.95}\text{Ga}_{0.05}$. Поверхность механически полировалась с последующим электрохимическим травлением для удаления поверхностных примесей и оксидного слоя, возникающих при механической обработке. Затем образцы были подвергнуты гомогенизирующему отжигу при 450°C в течение нескольких часов в атмосфере аргона. После охлаждения образцы были запаяны в стеклянные ампулы-контейнеры в атмосфере спектрально чистого аргона. Измерения статической восприимчивости выполнены с использованием СКВИД-магнетометра MPMS-XL-5 (Quantum Design) в интервале $T = 20\text{--}350 \text{ K}$ и магнитном поле $H = 10 \text{ кЭ}$.

Спектры ЯМР ^{69}Ga ($I = 3/2$) были измерены для интервала $T = 20\text{--}650 \text{ K}$ в магнитном поле 94 кЭ на импульсном фазокогерентном спектрометре ЯМР с квадратурной системой детектирования сигнала. Регистрировался сигнал спинового эха. Спектральная интенсивность сигнала ЯМР центрального перехода ($m_I = -1/2 \leftrightarrow +1/2$) получена в результате последующего комплексного фурье-преобразования второй половины сигнала эха. При измерении спектра ЯМР ^{69}Ga (рис.1), включающего все $2I$ переходы и шириной, существенно превышающей полосу частот, возбуждаемых радиочастотным импульсом, применялось суммирование массива фурье-сигналов, накопленных на различных равноотстоящих частотах спектрометра. Сдвиги линий в образце сплава опре-

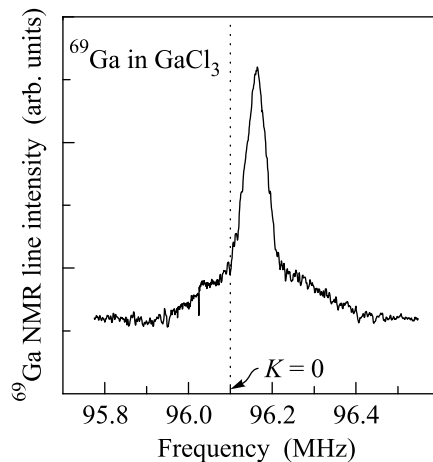


Рис.1. Спектр ЯМР ^{69}Ga в сплаве $\text{Pu}_{0.95}\text{Ga}_{0.05}$, $T = 20\text{ K}$

делены относительно положения пика линии ЯМР ^{69}Ga в GaCl_3 .

При измерениях в области температур ниже 40 K мы учитывали эффекты радиочастотного и радиационно стимулированного нагрева образца сплава, находящегося внутри запаянной ампулы и имеющего ограниченный тепловой контакт с термостатом криостата. Для учета этих эффектов измерялась термодинамически равновесная намагниченность ядер галлия, следующая закону Кюри в интересующем интервале температур: $M_0 \sim T^{-1}$, где T – истинная температура образца. Изменение числа радиопульсов фиксированной длительности варьировалась кратность мощности источника радиочастотного нагрева. Тем самым появлялась возможность оценить тепловой эффект источника радиационно стимулированного нагрева образца сплава. Приведенные ниже данные температурной зависимости сдвига линии ЯМР сплава $^{69}\text{K}(T)$ соответствуют именно истинной температуре пластин образца, определенной с относительной погрешностью $\Delta T/T \leq 0.02$.

Температурная зависимость статической магнитной восприимчивости сплава $\text{Pu}_{0.95}\text{Ga}_{0.05}$ (\square) приведена на рис.2а. При комнатной температуре ее величина составляет $4.7 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^3/\text{mol}$, что примерно на 10% меньше $\chi(300\text{ K}) = 5.3 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^3/\text{mol}$ для близкого по составу δ -фазного сплава $\text{Pu}_{0.94}\text{Ga}_{0.06}$ [5]. Различие абсолютных величин восприимчивости сплавов незначительное и во многом обусловлено погрешностью определения массы образца ($\Delta m/m \sim 0.05$ в нашем случае). Более существенным является различие температурных зависимостей восприимчивости сплавов ниже 200 K. В отличие от кривой $\chi(T)$ с максимумом в области 100–150 K для $\text{Pu}_{0.94}\text{Ga}_{0.06}$ [5] (рис.2 в [5]), в исследованном спла-

