

Origin of band magnetism in mixed-valence materials

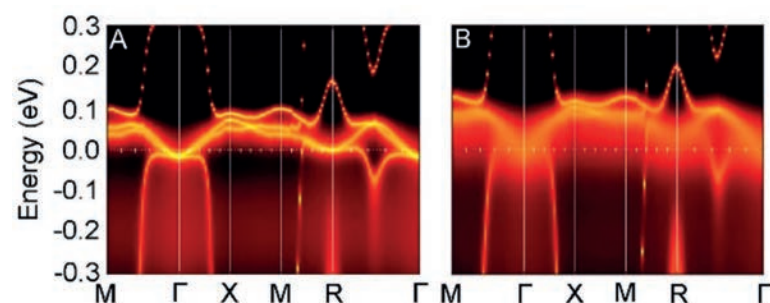
The question of the origin of magnetism is perhaps the oldest scientific problem in the world, dating back to ~2000 BC. During this time, the science of magnetic phenomena has evolved into a vast area of condensed matter physics, where the presence of magnetically active $3d$, $4f$ or $5f$ electronic states leads to a large number of new physical phenomena.

The method of inelastic neutron scattering (INS) is a direct spectroscopic probe, which allows studying and analysing magnetic dynamics at the microscopic level. Here, the results of INS measurements and analysis for the mixed valence (MV) system CePd_3 [1] are presented. The experiments were carried out on the MERLIN spectrometer at the Rutherford Appleton Laboratory, UK.

A development of the dynamic mean field theory (DMFT) in the early 90s of the last century allows taking into account strong electron correlations when calculating the electronic structure and dynamic susceptibility $\chi''(Q, \omega)$ that is related to the scattering law measured in INS experiments as $S(Q, \omega) \sim \chi''(Q, \omega)/(1 - \exp(-\omega/k_B T))$. Figure 1 shows the electronic spectral function of CePd_3 calculated by the DFT+DMFT method for two temperatures (A) 100K and (B) 400K. There are two interesting features of the electronic structure of CePd_3 : presence of two electron pockets at the Fermi level at Γ and R points and unfilled flat bands at ~50 meV at X and M points. An increase in temperature also leads to a substantial loss of coherence of the $4f$ bands near the Fermi level. Figure 2 shows the results of INS

Fig. 1
Electronic spectral function of CePd_3 calculated by the DFT+DMFT method.

Рис. 1
Электронная спектральная функция CePd_3 , вычисленная методом DFT+DMFT.



Зонный магнетизм в материалах с переменной валентностью

Вопрос о происхождении магнетизма, возможно, является самой старой научной проблемой, её появление датируется ~2000 годом до н. э. За это время наука о магнитных явлениях эволюционировала в обширную область физики конденсированных сред, где наличие магнитоактивных $3d$, $4f$ или $5f$ электронных состояний приводит к большому числу новых физических явлений.

Неупругое рассеяние нейтронов (НРН) является прямым спектроскопическим методом изучения и анализа магнитной динамики на микроскопическом уровне. В настоящей работе представлены результаты исследований системы с переменной валентностью (ПВ) CePd_3 [1]. Эксперименты по НРН были проведены на спектрометре MERLIN в Лаборатории Резерфорда Апплетона, Великобритания.

В начале 90-х годов прошлого века была соз-

дана теория динамического среднего поля (dynamical mean field theory — DMFT), позволяющая учитывать сильные электронные корреляции при вычислении электронной структуры и динамической восприимчивости $\chi''(Q, \omega)$, которая связана с законом рассеяния, измеряемого в экспериментах НРН, как $S(Q, \omega) \sim \chi''(Q, \omega)/(1 - \exp(-\omega/k_B T))$. На рис. 1 показаны вычисленные методом DFT+DMFT электронные спектральные функции CePd_3 для двух температур (A) 100K и (B) 400K. Как видно, имеются две интересные особенности электронной структуры CePd_3 : наличие двух электронных карманов на уровне Ферми в Γ и R точках и незаполненных плоских зон при ~50 мэВ в X и M точках, а также — значительная потеря когерентности $4f$ зон в районе уровня Ферми при повышении температуры. На рис. 2 показаны результаты измерений НРН на CePd_3 в абсолютных еди-

measurements for CePd_3 in absolute units at a temperature of 5K in the form of a two-dimensional slice $\chi''(Q, \omega)$ (K, L) and a fixed value of $H = 1.5$, at energies of 35 meV (A) and 60 meV (B). As it can be seen from these two figures, there is a very radical change in the intensity distribution for different energies. Panels (C) and (D) show the results of the DFT+DMFT calculations, which are in very good agreement with the experimental results without any adjustable parameters.

