



HAL
open science

Proprietes de basse energie et anisotropies d'interactions de systemes magnetiques geometriquement frustres

Maged Elhajal

► **To cite this version:**

Maged Elhajal. Proprietes de basse energie et anisotropies d'interactions de systemes magnetiques geometriquement frustres. Matière Condensée [cond-mat]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2002. Français. NNT: . tel-00002039

HAL Id: tel-00002039

<https://theses.hal.science/tel-00002039>

Submitted on 27 Nov 2002

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Thèse
présentée par
Maged Elhajal

pour obtenir le titre de docteur en physique
de l'Université Joseph Fourier - Grenoble 1

**Propriétés de basse énergie et
anisotropies d'interactions de
systèmes magnétiques
géométriquement frustrés**

soutenue le 1^{er} octobre 2002

Membres du jury :

L.P. LEVY	Président
P.C.W. HOLDSWORTH	Rapporteur
P. SINDZINGRE	Rapporteur
P. MONOD	Examineur
B. CANALS	
C. LACROIX	

*C'est tellement inutile
que c'est rigoureusement indispensable.*

Joe SIMPSON, *Encordé avec des ombres.*

Remerciements

J'accuse Benjamin et Claudine de séquestration avec mauvais traitements. Il me sera impossible d'oublier toutes les souffrances endurées pendant ces trois années. Ils m'ont traité en esclave et redoublaient de cruauté si j'avais le malheur d'émettre une plainte. Les autres membres du laboratoire sont visiblement complices : ils s'évertuent tous à créer une ambiance exécrationnelle. Les plus actives dans ce domaine sont sans doute Véronique, Sabine et Eliane. J'ai tout essayé pour venir à bout de la patience de ce trio infernal, rien à faire, un sourire à toute épreuve... c'est énervant.

Rose-Marie dirige le groupe d'une main de fer et a su y instaurer la terreur caractéristique de toutes les dictatures, qui pousse chacun de nous à se méfier de son voisin. L'ambiance qu'il y règne est insupportable. Un espoir de courte durée est venu du groupe couches minces¹ qui m'a très gentiment accueilli pour ses réunions hebdomadaires. J'ai vite compris que c'était dans le but criminel de me faire lever déraisonnablement tôt le lundi matin. Nombreuses sont les personnes avec qui il est pénible de discuter dans ce laboratoire. Laurent a le défaut supplémentaire de ne jamais compter son temps : ne lui posez jamais une question après 16 h si vous ne voulez pas rater le dernier bus. Enfin, c'est bien connu, la justice est débordée et n'a pas le temps de s'occuper des délits mineurs tels que le harcèlement de 11h30 pour aller manger et autres pauses café si désagréables, je ne donnerai donc pas la longue liste des coupables en question, de peur d'en oublier.

M. Laurent Levy a un défaut évident : il dit ce qu'il pense, c'est inadmissible. Je l'accuse donc d'un excès de franchise dans tous ses commentaires, ce qui leur donne trop de valeur et me force à le remercier sincèrement d'avoir accepté de présider le jury.

Lord Peter Holdsworth n'a jamais le temps de rien faire (c'est ce qu'il prétend). La plainte est irrecevable, il n'a qu'à passer moins de temps et de minutie à lire les thèses... il poserait des questions plus simples. Je l'accuse par ailleurs d'avoir essayé de m'éliminer physiquement en m'emmenant courir.

M. Philippe Sindzingre est pénible avec sa rigueur scientifique, on ne peut même plus raconter n'importe quoi dans sa thèse sans qu'il le note. Grace à lui un certain nombre de "coquilles" ne figurent pas dans ce manuscrit et je le tiens donc pour responsable de toutes celles qu'il n'a pas trouvées.

Demander à M. Philippe Monod de faire partie du jury était une grande erreur, j'ai dû vivre pendant un mois dans la clandestinité afin d'éviter de nouvelles questions pertinentes (hélas) sur les preuves expérimentales de tout mon blabla théorique.

J'accuse Lord Andrew Wills de perversion pour avoir motivé, au cours de nos nombreuses discussions l'étude des interactions Dzyaloshinsky-Moriya sur le réseau kagomé. Il a ensuite essayé de se racheter en m'offrant de (trop) nombreuses bières.

J'ai inclus dans cette thèse des résultats obtenus avec el señor Raimon Sunyer i Borrell pendant son stage de maîtrise. Sa bonne humeur et son enthousiasme constants sont agréables.

Enfin, je m'accuse d'un excès de pudeur sur ma vie privée pour parler ici de celles et ceux qui partagent ma vie, ma montagne, mes doutes, mes joies, et me donnent une excellente raison d'être là !

...

Bon, plaisanterie mise à part, un grand merci à tous !

¹Filiale de Pamper's, le but est ici aussi de faire croire que des couches de plus en plus minces vont transformer notre quotidien

Table des matières

Introduction	3
I Frustration géométrique en magnétisme	4
1 Principes généraux liés à la frustration	5
1.1 Frustration d'interaction, frustration topologique	5
1.2 Dégénérescence de l'état fondamental	8
1.3 Instabilités des états fondamentaux	10
1.4 Motivations pour l'étude de systèmes frustrés	11
2 Quelques aspects expérimentaux	12
2.1 Signatures expérimentales de la frustration	12
2.2 Comportements à basse température	13
2.3 Quelques questions ouvertes	14
2.4 Conclusion	15
3 Théorie et modèles	17
3.1 Liquides de spins, absence de brisure de symétrie	17
3.2 Spin-ice	19
3.3 Cristaux à liaisons de valence	21
3.4 Conclusion	23
II Propriétés de basse énergie des réseaux pyrochlore et damier : hamiltonien effectif dans le secteur singulet	24
4 Le réseau pyrochlore	25
4.1 Méthode d'hamiltonien effectif	25
4.2 Traitement de l'hamiltonien effectif	33
4.3 Discussion	36
5 Réseau damier	38
5.1 Un réseau pyrochlore 2D ?	38
5.2 Hamiltonien effectif	40
5.3 Résolution en champ moyen	41
5.4 Damier \neq pyrochlore 2D	42

III Interactions Dzyaloshinsky-Moriya dans les réseaux kagomé et pyrochlore	44
6 Généralités sur l'interaction Dzyaloshinsky-Moriya	45
6.1 Introduction	45
6.2 Origine microscopique	46
6.3 Arguments de symétrie, règles de Moriya	47
6.4 Ordres de grandeurs	48
6.5 Types d'ordre induits par l'interaction Dzyaloshinsky-Moriya	49
6.6 Une symétrie cachée	50
7 Interaction Dzyaloshinsky-Moriya dans le réseau kagomé	52
7.1 Introduction	53
7.2 Application des règles de Moriya	54
7.3 Dérivation microscopique	54
7.4 Champ moyen à $T = 0$	60
7.5 Simulations Monté Carlo	65
7.6 Développement en ondes de spins	74
7.7 Dzyaloshinsky-Moriya dans certaines jarosites	81
7.8 Conclusion	84
8 Interaction Dzyaloshinsky-Moriya dans le réseau pyrochlore	86
8.1 Règles de symétrie de Moriya	87
8.2 Minimisation de l'énergie pour un tétraèdre	89
8.3 Simulations Monté Carlo	92
8.4 Composés	94
8.5 Conclusion	95
Conclusions et perspectives	97
IV Annexes	104
A Hamiltonien effectif sur les réseaux pyrochlore et damier	105
A.1 Etats propres pour un tétraèdre	105
A.2 Interactions effectives dans le pyrochlore	107
A.3 Champ moyen	109
A.4 Interactions effectives dans le damier	112
A.5 Champ moyen pour le réseau damier : solutions à deux sous-réseau	114
A.6 Réseau carré avec des interactions entre seconds voisins	114
B Interactions Dzyaloshinsky-Moriya	116
B.1 Dérivation microscopique	116
B.2 Champ moyen	121
B.3 Développement en ondes de spins	123
B.4 Effets quantiques : diagonalisation exacte pour un tétraèdre	127

Introduction

Cette thèse est consacrée à l'étude de quelques aspects théoriques de systèmes magnétiques géométriquement frustrés. Ceux-ci se distinguent des verres de spins par l'absence de désordre et ont un réseau cristallographique incompatible avec un ordre antiferromagnétique simple.

La présence d'une forte frustration dans des réseaux à deux et trois dimensions fait apparaître des phases magnétiques originales. Par exemple, dans les réseaux kagomé (2D) et pyrochlore (3D) avec des interactions antiferromagnétiques, l'état de Néel est déstabilisé, et ces systèmes sont désordonnés à toute température. Comprendre la nature de leur état fondamental et leur comportement magnétique à basse température est le sujet d'intenses recherches depuis plusieurs années.

On trouvera dans cette thèse une introduction aux systèmes frustrés (partie I). Le sujet est trop vaste pour être couvert entièrement, et on se limite à en présenter quelques aspects. La deuxième partie est consacrée à l'étude de l'hamiltonien de Heisenberg quantique ($S = \frac{1}{2}$) sur les réseaux pyrochlore et damier. Partant de propriétés connues de ces systèmes, on dérive un hamiltonien effectif pour décrire le spectre de basse énergie. Le problème est résolu en champ moyen, et on discute les états fondamentaux obtenus.

En liaison avec des résultats expérimentaux, la troisième partie de cette thèse traite des interactions Dzyaloshinsky-Moriya dans les réseaux kagomé et pyrochlore. On y montre la pertinence de telles interactions pour ces deux réseaux et la déstabilisation des états liquides de spins qui en résulte. Les propriétés magnétiques des réseaux kagomé et pyrochlore avec interactions Dzyaloshinsky-Moriya sont étudiées, et le lien avec certains composés est fait.

Première partie

**Frustration géométrique en
magnétisme**

Chapitre 1

Principes généraux liés à la frustration

Sommaire

1.1 Frustration d'interaction, frustration topologique	5
1.1.1 Définitions	5
1.1.2 Réseaux géométriquement frustrés	6
1.2 Dégénérescence de l'état fondamental	8
1.2.1 L'exemple du réseau damier	8
1.2.2 Entropie finie à température nulle	10
1.3 Instabilités des états fondamentaux	10
1.4 Motivations pour l'étude de systèmes frustrés	11

Dans ce chapitre, on introduit la notion de frustration dans des systèmes magnétiques et on présente quelques réseaux géométriquement frustrés (§1.1). On illustre (§1.2) la dégénérescence de l'état fondamental avec l'exemple du réseau damier avant de voir comment la frustration peut mener à une déstabilisation de l'état de Néel (§1.3). Enfin, on donne quelques motivations pour l'étude de tels systèmes (§1.4).

1.1 Frustration d'interaction, frustration topologique

1.1.1 Définitions

La frustration dans un système physique fait référence au fait que l'on ne peut pas minimiser simultanément les différentes énergies correspondant aux multiples interactions qui ont lieu dans le système. On illustre ceci dans deux situations pour des modèles de spins de type Ising sur la figure 1.1.

En toute rigueur, la frustration est la caractéristique d'un système physique ou d'un modèle dans sa globalité. On entend par "modèle dans sa globalité" un réseau aux noeuds duquel sont placés des spins et les interactions entre ces spins. "Réseau" est pris ici au sens large, il peut s'agir d'un réseau cristallographique parfaitement ordonné, il peut également avoir des sites vacants sans spins (lacunes), ou encore avoir une structure désordonnée sans aucune périodicité ou autre symétrie particulière. La frustration résulte de la présence d'interactions "contradictoires" entre les spins situés

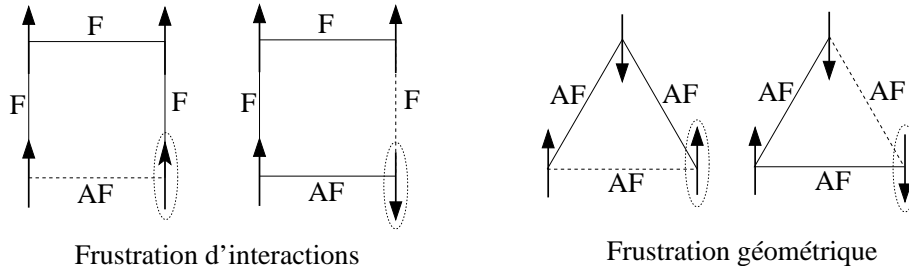


FIG. 1.1 – Frustration : impossibilité de satisfaire simultanément toutes les interactions. “F” et “AF” représentent respectivement des interactions ferromagnétiques et antiferromagnétiques. Les lignes pleines (pointillées) représentent les liens (non) satisfaits selon l’état du spin entouré. On distingue la frustration d’interactions de la frustration géométrique ou topologique (voir texte).

sur le réseau, et il peut paraître artificiel de vouloir séparer les deux aspects (réseau et interactions). En effet, un même réseau peut être frustré ou non selon les interactions considérées, et inversement, un même type d’interaction frustrera le système ou pas selon le réseau sous-jacent.

Il est cependant de coutume de distinguer deux types de frustrations : frustration d’interactions et frustration topologique. Dans ce dernier cas, c’est la géométrie du réseau qui frustre le système alors que les interactions sont identiques pour toutes les paires de spins (voir le triangle de la figure 1.1). On peut aussi y inclure des interactions entre deuxièmes, troisièmes voisins... et également des interactions multi-spins, mais celles-ci devront toujours respecter la symétrie du réseau. Dans le cas du carré de la figure 1.1, on voit que les interactions (F, F, F et AF) ne respectent pas la symétrie du réseau car tous les liens devraient être équivalents. On ne parlera pas dans ce cas de frustration due au réseau, mais de frustration d’interactions.

Dans les verres de spins, la frustration est du type “interactions”, car le désordre cristallographique engendre un désordre dans les interactions : la distance entre les moments magnétiques est aléatoire, et il en va de même des interactions qui en dépendent [107]. Dans toute la suite de cette thèse, on s’intéresse uniquement à la frustration topologique. Les modèles théoriques et les composés intéressants pour ce domaine du magnétisme ont des réseaux cristallographiques bien définis, et pas de désordre dans les interactions, la frustration venant uniquement de la géométrie du réseau.

1.1.2 Réseaux géométriquement frustrés

En se limitant à des interactions d’échange antiferromagnétiques, il existe essentiellement deux façons d’obtenir de la frustration. Si ces interactions sont entre plus proches voisins, le système peut être frustré du fait de sa géométrie. Ceci est le cas pour trois spins sur un triangle comme on l’a vu, et pour tous les réseaux à base de triangles, tels que les réseaux triangulaires et kagomé représentés sur la figure 1.2.

Une autre possibilité est de partir d’un réseau *non* frustré, tel que le réseau carré avec des interactions antiferromagnétiques entre plus proches voisins, et de frustrer le

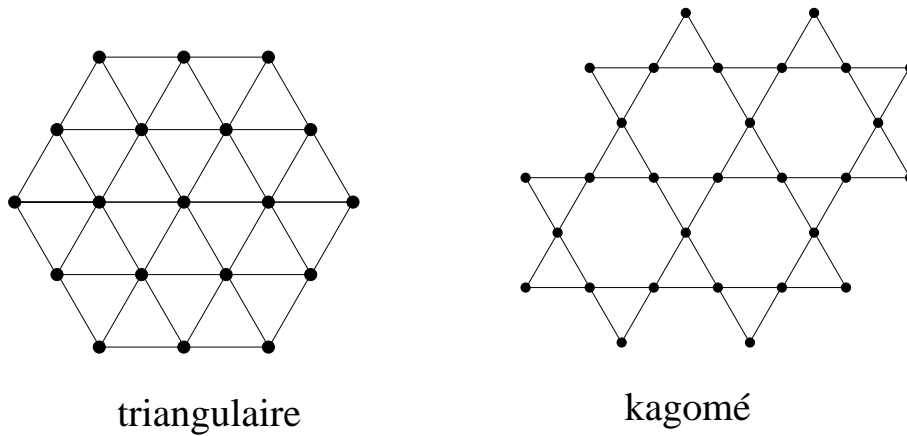


FIG. 1.2 – Deux réseaux à base de triangles où les interactions antiferromagnétiques entre plus proches voisins sont géométriquement frustrées. La différence de connectivité des triangles (cotés en commun pour le réseau triangulaire et sommets en commun pour le réseau kagomé), entraîne de grandes différences dans les comportements magnétiques des deux systèmes (voir §1.3).

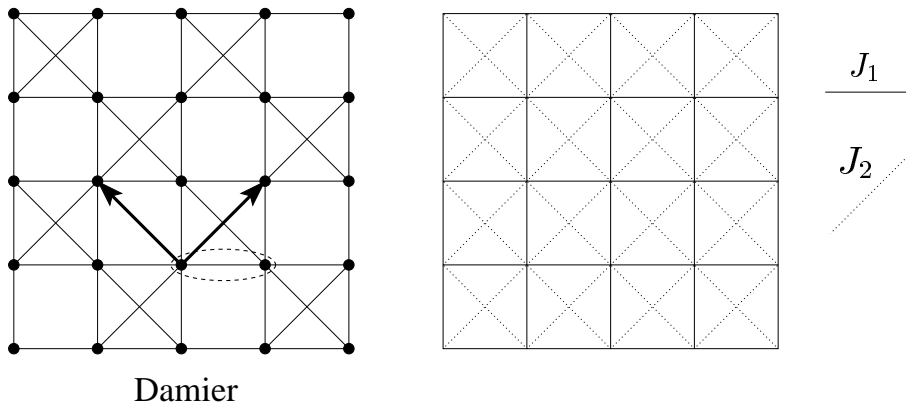


FIG. 1.3 – Réseau damier et modèle $J_1 - J_2$ sur le réseau carré. La frustration dans ces systèmes apparaît du fait de la compétition entre interactions antiferromagnétiques entre premiers et deuxièmes voisins. Pour le réseau damier on a représenté les vecteurs de base et entouré le motif associé. Dans le modèle $J_1 - J_2$, Selon le rapport $\frac{J_2}{J_1}$, différentes phases magnétiques ordonnées et désordonnées apparaissent [25].

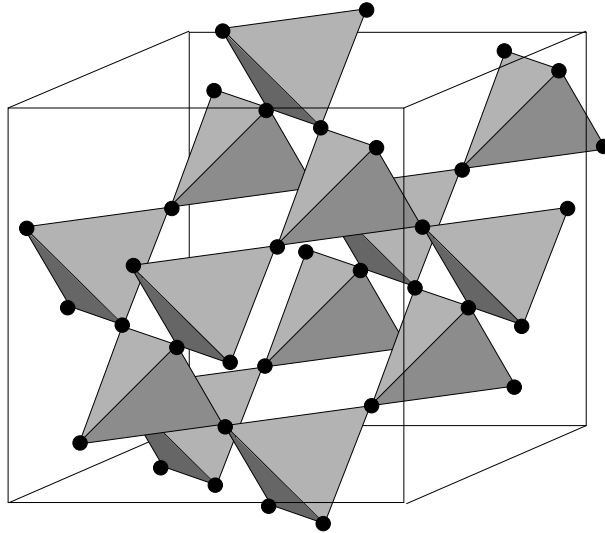


FIG. 1.4 – Le réseau pyrochlore : une assemblée de tétraèdres connectés par leurs sommets. La forte frustration d’un tétraèdre associée à une faible connectivité donne à ce réseau des propriétés magnétiques remarquables (voir [43] et §3.1).

système en introduisant des interactions entre seconds voisins également antiferromagnétiques (voir figure 1.3). Les deux types d’interactions sont alors “contradictoires”, et pour certains intervalles des constantes d’échange, on peut aboutir à une forte frustration [25]. Ce même type de frustration peut aussi être obtenu sur le réseau hexagonal [69, 33].

L’équivalent à trois dimensions du triangle antiferromagnétique est un tétraèdre. En effet dans les deux cas, chaque spin est en interaction avec tous les autres, donnant lieu à une forte frustration. Le réseau kagomé est un ensemble de triangles qui ont des sommets en commun, et son équivalent à trois dimensions est le réseau pyrochlore qui est une assemblée de tétraèdres connectés par leurs sommets (voir figure 1.4). Le réseau pyrochlore associe une forte frustration et une faible connectivité, ce qui lui confère des propriétés magnétiques remarquables [43]. Son comportement a des similarités avec le réseau kagomé.

1.2 Dégénérescence de l’état fondamental

Une des raisons pour lesquelles les systèmes magnétiques fortement frustrés sont intéressants est la forte densité d’états à très basse énergie. Ceci entraîne que toute perturbation est susceptible de modifier profondément le comportement du système et rend hasardeuses les méthodes de champ moyen qui négligent les fluctuations thermiques et quantiques.

1.2.1 L’exemple du réseau damier

Une méthode simple pour obtenir l’état fondamental d’un système est de traiter son hamiltonien dans l’approximation du champ moyen. A cette approximation on

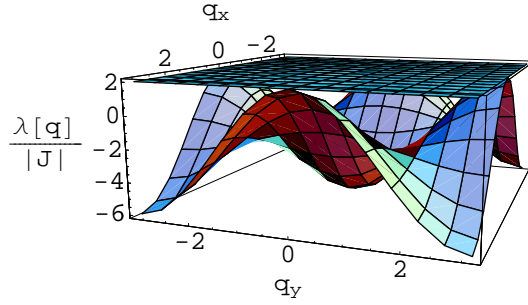


FIG. 1.5 – Transformée de Fourier des interactions pour le réseau damier. La plus haute branche est non dispersive sur la première zone de Brillouin, indiquant la dégénérescence macroscopique de l'état fondamental.

néglige les fluctuations quantiques et on traite les spins comme des grandeurs classiques. Les fluctuations thermiques sont également mal prises en compte dans cette approximation (d'autant plus mal que la dimension de l'espace est petite), mais pour l'instant on ne s'intéresse qu'à l'état fondamental du système en dehors de tout phénomène d'ordre par le désordre. Il nous faut donc minimiser l'énergie du système, ce qui est rendu possible moyennant quelques hypothèses sur les structures magnétiques recherchées. Si on se limite à des structures magnétiques décrites par un seul vecteur d'onde, alors il existe une méthode générale pour trouver le minimum de l'énergie [27, 7].

Sans rentrer dans les détails de la méthode, l'idée est d'obtenir une expression de l'énergie proportionnelle à la transformée de Fourier $J(\mathbf{q})$ des interactions d'échange sur le réseau. Il faut ensuite trouver le vecteur de propagation \mathbf{q}_0 qui maximise cette expression pour obtenir la configuration de plus basse énergie.

Dans le cas d'un réseau à un seul site par maille cristallographique, $J(\mathbf{q})$ est une simple transformée de Fourier des interactions d'échange $J(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j)$. Si la maille élémentaire contient plusieurs sites par maille, $J(\mathbf{q})$ est une matrice de même dimension que le nombre de sites dans la maille élémentaire. Dans ce cas, il faut diagonaliser cette matrice et rechercher le minimum sur l'ensemble des valeurs propres.

Le réseau damier a une maille élémentaire qui contient deux spins (le motif élémentaire ainsi que les vecteurs de base sont représentés sur la figure 1.3). La matrice transformée de Fourier des interactions $J(\mathbf{q})$ est donc de dimension 2, et ses valeurs propres sont :

$$\begin{aligned}\lambda_1 &= 2J & (J > 0) \\ \lambda_2 &= -2J - 4J \cos(q_x) \cos(q_y)\end{aligned}\quad (1.1)$$

On a représenté λ_1 et λ_2 sur la figure 1.5. La plus haute branche est celle qui va déterminer le minimum de l'énergie, or celle-ci est plate sur toute la première zone de Brillouin. Il y a donc un nombre macroscopique d'états de plus basse énergie à l'approximation du champ moyen. Les réseaux pyrochlore et kagomé ont également cette caractéristique d'avoir la branche la plus haute non dispersive sur toute la zone

de Brillouin. Cette dégénérescence de l'état fondamental est le résultat d'un traitement en champ moyen et amène deux réflexions. D'une part on peut penser que le système est probablement désordonné du fait qu'un très grand nombre d'états sont accessibles sans avoir à franchir de barrière d'énergie. D'autre part il est légitime de se demander si ce résultat n'est pas uniquement un artéfact du traitement en champ moyen et si cette dégénérescence est robuste vis à vis des fluctuations thermiques et/ou quantiques ou encore d'une perturbation que l'on rajouterait à l'hamiltonien. Quoi qu'il en soit, même si la dégénérescence de l'état fondamental n'est pas exactement celle prédite par le traitement en champ moyen, il est à peu près certain que la densité d'états dans le bas du spectre dans ce système sera plus élevée que pour des réseaux non frustrés.

1.2.2 Entropie finie à température nulle

Comme on l'a vu au paragraphe précédent, le réseau damier a un nombre macroscopique d'états de plus basse énergie. Ceci est un résultat que l'on retrouve dans plusieurs réseaux fortement frustrés et implique que l'entropie à température nulle est finie, ce qui violerait le troisième principe de la thermodynamique. Par exemple, les réseaux triangulaire et kagomé avec des spins Ising ont une entropie qui vaut :

$$S_{\text{tri}}(T = 0) \simeq 0.338 \quad [114] \qquad S_{\text{kago}}(T = 0) \simeq 0.502 \quad [52]$$

En fait il n'est pas nécessaire que la dégénérescence de l'état fondamental soit macroscopique pour que l'entropie reste finie lorsque $T \rightarrow 0$. Il suffit que le système ne présente pas de gap dans son spectre d'énergie et que la densité d'états augmente exponentiellement avec la taille du système. Ceci pourrait être le cas dans le réseau kagomé de spins $S = \frac{1}{2}$ où le nombre d'états singulets dans le gap triplet augmente comme 1.15^N [59, 71, 113].

Le troisième principe de la thermodynamique a été énoncé avant l'avènement de la physique statistique, car le second principe ne traite que des *variations* d'entropie, et donc le troisième principe était nécessaire pour fixer une origine. La physique statistique nous dit que l'entropie est finie à température nulle si l'état fondamental est dégénéré, ce qui peut se produire dans un modèle théorique. Répondre à cette question du point de vue expérimental semble impossible, car on ne peut jamais exclure qu'à une température plus basse que celle atteinte expérimentalement, une perturbation lève la dégénérescence.

1.3 Instabilités des états fondamentaux

Les études sur les réseaux frustrés sont, entre autres, motivées par la recherche d'états magnétiques "originaux". Bien souvent à deux et à trois dimensions, on parle d'état "original" dès lors que ce n'est pas un état de Néel, au sens large du terme : un état où l'aimantation locale est finie et avec des corrélations spin-spin à longue portée. Cet état brise les symétries de translation et $SU(2)$ et n'est pas un état propre de l'hamiltonien de Heisenberg. Il est cependant établi [1, 67] que sur les réseaux carré (2D) et cubique (3D), à la limite thermodynamique c'est un état acceptable. Il en

va autrement à une dimension où les fluctuations quantiques sont plus importantes et détruisent l'état de Néel classique, au profit de divers autres états quantiques.

La frustration apparaît dans ce cadre comme un facteur supplémentaire déstabilisant l'état de Néel. Par exemple sur le réseau triangulaire, la renormalisation de l'aimantation locale [50] par les fluctuations quantiques est plus importante que pour le réseau carré, du fait de l'incompatibilité du réseau triangulaire avec un ordre antiferromagnétique. Toutefois, ceci ne suffit pas à déstabiliser l'ordre de type Néel sur le réseau triangulaire.

A l'opposé, dans le cas de réseaux plus fortement frustrés, le système a une forte dégénérescence de l'état fondamental, et donc l'état de Néel n'est plus le seul état de plus basse énergie classiquement. Ceci est le cas pour les réseaux kagomé et pyrochlore. Même dans les cas où un état de Néel est sélectionné classiquement, les fluctuations quantiques auront plus de facilité à le déstabiliser pour des réseaux frustrés. Pour illustrer ce dernier point, on peut prendre l'exemple du modèle $J_1 - J_2$ sur le réseau carré où classiquement l'état de Néel n'est instable que pour $\frac{J_2}{J_1} = 0.5$, mais le devient pour une plus grande gamme de paramètres ($0.4 \lesssim \frac{J_2}{J_1} \lesssim 0.6$) [25] lorsqu'on inclut les fluctuations quantiques.

1.4 Motivations pour l'étude de systèmes frustrés

Comme on l'a vu, la frustration dans les systèmes magnétiques apparaît comme un élément déstabilisant l'ordre conventionnel de type Néel au profit de différentes phases magnétiques originales. Contrairement aux réseaux non frustrés où la prise en compte des fluctuations quantiques n'est cruciale que pour les systèmes unidimensionnels, certains états fondamentaux (états RVB, valence bond crystal...) sur des réseaux frustrés à 2D et 3D sont de nature purement quantique sans analogue classique. Les systèmes frustrés quantiques ne sont pas les seuls à présenter un intérêt, leurs analogues classiques font également apparaître des phases magnétiques désordonnées non triviales (liquide de spins classique, spin-ice...).

Différents comportements originaux observés expérimentalement dans des composés magnétiquement frustrés sont présentés au chapitre 2. Les modèles théoriques et différents états fondamentaux obtenus sont présentés au chapitre 3.

Chapitre 2

Quelques aspects expérimentaux

Sommaire

2.1	Signatures expérimentales de la frustration	12
2.2	Comportements à basse température	13
2.2.1	Etats non colinéaires, non coplanaires	13
2.2.2	Verres de spins non conventionnels	13
2.3	Quelques questions ouvertes	14
2.3.1	Gd ₂ Ti ₂ O ₇	14
2.3.2	Tb ₂ Ti ₂ O ₇	15
2.3.3	SCGO : le faux kagomé	15
2.4	Conclusion	15

On a vu au chapitre 1 divers principes liés à la frustration ainsi que quelques conséquences qui pouvaient en découler. On s'intéresse ici à l'aspect expérimental du problème. En particulier on commence à la section 2.1 par présenter quelles sont les signatures de la frustration dans des composés dont le magnétisme est frustré. La section 2.2 est consacrée à la description de quelques états magnétiques originaux observés dans ces composés. Enfin, quelques problèmes non résolus sont rappelés à la section 2.3.

2.1 Signatures expérimentales de la frustration

Une conséquence de la frustration dans des réseaux à deux et trois dimensions est l'absence d'un état magnétique avec un ordre à longue portée. Ceci n'est pas une exclusivité des systèmes frustrés : à une dimension les fluctuations quantiques empêchent l'apparition d'un ordre magnétique à longue portée. Dans des systèmes bidimensionnels, les fluctuations thermiques détruisent toute aimantation macroscopique s'il existe une symétrie continue dans le système [70].

Le manque d'ordre dans les systèmes frustrés se distingue des comportements décrits ci-dessus. En effet, dans les systèmes de basse dimension, pour des températures qui sont de l'ordre de l'interaction principale dans le système, on observe un changement de comportement, lié à l'apparition de corrélations. Ceci se manifeste en général pas une anomalie dans la chaleur spécifique, et/ou un écart à la loi de Curie

dans la susceptibilité. Il en va autrement pour les systèmes frustrés où le comportement paramagnétique de la susceptibilité se prolonge à des températures bien plus basses que les interactions d'échange [88].

Expérimentalement, il est commun d'observer à très basse température que les composés présentent finalement une mise en ordre ou un gel de type verre de spins. Ceci peut être dû à des termes supplémentaires dans l'hamiltonien qui deviennent pertinents à basse température et lèvent la dégénérescence des états de basse énergie.

Ce scénario est à l'origine d'une "mesure" de la frustration : un composé sera d'autant plus frustré qu'il reste dans un état "paramagnétique" à des températures plus petites que l'échelle fixée par ses interactions d'échange. On définit le rapport

$$f = \frac{\theta_{CW}}{T_c}$$

où θ_{CW} est la température de Curie-Weiss obtenue à partir de la susceptibilité à haute température et T_c est la température à laquelle une transition ou un gel verre de spins est effectivement observé dans le système. Dans un système non frustré, une transition de phase aurait lieu à une température de l'ordre de θ_{CW} , et donc on a $f \sim 1$. Dans les systèmes frustrés, des valeurs de f entre 10 et 100 sont communément observées [88].

2.2 Comportements à basse température

2.2.1 Etats non colinéaires, non coplanaires

Sur un réseau non frustré, des interactions antiferromagnétiques induisent un ordre de Néel colinéaire à deux sous-réseaux. Certains composés frustrés présentent un ordre à longue portée, mais celui-ci est souvent non colinéaire ou non coplanaire. Ceci est le cas par exemple dans le réseau triangulaire antiferromagnétique où les spins sont à 120° les uns des autres.

Certains composés kagomé et pyrochlore présentent également un ordre à longue portée. Celui-ci est la conséquence d'un terme supplémentaire dans l'hamiltonien de Heisenberg : une anisotropie sur site ou des interactions entre deuxièmes voisins... Le composé pyrochlore FeF_3 présente une structure ordonnée non coplanaire où tous les spins pointent alternativement vers le centre ou l'extérieur d'un tétraèdre un tétraèdre sur deux [31].

2.2.2 Verres de spins non conventionnels

Des états liquides de spins sont prédits théoriquement pour le modèle de Heisenberg sur les réseaux kagomé et pyrochlore (voir §3.1). Expérimentalement, de nombreux composés kagomé [88, 119] et pyrochlore [37] présentent à très basse température (par rapport à la température de Curie-Weiss) un changement de comportement qui a des similarités avec un gel verre de spins. Par exemple il apparaît une différence entre les susceptibilités "field cooled" et "zero field cooled" en-dessous de la température de gel. L'analogie avec les verres de spins n'est toutefois pas complète. Par exemple les fluctuations de l'aimantation restent très grandes dans cet état vitreux. L'importance des fluctuations peut être interprétée comme une réminiscence

de l'état liquide de spins qui pour une raison inconnue est (partiellement) détruit à basse température. Par ailleurs, le vieillissement dans ces verres de spins "topologiques" est similaire à celui des verres de spins ordinaires à température constante, mais des comportements différents sont observés dès lors que la température varie [119].

Un autre fait qui reste partiellement inexpliqué est la chaleur spécifique en T^2 à basse température. Ceci semble être une caractéristique intrinsèque du modèle de Heisenberg [102]. Elle a parfois été interprétée comme la présence d'ondes de spins (à deux dimensions), mais aucun argument supplémentaire n'a été amené dans ce sens.

Du point de vue théorique, des comportements verres de spins ont été trouvés dans des modèles sans désordre chimique [24, 73], mais le lien avec le modèle de Heisenberg isotrope reste à faire. Dans ces approches, le caractère quantique semble être un ingrédient essentiel pour expliquer le comportement verre de spin [73].

Finalement ce comportement verre de spins reste en partie inexpliqué : Il est difficilement attribué au désordre dans les composés car l'évolution de la température de gel en fonction du désordre chimique s'extrapole à une valeur finie en l'absence de désordre [78], mais les études théoriques dans cette direction, bien que prometteuses, sont préliminaires.

2.3 Quelques questions ouvertes

Les comportements de certains composés dont le magnétisme est frustré restent plus ou moins incompris. On se contente ici de mentionner quelques résultats expérimentaux qui n'ont pas (encore ?) trouver d'explication satisfaisante. On ne prétend en aucun cas présenter une liste exhaustive.

2.3.1 $\text{Gd}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$

$\text{Gd}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ devrait être une bonne réalisation du modèle de Heisenberg isotrope. En effet, la couche électronique de l'ion Gd^{3+} est à moitié remplie, ce qui donne lieu à un moment magnétique de spin $S = \frac{7}{2}$ isotrope. Ceci représente un grand moment magnétique, et des interactions dipolaires importantes sont présentes.

Des études du modèle de Heisenberg isotrope en présence d'interactions dipolaires [81, 86] prévoient une structure ordonnée pour ce système. Celle-ci diffère de l'ordre (partiel) observé expérimentalement [23].

Du point de vue théorique, il est légitime de négliger l'anisotropie sur site, mais des interactions d'échange anisotropes ne sont pas exclues, d'autant plus qu'elles sont compatibles avec la structure du réseau pyrochlore et que le couplage spin-orbite est fort dans les terres rares. Par ailleurs, des études de rayons X sont en cours afin de sonder une éventuelle distortion (non détectée aux neutrons) qui pourrait expliquer la sélection de certains plans kagomé dans la structure magnétique.

Par ailleurs, des mesures de ESR [44] montrent que l'anisotropie planaire apparaît dès 80 K, ce qui semble trop élevé pour être expliqué par des interactions dipolaires et laissent penser qu'une interaction anisotrope doit être présente dans ce système.

2.3.2 $\text{Tb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$

On a longtemps considéré que l'anisotropie dans le composé $\text{Tb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ est telle qu'il devrait être correctement décrit par des spins Ising avec les axes de "quantification" selon les directions $\langle 111 \rangle$. Dans ces conditions, en prenant en compte les interactions d'échange et dipolaires, le système devrait avoir un ordre magnétique à longue portée, les spins pointant vers le centre ou vers l'extérieur des tétraèdres, un tétraèdre sur deux. Expérimentalement le système ne s'ordonne pas jusqu'à 70 mK [36], et les cartes de neutrons à plus haute température ne sont pas celles prédites par le modèle ci-dessus.

En fait il semble que l'anisotropie de ce composé ne soit pas suffisamment grande pour que la limite des spins Ising soit atteinte. En effet, la prise en compte d'une anisotropie finie (au lieu d'une anisotropie infinie avec des spins Ising) permet de reproduire la carte de neutrons expérimentale à haute température [53, 15]. Les ingrédients essentiels pour décrire correctement ce composé semblent donc identifiés, mais il n'est pas encore clair que ceci explique l'absence d'ordre jusqu'aux températures les plus basses.

2.3.3 SCGO : le faux kagomé

On a souvent considéré que le composé SCGO ($\text{SrCr}_8\text{Ga}_4\text{O}_{19}$) devait avoir les mêmes propriétés magnétiques qu'un plan kagomé. Rigoureusement, il est une bonne réalisation expérimentale d'un "pyrochlore slab" formé d'un réseau triangulaire pris entre deux plans kagomés, avec des couplages entre les trois plans. Il ne fait pas de doute que ce système, de même que les réseaux pyrochlore et kagomé est fortement frustré et le composé SCGO, comme d'autres composés pyrochlore ou (vrais) kagomé, présente un comportement de type verre de spins à basse température [87].

Il a toutefois été montré [5, 55] que le pyrochlore slab présente aussi des différences avec le réseau kagomé. Le pyrochlore slab a un état fondamental désordonné, de même que le réseau kagomé, mais dans ce dernier les structures coplanaires sont sélectionnées entropiquement à basse température [21, 96] alors que dans le pyrochlore slab, il apparaît localement une chiralité qui reflète la non coplanarité de la structure [5, 55]. Ceci étant, en l'absence d'interactions entre second voisins, il ne s'établit pas d'ordre à longue portée pour la chiralité.

Finalement, le pyrochlore slab a un comportement différent de celui d'un réseau kagomé, mais dans les deux cas un état fondamental liquide de spins est prédit. Actuellement la compréhension du composé SCGO reste donc plus liée à celle du comportement verre de spin qui semble courant dans les composés frustrés, qu'à savoir si un pyrochlore slab présente de réelles différences avec un réseau kagomé.

