

EXCITATIONS DE BASSE ÉNERGIE ET COUPLAGE AU RÉSEAU DANS LE PYROCHLORE $Tb_2Ti_2O_7$

S.Guitteny, J.Robert, S.Petit, I.Mirebeau

Laboratoire Léon Brillouin, CEA-Saclay

P.Bonville

DSM/IRAMIS/SPEC, CEA-Saclay

C.Decorse

ICMMO, Université Paris XI

H.Mutka, J.Ollivier, M.Boehm, P.Steffens

Institut Laue Langevin, Grenoble

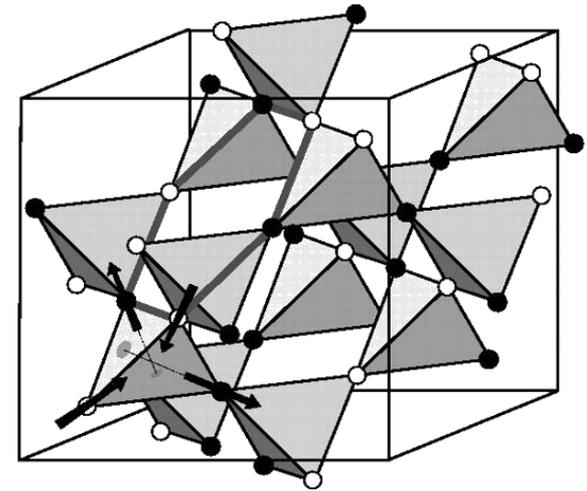
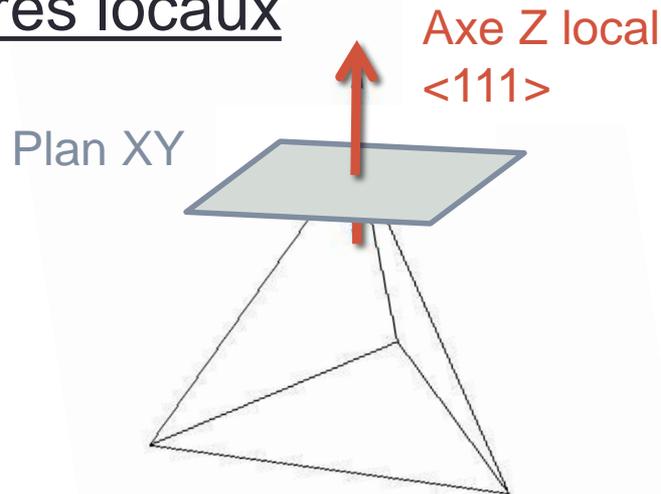


- **INTRODUCTION : $Tb_2Ti_2O_7$, un système frustré**
 - Géométrie du réseau
 - Champ cristallin
 - Echange
 - La diffusion de neutrons
- **I) CORRELATIONS STATIQUES**
 - Comparaison avec une glace de spin : $Ho_2Ti_2O_7$
- **II) EXCITATION DE BASSE ENERGIE**
 - Excitation qui se propage
 - Fluctuations transverses
- **III) COUPLAGE MAGNETO-ELASTIQUE**
 - Mode magnéto-élastique
 - Hamiltonien de couplage
- **CONCLUSION**

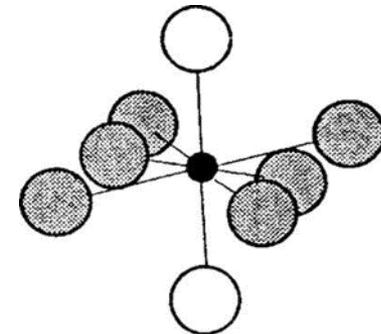
Géométrie du réseau

- $Tb_2Ti_2O_7$
 - Tb^{3+} sur réseau pyrochlore
 - Groupe de symétrie $Fd\bar{3}m$ (n°227)
 - $a=10,1528\text{\AA}$

Repères locaux



S.T.Bramwell & al, Science 294, (2001)

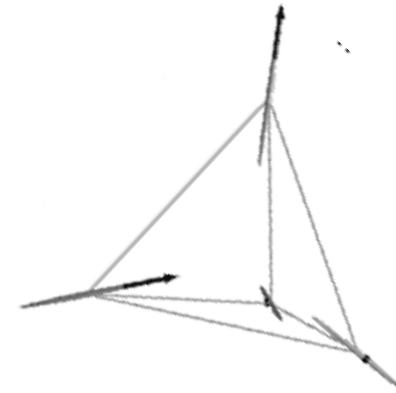
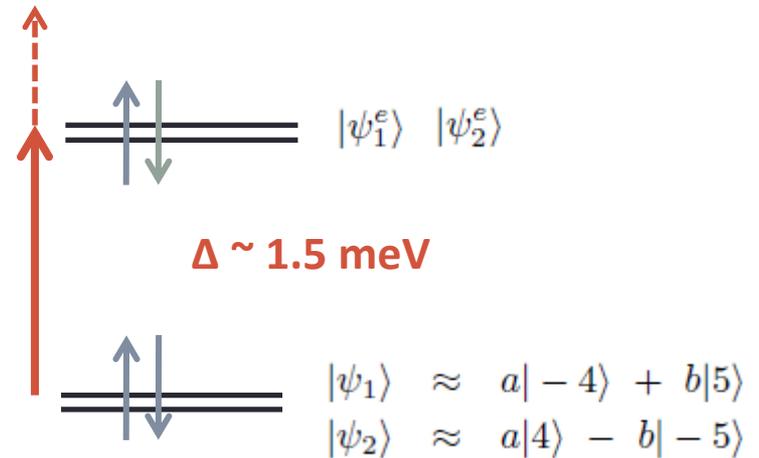


J.S.Gardner & al, Rev Mod Phys, (2010)

