

# Ordre paradoxal et dynamique de spin anisotrope dans CeRu<sub>2</sub>Al<sub>10</sub>

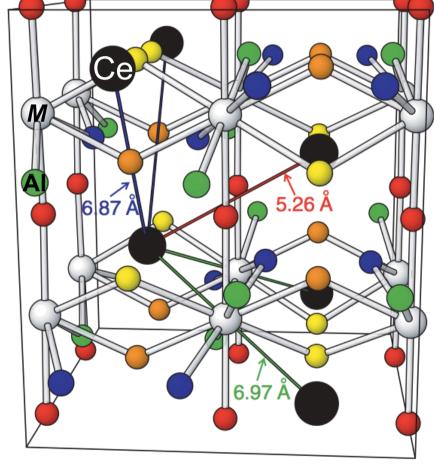
Jean-Michel Mignot

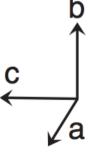
GDR MICO - Roscoff 10 janvier 2013



# $CeM_2AI_{10}$ (M = Ru, Os, Fe)

- isolants Kondo
- ordre non conventionnel

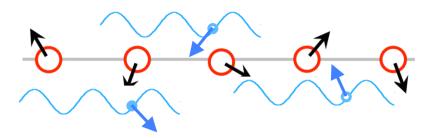




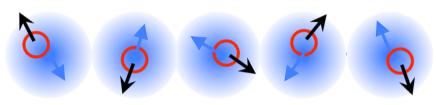
GDR MICO - Roscoff 10 janvier 2013

### Systèmes fortement corrélés d'électrons f – fermions lourds





Haute température : diffusion incohérente des électrons de conduction par les moments des ions magnétiques



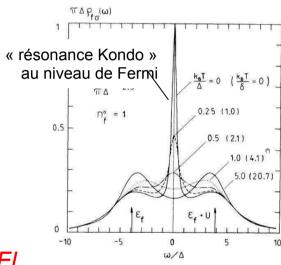
Basse température : formation d'états

singulets Kondo

- Renormalisation des paramètres du liquide de Fermi électronique ( $m^* \sim 100 m_0$ )
- Propriétés de « fermions lourds » :

$$C_P(T) = \gamma T$$
;  $\chi(T) = \chi_0 + BT^2$ ;  $\rho(T) = \rho_0 + AT^2$ 

- Supraconductivité non conventionnelle
- Criticalité quantique
- NFI



FL

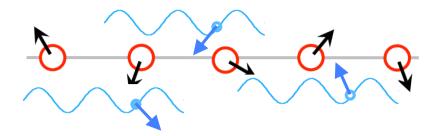
CeAl<sub>3</sub>, CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>, CeCu<sub>6</sub>,...

### supra

CeCu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>, UPt<sub>3</sub>, URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>, CeCoIn<sub>5</sub>,...

### **Isolants Kondo**





<u>Haute température</u> : diffusion incohérente des électrons de conduction par les moments des ions magnétiques

<u>Basse température</u> : régime de couplage fort avec renormalisation des paramètres

### Comportement semiconducteur

### Modèle d'Anderson périodique (PAM)

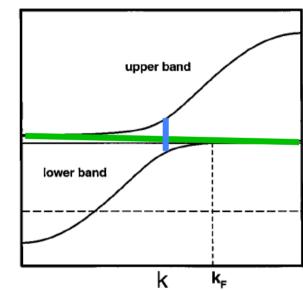
Modèle à <u>deux bandes</u> hybridées (*V*), dont l'une sujette à de fortes corrélations coulombiennes (*U*)

Effet de <u>cohérence</u> sur le réseau <u>périodique</u> des ions magnétiques

- Champ moyen → « Gap d'hybridation »
- Renormalisation par les corrélations : V→V

gap direct (optique) 
$$\propto \tilde{V}$$
 gap indirect (INS)  $\propto \tilde{V}/W$ 

Ouverture du gap  $\Delta(T)$ :  $k_B T^* \sim 1-10 \text{ meV}$ 



### Isolants Kondo

 $\epsilon_{\rm f}$ 

 $SmB_6$ ,  $YbB_{12}$ , TmSe CeNiSn, CeRhSb,  $Ce_3Pt_4Bi_3$ ,  $CeT_4Sb_{12}$ ,  $UFe_4P_{12}$ ,  $U_2Ru_2Sn$ , ...

# Échange RKKY – corrélations AFM



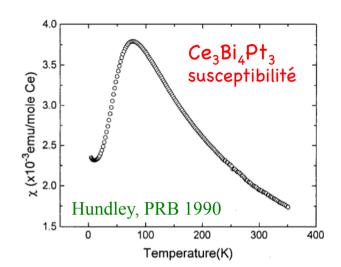
Compétition fluctuations Kondo ↔ échange RKKY

### Fermions lourds

Phase ordonnée AFM + param. de contrôle (P, x, H)  $\Rightarrow$  QCP, SC, etc.