2.4 Conclusion

L'absence d'un ordre magnétique traditionnel et le comportement "paramagnétique" jusqu'à des températures bien plus basses que la température de Curie sont des signatures bien établies de la frustration. Les expériences sur des composés dont le magnétisme est frustré font toutefois apparaître une richesse de comportements qui va au-delà de ces deux caractéristiques. Certains de ces comportements s'expliquent

par la présence de perturbations auxquelles les systèmes frustrés sont très sensibles tandis que d'autres restent inexpliqués théoriquement.

Chapitre 3

Théorie et modèles

Sommaire

3.1	Liquides de spins, absence de brisure de symétrie	17
3.1.1	Kagomé quantique : prolifération de singulets	18
3.1.2	Liquide de spins classique	18
3.1.3	Fragilité de l'état liquide de spins	19
3.2	Spin-ice	19
3.2.1	Modèle d'Ising sur le réseau pyrochlore	19
3.2.2	Ferromagnétisme + anisotropies = frustration	20
3.2.3	Analogie spin-ice, glace, Ising et désordre cationique	20
3.2.4	Comportement sous champ magnétique	20
3.2.5	La réalité est souvent plus compliquée.	21
3.3	Cristaux à liaisons de valence	21
3.3.1	Définition	21
3.3.2	Un exemple : le réseau damier	22
3.4	Conclusion	23

3.1 Liquides de spins, absence de brisure de symétrie

Le nom “liquide de spins” est donné à des états magnétiques où les corrélations sont à courte portée, par analogie avec la fonction de corrélation densité-densité dans les vrais liquides. Ce sont donc des états essentiellement désordonnés à longue portée, mais qui diffèrent d'un état paramagnétique par l'existence de fortes corrélations sur des échelles plus petites. Ceci a conduit Villain [110] à introduire la notion de “paramagnétique coopératif”.

De tels états apparaissent dans des systèmes unidimensionnels où les fluctuations quantiques interdisent l'apparition d'un ordre à longue portée. Ceci dépasse largement le cadre de cette thèse, et on ne s'intéresse par la suite qu'à des systèmes à deux et trois dimensions, où l'état liquide de spins apparaît à cause de la frustration.

Une classification des différents états quantiques pour les systèmes magnétiques à deux dimensions a été proposée [65] : on distingue essentiellement quatre types de comportements dont deux ont le label “liquide de spins”. Dans ces états, il n'existe

	SU(2)	Translations
Liquide de type kagomé	invariant	invariant
Valence bond crystal	invariant	brisé
Etat de Néel	brisé	brisé

TAB. 3.1 – Classification de différents états fondamentaux possibles dans les antiferromagnétiques à deux dimensions selon les symétries brisées [65].

aucun ordre à longue portée, et toutes les longueurs de corrélations (spin-spin, dimère-dimère...) sont finies. Aucune symétrie n'est brisée, en particulier le système reste invariant par les translations du réseau et ne brise pas la symétrie $SU(2)$.

3.1.1 Kagomé quantique : prolifération de singulets

L'étude de l'état fondamental et du spectre de basse énergie du réseau kagomé quantique a fait l'objet de nombreuses études qui ont permis d'établir qu'il se différencie assez remarquablement des systèmes connus antérieurement.

Une des caractéristiques du réseau kagomé est d'associer forte frustration et faible connectivité, ce qui va conduire à la déstabilisation de l'ordre magnétique à longue portée [121] au profit d'un état liquide de spins caractérisé par des corrélations à courte portée [122]. Cet état liquide de spins est d'une nature différente des liquides de spins quantiques observés dans des systèmes unidimensionnels [72]. Dans le réseau kagomé avec des spins $S = \frac{1}{2}$, la première excitation magnétique ($S=1$) a une énergie finie, de même par exemple que dans le liquide de spins dans une chaîne de spins $S=1$ [38]. Mais contrairement à la chaîne, les excitations de plus basse énergie ne sont pas magnétiques dans le réseau kagomé du fait qu'il existe des états singulets ($S=0$) dans le gap singulets-triplets. Le nombre de ces états non magnétiques d'énergie plus basse que la première excitation magnétique croît exponentiellement avec la taille du système comme 1.15^N [59, 71, 113].

Une interprétation de ces états singulets de basse énergie en termes d'états RVB à courte portée a été faite et reproduit les caractéristiques de basse énergie du spectre [66].

3.1.2 Liquide de spins classique

Les réseaux kagomé [21, 96, 35] et pyrochlore [94, 76, 77, 16] présentent tous les deux des états liquides de spins classiques, du fait d'une forte frustration associée à une faible connectivité.

Contrairement au réseau pyrochlore, le liquide de spins observé dans le réseau kagomé est le siège d'un ordre (partiel) par le désordre [21, 96]. En effet, parmi tous les états dégénérés à température nulle, les fluctuations thermiques vont sélectionner les états coplanaires. Ceux-ci restent toutefois assez nombreux pour faire que toute longueur de corrélation spin-spin reste finie à toute température. Il apparaît seulement un ordre nématique qui reflète la coplanarité du système.

Les systèmes frustrés sont assez sensibles à des phénomènes d'ordre par le désordre [111, 100] car de nombreux états sont dégénérés énergétiquement, laissant la possibilité aux fluctuations de favoriser un sous-ensembles d'états qui vont dominer le

comportement du système. Il a même été trouvé un système [84] où la structure à basse température n'est pas un minimum de l'énergie mais une phase sélectionnée purement de façon entropique et qui est le minimum de l'énergie libre.

3.1.3 Fragilité de l'état liquide de spins

Les états liquides de spins dans des réseaux à deux et trois dimensions apparaissent dans des conditions particulières de forte frustration qui entraînent une grande dégénérescence du niveau de plus basse énergie ou une forte densité d'états infiniment proches de l'état fondamental. L'introduction de perturbations supplémentaires à l'hamiltonien de Heisenberg peut lever cette dégénérescence et détruire l'état liquide de spins en restaurant l'ordre magnétique.

Dans le réseau pyrochlore, l'introduction d'interactions à plus longue portée mène souvent à une mise en ordre [90]. On peut néanmoins espérer, dans le but d'observer expérimentalement des états liquides de spins, que si l'interaction d'échange antiferromagnétique entre plus proches voisins est largement dominante par rapport aux perturbations, l'état liquide de spins sera observable. Par exemple, le liquide de spins quantique sur le réseau kagomé semble robuste à de faibles interactions entre seconds voisins [59].

Les interactions à longue portée ne sont pas les seules perturbations susceptibles de détruire l'état liquide de spins, les interactions anisotropes (voir les chapitres 7 et 8) ou les anisotropies sur site peuvent jouer le même rôle. Par exemple le réseau pyrochlore antiferromagnétique avec des anisotropies uniaxiales a une transition de phase vers un état ordonné à une température de l'ordre des anisotropies [75].

3.2 Spin-ice

On associe généralement la notion de frustration géométrique avec de l'antiferromagnétisme dont l'ordre est incompatible avec le réseau sous-jacent. Pourtant, en présence d'anisotropies sur sites, des interactions ferromagnétiques peuvent donner lieu à une forte frustration. Ceci a été largement étudié expérimentalement et théoriquement sur le réseau pyrochlore ces dernières années [9].

Des études analogues ont commencé sur le réseau kagomé [117].

3.2.1 Modèle d'Ising sur le réseau pyrochlore

Anderson [2] a considéré le modèle d'Ising sur le réseau pyrochlore et a montré que ce système possède une entropie par site finie à température nulle. Minimiser l'énergie sur ce système revient à imposer 2 spins up et 2 spins down sur chaque tétraèdre. La construction de tous les états de plus basse énergie est alors équivalente au problème de la glace formulé par Pauling [83]. Suivant la méthode utilisée par Pauling, Anderson a estimé l'entropie par site :

$$S(T = 0) \simeq \frac{1}{2}k_B \ln \frac{3}{2} \simeq 0.203k_B \quad (3.1)$$

Des simulations Monté Carlo [56] ont montré que cette estimation est en faite excellente, indiquant que les tétraèdres voisins ne sont que faiblement corrélés (l'esti-

mation faite ci-dessus repose sur l’hypothèse que les tétraèdres sont décorrés). Par ailleurs, l’entropie résiduelle trouvée pour ce même modèle sur le réseau damier est quasi-identique à celle du pyrochlore. Ceci confirme le fait que les corrélations sont à très courte portée car l’environnement d’un tétraèdre est identique dans les deux réseaux si l’on se limite au plus proche voisinage (voir figure 5.1 page 39).

3.2.2 Ferromagnétisme + anisotropies = frustration

Des états fondamentaux désordonnés associés à des entropies finies à température nulle sont prédits pour des spins Ising avec des interactions antiferromagnétiques sur les réseaux triangulaire [114], kagomé [105, 52] et pyrochlore [2]. Ces systèmes, où tous les axes d’anisotropies seraient parallèles entre eux sont cependant difficilement réalisables expérimentalement. Par exemple sur le réseau pyrochlore, la cristallographie nous indique que les axes d’anisotropies compatibles avec la symétrie du système sont les axes $\langle 111 \rangle$ qui pointent vers le centre des tétraèdres. Si on introduit une anisotropie de ce type avec des interactions antiferromagnétiques, le système s’ordonne à longue portée [10, 75].

Par ailleurs, introduire des interactions ferromagnétiques seules sur des réseaux à base de triangles ou de tétraèdres ne présente pas un grand intérêt, car celles-ci ne sont pas frustrées. Par contre, la combinaison d’interactions ferromagnétiques avec des anisotropies peut donner naissance à de la frustration. On s’intéresse dans la suite du paragraphe à des réseaux pyrochlores avec des interactions ferromagnétiques entre plus proches voisins et des anisotropies sur site avec des axes faciles selon les directions $\langle 111 \rangle$ qui pointent vers les centres des tétraèdres. A la limite où cette anisotropie est grande (par rapport aux interactions entre spins), on peut considérer le système comme constitué de spins Ising avec des axes de “quantification” qui varient d’un site à l’autre, et qui sont dans les différentes directions $\langle 111 \rangle$ mentionnées ci-dessus.

En se limitant à un seul tétraèdre, l’état fondamental est six fois dégénéré : pour minimiser l’énergie, il faut et il suffit que deux spins pointent vers l’intérieur du tétraèdre et les deux autres vers l’extérieur, ce qui laisse six possibilités. Cette règle est connue sous le nom de “ice rule” à cause de l’analogie qui existe entre ce système et le modèle de la glace.

3.2.3 Analogie spin-ice, glace, Ising et désordre cationique

L’analogie entre le modèle spin-ice et celui de la glace est exacte pour ce qui est de la construction des états de plus basse énergie [10]. Ceci a été vérifié expérimentalement [89] : l’entropie du composé spin-ice $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ est la même que celle prédite par Pauling (équation 3.1) pour le modèle de la glace. Ces deux systèmes peuvent être reliés à l’antiferromagnétique Ising et un problème de désordre cationique sur le réseau pyrochlore [2, 10]

3.2.4 Comportement sous champ magnétique

La dégénérescence des six états de plus basse énergie sur un tétraèdre est levée partiellement ou totalement par l’application d’un champ magnétique. La levée de

dégénérescence dépend fortement de la direction d'application du champ magnétique par rapport aux axes d'anisotropies du système [42, 41]. Par exemple, si le champ est appliqué selon la direction (100), le système s'ordonne à longue portée et la transition a des analogies avec la transition liquide-gaz [41, 115].

Cette levée de dégénérescence a pour conséquence aussi d'abaisser l'entropie à température nulle comme cela a été mesuré sur $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ [89].

3.2.5 La réalité est souvent plus compliquée...

Les composés qui sont les meilleurs candidats pour le comportement spin-ice sont $\text{Ho}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ [42, 11], $\text{Ho}_2\text{Sn}_2\text{O}_7$ [51, 68] et $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ [89]. Dans tous les cas, les moments magnétiques portés par les atomes Ho^{3+} et Dy^{3+} sont grands, et les interactions dipolaires ne peuvent être négligées. Den Hertog *et al* [28] ont pris en compte ces interactions dipolaires et montré qu'elles ne supprimeraient pas le comportement spin-ice, et même l'étendaient pour une certaine gamme d'interactions *antiferromagnétiques*, ce qui serait en fait le cas pour $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$.

3.3 Cristaux à liaisons de valence

3.3.1 Définition

Selon la classification de Lhuillier *et al.* [65], les cristaux à liaisons de valence (valence bond crystal en anglais) sont à classer parmi les systèmes à ordre à longue portée. En effet, l'état fondamental est un pavage de singulets "statique" (par opposition à des états RVB). Ces singulets peuvent être des états singulets à deux spins (phase spin-Peirls), mais aussi des quadrimères comme par exemple dans le réseau damier décrit au paragraphe 3.3.2. Ces états brisent la symétrie par translation, ce qui introduit une dégénérescence finie du niveau fondamental. Par contre ils ne brisent pas la symétrie $SU(2)$, ce qui les différencie des états de Néel du point de vue de cette symétrie. On les différencie des états liquides de spins et les classe dans les systèmes à longue portée car bien que les corrélations spin-spin soient à courte portée, il est possible de trouver des corrélations de grandeurs locales qui sont à longue portée (corrélations quadrimère-quadrimère dans le cas du réseau damier).

Sur des réseaux non frustrés, la possibilité d'avoir un état fondamental à 2D autre que l'état de Néel a été étudiée dans le cadre des modèles $SU(N)$. Dans ces modèles, des états valence bond crystal apparaissent suite à la déstabilisation de l'état de Néel (classique), lorsque $N \rightarrow \infty$ [92, 93]. On sait toutefois que l'état de Néel est l'état fondamental pour $SU(2)$ avec des spins $\frac{1}{2}$ à 2D [67].

Ces résultats ont été obtenus sur des réseaux non frustrés, et ne s'appliquent pas par exemple au réseau kagomé [97]. Plus généralement, l'état valence bond crystal à 2D peut être l'état fondamental de réseaux fortement frustrés. Par exemple, dans le réseau damier étudié ci-dessous, cet état est sélectionné par les fluctuations quantiques parmi le nombre macroscopique d'états dégénérés classiquement.

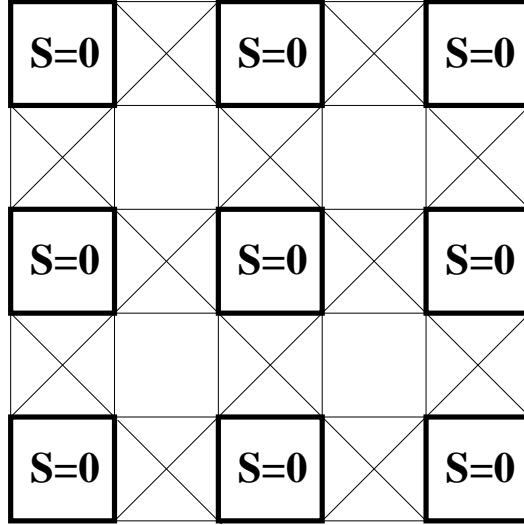


FIG. 3.1 – Etat valence bond crystal sur le réseau damier. Toutes les interactions entre spins sont identiques, les traits gras représentent les états singulets à quatre spins (quadrимères). L'état fondamental est à une bonne approximation un pavage de quadrимères.

3.3.2 Un exemple : le réseau damier

Le réseau damier (voir figure 3.1) avec interactions antiferromagnétiques entre plus proches voisins est fortement frustré et présente une dégénérescence macroscopique de son état fondamental en champ moyen (voir section 1.2.1 et [14]).

Il est étudié au chapitre 5 dans le cas quantique avec des spins $\frac{1}{2}$. Quand cette étude a été faite, il était pressenti comme un analogue bidimensionnel du réseau pyrochlore, ce qui a été mis en défaut par des études ultérieures [34, 14] qui ont montré que l'état fondamental de ce système est un valence bond crystal, et non pas un liquide de spins. L'état fondamental de ce système est à une bonne approximation le produit direct de singulets à quatre spins sur les carrés sans interaction entre seconds voisins, comme schématisé sur la figure 3.1. Parmi tous les états dégénérés classiquement, les fluctuations quantiques sélectionnent donc cet état valence bond crystal. Ceci n'est pas un fait général et dépend de la géométrie du réseau considéré. On présente ci-après quelques arguments (intuitifs plus que rigoureux) qui précisent les conditions favorables à l'apparition d'un état valence bond crystal dans les réseaux frustrés.

Contrairement aux réseaux kagomé et pyrochlore, le réseau damier présente des entités non frustrées (les carrés sans interactions entre seconds voisins) qui pavent entièrement le réseau. Dès lors, il peut être favorable énergétiquement pour le système d'établir de fortes corrélations sur ces carrés en formant des quadrимères comme sur la figure 3.1, tandis que les corrélations entre spins appartenant à des singulets différents qui correspondent à tous les liens frustrant seront nulles. Dans le réseau kagomé, les hexagones sont des entités non frustrées, mais un pavage de ce réseau par des hexagones laisse un quart des spins libres, ce qui explique qu'une telle fonction

d'onde ne soit pas très basse en énergie.

On peut se demander si ce fait est général et si dès lors que dans un système il existe :

- un pavage du réseau par des entités non frustrées qui ne laisse pas (ou peu) de spins libres
- des liens frustrés entre ces entités non frustrées.

il y aura tendance à former un état valence bond crystal avec une fonction d'onde qui sera essentiellement un produit direct de fonctions d'ondes locales sur les entités non frustrées.

3.4 Conclusion

On a présenté plusieurs exemples de phases magnétiques originales observées expérimentalement et/ou prédites théoriquement dans des systèmes frustrés : états liquide de spins, verre de spins topologique, spin-ice, valence bond crystal... Alors que tous ces états peuvent être qualifiés d'états désordonnés si l'on se réfère à l'ordre de Néel, on constate qu'ils renferment encore une grande diversité de comportements. Cette richesse est une des motivations pour l'étude des systèmes frustrés.

Deuxième partie

Propriétés de basse énergie des réseaux pyrochlore et damier : hamiltonien effectif dans le secteur singulet

Chapitre 4

Le réseau pyrochlore

Sommaire

4.1	Méthode d'hamiltonien effectif	25
4.1.1	Deux sous-réseaux imbriqués de tétraèdres	25
4.1.2	Un tétraèdre \rightsquigarrow un pseudo-spin	26
4.1.3	Interaction effective entre pseudo-spins	28
4.1.4	Justification des hypothèses	32
4.2	Traitement de l'hamiltonien effectif	33
4.2.1	Champ moyen	33
4.3	Discussion	36

Dans ce chapitre on s'intéresse à l'hamiltonien de Heisenberg quantique ($S = \frac{1}{2}$) sur le réseau pyrochlore. Il a été montré théoriquement [17, 19] et expérimentalement [4] que l'état fondamental de ce système est un état singulet (non magnétique) liquide de spins avec des longueurs de corrélations de l'ordre de quelques distances atomiques. Le bas du spectre pourrait avoir les mêmes caractéristiques que le réseau kagomé (voir §3.1.1) avec des excitations non magnétiques dans le gap singulet-triplet [34], mais ceci reste à confirmer.

Par contre la structure de l'état fondamental et des premières excitations reste un problème ouvert et est le sujet de ce chapitre. On commence par présenter la méthode utilisée puis on dérive un hamiltonien effectif pour décrire le comportement à basse température du réseau pyrochlore (§4.1). On résout cet hamiltonien dans l'approximation du champ moyen à la section 4.2 et on explicite la structure de l'état fondamental obtenu.

4.1 Méthode d'hamiltonien effectif

4.1.1 Deux sous-réseaux imbriqués de tétraèdres

Du point de vue cristallographique, le réseau pyrochlore est un réseau de Bravais cubique à faces centrées où la maille élémentaire est constituée de 4 sites formant un tétraèdre. Les liens entre ces tétraèdres forment eux aussi un ensemble de tétraèdres qui sont disposés sur un autre réseau cfc. Le réseau pyrochlore peut donc être vu

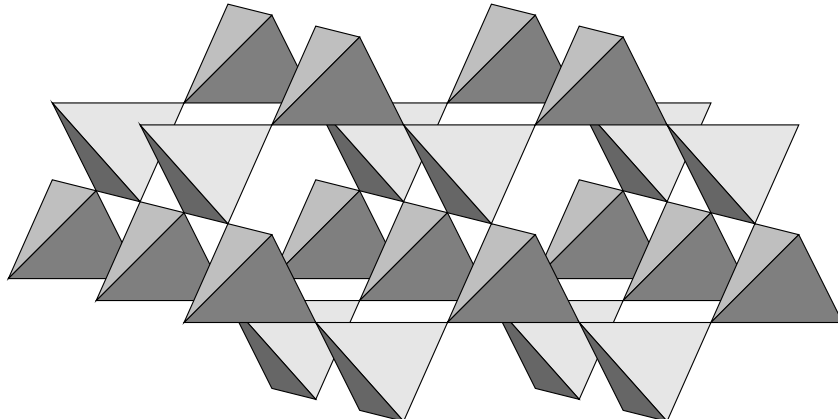


FIG. 4.1 – Le réseau pyrochlore vu comme deux sous-réseaux (cfc) de tétraèdres imbriqués. Tous les tétraèdres d’un même plan horizontal appartiennent au même sous-réseau. Chaque tétraèdre d’un sous-réseau est relié par ses quatre sommets à quatre tétraèdres de l’autre sous-réseau.

comme deux sous-réseaux cfc de tétraèdres imbriqués, chaque tétraèdre d’un sous-réseau étant connecté par ses sommets à quatre tétraèdres de l’autre sous-réseau (voir figure 4.1). Chaque site du réseau pyrochlore appartient à deux tétraèdres, un de chaque sous-réseau. Il est à noter que si l’on attache quatre sites à chaque tétraèdre d’un seul sous-réseau, on décrit ainsi tous les sites du réseau pyrochlore. En effet l’autre sous-réseau ne sera qu’un ensemble de tétraèdres représentant les “liens” entre les sites du premier sous-réseau. Cette façon de décrire le réseau pyrochlore est à la base de la méthode décrite par la suite.

On appelle J la constante d’échange pour les interactions à l’intérieur du premier sous-réseau et J' celle des interactions du second sous-réseau (voir figure 4.2). Dans le réseau pyrochlore $J = J'$. Dans la méthode présentée ici, on distingue les interactions J et J' , et on va mener les calculs en prenant la limite $J \gg J'$ puis, dans le but de décrire le comportement physique du réseau pyrochlore, on prendra $J = J'$. Cette façon de procéder peut paraître abusive, mais on présente un certain nombre d’arguments (voir 4.1.4) qui laissent penser qu’elle reproduit fidèlement le comportement à basse température du réseau pyrochlore.

4.1.2 Un tétraèdre \rightsquigarrow un pseudo-spin

On commence par traiter exactement les interactions à l’intérieur du premier sous-réseau (J). Dans la limite $J' = 0$, le réseau pyrochlore se réduit à une assemblée de tétraèdres isolés. On résout exactement le problème pour un tétraèdre en diagonalisant l’hamiltonien :

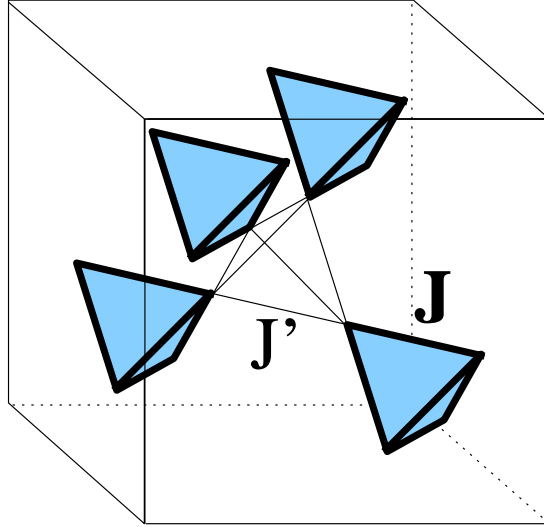


FIG. 4.2 – Principe de la méthode : on distingue les interactions à l’intérieur des deux sous-réseaux de tétraèdres, et on mène les calculs dans la limite $J \gg J'$. On prétend ensuite décrire correctement le “vrai” réseau pyrochlore en prenant $J = J'$. Des arguments sont présentés dans le texte.

$$H_{\text{tétra}} = \frac{J}{2} \sum_{i \neq j=1}^4 \mathbf{s}_i \cdot \mathbf{s}_j \quad (J > 0) \quad (4.1)$$

$$= \frac{J}{2} (S(S+1) - 3) \quad (4.2)$$

Comme on le voit sur l’expression 4.2, les niveaux d’énergie peuvent être classés selon la valeur du (bon) nombre quantique S , attaché au spin total du tétraèdre : $\mathbf{S} = \mathbf{s}_1 + \mathbf{s}_2 + \mathbf{s}_3 + \mathbf{s}_4$. Les niveaux d’énergie 4.2 sont représentés sur la figure 4.3. Pour la suite du calcul, on a besoin de l’expression des états propres qui sont données à l’annexe A.1. Le niveau fondamental est constitué de deux états singulets dégénérés. Ces deux états sont séparés des états triplets par un gap J (voir figure 4.3).

Par la suite, on va restreindre les états accessibles à chaque tétraèdre aux deux singulets qui constituent le niveau fondamental. Les propriétés du réseau pyrochlore à basse température laissent penser qu’on garde ainsi les ingrédients essentiels pour décrire son comportement à basse température. En effet, l’état fondamental aussi bien que les premières excitations dans ce système sont des états singulets. Les états triplets sont séparés des états singulets par un gap [34]. Il semble donc raisonnable d’écarter les états magnétiques pour la description des propriétés à basse température. Par ailleurs, l’état fondamental est un liquide de spins, avec une longueur de corrélation spin-spin qui décroît exponentiellement avec la distance [17, 19] et une longueur de corrélation qui est de l’ordre des distances interatomiques [4]. Ceci laisse penser qu’en ne gardant que des états à un tétraèdre on pourra décrire correctement l’état du système à basse température. En effet, d’après les arguments ci-dessus, les

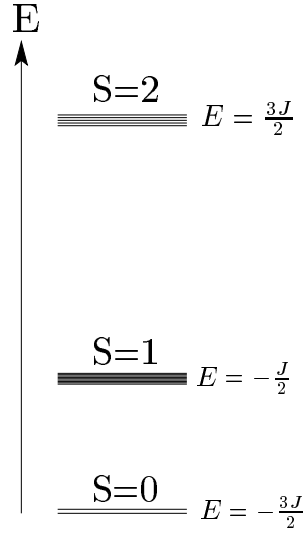


FIG. 4.3 – Niveaux d’énergie (4.2) d’un tétraèdre avec l’hamiltonien 4.1. Le niveau fondamental est constitué de deux états singulets dégénérés auxquels on associe les deux états $|\uparrow\rangle$ et $|\downarrow\rangle$ d’un pseudo-spin $\frac{1}{2}$.

états singulets impliquant un grand nombre de spins sont probablement peu pertinents dans ce système.

Comme chaque tétraèdre a deux singulets accessibles, on peut décrire son état en lui associant un pseudo-spin $\frac{1}{2}$. On notera les pseudo-spins \mathbf{T} . A chacun des états singulets, on associe un des deux états $|T^z = \frac{1}{2}\rangle$ et $|T^z = -\frac{1}{2}\rangle$ du pseudo-spin. Mis à part le formalisme qui est identique, un pseudo-spin n’a rien de commun avec un vrai spin $\frac{1}{2}$, ce premier décrit l’état d’un tétraèdre entier que l’on contraint à être dans un des deux états singulets. Un pseudo-spin ne décrit jamais un état magnétique, du fait qu’on s’est restreint aux états $S = 0$, c’est seulement un moyen de représenter les états singulets. Les deux états singulets retenus ont les mêmes nombres quantiques $S = S^z = 0$ et pour les distinguer il faut introduire un nouveau nombre quantique. On peut par exemple définir la chiralité [108].

A ce stade du calcul, on a traité exactement les interactions J à l’intérieur des tétraèdres isolés puis restreint leur espace de Hilbert aux deux singulets de plus basse énergie, ce qui permet une représentation en termes de pseudo-spins. Ceci est schématisé sur la figure 4.4.

4.1.3 Interaction effective entre pseudo-spins

Après avoir pris en compte les interactions à l’intérieur des tétraèdres (J) et restreint l’espace des états accessibles à chacun d’entre eux, on va prendre en compte les interactions (J') entre ces tétraèdres. Ceux-ci sont représentés par des pseudo-spins $\frac{1}{2}$, qui dans la limite $J' = 0$ sont découplés. La prise en compte des interactions J' va se traduire par des interactions entre les pseudo-spins. Cet hamiltonien effectif est obtenu dans un calcul de perturbation qui suppose $J' \ll J$.

Plus précisément, il s’agit d’appliquer la théorie des perturbations dans le cas

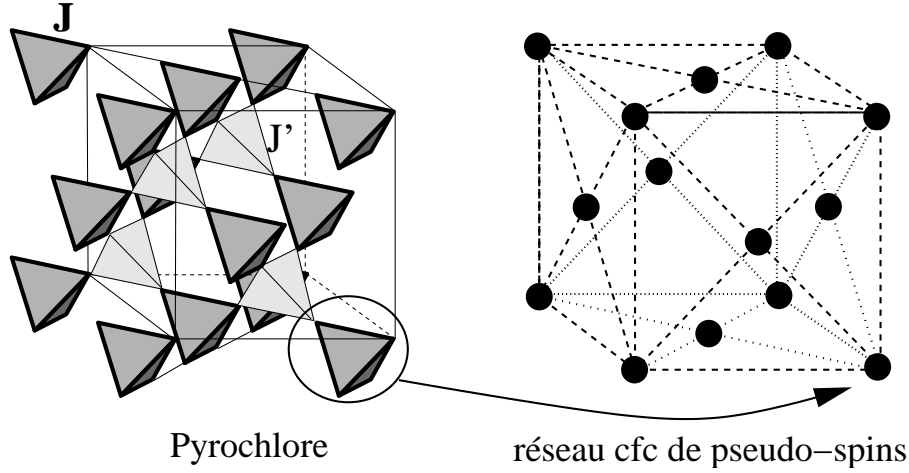


FIG. 4.4 – Restreindre chaque tétraèdre aux deux singulets de plus basse énergie permet de représenter le réseau pyrochlore par un réseau cfc de pseudo-spins $\frac{1}{2}$. Les interactions entre ces pseudo-spins seront dérivées des interactions entre les tétraèdres qu'ils représentent dans le réseau pyrochlore.

dégénéré. Les états non perturbés sont tous les produits directs possibles d'états à un tétraèdre, en se limitant aux deux états singulets, représentés par les deux états d'un pseudo-spin. L'hamiltonien perturbateur est :

$$V = J' \sum \mathbf{s}_i \cdot \mathbf{s}_j$$

où la somme porte sur toutes les interactions entre deux spins i et j appartenant à deux tétraèdres voisins (voir figure 4.2). Après avoir obtenu les fonctions d'ondes de tous les états d'un tétraèdre en termes de vrais spins (voir annexe A.1), il est possible d'obtenir les éléments de la matrice des perturbations (la matrice représentative de l'hamiltonien perturbateur). Celle-ci peut alors être interprétée comme une interaction effective entre les pseudo-spins.

Dans la suite du paragraphe, on applique la théorie des perturbations aux premier, deuxième et troisième ordre.

Au premier ordre

Toutes les valeurs moyennes des termes $\mathbf{s}_i \cdot \mathbf{s}_j$ étant nulles dans le secteur singulet si \mathbf{s}_i et \mathbf{s}_j appartiennent à deux tétraèdres distincts, il n'y a pas de correction à l'énergie au premier ordre des perturbations.

Au deuxième ordre

Au deuxième ordre des perturbations, les corrections à l'énergie prennent la forme :

$$\Delta E^{(2)} = \langle T_1^z | \langle T_2^z | \left(\sum_{ij} \frac{V |1_i\rangle |2_j\rangle \langle 1_i| \langle 2_j| V}{E_0 - E_{ij}} \right) | T_1'^z \rangle | T_2'^z \rangle \quad (4.3)$$

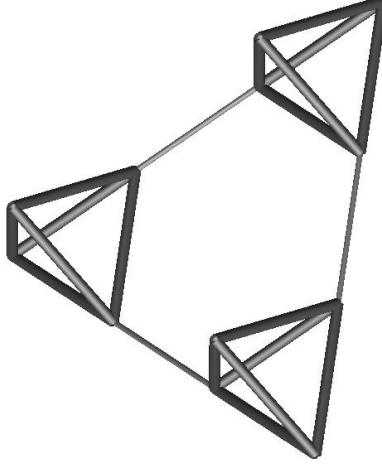


FIG. 4.5 – Seul type de diagrammes donnant une interaction effective non nulle au troisième ordre des perturbations. Il en résulte des interactions à un, deux et trois pseudo-spins. Etendues à tout le réseau, les termes à un pseudo-spins s’annulent.

où 1 et 2 sont deux tétraèdres (ou pseudo-spins) voisins et i et j indiquent les 16 états d’un tétraèdre. La somme porte sur tous les états excités possibles dont l’énergie vaut E_{ij} , E_0 étant l’énergie de l’état fondamental où les deux tétraèdres sont dans les états singulets.

$\Delta E^{(2)}$ est la matrice traditionnelle lors d’un calcul de perturbations sur des états dégénérés. Elle est de dimension 4 et peut faire apparaître des interactions à un ou deux pseudo-spins. Dans le cas du réseau pyrochlore cette matrice est proportionnelle à l’identité, et donne donc une correction à l’énergie sans donner de terme d’interaction entre pseudo-spins. La correction à l’énergie vaut $-\frac{9J^2}{16J}$ par tétraèdre.

Troisième ordre

Au troisième ordre des perturbations, plusieurs types de diagrammes sont à prendre en compte. Certains font intervenir deux tétraèdres, d’autres trois. En fait seuls certains diagrammes à trois tétraèdres (voir figure 4.5) vont donner une interaction effective, les autres diagrammes apportent une correction à l’énergie. Les contributions des différents diagrammes sont détaillés à l’annexe A.2. La matrice des perturbations au troisième ordre est donnée par l’expression :

$$\Delta E^{(3)} = \langle T_1^z T_2^z T_3^z | \left(\sum_{ijk i' j' k'} \frac{V|1_i 2_j 3_k\rangle \langle 1_i 2_j 3_k| V|1_{i'} 2_{j'} 3_{k'}\rangle \langle 1_{i'} 2_{j'} 3_{k'}| V \right) |T_1^z T_2^z T_3^z\rangle$$

$\Delta E^{(3)}$ sera ici de dimension 8, donnant lieu à des termes à un, deux et trois pseudo-spins dans l’hamiltonien effectif. On donne à l’annexe A.2 l’expression des interactions effectives résultant de chacun des diagrammes. Une fois sommées sur tous les

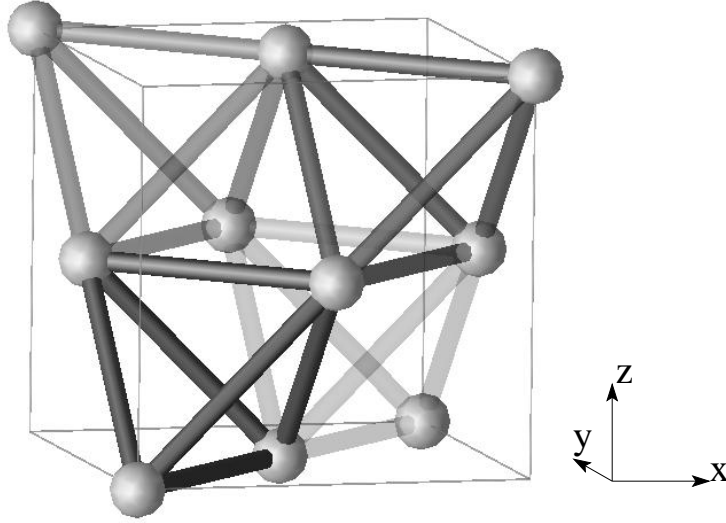


FIG. 4.6 – Ensemble des triplets $\{abc\}$ de pseudo-spins à considérer pour les interactions à trois pseudo-spins. Seuls les triplets appartenant à un même tétraèdre (du réseau cfc comme représentés ici) sont à prendre en compte. Ceux-ci correspondent à des triplets de tétraèdres du réseau pyrochlore qui sont reliés par des diagrammes du type de la figure 4.5. Voir le texte pour l'ordre des pseudo-spins à l'intérieur d'un triplet.

diagrammes possibles, les interactions effectives étendues à tout le réseau s'écrivent, en incluant les corrections à l'énergie au deuxième ordre (dans la base donnée en annexe au tableau A.1) :

$$\begin{aligned}
\frac{H}{\frac{J'^2}{J}} &= N \left(-\frac{9}{16} + \frac{J'}{J} \frac{25}{192} \right) \\
&+ \frac{J'}{J} \left(\sum_{\langle ij \rangle_{xz}} -\frac{1}{48} T_i^z T_j^z + \frac{1}{16} T_i^x T_j^x + \right. \\
&\quad + \sum_{\langle ij \rangle_{yz}} \frac{1}{24} T_i^z T_j^z - \frac{1}{16\sqrt{3}} (T_i^z T_j^x + T_i^x T_j^z) + \\
&\quad + \sum_{\langle ij \rangle_{xy}} \frac{1}{24} T_i^z T_j^z + \frac{1}{16\sqrt{3}} (T_i^z T_j^x + T_i^x T_j^z) + \\
&\quad \left. + \sum_{\{abc\}} \frac{1}{24} T_a^z T_b^z T_c^z + \frac{1}{8\sqrt{3}} T_a^z T_b^x T_c^z - \frac{1}{8\sqrt{3}} T_a^z T_b^z T_c^x - \frac{1}{8} T_a^z T_b^x T_c^x \right)
\end{aligned} \tag{4.4}$$

où $\langle ij \rangle_{xy}$ représente deux plus proches voisins du réseau cfc dans les plans (xy) et $\{abc\}$ des triplets de pseudo-spins qui représentent des tétraèdres reliés par des diagrammes du type de celui de la figure 4.5 comme explicité sur la figure 4.6. L'ordre dans lequel les pseudo-spins apparaissent dans un triplet est déterminé de la façon suivante :

1. a et b appartiennent au même plan $z = \text{const.}$ et $z_c \neq z_a = z_b$. Il reste à déterminer a et b tels que :
2. – Si $z_c > z_a$ $(\vec{ab} \times \vec{bc})_z > 0$
– Si $z_c < z_a$ $(\vec{ab} \times \vec{bc})_z < 0$

(voir figure 4.6 pour les axes). Par ailleurs, dans l'hamiltonien 4.4 N est le nombre de pseudo-spins, soit quatre fois le nombre de spins dans le réseau pyrochlore.

