

Activation électrique d'un magnon dans le composé multiferroïque ErMnO_3

L. Chaix^{1,2}

S. de Brion², V. Simonet², E. Ressouche³

¹ *Institut Laue-Langevin, Grenoble, France*

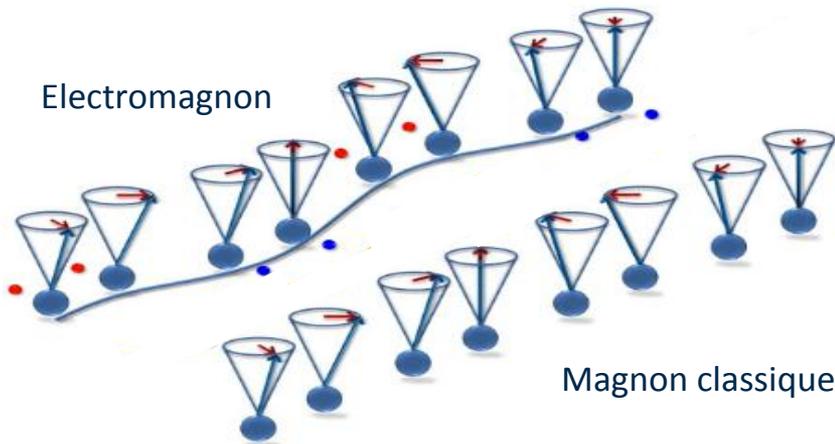
² *Institut Néel, CNRS et Université Joseph Fourier, Grenoble, France*

³ *Institut de Nanosciences et Cryogénie, SPSMS/MDN, CEA-Grenoble, 38054 Grenoble Cedex 9, France*

Etude du couplage magnéto-électrique dynamique dans les composés multiferroïques



2 techniques expérimentales complémentaires :
Spectroscopie THz, diffusion inélastique de neutrons



- 1ere évidence expérimentale

A. Pimenov *et al.*, Nature Phys. **2**, 97 (2006)

- Excitation miroir

L. Chaix *et al.*, PRL **110**, 157208 (2013)

Electromagnons : excitations magnétiques habillées de charges et excitées par le champ électrique d'une onde électromagnétique

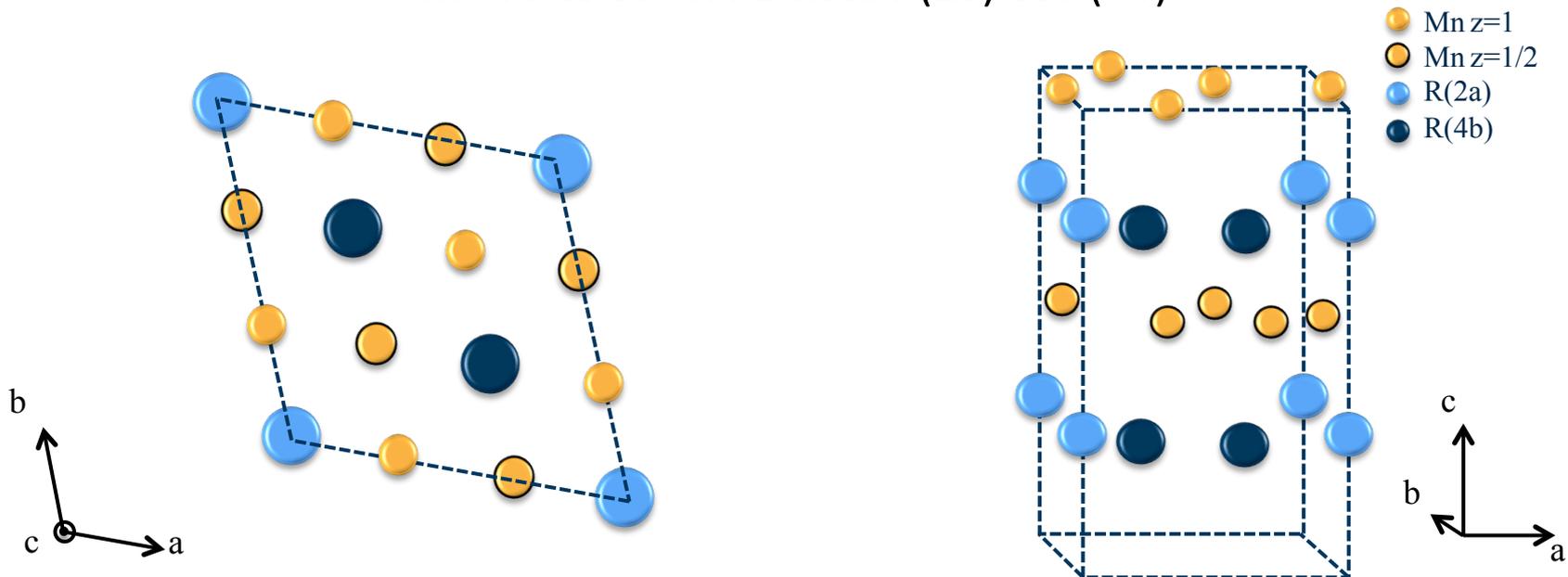
Mécanismes microscopiques à l'origine de ce couplage magnéto-électrique dynamique

1. Structure cristallographique des h-RMnO₃

Hexagonaux : Sc, In, Lu, Tm, Er, Yb, Y, Ho, Dy
 Multiferroïques de type I : $T_c < 1000\text{K}$ et $T_N < 100\text{K}$
 Polarisation électrique selon c : $\approx 5.6 \mu\text{C}/\text{cm}^2$

Groupe d'espace : $P6_3cm$

Mn : site 6c R : 2 sites R(2a) et R(4b)



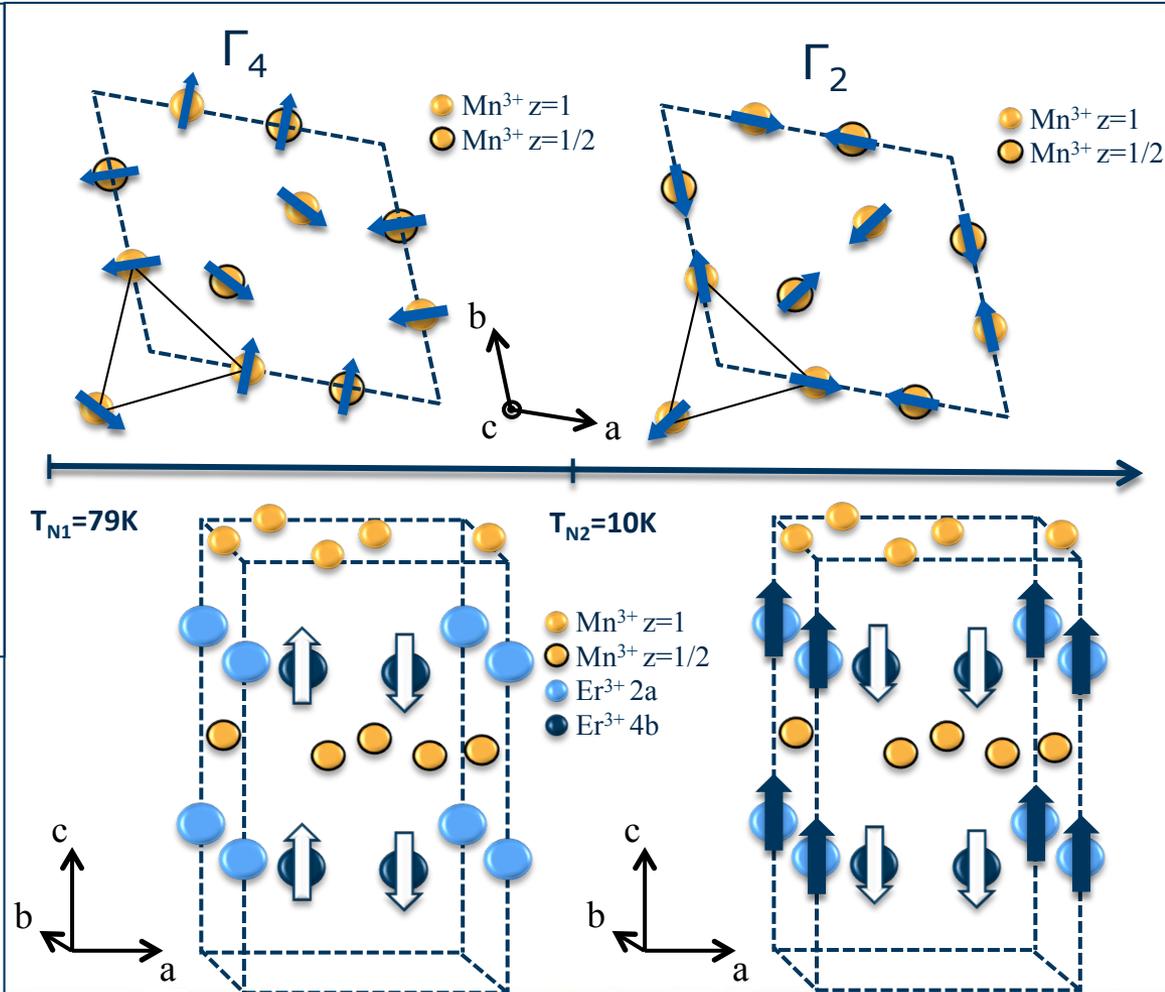
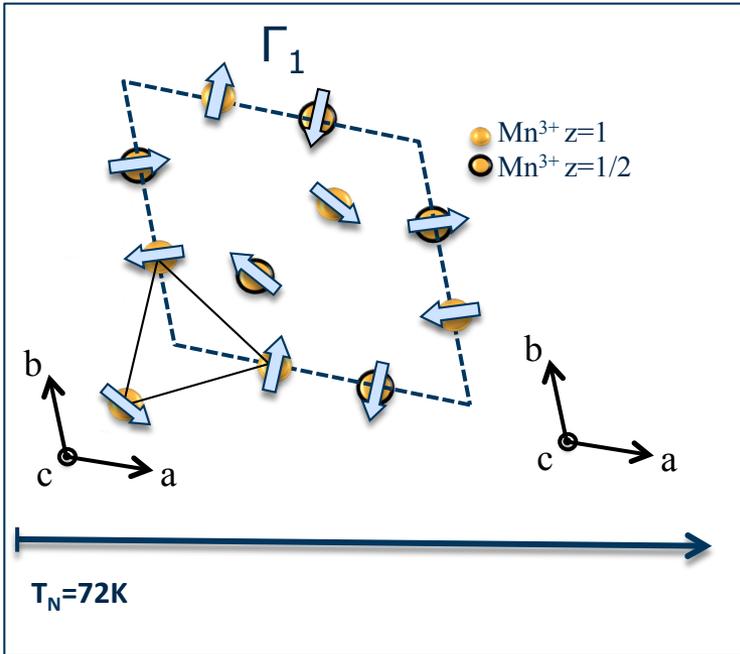
Yakel *et al.*, Acta Cryst. **16** 957 (1963)

Smolenskii and Chupis Sov. Phys. Usp. **25** 475 (1982)

1. Structure magnétique : YMnO₃ et ErMnO₃

YMnO₃ : Mn³⁺

ErMnO₃ : Mn³⁺ + Er³⁺



Bertaut *et al.*, Phys. Lett. **5** 27 (1963)

Koehler *et al.*, Phys. Lett. **9** 93 (1964)

A. Muñoz *et al.*, PRB **62**, 9498 (2000)

D. Meier *et al.*, PRB **86**, 184415 (2012)



1. Mesures THz sur la ligne AILES/SOLEIL



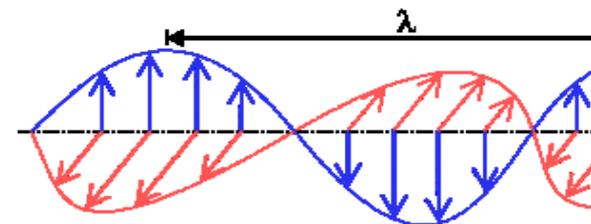
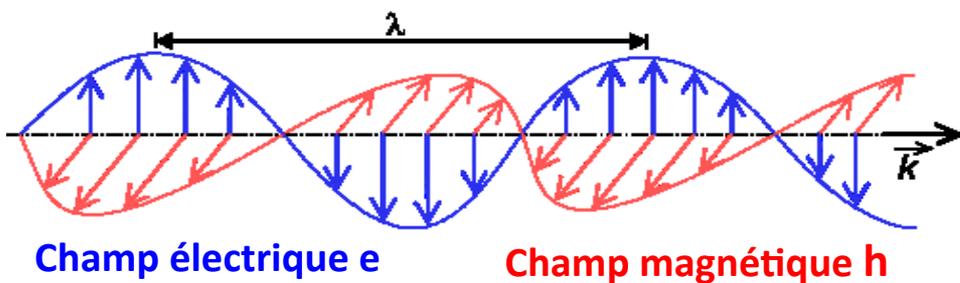
- Transmission : $T = I / I_0 \approx \exp(-\alpha d)$
- Absorbance : $\text{Abs} = -\ln(T) \approx \alpha d$