### **Isolants Kondo**

•En général non-magnétiques pour  $T \rightarrow 0$ 



Corrélations AFM résiduelles entre quasiparticules renormalisées

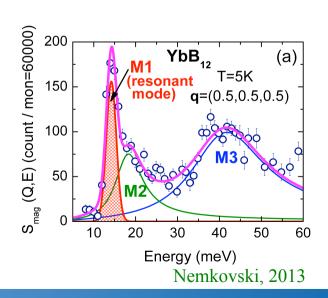
⇒ exciton de spin (Riseborough, JMMM 2001)

Diffusion inélastique de neutrons

Mode analogue à la résonance dans les HTC

SmB<sub>6</sub> (Alekseev, JPhCM 1995)

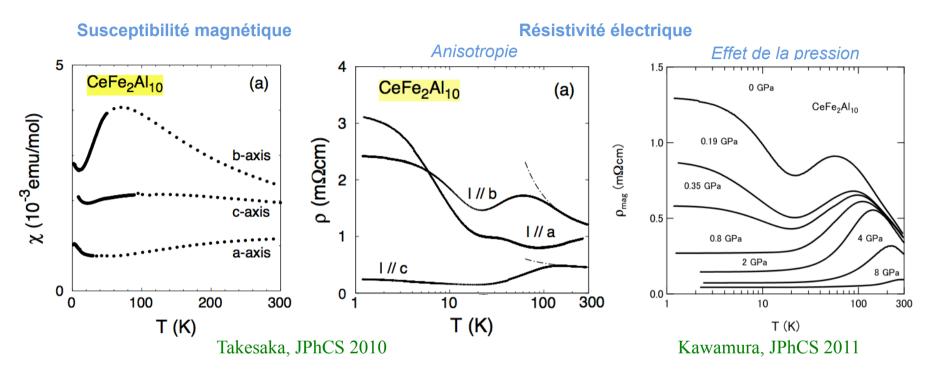
YbB<sub>12</sub> (Mignot, PRL 2005; Nemkovski, PRL 2007)



### $Ce M_2 Al_{10}$ - nouvelle famille d'isolants Kondo



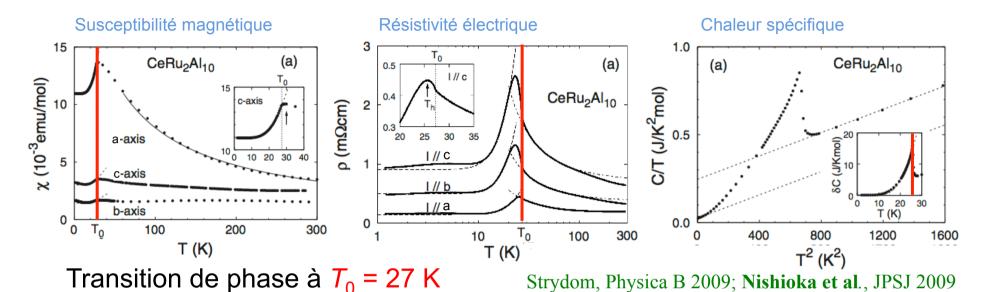
Orthorhombique, Cmcm (Thiede et al., 1998)

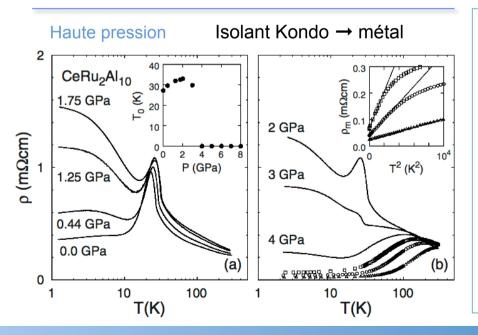


- Susceptibilité de type valence mixte ( $\theta_P$  = -174 K,  $T_{max} \approx 70$  K).
- Absence d'ordre magnétique (T > 40 mK). Forte anisotropie
- Forte remontée de résistivité à T < 20 K, jusqu'à 3000 μΩcm pour I // a, moins prononcée pour I // b et c</li>
- La pression restaure un état fondamental métallique

# CeRu<sub>2</sub>Al<sub>10</sub> – un isolant Kondo ordonné







- Forte anisotropie (axe a facile)
- $\rho(T)$ : pente négative, loi d'activation

### Phase ordonnée $T < T_0$

- Dépendance exponentielle de  $\chi$  and  $C_P$ ( $\Delta \sim 100 \text{ K}$ )  $\longrightarrow$  gap partiel sur la surface de Fermi
- Sous *P* : état isolant d'abord renforcé, puis supprimé

GDR MICO - Roscoff 10 janvier 2013

# CeRu<sub>2</sub>Al<sub>10</sub> – nature de la transition ?



### Ordre magnétique ou transition structurale?

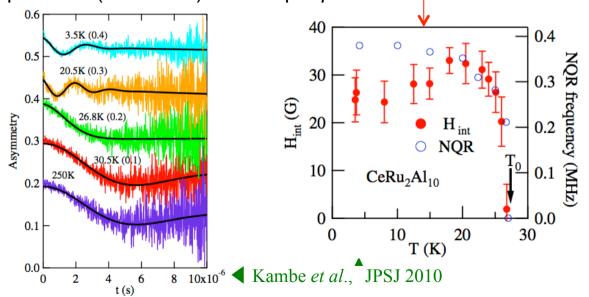
**x** Température de transition trop élevée,  $T_0$  = 27 K