4.1.4 Justification des hypothèses

Plusieurs hypothèses ont été faites pour transformer le système de spins $\frac{1}{2}$ sur le réseau pyrochlore avec interactions antiferromagnétiques entre plus proches voisins en un système de pseudo-spins sur un réseau cfc et obtenir un hamiltonien effectif entre ces pseudo-spins. Comme on l'a déjà dit, des études antérieures [17, 19, 4] laissent penser que l'état fondamental est un singulet liquide de spins, avec de faibles longueurs de corrélations ce qui justifie le fait qu'on restreigne l'espace de Hilbert aux singulets localisés sur un tétraèdre. Par ailleurs, ce caractère local laisse penser qu'il suffit de dériver l'hamiltonien effectif aux ordres les plus bas pour obtenir l'essentiel des interactions entre ces singulets. En effet, plus l'ordre des perturbations sera élevé et plus il fera intervenir des interactions entre pseudo-spins distants les uns des autres. Ceci est confirmé par la décroissance des corrections à l'énergie avec l'ordre des perturbations (voir l'énergie par spin, équation 4.6). Ce fait a également été vérifié en appliquant la même méthode sur un réseau carré avec interactions entre seconds voisins : l'hamiltonien au troisième ordre vaut exactement $\frac{1}{4}$ de l'hamiltonien au deuxième ordre (voir l'annexe A.6 pour plus de détails), ce qui consolide l'idée qu'il suffit de dériver l'hamiltonien effectif aux ordres les plus bas pour obtenir l'essentiel des interactions entre pseudo-spins.

L'existence d'un gap entre l'état fondamental et le premier état triplet, et d'un grand nombre (continuum ?) d'états singulets dans ce gap laisse espérer que cet hamiltonien effectif permettra de décrire les excitations dans le système en plus de l'état fondamental.

Une petite vérification du fait que cette approche est adaptée a été de diagonaliser exactement l'hamiltonien pour 4 pseudo-spins (qui représentent un système de $4 \times 4 = 16$ vrais spins) et de comparer le spectre avec le spectre obtenu également en diagonalisations exactes avec 16 spins $S = \frac{1}{2}$ sur un réseau pyrochlore [18]. La comparaison est faite sur la figure 4.7. On constate que les énergies de l'état fondamental dans les deux systèmes sont relativement voisines. Par ailleurs, le modèle effectif fait apparaître un certain nombre de singulets dans le gap singulet-triplet. Ces deux caractéristiques semblent donc confirmer le bien-fondé de l'approche. Toutefois, il ne s'agit pas là d'une preuve très forte de la pertinence de l'approche, la taille des systèmes considérés étant très réduite. En particulier, les dégénérescences des deux systèmes diffèrent, et les états excités ne coïncident pas. On attribue ceci à la trop petite taille des systèmes considérés.

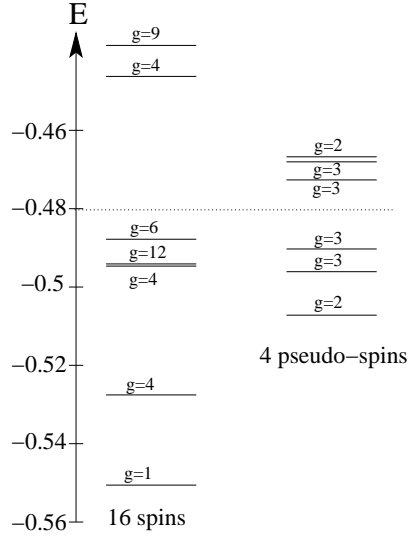


FIG. 4.7 – Comparaison des niveaux d’énergie (énergie par spin) obtenus par diagonalisation exacte d’un système de 4 pseudo-spins (équivalent à 16 vrais spins) et des niveaux d’énergie obtenus par diagonalisation exacte d’un système de 16 spins sur le réseau pyrochlore[18]. Tous les états sont des états singulets ($S = 0$). L’énergie du premier état $S = 1$ est marquée en pointillés.

4.2 Traitement de l’hamiltonien effectif

Dans cette section, on résout dans l’approximation du champ moyen l’hamiltonien effectif obtenu à la section précédente, afin d’en tirer des informations sur la structure de l’état fondamental du réseau pyrochlore avec des spins $\frac{1}{2}$.

4.2.1 Champ moyen

Il existe plusieurs façons de résoudre le problème dans l’approximation du champ moyen. On commence par chercher des solutions où la structure magnétique est décrite par un seul vecteur de propagation. Comme on le verra, on peut trouver une meilleure solution au problème en superposant des structures magnétiques à un seul vecteur d’onde. Une résolution directe en supposant quatre sous-réseaux viendra confirmer cette dernière solution.

Structures à un seul vecteur de propagation

On commence par chercher des solutions où la structure magnétique est décrite par un seul vecteur de propagation. On ne prend ainsi en compte que les interactions entre deux pseudo-spins, et on considèrera les interactions à trois pseudo-spins ultérieurement.

La méthode utilisée est décrite en détail à l’annexe A.3. La structure magnétique obtenue sera de la forme :

$$\begin{cases} T_i^x = T_{\mathbf{q}_0}^x e^{i\mathbf{q}_0 \cdot \mathbf{R}_i} \\ T_i^z = T_{\mathbf{q}_0}^z e^{i\mathbf{q}_0 \cdot \mathbf{R}_i} \end{cases}$$

où \mathbf{q}_0 est le vecteur de la première zone de Brillouin qui minimise l'énergie :

$$E = \frac{J'^3}{J^2} \frac{N}{2} |T_{\mathbf{q}}|^2 \lambda(\mathbf{q}_0)$$

avec $\lambda(\mathbf{q})$ la plus petite valeur propre de la matrice "transformée de Fourier des interactions d'échange" :

$$\begin{bmatrix} \frac{1}{4}c_x c_z & \frac{1}{4\sqrt{3}}(c_x c_y - c_y c_z) \\ \frac{1}{4\sqrt{3}}(c_x c_y - c_y c_z) & \frac{1}{6}(c_x c_y + c_y c_z) - \frac{1}{12}c_x c_z \end{bmatrix}$$

où $c_\alpha = \cos \frac{q_\alpha a}{2}$. On se reportera à l'annexe A.3 pour plus de détails.

Dans cette approximation, trois vecteurs \mathbf{q}_0 sont solutions : $(2\pi, 0, 0)$, $(0, 2\pi, 0)$ et $(0, 0, 2\pi)$. Les structures correspondante en termes de pseudo-spins sont des arrangements antiferromagnétiques de plans ferromagnétiques qui sont empilés respectivement dans les directions x, y et z. Les directions des pseudo-aimantations correspondantes sont respectivement :

$$\begin{aligned} \langle T^x \rangle &= -\frac{\sqrt{3}}{4} & \langle T^z \rangle &= -\frac{1}{4} \\ \langle T^x \rangle &= 0 & \langle T^z \rangle &= \frac{1}{2} \\ \langle T^x \rangle &= \frac{\sqrt{3}}{4} & \langle T^z \rangle &= -\frac{1}{4} \end{aligned}$$

Dans chacune de ces structures, l'énergie par (vrai) spin vaut alors (en prenant $J = J'$) :

$$\frac{E}{4} = -J \frac{127}{256} \simeq -0.496J \quad (4.5)$$

A partir des pseudo-aimantations on peut remonter aux fonctions d'ondes en termes de vrais spins dans le secteur singulet . Ceci présente toutefois peu d'intérêt à ce stade car comme on va le voir on peut construire une fonction d'onde à trois vecteurs de propagation qui est plus basse en énergie que chacune des solutions à un seul vecteur de propagation.

Structure triple-q

Pour obtenir les trois solutions ci-dessus, on a seulement pris en compte les termes à deux pseudo-spins. La valeur moyenne des termes à trois pseudo-spins dans ces configurations est nulle.

Ces termes à trois pseudo-spins vont favoriser une structure à trois vecteurs de propagations [39]. En effet, en superposant les trois solutions précédentes, la valeur moyenne des termes à deux pseudo-spins va augmenter, mais la contribution des termes à trois pseudo-spins n'est plus nulle et l'énergie totale de la structure résultante est plus basse que celle des structures à un seul vecteur d'onde obtenues précédemment.

Dans cette nouvelle structure, l'énergie par tétraèdre vaut :

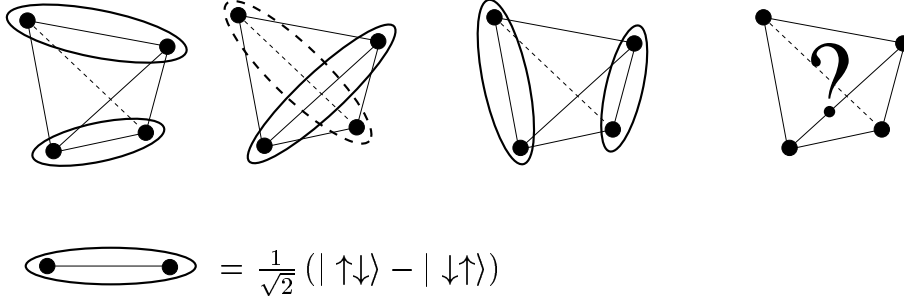


FIG. 4.8 – Il existe trois états dimérisés possibles sur un tétraèdre, comme représenté ci-dessus. La maille magnétique de l'état fondamental contient quatre tétraèdres (voir figure 4.2 par exemple) dont trois sont dans les trois états dimérisés, et le quatrième reste désordonné.

$$E = -\frac{3J}{2} - \frac{9}{16} \frac{J'^2}{J} + \underbrace{\left(\frac{25}{192} - \frac{15}{384} - \frac{8}{384} \right)}_{\frac{9}{128}} \frac{J'^3}{J^2} \quad (4.6)$$

où on a séparé les contributions à l'énergie provenant respectivement des termes constants et des interactions à deux et à trois pseudo-spins. Harris *et al.* [39] ont probablement oublié de compter les diagrammes à deux tétraèdres au troisième ordre des perturbations (figure A.2.a) si bien que le “ $\frac{25}{192}$ ” dans l'expression 4.6 remplace le “ $\frac{104}{384}$ ” de l'expression (13) dans la référence [39].

Pour la limite $J = J'$, ceci donne une énergie par spin :

$$\frac{E}{4} \simeq -0.498J$$

qui est effectivement plus basse que l'énergie des structures à un seul vecteur de propagation 4.5.

Cette structure triple- \mathbf{q} peut également être vue comme une structure $\mathbf{q} = \mathbf{0}$ à quatre sous-réseaux de pseudo-spins. Sur ces quatre sous-réseaux, trois ont une pseudo-aimantation finie, et le quatrième a une pseudo-aimantation nulle. En fait sur ce quatrième sous-réseau on trouve $\langle T^{x,z} \rangle = 0$, d'où l'on peut conclure que ce sous-réseau est désordonné car il peut être dans n'importe lequel des deux états $|T^y = \pm \frac{1}{2}\rangle$ sans que cela n'affecte l'énergie. Pour les trois sous-réseaux ayant une pseudo-aimantation finie, on peut obtenir la fonction d'onde correspondante des (vrais) spins. On trouve alors que chacune des trois directions de la pseudo-aimantation correspond aux trois façons possibles de former deux dimères sur un tétraèdre (voir figure 4.8).

Le résultat final de cet étude est que l'état fondamental du réseau pyrochlore de spins $\frac{1}{2}$ a une maille élémentaire de quatre tétraèdres. Trois de ces tétraèdres sont dans chacun des trois états dimérisés possibles (il existe trois façons de former deux dimères sur chaque tétraèdre), tandis que le quatrième tétraèdre reste désordonné (voir figure 4.8). Cette solution avait en fait déjà été obtenue et présentée de façon peu claire [39].

Arguments en faveur de la structure triple- \mathbf{q}

La façon dont la structure multi- \mathbf{q} a été obtenue peut paraître arbitraire. Afin de consolider cette solution, on a recherché des structures magnétiques qui sont des combinaisons linéaires des trois structures simple- \mathbf{q} et en minimisant l'énergie par rapport au poids de chacune des trois solutions. On trouve que la solution de plus basse énergie est bien celle décrite ci-dessus.

On peut alors se demander si il n'y a pas de "meilleures" solutions au problème (dont l'énergie est plus basse) qui ne sont pas des combinaisons linéaires de ces trois structures. Afin de répondre partiellement à cette question, on a effectué un traitement en champ moyen à quatre sous-réseaux. Au lieu de chercher des structures magnétiques décrites par un vecteur de propagation et un seul site par maille comme précédemment, on se limite à des structures $\mathbf{q} = \mathbf{0}$, mais avec quatre sites par maille élémentaire. On minimise alors l'énergie par rapport aux coordonnées des quatre pseudo-spins de la maille élémentaire. Les détails de la méthode sont donnés aux annexes A.3.2 et A.3.3. Avec cette nouvelle approche, on retrouve directement la même structure triple- \mathbf{q} que précédemment (mais cette fois-ci décrite comme une structure $\mathbf{q} = \mathbf{0}$ avec quatre sous-réseaux).

4.3 Discussion

En prenant en compte les caractéristiques connues du réseau pyrochlore avec des interactions d'échange antiferromagnétiques entre spins $S = \frac{1}{2}$ plus proches voisins, on a dérivé un hamiltonien effectif pour décrire les propriétés magnétiques à basse température de ce système.

On a résolu l'hamiltonien effectif à l'approximation du champ moyen, et on trouve que le système est le siège d'une mise en ordre partielle dans le secteur singulet.

La même étude a été menée reprise par Tsunetsugu [108]. En prenant en compte les fluctuations quantiques il a montré que les tétraèdres désordonnés à l'approximation du champ moyen s'ordonnent [109].

Toutes les solutions obtenues en champ moyen, ainsi que l'introduction des fluctuations quantiques qui se base sur ces solutions, ont été obtenues en faisant différentes suppositions sur la structure de l'état fondamental. Etant donné la complexité de l'hamiltonien effectif, il est légitime de se demander si les résultats précédents ne mériteraient pas d'être appuyés par une approche plus générale ne faisant pas d'hypothèses sur la structure de l'état fondamental. Par exemple des simulations Monte Carlo du hamiltonien effectif avec des spins classiques, et/ou des diagonalisations exactes de systèmes de tailles finies seraient les bienvenues pour confirmer l'état fondamental obtenu ici.

D'autres méthodes d'hamiltoniens effectifs ont été appliquées pour le réseau pyrochlore de spins $\frac{1}{2}$ [48, 6] et trouvent des états fondamentaux qui diffèrent plus ou moins de celui présenté ici. Il est difficile de trancher clairement entre ces différents résultats : on pourrait penser naïvement qu'il suffit de comparer les énergies obtenues par les différentes méthodes pour trouver le "meilleur" état fondamental. Toutefois, d'une part les différences entre les énergies sont très faibles, et d'autre part la façon de les calculer dépend de la méthode considérée. Par conséquent, même lorsqu'une méthode donne l'énergie la plus basse, on n'est jamais certain que cela est lié à

l'état fondamental correspondant et non un défaut de la méthode qui sous-estime les énergies. Par ailleurs, l'approche présentée ici ainsi que les autres méthodes d'hamiltoniens effectifs pour le réseau pyrochlore de spins $\frac{1}{2}$ [48, 6] ont le défaut de briser la symétrie de translation du réseau. Autrement dit, on se limite à des fonctions d'ondes qui seront des produits directs de singulets sur un des deux sous-réseaux de tétraèdres. Par exemple la fonction de corrélation entre deux spins appartenant à deux tétraèdres distincts sera toujours nulle (mais pas les corrélations singulet-singulet). Cette approche semble donc plus apte à décrire des états du type "valence bond crystal" que des états où les singulets résonnent sur *tous* les tétraèdres. Il serait donc bienvenu de comparer les résultats obtenus ici avec des approches plus aptes à décrire des états RVB afin de confirmer ou d'infirmier leur bien-fondé.

Si cette approche est pertinente, l'hamiltonien effectif obtenu permettrait d'étudier la structure des excitations singulet-singulet de basse énergie.

Chapitre 5

Réseau damier

Sommaire

5.1	Un réseau pyrochlore 2D ?	38
5.2	Hamiltonien effectif	40
5.3	Résolution en champ moyen	41
5.3.1	Structures à un vecteur de propagation	41
5.3.2	Solutions à deux sous-réseau	42
5.4	Damier \neq pyrochlore 2D	42

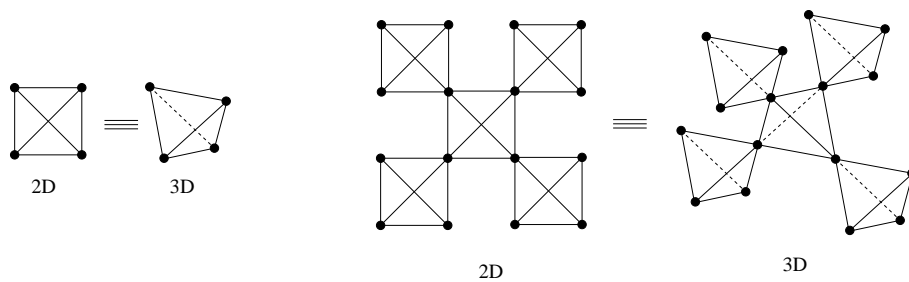
Dans ce chapitre on s'intéresse à l'hamiltonien de Heisenberg quantique ($S=\frac{1}{2}$) sur le réseau damier. L'intérêt pour ce réseau est apparu car il était pressenti comme un analogue bidimensionnel du réseau pyrochlore (§5.1). On présente (§5.2 et §5.3) les résultats obtenus avec la même méthode d'hamiltonien effectif qu'au chapitre précédent.

Depuis ces résultats, d'autres études ([34, 14, 12] et voir §5.4) ont mis en défaut les hypothèses de l'approche présentée ici, au moins pour le cas $J' = J$.

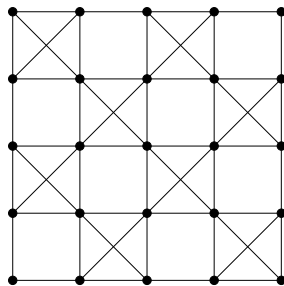
5.1 Un réseau pyrochlore 2D ?

Le réseau damier est représenté sur la figure 5.1. Si les interactions entre deuxièmes voisins sont égales aux interactions entre plus proches voisins, alors un carré avec interactions entre deuxièmes voisins est identique à un tétraèdre du réseau pyrochlore : chaque spin a trois voisins identiques du point de vue des interactions (voir la figure 5.1 en haut à gauche).

Partant de cette constatation, les réseaux damier et pyrochlore sont tous les deux des ensembles de tétraèdres connectés par leurs sommets et les connections entre tétraèdres sont identiques si on se limite aux premiers voisins d'un tétraèdre (voir la figure 5.1 en haut à droite). Les connectivités entre tétraèdres au-delà des premiers voisins diffèrent dans les deux réseaux, mais du fait du caractère "local" d'un état liquide de spins (les corrélations décroissent très vite avec la distance), on peut penser que seul le plus proche voisinage va dicter le comportement du système. Ceci a laissé penser que le réseau damier était l'analogue à deux dimensions du réseau pyrochlore. Comme on le verra (§5.4), ce dernier point n'est pas aussi évident que ces considérations géométriques ne le laissent penser [34, 14, 12].



Mais



Damier

≠ pyrochlore 2D

FIG. 5.1 – Si on se limite à un tétraèdre et son plus proche voisinage, les réseaux damier et pyrochlore sont analogues. Des différences de comportements apparaissent dans ces réseaux du fait que le réseau damier peut être pavé par des entités non frustrées (les carrés sans interactions entre seconds voisins), ce qui n'est pas possible dans le réseau pyrochlore (voir §3.3.2 et §5.4).

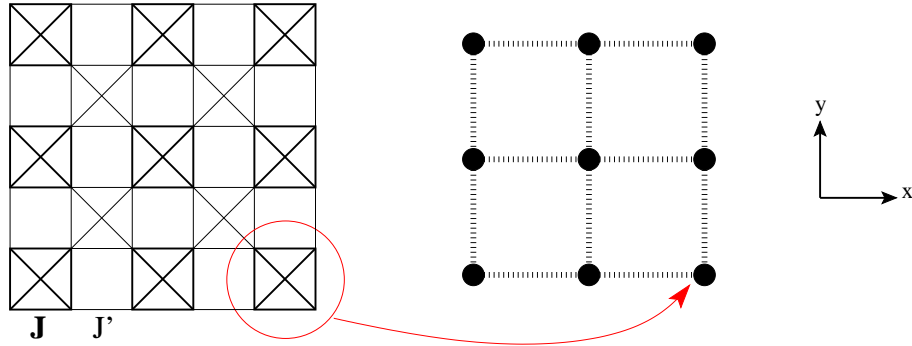


FIG. 5.2 – Découpage des interactions en deux types (J et J') et réseau de pseudo-spins qui en résulte dans la méthode d'hamiltonien effectif.

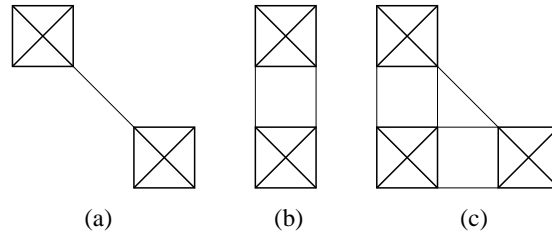


FIG. 5.3 – Les trois types de diagrammes à considérer pour le calcul de l'hamiltonien effectif jusqu'au troisième ordre. Les diagrammes à trois tétraèdres (c) n'interviennent qu'au troisième ordre. Les diagrammes de type (a) amènent des corrections à l'énergie mais n'introduisent pas d'interaction effective entre pseudo-spins. Voir l'annexe A.4 pour plus de détails.

5.2 Hamiltonien effectif

La méthode d'hamiltonien effectif utilisée est la même que celle décrite pour le réseau pyrochlore à la section 4.1. On se contente de montrer (figure 5.2) la division des interactions dans le réseau damier en deux types (J et J') et le réseau de pseudo-spins qui en résulte.

Les détails de la dérivation de l'hamiltonien effectif jusqu'au troisième ordre des perturbations sont donnés à l'annexe A.4. On se contente ici de quelques considérations générales.

Tous les termes au premier ordre des perturbations seront nuls pour la même raison que pour le réseau pyrochlore : la valeur moyenne de $\mathbf{s}_i \cdot \mathbf{s}_j$ pour i et j deux spins appartenant à deux tétraèdres distincts est nulle. Dès le deuxième ordre des perturbations, il y aura des corrections à l'énergie et également des interactions effectives contrairement au réseau pyrochlore. L'ensemble des diagrammes à considérer pour les deuxième et troisième ordres sont représentés sur la figure 5.3.

Tout calcul fait (voir l'annexe A.4 pour les détails), l'hamiltonien se met sous la forme :

$$\frac{H}{J^2} = H^{(2)} + \frac{J'}{J} H^{(3)}$$

où $H^{(2)}$ et $H^{(3)}$ sont les hamiltoniens effectifs obtenus respectivement aux deuxième et troisième ordres des perturbations. Si on prend $J = J'$, l'hamiltonien effectif s'écrit dans la base de singulets définie à l'annexe A.1 et avec $J = J'$:

$$\begin{aligned} \frac{H}{J} = & N \left(-\frac{85}{192} - \frac{1}{24} T_i^z \right) + \\ & + \sum_{\langle ij \rangle_y} \left(\frac{1}{16} T_i^z T_j^z - \frac{1}{16} T_i^x T_j^x - \frac{1}{16\sqrt{3}} (T_i^z T_j^x + T_i^x T_j^z) \right) + \\ & + \sum_{\langle ij \rangle_x} \left(\frac{1}{16} T_i^z T_j^z - \frac{1}{16} T_i^x T_j^x + \frac{1}{16\sqrt{3}} (T_i^z T_j^x + T_i^x T_j^z) \right) + \\ & + \sum_{\langle ij \rangle_{xy}} \left(-\frac{1}{48} T_i^z T_j^z + \frac{1}{16} T_i^x T_j^x \right) + \\ & + \sum_{\{ijk\}} \left(\frac{1}{24} T_i^z T_j^z T_k^z + \frac{1}{8\sqrt{3}} (T_i^z T_j^z T_k^x - T_i^z T_j^x T_k^z) - \frac{1}{8} T_i^z T_j^x T_k^x \right) \end{aligned}$$

où $\langle ij \rangle_x$ représente l'ensemble des plus proches voisins dans la direction x (voir figure 5.2 pour la définition des axes) et $\langle ij \rangle_{xy}$ les seconds voisins (selon les diagonales). $\{ijk\}$ est l'ensemble des triplets de pseudo-spins du type de la figure 5.3.c avec i le pseudo-spin "central", j celui qui est dans la direction y et k celui qui est dans la direction x (voir figure 5.3). N est le nombre de pseudo-spins.

De même que pour le réseaux pyrochlore (équation 4.4), l'hamiltonien effectif brise la symétrie du réseau et ne respecte pas les symétries de l'hamiltonien de Heisenberg de départ. Par exemple, la rotation de $\frac{\pi}{2}$ autour de l'axe z n'est pas respectée, et les interactions entre plus proches voisins selon l'axe des x et l'axe des y ne sont pas équivalentes. Ceci est dû à notre choix de la base de singulets. Les deux états singulets à un tétraèdre ne sont pas invariants par des rotations de $\frac{\pi}{2}$ autour de l'axe des z .

5.3 Résolution en champ moyen

5.3.1 Structures à un vecteur de propagation

On commence par résoudre l'hamiltonien en champ moyen en recherchant les structures décrites par un seul vecteur de propagation et en ne prenant en compte que les interactions à deux pseudo-spins. Ceci est partiellement justifié par le fait que le terme de pseudo-champ (T_i^z) est faible par rapport aux autres termes. La méthode est la même que celle utilisée au paragraphe 4.2.1 pour le réseau pyrochlore et les détails de la méthode sont décrits à l'annexe A.3.1. L'idée est que l'on arrive à une expression de l'énergie de la forme :

$$E = J \frac{N}{2} |\mathbf{T}_{\mathbf{q}}|^2 \lambda(\mathbf{q}_0)$$

où \mathbf{q}_0 est le vecteur de propagation qui minimise $\lambda(\mathbf{q})$, la plus petite valeur propre de la matrice :

$$\frac{1}{8} \begin{pmatrix} 2c_x c_y - c_x - c_y & \frac{1}{\sqrt{3}}(c_x - c_y) \\ \frac{1}{\sqrt{3}}(c_x - c_y) & c_x + c_y - \frac{2}{3}c_x c_y \end{pmatrix}$$

où $c_\alpha = \cos(q_\alpha a)$.

La solution obtenue est une structure antiferromagnétique (dans l'espace des pseudo-spins) : $\mathbf{q}_0 = (\pm\pi, \pm\pi)$. C'est donc une structure à deux sous-réseaux avec la pseudo-aimantation dans les direction $\pm z$. L'énergie correspondante par pseudo-spin (en incluant le terme constant mais sans les termes de pseudo-champ et les interactions à trois pseudo-spins exclus du calcul) vaut $-J \frac{97}{192}$. En revenant dans l'espace des vrais spins, la structure singulet correspondante est une alternance sur les tétraèdres des deux singulets auxquels on s'est restreint pour la représentation de pseudo-spins (voir l'annexe A.1).

5.3.2 Solutions à deux sous-réseau

De façon complémentaire à la méthode de champ moyen utilisée ci-dessus, on a recherché des solutions à deux sous-réseaux en prenant en compte tous les termes (à un, deux, trois pseudo-spins) de l'hamiltonien. La solution trouvée est peu différente de celle trouvée au paragraphe 5.3.1. Les pseudo-spins acquièrent une faible composante selon x due aux interactions à trois corps en même temps que le pseudo-champ induit une faible composante selon la direction z pour tous les pseudo-spins par rapport à une structure antiferromagnétique idéale.

La structure d'états singulets trouvée au paragraphe 5.3.1 est donc légèrement modifiée du fait de la prise en compte des interactions à un et trois corps.

5.4 Damier \neq pyrochlore 2D

L'approche de l'hamiltonien effectif utilisée ici se base sur plusieurs hypothèses détaillées à la section 4.1. Une des limitations est que l'on restreint l'espace de Hilbert aux états singulets produits directs de singulets à un tétraèdre. En l'absence de toute étude antérieure sur le réseau damier, et par analogie avec le réseau pyrochlore, cette hypothèse semblait justifiée. D'autres approches [34, 14, 12] ont en fait montré que l'état fondamental du réseau damier avec des spins $\frac{1}{2}$ est un valence bond crystal (voir §3.3.2). L'état fondamental du réseau damier est donc à une bonne approximation près un produit direct de singulets sur les carrés sans interactions entre seconds voisins (figure 3.1 page 22). Cette structure ne fait pas partie des états singulets auxquels on est restreint dans la méthode d'hamiltonien effectif. Cette méthode ne peut donc pas décrire correctement le réseau damier. La comparaison des énergies de l'état valence bond crystal et de l'état obtenu avec la méthode d'hamiltonien effectif confirme ce fait : l'état valence bond crystal est plus bas en énergie.

Les résultats obtenus ici sont néanmoins valables dans la limite $J' \ll J$ et probablement jusqu'à une certaine valeur critique finie de J' .

Troisième partie

Interactions

Dzyaloshinsky-Moriya dans les
réseaux kagomé et pyrochlore

Chapitre 6

Généralités sur l'interaction Dzyaloshinsky-Moriya

Sommaire

6.1	Introduction	45
6.2	Origine microscopique	46
6.3	Arguments de symétrie, règles de Moriya	47
6.4	Ordres de grandeurs	48
6.5	Types d'ordre induits par l'interaction Dzyaloshinsky-Moriya	49
6.5.1	Réseau bipartite	49
6.5.2	Réseaux frustrés	49
6.5.3	Systèmes fortement frustrés	50
6.6	Une symétrie cachée	50

6.1 Introduction

L'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya est une interaction d'échange entre deux moments magnétiques \mathbf{S}_1 et \mathbf{S}_2 qui est de la forme :

$$H_{DM} = \mathbf{D}_{12} \cdot (\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2) \quad (6.1)$$

où \mathbf{D}_{12} est un vecteur qui définit l'interaction. L'expression 6.1 change de signe si l'on permute les spins \mathbf{S}_1 et \mathbf{S}_2 , et l'interaction Dzyaloshinsky-Moriya est également appelée interaction antisymétrique. Il s'ensuit que $\mathbf{D}_{12} = -\mathbf{D}_{21}$.

Ce terme est en général faible par rapport aux interactions d'échange isotropes du hamiltonien de Heisenberg : $J\mathbf{S}_1 \cdot \mathbf{S}_2$, mais il peut être indispensable d'en tenir compte afin d'expliquer la structure magnétique de certains composés. L'interaction 6.1 favorise un ordre magnétique où les spins \mathbf{S}_1 et \mathbf{S}_2 sont dans le plan perpendiculaire à \mathbf{D}_{12} , perpendiculaires entre eux et tels que \mathbf{S}_1 , \mathbf{S}_2 et \mathbf{D}_{12} forment un trièdre indirect comme représenté sur la figure 6.1. On a également représenté sur cette figure la façon dont cette interaction modifie un ordre antiferromagnétique imposé par une interaction d'échange isotrope : $J\mathbf{S}_1 \cdot \mathbf{S}_2$ avec $J > 0$.



FIG. 6.1 – Type d'ordre induit par l'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya seule, et le cas plus réaliste où elle perturbe l'ordre, ici antiferromagnétique, dû au couplage de Heisenberg.

L'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya a été introduite pour la première fois par Dzyaloshinsky de façon phénoménologique et avec des arguments de symétrie [30]. Il a montré que le ferromagnétisme faible qui était observé expérimentalement dans certains composés essentiellement antiferromagnétiques, comme $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ était bien expliqué par une structure magnétique où chaque spin est presque anti-aligné avec ses voisins. L'écart à la structure antiferromagnétique parfaite consiste en une légère inclinaison de tous les spins dans la même direction, ce qui donne naissance à un faible moment ferromagnétique (voir figure 6.1 ou le cas similaire de La_2CuO_4 au paragraphe 6.5.1). Il a montré que cette structure est compatible avec les symétries du cristal, et qu'elle est due à une interaction antisymétrique qui apparait dans le développement de l'énergie libre en respectant les symétries du cristal.

6.2 Origine microscopique

Moriya [79, 80] a été le premier à expliciter un mécanisme microscopique possible qui soit à l'origine de cette interaction. Pour cela il a repris le formalisme de calcul des interactions de super-échange d'Anderson [3] en y incluant le couplage spin-orbite. Il a montré qu'apparaissent alors trois types de termes dans l'hamiltonien magnétique :

$$H = J\mathbf{S}_1 \cdot \mathbf{S}_2 + \mathbf{D}_{12} \cdot (\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2) + \mathbf{S}_1 \bar{\Gamma} \mathbf{S}_2 \quad (6.2)$$

où le premier terme est le couplage de super-échange isotrope, le second terme l'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya ou de super-échange anti-symétrique et le troisième terme l'interaction de super-échange symétrique anisotrope, $\bar{\Gamma}$ étant une matrice symétrique.

L'approche de Moriya est valable pour des systèmes à magnétisme localisé et où le couplage spin-orbite est faible, celui-ci étant pris en perturbation dans ce calcul. Certains oxydes d'ions de transition par exemple rentrent dans cette catégorie.

L'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya n'est pas limitée à ce type de systèmes. Smith [104] a mis en évidence un mécanisme microscopique qui est à l'origine d'interactions anisotropes dans des systèmes métalliques avec des moments magnétiques localisés couplés aux électrons de conduction. De même que dans l'approche de Moriya, le couplage spin-orbite est un ingrédient essentiel à l'apparition d'anisotropies

dans les interactions. Ces versions anisotropes des interactions RKKY ont été appliquées au composé verre de spins $CuMn$ pour expliquer l'évolution de ses propriétés magnétiques avec le dopage en impuretés *non* magnétiques mais pour lesquelles le couplage spin-orbite est important (Au, Pt) [32, 62].

6.3 Arguments de symétrie, règles de Moriya

Comme on vient de le voir, le couplage spin-orbite est un ingrédient essentiel à l'existence d'interactions de Dzyaloshinsky-Moriya. Ceci est vrai pour les interactions anisotropes en général, et nous allons donner quelques arguments pour éclaircir ce point.

Les hamiltoniens que l'on considère sont des hamiltoniens effectifs sur les variables de spins pour des systèmes où les degrés de liberté orbitaux sont gelés. Le fait que l'énergie dépende des variables de spins n'est pas dû à l'interaction "directe" entre spins, mais résulte de la prise en compte des interactions coulombiennes entre électrons et du principe de Pauli. Le spin intervient uniquement pour spécifier complètement l'état quantique d'un électron, et c'est cet état (orbite + spin) qu'il faut considérer dans le principe de Pauli.

Considérons un système *sans* couplage spin-orbite. Dans ces conditions, l'information "utile" est de savoir si deux électrons sont ou pas dans le même état de spin (alignés ou anti-alignés). L'expression $\mathbf{S}_1 \cdot \mathbf{S}_2$ contient cette information et l'énergie du système dépendra donc uniquement de $\mathbf{S}_1 \cdot \mathbf{S}_2$.

L'argument précédent peut prendre une forme plus rigoureuse si on impose à l'hamiltonien d'être invariant par le groupe de symétrie du système considéré. En l'absence de couplage spin-orbite, les degrés de liberté de spins et orbitaux sont découplés, et seuls ces derniers sont couplés au réseau cristallographique via les interactions coulombiennes avec les électrons sur les autres sites. L'espace des spins est donc isotrope, et tout terme de l'hamiltonien doit être invariant par rotation autour de n'importe quel axe. Seuls des fonctions $f(\mathbf{S}_1 \cdot \mathbf{S}_2)$ répondent à cette exigence et donc la seule forme acceptable de l'hamiltonien est $H(\mathbf{S}_1 \cdot \mathbf{S}_2)$.

Dans le cas d'un système *avec* un couplage spin-orbite, les degrés de libertés de spins sont couplés aux degrés de libertés orbitaux qui à leur tour sont couplés au reste du réseau cristallographique via les interactions coulombiennes. L'espace des spins n'est alors plus isotrope et l'hamiltonien pourra dépendre de termes autres que $\mathbf{S}_1 \cdot \mathbf{S}_2$.

Ceci étant, l'hamiltonien doit quand même être invariant par les symétries du cristal, ce qui va imposer des contraintes sur les termes d'interactions possibles. Plus précisément, les seuls vecteurs \mathbf{D} qui peuvent exister dans un système sont ceux qui laissent invariante l'expression $\mathbf{D} \cdot (\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2)$ lorsqu'on applique les opérations de symétrie qui laissent le cristal invariant. Cette idée est à l'origine des règles de Moriya [80] que l'on rappelle ici. Soient A et B deux sites magnétiques et C le milieu du segment [AB] :

- Si C est un centre d'inversion alors $\mathbf{D} = \mathbf{0}$
- Si le plan perpendiculaire à [AB] passant par C est un plan miroir, alors \mathbf{D} appartient à ce plan

- Si un plan contenant A et B est un plan miroir, alors \mathbf{D} est perpendiculaire à ce plan
- S’il existe un axe de rotation d’ordre deux perpendiculaire à $[\text{AB}]$ en C, alors \mathbf{D} est perpendiculaire à cet axe
- Si (AB) est un axe de rotation d’ordre n , \mathbf{D} est parallèle à (AB)

Pour établir ces règles, il suffit de voir comment l’expression $\mathbf{D} \cdot (\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2)$ se transforme sous les opérations de symétrie du système puis de ne garder que les vecteurs \mathbf{D} pour lesquels cette expression est invariante. A titre d’exemple, on va établir la deuxième règle (elle sera utile sur le réseau kagomé) : soit (xy) un plan tel que le système est invariant par réflexion par rapport à ce plan. L’hamiltonien doit donc être invariant par l’opération de symétrie $S_z \rightarrow -S_z$. Seuls les vecteurs \mathbf{D} ayant une composante selon z satisfont cette condition puisqu’ils donnent lieu à un hamiltonien de la forme $D_z(S_x S_y - S_y S_x)$ qui ne fait pas intervenir les composantes S_z . Au contraire, les composantes D_x et D_y font intervenir S_z , donnant lieu à des termes non invariants (et donc inacceptables) par la symétrie par rapport au plan (xy) .

6.4 Ordres de grandeurs

Traditionnellement on classe les interactions de super-échange de l’hamiltonien 6.2 dans l’ordre d’importance suivant : $J\mathbf{S}_1 \cdot \mathbf{S}_2$, $\mathbf{D}_{12} \cdot (\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2)$ puis $\mathbf{S}_i \cdot \bar{\Gamma} \cdot \mathbf{S}_j$. Cet ordre vient du formalisme de Moriya où le couplage spin-orbite est pris en compte en perturbation dans un calcul microscopique pour dériver ces différentes interactions qui apparaissent respectivement à l’ordre 1, λ , et λ^2 . L’image classique est de dire que l’ordre magnétique est essentiellement antiferromagnétique imposé par l’échange isotrope J . On suppose que le réseau est bipartite, donc la structure magnétique est colinéaire, avec deux sous-réseaux de sens opposés. L’effet de l’interaction de Dzyaloshinsky-Moriya entre deux sites de cette structure est alors de les rendre légèrement non colinéaires. La somme des deux moments magnétiques n’est alors plus nulle, et ceci peut donner naissance à un ferromagnétisme faible au niveau du cristal entier, selon les orientations relatives des différents vecteurs \mathbf{D} . Le plan défini par les deux moments magnétiques est perpendiculaire au vecteur \mathbf{D} , mais la direction des moments dans ce plan est laissée libre en général. Il est de coutume alors de dire que le seul effet des couplages anisotropes symétriques est de fixer la direction des moments dans ce plan.