Champ cristallin

$$\mathcal{H}_{\text{CEF}} = \sum_{m,n} B_{nm} O_{nm}$$

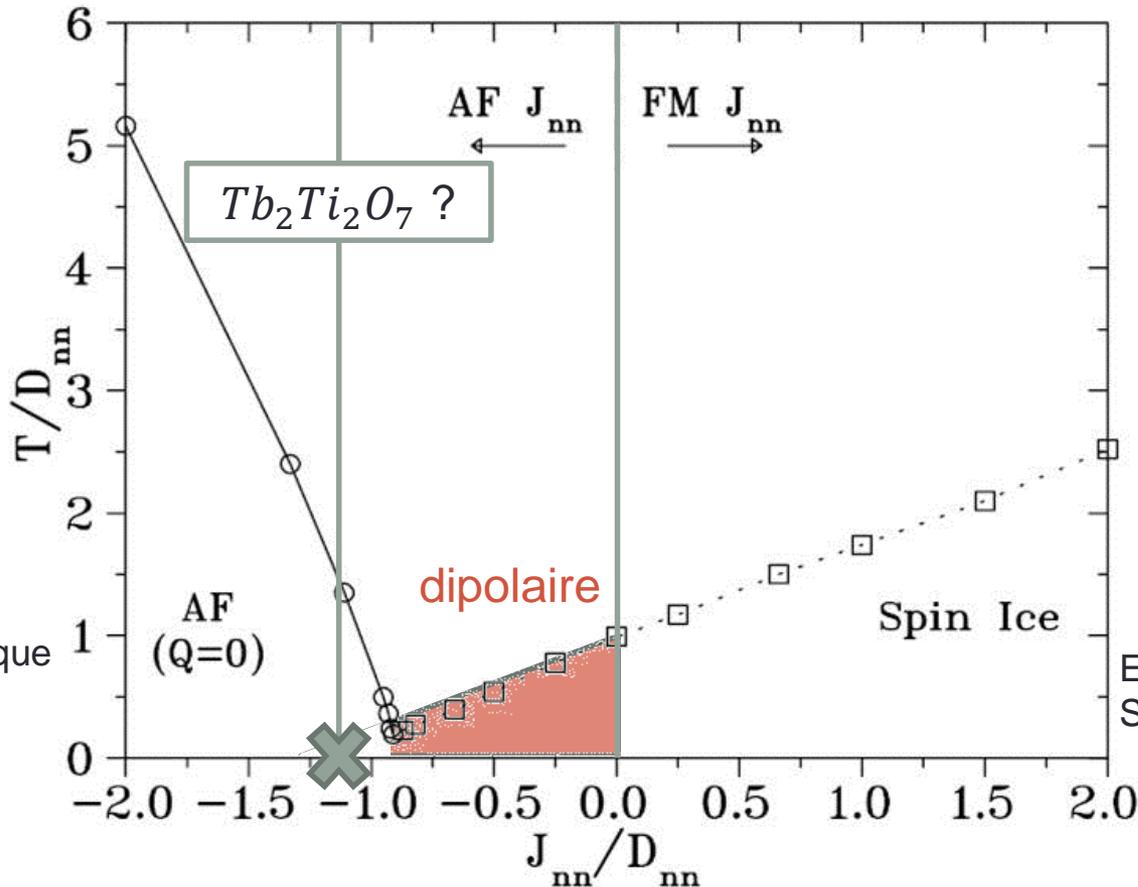
- Doublet fondamental
- Anisotropie Ising
 - Selon axe z local
 - Δ faible
 - \rightarrow population facile de $|\psi_1^e\rangle/|\psi_2^e\rangle$
 - $\rightarrow \exists$ composante \vec{j} transverse
- Tb^{3+} Non Kramers
 - Eléments de transition $\langle \psi_1 | \vec{j} | \psi_2 \rangle = \langle \psi_2 | \vec{j} | \psi_1 \rangle = 0$
 - \rightarrow pas de fluctuations entre les états du doublet fondamental a priori
 - \rightarrow pas d'intensité mesurable aux neutrons pour cette transition



H,Cao & al, PRL, 103, (2009)
 I.Mirebeau & al, PRB 76 (2007)
 J.Zhang & al, arXiv 1310,3264 (2013)
 K.A.Mueller, PR 171 (1968)

Echange

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_{\text{CEF}} - \frac{1}{2} \sum_{\langle i,j \rangle} \vec{J}_i \tilde{J} \vec{J}_j + \frac{1}{2} \sum_{i,j} \vec{J}_i \tilde{J} \text{dip}_{i,j} \vec{J}_j$$



Echange
Anti-Ferromagnétique
« All-in All-out »

Echange Ferromagnétique
Spin Ice « Two-in Two-out »

B.C. den Hertog & M.J.P.Gingras, PRL 84 (2000)

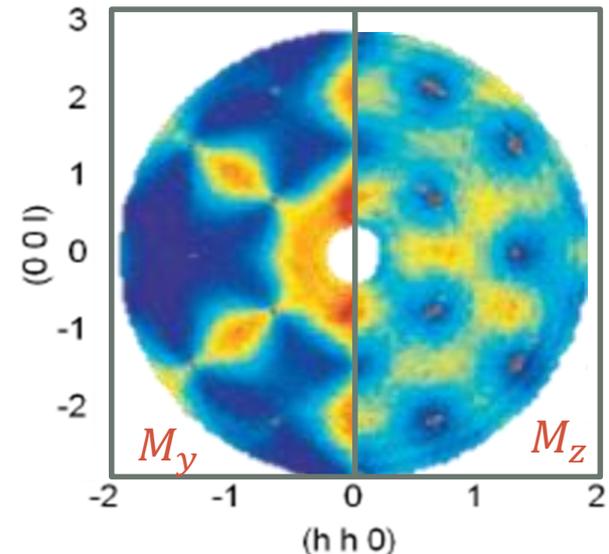
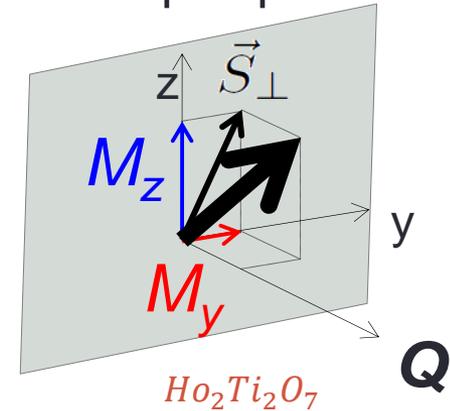
Echange effectif AF 1ers voisins → Ordre AF
Fluctuations jusqu'à 20mK – Dynamique sur plusieurs échelles de temps