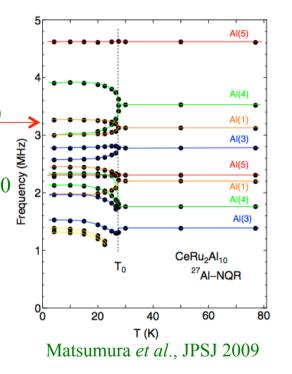
$$d_{\text{Ce-Ce}} > 5 \text{ Å} ; T_0 \gg T_{\text{N}}^{\text{[GdRu2Al10]}} = 16.5 \text{ K}$$

Takesaka, 2009

 $T_0 \nearrow \text{ qd on va vers une valence mixte (pression ou Ru <math>\longrightarrow \text{Os)}$ 

- $\times$  Pas de susceptibilité de type AFM  $\chi_{\perp}$  pour  $T < T_0$  Tanida, JPSJ 2010
- × <sup>27</sup>Al-NQR : splitting des raies ⇒ pas de champ magnétique interne
- ✓ Moment magnétique du Ce participe à la transition Tanida., JPSJ 2010  $T_0$  décroît par substitution de La, ou sous champ magnétique Entropie de 0.7R ln2 à  $T_0$ , R ln2 à 100 K (doublet fondamental)
- Champ interne (très faible) détecté par μ<sup>+</sup>SR





# Interprétations proposées



- Formation d'une ODC avec ouverture d'un gap sur la surface de Fermi Nishioka et al.
- Transition structurale : abaissement de symétrie (Cmcm → Amm2 or Pmmn)
   ⇒ chaque site d' Al se scinde en deux sous-sites
   Matsumura et al.
- Appariement des ions Ce conduisant à un état fondamental singulet à  $T < T_0$  Tanida et al.
- Formation d'une ODS (accompagnée d'une distorsion du réseau) due aux interactions RKKY suivant des « chaînes zigzag » de Ce Hanzawa

GDR MICO – Roscoff 10 janvier 2013

# Étude par diffusion de neutrons (LLB, ILL)

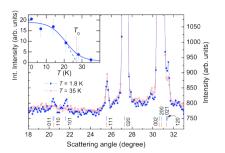


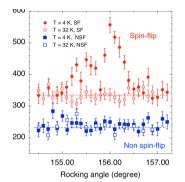
- Ordre à longue portée au-dessous de  $T_0$ 
  - **⇒** diffraction poudre et monocristaux

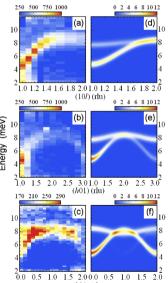
- Origine magnétique ou structurale ?
  - analyse de polarisation sur monocristal

- Spectre d'excitations de basse énergie
  - ➡ diffusion inélastique, avec ou sans polarisation

Robert *et al.*, Phys. Rev. B **82**, 100404(R) (2010) Robert *et al.*, Phys. Rev. Lett. **109**, 267208 (2012)

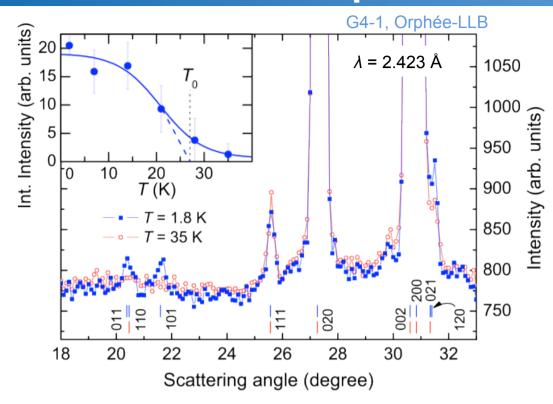


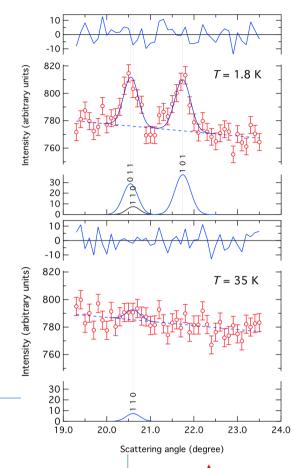




# Diffraction de neutrons sur poudre







- ✓ Pics nucléaires : accord avec Cmcm (h+k = 2n; [h0l]: l=2n)
- ✓ Pics de surstructure observés à  $T < T_0$ 011, 101, 120
- ➤ Peu de réflexions, statistique faible, superposition à certains pics nucléaires
  - $\Rightarrow$  ordre magnétique [k = (0, 1, 0),  $\mu_{AF}$  = 0.32(4)  $\mu_{B}$ ]

ou transition structurale → Pmmn (déplacement d'atomes Al) ?