Shekhtman *et al* [99] ont remis en cause le classement par ordre de grandeur ci-dessus. Pour cela ils soulignent le fait que les ordres de grandeur des anisotropies effectives sur les moments magnétiques sont respectivement de l’ordre de $\frac{D^2}{J}$ et Γ pour les interactions de Dzyaloshinsky-Moriya et l’échange symétrique anisotrope. Comme $D \propto \lambda$ et $\Gamma \propto \lambda^2$, les anisotropies symétriques et anti-symétriques sont du même ordre ($\propto \lambda^2$).

Il est à noter que leur raisonnement tient au fait que le super-échange isotrope J impose une structure antiferromagnétique colinéaire, ce qui est mis en défaut dans certains systèmes, dont les réseaux kagomé et pyrochlore. A titre d’exemple, dans le cas où les interactions d’échange antiferromagnétiques favorisent une structure planaire où les spins sont à 120° les uns des autres, et avec un vecteur \mathbf{D} perpendiculaire

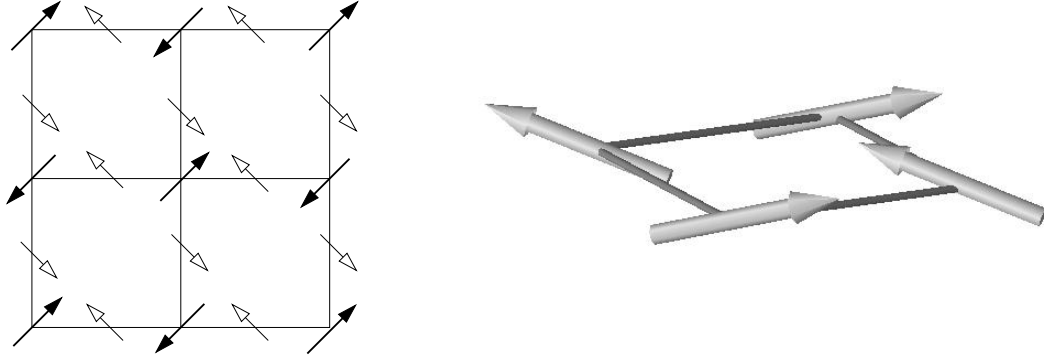


FIG. 6.2 – L'interaction Dzyaloshinsky-Moriya comme origine du ferromagnétisme faible (La_2CuO_4). Tous les spins (flèches pleines) ont une même composante selon la direction perpendiculaire au réseau. Avec ces vecteurs \mathbf{D} (flèches creuses), l'ordre des spins dans les produits vectoriels est celui dans lequel ils apparaissent en tournant dans le sens trigonométrique dans les carrés.

au plan de la structure, l'anisotropie due à l'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya sera de l'ordre de D et non $\frac{D^2}{J}$ comme dans une structure colinéaire. Ceci justifie qu'on ne prenne pas en compte par la suite les couplages symétriques anisotropes, dont les effets seront effectivement plus faibles que ceux de l'interaction Dzyaloshinsky-Moriya.

6.5 Types d'ordre induits par l'interaction Dzyaloshinsky-Moriya

6.5.1 Réseau bipartite

Le composé La_2CuO_4 a été l'objet de nombreuses études car il devient supraconducteur à haute température critique sous dopage. Du point de vue magnétique, les plans de CuO sont découplés, et l'interaction principale entre les spins $S = \frac{1}{2}$ des ions de cuivre est antiferromagnétique. L'interaction Dzyaloshinsky-Moriya a été invoquée dans ce composé pour expliquer le ferromagnétisme faible observé expérimentalement. Coffey *et al* [26] ont déterminé à partir des symétries du cristal les vecteurs \mathbf{D} possibles. Une de ces possibilités donne effectivement lieu à un ferromagnétisme faible, comme représenté sur la figure 6.2.

6.5.2 Réseaux frustrés

L'état fondamental du réseau triangulaire avec interactions antiferromagnétiques entre plus proches voisins est un état ordonné où les spins sont à 120° les uns des

autres. La maille magnétique contient trois sites, et l'ordre magnétique se propage selon un vecteur d'onde $\mathbf{q} = \mathbf{0}$ (toutes les mailles magnétiques sont identiques). Dans cet état, aucune chiralité n'est favorisée, un triangle sur deux étant dans chacune des deux chiralités possibles. Plumer *et al* [85] ont montré que grâce au couplage magnéto-électrique, l'application d'un champ électrique donnait lieu à une interaction entre spins qui a la même forme que l'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya. L'application du champ électrique selon différentes directions de l'espace donne lieu à différents couplages de Dzyaloshinsky-Moriya. Selon le cas considéré, il peut apparaître un ordre incommensurable, ou bien une chiralité peut être favorisée par rapport à l'autre.

Les effets de l'interaction Dzyaloshinsky-Moriya ont été étudiés sur d'autres systèmes magnétiques géométriquement frustrés où l'état fondamental est désordonné, par exemple le modèle $J_1 - J_2$ sur le réseau carré pour des spins $S = \frac{1}{2}$ [112]. Dans ce système, un état liquide de spin est prédit pour des couplages $0.4 \lesssim \frac{J_2}{J_1} \lesssim 0.6$. Voigt et Richter [112] ont montré que les interactions Dzyaloshinsky-Moriya vont décaler cette plage de couplages et également induire des corrélations anisotropes par opposition à l'état liquide de spins du modèle de Heisenberg pur. Selon l'interaction Dzyaloshinsky-Moriya considérée, il apparaît ou pas un faible moment ferromagnétique.

Dans tous les cas, l'ordre magnétique reste dominé par les interactions d'échange isotropes et les interactions de Dzyaloshinsky-Moriya se manifestent par de légers écarts à la structure obtenue avec des interactions isotropes. Dans ces systèmes, la frustration ne change pas notablement l'influence de l'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya sur la structure magnétique, et ses conséquences sont similaires à celles observées sur des réseaux non frustrés (voir 6.5.1).

6.5.3 Systèmes fortement frustrés

L'étude de l'interaction Dzyaloshinsky-Moriya sur les réseaux kagomé et pyrochlore est l'objet des chapitres 7 et 8. Nous verrons alors que son rôle (sous réserve qu'elle soit présente dans les composés) est primordial pour la détermination de la structure magnétique. La raison pour cela est simple : dans les réseaux frustrés tels que le réseau triangulaire, la frustration n'empêche pas l'ordre magnétique de s'établir (ordre de type Néel dans le cas du réseau triangulaire), et l'état fondamental n'est pas dégénéré. L'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya étant faible, elle ne peut que modifier légèrement cette structure, mais ne pourra pas en stabiliser d'autres défavorables du point de vue de l'échange isotrope. Dans les réseaux kagomé et pyrochlore, les interactions d'échange laissant un nombre macroscopique d'états fondamentaux dégénérés, il reste plus de degrés de libertés sur lesquels les interactions de Dzyaloshinsky-Moriya vont pouvoir agir, et éventuellement lever la dégénérescence.

6.6 Une symétrie cachée

Kaplan [54] a montré que les termes d'interactions entre deux sites dans un hamiltonien de Hubbard avec couplage spin-orbite peuvent s'écrire comme des interactions entre deux sites sans couplage spin-orbite grâce à une transformation de jauge "lo-

cale". Il a essentiellement considéré cette symétrie cachée et ses conséquences à une dimension, avec un hamiltonien à une seule bande.

Les mêmes arguments ont été repris par Shekhtman *et al* [99] dans le cadre du formalisme de Moriya. En prenant en compte l'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya et les interactions de super-échange symétrique anisotrope, l'hamiltonien magnétique s'écrit :

$$H(\mathbf{R}, \mathbf{R}') = \frac{4}{U}(b^2 \mathbf{S}(\mathbf{R}) \cdot \mathbf{S}(\mathbf{R}') + 2bC \hat{\mathbf{d}} \cdot (\mathbf{S}(\mathbf{R}) \times \mathbf{S}(\mathbf{R}')) + C^2 \{2[\hat{\mathbf{d}} \cdot \mathbf{S}(\mathbf{R})][\hat{\mathbf{d}} \cdot \mathbf{S}(\mathbf{R}')] - \mathbf{S}(\mathbf{R}) \cdot \mathbf{S}(\mathbf{R}')\}) \quad (6.3)$$

où U , b et C sont des paramètres microscopiques qui sont sans importance pour les considérations ci-dessous (on peut les relier à J , \mathbf{D} et $\overline{\overline{\Gamma}}$ par identification des expressions 6.2 et 6.3) et $\hat{\mathbf{d}}$ est le vecteur unitaire dans la direction de \mathbf{D} .

L'expression 6.3 peut s'écrire sous la forme d'un produit scalaire de deux spins $\mathbf{S}'(\mathbf{R})$ et $\mathbf{S}(\mathbf{R}')$ obtenus par rotation de $\mathbf{S}(\mathbf{R})$ et $\mathbf{S}(\mathbf{R}')$ autour de $\hat{\mathbf{d}}$ d'un angle respectivement θ et $-\theta$ avec $\tan \theta = \frac{C}{b}$:

$$H(\mathbf{R}, \mathbf{R}') = \left(J_{\mathbf{R}\mathbf{R}'} + \frac{|\mathbf{D}_{\mathbf{R}\mathbf{R}'}|^2}{4J_{\mathbf{R}\mathbf{R}'}} \right) \mathbf{S}'(\mathbf{R}) \cdot \mathbf{S}(\mathbf{R}')$$

Il est toujours possible d'effectuer cette rotation pour deux spins, mais un même site interagit avec plusieurs de ses voisins, et il peut alors y avoir incompatibilité entre les différentes rotations où un même spin est impliqué, auquel cas on ne retrouve pas de symétrie cachée. Dans le cas où le réseau cristallographique permet d'effectuer ces rotations sur tous les sites à la fois, on retrouve donc un système isotrope. Une condition nécessaire à l'apparition d'anisotropies dans le système à cause d'interactions anisotropes est donc que cette transformation sur le réseau entier soit impossible.

Shekhtman *et al* soulignent également que la direction de $\hat{\mathbf{d}}$ est un axe principale de la matrice $\overline{\overline{\Gamma}}$ comme on le voit sur l'expression 6.3 et que les deux autres valeurs propres associés aux deux autres axes principaux sont identiques. En conséquence, les interactions symétriques anisotropes ($\overline{\overline{\Gamma}}$) ne peuvent pas produire d'anisotropie dans le plan perpendiculaire à \mathbf{D} . Ceci remet en cause l'image "classique" (voir 6.4) que l'on a sur les rôles des différents termes anisotropes dans l'hamiltonien.

Dans les systèmes auxquels nous nous intéressons par la suite, les rotations mentionnées ci-dessus ne sont pas réalisables, et les interactions anisotropes induiront des anisotropies dans le système.

Chapitre 7

Interaction Dzyaloshinsky-Moriya dans le réseau kagomé

Sommaire

7.1	Introduction	53
7.2	Application des règles de Moriya	54
7.2.1	Réseau kagomé	54
7.2.2	Symétrie des jarosites	54
7.3	Dérivation microscopique	54
7.3.1	Hypothèses et principe du calcul	55
7.3.2	Kagomé simple	56
7.3.3	Composés jarosites	59
7.4	Champ moyen à $T = 0$	60
7.4.1	Trois sous-réseaux	60
7.5	Simulations Monté Carlo	65
7.5.1	La méthode	65
7.5.2	Détails sur les simulations	67
7.5.3	Température critique	69
7.6	Développement en ondes de spins	74
7.6.1	Principe du calcul	74
7.6.2	Trois types de bosons	75
7.6.3	Energie de l'état fondamental	77
7.6.4	Aimantation locale	78
7.6.5	Nature de l'ordre à longue distance	79
7.6.6	Cas des vecteurs \mathbf{D} inclinés	80
7.6.7	Conclusion du développement en ondes de spins	81
7.7	Dzyaloshinsky-Moriya dans certaines jarosites	81
7.7.1	Structure cristallographique	81
7.7.2	Structures magnétiques	82
7.7.3	Dzyaloshinsky-Moriya vs anisotropie sur site. Un arbitre : la RPE (?)	84
7.8	Conclusion	84

7.1 Introduction

Deux raisons principales ont motivé l'étude de l'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya sur le réseau kagomé. Du point de vue théorique, il est intéressant de se demander si l'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya peut déstabiliser ou pas l'état liquide de spins prédit sur le réseau kagomé avec des interactions antiferromagnétiques entre premiers voisins. En effet, c'est une interaction en général faible, mais qui pourrait avoir des conséquences assez importantes sur l'ordre magnétique, (voir §3.1.3).

Par ailleurs, l'étude de l'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya dans le réseau kagomé a été motivée par des résultats expérimentaux sur des composés de la famille des jarosites [116]. Dans ces composés, l'observation d'une transition de phase vers un état ordonné de type Néel indiquait clairement que la phase magnétique à basse température ne pouvait pas être décrite par les seules interactions antiferromagnétiques entre plus proches voisins. En revanche, les phases magnétiques à basse température de plusieurs jarosites dont certaines présentent un ferromagnétisme faible, peuvent être expliquées par des interactions de Dzyaloshinsky-Moriya.

L'étude de l'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya sur le réseau kagomé est construite de la façon suivante : on commence par quelques arguments de symétrie en appliquant les règles de Moriya au réseau kagomé et pour les composés jarosites (§7.2) puis on présente pour ces deux systèmes un calcul microscopique qui permet de dériver l'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya (§7.3). On passe ensuite à l'étude des propriétés magnétiques de ces systèmes à travers une approche en champ moyen (§7.4) et par simulations Monté Carlo (§7.5). Un développement en ondes de spins a permis de sonder l'effet des fluctuations quantiques dans ces systèmes et est présenté à la section 7.6. Enfin, la structure cristallographique des jarosites, les structures magnétiques qui y sont observées expérimentalement ainsi que le lien avec les interactions Dzyaloshinsky-Moriya sont discutés (§7.7).

Convention

Dans toute la suite du chapitre on prend la convention suivante pour l'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya : l'ordre des spins dans les produits vectoriels est celui dans lequel ils apparaissent en tournant dans le sens trigonométrique à l'intérieur des hexagones. Ceci ne restreint en rien les interactions considérées, mais revient à choisir pour une interaction donnée entre les deux expressions égales : $\mathbf{D}_{12}(\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2) = \mathbf{D}_{21}(\mathbf{S}_2 \times \mathbf{S}_1)$. Par ailleurs, une fois fixée l'interaction entre deux spins, toutes les interactions entre les autres paires de spins s'en déduisent par les symétries du réseau. En pratique il suffit de considérer l'axe de rotation d'ordre 3 passant par le centre des triangles et le centre d'inversion que constitue chacun des sites du réseau. Ces deux symétries permettent de "propager" le vecteur \mathbf{D} une fois que l'on a fixé une interaction entre deux spins. Il apparaît qu'avec la convention choisie pour l'ordre des produits vectoriels, la composante z des vecteurs \mathbf{D} est toujours la même. Dès lors il sera commode de parler du cas où $D_z > 0$ qui correspondra au cas où tous les vecteurs \mathbf{D} pointent vers le lecteur et du cas où $D_z < 0$.

7.2 Application des règles de Moriya

Les règles de Moriya (voir §6.3 et [80]) traduisent le fait que l'hamiltonien doit être invariant par les opérations de symétrie qui laissent le système invariant. Elles permettent selon les cas d'affirmer que l'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya est interdite par symétrie dans le système où de restreindre les vecteurs \mathbf{D} possibles à une région de l'espace (un plan, une droite...).

7.2.1 Réseau kagomé

Deux des règles de Moriya nous donnent des informations utiles sur \mathbf{D} :

- le milieu de deux sites n'est pas un centre d'inversion pour le réseau, donc il peut exister une interaction de Dzyaloshinsky-Moriya dans le réseau kagomé.
- le plan du réseau est un plan miroir donc le vecteur \mathbf{D} est perpendiculaire au plan du réseau.

Finalement, pour le réseau kagomé seuls deux cas d'interactions Dzyaloshinsky-Moriya peuvent se présenter qui correspondent aux deux sens possibles dans la direction perpendiculaire au plan du réseau.

7.2.2 Symétrie des jarosites

Dans des composés réels, les sites magnétiques forment des plans kagomé, mais il y a également d'autres atomes non magnétiques dans le cristal. Ces atomes peuvent être responsables du champ cristallin sur les sites magnétiques, et les interactions de super-échange entre sites magnétiques se font via ces sites non magnétiques. Il faut donc les prendre en compte lorsqu'on cherche à déterminer les symétries du système pour appliquer les règles de Moriya. Considérons de plus près le cas des jarosites dont la structure cristallographique est décrite au paragraphe 7.7.1 (page 81) : le plan du réseau kagomé n'est plus un plan de symétrie, mais le plan médiateur entre deux sites en est un. Les règles de Moriya imposent alors que \mathbf{D} appartienne à ce plan.

7.3 Dérivation microscopique

Dans cette section on fait explicitement le calcul de l'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya selon la méthode utilisée par Moriya [79, 80] avec un jeu de paramètres microscopiques (orbitales, champ cristallin...) qui respecte la symétrie du réseau kagomé. Ce calcul est également fait avec des paramètres microscopiques qui sont inspirés de la structure cristallographique des composés jarosites.

Deux raisons font que les résultats de ces calculs ne sont pas exploitables *quantitativement* : d'une part le calcul n'est faisable que sous certaines hypothèses (voir 7.3.1), et celles-ci ne sont en général pas toutes satisfaites, le point le plus délicat étant qu'on ne prend en compte qu'un seul électron par site. D'autre part, on contrôle assez peu les paramètres microscopiques dont dépend le vecteur \mathbf{D} , si bien qu'on ne peut en avoir qu'une estimation très approximative.

En fait l'intérêt principal de ce calcul est de montrer qu'il existe des paramètres microscopiques "relativement" proches de ceux des composés jarosites pour lesquels

l'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya n'est pas nulle. En effet, les règles de Moriya [80] ne faisaient que restreindre les vecteurs \mathbf{D} possibles à ceux autorisés par la symétrie du réseau, mais ne sont pas une preuve de l'existence d'une interaction de Dzyaloshinsky-Moriya.

Les hypothèses du calcul et son principe sont rappelés au paragraphe 7.3.1, et celui-ci est effectué pour le réseau kagomé au paragraphe 7.3.2 puis pour les composés jarosites au paragraphe 7.3.3.

7.3.1 Hypothèses et principe du calcul

On rappelle ici les hypothèses liées à l'utilisation du formalisme d'Anderson [3] pour le calcul d'interactions de super-échange, et de son extension par Moriya [79, 80] pour y inclure le couplage spin-orbite.

Formalisme d'Anderson pour le super-échange

L'interaction de super-échange est une interaction d'échange entre deux sites magnétiques via les états électroniques d'un troisième site non magnétique. Ceci est schématisé sur la figure 7.1.

Dans le formalisme d'Anderson, on suppose que les moments magnétiques sont localisés, et que chaque site magnétique porte un seul électron. Par ailleurs, pour simplifier le calcul, on suppose que le champ cristallin lève entièrement la dégénérescence orbitale de l'état fondamental de chaque ion magnétique, et il ne reste donc que la dégénérescence de spin de Kramers. Ce champ cristallin est dû à l'environnement diamagnétique, et les états électroniques que l'on va considérer prennent donc déjà en compte toutes les interactions des ions magnétiques avec leur environnement diamagnétique. L'essentiel du calcul consiste alors à prendre en compte les interactions entre sites voisins, ce qui résultera en un hamiltonien magnétique effectif de super-échange. Ces interactions donnent lieu à des termes de sauts entre sites $t_{ij}^{mm'}$ (voir hamiltonien 7.2) et sont supposés faibles devant l'énergie Coulombienne si l'on met deux électrons sur un même site (notée U par la suite), si bien que l'on peut les prendre en compte en perturbation. Ce mécanisme est représenté sur la figure 7.1. On y voit que les sauts entre sites à prendre en compte ne seront pas les mêmes selon l'orientation relative des deux spins à cause du principe de Pauli. Ceci implique que l'énergie va dépendre de l'orientation relative des spins, ce que traduit l'hamiltonien magnétique :

$$H = JS_1.S_2$$

Couplage spin-orbite

L'extension de Moriya consiste à prendre en compte le couplage spin-orbite pour construire les états sur chaque site. En pratique, celui-ci est supposé faible par rapport au champ cristallin et est pris en compte en perturbation.

Cette approche est pertinente pour des orbitales magnétiques localisées si le couplage spin-orbite est faible. Elle peut par exemple s'appliquer à des oxydes de métaux de transition, mais pas au magnétisme des terres rares où le couplage spin-orbite n'est

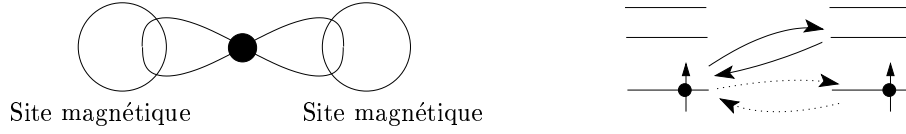


FIG. 7.1 – Interactions de super-échange : mécanisme microscopique et formalisme d’Anderson. Les états considérés sur le schéma de droite tiennent compte de l’environnement non magnétique des sites magnétiques (champ cristallin). Les sauts en pointillés ne seront autorisés que pour des spins anti-parallèles (en l’absence de couplage spin-orbite), d’où des énergies différentes pour des spins parallèles et anti-parallèles.

pas faible devant le champ cristallin, ni à des systèmes où le couplage magnétique est dû à des interactions RKKY.

7.3.2 Kagomé simple

On effectue ici le calcul pour un champ cristallin qui respecte la symétrie du réseau kagomé, en particulier, le plan du réseau reste un plan de symétrie.

Les fonctions d’ondes

On se place dans le cas où les orbitales magnétiques sont des orbitales d ($l=2$) et on négligera l’influence des autres orbitales, supposant que les niveaux d’énergie atomiques sont bien séparés. S’inspirant du cas des jarosites, on va introduire un champ cristallin à symétrie octaédrique “déformée” (voir ci-après “Etats sur un site”). Les fonctions propres de l’hamiltonien de champ cristallin sont donc les $e_g - t_{2g}$ avec lesquelles on effectuera le calcul. Par contre le couplage spin-orbite, $\lambda \mathbf{L} \cdot \mathbf{S}$, s’écrit plus facilement dans la base des Y_2^m , fonctions propres de \mathbf{L}^2 et L_z . Les deux familles de fonctions d’ondes et le passage de l’une à l’autre sont donnés en annexe B.1.1. On trouvera la matrice de couplage spin-orbite écrite dans ces deux bases dans l’annexe B.1.2.

Etats sur un site

On commence par obtenir les états sur les sites 1 de la figure (7.2), ceux des sites 2 et 3 seront obtenus par rotation de $\pm \frac{2\pi}{3}$ autour de l’axe Z .

On introduit le champ cristallin représenté sur la figure 7.3. Dans les composés tels que les jarosites (voir section 7.7.1), ce champ cristallin sur les sites magnétiques est dû aux atomes d’oxygènes formant un octaèdre autour des ions magnétiques. Pour un octaèdre parfait, les trois orbitales t_{2g} seraient dégénérées, ce qui n’est pas le cas dans le schéma de champ cristallin que l’on considère (figure 7.3). Ce choix simplifie les calculs et est justifié par le fait que les octaèdres d’oxygènes dans les jarosites sont légèrement déformés, ce qui peut lever la dégénérescence des orbitales

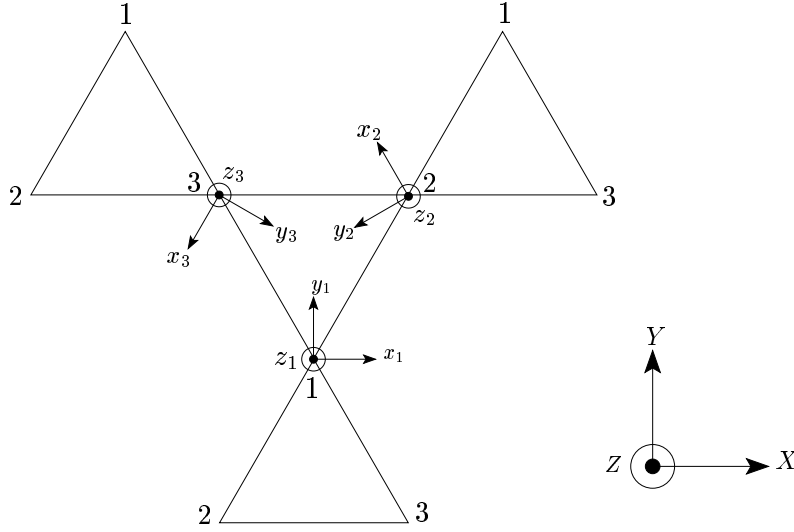


FIG. 7.2 – Trois types de sites sur le réseau kagomé. Les axes de champ cristallin des trois sites s'obtiennent par rotation de $\pm \frac{2\pi}{3}$ autour de l'axe Z.

t_{2g} . Ce champ cristallin est tout à fait arbitraire pour ce qui est des séparations des niveaux (Δ_1 et Δ_2) qui de toute façon resteront des paramètres dans l'expression finale des vecteurs \mathbf{D} que l'on va obtenir.

Les 2 orbitales e_g sont supposées ici infiniment hautes en énergie. On peut également considérer qu'elles sont infiniment basses en énergie, et occupées chacune par 2 électrons de spins opposés. Dans le cas où ce schéma de champ cristallin est celui créé par un octaèdre d'atomes d'oxygènes sur des électrons, les 2 orbitales e_g seront plus hautes que les t_{2g} . Cette hypothèse supplémentaire permet d'obtenir des expressions pour les vecteurs \mathbf{D} un peu plus simples mais n'est pas essentiel pour la conduite du calcul.

On commence par prendre en compte le couplage spin-orbite en perturbation au premier ordre. Si on note $|\psi_i^0\rangle$ les trois états non perturbés t_{2g} et $|\psi_i\rangle$ les états que l'on prendra comme point de départ pour introduire les termes de sauts entre sites dûs au recouvrement de leurs orbitales, on a :

$$|\psi_i\rangle = |\psi_i^0\rangle + \lambda \sum_{j \neq i} \frac{\langle \psi_j^0 | \mathbf{L} \cdot \mathbf{S} | \psi_i^0 \rangle}{E_i^0 - E_j^0} |\psi_j^0\rangle \quad (7.1)$$

Les $E_i^0 - E_j^0$ sont données par les séparations de champ cristallin supposées grandes devant le couplage spin-orbite.

Etats sur les sites 2 et 3

Les états sur les sites 2 et 3 sont obtenus par rotation de $\pm \frac{2\pi}{3}$ des états sur le site 1. Les matrices de rotation autour de l'axe Z pour les parties orbitales et de spin des fonctions d'ondes sont données à l'annexe B.1.3

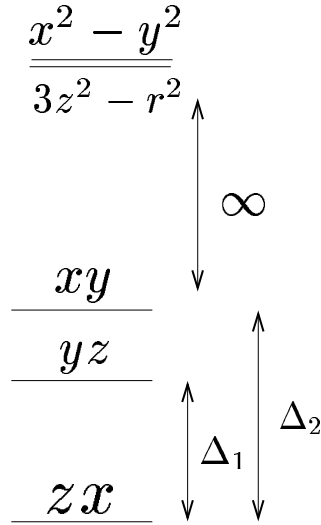


FIG. 7.3 – Niveaux de champ cristallin. Les axes x , y et z correspondants pour chaque site sont représentés sur la figure 7.2

Sauts entre sites

Les états obtenus jusqu'à présent (les $|\psi_i\rangle$ de l'équation 7.1) sont des états atomiques qui prennent en compte l'environnement diamagnétique (le champ cristallin) et le couplage spin-orbite. Un électron dans un tel état est sensible au champ électrique des noyaux des atomes sur les autres sites. Cette influence décroît rapidement avec la distance, et en pratique on se limite à la perturbation d'un état atomique par les noyaux des atomes plus proches voisins. Celle-ci est prise en compte en introduisant un terme de saut entre plus proches voisins :

$$H_s = \sum_{ijmm'\sigma} t_{ij}^{mm'} a_{im\sigma}^\dagger a_{jm'\sigma} \quad (7.2)$$

où i et j indiquent les différents sites, m et m' les orbitales et σ le spin. L'expression des $t_{ij}^{mm'}$ et la façon dont on les évalue en pratique sont détaillés à l'annexe B.1.4.

L'action de l'hamiltonien 7.2 est représentée sur la figure 7.1. On va prendre en compte en perturbation ces termes de sauts. Ceci est justifié par le fait que l'énergie coulombienne U d'un état "excité" (où deux électrons sont sur un même site) est grande devant les énergies des états non perturbés (un électron par site). On calcule les corrections à l'énergie au deuxième ordre des perturbations sur des états qui sont dégénérés, et selon la procédure habituelle, on obtient une "matrice des énergies". La dégénérescence des états de départ provient uniquement des degrés de liberté de spins (on a entièrement levé les dégénérescences orbitales avec le champ cristallin), et on va traduire cette matrice des énergie sous forme d'opérateurs de spins. On donne en annexe plus de détails sur la prise en compte du terme de sauts (voir B.1.4) ainsi que sur la correspondance entre la matrice des "énergies" et l'hamiltonien magnétique (voir B.1.5).

Tout calcul fait, on obtient pour l'hamiltonien magnétique :

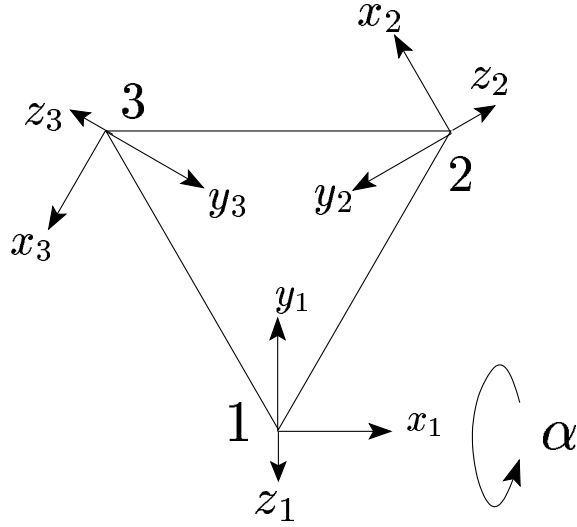


FIG. 7.4 – Les axes z des champs cristallins sont légèrement inclinés vers l'extérieur des triangles d'un angle α .

$$H = JS_1 \cdot S_2 + \mathbf{D} \cdot (\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2) \quad (7.3)$$

avec

$$\begin{aligned} J &= \frac{1}{4U} ((dd\pi) - 3(dd\delta))^2 \\ D_Z &= -\frac{\lambda\sqrt{3}}{2U\Delta_1} ((dd\pi) - 3(dd\delta)) ((dd\pi) + (dd\delta)) \\ D_X = D_Y &= 0 \end{aligned} \quad (7.4)$$

où $(dd\sigma)$, $(dd\pi)$ et $(dd\delta)$ sont une façon de paramétrer les sauts entre les orbitales (voir l'annexe B.1.4 et [103]). Ceci est le résultat pour toutes les paires de spins, à condition de toujours prendre les spins dans les produits vectoriels dans l'ordre où ils apparaissent en tournant dans le sens trigonométrique à l'intérieur des hexagones. Comme il se doit, ce vecteur \mathbf{D} est conforme aux règles de Moriya : il est perpendiculaire au plan du réseau.

7.3.3 Composés jarosites

Afin de mieux reproduire le champ cristallin dans les jarosites (voir section 7.7), on reprend le calcul précédent avec un champ cristallin dont l'axe z est légèrement incliné d'un angle α vers l'extérieur des triangles (ou vers l'intérieur, un triangle sur deux), comme on peut le voir sur la figure 7.4.

Le calcul est identique au cas où les axes de champ cristallin ne sont pas inclinés mis à part que les états de départ sur le site 1 doivent être tournés d'un angle α autour de l'axe x avant de poursuivre le calcul de façon identique. En effet, ce sont

cette fois les $e_g - t_{2g}$ relatifs aux axes inclinés qui sont états propres de l'hamiltonien de champ cristallin. Les calculs sont plus lourds à mener en pratique, mais cette rotation n'ajoute aucune difficulté de principe. La matrice de rotation autour de l'axe x est donnée dans l'annexe B.1.6 :

Tout calcul fait, on retrouve bien entendu la forme 7.3 de l'hamiltonien avec :

$$\begin{aligned}
J &= \frac{1}{64U} f_1^2(\alpha) \\
D_{21}^X &= -\frac{3\lambda}{256U} \sin(2\alpha) f_1(\alpha) \left(\frac{f_2(\alpha)}{\Delta_1} + \frac{9}{\Delta_2} ((dd\delta) - (dd\sigma)) \right) \\
D_{21}^Y &= -\frac{D_X}{\sqrt{3}} \\
D_{21}^Z &= -\frac{\lambda\sqrt{3} \cos^2 \alpha}{32U\Delta_1} f_1(\alpha) f_2(\alpha)
\end{aligned}$$

où

$$\begin{aligned}
f_1(\alpha) &= 4(dd\pi) - 9(dd\sigma) \sin^2 \alpha - 3(dd\delta)(1 + 3 \cos^2 \alpha) \\
f_2(\alpha) &= 4(dd\pi)(3 \cos^2 \alpha - 2) - 9(dd\sigma) \sin^2 \alpha + (dd\delta)(1 + 3 \cos^2 \alpha)
\end{aligned}$$

Ceci est le résultat pour les sites 1 et 2 : $\mathbf{D}_{21} \cdot (\mathbf{S}_2 \times \mathbf{S}_1)$. On garde la même convention pour l'écriture de l'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya : l'ordre des spins est celui dans lequel ils apparaissent en tournant dans le sens trigonométrique à l'intérieur des hexagones. Cette fois le vecteur \mathbf{D} n'est plus le même pour toutes les interactions. Appliquant les idées de la section 7.1, on trouve que les trois vecteurs \mathbf{D} d'un même triangle se déduisent les uns des autres par des rotations de $\pm \frac{2\pi}{3}$ autour de l'axe Z . Ils sont tous dans les plans médiateurs de la liaison concernée, et par exemple tous inclinés vers le centre du triangle. Sur les trois triangles voisins, les vecteurs \mathbf{D} seront alors tous inclinés vers l'extérieur du triangle mais la composante en Z reste inchangée. Ces règles de "propagation" du vecteur \mathbf{D} se déduisent de la symétrie du réseau, et ont été vérifiées dans le calcul microscopique entre différentes paires de sites. Une autre évidence est que les vecteurs \mathbf{D} trouvés ici vérifient bien les règles de Moriya : ils sont dans le plan médiateur de chaque liaison.

7.4 Champ moyen à $T = 0$

Un traitement en champ moyen de l'hamiltonien va nous permettre de mieux caractériser le rôle de chacune des composantes des vecteurs \mathbf{D} . On s'intéresse essentiellement à la structure de l'état fondamental obtenu.

7.4.1 Trois sous-réseaux

Comme on le verra plus loin, la maille magnétique de l'état fondamental obtenu par simulations Monté Carlo contient trois sites, les mailles magnétiques et cristallographiques sont identiques. Il est donc naturel d'introduire trois sous-réseaux pour

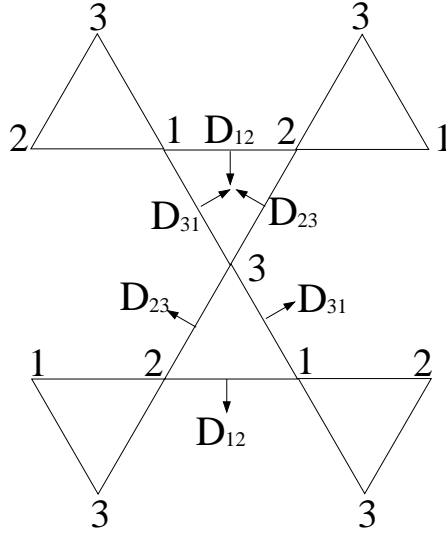


FIG. 7.5 – Trois sous-réseaux considérés pour le calcul en champ moyen, et les vecteurs \mathbf{D} correspondants. Tous les vecteurs \mathbf{D} ont la même composante suivant l’axe perpendiculaire à la figure.

la description en champ moyen (voir figure 7.5). On a donc au total 6 variables, chaque moment magnétique étant décrit par deux angles, puisque sa norme est fixe. Le détail des calculs est donné dans l’annexe B.2.

Sans échange.

Afin de mieux cerner le rôle que jouent les interactions Dzyaloshinsky-Moriya, on commence par regarder les résultats sans interactions d’échange antiferromagnétiques.

\mathbf{D} perpendiculaire au plan :

l’état fondamental du système est alors un état coplanaire, où tous les spins sont dans le plan kagomé. Selon le sens de \mathbf{D} , l’une ou l’autre des deux chiralités possibles est sélectionnée (voir figure 7.6). Il reste un degré de liberté de rotation globale de tous les spins dans le plan.

\mathbf{D} dans le plan kagomé :

dans ce cas, tous les degrés de liberté sont supprimés et il subsiste deux états fondamentaux dégénérés, images l’un de l’autre par renversement de tous les spins. Les spins forment un angle de $\frac{\pi}{4}$ par rapport au plan (cet angle sera réduit par l’échange isotrope J et la composante hors du plan de \mathbf{D}), et leurs projections sur le plan sont à 120° les unes des autres, selon les médiatrices des triangles. Ils ont tous la même composante dans la direction perpendiculaire au plan, donnant lieu à un ferromagnétisme faible.

La structure magnétique est représentée sur la figure 7.7. On remarque qu’une seule chiralité est sélectionnée, celle qui apparaissait avec $D_z > 0$ (voir figure 7.6).