98 % de polarisation verticale dans la gamme d'énergie $< 100 \text{ cm}^{-1}$

Intensité incidente : I_0

Echantillon

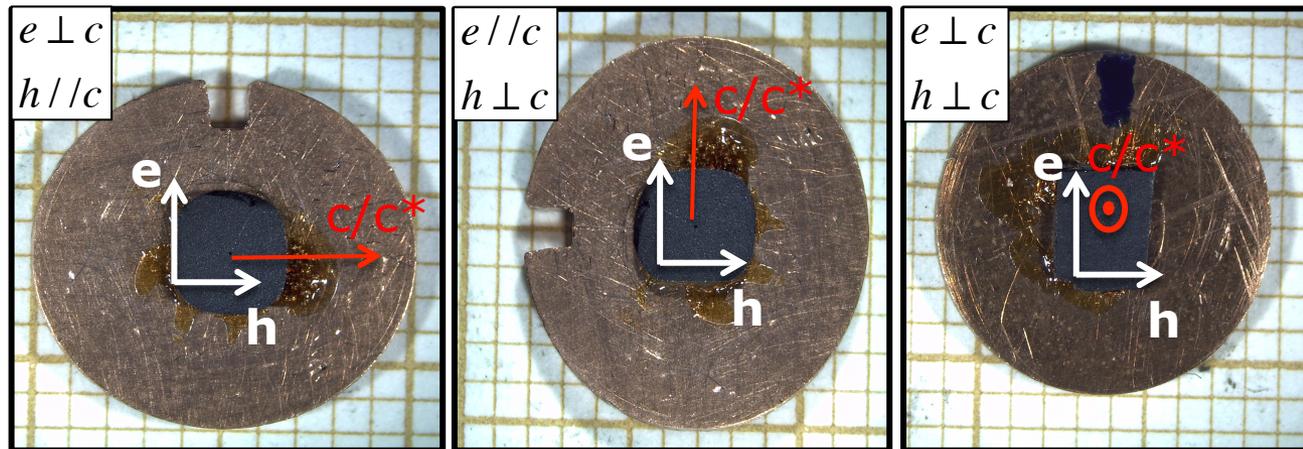
Intensité transmise : I



2. Configurations expérimentales

2 échantillons, 3 configurations expérimentales

Orientation relative du champ e électrique et h magnétique THz par rapport à l'axe c



3 configurations expérimentales



Règles de sélection des excitations

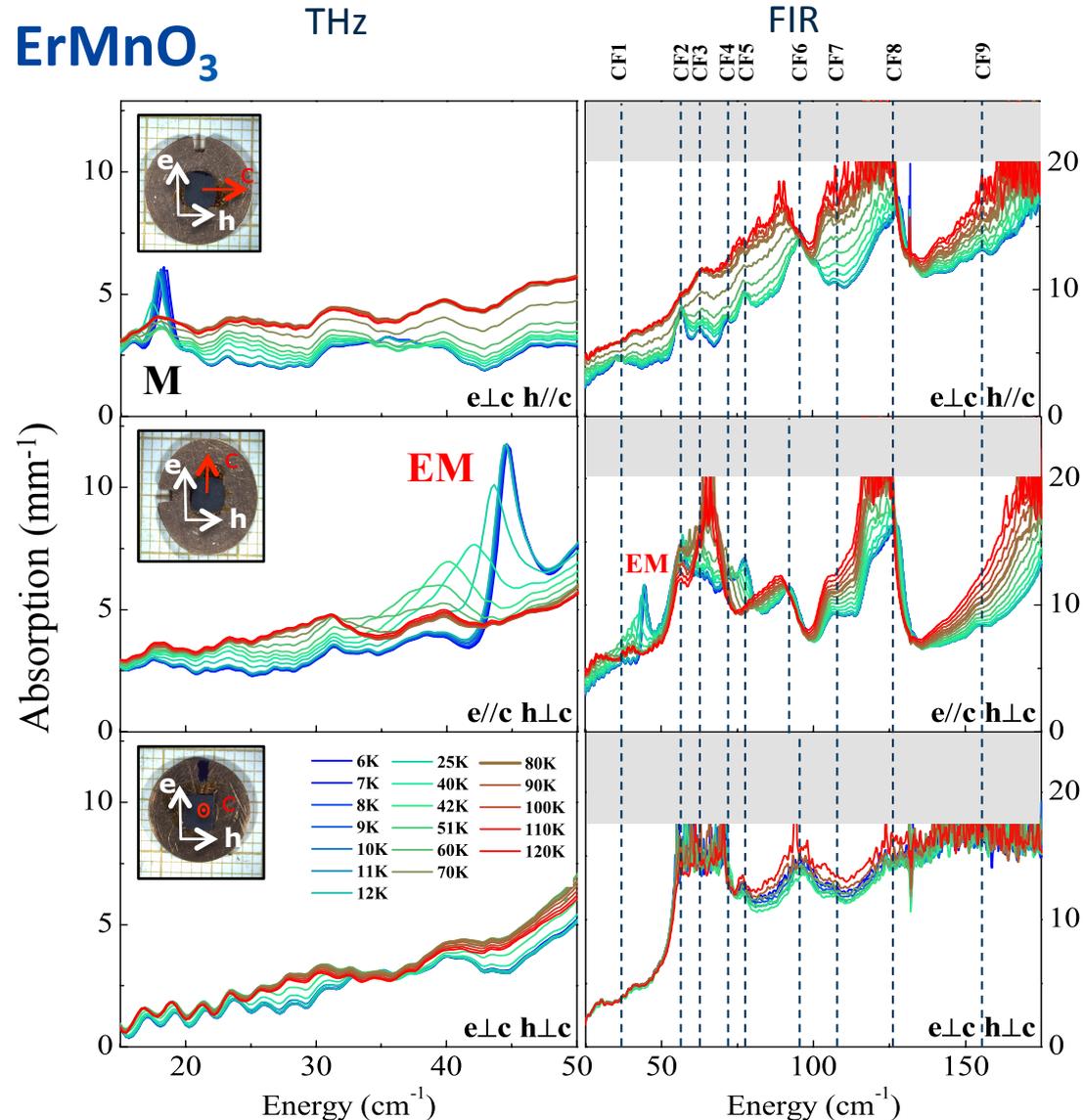
3. Résultats expérimentaux : ErMnO_3

THz

- Excitation **M**, disparaît à T_N , règle de sélection : $h//c$
- Excitation **EM**, disparaît à T_N , règle de sélection : $e//c$