M.J.P.Gingras & al, PRB 62, (2000)
 J.S.Gardner & al, PRL 82 (1999)

La diffusion de neutrons

Mesure de la transformée de Fourier dans l'espace réciproque des corrélations entre moments magnétiques

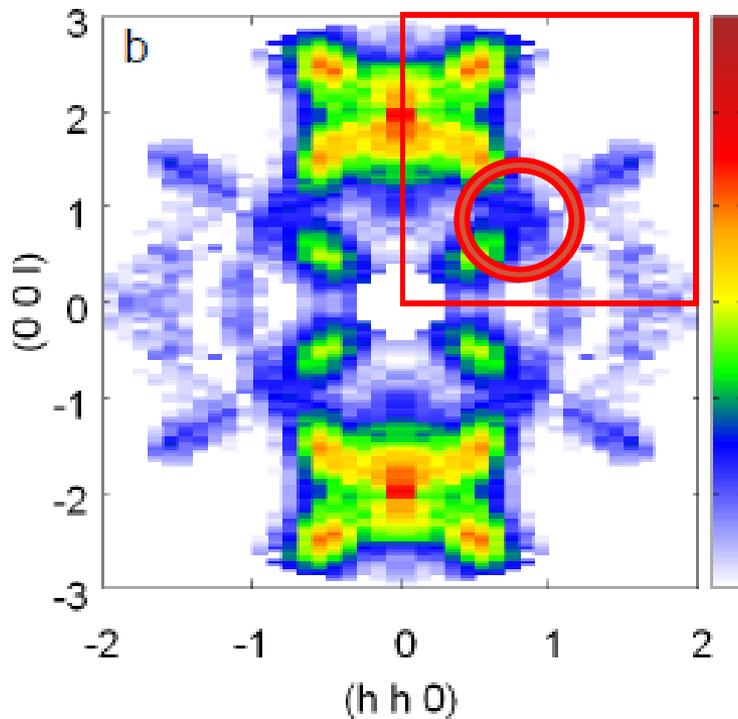
- Diffusion élastique
 - $S(Q) = \sum_{i,j} \langle \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j \rangle \cdot e^{i.Q.(r_i - r_j)}$
- Neutrons polarisés
 - $M_y : \langle S_i^y \cdot S_j^y \rangle$
 - ~ corrélations longitudinales de type spin-ice « two-in two-out » le long des axes (1,1,1) locaux
 - $M_z : \langle S_i^z \cdot S_j^z \rangle$
 - ~ corrélations transverses de type AF « two-up two-down » dans le repère global
- Spectromètres
 - « Trois-axes » - 4F1 (LLB) / IN14 (ILL)
 - « Temps de vol » - IN5 (ILL)



Corrélations statiques

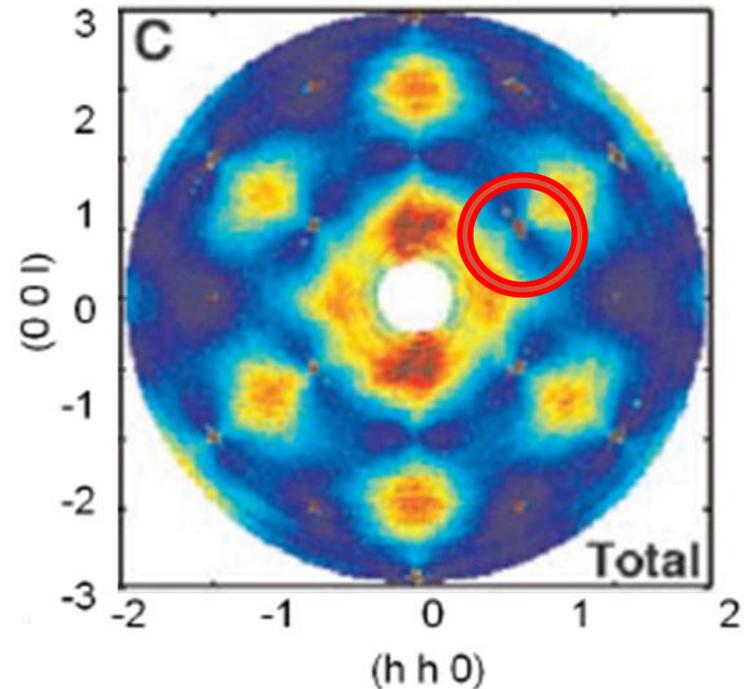
$$S(Q) = \sum_{i,j} e^{iQ \cdot (r_i - r_j)} \langle \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j \rangle$$

Tb₂Ti₂O₇ - 50 mK



S.Guitteny & al, PRL 111 (2013)