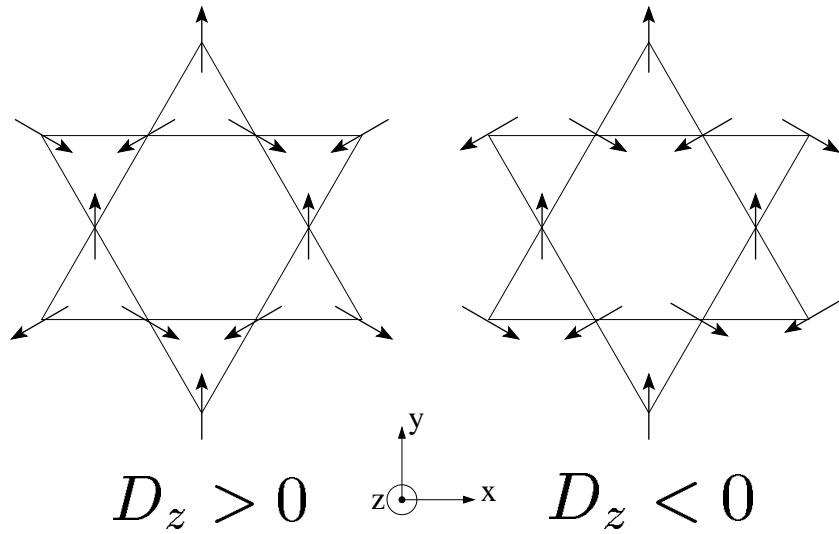


FIG. 7.6 – Cas où \mathbf{D} est perpendiculaire au plan kagomé. La structure magnétique est coplanaire : les spins sont dans le plan kagomé, et le sens de \mathbf{D} sélectionne la chiralité. Il reste un degré de liberté de rotation globale dans le plan kagomé.

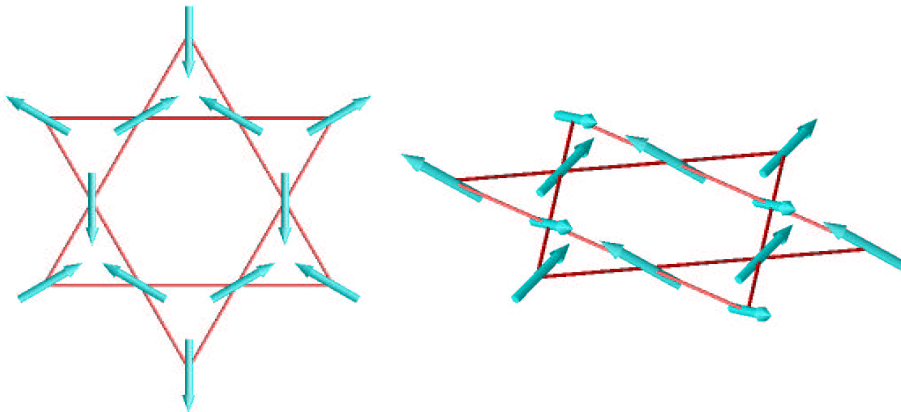


FIG. 7.7 – Structure magnétique pour le cas où \mathbf{D} est dans le plan kagomé. Tous les spins ont la même composante selon la direction perpendiculaire au plan donnant lieu à un ferromagnétisme faible dans cette direction. Il ne reste que l'invariance globale par renversement de tous les spins.

D quelconque dans le plan médiateur entre deux spins :

si la composante de \mathbf{D} perpendiculaire au plan kagomé sélectionne la même chiralité que celle qui apparaît pour \mathbf{D} dans le plan kagomé, alors la structure magnétique est semblable au cas où il n'y avait que la composante dans le plan de \mathbf{D} , mais avec une réduction de l'angle entre les moments magnétiques et le plan kagomé, et donc du moment ferromagnétique résultant. Ceci correspond au cas où $D_z > 0$ (voir figure 7.6).

Lorsque $D_z < 0$, la situation est un peu plus compliquée. La chiralité que tend à sélectionner D_z , la composante perpendiculaire de \mathbf{D} , n'est pas la même que celle qui apparaît dans la phase ferromagnétique faible due à D_p , la composante dans le plan de \mathbf{D} . Afin d'éclaircir la situation, imaginons que l'on parte d'un vecteur \mathbf{D} (et de la phase magnétique associée) dans le plan kagomé, et l'on s'intéresse à l'effet d'une composante $D_z < 0$. Tant que D_z est assez faible, la structure magnétique reste essentiellement la même que pour un vecteur \mathbf{D} strictement dans le plan, simplement l'angle entre les spins et le plan kagomé augmente légèrement. Il existe une valeur critique de $\frac{D_z}{D_p}$ au-delà de laquelle les spins vont se mettre strictement dans le plan, avec la chiralité favorisée par $D_z < 0$ (voir figure 7.6).

On constate que les structures magnétiques pour \mathbf{D} et $-\mathbf{D}$ ne sont pas simplement reliées l'une à l'autre comme elles l'étaient dans le cas où \mathbf{D} est perpendiculaire au plan kagomé. Ici, les deux structures ne peuvent pas se déduire facilement l'une de l'autre. Ce fait est également visible sur l'hamiltonien : lorsqu'on remplace \mathbf{D} par $-\mathbf{D}$, il n'y a pas de transformation simple des \mathbf{S}_i qui laisserait l'hamiltonien invariant. Ceci est relié au fait que la structure magnétique n'est pas bipartite, étant donné qu'on aurait alors pu échanger les deux sous-réseaux, donc $\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j$ en $-\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j$ et laisser l'hamiltonien inchangé. En fait, $D_p \rightarrow -D_p$ est une symétrie triviale : changer simultanément $S_z \rightarrow -S_z$ laisse l'hamiltonien invariant. La partie non triviale de la transformation $\mathbf{D} \rightarrow -\mathbf{D}$ vient de la composante D_z . Elle est toutefois triviale en l'absence d'une composante dans le plan D_p .

Avec de l'échange antiferromagnétique :

l'effet principal de l'échange antiferromagnétique est de réduire, mais pas d'annuler l'angle entre les spins et le plan dans les cas où il y avait un faible moment magnétique perpendiculaire au plan.

Diagramme de phase en fonction de D_z , D_p et J

On appelle D_z , D_p et J respectivement les composantes perpendiculaires et dans le plan kagomé de \mathbf{D} et l'échange isotrope. On constate en faisant le traitement en champ moyen précédent que les trois angles formés par les trois spins de la maille magnétique avec le plan kagomé sont toujours égaux. De plus, les projections des moments sur le plan kagomé sont toujours à 120° les unes des autres. On peut donc décrire les différentes structures obtenues à l'aide de trois données : la chiralité, l'angle η entre les spins et le plan kagomé et un angle φ qui fixe la projection d'un des spins sur le plan kagomé. Plus précisément, φ est l'angle entre les projections des moments magnétiques sur le plan kagomé et une position arbitraire, comme représenté sur la figure 7.8. Dans ces conditions, les coordonnées des trois spins de la maille magnétique s'écrivent :

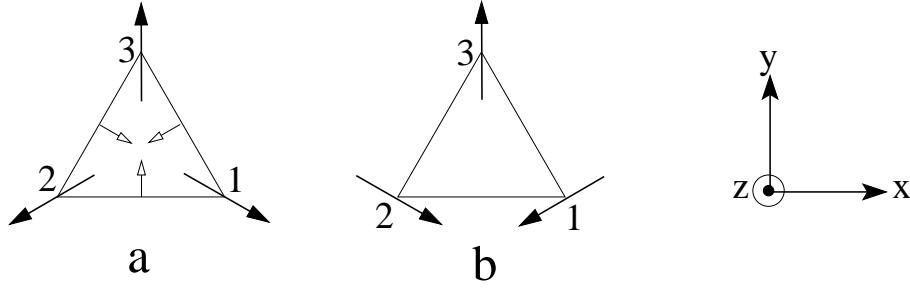


FIG. 7.8 – Les 2 chiralités possibles. Dans les structures considérées, les spins forment un angle η avec le plan kagomé, et leurs projections sur le plan sont tournées d'un angle φ comme représenté sur la figure. Les vecteurs \mathbf{D} sont représentés sur la figure de gauche. Ils ont également une composante selon l'axe perpendiculaire au plan.

$$\begin{array}{lll}
 S_1^x = \cos \eta \sin \left(\varphi + \frac{2\pi}{3} \right) & S_2^x = \cos \eta \sin \left(\varphi - \frac{2\pi}{3} \right) & S_3^x = \cos \eta \sin (\varphi) \\
 S_1^y = \cos \eta \cos \left(\varphi + \frac{2\pi}{3} \right) & S_2^y = \cos \eta \cos \left(\varphi - \frac{2\pi}{3} \right) & S_3^y = \cos \eta \cos (\varphi) \\
 S_1^z = \sin \eta & S_2^z = \sin \eta & S_3^z = \sin \eta
 \end{array}$$

pour la chiralité (a) (voir figure 7.8) et il faut inverser les spins 1 et 2 pour la chiralité (b).

Le but est de savoir pour un jeu de paramètres D_z , D_p et J quel est l'état fondamental. Pour cela on écrit l'énergie (par spin) pour chacune des chiralités de la figure 7.8 :

$$\frac{E_a}{N} = \frac{J}{2} (1 - 3 \cos (2\eta)) - \sqrt{3} D_z \cos^2 \eta - \sqrt{3} D_p \sin (2\eta) \cos \varphi \quad (7.5)$$

$$\frac{E_b}{N} = \frac{J}{2} (1 - 3 \cos (2\eta)) + \sqrt{3} D_z \cos^2 \eta \quad (7.6)$$

Pour chaque jeu de paramètres D_z , D_p et J , on minimise ces deux expressions par rapport à η et φ puis on compare les deux minima pour savoir quel chiralité est sélectionnée. Le résultat de cette opération est représenté sur la figure 7.9.

Quelques remarques : comme on le voit sur les expressions 7.5 et 7.6 des énergies pour les deux chiralités, la composante D_z a tendance à sélectionner la chiralité du fait du changement de signe devant ce terme entre les deux expressions. Si la chiralité b est sélectionnée, alors la structure magnétique sera coplanaire, car $\eta = 0$ minimise E_b . Dans le cas des structures coplanaires ($\eta = 0$) les énergies ne dépendent plus de φ , il y aura donc un degré de liberté de rotation globale dans le plan. On voit également sur les expressions de l'énergie que la composante D_p favorise la chiralité a et un ferromagnétique faible perpendiculaire au plan ($\eta \neq 0$). Si $D_p \neq 0$ et que la chiralité a avec du ferromagnétisme faible est sélectionnée, alors les spins forment un angle η avec le plan kagomé tel que :

$$\tan(2\eta) = \frac{2D_p}{\sqrt{3}J + D_z}$$

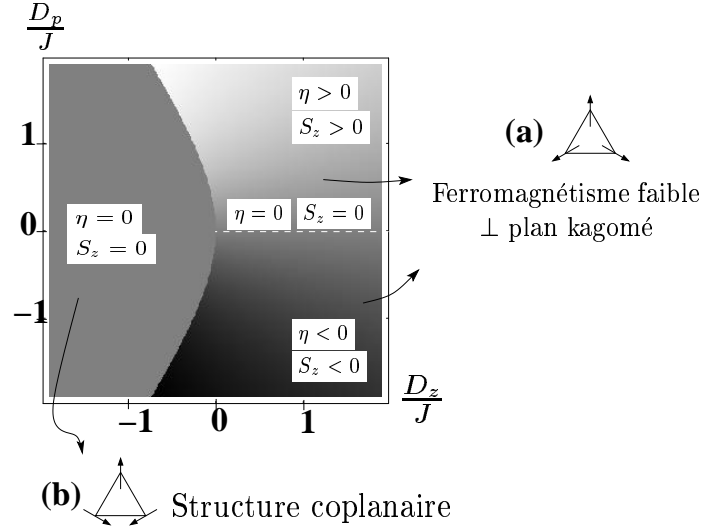


FIG. 7.9 – Etat fondamental selon les paramètres J , D_p et D_z , respectivement l'échange isotrope et les composantes dans le plan et hors du plan des vecteurs \mathbf{D} . Le degré de gris représente l'angle η dont les spins sortent du plan. $\eta = 0$ pour la chiralité b. Il reste un degré de liberté de rotation globale pour la chiralité b et sur la ligne $D_p=0$.

C'est donc bien la composante dans le plan de \mathbf{D} qui favorise le ferromagnétisme perpendiculaire au plan, tandis que J et D_z induisent des structures coplanaires.

Critique du champ moyen : Le traitement en champ moyen est connu pour mal prendre en compte les fluctuations (thermiques et quantiques). Comme l'importance de celles-ci décroît lorsqu'on augmente la dimension de l'espace, on a coutume de dire que les prédictions du champ moyen sont qualitativement fausses à une dimension, qualitativement justes mais quantitativement fausses à deux dimensions, et qu'elles sont plus fiables à trois dimensions. Il semble donc raisonnable de penser que l'état fondamental trouvé par le traitement en champ moyen est correct, ce qui sera confirmé par les simulations Monté Carlo.

On observe une transition de phase artificielle dans l'approximation du champ moyen. En effet, on s'est restreint à des solutions $\mathbf{q} = \mathbf{0}$, et dans ces conditions, une transition de phase est observée même sans interaction Dzyaloshinsky-Moriya, ce qui est le résultat de la contrainte imposée ($\mathbf{q} = \mathbf{0}$). Le comportement du système à température finie sera examiné plus loin à l'aide de simulations Monté Carlo.

L'effet des fluctuations quantiques sera examiné plus loin (voir 7.6).

7.5 Simulations Monté Carlo

7.5.1 La méthode

Les méthodes de Monté Carlo ont des applications extrêmement variées, en physique et dans d'autres domaines. On se contente ici d'en donner le principe puis

quelques détails sur les simulations dont les résultats sont présentés par la suite. Binder et Heermann donnent une présentation détaillée de la méthode de Monté Carlo pour des systèmes classiques [8]. Ils traitent plus particulièrement les problèmes de marche aléatoire et de systèmes de spins. Une introduction plus simple est donnée par Krauth [58].

Intégration Monté Carlo

La méthode de Monté Carlo est une façon d'évaluer numériquement des intégrales, où plus précisément le rapport entre deux intégrales.

Soit \mathbf{x} une variable aléatoire dans un espace de dimension quelconque, $p(\mathbf{x})$ une probabilité de présence, et $f(\mathbf{x})$ une fonction dont on veut connaître la moyenne définie par :

$$\langle f(\mathbf{x}) \rangle = \frac{\int f(\mathbf{x})p(\mathbf{x})d\mathbf{x}}{\int p(\mathbf{x})d\mathbf{x}} \quad (7.7)$$

où les intégrations se font sur tout le domaine de variation de la variable \mathbf{x} . On a supposé la probabilité de présence non normalisée, comme ce sera le cas par la suite. Pour évaluer $\langle f(\mathbf{x}) \rangle$ par une méthode Monté Carlo, on tire au hasard N points \mathbf{x}_i , et l'on a :

$$\langle f(\mathbf{x}) \rangle = \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{\sum_{i=1}^N f(\mathbf{x}_i)p(\mathbf{x}_i)}{\sum_{i=1}^N p(\mathbf{x}_i)} \quad (7.8)$$

Application à la physique statistique

On ne s'intéresse ici qu'à des systèmes classiques, dont le comportement est décrit par une statistique de Maxwell-Boltzmann. L'état d'un tel système est décrit par un point de son espace des phases, \mathbf{x} . Soit $E(\mathbf{x})$ son énergie dans cet état. A l'équilibre thermodynamique, la probabilité de présence dans cet état est $\propto \exp\left(-\frac{E(\mathbf{x})}{k_B T}\right)$ et la valeur moyenne d'une grandeur physique $f(\mathbf{x})$ à la température T est donnée par l'expression (7.7) avec $p(\mathbf{x}) = \exp\left(-\frac{E(\mathbf{x})}{k_B T}\right)$.

Echantillonnage direct vs processus markovien

D'après ce qui vient d'être dit ci-dessus, pour obtenir les propriétés thermodynamiques d'un système physique, il suffit de prendre au hasard un grand nombre de points dans son espace des phases, correspondants à différents états possibles du système et de calculer les valeurs moyennes selon la formule (7.8). En pratique, cette procédure n'est applicable qu'à des systèmes de taille très réduite pour lesquels l'espace des phases est petit. En effet, pour un système de grande taille, seule une petite partie de l'espace des phases va donner une contribution significative à la moyenne (7.7) (voir par exemple (III, §I.C.1.b) de la réf. [29]). Il en résulte qu'un tirage entièrement aléatoire des points dans la formule (7.8) est une procédure qui fait converger

très lentement cette expression vers les valeurs moyennes recherchées. On parle dans ce cas d'échantillonnage direct.

Heureusement, d'autres types d'échantillonnages plus efficaces existent, ils sont souvent basés sur les processus markoviens : on explore l'espace des phases en partant d'un état donné du système et en modifiant partiellement et de façon aléatoire cet état. Ainsi, à partir d'un état, seul son "voisinage" est accessible au tirage suivant, ce qui accélère la convergence, car les états contribuant significativement à la moyenne (7.7) sont souvent "voisins" dans l'espace des phases. Un processus markovien seul mènerait après un grand nombre d'itérations à une probabilité de présence homogène dans l'espace des phases. On met alors en place une procédure de réjection qui accepte ou pas le nouvel état obtenu par le processus markovien, afin que la probabilité de présence dans l'espace des phases respecte le bilan détaillé et converge vers la distribution de Maxwell-Boltzmann. L'algorithme de Métropolis est un exemple d'une telle procédure.

7.5.2 Détails sur les simulations

Algorithme de Métropolis

Nous avons utilisé l'algorithme de Métropolis [58, 8]. En pratique ceci revient à chaque itération à choisir un spin au hasard puis à partir de sa position actuelle, à le faire varier d'un angle quelconque dans une direction quelconque. En comparant les énergies avant et après ce changement, on accepte toujours le nouvel état si son énergie est plus faible, et on l'accepte avec une probabilité $\exp\left(\frac{E_{\text{avant}} - E_{\text{après}}}{k_B T}\right)$ si son énergie est plus élevée que celle de l'état initial. On appelle *taux d'acceptation* le rapport entre le nombre d'états acceptés sur le nombre d'états testés. Lorsqu'un état est rejeté, le système reste dans l'état initial qui est recompté une nouvelle fois dans les expressions de type 7.8. On peut vérifier que la suite d'états ainsi obtenus convergent bien vers la distribution de Maxwell-Boltzmann et vérifient le bilan détaillé [58]. Cette suite d'états nous permet d'évaluer les expressions de type 7.8.

Algorithme amélioré pour un taux d'acceptation \sim constant

En pratique les angles dont on fait varier les spins sont limités en amplitude afin de garder un taux d'acceptation raisonnable. La raison a déjà été mentionnée ci-dessus : les états qui contribuent significativement aux expressions de type 7.7 sont voisins dans l'espace des phases, or, plus on écarte un spin de sa position initiale plus on s'éloigne de l'état initial du système. Tant que la température est grande devant les énergies caractéristiques du système, le taux d'acceptation restera élevé. En effet, si le nouvel état est d'énergie plus basse que l'état initial, il sera toujours accepté, et s'il est d'énergie plus élevée, il le sera avec une forte probabilité car $\exp\left(\frac{E_{\text{avant}} - E_{\text{après}}}{k_B T}\right)$ est proche de 1 à haute température. Ceci reflète aussi le comportement physique du système qui à haute température parcourt tout son espace des phases grâce à l'agitation thermique importante. Il en va autrement à basse température : le système n'occupe plus que certaines parties de son espace des phases voisines des minima d'énergie. Partant d'un de ces états, faire varier d'un angle trop grand un spin va conduire le système vers un état trop "loin" de son état de départ. Ce nouvel état sera

de trop haute énergie pour que la probabilité de l'accepter, $\exp\left(\frac{E_{\text{avant}} - E_{\text{après}}}{k_B T}\right)$ ait une valeur significative et l'état sera systématiquement rejeté. Afin de remédier à cela nous avons limité en amplitude les angles dont peuvent tourner les spins à chaque itération. Ceci n'est pas une contrainte pour le système, car les états accessibles sont les mêmes qu'avant, mais il lui faudra plusieurs itérations pour y arriver. En pratique ceci se traduit par des temps de calculs plus longs, mais le taux d'acceptation étant supérieur, c'est une méthode plus efficace pour explorer l'espace des phases, et finalement, aux basses températures, la convergence est plus rapide que si l'on ne restreint pas les angles solides dont peuvent tourner les spins.

Nos simulations partant toujours des hautes températures pour aller vers les plus basses, on commençait avec un angle de rotation des spins maximal puis celui-ci était réduit au fur et à mesure que la température baissait afin de garder un taux d'acceptation proche de 40 %.

L'état juste avant et celui juste après un pas Monté Carlo ne diffèrent que peu l'un de l'autre, ils ne sont pas statistiquement indépendants. Le calcul des grandeurs physiques sur ces états consomme du temps (CPU), alors que les sommes (7.8) convergent d'autant plus vite que les états pris en compte sont statistiquement indépendants. Il est donc intéressant en pratique de ne pas prendre en compte tous les états obtenus après chaque variation de la position d'un spin, mais seulement une fois sur 2, 3, ... afin que les états pris en compte pour le calcul des grandeurs physiques soient moins corrélés. Nous n'avons pas particulièrement optimisé cet aspect de la procédure, mais nous sommes contenté de prendre en compte (selon les simulations) un état sur $2N$ à $10N$ où N est le nombre de spins dans le réseau.

Convergence, erreurs et effets de taille finie

On appelle "nombre de *pas* Monté Carlo" le nombre de fois où l'on tire un nouvel état, indépendamment de son acceptation, rapporté au nombre de spins dans le système. Lors du calcul des grandeurs physiques, la convergence des expressions 7.8 sera d'autant plus avancée que le nombre de pas Monté Carlo est grand (à taux d'acceptation fixé). Le fait de ramener cette quantité au nombre de spins du réseau simulé lui donne un sens en terme de convergence du calcul, indépendamment de la taille du réseau. Par exemple, il faudra le même nombre de pas Monté Carlo sur deux réseaux de tailles différentes pour calculer une même grandeur physique avec la même précision dans les deux cas. Bien entendu ceci représente un plus gros effort (CPU) dans le cas d'un grand système pour un nombre de pas Monté Carlo fixé. Les effets de taille finie seront différents dans les deux cas, on considère ici uniquement la précision en terme de convergence des grandeurs 7.8 à la limite $N \rightarrow \infty$.

On a étudié les effets de taille finie sur la température critique T_c (voir 7.5.3 pour la définition de la température critique). On a représenté sur la figure 7.10 la température critique en fonction de la taille du système étudié. L représente la taille linéaire du système. Il y a L^2 mailles élémentaires (triangles) dans un système de taille L , soit un nombre total de spins : $N = 3L^2$. Il y a plusieurs sources d'erreurs qui se superposent lors de l'évaluation de la température critique :

- Les effets de taille finie qui peuvent décaler la valeur de T_c de manière systématique et d'autant plus que le système est petit.

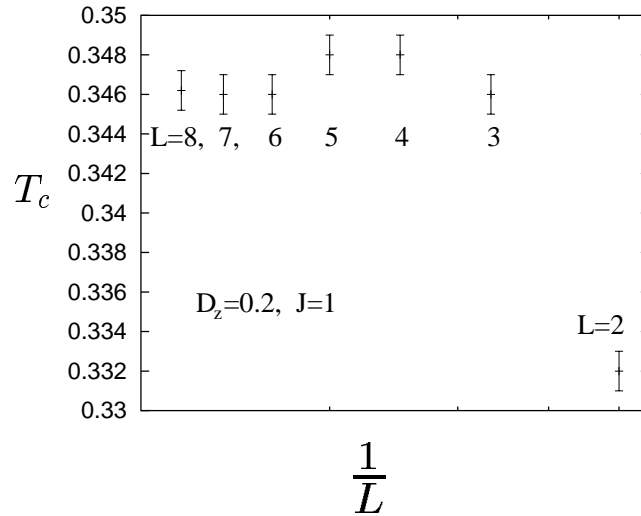


FIG. 7.10 – Effets de taille finie sur la température critique. Les barres d’erreurs représentent l’incertitude sur la lecture du maximum de la chaleur spécifique. Les écarts de T_c d’une taille à l’autre sont un mélange d’effets de taille finie et de problèmes de convergence particulièrement difficiles autour de T_c (fluctuations critiques). En prenant tout en compte, l’erreur sur T_c n’excède pas 2 ou 3 % en valeur relative, sauf pour les très petites tailles. La suite des études est faite avec $L = 6$.

- L’incertitude sur la détermination du maximum de la chaleur spécifique qui nous sert à définir T_c .
- La convergence des calculs, particulièrement difficile à obtenir autour de T_c (voir 7.5.3).

Comme on ne s’intéresse par la suite qu’aux valeurs de T_c (et pas aux exposants critiques par exemple), on n’a pas cherché à séparer la dépendance en taille de T_c des autres sources d’erreur. Cette étude en taille nous a permis d’estimer à quelques % l’erreur commise sur l’évaluation de T_c ¹.

7.5.3 Température critique

Définition

En toute rigueur, les transitions de phases ne sont clairement définies que dans des systèmes infinis. Tout système macroscopique est une excellente approximation d’un système infini étant donné que son nombre de constituants est de l’ordre du nombre d’Avogadro. Dans les simulations numériques, le nombre de degrés de liberté reste toutefois très inférieur à une situation réaliste, et la définition d’une transition de phase et d’une température critique sont plus délicates.

¹Depuis que ces résultats ont été obtenus, d’autres simulations sur des systèmes de tailles plus grandes (jusque $L=12$) ont été faites. Elles ont permis de confirmer cette marge d’erreur. Par ailleurs, l’écart entre le maximum de la chaleur spécifique et celui de la susceptibilité est aussi de cet ordre de grandeur.

Il existe plusieurs façons d'évaluer la température critique à l'aide de simulations Monté Carlo. Une des méthodes les plus précises consiste à déduire la température critique à partir de l'évolution en fonction de la température du cumulatif de Binder ($1 - \frac{\langle m \rangle_L^4}{3\langle m^2 \rangle_L^2}$, où m est le paramètre d'ordre) pour des systèmes de différentes tailles [8]. Cette méthode nécessite donc des simulations pour différentes tailles de systèmes et à plusieurs températures. Notre but étant d'étudier l'évolution de la température critique en fonction des différentes interactions possibles dans le système, nous avons préféré une méthode moins précise mais plus rapide à mettre en oeuvre : la température critique correspond à la température pour laquelle la chaleur spécifique est maximale.

Mis à part la définition de la température critique, un autre problème se pose lors de son évaluation par simulations Monté Carlo. Autour de la température critique, les fluctuations sont très importantes, et le système visite un grand nombre d'états qui diffèrent fortement les uns des autres (au point critique même, il existe des fluctuations de toutes longueurs d'ondes). Notre méthode pour échantillonner l'espace des phases (voir 7.5.2) est particulièrement peu efficace dans cette situation.

Ordre de la transition

Il est possible de déterminer l'ordre de la transition de phase en simulations Monté Carlo en étudiant l'évolution de la quantité

$$V_L = 1 - \frac{\langle E^4 \rangle_L}{3\langle E^2 \rangle_L^2}$$

en fonction de la taille L du système. On peut établir la propriété suivante [22] :

$$\lim_{L \rightarrow \infty} V_L^{min} = \frac{2}{3} \quad \text{pour} \quad T \neq T_c$$

où V_L^{min} est le minimum de V_L . Ceci reste vrai à $T = T_c$ uniquement pour des transitions du second ordre. Pour des transitions du premier ordre, l'écart entre la valeur vers laquelle converge le minimum de V_L et $\frac{2}{3}$ est relié à la chaleur latente associée à la transition. Cette différence de comportement de V_L selon l'ordre de la transition est intimement lié aux différences dans les distributions de probabilité de l'énergie au voisinage de T_c (voir figure 7.11).

Dans notre cas, on a représenté sur la figure 7.12 l'évolution de V_L en fonction de la température pour différentes tailles de systèmes. On voit que $\lim_{L \rightarrow \infty} V_L^{min} = \frac{2}{3}$ et donc la transition est du second ordre, ou en tout cas très faiblement du premier ordre.

Une autre façon de sonder l'ordre de la transition est d'étudier l'évolution du maximum de la chaleur spécifique en fonction de la taille L du système. Dans le cas d'une transition du premier ordre, celui-ci va avoir un comportement en L^d où d est la dimension du système ($d=2$ dans notre cas), tandis que pour une transition du second ordre on a la loi d'échelle $C \propto L^{\frac{\alpha}{\nu}}$.

On a représenté sur la figure 7.13 l'évolution du maximum de la chaleur spécifique en fonction de la taille du système. Ces résultats confirment le fait que la transition est du second ordre.

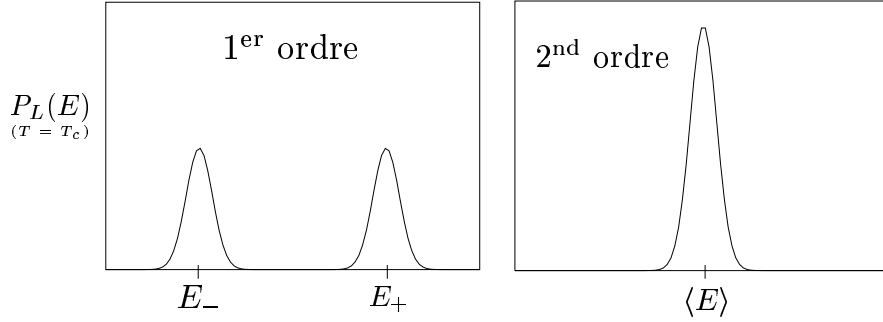


FIG. 7.11 – Distributions de probabilité de l'énergie à la température critique pour une transition du premier et du second ordre. Pour la transition du premier ordre, E_{\pm} sont les énergies des phases haute et basse températures. Ces phases coexistent à la température critique. Ces probabilités sont celles pour un système fini, les maxima tendent vers des fonctions de Dirac à la limite thermodynamique. C'est la structure en double pic pour la transition du premier ordre qui fait que $\lim_{L \rightarrow \infty} V_L^{min} \neq \frac{2}{3}$ à la température critique [22].

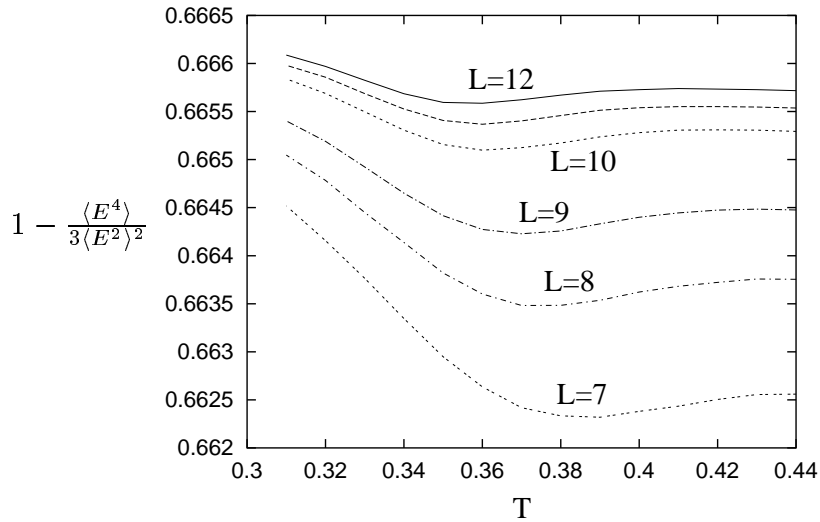


FIG. 7.12 – Evolution de $V_L = 1 - \frac{\langle E^4 \rangle_L}{3 \langle E^2 \rangle_L^2}$ autour de la température critique en fonction de la taille du système. $\lim_{L \rightarrow \infty} V_L^{min} = \frac{2}{3}$ et donc la transition est du second ordre (ou en tout cas très faiblement du premier ordre).

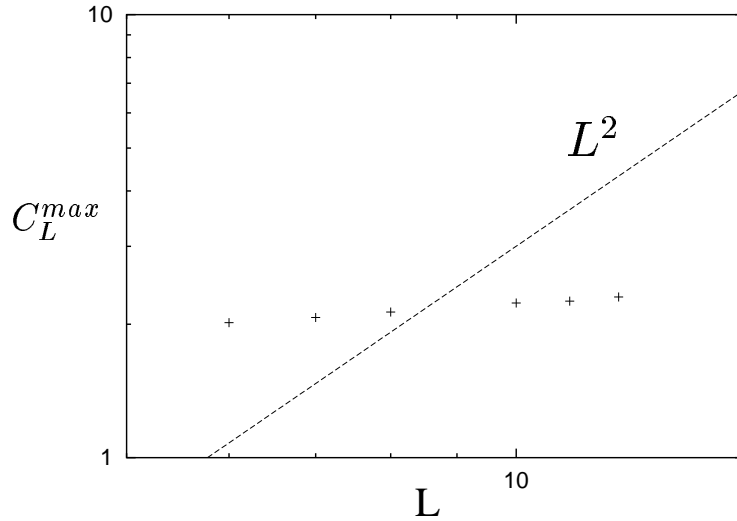


FIG. 7.13 – Evolution du maximum de la chaleur spécifique avec la taille du système. On attend un comportement en L^2 pour une transition du premier ordre et en $L^{\frac{\alpha}{\nu}}$ pour une transition du second ordre.

Discussion

La figure 7.14 représente la température critique en fonction du rapport $\frac{D}{J}$ dans le cas où les vecteurs \mathbf{D} sont perpendiculaires au plan kagomé. La ligne $D=0$ correspond au système avec interactions d'échange antiferromagnétiques seulement. Ce système ($D=0$) est le siège d'une sélection entropique des états coplanaires à basse température, ce qui induit un ordre partiel (voir §3.1.2 et [21]). Dans les simulations Monté Carlo effectuées, dès lors que D a une valeur finie, même de l'ordre de $\frac{J}{10}$, on observe une transition de phase et la structure magnétique à basse température est dominée par les interactions de Dzyaloshinsky-Moriya. Ceci est rendu possible par le fait que l'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya sélectionne un seul état de plus basse énergie contrairement aux interactions d'échange antiferromagnétiques qui ont une branche d'excitations d'énergie nulle. C'est donc bien l'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya qui est essentiellement à l'origine de la transition de phase observée, ce qui est confirmé par les valeurs de la température critique $T_c \sim D$, presque indépendamment de la valeur de l'échange isotrope J (voir figure 7.14). Ce dernier fait est rendu possible uniquement du fait que la structure magnétique sélectionnée par l'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya fait partie des états (dégénérés) favorisés par les interactions d'échange antiferromagnétiques. Pour cette même raison, il est très probable que la transition de phase ait lieu même pour des valeurs de $\frac{D}{J}$ plus faibles que celles étudiées.

Les structures qui présentent un ferromagnétisme faible (avec une composante dans le plan de \mathbf{D}) ne minimisent pas les interactions d'échange antiferromagnétiques. On a cependant toujours observé une transition de phase dans les simulations Monté Carlo. On pourrait penser que pour des valeurs de $\frac{D}{J}$ très faibles, les interactions d'échange dominant la phase basse température et imposent une phase coplanaire.

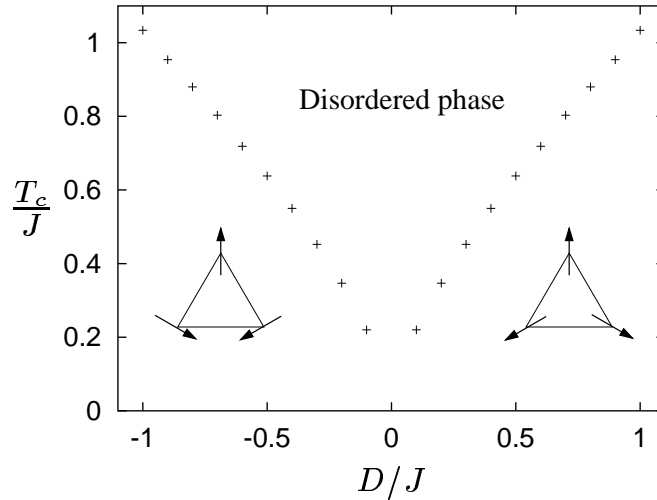


FIG. 7.14 – Evolution de la température critique en fonction du rapport $\frac{D}{J}$ dans le cas où \mathbf{D} est perpendiculaire au plan kagomé. $T_c \sim |D|$.

Il semble toutefois peu probable que cette phase soit désordonnée comme en l'absence d'interactions de Dzyaloshinsky-Moriya car même si celles-ci n'étaient pas en mesure d'induire une structure ferromagnétique faible à cause de fortes interactions d'échange isotropes, elles sélectionnent une chiralité, ce qui suffit à ordonner le système.

On a représenté sur la figure 7.15 l'évolution de la température critique en fonction de l'angle θ entre les vecteurs \mathbf{D} et le plan kagomé (la norme du vecteur \mathbf{D} est fixée). Le fait que le tracé ne soit pas symétrique par rapport à $\theta = 0$ ($T_c(\theta) \neq T_c(-\theta)$) reflète la non-équivalence entre les systèmes avec des vecteurs \mathbf{D} et $-\mathbf{D}$. En effet, changer θ en $-\theta$ revient à changer D_z en $-D_z$, qui est la partie non triviale de la transformation $\mathbf{D} \rightarrow -\mathbf{D}$, car $D_p \rightarrow -D_p$ correspond à la symétrie triviale $S_z \rightarrow -S_z$. Une autre façon de voir la différence entre les systèmes avec un angle θ et $-\theta$ est que dans le second cas la composante $D_z < 0$ est en compétition avec la composante dans le plan de \mathbf{D} car ces deux composantes tendent à sélectionner des chiralités différentes alors que dans l'autre cas $D_z > 0$ et D_p sélectionnent la même chiralité, d'où une température critique plus élevée.

Par ailleurs, le fait que la température critique soit plus basse dans le cas où \mathbf{D} est dans le plan kagomé ($\theta = 0$) que lorsque \mathbf{D} est perpendiculaire au plan ($\theta = 0$ ou π) s'explique par le fait que dans ce dernier cas l'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya sélectionne une structure coplanaire qui minimise les interactions d'échange isotropes, alors que dans le cas de \mathbf{D} dans le plan, l'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya sélectionne une structure non coplanaire avec un ferromagnétisme faible perpendiculaire au plan et est donc en compétition avec les interactions d'échange antiferromagnétiques J .

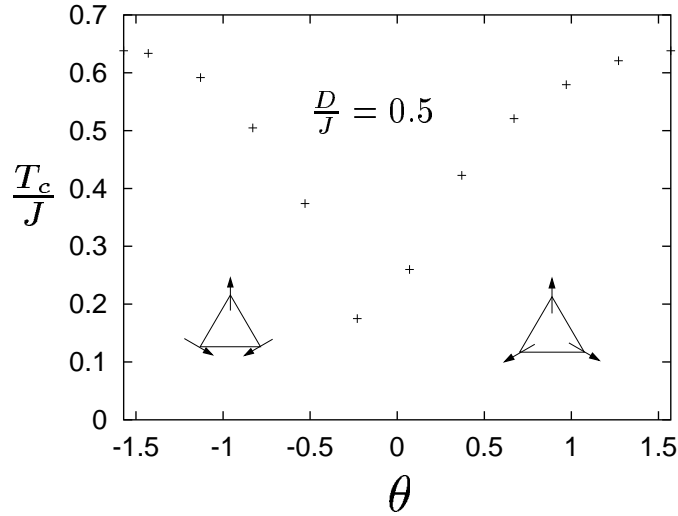


FIG. 7.15 – Evolution de la température critique en fonction de l’angle θ entre les vecteurs \mathbf{D} et le plan kagomé.