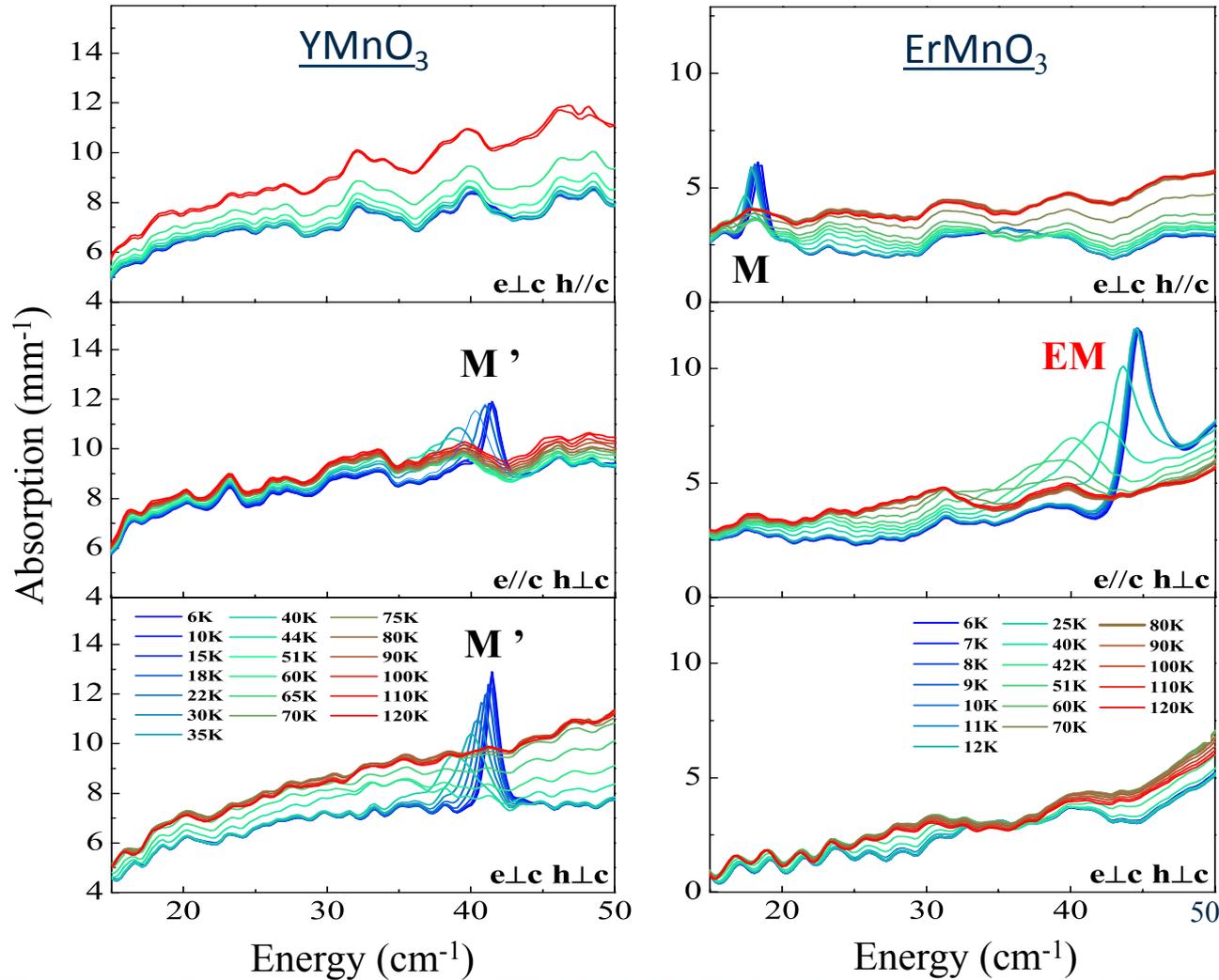
FIR

- Excitations de champ cristallin (CFi)
- Couplage Er-Mn



E. C. Standard *et al.*, PRB **85**, 144422 (2012)

4. Comparaison $\text{ErMnO}_3/\text{YMnO}_3$



Résumé

2 excitations dans ErMnO_3

M : $\underline{h//c}$

EM : $\underline{e//c}$

1 excitation dans YMnO_3

M' : $\underline{h\perp c}$

Disparaissent à $T_N \rightarrow$ associé à l'ordre magnétique

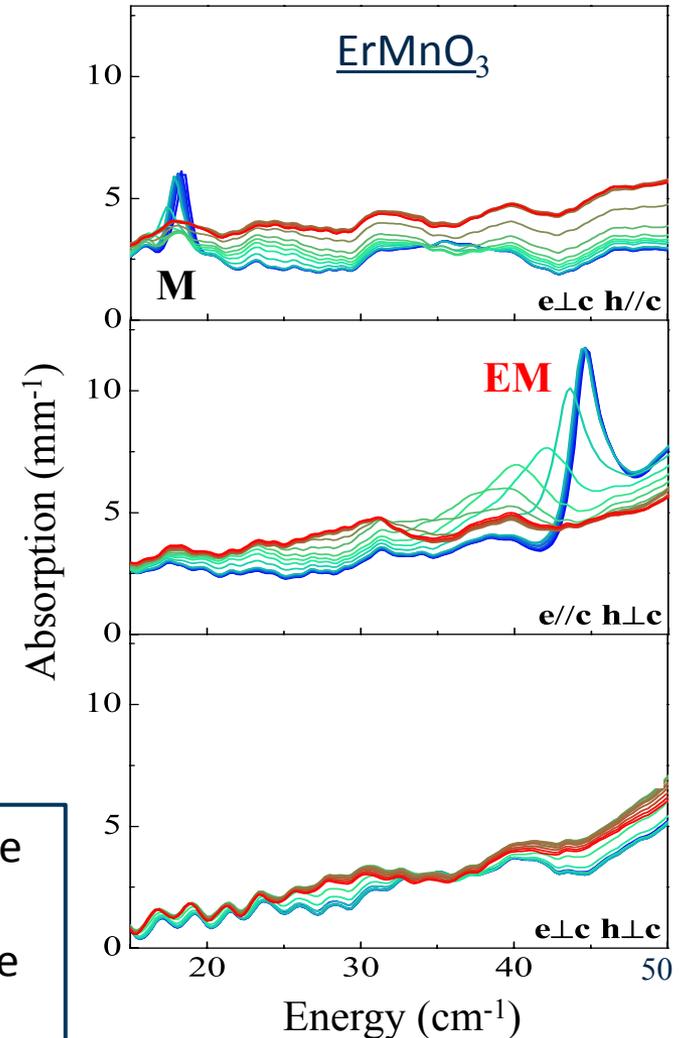
Origine de ces excitations

Expliquer les règles de sélection

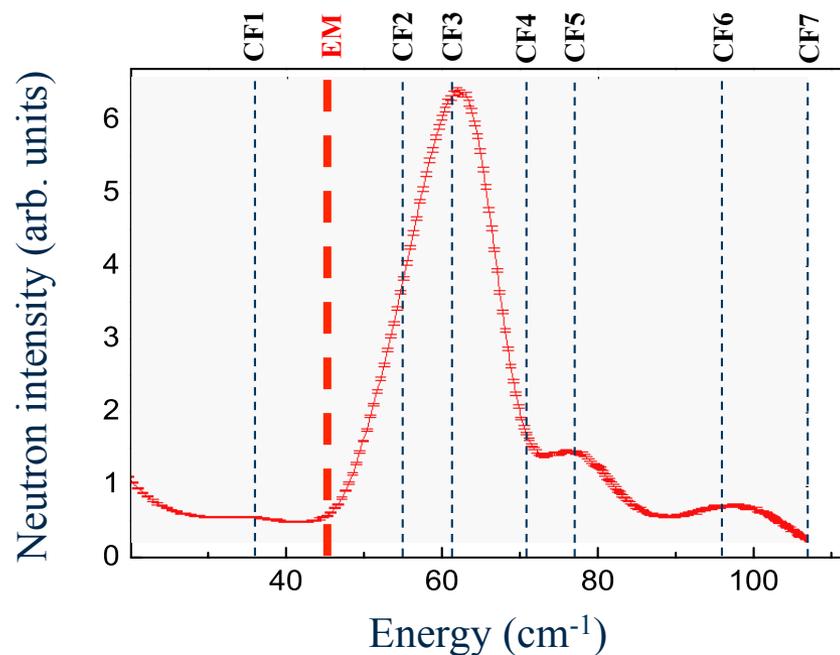
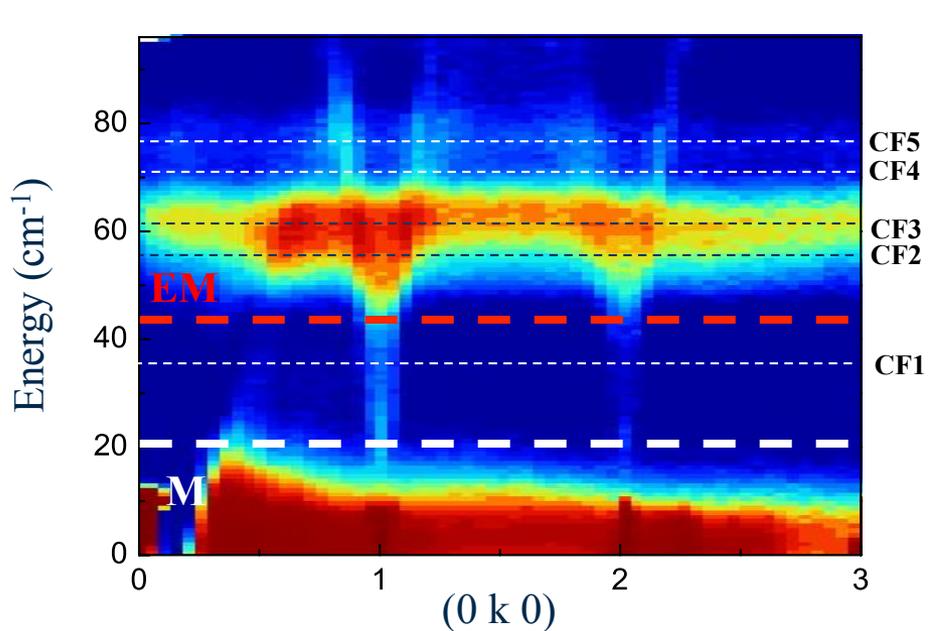


Diffusion inélastique de neutrons

Simulations d'ondes de spin Mn^{3+}



1. Diffusion inélastique de neutrons : ErMnO_3 (ToF IN5) $T = 1.5\text{K}$

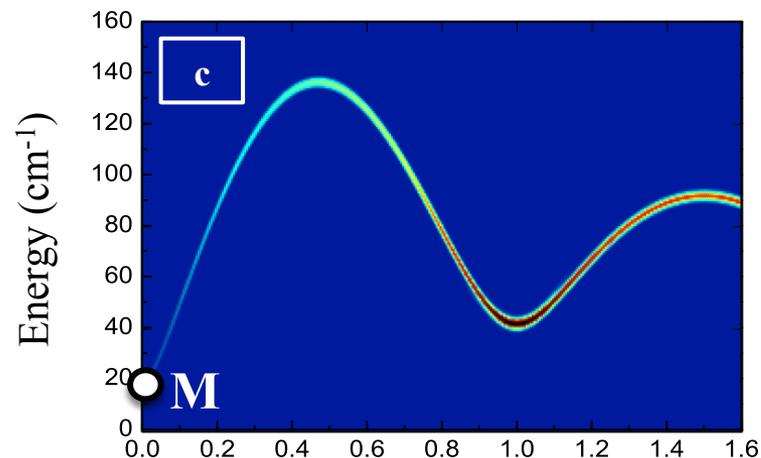
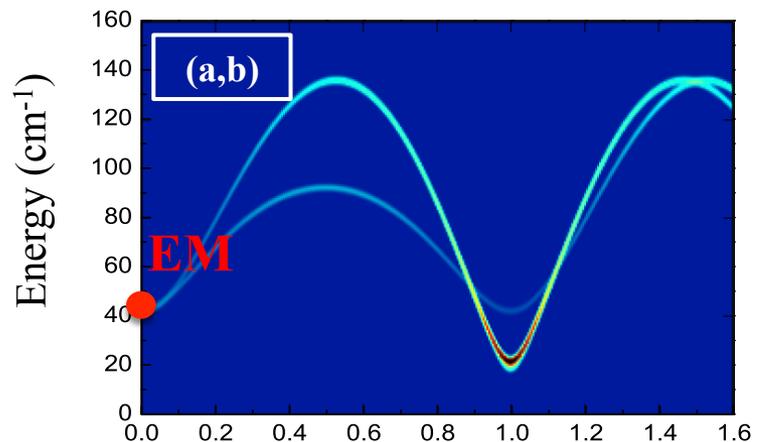


- Une excitation très intense et peu dispersive vers 60 cm^{-1} \longrightarrow • Excitations de champ cristallin : Er^{3+}
- Une excitation très dispersive \longrightarrow • Ondes de spin : Mn^{3+}

2. Simulations d'ondes de spin : Mn^{3+}

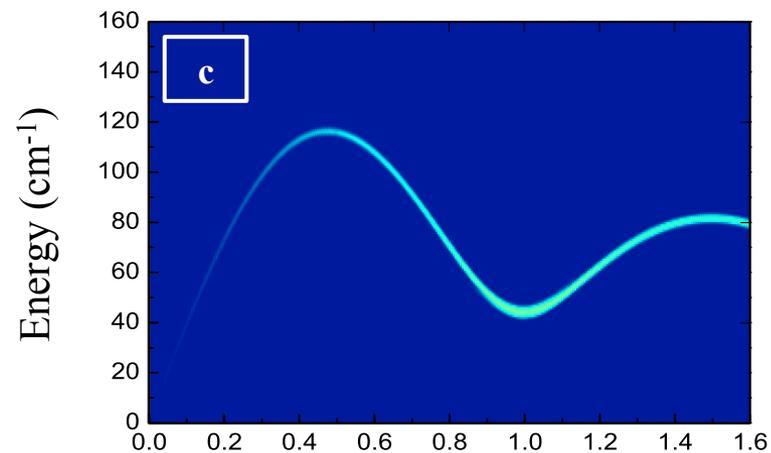
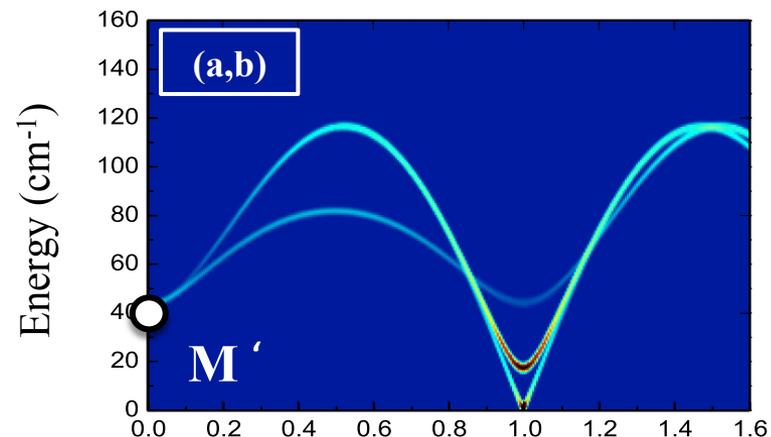
Modèle : J_1, J_{z1}, J_{z2}, D et H

$ErMnO_3$



(0 k 0)

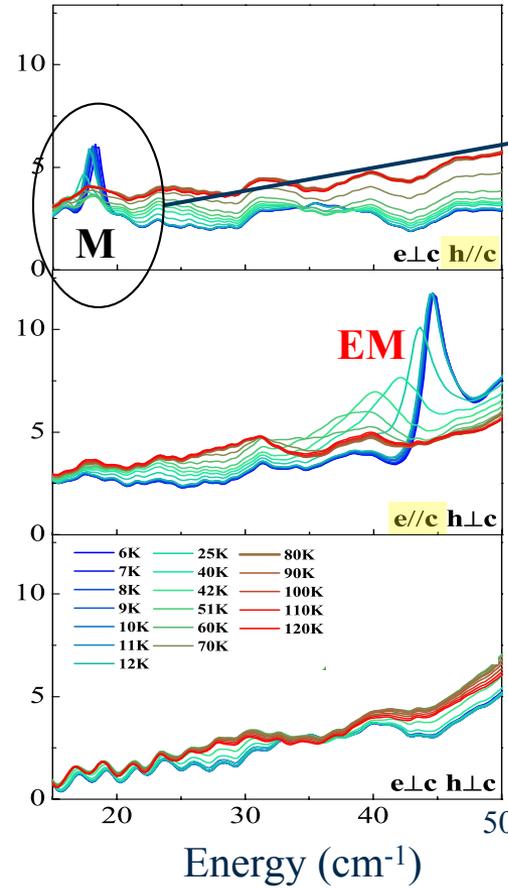
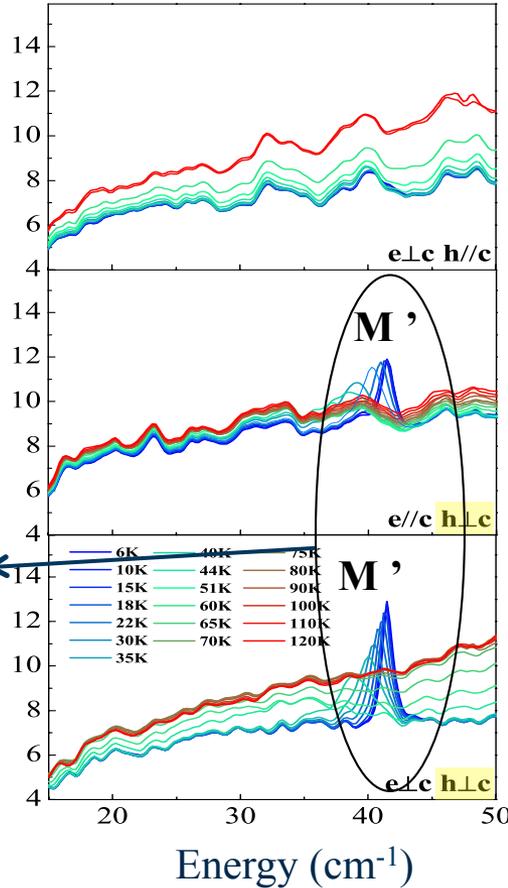
$YMnO_3$



(0 k 0)

YMnO₃

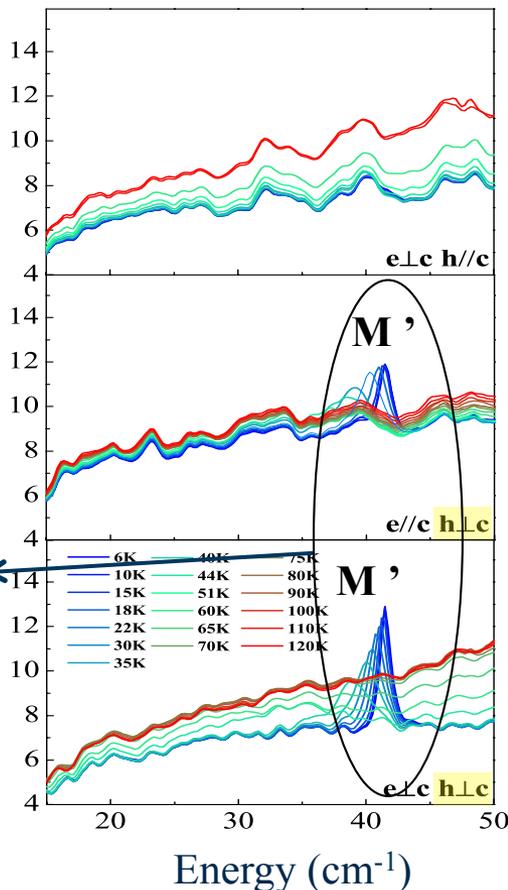
ErMnO₃



Magnon Mn³⁺ :
composantes de spin selon c
h//c

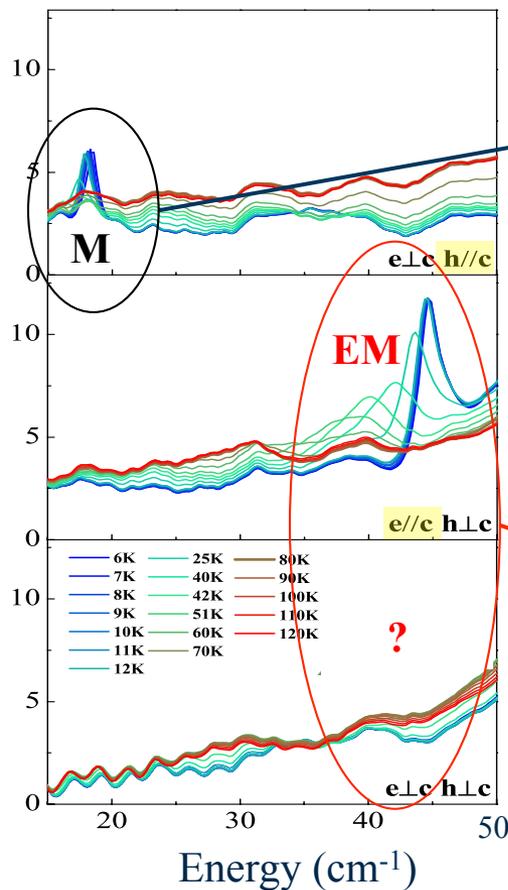
Magnon Mn³⁺ :
composantes de spin dans plan (a,b)
h⊥c

YMnO₃



Magnon Mn³⁺:
 composantes de
 spin dans plan (a,b)
 h_⊥c

ErMnO₃



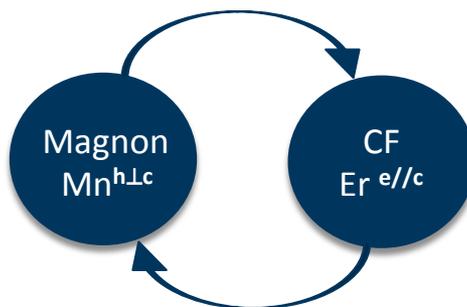
Magnon Mn³⁺:
 composantes de
 spin selon c
 h//c

Magnon Mn³⁺:
 composantes de
 spin dans plan (a,b)
 activé par la
 composante e de
 l'onde THz -> EM
 e//c

Origine de l'électro-activité de EM → couplage Mn-Er

Electro-activité de EM ?