Détail du signal aux bas angles

# Diffraction de neutrons sur poudre

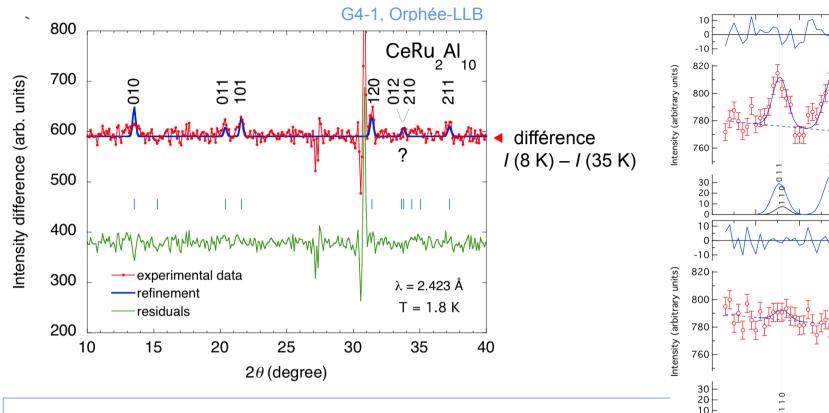


T = 1.8 K

T = 35 K

23.0

24.0



- ✓ Pics nucléaires : accord avec Cmcm (h+k = 2n; [h0l]: l=2n)
- $\checkmark$  Pics de surstructure observés à  $T < T_0$ 011, 101, 120 + 010 and 211
- ➤ Peu de réflexions, statistique faible, superposition à certains pics nucléaires
  - $\Rightarrow$  ordre magnétique [ $\mathbf{k}$  = (0, 1, 0),  $\mu_{AF}$  = 0.32(4)  $\mu_{B}$ ]

Détail du signal aux bas angles

22.0

19.0

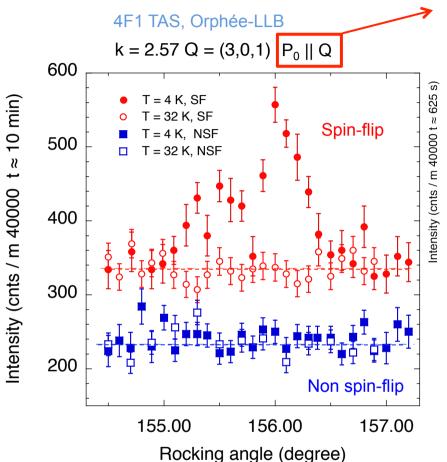
20.0

21.0

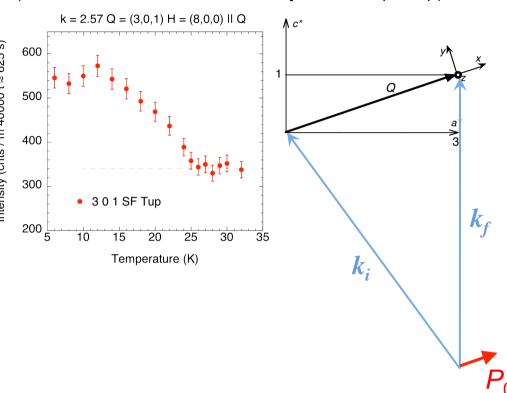
Scattering angle (degree)

# Ordre magnétique





⇒ la diffusion magnétique est purement <u>spin-flip</u> (diffusion cohérente nucléaire toujours non spin-flip)



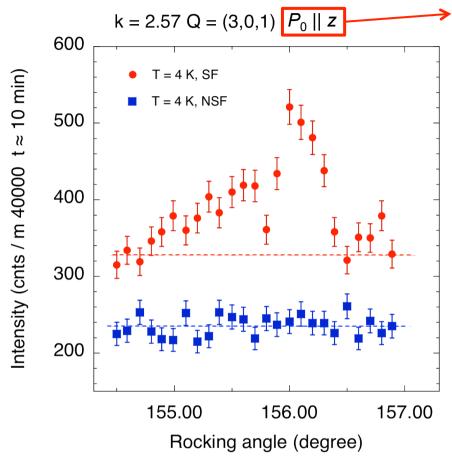
Pic de surstructure (3,0,1) observé uniquement dans le canal spin-flip

✓ Signal d'origine magnétique.