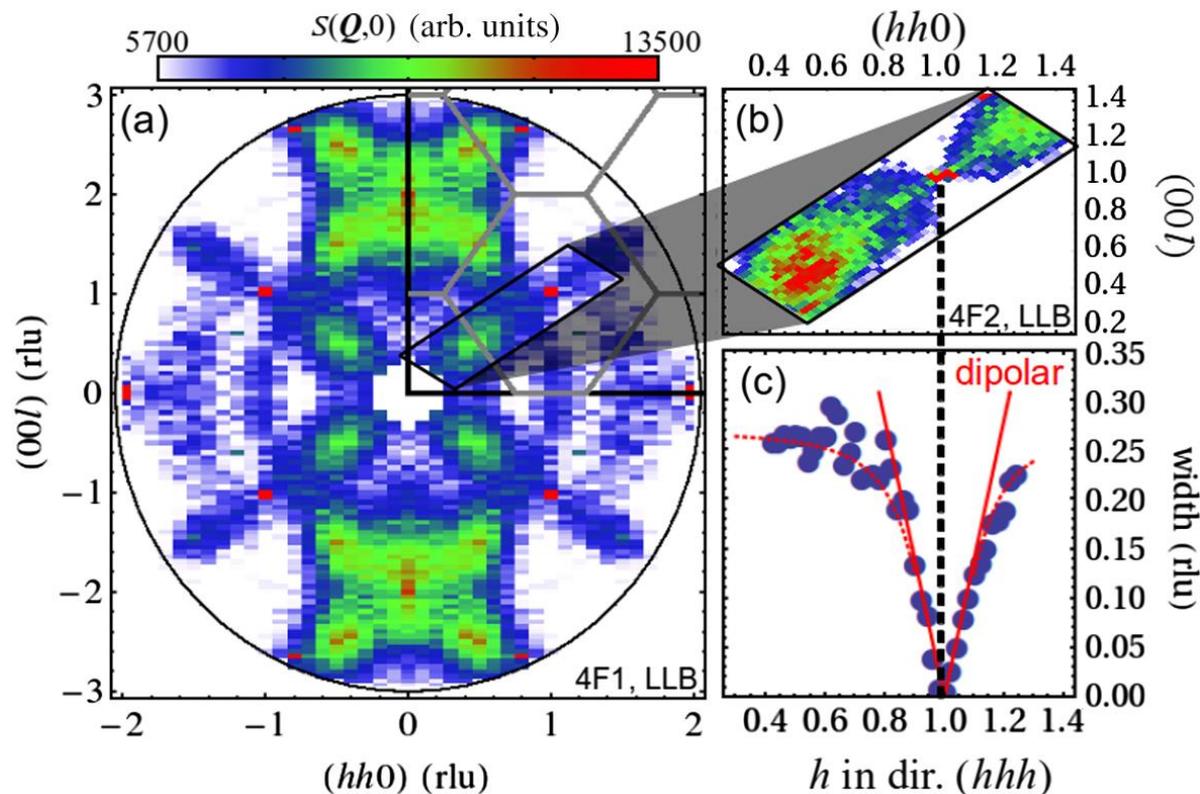
Ho₂Ti₂O₇ - 50 mK



T.Fennell & al, Science 326 (2009)

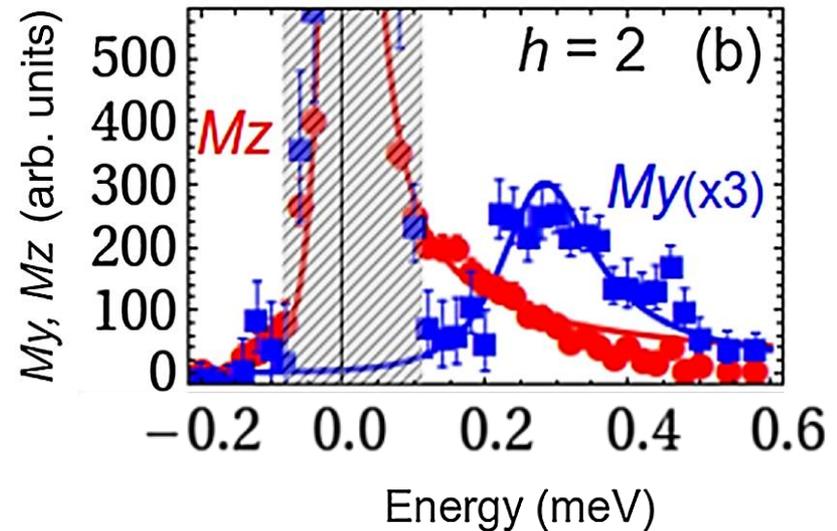
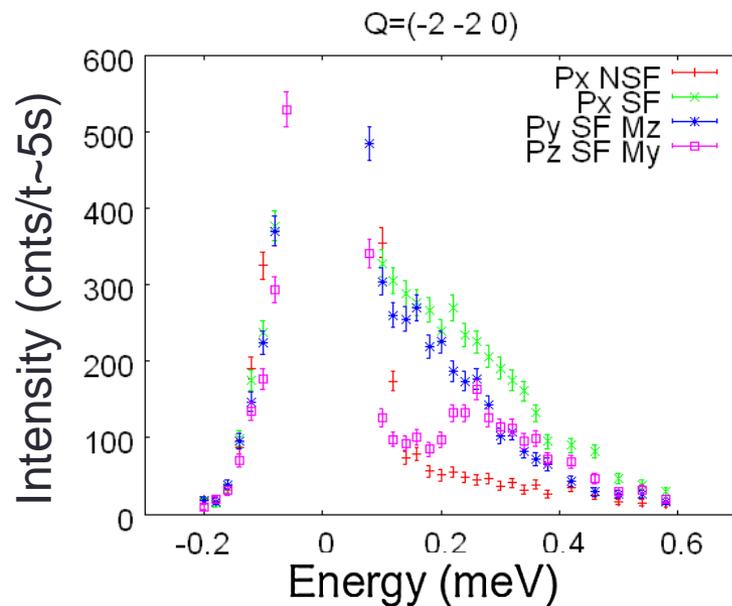
- Présence de « pinch points » (points de pincement) comme sur les mesures des glaces de spin
 - Corrélations anisotropes et en loi de puissance ($\xi > 80 \text{ \AA}$)
 - Comportement observé dans les phases de Coulomb
 - Indice de contrainte locale analogue à la règle de la glace ?