Hybridation entre un magnon associé à l'ordre magnétique du Mn et une excitation de champ cristallin de l'Er électro-active

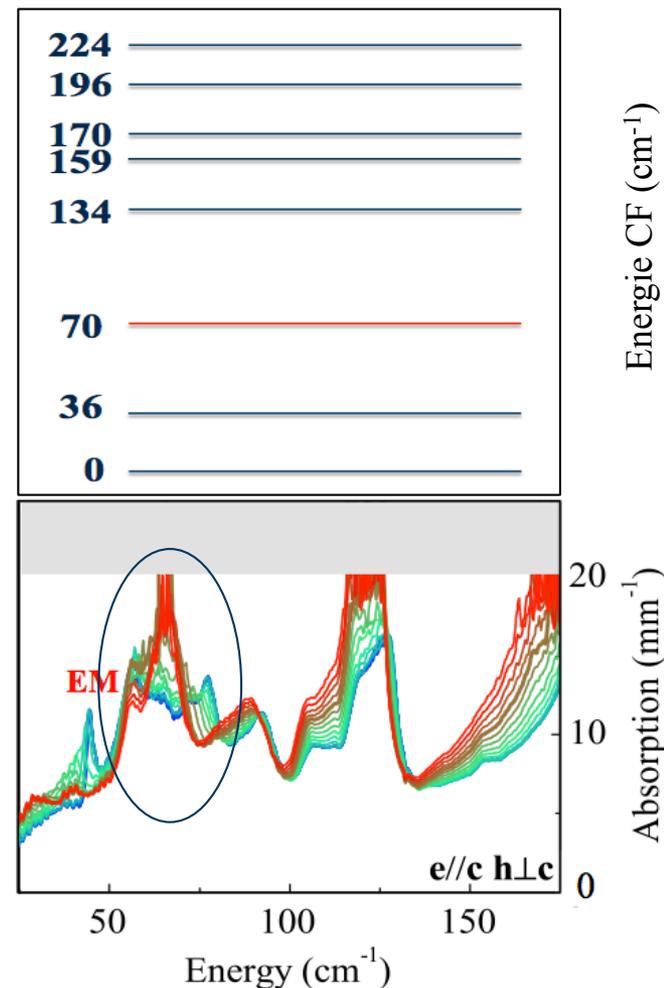


Quelle transition CF ?

- Fort couplage entre Mn et Er -> site 4b
- Calculs de champ cristallin pour le site 4b
- Expérimentalement : signal amplifié pour $e//c$ à 70 cm^{-1}

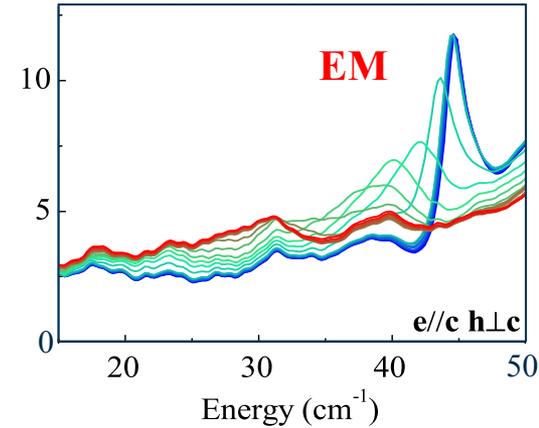
Les symétries autorisent-t-elles des transitions de champ cristallin électro-actives ($e//c$) ?

- Oui, site 4b non centro-symétrique



Observation d'un magnon excité par le champ électrique de l'onde électromagnétique dans le composé multiferroïque ErMnO_3

→ *Couplage magnéto-électrique dynamique*



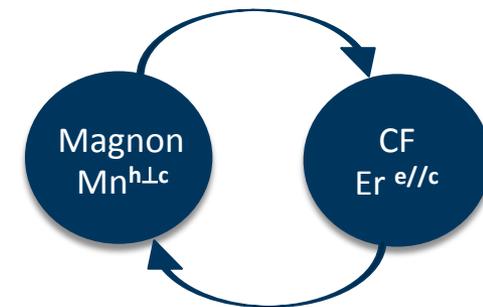
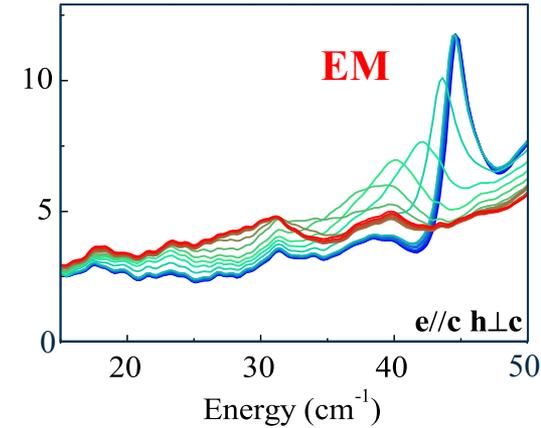
Observation d'un magnon excité par le champ électrique de l'onde électromagnétique dans le composé multiferroïque ErMnO_3

→ *Couplage magnéto-électrique dynamique*

Electro-activité de ce magnon ?

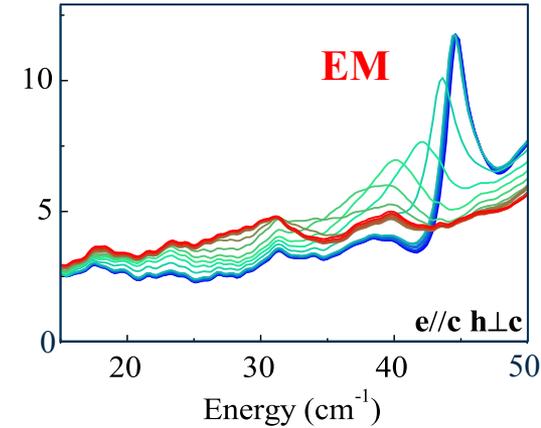
Hybridation entre un magnon Mn et une excitation de champ cristallin Er électro-active

→ *Nouveau mécanisme à l'origine du couplage magnéto-électrique dynamique*



Observation d'un magnon excité par le champ électrique de l'onde électromagnétique dans le composé multiferroïque ErMnO_3

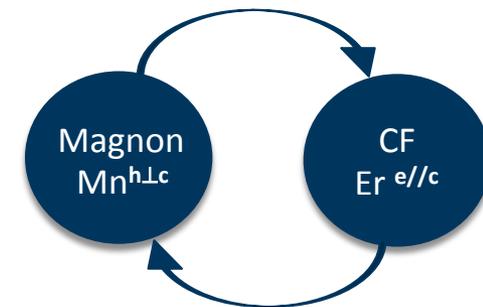
→ *Couplage magnéto-électrique dynamique*



Electro-activité de ce magnon ?

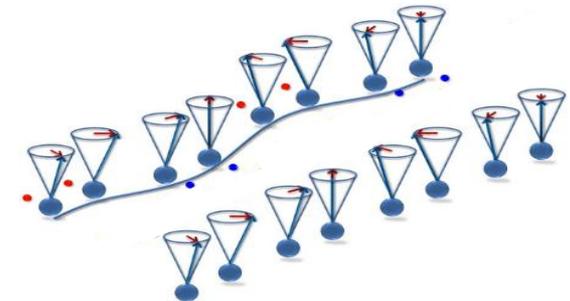
Hybridation entre un magnon Mn et une excitation de champ cristallin Er électro-active

→ *Nouveau mécanisme à l'origine du couplage magnéto-électrique dynamique*



Intérêt ?

→ *Possibilité de manipuler une excitation de nature magnétique en appliquant un champ électrique*



- **R. Ballou, J. Debray, J. Balay, A. Hadj-Azzem, P. Lejay**
Institut Néel, CNRS et Université Joseph Fourier, Grenoble , France
- **S. Petit**
Laboratoire Léon Brillouin, CEA-CNRS, CE-Saclay, F-91191 Gif sur Yvette, France
- **G. Creff, F. Willaert, J-B. Brubach and P. Roy**
SOLEIL / AILES L'Orme des Merisiers, France
- **J. Ollivier (IN5)**
Institut Laue-Langevin, Grenoble, France
- **L.-P. Regnault (IN22)**
Institut de Nanosciences et Cryogénie, SPSMS/MDN, CEA-Grenoble, 38054 Grenoble Cedex 9, France
- **A. Cano**
ESRF, Grenoble, France

2. Simulations d'ondes de spin : Mn³⁺ (S. Petit)

$$H = \sum_{\langle i,j \rangle} J_{ij} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j + H \vec{S}_i \cdot \vec{n}_i + D S_i^z S_i^z$$

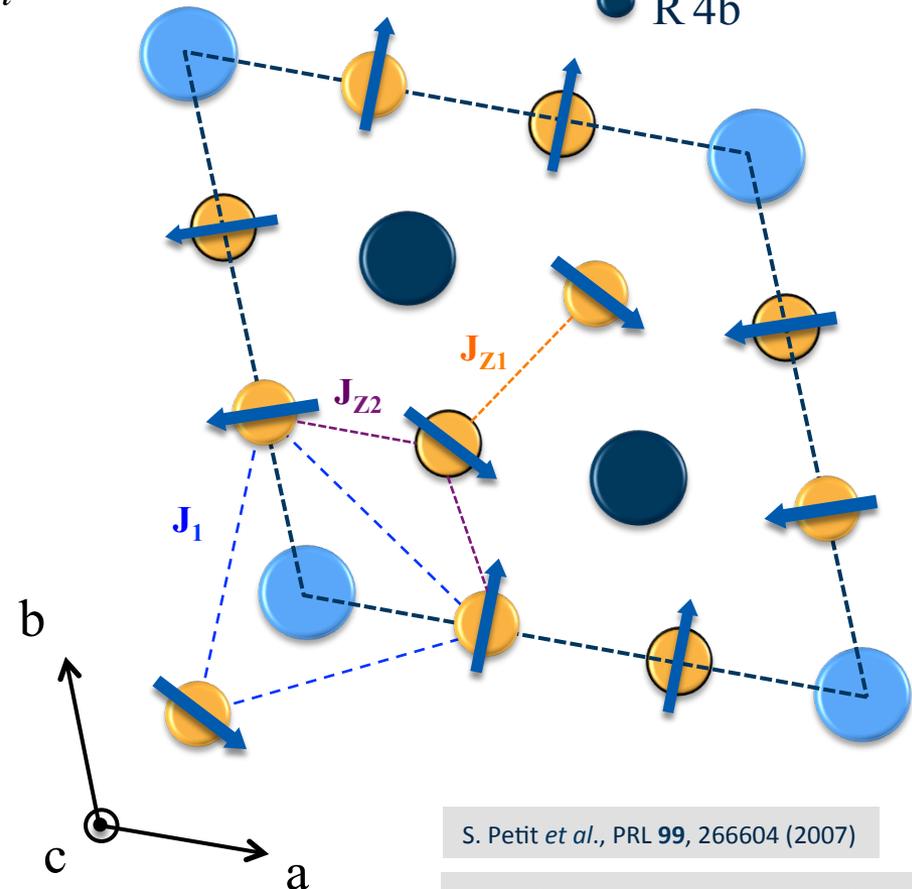
- Mn³⁺ z=1
- Mn³⁺ z=1/2
- R 2a
- R 4b

- 3 interactions d'échange : J₁, J_{Z1} et J_{Z2}

ErMnO ₃	YMnO ₃
J ₁ = 2.6 meV	J ₁ = 2.3 meV
J _{Z1} = 0.005 meV	J _{Z1} = 0.03 meV
J _{Z2} = 0.012 meV	J _{Z2} = 0.016 meV