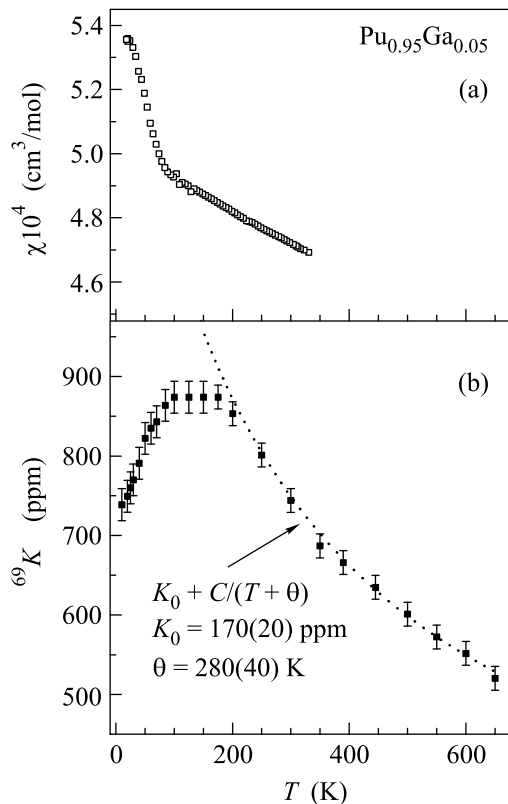


Рис.2. Температурные зависимости: (а) χ – статической магнитной восприимчивости, (б) ^{69}K – сдвига линии ЯМР ^{69}Ga в $\text{Pu}_{0.95}\text{Ga}_{0.05}$

ве $\text{Pu}_{0.95}\text{Ga}_{0.05}$ наблюдается монотонный рост χ с тенденцией к максимуму в более низкотемпературной области ($T < 50\text{ K}$). В подтверждение того, что измеренная зависимость $\chi(T)$ отражает объемные свойства сплава, идентичная температурная зависимость магнитной восприимчивости была получена в результате дополнительных измерений на том же образце, линейные размеры которого были уменьшены на одну треть за счет электрохимического травления поверхности.

Спектр ЯМР ^{69}Ga в сплаве (рис.1) состоит из одиночной центральной линии (переход $m_I = -1/2 \leftrightarrow +1/2$), расположенной на более широком пьедестале сателлитных линий ($m_I = \pm 1/2 \leftrightarrow \pm 3/2$). Подобный спектр характерен для порошка несовершенных кубических кристаллов [16], в которых имеют место локальные искажения кубической симметрии зарядового окружения резонансного ядра Ga, обладающего электрическим квадрупольным моментом. Приведенная на рис.2б температурная зависимость сдвига $^{69}\text{K}(T)$ полностью воспроизводит ранее полученные данные для области температур, ниже комнатной [13], при дополнительном сдвиге прежнего мас-

сива данных на 150 ppm, принимая во внимание результаты более однозначной процедуры определения нулевого значения сдвига по сигналу ЯМР эталонного образца в данной работе.