- Corrélations élastiques
→ état fondamental magnétique
- Absence de poids en $Q=0$
 - Caractère anti-ferromagnétique



Excitation de basse énergie

- Mesure IN14 (ILL) – neutrons polarisés – 50mK en (2,2,0) :
 - Signal quasi-élastique Mz
 - Signal inélastique My

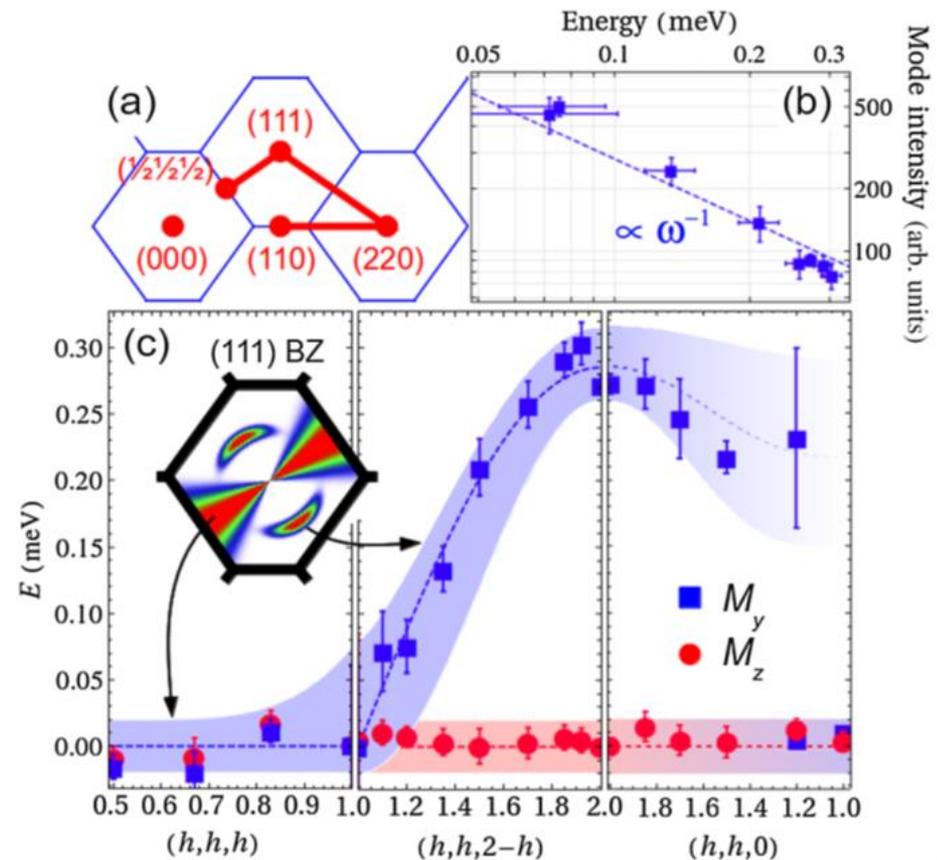


Le signal Mz

- Dans toutes les directions
 - Quasi-élastique
 - Fortes fluctuations

Le signal My

- Selon (h,h,h)
 - signal quasi-élastique
- Selon (h,h,2-h) et (h,h,0)
 - excitation qui se propage
 - non gapée ($\Delta_{res} = 0,07\text{meV}$)
 - qui disperse jusqu'à 0,3 meV
 - avec intensité en $1/\omega$



- Propriété des ions non-Kramers : $\langle \psi_1 | \vec{j} | \psi_2 \rangle = 0$
- $\Delta(gs \rightarrow fe)_{CEF} \simeq 1,5 \text{ meV}$
- Observation d'un signal inélastique à 0,3 meV aux neutrons = Besoin d'un splitting h du doublet fondamental.
 - Par champ moléculaire
 - Mélange de chaque état fondamental avec les états excités de CEF
 - Intensité aux neutrons extrêmement faible (en $(h/\Delta)^2$)
 - Par opérateur quadrupolaire
 - Mélange des fonctions d'onde du doublet fondamental entre elles
 - Intensité plus forte car $\langle \psi_a | \vec{j} | \psi_b \rangle \neq 0$

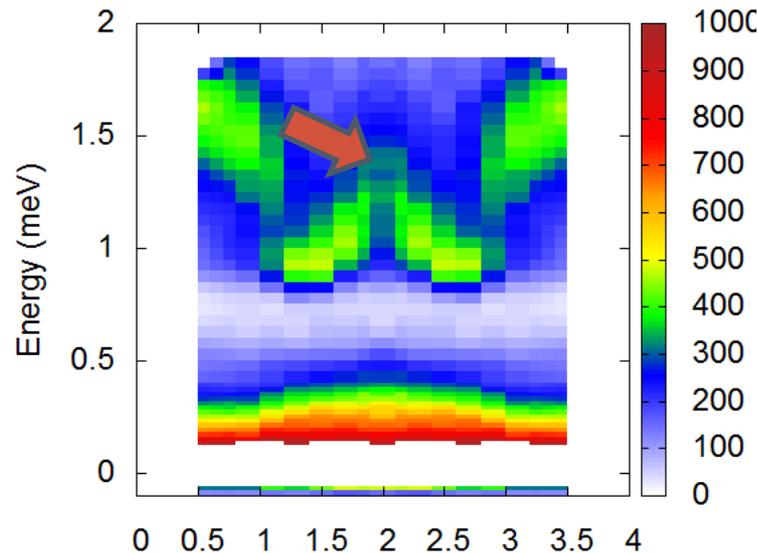
→ *Termes quadrupolaires dans l'hamiltonien?*

P.Bonville & al, PRB 84 (2011)
S.Petit & al, PRB 85 (2012)
S.H.Curnoe, PRB 78 (2008)
S.B.Lee & al, PRB 86 (2012)
S.Onoda & Y.Tanaka, PRL 105 (2010)

Couplage magnéto-élastique (MEM)

- Anomalies sur l'un des modes de champ cristallin autour des centres de zone
- Mode magnéto-élastique