- Anisotropie magnétocristalline
 - Axiale H
 - Planaire D

ErMnO ₃	YMnO ₃
H = 0.06 meV	H = 0.0008 meV
D = 0.35 meV	D = 0.48 meV



S. Petit *et al.*, PRL **99**, 266604 (2007)

X. Fabrèges *et al.*, PRL **103**, 067204 (2009)

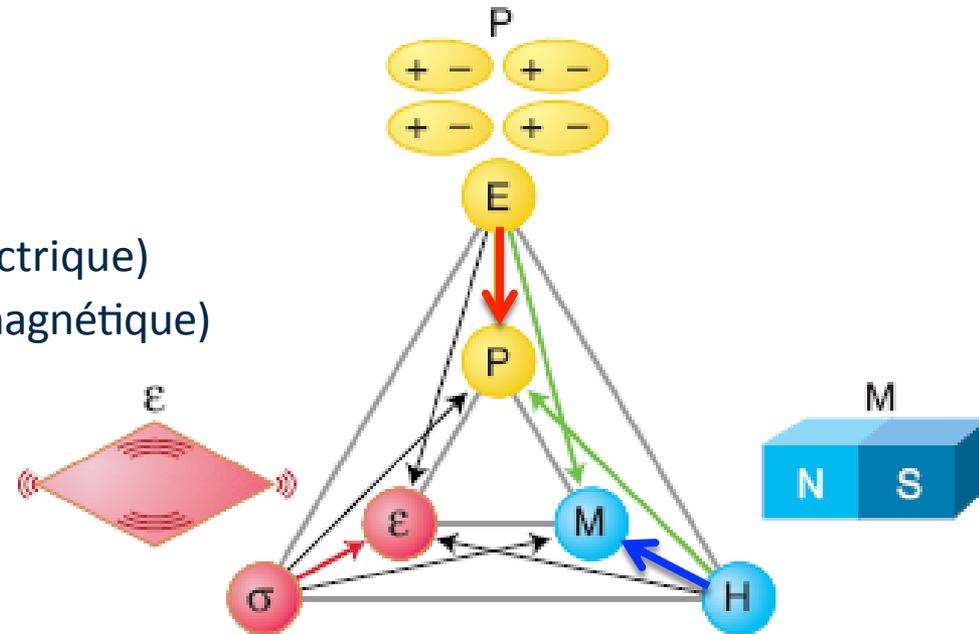
Multiferroïsme

Coexistence de deux ordres ferroïques:

Ordre électrique (Polarisation/champ électrique)

Ordre magnétique (Aimantation/champ magnétique)

Ordre élastique



The renaissance of multiferroics SCIENCE 2006

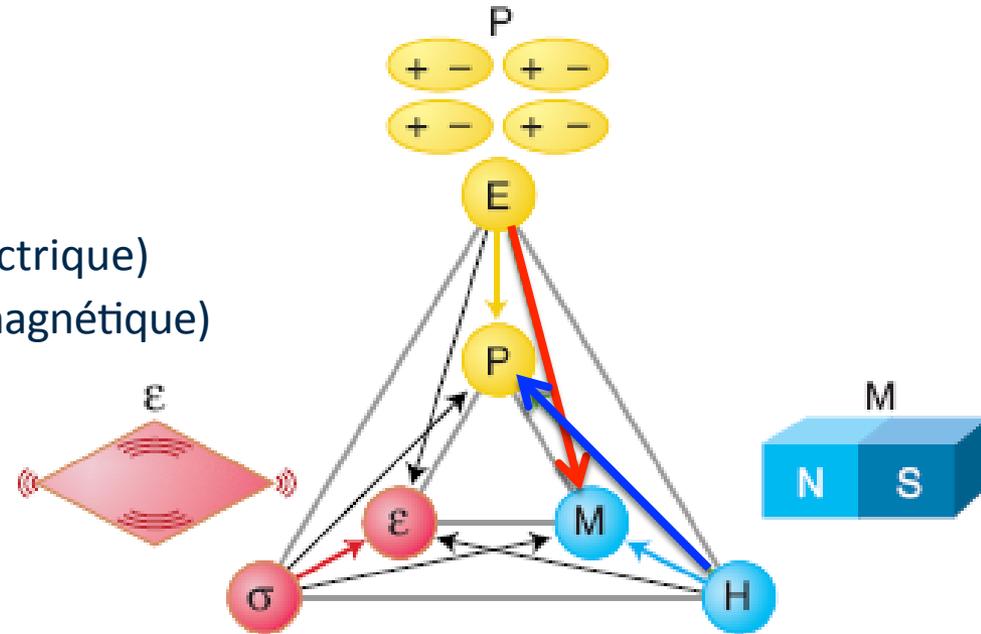
Multiferroïsme

Coexistence de deux ordres ferroïques:

- Ordre électrique (Polarisation/champ électrique)
- Ordre magnétique (Aimantation/champ magnétique)
- Ordre élastique

Couplage magnéto-électrique

Contrôle de l'aimantation en appliquant un champ électrique ou de la polarisation en appliquant un champ magnétique.



The renaissance of multiferroics SCIENCE 2006

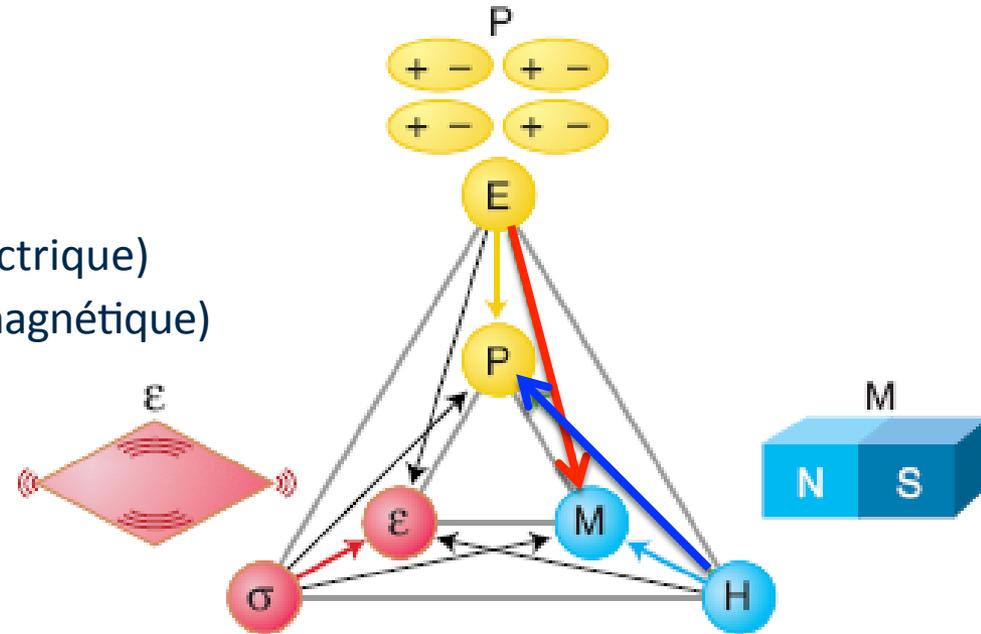
Multiferroïsme

Coexistence de deux ordres ferroïques:

- Ordre électrique (Polarisation/champ électrique)
- Ordre magnétique (Aimantation/champ magnétique)
- Ordre élastique

Couplage magnéto-électrique

Contrôle de l'aimantation en appliquant un champ électrique ou de la polarisation en appliquant un champ magnétique.



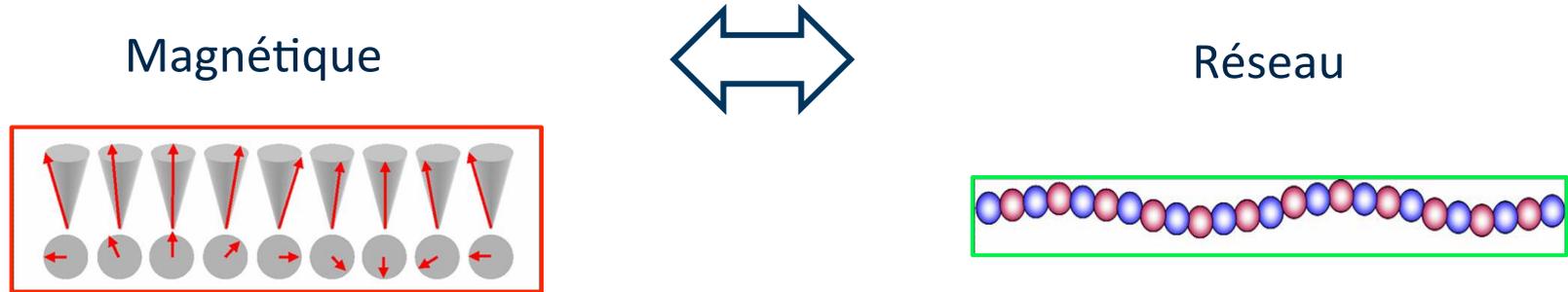
The renaissance of multiferroics SCIENCE 2006

Couplage magnéto-électrique dynamique

Couplage magnéto-électrique dynamique

- 1ere évidence expérimentale dans TbMnO_3

Pimenov A. *et al.*, Nature Phys. **2**, 97 (2006)



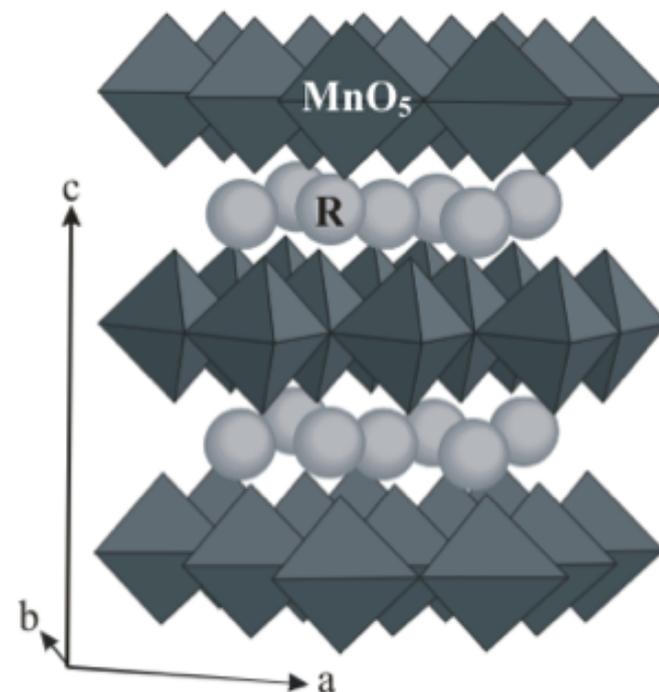
Electromagnons : magnons ayant un caractère dipolaire électrique excité par le champ électrique d'une onde électromagnétique

Mécanismes microscopiques à l'origine de ce couplage magnéto-électrique dynamique

1. Composés h-RMnO₃

Hexagonaux : Sc, In, Lu, Tm, Er, Yb, Y, Ho, Dy
 Multiferroïques de type I : $T_c < 1000\text{K}$ et $T_N < 100\text{K}$
 Polarisation électrique selon c : $\approx 5.6 \mu\text{C}/\text{cm}^2$

- Groupe d'espace : $P6_3cm$
 - Mn : site 6c
 - R : 2 sites R(2a) et R(4b)
- Transition isostructurale à T_N $x(\text{Mn}) \neq 1/3$
- Mn³⁺ : structure magnétique à 120° dans le plan (a,b) + composante ferromagnétique selon c ?
- R³⁺ : structure magnétique F ou AF // ou \perp à c
- Couplage Mn-R
- Excitations hybrides : YMnO₃, HoMnO₃



Bertaut *et al.*, Phys. Lett. **5** 27 (1963)

Yakel *et al.*, Acta Cryst. **16** 957 (1963)

Muñoz *et al.*, PRB **62** 9498 (2000)

M. Fiebig *et al.*, PRL **84** 5620 (2000)

B. B. Van Aken *et al.*, Nature Mat. **3** 164 (2008)

S. Lee *et al.*, Nature **451** (2008)

X. Fabrèges *et al.*, PRL **103** 067204 (2009)

S. Petit *et al.*, PRL **99**, 266604 (2007)

1. Composés h-RMnO₃ : cas particulier de YMnO₃

- Structure magnétique :
 - Mn³⁺ : moments magnétiques à 120° dans le plan (a,b)

Muñoz *et al.*, PRB **62** 9498 (2000)