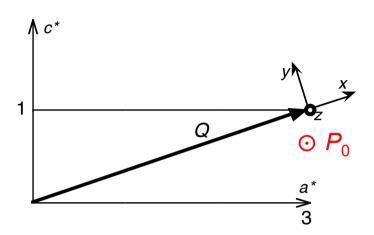
Ordre AFM de vecteur d'onde k = (0,1,0)

### Orientation du moment





Composante de moment **parallèle à** *b*\* est <u>non spin-flip</u>
Composante dans le plan (*a*,*c*) est <u>spin-flip</u>



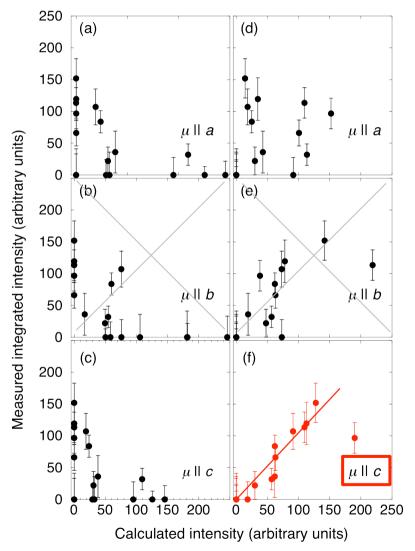
Pic de surstructure (3,0,1) pas observé dans le canal non spin-flip

► Moment AFM du Ce n'a pas de composante suivant b\*

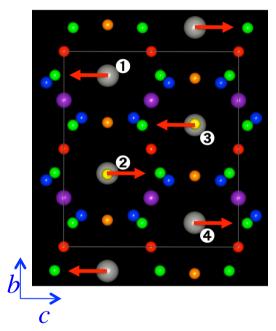
# Orientation du moment (quatre-cercles)



$$T = 11-18 \text{ K} < T_0$$
  
(1, 2, 3, 4) = (+--+) (-+-+)



 Résultats indiquent µ || c, avec les orientations relatives ci-dessous :



Moment ordonné (d'après diffractogramme de poudre) :  $\mu \approx 0.32(4) \mu_B$ 

# CeRu<sub>2</sub>Al<sub>10</sub> – nature de la transition ?



### Ordre magnétique ou transition structurale?

? Température de transition trop élevée,  $T_0$  = 27 K

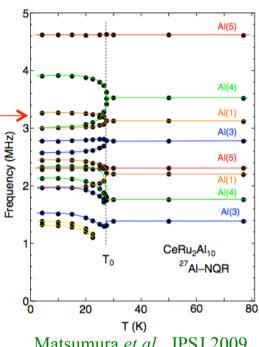
$$d_{\text{Ce-Ce}} > 5 \text{ Å} ; T_0 \gg T_N^{\text{[GdRu2Al10]}} = 16.5 \text{ K}$$

Takesaka, 2009

 $T_0$  qd on va vers une valence mixte (pression ou Ru  $\longrightarrow$  Os)

? Pas de susceptibilité de type AFM  $\chi_{\perp}$  pour  $T < T_0$ Tanida, JPSJ 2010

x 27AI-NQR: splitting des raies ⇒ pas de champ magnétique interne



Matsumura et al., JPSJ 2009

# CeRu<sub>2</sub>Al<sub>10</sub> – nature de la transition ?



### Ordre magnétique

? Température de transition trop élevée,  $T_0$  = 27 K

$$d_{\text{Ce-Ce}} > 5 \text{ Å} ; T_0 \gg T_{\text{N}}^{\text{[GdRu2Al10]}} = 16.5 \text{ K}$$

Takesaka, 2009

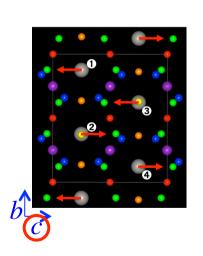
 $T_0$  qd on va vers une valence mixte (pression ou Ru  $\longrightarrow$  Os)

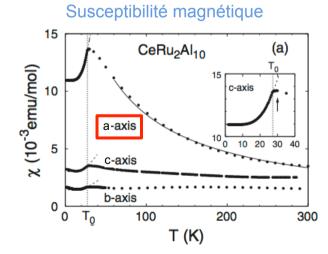
? Pas de susceptibilité de type AFM  $\chi_{\perp}$  pour  $T < T_0$  Tanida, JPSJ 2010

× <sup>27</sup>Al-NQR : splitting des raies → pas de champ magnétique interne



? Moment AFM (// c) n'est pas selon l'axe de facile aimantation (// a)

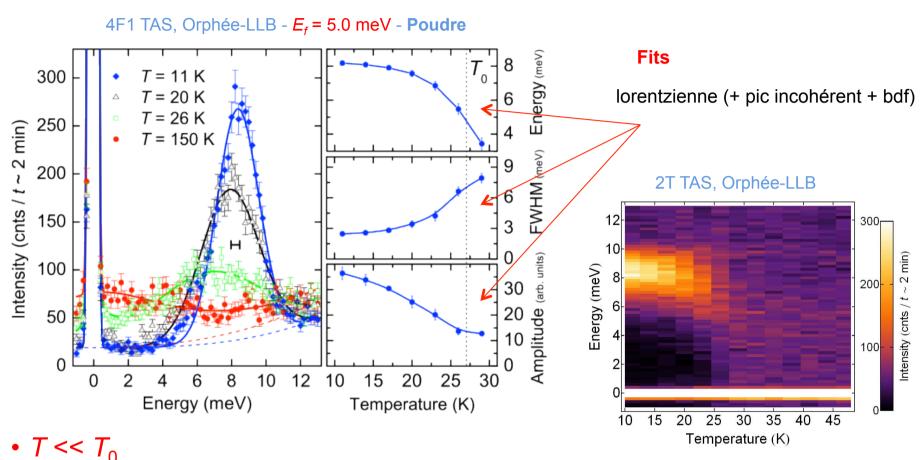




Échange anisotrope?