Для области $T > 200$ К поведение сдвига линии в сплаве δ -Pu удовлетворительно описывается зависимостью в форме закона Кюри–Вейсса: $K(T) = K_0 + C/(T + \Theta)$, с параметрами $K_0 = 170(20)$ ppm и $\Theta = 280(20)$ К (пунктирная кривая на рис.2b). Подобная температурная зависимость наблюдается для сдвига линии ЯМР немагнитных ионов в системах с тяжелыми фермионами выше области формирования когерентного состояния тяжелой фермижидкости, где состояние электронной системы f -ионов удовлетворительно описывается в модели газа невзаимодействующих кондо-центров с локальной спиновой восприимчивостью $\chi_{s,ff}(T) \sim (T + \Theta)^{-1}$. В применении к сплаву стабилизированной δ -фазы Pu, демонстрирующему состояние электронной системы, близкое к тяжелофермионному, можно предположить [13], что изотропный сдвиг линии ЯМР Ga определяется, в основном, сдвигом Найта ${}^{69}K_s$, который обусловлен сверхтонкими взаимодействиями ядерного спина I с электронным окружением. Контактное взаимодействие Ферми с электронами зоны проводимости $\gamma \hbar A I S^c$ формирует не зависящий от температуры вклад ${}^2) K_{s,0}$. Эффект однородной спиновой поляризации электронов зоны проводимости посредством косвенных электрон-ядерных взаимодействий $\gamma \hbar \mathbf{I}(r_i) \cdot \mathbf{B} \cdot \mathbf{S}^f(r_j)$ с более локализованными спинами f -электронов учитывается в виде аддитивного вклада K_f в полный найтовский сдвиг:

$${}^{69}K_s(T) = K_{s,0} + K_f(T) = A\chi_{s,c} + B\chi_{s,5f}(T)/N_A, \quad (1)$$

где константа B полагается изотропной величиной и имеет физический смысл эффективного сверхтонкого поля, создаваемого на ядре Ga электронами $5f$ -оболочек 12-ти ближайших атомов Pu в ГЦК структуре δ -Pu; N_A – число Авогадро; $\chi_{s,5f} = N_A \cdot \chi_{ff}$ – мольная спиновая восприимчивость $5f$ -электронов Pu в сплаве.

Таким образом, в области высоких температур следует ожидать, что сдвиг Найта ${}^{69}K(T) \sim \chi_{s,5f}(T)$. Действительно, линейный участок роста сдвига в параметрической зависимости $K(\chi)$, приведенной на

²⁾ Следует отметить, что аналогично контактному вкладу в сдвиг имеет скалярную форму также вклад поляризации остова K_{sp} , определяющий изотропную часть сдвига атомов переходных металлов при орбитальном составе электронных состояний с $l \neq 0$ вблизи E_F . Однако для непереходного элемента Ga следует рассматривать доминирующим именно вклад контактного взаимодействия ядра с электронами зоны проводимости в орбитальном состоянии $l = 0$.

рис.3, свидетельствует в пользу применимости выражения (1) для описания спинового магнетизма

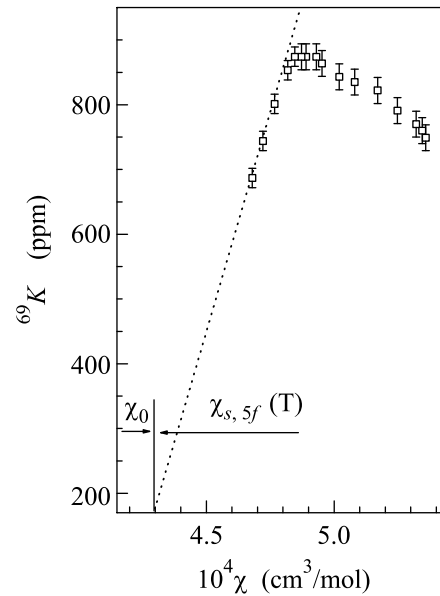


Рис.3. Параметрическая зависимость ${}^{69}K(\chi)$ и результаты разделения вкладов в спиновую восприимчивость сплава $\text{Pu}_{0.95}\text{Ga}_{0.05}$. Пунктирная прямая – результат линейной аппроксимации роста ${}^{69}K$ в области $T = (200-350)$ К