X. Fabrèges *et al.*, PRL **103** 067204 (2009)

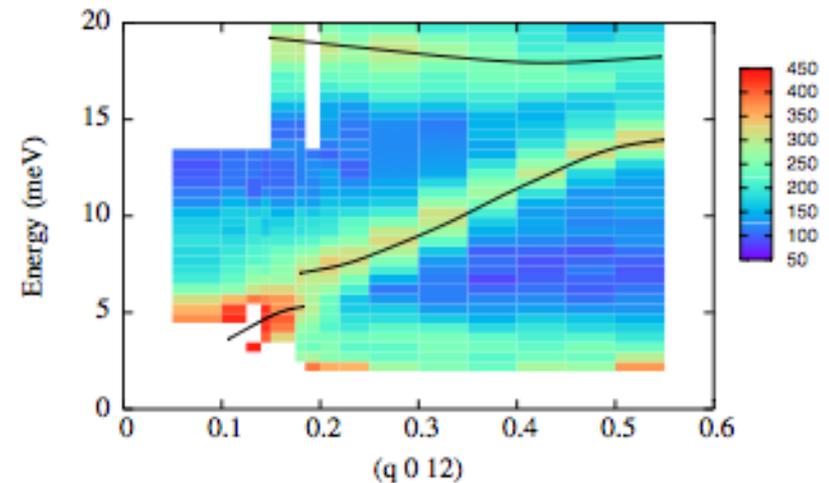
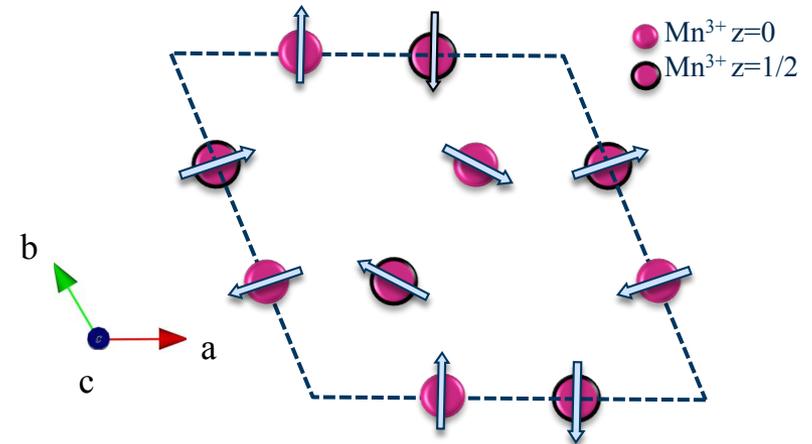
- Composante ferromagnétique selon c

K. Singh *et al.*, J. Phys.: Condens. Matter **25** 416002 (2013)

S. Pailhès *et al.*, PRB **79** 134409 (2009)

- Mode hybride magnon-phonon

S. Petit *et al.*, PRL **99**, 266604 (2007)

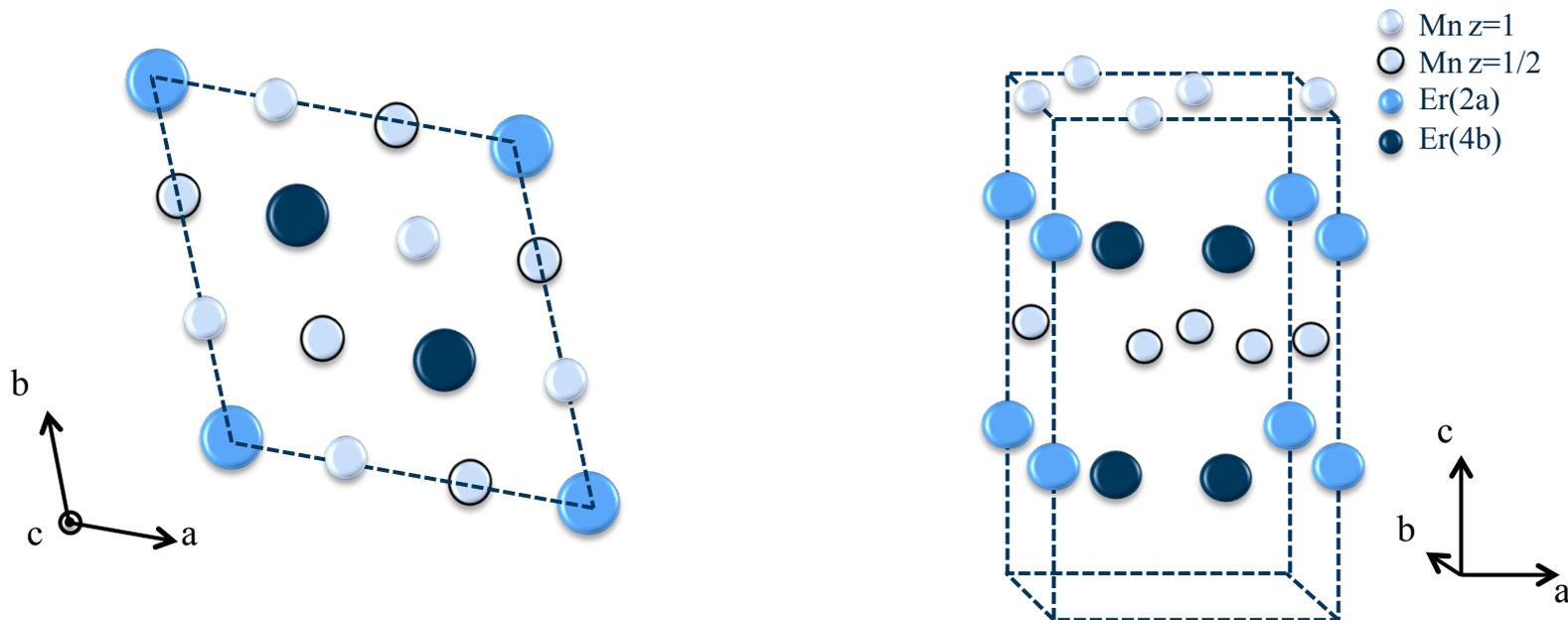


2. ErMnO₃ : structure cristallographique

Multiferroïques de type I : $T_c = 833\text{K}$ et $T_N = 79\text{K}$

Groupe d'espace : $P6_3cm$

Mn : site 6c Er : 2 sites R(2a) et R(4b)



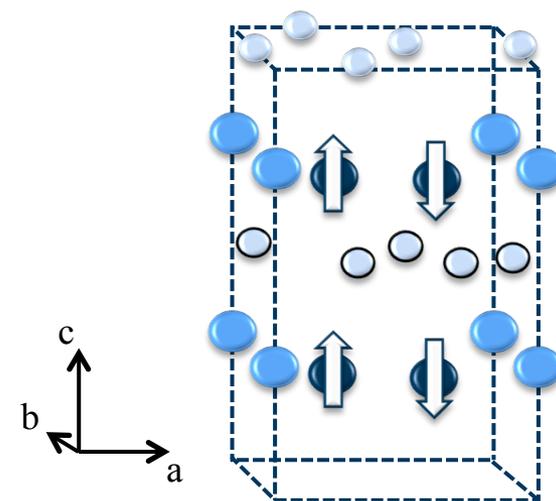
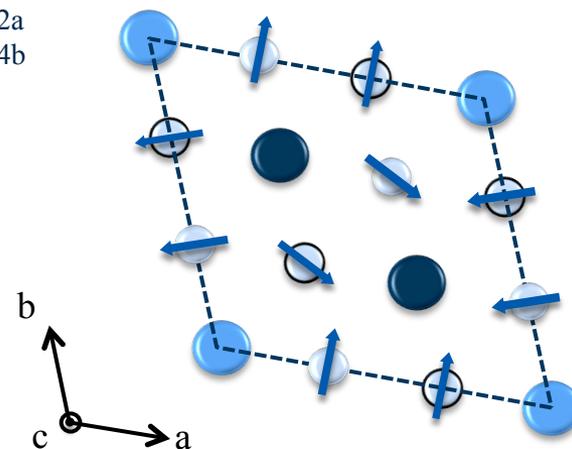
2. ErMnO₃ : structure magnétique

- **Ordre magnétique associé aux Mn³⁺ : T_{N1} = 79K**
 - Vecteur de propagation $k = 0$
 - Moments magnétiques à 120° dans le plan (a,b)

- **Ordre magnétique associé aux Er³⁺ site 4b : T_{N1} = 79K**
 - Polarisé par le champ moléculaire des moments magnétiques des ions Mn³⁺
 - Moments magnétiques le long de l'axe c

- **Ordre magnétique associé aux Er³⁺ site 2a : T_{N2} = 10K**
 - Ordre magnétique à plus basse T
 - Induit une réorientation des moments magnétiques des ions Mn³⁺ et Er³⁺ site 4b

- Mn³⁺ z=1
- Mn³⁺ z=1/2
- Er³⁺ 2a
- Er³⁺ 4b



D. Meier *et al.*, PRB **86**, 184415 (2012)

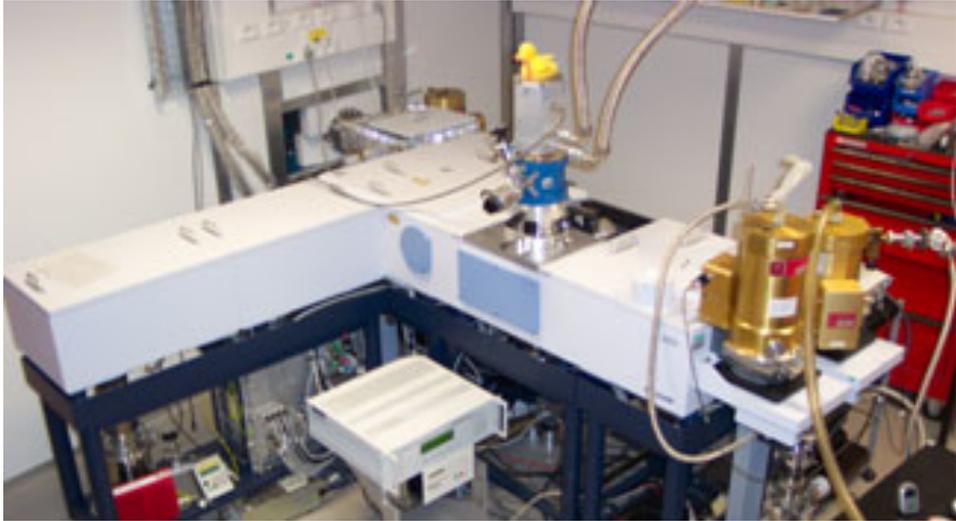
J. Park *et al.*, Appl. Phys. A **74** 802 (2002)

M. Fiebig *et al.*, PRL **88**, 027203 (2002)

H. Sugie *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **71**, 1558 (2002)



1. Mesures THz sur la ligne AILES/SOLEIL



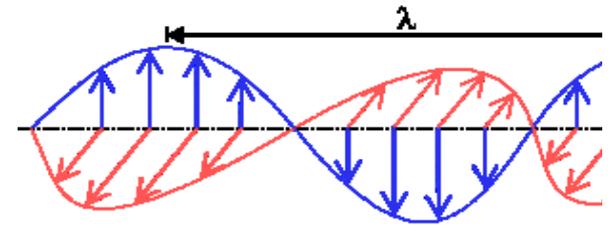
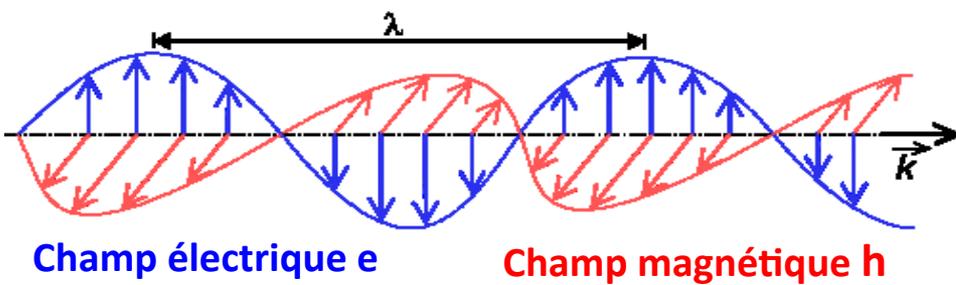
- Transmission : $T = I / I_0 \approx \exp(-\alpha d)$
- Absorbance : $\text{Abs} = -\ln(T) \approx \alpha d$