# Diffusion inélastique sur poudre (trois-axes, neutrons froids)





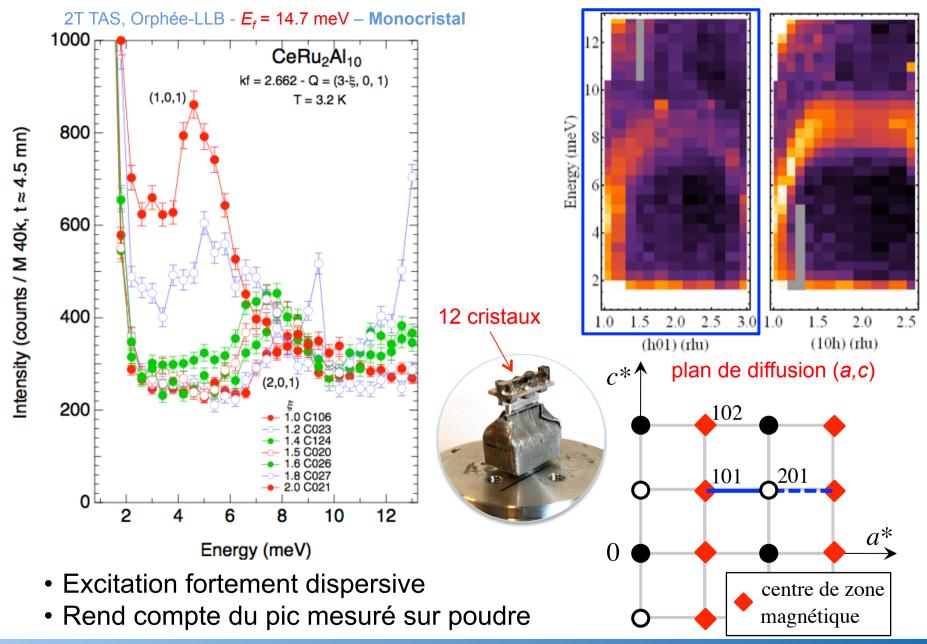
Gap de spin + excitation vers 8 meV (pic bcp plus large que la résolution) amortissement, ou dispersion (moyenne de poudre sur une)?

• T ↗

Gap de spin se comble ; pic s'atténue, s'élargit, et son énergie diminue.