$5f$ -электронов сплава выше 200 К. Экстраполяция $T \rightarrow \infty$ линейного участка $K(\chi)$ зависимости позволяет выделить зависящий от температуры спиновый вклад $\chi_{s,5f}$, величина которого $\sim 0.08(1) \chi$ соответствует $\mu_{\text{eff},5f}$ ($g_e = 2$) = 0.15(5) μ_B – эффективно-му спиновому магнитному моменту f -оболочки атома Pu в сплаве. Из полученной оценки $\chi_{s,5f}$ следует, что при $T > 200$ К доминирующий вклад в χ обусловлен орбитальным состоянием f -электронов в сплаве. Аномально малая величина оценки $\mu_{\text{eff},5f}$ позволяет предположить, что конфигурация f -оболочки Pu в δ -фазе близка к атомноподобной f^6 ($S = 0; L = 0$) [9], и орбитальный вклад Ван Флека определяет статический магнетизм δ -Pu.

В области температур ниже $T^* \sim 200$ К подобию температурных зависимостей $K(T)$ и $\chi(T)$ нарушается. Аналогичное различие в низкотемпературной области наблюдается в соединениях с тяжелыми фермионами и часто связывается с особенностями расщепления (Δ_{CF}) мультиплетной структуры уровней f -иона, приводящими к изменению заселенностей низколежащих мультиплетов при $T \sim \Delta_{CF} < T^*$ и соответствующей вариации величины H_f при формировании когерентного состояния.

В работе [14] было показано, что для “тяжелофермионных” (ТФ) систем энергетический масштаб T^* имеет “многочастичную” природу и определяется интенсивностью взаимодействия кондо-центров. При $T < T^*$, согласно предложенному двухжидкостному описанию концентрированных кондо-решеток, в системе локализованных f -электронов ($\mathbf{S}^f(r_i)$) и электронов проводимости ($\mathbf{S}^c(r_i)$) с суммарным спином $S = \sum_i \mathbf{S}^f(r_i) + \sum_i \mathbf{S}^c(r_i)$ появляется дополнительная спиновая компонента, связанная с когерентным поведением f -электронов. Развитие с температурой когерентного состояния тяжелой ферми-жидкости характеризуется спиновой корреляционной функцией $\langle \mathbf{S}^f(r_i) \mathbf{S}^c(r_i) \rangle$. Соответственно, ниже T^* выражение для спиновой восприимчивости f -электронов $\chi_{s,5f}(T)$ наряду с вкладом изолированных кондо-центров, $\chi_{ff}(T) = (1/N) \sum_{i,j} \langle \mathbf{S}^f(r_i) \mathbf{S}^f(r_j) \rangle$, содержит “тяжелофермионный” вклад поляризации спиновой системы электронов зоны проводимости коррелированной спиновой компонентой f -электронов, $\chi_{cf}(T) = (1/N) \sum_{i,j} \langle \mathbf{S}^f(r_i) \mathbf{S}^c(r_j) \rangle$:

$$\chi_{s,5f}(T) = \chi_{ff}(T) + 2\chi_{cf}(T), \quad (2)$$

и для изотропного сдвига Найта ${}^{69}K_s$ выражение (1) дополняется вкладом $K_{cf} \sim \chi_{cf}$:

$$\begin{aligned} {}^{69}K_s(T) &= K_{s,0} + K_{cf}(T) + K_f(T) = K_{s,0} + A\chi_{cf}(T) + \\ &+ B\chi_{cf}(T) + \chi_{ff}(T) = K_{s,0} + (A+B)\chi_{cf}(T) + B\chi_{ff}(T), \end{aligned} \quad (3)$$

в котором учитываются существенные изменения в механизме передачи на ядра галлия спиновой поляризации f -электронов [15]. Вклад в сдвиг Найта контактного взаимодействия определяется, в основном, спектральным весом ТФ компоненты: $A\langle \mathbf{S}^c \rangle_{q=0} \approx \chi_{cf} H_0$. С учетом уменьшения при $q = 0$ спектрального веса локализованной f -компоненты изменяется также соответствующий вклад косвенного взаимодействия $B\langle \mathbf{S}^f \rangle_{q=0} = (\chi_{cf} + \chi_{ff}) H_0$. Константы A , B определяют интенсивность контактного и косвенного сверхтонких взаимодействий ядра галлия, соответственно, с ТФ делокализованной и локализованной спиновыми компонентами f -электронной системы сплава.