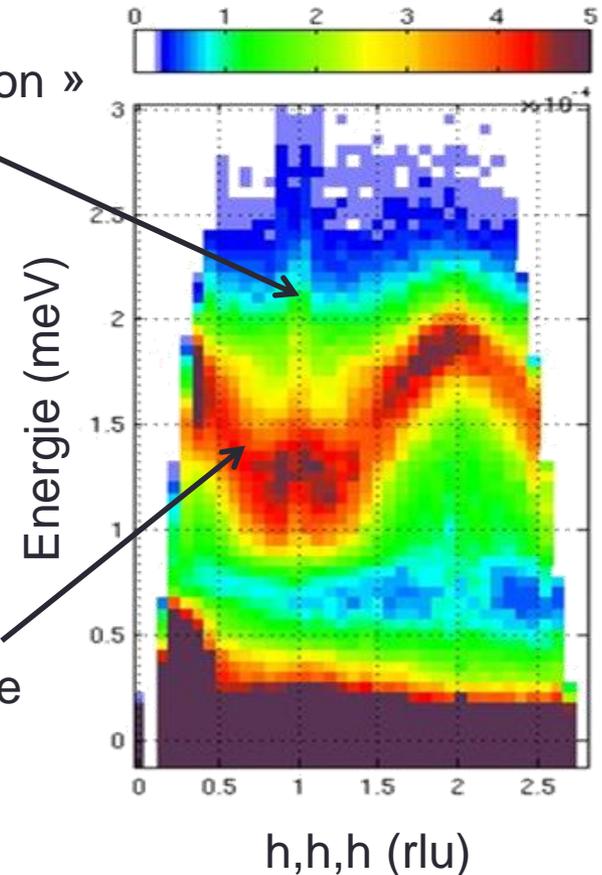
T=60 mK



4F1 (LLB)

(h,h,0)

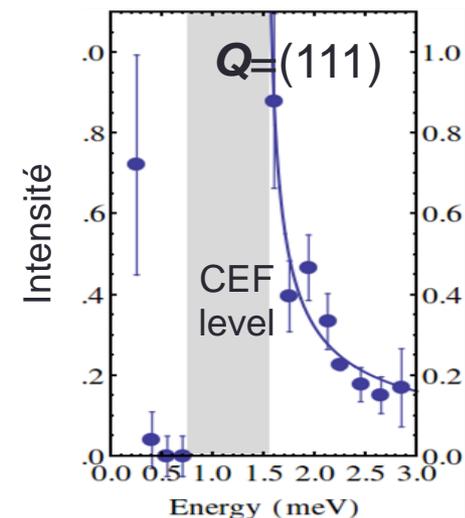
« Phonon »
MEM



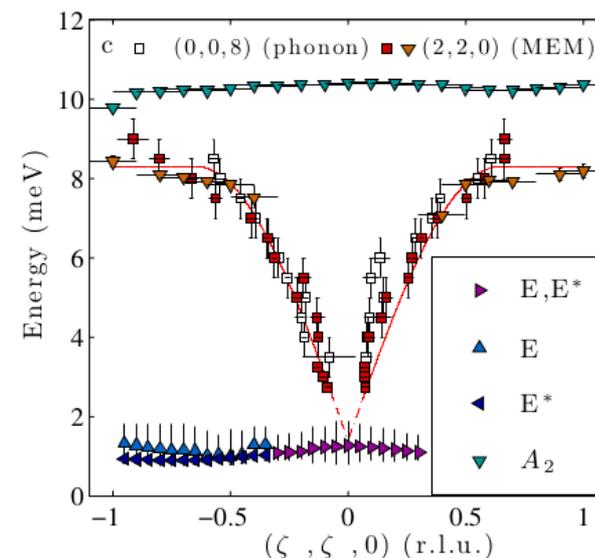
IN5 (ILL)

Le mode magnéto-élastique

- Mode gapé
 - Absence de signal sous les modes de CEF
- Intensité en $1/\omega$
- Dispersion identique à celle du phonon acoustique transverse mesurée en (0,0,8)
- Signal magnétique



S.Guitteny & al, PRL 111 (2013)



T.Fennell & al, arXiv 2013

Forts indices de couplage magnéto-élastique

Confirmé par d'autres mesures expérimentales

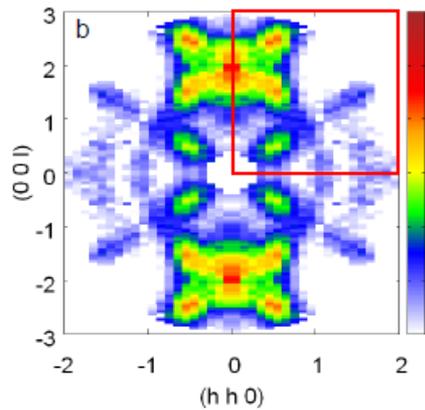
J.P.C.Ruff & al, PRL 105 (2010)
I,Mirebeau & al, PRL 93 (2004)

Hamiltonien de couplage

- Théorie des groupes permet d'écrire des termes de couplage magnéto-cristallin
 - Fonction des déplacements atomiques (pour les phonons acoustiques)
 - Fonction des opérateurs de champ cristallin (combinaisons des J_z , J_+ et J_-)
 - Couplage → Termes quadrupolaires
 - autorise la transition : $\langle \psi_1 | \vec{u} \cdot O | \psi_2 \rangle \neq 0$
 - expliquerait fluctuations entre plusieurs états SI
- sortie du modèle « figé »

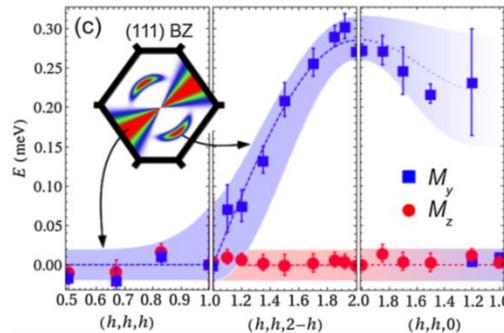
G.A.Gehring & K.A.Gehring, Rep.Prog.Phys (1975)
S.B.Lee & al, PRB 86 (2012)
S.Onoda & Y.Tanaka, PRL 105 (2010)
S.H.Curnoe, PRB 78 (2008)