98 % de polarisation verticale dans la gamme d'énergie $< 100 \text{ cm}^{-1}$

Intensité incidente : I_0

Echantillon

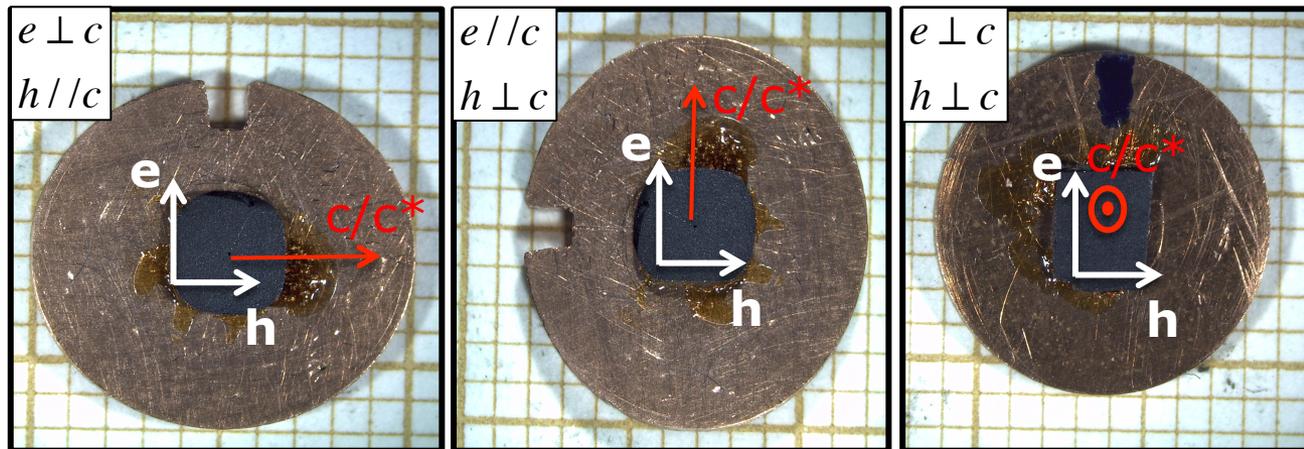
Intensité transmise : I



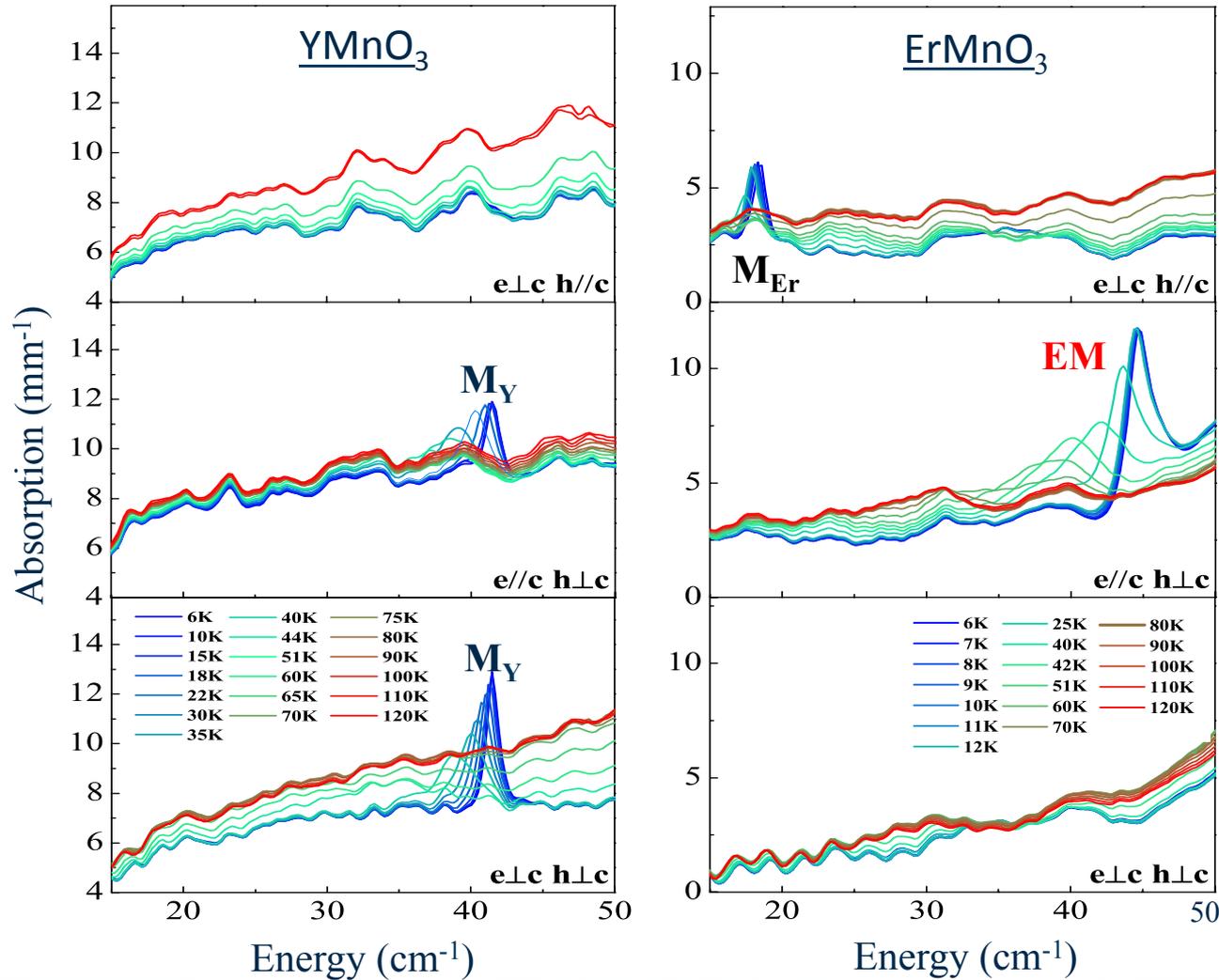
2. Configurations expérimentales

2 échantillons, 3 configurations expérimentales

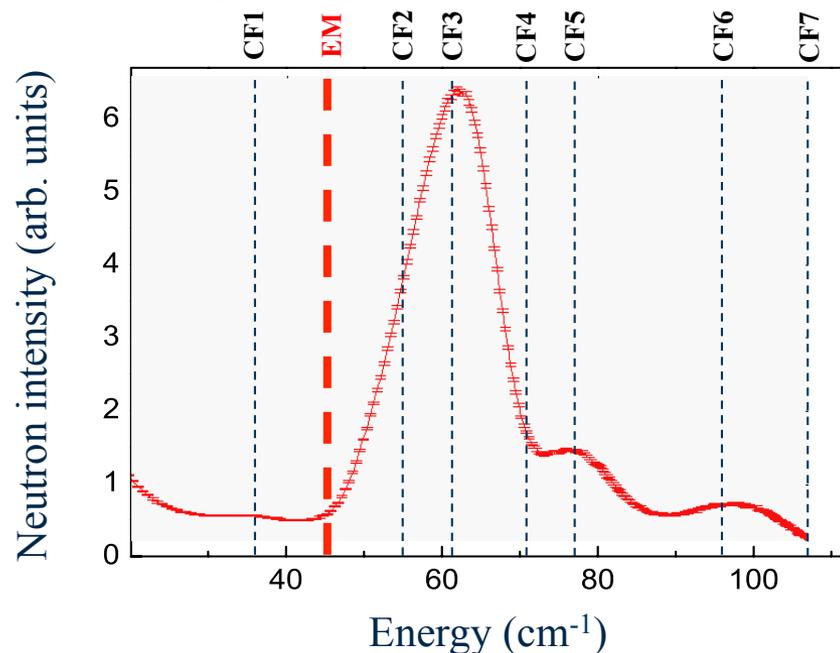
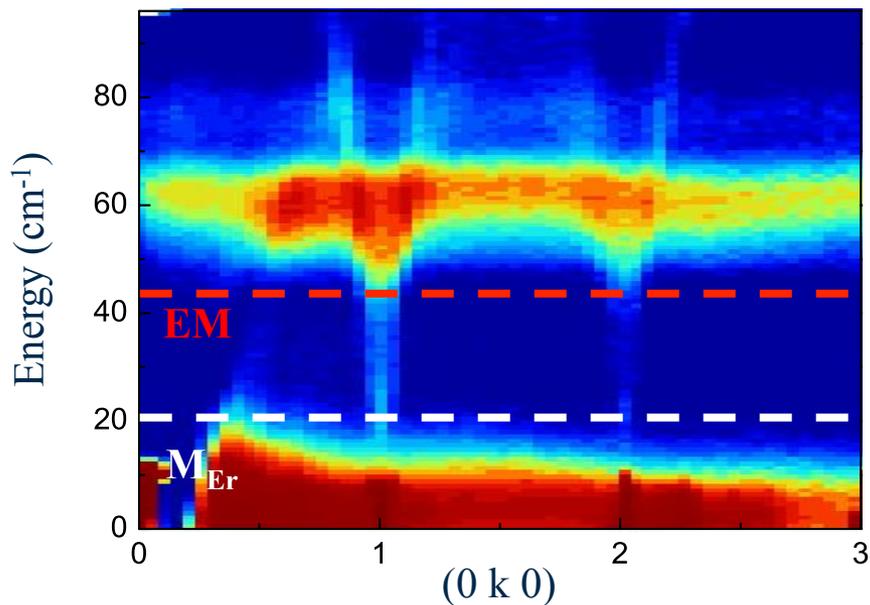
Orientation relative du champ e électrique et h magnétique THz par rapport à l'axe c



4. Comparaison avec YMnO_3



1. Diffusion inélastique des neutrons : ErMnO_3 (ToF IN5) $T = 1.5\text{K}$



- Une excitation très intense et peu dispersive vers 60 cm^{-1}
- Une excitation très dispersive
- Signal très intense et peu dispersif à basse énergie

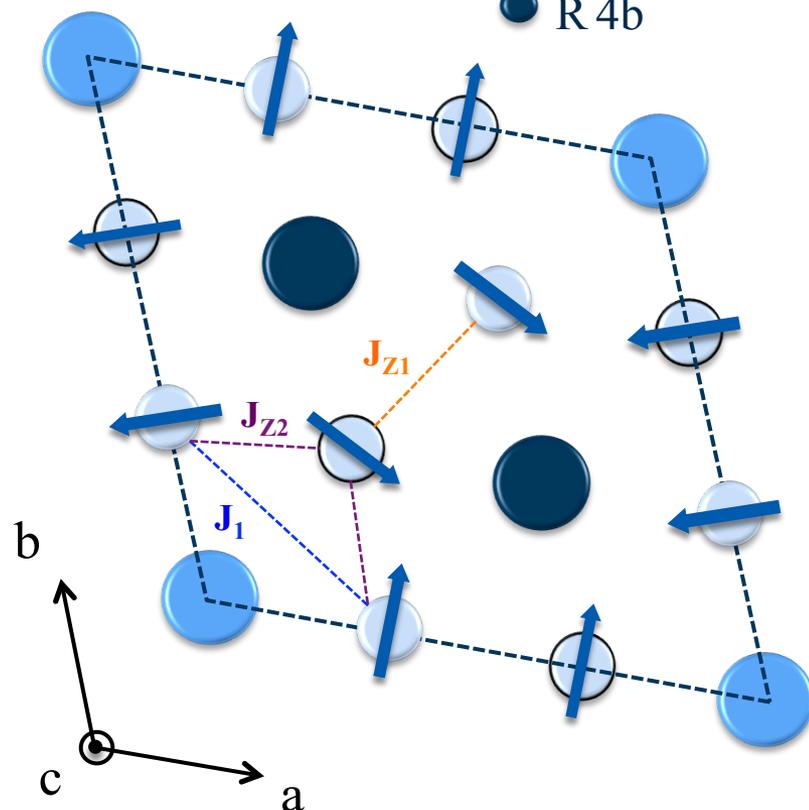
- Transitions de champ cristallin
- Ondes de spin : Mn^{3+}

2. Simulations d'onde de spin : Mn^{3+} (S. Petit)

$$H = \sum_{\langle i,j \rangle} J_{ij} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j + H \vec{S}_i \cdot \vec{n}_i + D S_i^z S_i^z$$

- $Mn^{3+} z=1$
- $Mn^{3+} z=1/2$
- R 2a
- R 4b

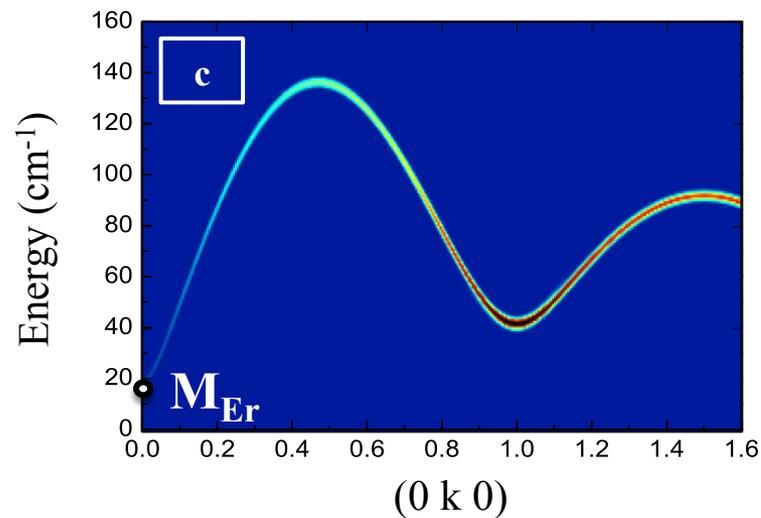
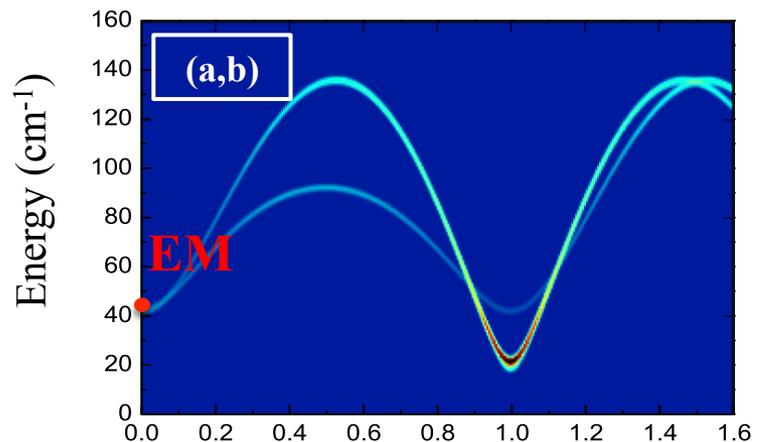
- 3 interactions d'échange : J_1 , J_{z1} et J_{z2}
- Transition isostructurale $x(Mn) \neq 1/3$:
 - $x > 1/3$: $J_{z1} > J_{z2}$
 - $x < 1/3$: $J_{z1} < J_{z2}$
- Anisotropie magnétocristalline
 - Axe facile H
 - Plan facile D