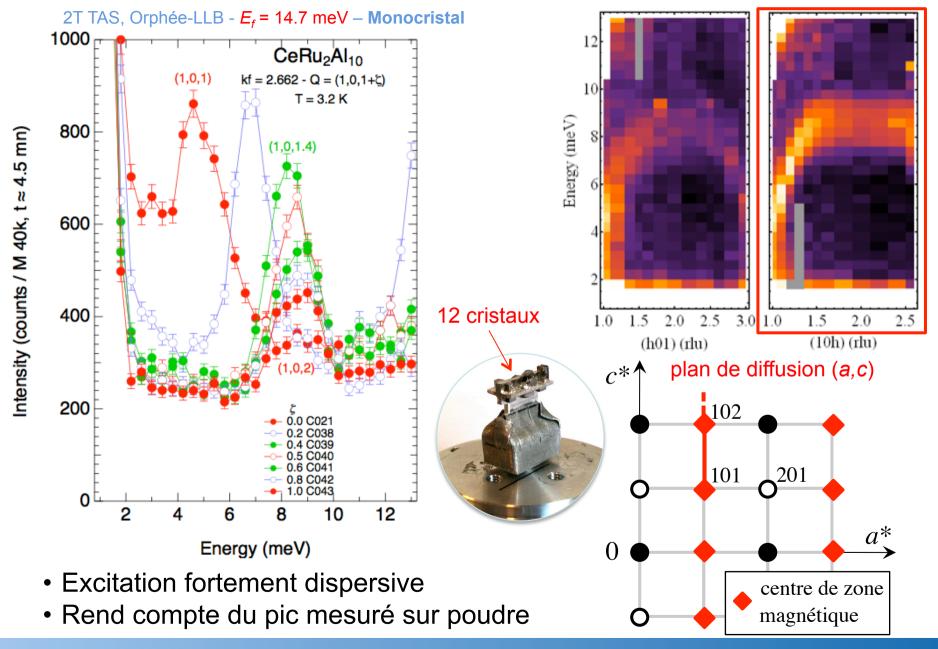
# Diffusion inélastique sur monocristal





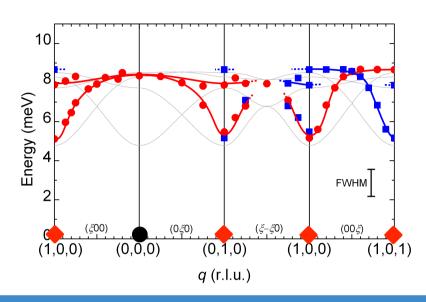
# Diffusion inélastique sur monocristal





# Dispersion, intensité





# Modèle RPA (code : Sylvain Petit)

### Champ cristallin

Strigari, PRB 2012

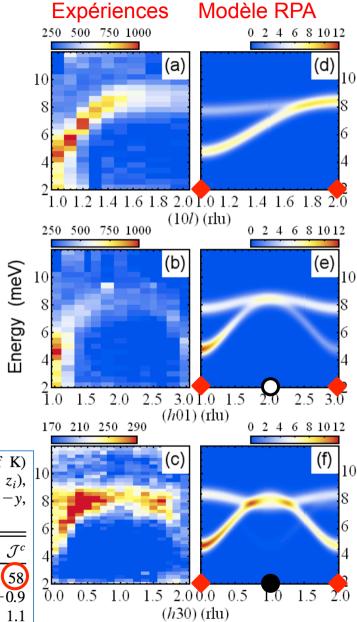
$$(B_2^0, B_2^2, B_4^0, B_4^2, B_4^4) = (-1.326, -29.236, +1.013, -1.747, -5.317) \text{ K}$$

### + Échange anisotrope

$$\mathcal{H}_{i,j} = \sum_{\alpha} \mathcal{J}^{\alpha} S_i^{\alpha} S_j^{\alpha}$$

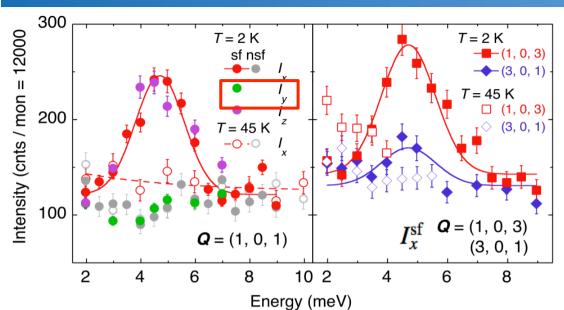
TABLE I. Anisotropic exchange parameters (in units of K) used in the RPA calculation. Atomic positions  $(x_i, y_i, z_i)$ , i = 1:  $(0, y, \frac{1}{4})$ ;  $2 : (\frac{1}{2}, \frac{1}{2} + y, \frac{1}{4})$ ;  $3 : (\frac{1}{2}, \frac{1}{2} - y, \frac{3}{4})$ , 4:  $(0, -y, \frac{3}{4})$ , with y = 1.1239(3) [23].

Ce pairs $(i, j)$	$\mathcal{J}^a$	$\mathcal{J}^b$	$\mathcal{J}^c$
(1,4); (2,3)	2.7	2.7	58
(1,3); (2,4)	-0.9	-0.9	-0.9
(1,2); (3,4)	1.1	1.1	1.1

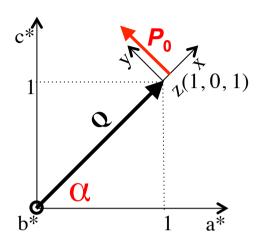


# Polarisation des modes







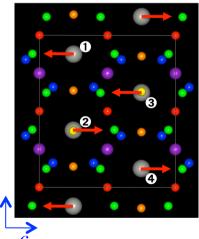


### Calculs RPA $M_{aa}$ $M_{bb}$ 10 Energy (meV) 2 1.5 2.5

### Corrélations AFM très anisotropes

$$E = 4.5 \text{ meV}$$
:

$$M_{bb} \approx 0$$
 $M_{aa}/M_{cc} \approx 5$ 



$$I_x^{\rm sf} \propto M_{aa}(\mathbf{q})\sin^2\alpha + M_{bb}(\mathbf{q}) + M_{cc}(\mathbf{q})\cos^2\alpha,$$
 (1a)

3

(h 0 1)

1.5

2

(h 0 1)

2.5

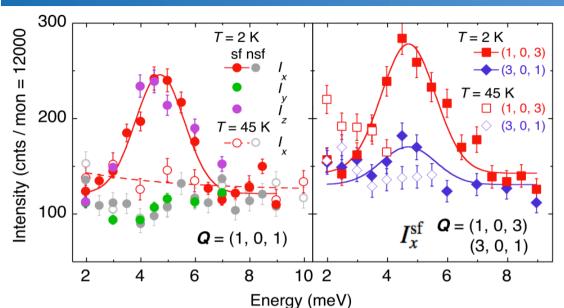
3

$$I_{y}^{\mathrm{sf}} \propto M_{bb}(\mathbf{q}),$$
 (1b)

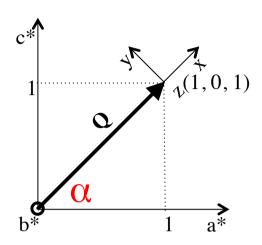
$$\overline{I_z^{\rm sf}} \propto M_{aa}(\mathbf{q}) \sin^2 \alpha + M_{cc}(\mathbf{q}) \cos^2 \alpha, \tag{1c}$$