A detailed comparison [1] of 4D $S(Q, \omega)$ from INS experimental data and *ab initio* DFT+DMFT calculations showed excellent agreement over a wide range of $(Q - \omega)$. This is the first successful observation and quantitative analysis based on DFT+DMFT calculations of intraband excitations as a function of $(Q - \omega)$. The physical result of this part of the work is that the inelastic features observed in the exper-

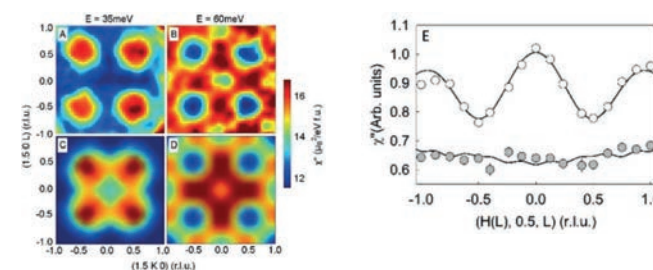
iment are due to the creation of electron-hole pairs. As noted above, an increase in temperature leads to blurring of well-defined (at low temperatures) $4f$ zones (see Fig. 1). The INS measurements performed for CePd_3 at 6 K and 300 K showed a radical change in the magnetic dynamics with increasing temperature. As shown in Figure 2E, the entire structure of dynamic susceptibility at 60 meV disappears completely at 300 K and the DFT+DMFT calculations perfectly describe the observed effect. This means that at high temperatures, the magnetic moments of $4f$ electrons are in a paramagnetic state, and as the temperature decreases, the hybridization of cerium f electrons and palladium d electrons leads to appearance of coherent f bands and, accordingly, to appearance of a rich structure in 4D $\chi''(Q, \omega)$ discussed above.

Fig. 2

Dynamic magnetic susceptibility of CePd_3 (A-D). Temperature dependence of dynamic magnetic susceptibility of CePd_3 (E). Open (grey) circles are INS measurements at 6K (300K) and at energy transfer of 60 meV. Solid lines are the results of DFT+DMFT calculations.

Рис. 2

Динамическая восприимчивость CePd_3 (A-D). Температурная зависимость динамической магнитной восприимчивости CePd_3 (E). Белые (серые) кружки — НРН измерения при 6K (300K) и передаче энергии 60мэВ. Сплошные линии — DFT+DMFT вычисления.



ницах при температуре 5 K в виде двумерного сечения $\chi''(Q, \omega)$ (K, L) и фиксированном значении $H = 1.5$ при энергиях 35 мэВ (A) и 60 мэВ (B). Как видно из этих двух рисунков, имеет место радикальное изменение распределения интенсивности для разных энергий. В панелях (C) и (D) показаны результаты DFT+DMFT вычислений, которые демонстрируют очень хорошее согласие с результатами эксперимента без каких-либо подгоночных параметров.

Детальное сравнение [1] 4D $S(Q, \omega)$ из данных эксперимента НРН и *ab initio* DFT+DMFT вычислений, показало отличное согласие в широкой области $(Q - \omega)$. Это первое успешное наблюдение и количественный анализ на основе DFT+DMFT вычислений внутризонных возбуждений (intra-band excitations) как функции $(Q - \omega)$. Физический результат этой части работы состоит в том, что неупругие особенности, наблюдаемые в экс-

перименте, обусловлены рождением электронно-дырочных пар. Как уже отмечалось, повышение температуры приводит к размытию хорошо определенных, при низкой температуре, $4f$ зон (рис. 1). Проведенные измерения НРН на CePd_3 при 6 K и 300 K показали радикальное изменение магнитной динамики при повышении температуры. Как показано на рис. 2(E), вся структура динамической восприимчивости при энергии 60 мэВ полностью исчезает при 300 K и DFT+DMFT вычисления отлично описывают наблюдаемый эффект. Это означает, что при высоких температурах магнитные моменты $4f$ электронов находятся в парамагнитном несвязанном состоянии и по мере понижения температуры гибридизация f электронов церия и d электронов палладия приводит к возникновению когерентных f зон и, соответственно, к появлению особенностей $\chi''(Q, \omega)$, которые обсуждались выше.