Совместный анализ данных сдвига Найта ${}^{69}K(T)$ и статической магнитной восприимчивости $\chi_{s,5f}(T)$, согласно выражениям (2), (3), позволяет проследить изменение с температурой вклада ТФ компоненты в сдвиг Найта K_{cf} :

$$K_{cf}(T) = {}^{69}K(T) - B\chi_{s,5f}(T) - K_{s,0} = (A - B)\chi_{cf}(T). \quad (4)$$

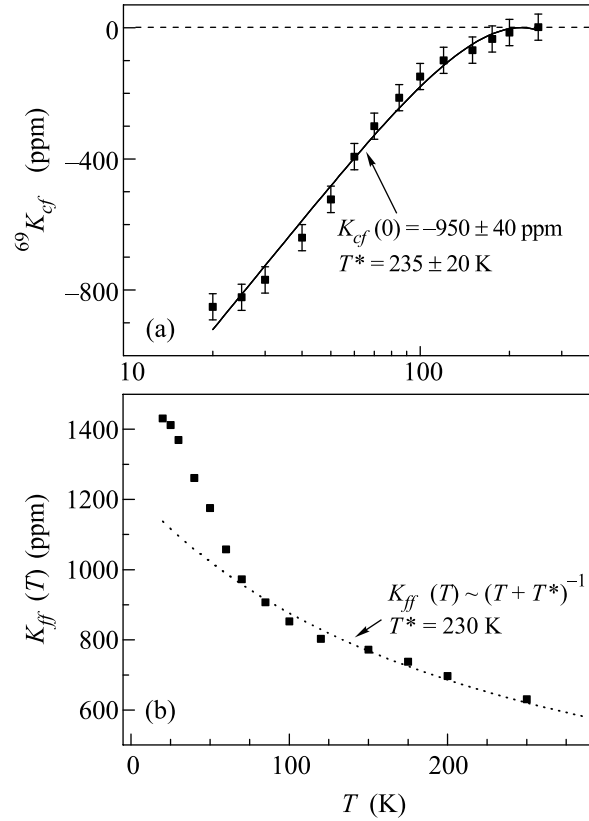


Рис.4. Температурные зависимости: (а) тяжелофермионной компоненты сдвига Найта, $K_{cf}(T)$, в $\text{Pu}_{0.95}\text{Ga}_{0.05}$. Пунктирная кривая – результат аппроксимации данных $K_{cf}(T)$ выражением $K_{cf}(T) = K_{cf}(0)\{(1 - T/T^*) \lg(T/T^*)\}$ при значениях параметров $K_{cf}(0) = -950(80) \text{ ppm}$ и $T^* = 235(20) \text{ K}$; (б) некогерентной спиновой компоненты в сдвиг Найта, $K_{ff}(T)$ в $\text{Pu}_{0.95}\text{Ga}_{0.05}$, полученная с использованием выражений (2)–(4) для отношения $B/A = 0.11$. Пунктирная кривая соответствует зависимости $K_{ff}(T) \sim (T + T^*)^{-1}$ при $T^* = 235 \text{ K}$, ожидаемой в рамках двухжидкостного описания концентрированных кондо-систем [14, 15]. Сплошная кривая: $K_{cf} = K_{cf}(0)\{(1 - T/T^*) \lg(T/T^*)\}$

С понижением температуры вклад ТФ компоненты в сдвиг (рис.4а) возрастает по абсолютной величине с тенденцией выхода на плато $K_{cf} \sim -800 \text{ ppm}$ ниже 30 К. В рамках двухжидкостного подхода предсказывается, что ниже T^* поведение ТФ компоненты спиновой восприимчивости следует универсальной зависимости: $\chi_{cf}(T) \sim (1 - T/T^*) \lg(T/T^*)$, где множитель $(1 - T/T^*)$ определяет долю ТФ компоненты f -электронов. Соответствующая зависимость для ТФ вклада в сдвиг: $K_{cf}(T) = K_{cf}(0)\{(1 - T/T^*) \lg(T/T^*)\}$, изображена на рис.4 пунктирной кривой. При значениях параметров $K_{cf}(0) = -950(80) \text{ ppm}$ и $T^* = 235(40) \text{ K}$ кривая пол-

ностью воспроизводит в широком интервале температур результаты анализа $K_{cf}(T)$ с привлечением экспериментальных данных о сдвиге Найта и статической магнитной восприимчивости, приведенных на рис.1.