Conclusion



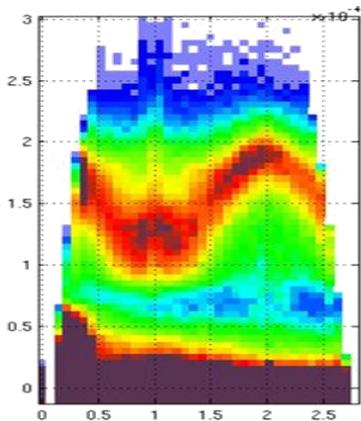
Etat fondamental non ordonné

- Diffus Structuré
- Pinch Point – Corrélations en loi de puissance



Excitations de basse énergie

- Signal inélastique qui se propage et disperse
- Fortes fluctuations



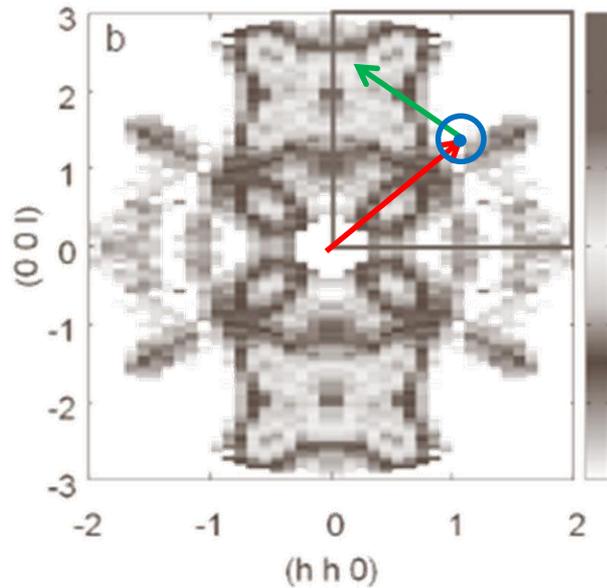
Indice de couplage au réseau

- Mode magnéto-élastique
- Termes quadrupolaires

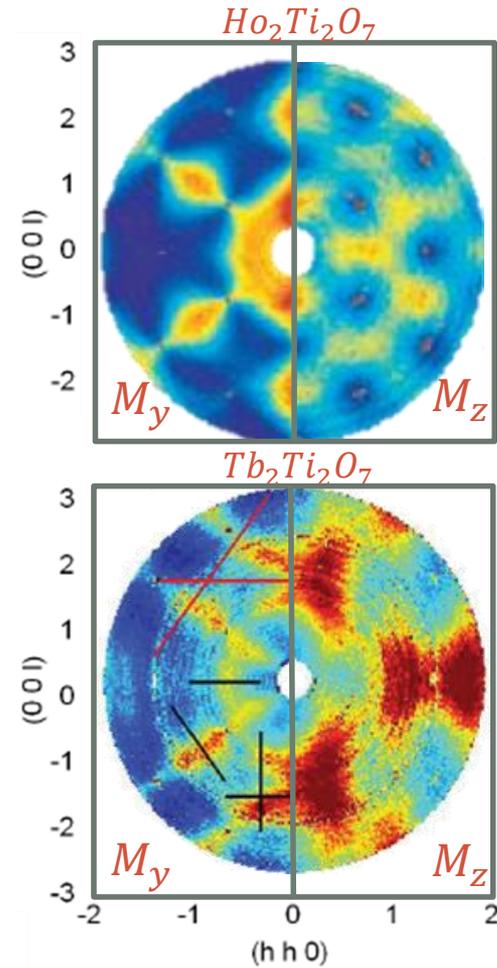
Merci de votre attention.

Neutrons polarisés

Schéma des composantes mesurables aux neutrons polarisés



$Q (h,h,h) // x$
 $M_y (h,h,-2h)$
 $M_z (h,-h,0)$



Neutrons polarisés

Rapport de flipping $R = SF/NSF$

- Analyse de polarisation

	P//x	P//y	P//z
Non Spin Flip	Nucléaire + bruit de fond 1	Nucléaire + My + R.(Mz) + bruit de fond 1	Nucléaire + My + R.(My) + bruit de fond 1
Spin Flip	My + Mz + termes chiraux $\langle S_y S_z \rangle$ + bruit de fond 2	Mz + R.(N + My) + bruit de fond 2	My + R.(N + Mz) + bruit de fond 2

- On fixe le spin des neutrons incidents grâce à un champ de polarisation
- On mesure le canal SF ou NSF grâce au flipper
- Par combinaison des différents signaux, on corrige les fuites et le bruit de fond et on peut extraire les composantes My et Mz

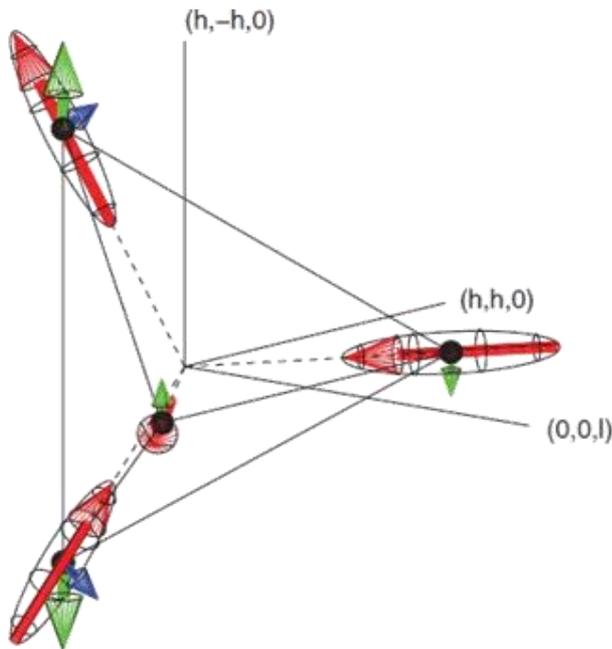
Neutrons polarisés

- Projections T.Fennell & al, PRL 109 (2012)