7.6 Développement en ondes de spins

Les deux approches, en champ moyen et par simulations Monté Carlo, pour trouver la structure magnétique induite par les interactions Dzyaloshinsky-Moriya dans le réseau kagomé ont traité les spins comme des variables classiques : chaque moment magnétique était représenté par un vecteur classique à trois dimensions de norme fixe. Toutes les variables commutaient entre elles et le système obéissait à une statistique de Boltzmann. Ce traitement classique simplifie le problème mais peut s’avérer inadapté dans des systèmes où les effets quantiques sont importants. Le calcul d’ondes de spins est une façon de prendre en compte les effets quantiques en partant de la limite classique. Les ondes de spins sont les excitations de plus basse énergie (pour un système magnétique ordonné) et ce calcul nous permettra également de sonder la nature de l’ordre magnétique, en particulier le problème de l’ordre à longue distance à température très basse mais finie. Ce dernier point est motivé par le fait qu’à deux dimensions, les fluctuations thermiques sont connues pour détruire tout ordre à longue distance (au sens où l’aimantation d’un sous-réseau s’annule à toute température finie) pour certains hamiltoniens.

On présente dans cette section le développement en ondes de spins dans le cas où \mathbf{D} est perpendiculaire au plan kagomé. Le cas des vecteurs \mathbf{D} inclinés est brièvement discuté au paragraphe 7.6.6. La nature de l’ordre à longue distance à température finie est analysé au paragraphe 7.6.5. Par ailleurs, le détail des calculs est donné dans l’annexe B.3.

7.6.1 Principe du calcul

Une introduction aux développements en ondes de spins dans les cas les plus simples est donnée par Casper [20]. L’idée est la suivante : après avoir résolu le

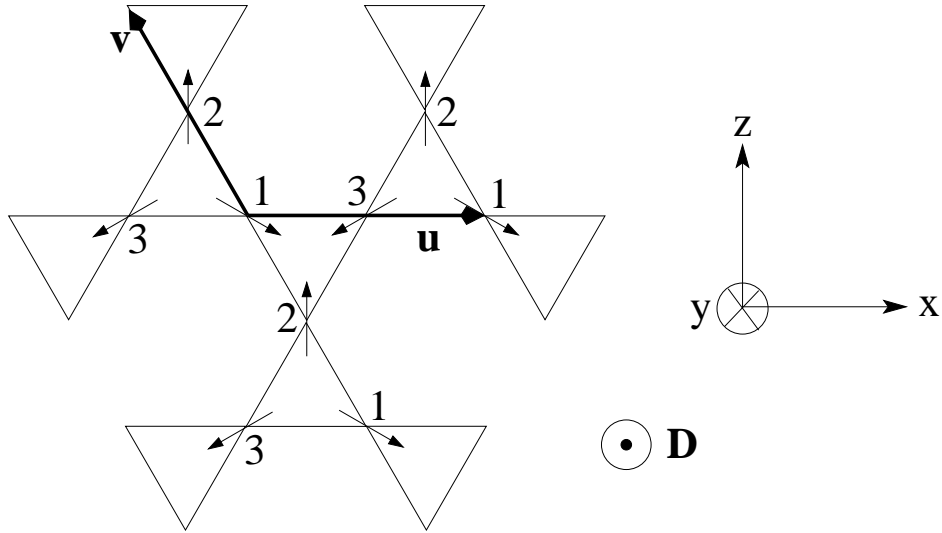


FIG. 7.16 – Phase magnétique obtenue classiquement. La maille magnétique contient trois sites, ce qui conduit à introduire trois types de bosons (numérotés 1, 2 et 3 pour le développement en ondes de spins.

problème avec des spins classiques, on permet au système d'effectuer de petites fluctuations autour de la phase magnétique ainsi obtenue. Ce faisant, on introduit des variables (représentant les écarts à la phase ordonnée) quantiques qui sont des bosons. Afin de pouvoir diagonaliser l'hamiltonien, on va être conduit à effectuer certaines approximations qui sont d'autant mieux justifiées que les écarts à la phase ordonnée classique sont faibles et que le nombre quantique S du spin est grand (d'où le nom de "développement en $\frac{1}{S}$ ").

7.6.2 Trois types de bosons

La maille magnétique de l'état ordonné contient trois sites, on introduit donc trois types de bosons comme représenté sur la figure 7.16. Pour les spins des sites 2, la transformation de Holstein-Primakoff [45], et le développement limité s'écrivent :

$$\begin{aligned}
 S_2^+ &= \sqrt{2S - c_2^\dagger c_2} c_2 \simeq \sqrt{2S} c_2 & S_2^x &\simeq \sqrt{\frac{S}{2}} (c_2^\dagger + c_2) \\
 S_2^- &= c_2^\dagger \sqrt{2S - c_2^\dagger c_2} \simeq \sqrt{2S} c_2^\dagger & S_2^y &\simeq i\sqrt{\frac{S}{2}} (c_2^\dagger - c_2) \\
 & & S_2^z &= S - c_2^\dagger c_2
 \end{aligned} \tag{7.9}$$

Par rotation de $\pm \frac{2\pi}{3}$ autour de l'axe des y , on obtient les expressions équivalentes pour les sites 1 et 3.

On définit alors les transformées de Fourier suivantes :

$$\begin{aligned} c_{1\mathbf{r}} &= \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} c_{1\mathbf{k}} \\ c_{2\mathbf{r}} &= \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k}\cdot(\mathbf{r}-\frac{\mathbf{v}}{2})} c_{2\mathbf{k}} \\ c_{3\mathbf{r}} &= \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k}\cdot(\mathbf{r}+\frac{\mathbf{u}}{2})} c_{3\mathbf{k}} \end{aligned} \quad (7.10)$$

où \mathbf{r} est un point du réseau triangulaire dont les vecteurs de base \mathbf{u} et \mathbf{v} sont représentés sur la figure 7.16 et \mathbf{k} un point du réseau réciproque associé.

Notre point de départ est l'hamiltonien :

$$H = \sum_{\langle ij \rangle} J \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + \mathbf{D}_{ij} \cdot (\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j) \quad (7.11)$$

où i et j sont plus proches voisins du réseau kagomé et avec $\mathbf{D}_{ij} = -D\hat{\mathbf{y}}$ comme représenté sur la figure 7.16. A l'aide des transformations 7.9, et des transformées de Fourier 7.10, l'hamiltonien 7.11 se réécrit :

$$\begin{aligned} H = & -3NS^2(J + D\sqrt{3}) + \\ & + S \sum_{\mathbf{k}\alpha\beta} \left(2(J + D\sqrt{3})\delta_{\alpha\beta} + \frac{J-D\sqrt{3}}{2}\Lambda_{\alpha\beta}(\mathbf{k}) \right) c_{\alpha}^{\dagger}(\mathbf{k})c_{\beta}(\mathbf{k}) - \\ & - \frac{3J+D\sqrt{3}}{4}\Lambda_{\alpha\beta}(\mathbf{k}) \left(c_{\alpha}^{\dagger}(\mathbf{k})c_{\beta}^{\dagger}(-\mathbf{k}) + c_{\alpha}(\mathbf{k})c_{\beta}(-\mathbf{k}) \right) \end{aligned} \quad (7.12)$$

où δ est la matrice unité et :

$$\Lambda = \begin{pmatrix} 0 & \cos \frac{k_x - \sqrt{3}k_z}{2} & \cos k_x \\ \cos \frac{k_x - \sqrt{3}k_z}{2} & 0 & \cos \frac{k_x + \sqrt{3}k_z}{2} \\ \cos k_x & \cos \frac{k_x + \sqrt{3}k_z}{2} & 0 \end{pmatrix}$$

Une série de transformations (voir l'annexe B.3.2) permettent de diagonaliser l'hamiltonien 7.12 pour le mettre sous la forme :

$$H = -3NS^2(J + D\sqrt{3}) - 3NS(J + D\sqrt{3}) + S \sum_{\mathbf{k}\mu} \epsilon_{\mu}(\mathbf{k}) \left(a_{\mu}^{\dagger}(\mathbf{k})a_{\mu}(\mathbf{k}) + \frac{1}{2} \right) \quad (7.13)$$

où les a et a^{\dagger} sont des combinaisons linéaires des opérateurs de bosons de départ (c_{α}) et sont les opérateurs de création et d'annihilation traditionnels qui vérifient la relation de commutation :

$$[a_{\mu}(\mathbf{k}), a_{\nu}^{\dagger}(\mathbf{q})] = \delta_{\mu,\nu} \delta_{\mathbf{k},\mathbf{q}}$$

Par ailleurs, on a les trois branches de dispersion :

$$\epsilon_{\mu}(\mathbf{k}) = \sqrt{2 \left(J + D\sqrt{3} + J\lambda_{\mu}(\mathbf{k}) \right) \left(J + D\sqrt{3} \right) (2 - \lambda_{\mu}(\mathbf{k}))}$$

où les $\lambda_{\mu}(\mathbf{k})$ sont les valeurs propres de Λ (voir annexe B.3, équation B.8). Les trois branches d'excitations sont représentées sur la figure 7.17 pour $D = 0$ (interactions

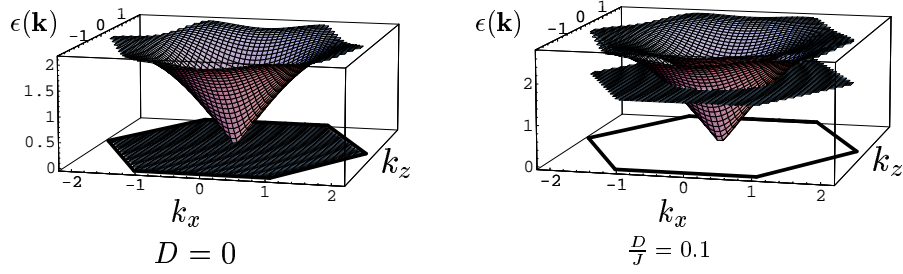


FIG. 7.17 – Influence de l'interaction Dzyaloshinsky-Moriya sur le spectre des excitations. La branche non dispersive sur toute la première zone de Brillouin pour des interactions d'échange de Heisenberg reste plate avec des interactions Dzyaloshinsky-Moriya, mais n'est plus celle de plus basse énergie.

d'échange isotropes J , seules) et $D \neq 0$. Pour $D = 0$, on retrouve dans le spectre des excitations une branche non dispersive d'énergie nulle qui est à l'origine du désordre dans le réseau kagomé avec interactions d'échanges isotropes seules. Pour $D \neq 0$, cette branche non dispersive persiste, mais leur énergie est finie, elle varie en $\sim \sqrt{DJ}$ pour $D \ll J$. Le bas du spectre est dans ce cas constitué d'une branche dispersive qui s'annule en $\mathbf{k}=\mathbf{0}$. Le fait que

$$\lim_{\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{0}} \epsilon(\mathbf{k}) = 0$$

est conforme à l'existence d'un degré de liberté de rotation globale des spins dans le plan kagomé, ce qui se voit sur l'hamiltonien 7.11 si \mathbf{D} est perpendiculaire au plan kagomé. Le développement limité à $|\mathbf{k}|$ petit de la plus basse branche d'excitation vaut :

$$\epsilon_2(\mathbf{k}) \sim \frac{\sqrt{(J + D\sqrt{3})(3J + D\sqrt{3})}}{2} |\mathbf{k}| \quad \text{pour } |\mathbf{k}| \rightarrow 0 \quad (7.14)$$

Ce résultat servira au paragraphe 7.6.5 à discuter l'ordre magnétique à longue distance du système.

7.6.3 Énergie de l'état fondamental

A température nulle, l'énergie du système peut être calculée à partir de l'expression 7.13, sachant que dans l'état fondamental $\langle a_{\mathbf{k}}^\dagger a_{\mathbf{k}} \rangle = 0$. On obtient pour l'énergie par spin :

$$\frac{E}{3N} = -S^2(J + \sqrt{3}D) - S(J + D\sqrt{3}) + \frac{S}{6N} \sum_{\mathbf{k}\mu} \epsilon_\mu(\mathbf{k}) \quad (7.15)$$

où la somme porte sur les trois branches d'excitation (μ) et tous les vecteurs \mathbf{k} de la première zone de Brillouin. Le détail de l'évaluation de ces sommes est donné à l'annexe B.3.3. Les valeurs de l'énergie pour différentes valeurs de S , sont représentées sur la figure 7.18 en fonction de $\frac{D}{J}$. On constate que, à part pour le cas $S = \frac{1}{2}$, l'énergie

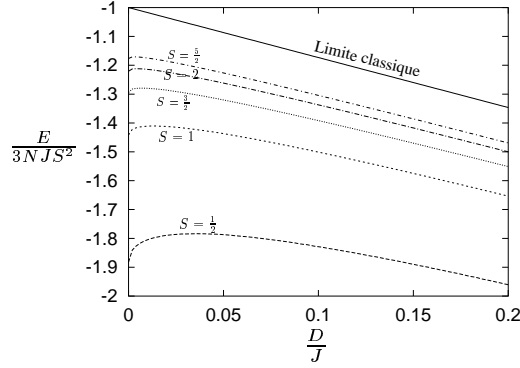


FIG. 7.18 – Energie par spin en fonction de $\frac{D}{J}$. Les corrections dues aux fluctuations quantiques sont relativement faibles (mis à part le cas $S = \frac{1}{2}$) par rapport au système classique.

est peu changée par l'introduction des fluctuations quantiques par rapport au cas classique. Les corrections sont par exemple de l'ordre de 10 % pour $S = \frac{5}{2}$.

7.6.4 Aimantation locale

Afin de sonder si les fluctuations quantiques sont susceptibles de déstabiliser l'ordre de Néel obtenu classiquement, on calcule les corrections à l'aimantation sur le sous-réseau 2 (voir figure 7.16) :

$$\begin{aligned} \langle S_2^z \rangle &= \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{r}} \langle S_{2\mathbf{r}}^z \rangle = S - \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{r}} \langle c_{2\mathbf{r}}^\dagger c_{2\mathbf{r}} \rangle = S - \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \langle c_{2\mathbf{k}}^\dagger c_{2\mathbf{k}} \rangle \\ &= S - \frac{1}{4N} \sum_{\mathbf{k}, \mu} A_{\mu 2}^2(\mathbf{k}) \left(\frac{4(J + D\sqrt{3}) + (J - D\sqrt{3})\lambda_\mu(\mathbf{k})}{\epsilon_\mu(\mathbf{k})} - 2 \right) \end{aligned} \quad (7.16)$$

L'aimantation du sous-réseau est représentée sur la figure 7.19 pour différentes valeurs de S , en fonction de $\frac{D}{J}$. On constate que pour $\frac{D}{J} \gtrsim 0.02$, l'aimantation du sous-réseau garde une valeur appréciable et ceci d'autant plus que S est grand. A part le cas $S = \frac{1}{2}$, l'état de Néel obtenu classiquement est donc robuste aux fluctuations quantiques et leur prise en compte ne semble pas être un ingrédient essentiel pour l'étude du réseau kagomé avec interactions de Dzyaloshinsky-Moriya. Le cas $S = \frac{1}{2}$ est plus délicat : même pour des rapport de $\frac{D}{J} \sim 0.1$, l'aimantation est diminuée de moitié par les fluctuations quantiques. Ce cas nécessiterait une étude plus approfondie prenant en compte plus rigoureusement les effets quantiques avant de conclure quand à la nature de l'état magnétique.

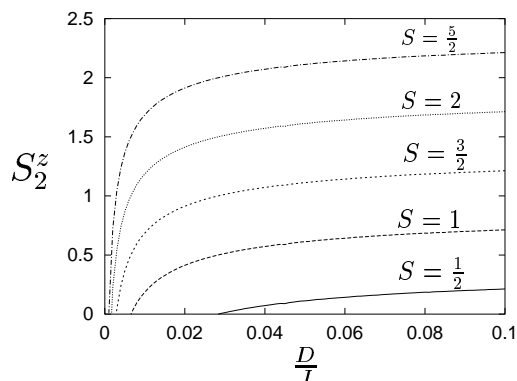


FIG. 7.19 – Aimantation du sous-réseau 2 (voir figure 7.16) pour différentes valeurs de S en fonction de $\frac{D}{J}$. Pour $\frac{D}{J} \gtrsim 0.02$, l'état de Néel semble robuste aux fluctuations quantiques pour $S \geq 1$. Le cas $S = \frac{1}{2}$ est plus discutable.

7.6.5 Nature de l'ordre à longue distance

Ondes de spins et théorème de Mermin-Wagner

Les ondes de spins sont les excitations magnétiques de plus basse énergie dans un système magnétique ordonné. Leur étude permet de déterminer les propriétés magnétiques à basse température. On s'intéresse en particulier au cas d'une température tendant vers 0, mais non nulle : $T = 0^+$. En effet, dans cette situation, les fluctuations thermiques peuvent jouer un grand rôle à 2D. L'illustration la plus classique de ce fait est le théorème de Mermin-Wagner [70] qui prouve rigoureusement qu'il ne peut pas exister d'aimantation macroscopique (pour un sous-réseau) à température finie dans des systèmes avec des interactions d'échanges isotropes qui décroissent assez vite avec la distance. Ce théorème a été étendu à d'autres hamiltoniens, avec des interactions d'échange symétrique anisotropes, avec anisotropie sur site ainsi que des interactions d'échange alternées (ce qui est d'intérêt pour les systèmes magnétiques avec des interactions RKKY) [13].

Bien que le théorème n'ait jamais été prouvé dans le cas général, il est coutume de dire qu'il n'existera pas d'ordre à longue portée (au sens qu'il n'existe pas d'aimantation macroscopique sur un sous-réseau) dans un système à une et deux dimensions avec des interactions à courte portée et où l'hamiltonien est invariant par une symétrie continue. En terme d'ondes de spins, cette symétrie continue donne lieu à un spectre des excitations sans gap :

$$\lim_{\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{0}} \epsilon(\mathbf{k}) = 0$$

et ces excitations de grandes longueurs d'ondes vont détruire l'ordre à longue portée dès lors que la température est finie.

Lors d'un calcul d'ondes de spins, on ne peut pas prouver rigoureusement le théorème de Mermin-Wagner, mais si on calcule l'aimantation d'un sous-réseau pour un système à une ou deux dimensions où le théorème a été établi, celle-ci est nulle (plus précisément, les corrections à l'aimantation dans la phase ordonnée de départ

divergent). On interprète ce fait comme un indice que le théorème de Mermin-Wagner devrait être vérifié dans ces systèmes.

Inversement, dans les systèmes bi-dimensionnels les plus simples où il n'existe pas de symétrie continue qui laisse l'hamiltonien invariant, et où la démonstration du théorème ne peut pas être faite, on obtient dans un calcul d'ondes de spins un gap dans les excitations, et de ce fait, les modes de plus basse énergie ne sont pas suffisamment peuplés par une température $T = 0^+$ pour détruire l'aimantation d'un sous-réseau, et il subsiste un ordre à longue portée à température finie.

Application au réseau kagomé avec interactions Dzyaloshinsky-Moriya

Dans un réseau kagomé avec interactions Dzyaloshinsky-Moriya telles que le vecteur \mathbf{D} est perpendiculaire au réseau kagomé, les rotations autour de cet axe laissent l'hamiltonien invariant. Ceci se traduit par une branche d'excitations qui s'annule en $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ (voir 7.14 et figure 7.17). D'après ce qui a été dit au paragraphe précédent, on s'attend à ne pas avoir d'aimantation macroscopique sur chacun des sous-réseaux à température finie.

Effectivement, on a vérifié que si l'on reprend le calcul du paragraphe 7.6.4 à température finie, les corrections à l'aimantation divergent. En pratique ceci revient à peupler les états excités des oscillateurs selon la distribution de Bose. Ce faisant, on obtient dans l'expression de l'aimantation (équivalent de 7.16) une intégrale qui diverge logarithmiquement :

$$\int \frac{d\mathbf{k}}{|\mathbf{k}|^2}$$

en $|\mathbf{k}| = 0$ pour la branche de plus basse énergie. Il n'y aura donc pas d'aimantation macroscopique d'un sous-réseau dans le cas où les vecteurs \mathbf{D} sont perpendiculaires au plan kagomé, essentiellement du fait qu'il y a une symétrie de rotation autour de l'axe perpendiculaire au réseau.

7.6.6 Cas des vecteurs \mathbf{D} inclinés

Le développement en ondes de spins a été fait pour le cas des vecteurs \mathbf{D} perpendiculaires au plan kagomé. Dans le traitement classique, l'anisotropie induite par l'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya avait dans ce cas un caractère "anisotropie planaire" : les spins s'ordonnent dans la plan kagomé et il reste un degré de liberté de rotation globale dans ce plan. Dans le cas des vecteurs \mathbf{D} inclinés, l'anisotropie induite par l'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya avait par contre un caractère "Ising" : les spins sont alignés suivant des *axes* qui sortent légèrement du plan, il n'y a plus de degré de liberté global. Par analogie avec ce qui se passerait dans un système avec de l'échange isotrope J et une anisotropie ionique (sur site) planaire ou axiale (Ising), il est légitime de penser que dans le cas d'une interaction de Dzyaloshinsky-Moriya avec les vecteurs \mathbf{D} inclinés, les deux faits suivants seront vérifiés :

- il y aura un gap dans le spectre des excitations ($\lim_{\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{0}} \epsilon(\mathbf{k}) \neq 0$)
- les fluctuations quantiques ne déstabiliseront pas plus l'état de Néel que dans le cas des vecteurs \mathbf{D} perpendiculaires au plan kagomé.

7.6.7 Conclusion du développement en ondes de spins

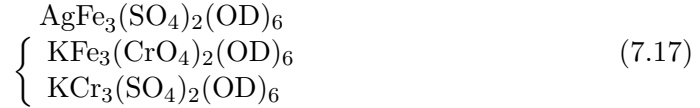
Les conséquences de l'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya sur les propriétés magnétiques du réseau kagomé ont été étudiées à travers des approches classiques aux sections 7.4 (champ moyen) et 7.5 (simulations Monté Carlo). Le développement en ondes de spins nous a permis de prendre en compte les fluctuations quantiques. La conclusion principale est qu'une approche classique est pertinente pour le système kagomé avec des interactions Dzyaloshinsky-Moriya. Seul le cas du système avec des spins $S = \frac{1}{2}$ et une interaction de Dzyaloshinsky-Moriya relativement faible pourrait être le siège de fluctuations quantiques assez importantes pour que son état magnétique soit sensiblement différent de ce qui est prédit pour des spins classiques.

7.7 Dzyaloshinsky-Moriya dans certaines jarosites

Une des raisons pour l'étude des interactions Dzyaloshinsky-Moriya dans le réseau kagomé est d'expliquer les structures magnétiques observées dans certaines jarosites. On commence par décrire la structure cristallographique de ces composés, sans être complet, mais en mettant l'accent sur les aspects importants pour le calcul des interactions de super-échange qui a été fait en relation avec ces composés à la section 7.3. On décrit ensuite les structures magnétiques observées expérimentalement dans certaines jarosites et on discute leur lien avec les interactions Dzyaloshinsky-Moriya.

7.7.1 Structure cristallographique

Les jarosites dont les structures magnétiques nous intéressent sont des composés de formules :



où les ions de Fe et de Cr sont magnétiques et forment des réseaux kagomés empilés. Les deux derniers composés sont regroupés car leurs structures magnétiques à basse température sont similaires. Il existe d'autres jarosites où les sites magnétiques sont occupés par d'autres atomes (V par exemple), mais le comportement magnétique de ces composés est radicalement différent de ceux présentés ici. Les groupements non magnétiques peuvent différer également selon les jarosites, et ils peuvent avoir une influence sur le comportement magnétique du système car ils interviennent dans le champ cristallin sur les sites magnétiques ou dans les interactions de super-échange. Par exemple le composé $(\text{H}_3\text{O})\text{Fe}_3(\text{SO}_4)_2(\text{OH})_6$ ou son équivalent deutéré ont un comportement du type verre de spins [119, 118].

Tous ces composés sont des oxydes où les moments magnétiques sont localisés, et ils sont correctement décrits par un hamiltonien de spins. Les interactions magnétiques dans ces composés sont essentiellement des interactions de super-échange, et les différents plans kagomé sont séparés les uns des autres par de grandes distances, si bien que les éventuels chemins d'échange entre deux plans kagomé impliquent un grand nombre de liaisons successives et les interactions qui en résultent sont né-

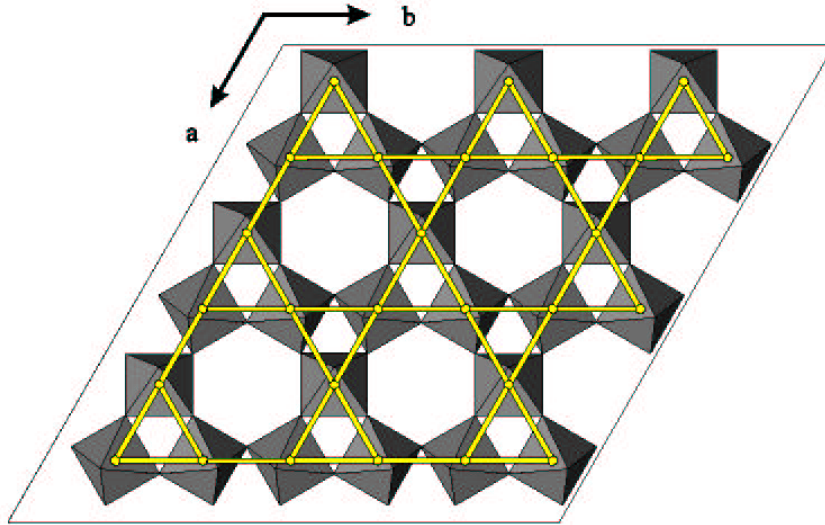


FIG. 7.20 – Réseau kagomé formé par les ions magnétiques des composés jarosites. Les octaèdres représentés sont les octaèdres d’oxygène entourant les sites magnétiques (un ion magnétique à l’intérieur de chaque octaèdre). Deux octaèdres voisins ont un atome d’oxygène en commun. Les octaèdres sont légèrement inclinés vers les centres (ou l’extérieur) des triangles du réseau kagomé. Merci à Andrew Wills pour la figure.

gligeables en première approximation. Ces composés auront donc essentiellement le comportement bi-dimensionnel du réseau kagomé.

Comme on l’a dit, les sites magnétiques de Fe ou Cr forment un réseau kagomé, et chaque ion magnétique est entouré par un octaèdre d’oxygènes (voir figures 7.20 et 7.21). Ces octaèdres d’oxygènes sont responsables du champ cristallin sur les sites magnétiques. Par ailleurs, deux octaèdres voisins ont un atome d’oxygène en commun impliqué dans les interactions de super-échange.

Pour plus de détails sur les structures cristallographiques, voir [120, 47].

7.7.2 Structures magnétiques

Les structures magnétiques des jarosites ont été étudiées pour la première fois par Townsend [106]. Ses résultats ont été en partie remis en cause par Wills *et al.* [116, 120] et Inami *et al.* [46, 47]. Pour les trois jarosites auxquelles on s’intéresse ici (voir 7.17), une transition de phase est observée à des températures de 70 K pour les jarosites de Fe et 4 K pour celles de Cr, soit des températures grosso-modo de $\frac{\theta}{10}$ où θ est la température de Curie-Weiss dérivée de mesures de susceptibilité à haute température. A basse température, ces composés présentent une structure magnétique ordonnée à longue portée avec un vecteur de propagation $\mathbf{q} = \mathbf{0}$. La maille magnétique contient trois sites (un triangle du réseau kagomé). Dans le cas de $\text{AgFe}_3(\text{SO}_4)_2(\text{OD})_6$ la structure est coplanaire : tous les spins sont dans le plan kagomé et sont à 120° les uns des autres. Ils pointent alternativement un triangle sur deux vers le centre ou l’extérieur des triangles (voir partie gauche de la figure 7.6). Pour les deux autres composés (voir 7.17), la structure est identique, mis à part que

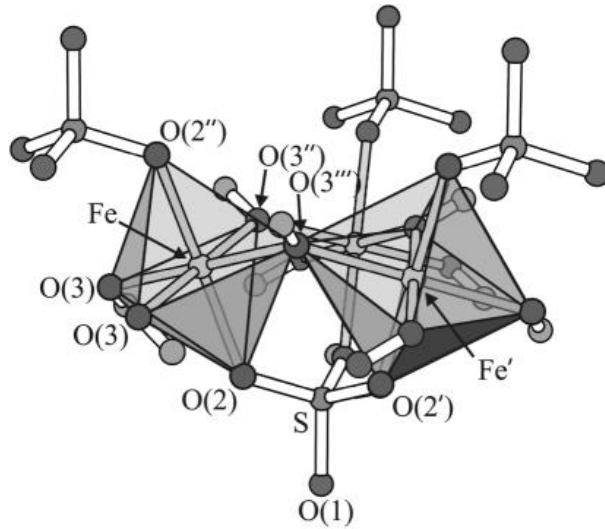


FIG. 7.21 – Structure cristallographique des jarosites. Les deux ions magnétiques sont au centre des deux octaèdres d’oxygène qui sont responsables du champ cristallin. Les deux octaèdres ont un atome d’oxygène en commun impliqué dans les interactions de super-échange entre les ions magnétiques. Les octaèdres sont légèrement inclinés. Merci à Andrew Wills pour la figure.

les spins sortent tous légèrement du plan kagomé, donnant lieu à un ferromagnétisme faible perpendiculaire au plan (figure 7.7).

Ces résultats ne peuvent pas s’expliquer à l’aide des seules interactions antiferromagnétiques isotropes. Par contre, les deux types de structures ont été obtenues théoriquement avec des interactions Dzyaloshinsky-Moriya, respectivement avec des vecteurs \mathbf{D} perpendiculaires au plan kagomé, et inclinés comme cela est compatible avec la structure cristallographique des jarosites. Dans le cas de la structure coplanaire, il faut invoquer en plus des interactions Dzyaloshinsky-Moriya une faible anisotropie supplémentaire pour supprimer le degré de liberté de rotation dans le plan kagomé.

En fait, l’ordre magnétique apparaît non seulement dans les plans kagomé, mais également à trois dimensions : les plans kagomé sont ordonnés les uns par rapport aux autres. Selon les composés, tous les plans kagomé ont exactement la même structure magnétique ou bien il y a par exemple alternance du sens du moment ferromagnétique perpendiculaire au plan kagomé, si bien que le moment magnétique total de l’échantillon est nul. En tout état de cause, il y a un vecteur de propagation de l’ordre magnétique bien défini d’un plan à ses voisins. Pour expliquer cela il faut invoquer des interactions inter-plans, et ceci sort du cadre de l’étude théorique présentée ici. Il semble toutefois peu probable, étant donné la longueur des chemins d’échange et donc la faiblesse des interactions inter-plans qu’elles puissent expliquer une mise en ordre de la structure magnétique à des température aussi hautes que 4 K et 70 K. Par contre, l’existence de ces interactions font que le composé aura un comportement tri-dimensionnel à très basse température, et donc la conclusion du paragraphe 7.6.5

(dans le cas de \mathbf{D} perpendiculaire au plan kagomé l'aimantation macroscopique d'un sous-réseau serait nulle à toute température finie) ne s'applique plus ici.

7.7.3 Dzyaloshinsky-Moriya vs anisotropie sur site. Un arbitre : la RPE (?)

L'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya n'est pas la seule possibilité pour expliquer les structures magnétiques dans les jarosites, c'est toutefois la plus naturelle pour les composés auxquels on s'intéresse ici. Une anisotropie "sur site" pourrait expliquer cette même structure comme cela a été proposé par Inami *et al.* [46, 47]. Toutefois, les sites magnétiques sont occupés par des ions Fe^{3+} ayant leur couche 3d demi-pleine, et donnant lieu à un moment magnétique de spin $S=\frac{5}{2}$. Le nuage électronique de cet ion est donc sphérique et même si le champ cristallin donne lieu à des séparations d'énergie importantes, il sera difficilement à l'origine d'une anisotropie sur site significative.

Bien que l'interaction Dzyaloshinsky-Moriya ou des anisotropies sur sites puissent expliquer un même état fondamental, les excitations magnétiques seront différentes dans les deux cas. Des expériences de résonance électronique pourraient trancher entre les deux interactions. En effet, dans ces expériences, une anisotropie sur site a des effets similaires à ceux d'un champ magnétique statique sur chaque site, tandis que l'on s'attend à des variations thermiques plus importantes dans le cas d'interactions anisotropes ².

7.8 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons étudié les interactions Dzyaloshinsky-Moriya sur le réseau kagomé. Le cas d'un réseau kagomé "pur" de même que la géométrie des composés jarosites ont été considérés. Dans les deux cas nous avons montré la pertinence des interactions Dzyaloshinsky-Moriya pour ces systèmes et avons présenté une dérivation microscopique de cette interaction en partant d'un modèle simplifié dans le cadre du formalisme de Moriya-Anderson pour le calcul du super-échange.

Les conséquences des interactions Dzyaloshinsky-Moriya sur les propriétés magnétiques de ces systèmes ont été étudiées dans l'approximation du champ moyen et par simulations Monté Carlo. L'état fondamental désordonné (liquide de spins) du système avec interactions d'échange antiferromagnétiques seules est déstabilisé au profit d'un état ordonné de type Néel en présence d'interactions Dzyaloshinsky-Moriya même faibles par rapport à l'échange isotrope. La structure de cet état ordonné dépend des différentes interactions Dzyaloshinsky-Moriya possibles et un diagramme de phase a été obtenu. La transition de phase entre l'état paramagnétique à haute température et la phase ordonnée est du second ordre et nous sommes intéressés à l'évolution de la température critique selon le type d'interaction Dzyaloshinsky-Moriya présente. La température critique est toujours $T_c \sim D$.

Les fluctuations quantiques ont été considérées dans un calcul d'ondes de spins et ne sont significatives que pour des spins $S = \frac{1}{2}$, ce qui montre la pertinence de notre approche classique pour expliquer les structures magnétiques des jarosites ($S=\frac{5}{2}$ pour

²Merci à Alia Hassan pour ses précieuses explications à ce sujet.

Fe et $S=\frac{3}{2}$ pour Cr). Ce calcul nous a également permis de caractériser le type d'ordre à longue portée obtenu à basse température.

La prise en compte des interactions de Dzyaloshinsky-Moriya dérivées avec la géométrie des jarosites permet de reproduire la structure magnétique observée expérimentalement dans ces composés. Quelques arguments qualitatifs viennent consolider l'idée que ce sont ces interactions qui sont responsables de cet ordre magnétique. Ce serait le premier exemple de système où l'interaction Dzyaloshinsky-Moriya n'est pas qu'une perturbation qui modifie légèrement les propriétés magnétiques imposées essentiellement par les interactions d'échange antiferromagnétiques, mais est responsable de l'ordre magnétique.

Chapitre 8

Interaction Dzyaloshinsky-Moriya dans le réseau pyrochlore

Sommaire

8.1	Règles de symétrie de Moriya	87
8.1.1	Vecteur \mathbf{D} entre deux sites	87
8.1.2	Vecteurs \mathbf{D} pour un tétraèdre	87
8.1.3	“Propagation” d’un tétraèdre à ses voisins sur le réseau pyrochlore	88
8.2	Minimisation de l’énergie pour un tétraèdre	89
8.2.1	Cas “direct”	89
8.2.2	Cas “indirect”	90
8.3	Simulations Monté Carlo	92
8.3.1	Détails techniques	92
8.3.2	Cas direct	93
8.3.3	Cas indirect : “sélection entropique”	93
8.4	Composés	94
8.5	Conclusion	95

L’hamiltonien de Heisenberg antiferromagnétique isotrope (premier terme de 8.1) sur le réseau pyrochlore a été l’objet de nombreuses études car il présente un état fondamental liquide de spins à trois dimensions, aussi bien dans le cas quantique que classique (voir §3.1).

$$H = \sum_{\langle ij \rangle} J \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j + \mathbf{D}_{ij} \cdot (\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j) + \mathbf{S}_i \bar{\Gamma} \mathbf{S}_j \quad (J > 0) \quad (8.1)$$

C’est la géométrie frustrée du réseau pyrochlore et sa faible connectivité qui lui confèrent ces propriétés originales. Cette structure cristallographique est également caractérisée par une faible symétrie locale. De ce fait, le groupe des symétries par lesquelles le cristal est invariant impose moins de contraintes sur les termes pouvant apparaître dans l’hamiltonien. Il en résulte qu’en plus du premier terme de 8.1, les

interactions de Dzyaloshinsky-Moriya (2^{ème} terme de 8.1) aussi bien que les interactions symétriques anisotropes (3^{ème} terme de 8.1) sont autorisées par la symétrie du réseau.

Ces deux interactions sont en général faibles par rapport à l'échange isotrope antiferromagnétique, mais de même que d'autres perturbations (interactions entre seconds voisins, anisotropies sur site...), elles sont susceptibles de profondément changer le comportement à basse température de ce système (§3.1.3).

Dans ce chapitre, on étudie les structures magnétiques à basse température d'un réseau pyrochlore en présence d'interactions de Dzyaloshinsky-Moriya. On commence par déterminer les interactions Dzyaloshinsky-Moriya qui sont compatibles avec la structure pyrochlore (§8.1) puis on détermine les structures magnétiques qui en résultent (§8.2 et §8.3).

8.1 Règles de symétrie de Moriya

Dans le réseau pyrochlore, le milieu de deux sites n'est pas un centre d'inversion, les interactions de Dzyaloshinsky-Moriya ne sont donc pas à priori interdites par la symétrie du réseau. L'application des règles de Moriya pour un tétraèdre fixe la direction des vecteurs \mathbf{D} possibles. Le même raisonnement avec les mêmes conclusions s'applique aussi pour un réseau pyrochlore.

8.1.1 Vecteur \mathbf{D} entre deux sites

Considérons deux sites et cherchons à déterminer le vecteur \mathbf{D} correspondant. Le plan qui contient ces deux sites et le milieu du segment opposé dans le tétraèdre est un plan de symétrie. Les règles de Moriya (voir §6.3 et [79, 80]) imposent alors que le vecteur \mathbf{D} correspondant est perpendiculaire à ce plan. Chaque vecteur \mathbf{D} est donc parallèle au lien opposé dans le tétraèdre (voir figure 8.1).

