

Spin Dynamics in Intermediate Valence Compounds: A Comparison of Neutron Scattering and *ab initio* Theory

E. A. Goremychkin¹, H. Park^{2,3}, R. Osborn², J. M. Lawrence^{4,5}, A. D. Christianson⁶, V. R. Fanelli⁶, E.D. Bauer⁴, K. J. McClellan⁴, and D. D. Byler⁴

¹*Frank Laboratory of Neutron Physics, Joint Institute for Nuclear Research, Dubna, Moscow Region, 141980, Russia*

²*Materials Science Division, Argonne National Laboratory, Argonne, IL 60439-4845, USA*

³*Department of Physics, University of Illinois at Chicago, Chicago, IL 60607, USA*

⁴*Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, NM 87545, USA*

⁵*Department of Physics and Astronomy, University of California, Irvine, CA 92697, USA*

⁶*Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN 37831, USA*

goremychkin@jinr.ru

Intermediate valence compounds containing rare earth or actinide ions are archetypal systems for the investigation of strong electron correlations. Their effective electron masses of 10 to 50 times the free electron mass result from a hybridization of the highly localized *f*-electrons with the more itinerant *d*-electrons, which is strong enough that their properties are dominated by on-site electron correlations. We have recently performed inelastic neutron scattering measurements of four-dimensional $S(\mathbf{Q}, \omega)$ in a single crystal of the intermediate valence compound, CePd₃, using the direct geometry chopper spectrometer, MERLIN (ISIS), showing that the scattering intensity is modulated as a function of \mathbf{Q} and ω that is inconsistent with local spin fluctuations. The DFT+DMFT calculations of the momentum-resolved susceptibility reproduce this behaviour in remarkable detail, without adjustable parameters on an absolute scale. This is the first time that neutron measurements of band excitations throughout the Brillouin Zone have been directly compared to first-principles calculations, unambiguously showing that the \mathbf{Q} -dependence of the scattering is caused by particle-hole excitations within *f-d* hybridized bands that grow in coherence with decreasing temperature.

Спиновая динамика в соединениях с промежуточной валентностью: Сравнение результатов неупругого рассеяния и *ab initio* теории

Е. А. Горемычкин¹, Х. Парк^{2,3}, Р. Осборн², Д. М. Лоуренс^{4,5}, А. Д. Кристиансон⁶, В.Р. Фанелли⁷, Е.Д. Бауэр⁴, Л. Д. МакКлеллан⁴, Д.Д. Байлер⁴

¹Лаборатория нейтронной физики им. И.М.Франка ОИЯИ, 141980 Дубна, Россия

²Отдел Исследования Материалов, Аргоннская Национальная Лаборатория, Аргонн, IL 60439-4845, США

³Физический факультет, Иллинойский Университет в Чикаго, Чикаго, IL 60607, США

⁴Лос Аламосская Национальная Лаборатория, Лос Аламос, NM 87545, США

⁵Факультет Физики и Астрономии, Калифорнийский Университет, Ирвин, CA 92697, США

⁶Оак Риджская Национальная Лаборатория, Оак Ридж, TN 37831, США

goremichkin@jinr.ru

Соединения с промежуточной валентностью (ПВ), содержащие ионы редкоземельных элементов или актиноидов являются классическими системами для исследования сильных электронных корреляций. Эффективная массы электронов в этих системах в 10 - 50 раз превышает массу свободных электронов, что является результатом гибридизации локализованных f - электронов с электронами проводимости, и это взаимодействие является определяющим в формировании физических свойств соединений с ПВ. Недавно мы провели измерения методом неупругого рассеяния нейтронов четырехмерной функции закона рассеяния $S(\mathbf{Q}, \omega)$ на монокристаллическом образце соединения с ПВ CePd_3 на спектрометре прямой геометрии MERLIN (ISIS) и обнаружили, что интенсивность рассеяния является сильной функцией \mathbf{Q} и ω , что не согласуется с широко распространённым убеждением о локальной природой спиновых флуктуаций в соединениях с ПВ. Проведенные расчёты динамической восприимчивости методом DFT+DMFT показали очень хорошее количественное согласие с экспериментом без подгоночных параметров. Это первое прямое количественное сравнение экспериментально измеренных зонных возбуждений с результатами расчётов из первых принципов во всей зоне Бриллюэна которые показали, что наблюдаемая \mathbf{Q} -зависимость обусловлена электрон-дырочными возбуждениями в гибридизованных $f-d$ зонах и которая усиливается при понижении температуры вследствие усиления степени когерентности.