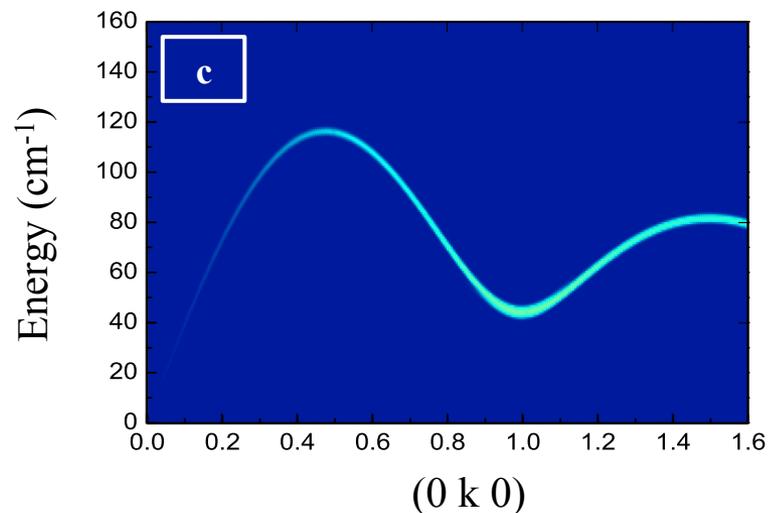
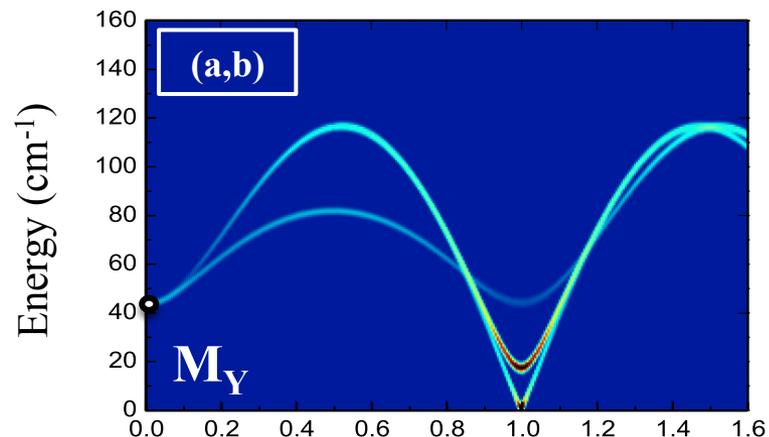
X. Fabrèges *et al.*, PRL **103**, 067204 (2009)

2. Simulations d'ondes de spin : Mn^{3+}

ErMnO₃

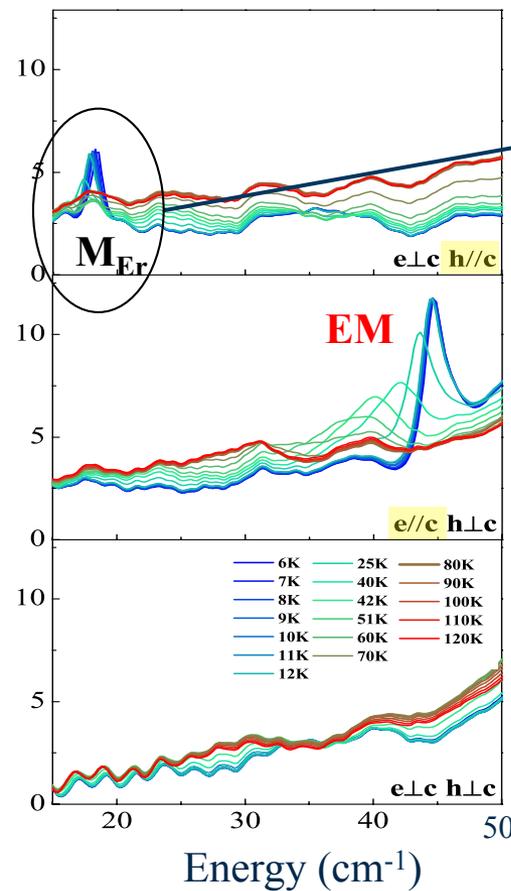
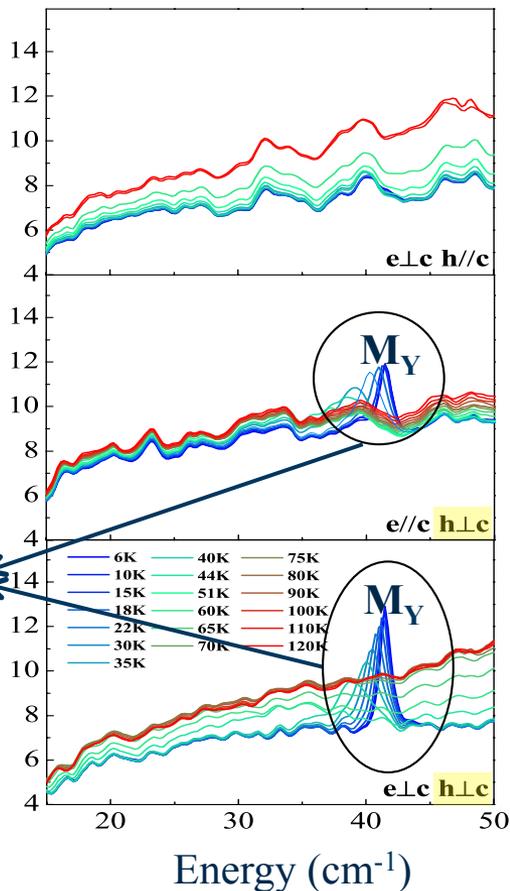


YMnO₃



YMnO₃

ErMnO₃

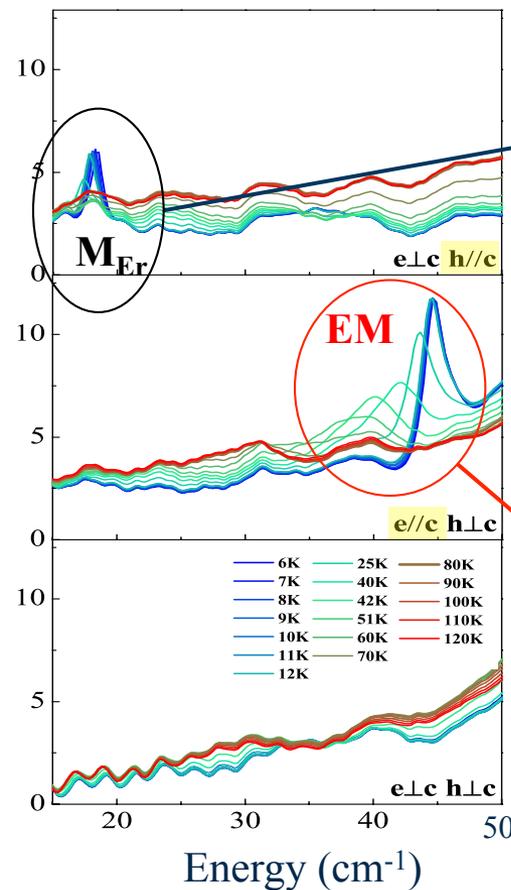
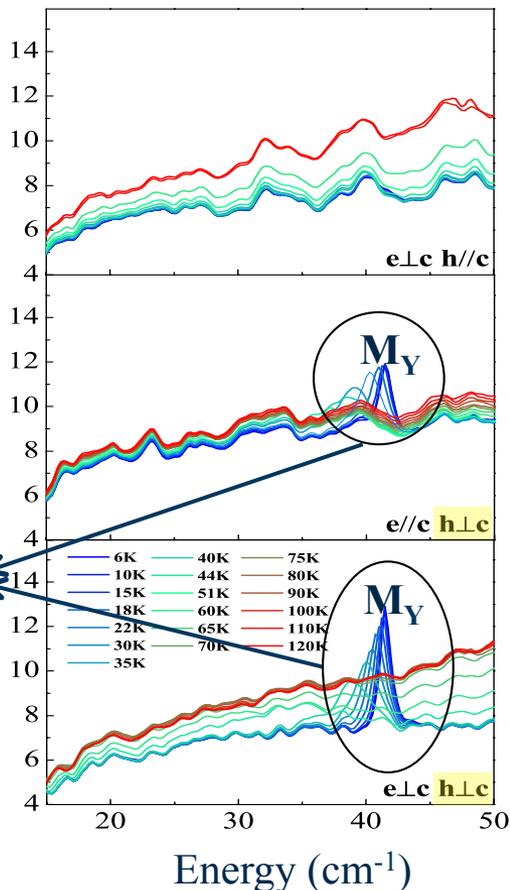


Magnon Mn³⁺ :
composantes de
spin selon c
h//c

Magnon Mn³⁺ :
composantes de
spin dans plan (a,b)
h⊥c

YMnO₃

ErMnO₃



Magnon Mn³⁺ :
 composantes de
 spin selon c
 h//c

Magnon Mn³⁺ :
 composantes de
 spin dans plan (a,b)
 activé par la
 composante e de
 l'onde THz -> EM
 e//c

Magnon Mn³⁺ :
 composantes de
 spin dans plan (a,b)
 h⊥c

Origine de l'électro-activité de EM → couplage Mn-Er

Electro-activité de EM → Hybridation entre un magnon associé à l'ordre magnétique du Mn et une transition de champ cristallin de l'Er électro-active

Hybridation : l'électro-activité (e//c) de EM → transition de champ cristallin (e//c)

Les symétries autorisent-elles des transitions de champ cristallin électro-actives (e//c) ?

Oui mais il est impossible de discerner e//c et h//c

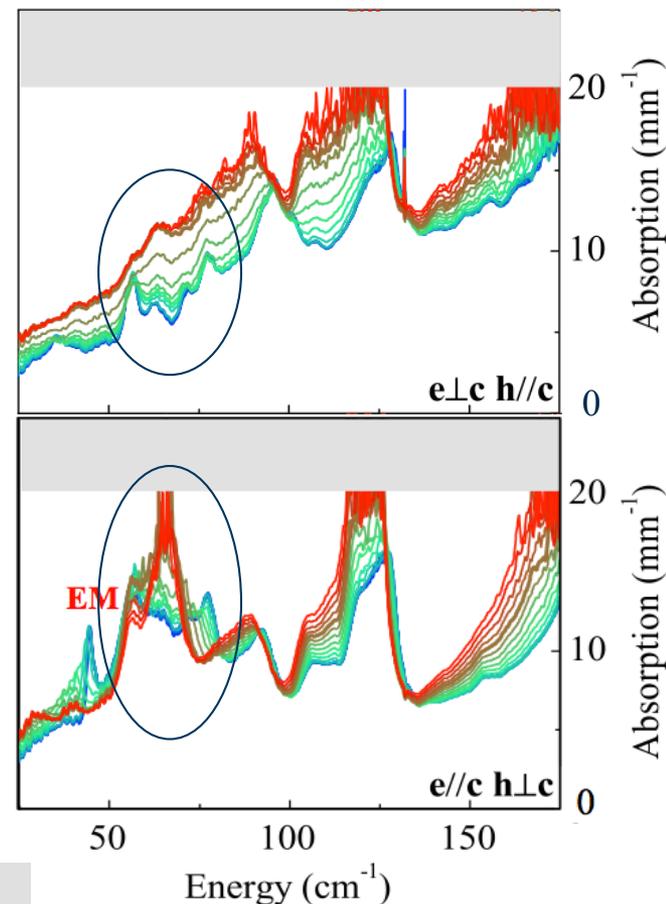
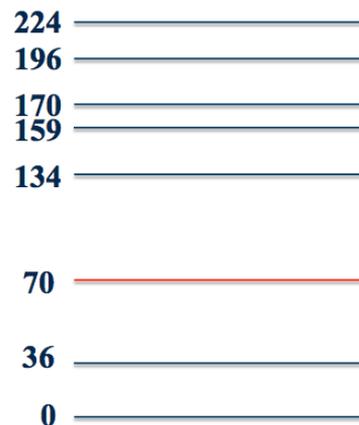
Quelle transition est hybridée ?

Fort couplage entre Mn et Er → site 4b

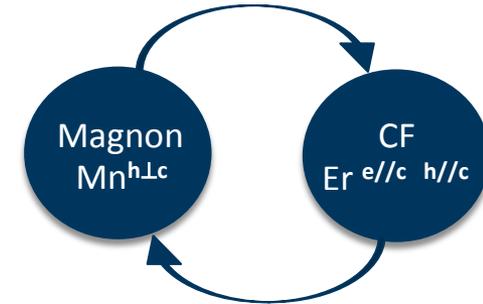
Calculs de champ cristallin pour le site 4b

Expérimentalement : splitting à la T_N

Signal amplifié pour e//c



Mécanisme d'hybridation



	$M_{er}^{h\perp c}$		$Er^{e//c h\perp c}$	
$e\perp c h//c$	faible	←	Transfert de poids spectral	$Er^{h//c}$ existe, transfert à $M_{er}^{h\perp c}$ mais signal faible
$e//c h\perp c$		↔		$Er^{e//c}$ et $M_{er}^{h\perp c}$ signal amplifié
$e\perp c h\perp c$	Transfert de poids spectral	→	Oui saturation	$M_{er}^{h\perp c}$ existe, transfert à $Er^{e//c h\perp c}$

Origine du couplage Mn-Er ?

- **R. Ballou, J. Debray, J. Balay, A. Hadj-Azzem, P. Lejay**
Institut Néel, CNRS et Université Joseph Fourier, Grenoble , France
- **S. Petit**
Laboratoire Léon Brillouin, CEA-CNRS, CE-Saclay, F-91191 Gif sur Yvette, France
- **G. Creff, F. Willaert, J-B. Brubach and P. Roy**
SOLEIL / AILES L'Orme des Merisiers, France
- **J. Ollivier (IN5)**
Institut Laue-Langevin, Grenoble, France
- **L.-P. Regnault (IN22)**
Institut de Nanosciences et Cryogénie, SPSMS/MDN, CEA-Grenoble, 38054 Grenoble Cedex 9, France
- **A. Cano**
ESRF, Grenoble, France