Avant de poursuivre, il faut lever l'indétermination liée au fait que l'on peut écrire une interaction de Dzyaloshinsky-Moriya de deux façons équivalentes : $\mathbf{D}_{ij}(\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j) = \mathbf{D}_{ji}(\mathbf{S}_j \times \mathbf{S}_i)$ avec $\mathbf{D}_{ij} = -\mathbf{D}_{ji}$. On voit que changer simultanément le sens des vecteurs \mathbf{D} et l'ordre des produits vectoriels ne change pas les interactions Dzyaloshinsky-Moriya. Une façon de lever l'indétermination est de relier de façon univoque le sens de \mathbf{D} et l'ordre des produits vectoriels. On prend par exemple la convention que l'ordre des spins dans le produit vectoriel est celui dans lequel ils apparaissent en tournant dans le sens direct (ou indirect) autour du vecteur \mathbf{D} et en passant toujours par l'intérieur des tétraèdres. L'indétermination qu'il reste sur le sens (direct ou indirect) de \mathbf{D} est due au fait que les règles de Moriya fixent la direction des vecteurs \mathbf{D} , mais pas leur sens. Dans un système réel, le sens (direct ou indirect) serait déterminé par les détails microscopiques du composé en question.

8.1.2 Vecteurs \mathbf{D} pour un tétraèdre

Une fois l'interaction de Dzyaloshinsky-Moriya entièrement définie entre deux sites, les interactions entre les autres sites sont également entièrement fixées : on "propage" l'interaction conformément aux symétries du réseau, en particulier les axes qui relient un site au milieu de la face triangulaire opposée dans le tétraèdre sont

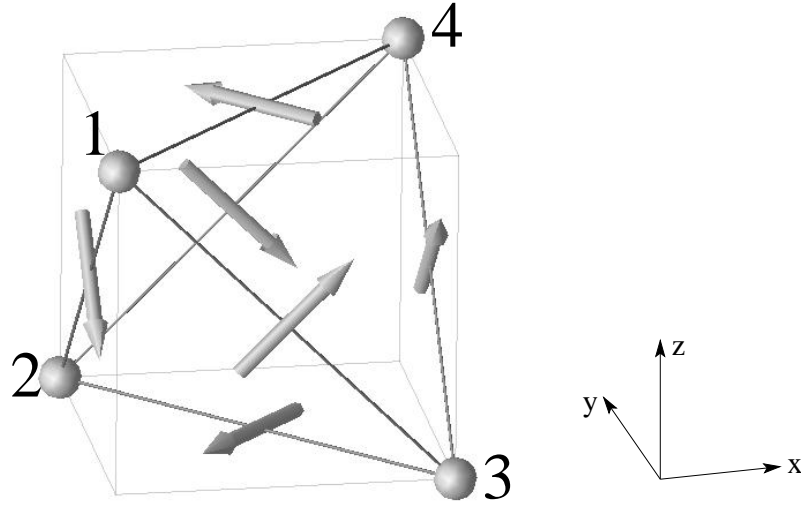


FIG. 8.1 – Vecteurs \mathbf{D} dans un tétraèdre. Pour définir totalement l’interaction de Dzyaloshinsky-Moriya, il faut donner l’ordre des produits vectoriels en précisant si l’on tourne dans le sens direct ou indirect autour des vecteurs \mathbf{D} en passant par l’intérieur des tétraèdres. Par exemple dans le cas indirect, les vecteurs représentés seraient \mathbf{D}_{12} , \mathbf{D}_{13} , \mathbf{D}_{14} , \mathbf{D}_{23} , \mathbf{D}_{24} et \mathbf{D}_{34} .

des axes de symétrie d’ordre trois. Pour le réseau pyrochlore ces axes sont les axes $\langle 111 \rangle$.

Les vecteurs \mathbf{D} et l’ordre correspondant des produits vectoriels pour un tétraèdre sont représentés sur la figure 8.1 pour le cas où on tourne dans le sens indirect autour des vecteurs \mathbf{D} en passant par l’intérieur des tétraèdres. Afin d’obtenir la seule autre possibilité (le cas “direct”), on peut au choix :

- remplacer tous les vecteurs \mathbf{D} par leurs opposés en gardant le même ordre pour les produits vectoriels ($\mathbf{D}_{12} \cdot (\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2) \rightarrow -\mathbf{D}_{12} \cdot (\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2)$).
- changer de convention et prendre l’ordre des produits vectoriels en tournant dans le sens direct autour des vecteurs \mathbf{D} , et en passant toujours par l’intérieur des tétraèdres ($\mathbf{D}_{12} \cdot (\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2) \rightarrow \mathbf{D}_{21} \cdot (\mathbf{S}_2 \times \mathbf{S}_1)$).

8.1.3 “Propagation” d’un tétraèdre à ses voisins sur le réseau pyrochlore

Pour trouver les interactions Dzyaloshinsky-Moriya pour les autres sites sur le réseau pyrochlore, il faut prendre en compte le fait que chaque site est un centre d’inversion pour le réseau entier. Ceci mène à la règle suivante pour la “propagation” de l’interaction d’un tétraèdre à l’autre : considérons trois sites alignés (voir figure 8.2), celui du milieu étant commun aux deux tétraèdres, et on suppose fixée l’interaction entre ce site et un des deux autres (par exemple entre les sites 1 et 2 de la figure 8.2). Il faut alors prendre pour l’autre interaction (entre les sites 2 et 3 de la figure 8.2) un vecteur \mathbf{D} parallèle à celui de la première interaction. Il peut être de même

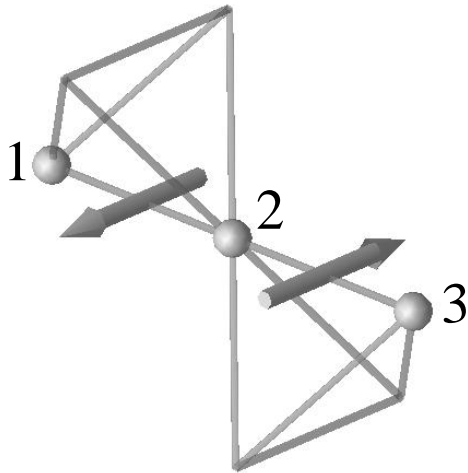


FIG. 8.2 – Propagation de l’interaction Dzyaloshinsky-Moriya d’un tétraèdre à son voisin. Pour les interactions qui concernent trois spins alignés, les vecteurs \mathbf{D} sont parallèles. Peu importe le sens des vecteurs, il faut respecter la convention choisie : l’ordre des spins dans les produits vectoriels est celui dans lequel il apparaissent en tournant toujours dans le sens direct (ou toujours dans le sens indirect) et en passant par l’intérieur des tétraèdres. Si on a pris la convention de tourner dans le sens direct, les vecteurs représentés sont \mathbf{D}_{21} et \mathbf{D}_{32}

sens ou de sens opposé, l’important est de conserver la même règle pour le produit vectoriel d’un tétraèdre à l’autre. Un exemple de propagation de l’interaction d’un tétraèdre à son voisin est donné sur la figure 8.2.

8.2 Minimisation de l’énergie pour un tétraèdre

On commence par s’intéresser à l’état fondamental d’un seul tétraèdre avec interactions Dzyaloshinsky-Moriya. On s’intéresse ici au problème avec des spins classiques. Le cas d’un tétraèdre isolé est intéressant car les structures magnétiques obtenues par simulations Monté Carlo sur le réseau pyrochlore (voir 8.3) ont des vecteurs de propagation $\mathbf{q} = \mathbf{0}$ (tous les tétraèdres ont la même structure magnétique), et l’étude de la structure magnétique sur un tétraèdre isolé est plus simple. Par ailleurs, la comparaison des résultats de minimisation de l’énergie sur un tétraèdre et des simulations Monté Carlo nous permettra de mettre en évidence une sélection entropique de certains états.

8.2.1 Cas “direct”

Pour le cas direct (voir figure 8.1 pour la définition des cas *direct* et *indirect*), la structure magnétique est unique, mis à part la symétrie par renversement de tous les spins. Elle est représentée sur la figure 8.3. Chaque spin pointe vers le centre de la face opposée, et bien que la présence d’interactions Dzyaloshinsky-Moriya ne soit

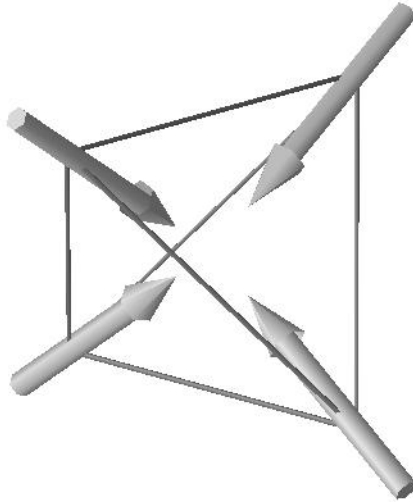


FIG. 8.3 – Etat fondamental avec des interactions Dzyaloshinsky-Moriya “directes” (voir figure 8.1 pour la définition de *direct* et *indirect*) pour un tétraèdre. Chaque spin pointe vers le centre de la face opposée. Seule reste la symétrie par inversion de tous les spins.

pas équivalente à des anisotropies sur site, l’anisotropie induite par les interactions Dzyaloshinsky-Moriya s’apparente ici à une anisotropie “axe facile”.

8.2.2 Cas “indirect”

Pour le cas indirect, deux types d’états sont obtenus par minimisation de l’énergie :

1. la structure est coplanaire, tous les spins sont dans la famille de plans (xy) , (yz) ou (zx) (voir figure 8.4). Supposons que la famille de plans (xy) soit sélectionnée, alors les deux spins appartenant au même plan (xy) sont anti-parallèles entre eux et tournés de $\frac{\pi}{2}$ par rapport aux deux autres. Le sens de la rotation est fixé par la minimisation des interactions Dzyaloshinsky-Moriya. Il reste un degré de liberté de rotation global dans le plan (xy) . Une telle structure est représentée sur la figure 8.4
2. Il subsiste un autre degré de liberté global : partant exactement de la structure représentée sur la figure 8.4 (mais pas d’une structure obtenue à partir de celle-ci par rotation de tous les spins dans le plan (xy)), on peut la déformer continuellement et obtenir une famille d’états dégénérés. Ces états sont décrits sur la figure 8.5. Ce ne sont pas des états coplanaires, mais ils relient les trois familles d’états coplanaires $((xy)$, (yz) et $(zx))$ entre elles tout en restant au minimum de l’énergie (voir figure 8.6).

Pour ce qui est de la minimisation de l’énergie, aucune différence n’est faite entre les deux types d’états coplanaires et non coplanaires ci-dessus, toutefois, on verra

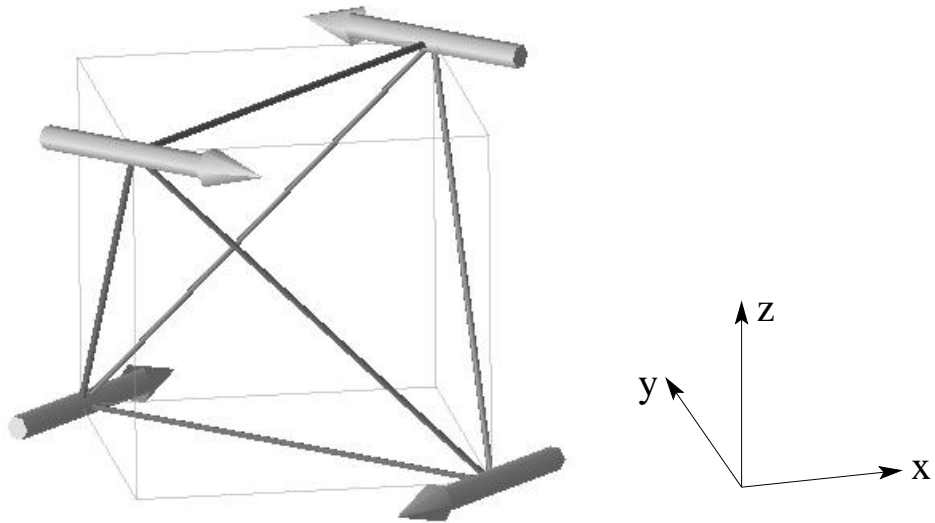


FIG. 8.4 – Un état de plus basse énergie dans le cas “indirect” (voir figure 8.1 pour la définition de *direct* et *indirect*) pour un tétraèdre. Il y a un degré de liberté de rotation globale dans le plan (xy). Les structures analogues avec les spins dans les plans (yz) et (zx) sont équivalentes.

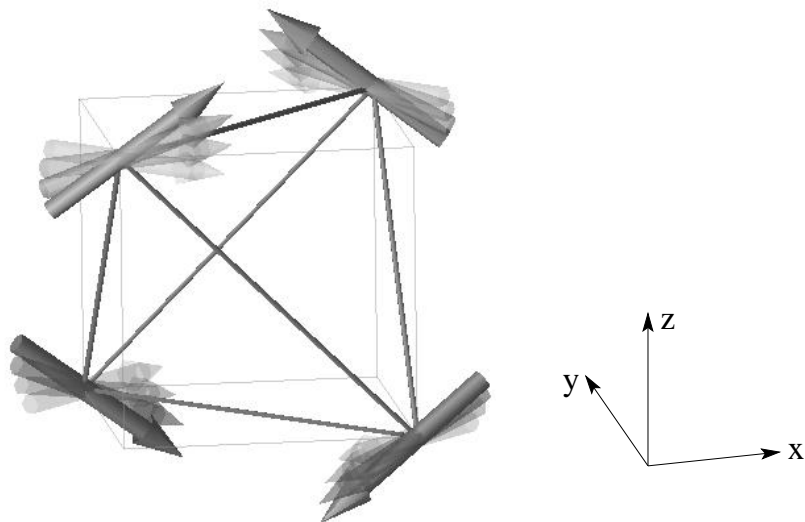


FIG. 8.5 – Exemple de structure non coplanaire de même énergie que les structures coplanaires de la figure 8.4. On déforme la structure de la figure 8.4 de la manière suivante : les deux spins du bas acquièrent la même composante en z , opposée à la composante en z des deux spins du haut. Simultanément, les deux spins du bas tournent autour de l’axe z du même angle mais en sens opposés, ils ne sont plus anti-parallèles. Idem pour les spins du haut.

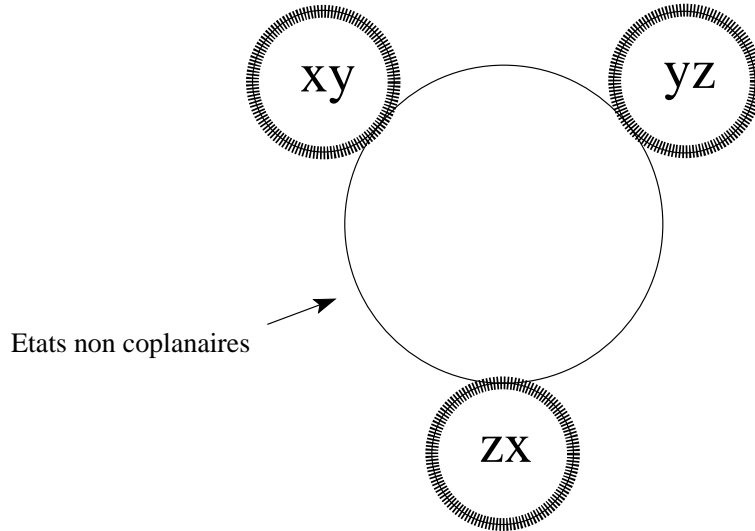


FIG. 8.6 – Espace des phases dans le cas “indirect”. *Toutes* les lignes représentées sont des minima de l’énergie. Les trois petits cercles représentent les structures coplanaires comme celles de la figure 8.4. On passe de l’une à l’autre en restant au minimum de l’énergie et en passant par des états non coplanaires. On a schématisé les fluctuations thermiques qui favorisent les structures coplanaires.

que les fluctuations thermiques favorisent les états coplanaires. Le résultat est déjà schématisé sur la figure 8.6.

Dans les deux cas, l’anisotropie induite par les interactions Dzyaloshinsky-Moriya indirectes *s’apparente* à une anisotropie planaire. Dans un cas les spins sont confinés dans un même plan, dans l’autre ils sont limités à certaines surfaces de l’espace.

8.3 Simulations Monté Carlo

La minimisation de l’énergie sur un tétraèdre est équivalente à la minimisation de l’énergie pour tout le réseau pyrochlore en se limitant à des structures magnétiques ayant pour vecteur de propagation $\mathbf{q} = \mathbf{0}$ (la maille magnétique est composée d’un tétraèdre). Un premier intérêt des simulations Monté Carlo est donc de minimiser l’énergie (libre), en faisant baisser la température, sans hypothèse sur le vecteur de propagation. Le second intérêt des simulations Monté Carlo est de prendre en compte les fluctuations thermiques. Dans le cas “indirect”, on a identifié deux types d’états fondamentaux. Comme on le verra, ils ne sont pas équivalents du point de vue des fluctuations thermiques, et la prise en compte de ces dernières se révèle être un facteur important dans la détermination des propriétés magnétiques du système.

8.3.1 Détails techniques

Toutes les simulations ont été effectuées sur des réseaux de taille $L = 3$, comportant $16 \times L^3 = 432$ spins. A chaque température, 1000000 pas Monté Carlo (par

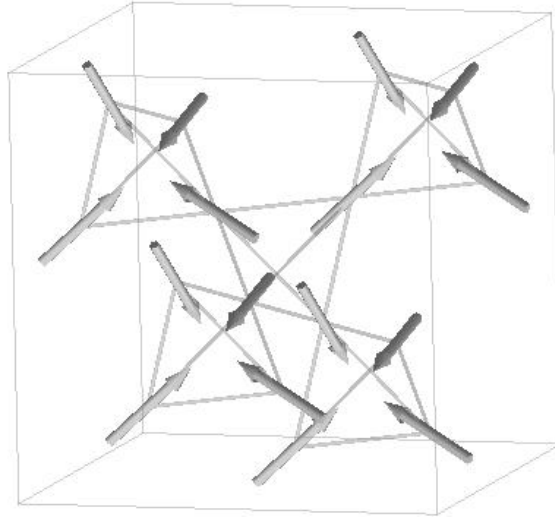


FIG. 8.7 – Structure magnétique induite par des interactions Dzyaloshinsky-Moriya “directes” (voir figure 8.1 pour une définition de “direct”) dans le réseau pyrochlore. Les spins pointent selon les hauteurs des tétraèdres, vers l’intérieur ou l’extérieur des tétraèdres un tétraèdre sur deux.

spin) ont été effectués pour mettre en équilibre le système puis les grandeurs thermodynamiques (l’énergie, la chaleur spécifique et le paramètre de coplanarité) sont calculées avec un échantillonnage de 1000000 mesures espacées les unes des autres de 10 pas Monté Carlo afin de décorréler les mesures les unes des autres. Enfin, la température était abaissée logarithmiquement afin de trouver la structure magnétique qui minimisait l’énergie libre.

8.3.2 Cas direct

Dans le cas “direct”, la structure obtenue a une maille magnétique qui est formée d’un tétraèdre. Les quatre spins pointent selon les hauteurs du tétraèdre, tous vers le centre ou tous vers l’extérieur du tétraèdre, un tétraèdre sur deux. Ceci revient donc à propager, avec un vecteur de propagation $\mathbf{q} = \mathbf{0}$ et selon les vecteurs de translation du réseau cfc sous-jacent au réseau pyrochlore, la structure obtenue précédemment sur un tétraèdre. La structure magnétique est représentée sur la figure 8.7.

8.3.3 Cas indirect : “sélection entropique”

Dans le cas indirect, on constate que les structures obtenues à basse température ont également des mailles magnétiques formées d’un tétraèdre. On pourrait s’attendre donc comme dans le cas “direct” à ce que la structure du réseau entier s’obtienne en reproduisant la maille magnétique obtenue par minimisation de l’énergie sur un tétraèdre. Les états qui minimisent l’énergie sur un tétraèdre se classent en deux familles, des états coplanaires et des états non coplanaires (voir 8.2.2). Les états coplanaires sont eux mêmes divisés en trois groupes selon le plan sélectionné

((xy), (yz) ou (zx)), et l'on peut passer continûment (en restant au minimum de l'énergie) d'un plan à l'autre. Cette déformation implique le passage par des états non coplanaires.

On constate lors des simulations que le système fluctue toujours autour d'un des états coplanaires. Toutefois, comme la température est finie et que le système est de taille finie, il "saute" d'un état coplaire vers un autre au cours du temps (c'est à dire au cours des pas Monté Carlo) en passant par des états non coplanaires. Afin de quantifier cette sélection des états coplanaires, on définit un paramètre de coplanarité :

$$\mathcal{C} = 1 - \frac{3}{N} \min \left(\sum_{\text{spins}} S_{i,x}^2, \sum_{\text{spins}} S_{i,y}^2, \sum_{\text{spins}} S_{i,z}^2 \right) \quad (8.2)$$

\mathcal{C} vaut 1 dans le cas de structures coplanaires dans un des plans (xy), (yz) ou (zx).

La figure 8.8 représente l'évolution du paramètre de coplanarité en fonction de la température. On voit qu'au fur et à mesure que la température est abaissée, les états coplanaires sont sélectionnés. Pourtant, du point de vue énergétique, ceux-ci sont dégénérés avec des états non coplanaires. La coplanarité qui apparaît est donc le résultat d'une sélection entropique par les fluctuations thermiques d'un sous-ensemble d'états parmi des états dégénérés énergétiquement. Il est délicat de parler de véritable "ordre par le désordre" [111, 100], car avant que cette sélection ne s'effectue (donc à température nulle), tous les états de plus basse énergie présentent un ordre à longue portée. Il ne subsiste que des degrés de liberté globaux, soit des rotations globales, soit des déformations globales plus complexes, mais il ne subsiste pas de degrés de liberté locaux : fixer un spin fige toute la structure. Les fluctuations thermiques ne font que lever partiellement cette dégénérescence globale, mais ne sont pas véritablement à l'origine de l'ordre dans le système.

A température nulle, les états non coplanaires permettaient de passer d'un état coplaire vers un autre en modifiant continûment la structure magnétique tout en restant au minimum de l'énergie. A température finie, le système ne minimise pas son énergie, mais son énergie libre : $F = E - TS$, et la différence d'entropie qui apparaît entre des configurations dégénérées énergétiquement est à l'origine de la sélection de certains états au détriment des configurations de basse entropie [111, 100]. Les états coplanaires sont donc ici des minima de l'énergie libre, séparés par des barrières dont la hauteur est de l'ordre de $T\Delta S$, avec ΔS la différence d'entropie entre deux configurations coplaire et non coplaire. On peut penser que dans la limite thermodynamique ces barrières d'énergie libre conduisent à une brisure de symétrie et que le système restera dans un seul plan. Cette question n'a pas été abordée dans ce travail.

8.4 Composés

La structure obtenue avec des interactions Dzyaloshinsky-Moriya "directes" est celle de FeF_3 [31]. Dans ce composé les anisotropies sur sites ont été estimées à $\sim 0.1K$ [95] et ne peuvent pas rendre compte de la transition de phase à 15 K [91, 75]. La transition de phase peut être expliquée par des interactions ferromagné-

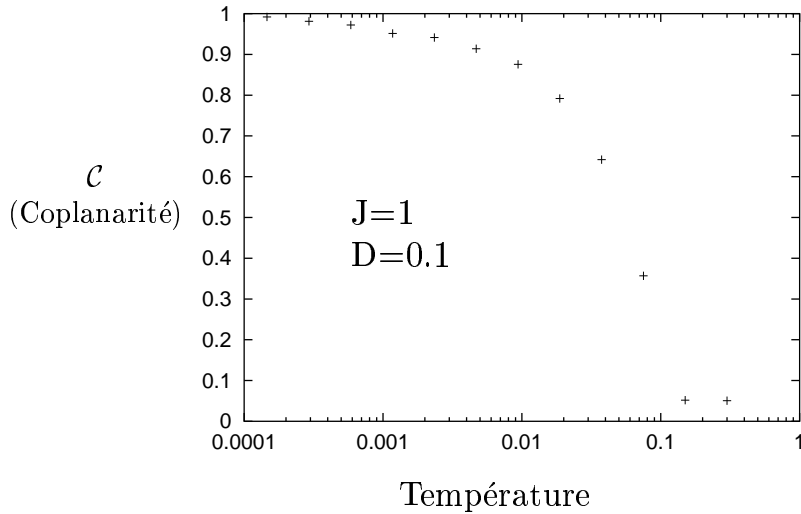


FIG. 8.8 – Evolution du paramètre de coplanarité \mathcal{C} (voir équation 8.2) en fonction de la température. Bien que des états non coplanaires soient dégénérés énergétiquement avec les états coplanaires, ces derniers sont sélectionnés entropiquement et dominent le comportement du système à basse température.

tiques entre troisièmes voisins [90, 95] ou par des interactions Dzyaloshinsky-Moriya entre premiers voisins. Il semble difficile à l’heure actuelle de trancher entre les deux scénarios.

La structure magnétique du composé ZnCr_2O_4 a plusieurs caractéristiques (anisotropies planaires dans les plans $\langle 100 \rangle$, moments à $\frac{\pi}{2}$ les uns des autres d’un plan $\langle 100 \rangle$ au suivant...) qui laissent penser que des interactions Dzyaloshinsky-Moriya sont présentes. La structure expérimentale de ce composé n’est toutefois pas entièrement déterminée à l’heure actuelle. D’autres composés sont dans la même situation, mais un effort supplémentaire est nécessaire dans cette direction.

8.5 Conclusion

Le géométrie du réseau pyrochlore, de même que celle du réseau kagomé est compatible avec des interactions Dzyaloshinsky-Moriya. Dans le réseau pyrochlore parfait (sans abaisser plus la symétrie par la présence d’autres atomes non magnétiques), seuls deux types d’interactions Dzyaloshinsky-Moriya (nommées dans ce travail “directe” et “indirecte”) sont autorisées. Dans tous les cas la prise en compte de ces interactions détruit l’état liquide de spins (classique) du système avec interactions antiferromagnétiques seules au profit d’un état ordonné. Dans le cas “indirect”, à température nulle il reste une dégénérescence globale du système qui est partiellement levée par les fluctuations thermiques qui sélectionnent des états coplanaires. Le rôle des fluctuations quantiques est très brièvement considéré en annexe (§B.4) mais ne devrait pas être primordiale du fait qu’il s’agit d’un ordre magnétique à trois dimensions. Le lien avec la structure magnétique de certains composés reste à faire.

Les interactions Dzyaloshinsky-Moriya ne sont pas les seules interactions d'échange anisotropes compatibles avec la géométrie du réseau pyrochlore : des interactions symétriques anisotropes peuvent également exister dans les composés pyrochlores. Une étude de ces interactions a débuté : il semblerait que dans la majorité des cas possibles les interactions anisotropes induisent un ordre à longue portée. La détermination des structures magnétiques exactes est en cours...

Conclusions et perspectives

Le travail présenté dans cette thèse se divise en deux parties. La première est consacrée à l'étude de l'hamiltonien de Heisenberg quantique ($S = \frac{1}{2}$) sur les réseaux pyrochlore et damier. L'approche utilisée consiste à prendre en compte des propriétés déjà connues de ces systèmes (état fondamental liquide de spins singulet avec des corrélations à courte portée, premières excitations singulet-singulet...) pour tronquer l'espace de Hilbert en ne gardant que des états pertinents pour décrire le comportement à basse température. Ce faisant, on a dérivé un hamiltonien effectif restreint au secteur singulet, puis on l'a résolu dans l'approximation du champ moyen. L'état fondamental obtenu pour le réseau pyrochlore a été décrit. Pour le réseau damier, d'autres études ont montré que l'approche utilisée ici n'était pas appropriée. Les résultats obtenus sont néanmoins valables pour $J' < J_c$ où J_c est une certaine valeur critique plus petite que J .

L'étude de l'état fondamental du réseau pyrochlore avec des spins $S = \frac{1}{2}$ est loin d'être achevée. La méthode appliquée brise la symétrie de translation du réseau artificiellement. Par nature elle impose que les résonances entre singulets se feront sur un des deux sous-réseaux de tétraèdres. Il semblerait judicieux d'appliquer des méthodes où les résonances peuvent avoir lieu sur *tous* les tétraèdres afin de justifier ou de mettre en défaut l'approche ci-dessus. Des tentatives ont été faites dans ce sens mais n'ont pas (encore?) abouti.

La seconde partie de cette thèse traite des interactions Dzyaloshinsky-Moriya dans les réseaux kagomé et pyrochlore. Pour le premier de ces réseaux, deux cas ont été considérés : celui d'un réseau kagomé "pur" et celui d'un réseau kagomé avec un environnement non magnétique qui abaisserait la symétrie. Ceci a été fait (et justifié) dans le but d'expliquer la mise en ordre dans des phases coplanaires ou faiblement ferromagnétiques de certains composés jarosites. Des arguments de symétrie simples (règles de Moriya) et des calculs microscopiques ont permis de déduire les interactions Dzyaloshinsky-Moriya possibles dans ces réseaux. Les propriétés magnétiques qui en résultent ont été sondées par simulations Monté Carlo et dans l'approximation du champ moyen. On trouve que la présence d'interactions Dzyaloshinsky-Moriya induit un ordre magnétique à longue portée. Les structures des états fondamentaux ont été explicitées et un diagramme de phase en fonction des différentes interactions Dzyaloshinsky-Moriya possibles a été obtenu. La transition de phase est du second ordre, et on a obtenu la température critique en fonction de l'interaction Dzyaloshinsky-Moriya pour certaines géométries. Le résultat essentiel est que $T_c \sim D$, et de façon plus générale, que les interactions de Dzyaloshinsky-Moriya, même faibles par rapport à l'échange isotrope ne sont pas une "perturbation" : dès lors qu'elles sont présentes, elles sont à l'origine de la mise en ordre du système.

Enfin les fluctuations quantiques ont été considérées et sont de peu d'importance sauf peut-être pour le cas de spins $S = \frac{1}{2}$. Les résultats expérimentaux sur certains composés jarosites sont bien expliqués par des interactions Dzyaloshinsky-Moriya comme cela a été montré.

On a montré que la transition de phase est du second ordre, mais sa nature (Kosterlitz-Thouless, Ising...) reste à déterminer. On s'attend à différents types de transitions selon la symétrie de l'interaction Dzyaloshinsky-Moriya.

Le travail sur le réseau pyrochlore reste à finaliser. En particulier le lien avec les composés (FeF_3 , ZnCr_2O_4 ...) semble prometteur mais nécessite une étude plus approfondie. Un autre point qui reste inachevé est de savoir si la barrière entropique qui apparaît peut conduire à une brisure de symétrie dans la limite thermodynamique et donc à la sélection d'un état d'ordre à longue portée coplanaire ?

De façon plus générale, cette étude a montré le rôle important que peuvent avoir les anisotropies dans les interactions pour expliquer la mise en ordre de certains composés fortement frustrés. Les interactions anisotropes ne se limitent pas aux interactions Dzyaloshinsky-Moriya, il existe également des interactions anisotropes symétriques dont l'effet n'a pas été étudié ici. Leur prise en compte pourrait être à l'origine de certains comportements inexpliqués tels que la mise en ordre du composé $\text{Gd}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$.

Bibliographie

- [1] P.W. ANDERSON, *Phys. Rev.* **86**, 694 (1952)
- [2] P.W. ANDERSON, *Phys. Rev.* **102**, 1008 (1956)
- [3] P.W. ANDERSON, *Phys. Rev.* **115**, 2 (1959)
- [4] R. BALLOU, E. LELIÈVRE-BERNA et B. FÅK, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 2125 (1996)
- [5] T. ARIMORI et H. KAWAMURA, *J. Phys. Soc. Jap.* **70**, 3695 (2001)
- [6] E. BERG, E. ALTMAN et A. AUERBACH, *cond-mat/0206384*
- [7] E.F. BERTAUT, *J. Phys. Chem. Solids* **21**, 256 (1961)
- [8] K. BINDER et D.W. HEERMANN. *Monte Carlo Simulations in Statistical Physics, an Introduction*. Springer Series in Solid-State Sciences **80**, Springer-Verlag, 1988
- [9] S.T. BRAMWELL et M.J.P. GINGRAS, *Science* **294**, 1495 (2001)
- [10] S.T. BRAMWELL et M.J. HARRIS, *J. Phys. : Cond. Matt.* **10**, 215 (1998)
- [11] S.T. BRAMWELL, M.J. HARRIS, B.C. DEN HERTOOG, M.J.P. GINGRAS, J.S. GARDNER, D.F. MCMORROW, A.R. WILDES, A.L. CORNELIUS, J.D.M. CHAMPION, R.G. MELKO et T. FENNELL, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 047205 (2001)
- [12] W. BREINIG et A. HONECKER, *Phys. Rev. B* **65**, 140407 (2002)
- [13] P. BRUNO *Phys. Rev. Lett.* **87**, 137203-1/4 (2001)
- [14] B. CANALS *Phys. Rev. B* **65**, 184408 (2002)
- [15] B. CANALS *Communication privée*
- [16] B. CANALS et D.A. GARANIN, *Can. J. Phys.* **79**, 1323 (2001)
- [17] B. CANALS et C. LACROIX, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 2933 (1998)
- [18] B. CANALS, M. MAMBRINI et F. MILA, *Communication privée*
- [19] B. CANALS et C. LACROIX, *Phys. Rev. B* **61**, 1149 (2000)
- [20] W.J. CASPER. *Spin Systems*. World Scientific, 1989.
- [21] J.T. CHALKER, P.C.W. HOLDSWORTH et E.F. SHENDER, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 855 (1992)
- [22] M.S.S. CHALLA, D.P. LANDAU et K. BINDER, *Phys. Rev. B* **34**, 1841 (1986)
- [23] J.D.M. CHAMPION, A.S. WILLS, T. FENNELL, S.T. BRAMWELL, J.S. GARDNER et M.A. GREEN, *Phys. Rev. B* **64**, 140407 (2001)
- [24] P. CHANDRA, P. COLEMAN et I. RITCHEY, *J. Phys. I. France* **3**, 591 (1993)
- [25] P. CHANDRA et B. DOUÇOT, *Phys. Rev. B* **38**, 9335 (1988)

- [26] D. COFEY, K.S. BEDELL et S.A. TRUGMAN, *Phys. Rev. B* **42**, 6509 (1990)
- [27] B. COQBLIN, *The Electronic Structure of Rare-Earth Metals and Alloys : the Magnetic Heavy Rare-Earths*, Academic Press, chapitre 3.2, 1977.
- [28] B.C. DEN HERTOEG et M.J.P. GINGRAS, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 3430 (2000)
- [29] B. DIU, C. GUTHMANN, D. LEDERER et B. ROULET. *Physique Statistique*. Hermann, 1989.
- [30] I. DZYLALOSHINSKY, *J. Phys. Chem. Solids* **4**, 241 (1958)
- [31] G. FERREY, R. DE PAPE, M. LEBLANC et J. PANNETIER, *Rev. Chim. Min.* **23**, 474 (1986)
- [32] A. FERT et P.M. LEVY, *Phys. Rev. Lett.* **44**, 1538 (1980)
- [33] J.B. FOUET, P. SINDZINGRE et C. LHUILLIER, *Eur. Phys. J. B* **20**, 241 (2001)
- [34] J.B. FOUET, M. MAMBRINI, P. SINDZINGRE et C. LHUILLIER, *cond-mat/0108070*
- [35] D.A. GARANIN et B. CANALS, *Phys. Rev. B* **59**, 443 (1999)
- [36] J.S. GARDNER, B.D. GAULIN, A.J. BERLINSKY, P. WALDRON, S.R. DUNSIGER, N.P. RAJU et J.E. GREEDAN, *Phys. Rev. B* **64**, 224416 (2001)
- [37] M.J.P. GINGRAS, C.V. STAGER, N.P. RAJU, B.D. GAULIN et J.E. GREEDAN, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 947 (1997)
- [38] F.D.M. Haldane, *Phys. Lett. A* **93**, 464 (1983)
- [39] A.B. HARRIS, A.J. BERLINSKY et C. BRUDER, *J. Appl. Phys.* **69**, 5200 (1991)
- [40] A.B. HARRIS, C. KALLIN et A.J. BERLINSKY, *Phys. Rev. B* **45**, 2899 (1992)
- [41] M.J. HARRIS, S.T. BRAMWELL, P.C.W. HOLDSWORTH et J.D.M. CHAMPION, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 4496 (1998)
- [42] M.J. HARRIS, S.T. BRAMWELL, D.F. MCMORROW, T. ZEISKE et K.W. GODFREY, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 2554 (1997)
- [43] M.J. HARRIS et M.P. ZINKIN, *Mod. Phys. Lett.* **10**, 417 (1996)
- [44] A.K. HASSAN, L.P. LEVY, C. DARIE et P. STROBEL, *cond-mat/0205224*
- [45] T. HOLSTEIN et H. PRIMAKOFF, *Phys. Rev.* **58**, 1098 (1940)
- [46] T. INAMI, T. MORIMOTO, M. NISHIYAMA, S. MAEGAWA, Y. OKA et H. OKUMURA, *Phys. Rev. B* **64**, 054421 (2001)
- [47] T. INAMI, M. NISHIYAMA, S. MAEGAWA et Y. OKA, *Phys. Rev. B* **61**, 12181 (2000)
- [48] M. ISODA et S. MORI, *J. Phys. Soc. Jap.* **67**, 4022 (1998)
- [49] M. JOHNSON, K.W. TÖRNROOS, F. MILA et P. MILLET, *Chem. Mater.* **12**, 2853 (2000)
- [50] T. JOLICOEUR et J.C. LE GUILLOU, *Phys. Rev. B* **40**, 2727 (1989)
- [51] H. KADOWAKI, Y. ISHII, K. MATSUHIRA et Y. HINATSU, *Phys. Rev. B* **65**, 144421 (2002)
- [52] K. KANO et S. NAYA, *Prog. Theor. Phys.* **10**, 158 (1953)
- [53] Y.J. KAO, M. ENJALRAN et M.J.P. GINGRAS, *cond-mat/0207270*