# Polarisation des modes





### ILL / IN20, axe b vertical

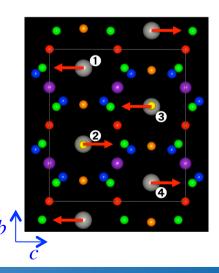


### 

### Corrélations AFM très anisotropes

$$E = 4.5 \text{ meV}$$
:

$$M_{bb} \approx 0$$
 $M_{aa}/M_{cc} \approx 5$ 



$$I_x^{\rm sf} \propto M_{aa}(\mathbf{q})\sin^2\alpha + M_{bb}(\mathbf{q}) + M_{cc}(\mathbf{q})\cos^2\alpha,$$
 (1a)

$$I_{\nu}^{\rm sf} \propto M_{bb}(\mathbf{q}),$$
 (1b)

$$I_z^{\rm sf} \propto M_{aa}(\mathbf{q})\sin^2\alpha + M_{cc}(\mathbf{q})\cos^2\alpha,$$
 (1c)

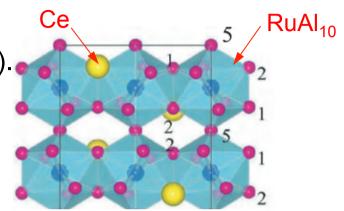
# Hybridation « directionnelle »

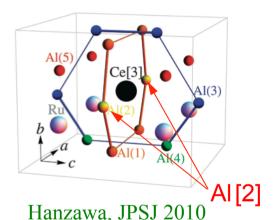


- Modèle simple champ cristallin + échange anisotrope insuffisant (dispersion,  $J_c$  irréaliste,  $\mu_{AF}$ ).
- Rôle de l'hybridation « *c-f* » avec l'environnement (anisotrope) des sites de Ce Sera, JPSJ 2013
- Écart à la contraction des lanthanides maximum selon l'axe a, négligeable selon b
- -RMN: fort champ hyperfin transféré (1158 Oe) au site Al[2] situé selon a à partir du site de Ce.
- -Anisotropie très sensible à la pression

<u>Hypothèse</u>: hybridation préférentiellement suivant la direction a (Ce-Al[2])

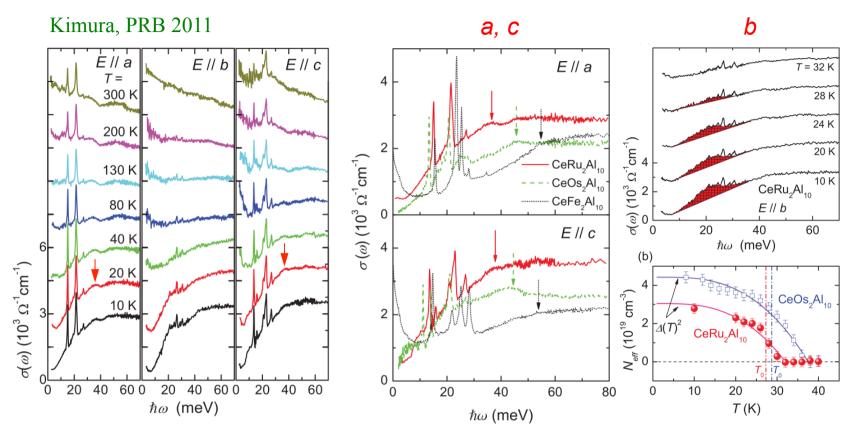
→Fluctuations Kondo réduisant les corrélations AFM entre composantes  $m_{\parallel a}$ A. Kondo, PRB 2011





# Spectroscopie optique





# Plan (a, c)

- forte hybridation
- isolant Kondo « classique »
- $T_K \nearrow$  dans l'ordre Ru $\longrightarrow$ Os $\longrightarrow$ Fe

### Direction b

- faible hybridation
- pic attribué à une ODC
- apparition liée à la transition à  $T_0$

?...



### $CeM_2AI_{10}$ M = Ru, Os, Fe

- Nouveaux phénomènes liés à la physique des isolants Kondo
- Phase ordonnée non réductible aux mécanismes habituels (CEF, RKKY)
- Effets d'anisotropie très prononcés, mis en évidence pour la première fois dans la réponse magnétique dynamique d'une phase AFM (neut. polarisés)
- Hybridation « directionnelle » (cf. conductivité optique)
- Autres aspects: effets du champ, solutions solides (Ru-Rh, La-Ce, etc.)
- Effort théorique

GDR MICO – Roscoff 10 janvier 2013 26

# **Collaborations**







LLB

Julien Robert

Sylvain Petit

Gilles André

**Kotaro Saito** 

Alexandre Bataille

**Univ. Hiroshima** 

Masafumi Sera

Hiroshi Tanida

Daiki Tanaka

Univ. Kochi

Takashi Nishioka

Riki Kobayashi \*

Masahiro Matsumura

Actuellement : JAEA