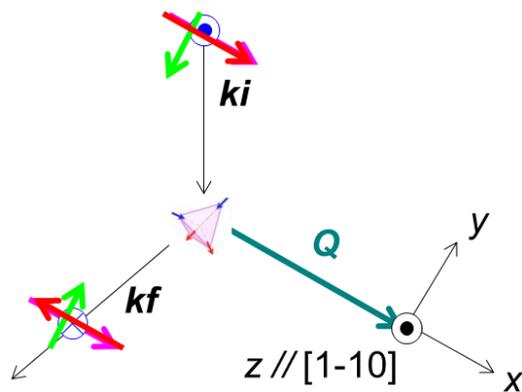
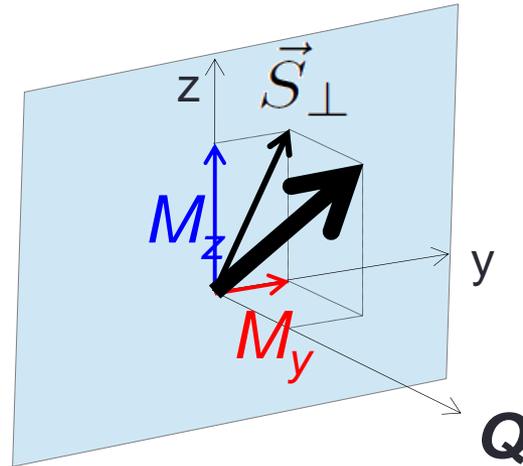
- $Tb_2Ti_2O_7$ = Soft spin Ising
→ \exists composante transverse

- Projection

- Signal statique dans le canal My = corrélations longitudinales de type spin-ice « two-in two-out » le long des axes $(1,1,1)$ locaux
- Signal statique dans le canal Mz = corrélations transverses de type antiferro « two-up two-down » dans le repère global



La diffusion de neutrons



---- NSF ----

P//x **nuclear**

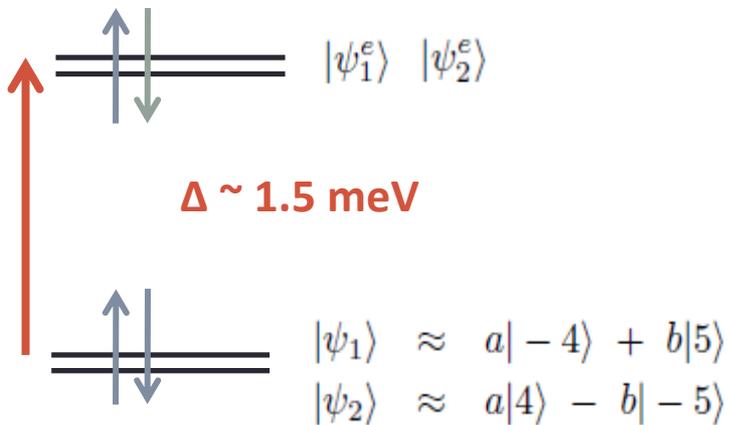
---- SF ----

P//x **mag. total**

P//z **M_y** ~ spin ice channel

P//y **M_z** ~ transverse channel

CEF : éléments de transition



Non-Kramers :

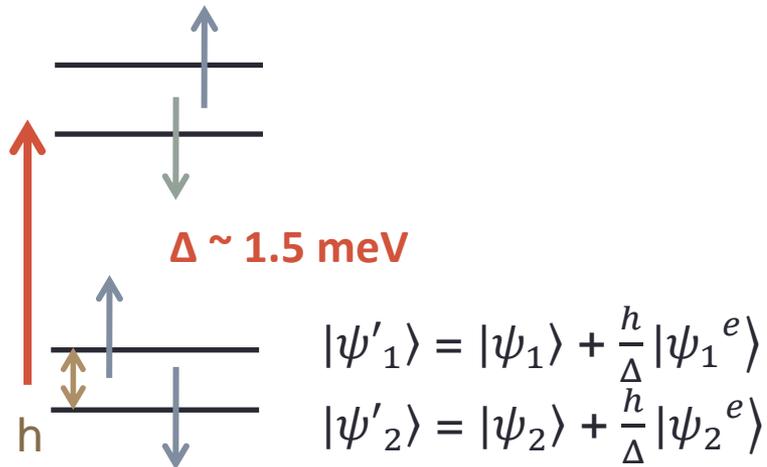
$$\langle \psi_1 | \vec{j} | \psi_2 \rangle = \langle \psi_2 | \vec{j} | \psi_1 \rangle = 0$$

$$\langle \psi_1 | J_z | \psi_1 \rangle = -4a^2 + 5b^2$$

$$\langle \psi_2 | J_z | \psi_2 \rangle = -\langle \psi_1 | J_z | \psi_1 \rangle$$

Splitting du doublet fondamental

Par champ moléculaire

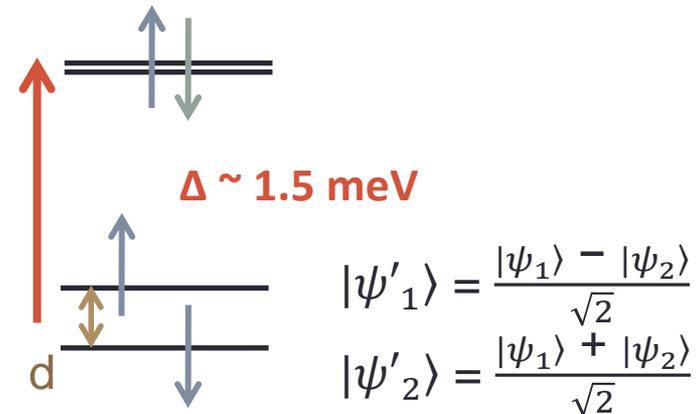


h champ moléculaire

$$I \propto |\langle \psi'_1 | \vec{J} | \psi'_2 \rangle|^2 \cdot \delta(\omega - (E_1 - E_2))$$

$$I \propto \left(\frac{h}{\Delta}\right)^2$$

Par opérateur quadrupolaire



d pré-facteur du terme quadrupolaire

$$\langle \psi'_1 | J_z | \psi'_2 \rangle = \langle \psi'_2 | J_z | \psi'_1 \rangle$$

$$\langle \psi'_1 | J_z | \psi'_2 \rangle = \frac{1}{2} (\langle \psi_1 | J_z | \psi_1 \rangle - \langle \psi_2 | J_z | \psi_2 \rangle)$$

$$\langle \psi'_1 | J_z | \psi'_2 \rangle \neq 0$$