Для $T < T^*$ вклад в полный сдвиг локальной спиновой компоненты $K_{ff}(T)$ может быть определен с использованием (3), (4) при известной величине отношения сверхтонких констант B/A . Результаты реконструкции изменения с температурой $K_{ff}(T)$ приведены на рис.4b для $B/A = 0.11$. Константа косвенного взаимодействия $B = 66(6)$ кЭ/ μ_B определена по наклону линейного участка роста в параметрической зависимости $K(\chi)$, приведенной на рис.3, а для константы A , в качестве оценки, использовано значение эффективного сверхтонкого поля, создаваемого на ядре неспаренным $4s$ -электроном: $A(4s) = 580$ кЭ/ μ_B [13, 16]. Пунктирная кривая, приведенная на рис.4b, соответствует температурной зависимости вклада в сдвиг локальной спиновой f -компоненты $B\chi_{ff}(T) \sim (T+T^*)^{-1}$ с $T^* = 235$ К. Как видно, вплоть до $T \sim 50$ К рост $K_f(T) \sim (T+235 \text{ К})^{-1}$ происходит в соответствии с ожидаемым, согласно [14, 15], поведением для спиновой восприимчивости $\chi_{ff}(T)$ в области формирования когерентного ТФ состояния.

Ранее, в пионерской работе [15], поведение $K_{cf}(T)$, аналогичное приведенному на рис.4a для сплава $\text{Pu}_{0.95}\text{Ga}_{0.05}$, было обнаружено для большого числа $4f(5f)$ -соединений с тяжелыми фермионами. Таким образом, высказанное в [13] утверждение о неустойчивости электронного спектра δ -фазы в области низких температур может быть существенно детализировано. В системе взаимодействующих f -электронов Pu δ -фазного сплава $\text{Pu}_{0.95}\text{Ga}_{0.05}$ ниже T^* формируется когерентное состояние тяжелой ферми-жидкости. Это сопровождается ростом спектрального веса длинноволновых низкоэнергетических спиновых флуктуаций f -электронов в сплаве, описывающих делокализованное (ферми-жидкостное) поведение f -электронов в сплаве, за счет уменьшения веса коротковолновых флуктуаций почти локализованного состояния f -электронов при высоких температурах.

При дальнейшем понижении температуры в поведении локального K_{ff} и ферми-жидкостного K_{cf} вкладов в сдвиг возникают существенные отклонения от зависимостей, предсказываемых в рамках двухжидкостного описания. Тенденция выхода на плато $K_{cf}(T)$ ниже 30 К может свидетельствовать о завершении формирования ТФ спиновой компоненты f -электронов. Однако окончательный вывод о поведении K_{cf} в области низких температур зависит

от понимания причин дополнительного роста однородного вклада $\chi_{ff}(q=0)$ локальной спиновой компоненты f -электронов по сравнению с поведением, предсказываемым в рамках двухжидкостного описания: $K_{ff}(T)\chi_{ff}(q=0; T) \sim (T+T^*)^{-1}$ – пунктирная кривая на рис.4b. В этой связи представляются крайне важными результаты исследований особенностей статического магнетизма α -Pu, возникающего при низких температурах в результате радиационного самооблучения материала [10]. Приведенные результаты свидетельствуют о существенной роли эффектов квантовой неустойчивости в определении степени локализации f -электронов Pu в сплаве при наличии в области низких температур столь деликатного баланса энергий локализованного и делокализованного состояний.

В заключение подведем итог. Совместный анализ данных статической магнитной восприимчивости и сдвига Найта ^{69}Ga , полученных в широкой области температур существования стабилизированной δ -фазы, позволил установить особенности магнитного состояния системы f -электронов в сплаве $\text{Pu}_{0.95}\text{Ga}_{0.05}$:

- в области температур выше $T^* = 235(40)$ К поведение спиновой восприимчивости является типичным для некогерентного режима спиновых флуктуаций локализованных f -электронов в концентрированных немагнитных кондо-системах;

- оценка эффективного магнитного момента $\nu_{\text{eff},5f}(g_e = 2) = 0.15(5) \mu_B/\text{ат.Пу}$ указывает на существенное подавление вклада спинового магнетизма в магнитную восприимчивость сплава, что предполагает близость конфигурации f -оболочки Pu к атомноподобной f^6 ;

- поведение $K(T)$ и $\chi(T)$ в сплаве при $30 < T < T^*$ может быть удовлетворительно описано в рамках двухжидкостной модели, развитой Пайнсом и др. [15, 16] для кондо-решеток, в области формирования когерентного состояния тяжелой ферми-жидкости. Однако окончательный вывод о поведении K_{cf} в области низких температур зависит от понимания причин дополнительного роста однородного вклада $\chi_{ff}(q=0)$ локальной спиновой компоненты f -электронов.

Выяснение особенностей низкотемпературного магнетизма f -электронов Pu требует дополнительных исследований пространственной и частотной дисперсий спиновой восприимчивости сплава.

-
1. *Actinides-Chemistry and Physical Properties*, Ed. L. Manes, in *Structure and Bonding*, Eds M. J. Clarke,

- J. В. Goodenough, С. К. Jorgensen et al., Springer-Verlag, Berlin, **59/60**, 1985.
2. *Плутоний. Фундаментальные проблемы*, перевод с английского под ред. Б. А. Надикто и Л. Ф. Тимофеевой, РФЯЦ-ВНИИЭФ, Саров, 2003, по изданию *Challenges in Plutonium Science*, Ed. N. Cooper, Los Alamos Sci. **26**, 2000.
 3. S. S. Hecker and L. F. Timofeeva, Los Alamos Sci. **26**, 244 (2000).
 4. J. C. Lashley, et al., Phys. Rev. Lett. **91**, 205901 (2003).
 5. S. Meot-Reymond and J. M. Fournier, J. of Alloys and Compounds **232**, 119 (1996).
 6. В. В. Мочалков, Н. Б. Брандт, УФН **149**, 585 (1986).
 7. J. C. Lashley, A. Lawson, R. J. McQueeney, and G. H. Lander, cond-mat/0410634.
 8. A. J. Arko, J. J. Joyce, L. Morales et al., Phys. Rev. B **62**, 1773 (2000).
 9. A. O. Shorikov, A. V. Lukoyanov, M. A. Korotin, and V. I. Anisimov, cond-mat/0412724.
 10. M. Fluss, in *Abstracts of MAR05 Meeting*, APS, April, 5-10, 2005.
 11. F. Y. Fradin and M. B. Brodskii, Int. J. Mag. **1**, 89 (1970).
 12. N. J. Curro and L. Morales, cond-mat/0205354.
 13. Yu. Piskunov, K. Mikhalev, A. Gerashenko et al., Phys. Rev. B **71**, 174410 (2005).
 14. S. Nakatsuji, D. Pines, and Z. Fisk, Phys. Rev. Lett. **92**, 016401 (2004).
 15. N. J. Curro, B.-L. Young, J. Schmalian, and D. Pines, Phys. Rev. B **70**, 235117 (2004).
 16. G. C. Carter et al., *Metallic Shift in NMR*, in *Progress in Material Science*, Eds. B. Chalmers, J. W. Christian, and T. B. Massalski, Pergamon Press, Oxford, 1977, v. **20**, part 1, p. 33.
 17. G. R. Stewart, Rev. Mod. Phys. **56**, 755 (1984).