- [54] T.A. KAPLAN, *Z. Phys. B* **49**, 313 (1983)
- [55] H. KAWAMURA et T. ARIMORI, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 077202 (2002)
- [56] Y. KOBAYASHI, T. TAKAGI et M. MEKATA, *J. Phys. Soc. Jap.* **67**, 3906 (1998)
- [57] V.N. KOTOV, M.E. ZHITOMIRSKY et O.P. SUSHKOV, *Phys. Rev. B* **63**, 064412 (2001)
- [58] W. KRAUTH. *Introduction to Monte Carlo algorithms.* cond-mat/9612186 (1996).
- [59] P. LECHEMINANT, B. BERNU, C. LHUILLIER, L. PIERRE et P. SINDZINGRE, *Phys. Rev. B* **56**, 2521 (1997)
- [60] S.H. LEE, C. BROHOLM, M.F. COLLINS, L. HELLER, A.P. RAMIREZ, C. KLOC, E. BUCHER, R.W. ERWIN et N. LACEVIC, *Phys. Rev. B* **56**, 8091 (1997)
- [61] P. LEMMENS, K.Y. CHOI, E.E. KAUL, C. GEIBEL, K. BECKER, W. BRENIG, R. VALENTI, C. GROS, M. JOHNSON, P. MILLET et F. MILA, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 227201 (2001)
- [62] P.M. LEVY et A. FERT, *Phys. Rev. B* **23**, 4667 (1981)
- [63] E.H. LIEB et P. SCHUPP, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 5362 (1999)
- [64] C. LHUILLIER et G. MISGUICH, *cond-mat/0109146* (2001)
- [65] C. LHUILLIER, P. SINDZINGRE et J.B. FOUET, *Can. J. Phys.* **79**, 1525 (2001).
- [66] M. MAMBRINI et F. MILA, *Eur. Phys. J. B* **17**, 651 (2000)
- [67] E. MANOUSAKIS, *Review of Modern Physics* **63**, 1 (1991)
- [68] K. MATSUHIRA, Y. HINATSU, K. TENYA et T. SAKAKIBARA, *J. Phys. : Cond. Matt.* **12**, 649 (2000)
- [69] A. MATTSSON, P. FRÖJDH et T. EINARSSON, *Phys. Rev. B* **49**, 3997 (1994)
- [70] N.D. MERMIN et H. WAGNER, *Phys. Rev. Lett.* **17**, 1133 (1966)
- [71] F. MILA, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 2356 (1998)
- [72] F. MILA, *Eur. J. Phys.* **21**, 499 (2000)
- [73] F. MILA et D. DEAN, *Eur. Phys. J. B* **26**, 301 (2002)
- [74] F. MILA, communication privée
- [75] R. MOESSNER, *Phys. Rev. B* **57**, 5587 (1998)
- [76] R. MOESSNER et J.T. CHALKER, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 2929 (1998)
- [77] R. MOESSNER et J.T. CHALKER, *Phys. Rev. B* **58**, 12049 (1998)
- [78] C. MONDELLI, H. MUTKA et C. PAYEN, *Can. J. Phys.* **79**, 1401 (2001)
- [79] T. MORIYA *Phys. Rev. Lett.* **4**, 228 (1960)
- [80] T. MORIYA *Phys. Rev* **120**, 91 (1960)
- [81] S.E. PALMER et J.T. CHALKER, *Phys. Rev. B* **62**, 488 (2000)
- [82] S.E. PALMER et J.T. CHALKER, *Phys. Rev. B* **64**, 094412 (2001)
- [83] L. PAULING, *The Nature of the Chemical Bond.* Cornell Press University, 1938
- [84] C. PINETTES, B. CANALS et C. LACROIX, *Phys. Rev. B* **66**, 024422 (2002)
- [85] M.L. PLUMER, H. KAWAMURA et A. CAILLÉ, *Phys. Rev. B* **43**, 13786 (1991)

- [86] N.P. RAJU, M. DION, M.J.P. GINGRAS, T.E. MASON et J.E. GREEDAN, *Phys. Rev. B* **59**, 14489 (1999)
- [87] A.P. RAMIREZ, G.P. ESPINOSA et A.S. COOPER, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2070 (1990)
- [88] A.P. RAMIREZ, *Annu. Rev. Mater. Sci.* **24**, 453 (1994)
- [89] A.P. RAMIREZ, A. HAYASHI, R.J. CAVA, R. SIDDHARTHAN et B.S. SHASTRY, *Nature* **399**, 333 (1999)
- [90] J.N. REIMERS, A.J. BERLINSKY et A.C. SHI, *Phys. Rev. B* **43**, 865 (1991)
- [91] J.N. REIMERS, J.E. GREEDAN, C.V. STAGER, M. BJÖRGVINNSEN et M.A. SUBRAMANIAN, *Phys. Rev. B* **43**, 5692 (1991)
- [92] N. READ et S. SACHDEV, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 1694 (1989)
- [93] N. READ et S. SACHDEV, *Phys. Rev. B* **42**, 4568 (1990)
- [94] J.N. REIMERS, *Phys. Rev. B* **45**, 7287 (1992)
- [95] J.N. REIMERS, J.E. GREEDAN et M. BJÖRGVINSSON, *Phys. Rev. B* **45**, 7295(1992)
- [96] J.N. REIMERS et A.J. BERLINSKY, *Phys. Rev. B* **48**, 9539 (1993)
- [97] S. SACHDEV, *Phys. Rev. B* **45**, 12377 (1992)
- [98] P. SCHIFFER et A.P. RAMIREZ, *Comments Cond. Mat. Phys.* **18**, 21 (1996)
- [99] L. SHEKHTMAN, O. ENTIN-WOHLMAN et A. AHARONY, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 836 (1992)
- [100] E.F. SHENDER et P.C.W. HOLDSWORTH, *Order by disorder and topology in frustrated magnetic systems*, Springer-Verlag (1996)
- [101] R. SIDDHARTHAN, B.S. SHASTRY, A.P. RAMIREZ, A. HAYASHI, R.J. CAVA et S. ROSENKRANZ, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 1854 (1999)
- [102] P. SINDZINGRE, G. MISGUICH, C. LHUILLIER, B. BERNU, L. PIERRE, C. WALDTMANN et H.U. EVERTS, *Phys. Rev. Lett.* **84** (2000)
- [103] J.C. SLATER et G.F. KOSTER, *Phys. Rev.* **94**, 1498 (1954)
- [104] D.A. SMITH, *J. Magn. Magn. Mat.* **1**, 214 (1976)
- [105] I. SYÔZI, *Prog. Theor. Phys.* **6**, 306 (1951)
- [106] M.G. TOWNSEND, G. LONGWORTH et E. ROUDAUT, *Phys. Rev. B* **33**, 4919 (1986)
- [107] E. du TRÉMOLET de LACHEISSERIE, *Magnétisme, Tome I : Fondements*, Presses Universitaires de Grenoble, chapitre 9, 1999
- [108] H. TSUNETSUGU, *J. Phys. Soc. Jap.* **70**, 640 (2001)
- [109] H. TSUNETSUGU, *Phys. Rev. B* **65**, 024415 (2001)
- [110] J. VILLAIN, *Z. Phys. B* **33**, 31 (1979)
- [111] J. VILLAIN, R. BIDAUX, J.P. CARTON et R. CONTE, *J. Phys.* **41**, 1263 (1980)
- [112] A. VOIGT et J. RICHTER, *J. Phys. : Cond. Matt.* **8**, 5059 (1996)
- [113] C. WALDTAMANN, H.U. EVERTS, B. BERNU, C. LHUILLIER, P. SINDZINGRE, P. LECHÉMINANT et L. PIERRE, *Eur. Phys. J. B* **2**, 501 (1998)

- [114] G.H. WANNIER, *Phys. Rev.* **79**, 357 (1950)
- [115] G.I. WATSON, *J. Stat. Phys.* **94**, 1045 (1999)
- [116] A.S. WILLS, *Phys. Rev. B* **63**, 064430 (2001)
- [117] A.S. WILLS, R. BALLOU et C. LACROIX, *Communication privée*
- [118] A.S. WILLS, A. HARRISON, S.A.M. MENTINK, T.E. MASON et Z. Tun, *Europhys. Lett.* **42**, 325 (1998)
- [119] A.S. WILLS, V. DUPUIS, E. VINCENT, J. HAMMANN et R. CALEMCZUK, *Phys. Rev. B* **62**, 9264 (2000)
- [120] A.S. WILLS, A. HARRISON, C. RITTER et R.I. SMITH, *Phys. Rev. B* **61**, 6156 (2000)
- [121] C. ZENG et V. ELSER, *Phys. Rev. B*, **42**, 8436 (1990)
- [122] C. ZENG et V. ELSER, *Phys. Rev. B*, **51**, 8318 (1995)

Quatrième partie

Annexes

Annexe A

Hamiltonien effectif sur les réseaux pyrochlore et damier

Sommaire

A.1 Etats propres pour un tétraèdre	105
A.2 Interactions effectives dans le pyrochlore	107
A.2.1 Corrections à l'énergie	107
A.2.2 Interactions effectives	107
A.2.3 Interactions étendues à tout le réseau	108
A.3 Champ moyen	109
A.3.1 Structures magnétiques à un vecteur de propagation	109
A.3.2 Champ moyen à plusieurs sous-réseaux et $\mathbf{q} = \mathbf{0}$	110
A.3.3 Solution à quatre sous-réseaux pour le pyrochlore	111
A.4 Interactions effectives dans le damier	112
A.4.1 Contributions au deuxième ordre	113
A.4.2 Contributions au troisième ordre	113
A.5 Champ moyen pour le réseau damier : solutions à deux sous-réseau	114
A.6 Réseau carré avec des interactions entre seconds voisins	114

A.1 Etats propres pour un tétraèdre

On obtient les niveaux d'énergie de l'hamiltonien de Heisenberg pour quatre spins tous en interaction les uns avec les autres de la façon suivante :

$$H = \frac{J}{2} \sum_{i \neq j=1}^4 \mathbf{s}_i \cdot \mathbf{s}_j = \frac{J}{2} (S(S+1) - 4s(s+1)) = \frac{J}{2} (S(S+1) - 3) \quad (\text{A.1})$$

La dernière égalité est valable pour des spins $s = \frac{1}{2}$ ce qui est le cas ici. Le nombre quantique S permet d'indexer les niveaux d'énergie. Cet hamiltonien commute avec les opérateurs $\mathbf{S}^2 = (\sum_i \mathbf{s}_i)^2$ et $S^z = \sum_i s_i^z$. Les coefficients de Clebsch-Gordan permettent d'obtenir les états propres pour ces deux opérateurs, et donc les états propres du système (voir table A.1).

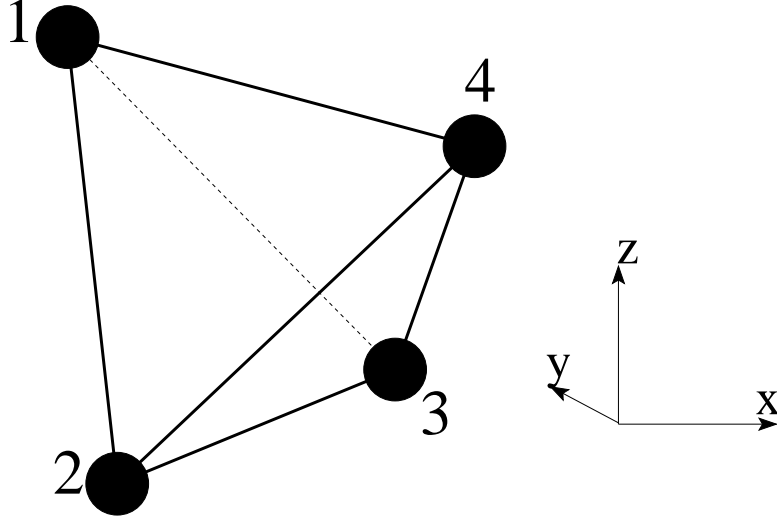


FIG. A.1 – Numérotation des sites sur un tétraèdre. Par exemple le ket $|\uparrow\uparrow\downarrow\downarrow\rangle$ correspond à l'état où les spins 1 et 3 sont dans l'état $|S^z = \frac{1}{2}\rangle$ et les spins 2 et 4 dans l'état $|S^z = -\frac{1}{2}\rangle$.

	E	S	S^z	
$ T^z = \frac{1}{2}\rangle$	$-\frac{3J}{2}$	0	0	$\frac{1}{\sqrt{3}}(\uparrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle + \downarrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle) - \frac{1}{2\sqrt{3}}(\downarrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle + \uparrow\downarrow\uparrow\downarrow\rangle + \uparrow\uparrow\downarrow\downarrow\rangle + \downarrow\downarrow\uparrow\uparrow\rangle)$
$ T^z = -\frac{1}{2}\rangle$	$-\frac{3J}{2}$	0	0	$\frac{1}{2}(\uparrow\uparrow\downarrow\downarrow\rangle + \downarrow\downarrow\uparrow\uparrow\rangle - \downarrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle - \uparrow\downarrow\downarrow\uparrow\rangle)$
	$-\frac{J}{2}$	1	1	$\frac{1}{\sqrt{2}}(\uparrow\uparrow\uparrow\uparrow\rangle - \downarrow\downarrow\downarrow\downarrow\rangle)$
	$-\frac{J}{2}$	1	0	$\frac{1}{2}(\uparrow\uparrow\downarrow\downarrow\rangle + \uparrow\downarrow\uparrow\uparrow\rangle - \downarrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle - \downarrow\downarrow\downarrow\uparrow\rangle)$
	$-\frac{J}{2}$	1	-1	$\frac{1}{\sqrt{2}}(\uparrow\downarrow\downarrow\downarrow\rangle - \downarrow\uparrow\uparrow\uparrow\rangle)$
	$-\frac{J}{2}$	1	1	$\sqrt{\frac{2}{3}} \uparrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle - \frac{1}{\sqrt{6}}(\uparrow\downarrow\uparrow\uparrow\rangle + \downarrow\uparrow\uparrow\uparrow\rangle)$
	$-\frac{J}{2}$	1	0	$\frac{1}{\sqrt{3}}(\uparrow\uparrow\downarrow\downarrow\rangle - \downarrow\downarrow\uparrow\uparrow\rangle) + \frac{1}{2\sqrt{3}}(\uparrow\downarrow\downarrow\uparrow\rangle + \downarrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle - \uparrow\downarrow\uparrow\downarrow\rangle - \downarrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle)$
	$-\frac{J}{2}$	1	-1	$\frac{1}{\sqrt{6}}(\uparrow\downarrow\downarrow\downarrow\rangle + \downarrow\uparrow\uparrow\uparrow\rangle) - \sqrt{\frac{2}{3}} \downarrow\downarrow\uparrow\downarrow\rangle$
	$-\frac{J}{2}$	1	1	$\frac{\sqrt{3}}{2} \uparrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle - \frac{1}{2\sqrt{3}}(\uparrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle + \uparrow\downarrow\uparrow\uparrow\rangle + \downarrow\uparrow\uparrow\uparrow\rangle)$
	$-\frac{J}{2}$	1	0	$\frac{1}{\sqrt{6}}(\uparrow\uparrow\downarrow\downarrow\rangle + \uparrow\downarrow\uparrow\uparrow\rangle - \uparrow\downarrow\uparrow\downarrow\rangle + \downarrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle - \uparrow\downarrow\downarrow\uparrow\rangle - \downarrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle)$
	$-\frac{J}{2}$	1	-1	$\frac{1}{2\sqrt{3}}(\uparrow\downarrow\downarrow\downarrow\rangle + \downarrow\uparrow\uparrow\uparrow\rangle + \downarrow\downarrow\uparrow\downarrow\rangle) - \frac{\sqrt{3}}{2} \downarrow\downarrow\uparrow\uparrow\rangle$
	$\frac{3J}{2}$	2	2	$ \uparrow\uparrow\uparrow\uparrow\rangle$
	$\frac{3J}{2}$	2	1	$\frac{1}{2}(\uparrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle + \uparrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle + \uparrow\downarrow\uparrow\uparrow\rangle + \downarrow\uparrow\uparrow\uparrow\rangle)$
	$\frac{3J}{2}$	2	0	$\frac{1}{\sqrt{6}}(\uparrow\uparrow\downarrow\downarrow\rangle + \uparrow\downarrow\uparrow\uparrow\rangle + \uparrow\downarrow\uparrow\downarrow\rangle + \downarrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle + \uparrow\downarrow\downarrow\uparrow\rangle + \downarrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle)$
	$\frac{3J}{2}$	2	-1	$\frac{1}{2}(\uparrow\downarrow\downarrow\downarrow\rangle + \downarrow\uparrow\uparrow\uparrow\rangle + \downarrow\downarrow\uparrow\downarrow\rangle + \downarrow\downarrow\uparrow\uparrow\rangle)$
	$\frac{3J}{2}$	2	-2	$ \downarrow\downarrow\downarrow\downarrow\rangle$

TAB. A.1 – Energies et états propres pour l'hamiltonien A.1. L'ordre des spins est celui de la figure A.1

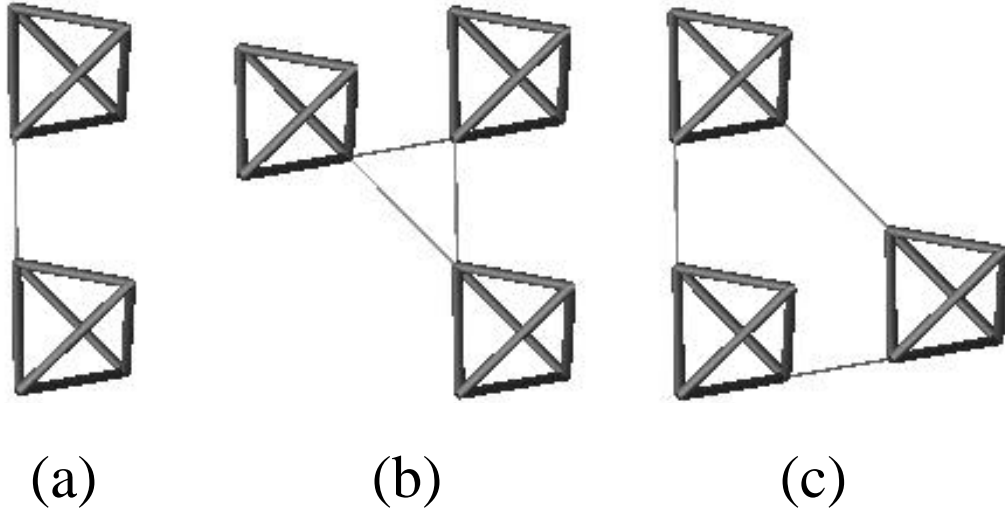


FIG. A.2 – Trois types de diagrammes donnant des termes non nuls au troisième ordre des perturbations. Seuls les diagrammes du type (c) sont à l’origine des interactions effectives, les autres n’apportent que des corrections à l’énergie. Les diagrammes de type (a) sont les seuls à donner une correction à l’énergie dès le deuxième ordre.

A.2 Interactions effectives dans le pyrochlore

Lors de la prise en compte en perturbation des interactions entre tétraèdres (J'), plusieurs diagrammes sont à prendre en compte selon l’ordre des perturbations. On a représenté sur la figure A.2 les types de diagrammes à prendre en compte jusqu’à l’ordre trois des perturbations. Tous vont apporter une correction à l’énergie, tandis qu’un seul type de diagrammes est à l’origine des interactions effectives entre pseudo-spins.

A.2.1 Corrections à l’énergie

Au premier ordre des perturbations, toutes les corrections à l’énergie sont nulles, et il n’y a pas d’interactions effectives entre pseudo-spins. Au deuxième ordre des perturbations, seuls les diagrammes de la figure A.2.a donneront une correction à l’énergie ($-\frac{3J'^2}{32J}$ par diagramme). La matrice des perturbations est sphérique dans le sous-espace des singulets, et ne représente pas une interaction effective entre pseudo-spins. Au troisième ordre des perturbations, ces mêmes diagrammes donnent une correction qui vaut : $-\frac{3J'^3}{128J^2}$ (par diagramme) tandis que chacun des diagrammes de la figure A.2.b donne : $\frac{9J'^3}{128J^2}$

A.2.2 Interactions effectives

On traite ici le cas des diagrammes de la figure A.2.c, les seuls à donner lieu à une interaction effective entre pseudo-spins. Ceux-ci peuvent être classés en quatre familles représentées sur la figure A.3. En fait toutes les interactions qui en résultent

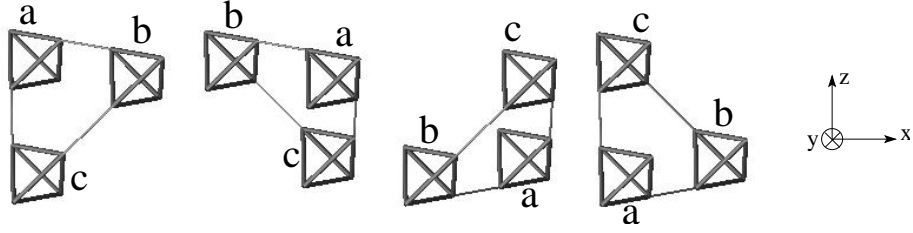


FIG. A.3 – Les quatre familles de diagrammes donnent lieu aux mêmes interactions effectives sous réserve de prendre l'ordre indiqué ici pour les pseudo-spins.

sont identiques, à des permutations des pseudo-spins près. Autrement dit, toutes ces interactions peuvent être ramenées à l'expression suivante :

$$\begin{aligned}
\frac{J^3}{J^2} \left(\right. & -\frac{1}{384} - \frac{1}{192}(T_b^z + T_c^z) + \frac{1}{96}T_a^z + \frac{1}{64\sqrt{3}}T_c^x - \frac{1}{64\sqrt{3}}T_b^x - \\
& -\frac{1}{96}T_b^zT_c^z + \frac{1}{48}T_a^zT_b^z + \frac{1}{48}T_a^zT_c^z + \frac{1}{32\sqrt{3}}T_b^zT_c^x - \\
& -\frac{1}{16\sqrt{3}}T_a^zT_c^x + \frac{1}{16\sqrt{3}}T_a^zT_b^x - \frac{1}{32\sqrt{3}}T_b^xT_c^z + \frac{1}{32}T_b^xT_c^x + \\
& \left. + \frac{1}{24}T_a^zT_b^zT_c^z - \frac{1}{8\sqrt{3}}T_a^zT_b^zT_c^x + \frac{1}{8\sqrt{3}}T_a^zT_b^xT_c^z - \frac{1}{8}T_a^zT_b^xT_c^x \right) \quad (\text{A.2})
\end{aligned}$$

à condition de respecter les règles suivantes pour obtenir l'ordre des spins a, b et c :

1. a et b appartiennent au même plan $z = \text{const.}$ et $z_c \neq z_a = z_b$. Il reste à déterminer a et b tels que :
2. – Si $z_c > z_a$ $(\vec{ab} \times \vec{bc})_z > 0$
– Si $z_c < z_a$ $(\vec{ab} \times \vec{bc})_z < 0$

(voir figure A.3 pour les axes)

Comme on le voit, il y a ici aussi une correction à l'énergie $(-\frac{J^3}{384J^2})$, mais cette fois il apparaît en plus des interactions effectives entre pseudo-spins.

Afin d'obtenir l'hamiltonien effectif complet sur le réseau cfc de pseudo-spins, il reste à sommer les différentes contributions.

A.2.3 Interactions étendues à tout le réseau

On se concentre ici sur les diagrammes qui donnent lieu à une interaction effective. Le réseau pyrochlore peut être décrit comme un réseau cfc avec comme maille élémentaire quatre spins formant un tétraèdre. Cette description ne tient toutefois pas compte des interactions entre les spins qui ne respectent pas la symétrie d'un réseau cfc. Ceci se répercute sur l'hamiltonien effectif de la façon suivante : tous les triplets (i, j, k) de pseudo-spins avec i, j et k plus proches voisins ne sont pas équivalents. En particulier, les interactions effectives A.2 n'apparaissent que pour des pseudo-spins dont les tétraèdres associés sont reliés comme sur la figure A.2.c, mais il n'y aura pas d'interaction effective à trois corps pour des triplets (i, j, k) dont les tétraèdres associés sont connectés comme sur la figure A.2.b. Ceci explique que l'on ne somme pas sur tous les triplets de pseudo-spins dans l'hamiltonien effectif (voir hamiltonien 4.4 et figure 4.6)

A.3 Champ moyen

A.3.1 Structures magnétiques à un vecteur de propagation

Si on se limite à des structures magnétiques décrites par un seul vecteur de propagation et des hamiltoniens avec des interactions à deux spins, on peut trouver une solution au problème comme décrit ci-dessous. Un exposé très clair et simple de la méthode est donné par Coqblin [27] pour le cas de couplages isotropes. Bertaut [7] présente la méthode pour le cas de structures à plusieurs atomes par maille. On se limite ici à des interactions dans le plan (zx) anisotropes car ce sont celles rencontrées dans les hamiltoniens effectifs que l'on traite si l'on inclut uniquement les interactions à deux pseudo-spins. Partant de l'hamiltonien :

$$H = \sum_{(ij)} J_{ij}^{xx} S_i^x S_j^x + J_{ij}^{xz} S_i^x S_j^z + J_{ij}^{zx} S_i^z S_j^x + J_{ij}^{zz} S_i^z S_j^z$$

où la somme porte sur toutes les paires (ij), avec les constantes J_{ij} nulles si les spins n'interagissent pas. On peut réécrire l'hamiltonien sous la forme matricielle :

$$H = \frac{1}{2} \sum_{ij} [S_i^{x*} \ S_i^{z*}] \begin{bmatrix} J_{ij}^{xx} & J_{ij}^{xz} \\ J_{ij}^{zx} & J_{ij}^{zz} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} S_j^x \\ S_j^z \end{bmatrix}$$

On se restreint aux structures à un seul vecteur d'onde et on cherche des solutions sous la forme :

$$\begin{cases} S_i^x = S_{\mathbf{q}}^x e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{R}_i} \\ S_i^z = S_{\mathbf{q}}^z e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{R}_i} \end{cases}$$

On a alors :

$$H = \frac{1}{2} [S_{\mathbf{q}}^{x*} \ S_{\mathbf{q}}^{z*}] \left(\sum_{ij} \begin{bmatrix} J_{ij}^{xx} e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{R}_{ij}} & J_{ij}^{xz} e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{R}_{ij}} \\ J_{ij}^{zx} e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{R}_{ij}} & J_{ij}^{zz} e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{R}_{ij}} \end{bmatrix} \right) \begin{bmatrix} S_{\mathbf{q}}^x \\ S_{\mathbf{q}}^z \end{bmatrix}$$

où $\mathbf{R}_{ij} = \mathbf{R}_j - \mathbf{R}_i$.

Les termes de la somme ne dépendent que de la différence $\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j$ et cette invariance par translation permet de réécrire la somme, en prenant \mathbf{R}_i à l'origine :

$$H = \frac{N}{2} [S_{\mathbf{q}}^{x*} \ S_{\mathbf{q}}^{z*}] \left(\sum_j \begin{bmatrix} J_{ij}^{xx} e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{R}_j} & J_{ij}^{xz} e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{R}_j} \\ J_{ij}^{zx} e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{R}_j} & J_{ij}^{zz} e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{R}_j} \end{bmatrix} \right) \begin{bmatrix} S_{\mathbf{q}}^x \\ S_{\mathbf{q}}^z \end{bmatrix}$$

En pratique, la somme porte sur tous les sites j avec lesquels un site donné interagit. On calcule cette somme puis on diagonalise la matrice obtenue. Les vecteurs propres $S_{\mathbf{q}}^{x'}$ et $S_{\mathbf{q}}^{z'}$ sont des combinaisons linéaires des $S_{\mathbf{q}}^x$ et $S_{\mathbf{q}}^z$ associés aux valeurs propres $\lambda_1(\mathbf{q})$ et $\lambda_2(\mathbf{q})$. Ceci permet finalement d'avoir l'expression de l'hamiltonien :

$$H = \frac{N}{2} [S_{\mathbf{q}}^{x'*} \ S_{\mathbf{q}}^{z'*}] \begin{bmatrix} \lambda_1(\mathbf{q}) & 0 \\ 0 & \lambda_2(\mathbf{q}) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} S_{\mathbf{q}}^{x'} \\ S_{\mathbf{q}}^{z'} \end{bmatrix}$$

On cherche ensuite laquelle de $\lambda_1(\mathbf{q})$ ou $\lambda_2(\mathbf{q})$ atteint le minimum de l'énergie sur toute la première zone de Brillouin. On peut alors remonter à la structure magnétique

correspondante qui minimise l'énergie. Supposons que ce soit $\lambda_1(\mathbf{q}_0)$ qui minimise l'énergie, alors celle-ci vaut :

$$E = \frac{N}{2} |S_{\mathbf{q}}|^2 \lambda_1(\mathbf{q}_0)$$

et l'aimantation correspondante en $\mathbf{R}_i = \mathbf{0}$ est dans la direction x' .

A.3.2 Champ moyen à plusieurs sous-réseaux et $\mathbf{q} = \mathbf{0}$

Pour tous les opérateurs $S^{x,y,z}$ on a : $S = \langle S \rangle + (S - \langle S \rangle)$. L'approximation de champ moyen consiste à supposer les fluctuations autour de la valeur moyenne petites donc $S - \langle S \rangle$ sera petit et on néglige tous les termes d'ordre supérieur, en particulier les termes du type : $(S_i - \langle S_i \rangle)(S_j - \langle S_j \rangle)$. En pratique, ceci revient à éliminer les termes à deux, trois (ou plus) spins pour ne garder que des termes à un spin :

$$\begin{aligned} S_i S_j &\longrightarrow S_i \langle S_j \rangle + \langle S_i \rangle S_j - \langle S_i \rangle \langle S_j \rangle \\ S_i S_j S_k &\longrightarrow S_i \langle S_j \rangle \langle S_k \rangle + \langle S_i \rangle S_j \langle S_k \rangle + \langle S_i \rangle \langle S_j \rangle S_k - 2 \langle S_i \rangle \langle S_j \rangle \langle S_k \rangle \end{aligned} \quad (\text{A.3})$$

On sépare ensuite les spins en un ou plusieurs sous-réseaux, chaque sous-réseau étant caractérisé par une valeur moyenne de l'aimantation (tous les spins d'un sous-réseau ont la même aimantation). L'hamiltonien relatif à un spin (rappelons qu'il ne reste que des termes à un spin) prend alors la forme :

$$H_p = \alpha_p S_p^z + \beta_p S_p^x + f_p \quad (\text{A.4})$$

p indice les sous-réseaux. α_p , β_p et f_p dépendent des aimantations moyennes de tous les sous-réseaux. Pour des spins $S = \frac{1}{2}$, les niveaux d'énergie d'un tel spin sont :

$$E_p = \pm \frac{\sqrt{\alpha_p^2 + \beta_p^2}}{2} + f_p \quad (\text{A.5})$$

Les valeurs moyennes (quantiques) des aimantations dans ces deux états propres de l'hamiltonien valent :

$$\begin{aligned} E_p = -\frac{\sqrt{\alpha_p^2 + \beta_p^2}}{2} + f_p &\longrightarrow S_p^x = -\frac{\beta_p}{2\sqrt{\alpha_p^2 + \beta_p^2}} & S_p^z &= -\frac{\alpha_p}{2\sqrt{\alpha_p^2 + \beta_p^2}} \\ E_p = \frac{\sqrt{\alpha_p^2 + \beta_p^2}}{2} + f_p &\longrightarrow S_p^x = \frac{\beta_p}{2\sqrt{\alpha_p^2 + \beta_p^2}} & S_p^z &= \frac{\alpha_p}{2\sqrt{\alpha_p^2 + \beta_p^2}} \end{aligned}$$

La fonction de partition et l'énergie libre valent :

$$Z_p = 2e^{-\frac{f_p}{kT}} \cosh \left(\frac{\sqrt{\alpha_p^2 + \beta_p^2}}{2kT} \right) \quad F_p = -kT \ln \left[2 \cosh \left(\frac{\sqrt{\alpha_p^2 + \beta_p^2}}{2kT} \right) \right] + f_p$$

tandis que l'énergie moyenne vaut :

$$E_p = -\frac{\sqrt{\alpha_p^2 + \beta_p^2}}{2} \tanh\left(\frac{\sqrt{\alpha_p^2 + \beta_p^2}}{2kT}\right) + f_p$$

Une première façon de résoudre le problème en champ moyen consiste à trouver les aimantations (S_p^x, S_p^z) qui minimisent l'énergie libre totale :

$$F = \sum_{\text{sous-réseau}} E_p$$

La deuxième façon d'appliquer une méthode de champ moyen consiste à imposer une self-consistence : les valeurs moyennes des aimantations que l'on a introduites (voir A.3) doivent coïncider avec les valeurs moyennes statistiques de ces aimantations. En pratique, on aura le système d'équations suivant pour chaque sous-réseau :

$$\begin{aligned} \langle S_p^x \rangle &= \frac{-\beta_p}{2\sqrt{\alpha_p^2 + \beta_p^2}} \tanh\left(\frac{\sqrt{\alpha_p^2 + \beta_p^2}}{2kT}\right) \\ \langle S_p^z \rangle &= \frac{-\alpha_p}{2\sqrt{\alpha_p^2 + \beta_p^2}} \tanh\left(\frac{\sqrt{\alpha_p^2 + \beta_p^2}}{2kT}\right) \end{aligned}$$

A.3.3 Solution à quatre sous-réseaux pour le pyrochlore

On applique la méthode décrite au paragraphe A.3.2 pour la recherche de solutions à quatre sous-réseaux pour l'hamiltonien effectif du réseau pyrochlore donc pour des pseudo-spins sur un réseau cfc. Les quatre sites d'une maille sont les sites $(0, 0, 0)$, $(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, 0)$, $(\frac{1}{2}, 0, \frac{1}{2})$ et $(0, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ d'un réseau cfc. Dans les notations du paragraphe A.3.2, on a :

$$\begin{aligned}
\alpha_1 &= -\frac{1}{12}\langle T_4^z \rangle + \frac{1}{6}(\langle T_2^z \rangle + \langle T_3^z \rangle) + \frac{1}{4\sqrt{3}}(\langle T_2^x \rangle - \langle T_3^x \rangle) + \frac{1}{6}(\langle T_2^z \rangle \langle T_3^z \rangle + \langle T_2^z \rangle \langle T_4^z \rangle + \\
&\quad + \langle T_3^z \rangle \langle T_4^z \rangle) + \frac{1}{2\sqrt{3}}(\langle T_2^x \rangle \langle T_3^z \rangle + \langle T_3^z \rangle \langle T_4^x \rangle - \langle T_2^z \rangle \langle T_3^x \rangle - \langle T_2^z \rangle \langle T_4^x \rangle) - \frac{1}{2}\langle T_2^x \rangle \langle T_3^x \rangle \\
\beta_1 &= \frac{1}{4}\langle T_4^x \rangle + \frac{1}{4\sqrt{3}}(\langle T_2^z \rangle - \langle T_3^z \rangle) + \frac{1}{2\sqrt{3}}(\langle T_2^z \rangle \langle T_4^z \rangle - \langle T_3^z \rangle \langle T_4^z \rangle) - \frac{1}{2}(\langle T_2^z \rangle \langle T_4^x \rangle + \langle T_3^z \rangle \langle T_4^x \rangle) \\
\alpha_2 &= -\frac{1}{12}\langle T_3^z \rangle + \frac{1}{6}(\langle T_1^z \rangle + \langle T_4^z \rangle) + \frac{1}{4\sqrt{3}}(\langle T_1^x \rangle - \langle T_4^x \rangle) + \frac{1}{6}(\langle T_1^z \rangle \langle T_3^z \rangle + \langle T_1^z \rangle \langle T_4^z \rangle + \\
&\quad + \langle T_3^z \rangle \langle T_4^z \rangle) + \frac{1}{2\sqrt{3}}(\langle T_1^x \rangle \langle T_4^z \rangle + \langle T_3^x \rangle \langle T_4^z \rangle - \langle T_1^z \rangle \langle T_3^x \rangle - \langle T_1^z \rangle \langle T_4^x \rangle) - \frac{1}{2}\langle T_1^x \rangle \langle T_4^x \rangle \\
\beta_2 &= \frac{1}{4}\langle T_3^x \rangle + \frac{1}{4\sqrt{3}}(\langle T_1^z \rangle - \langle T_4^z \rangle) + \frac{1}{2\sqrt{3}}(\langle T_1^z \rangle \langle T_3^z \rangle - \langle T_3^z \rangle \langle T_4^z \rangle) - \frac{1}{2}(\langle T_1^z \rangle \langle T_3^x \rangle + \langle T_3^x \rangle \langle T_4^z \rangle) \\
\alpha_3 &= -\frac{1}{12}\langle T_2^z \rangle + \frac{1}{6}(\langle T_1^z \rangle + \langle T_4^z \rangle) + \frac{1}{4\sqrt{3}}(\langle T_4^x \rangle - \langle T_1^x \rangle) + \frac{1}{6}(\langle T_1^z \rangle \langle T_2^z \rangle + \langle T_1^z \rangle \langle T_4^z \rangle + \\
&\quad + \langle T_2^z \rangle \langle T_4^z \rangle) + \frac{1}{2\sqrt{3}}(\langle T_1^z \rangle \langle T_2^x \rangle + \langle T_1^z \rangle \langle T_4^x \rangle - \langle T_1^x \rangle \langle T_2^z \rangle - \langle T_2^x \rangle \langle T_4^z \rangle) - \frac{1}{2}\langle T_1^x \rangle \langle T_4^x \rangle \\
\beta_3 &= \frac{1}{4}\langle T_2^x \rangle + \frac{1}{4\sqrt{3}}(\langle T_4^z \rangle - \langle T_1^z \rangle) + \frac{1}{2\sqrt{3}}(\langle T_2^z \rangle \langle T_4^z \rangle - \langle T_1^z \rangle \langle T_2^z \rangle) - \frac{1}{2}(\langle T_1^z \rangle \langle T_2^x \rangle + \langle T_2^x \rangle \langle T_4^z \rangle) \\
\alpha_4 &= -\frac{1}{12}\langle T_1^z \rangle + \frac{1}{6}(\langle T_2^z \rangle + \langle T_3^z \rangle) + \frac{1}{4\sqrt{3}}(\langle T_3^x \rangle - \langle T_2^x \rangle) + \frac{1}{6}(\langle T_1^z \rangle \langle T_2^z \rangle + \langle T_1^z \rangle \langle T_3^z \rangle + \\
&\quad + \langle T_2^z \rangle \langle T_3^z \rangle) + \frac{1}{2\sqrt{3}}(\langle T_1^x \rangle \langle T_2^z \rangle + \langle T_2^z \rangle \langle T_3^x \rangle - \langle T_1^x \rangle \langle T_3^z \rangle - \langle T_2^x \rangle \langle T_3^z \rangle) - \frac{1}{2}\langle T_2^x \rangle \langle T_3^x \rangle \\
\beta_4 &= \frac{1}{4}\langle T_1^x \rangle + \frac{1}{4\sqrt{3}}(\langle T_3^z \rangle - \langle T_2^z \rangle) + \frac{1}{2\sqrt{3}}(\langle T_1^z \rangle \langle T_3^z \rangle - \langle T_1^z \rangle \langle T_2^z \rangle) - \frac{1}{2}(\langle T_1^x \rangle \langle T_2^z \rangle + \langle T_1^x \rangle \langle T_3^z \rangle) \\
f &= \frac{1}{12}(\langle T_1^z \rangle \langle T_4^z \rangle + \langle T_2^z \rangle \langle T_3^z \rangle) - \frac{1}{4}(\langle T_1^x \rangle \langle T_4^x \rangle + \langle T_2^x \rangle \langle T_3^x \rangle) \\
&\quad - \frac{1}{6}(\langle T_1^z \rangle \langle T_2^z \rangle + \langle T_1^z \rangle \langle T_3^z \rangle + \langle T_2^z \rangle \langle T_4^z \rangle + \langle T_3^z \rangle \langle T_4^z \rangle) \\
&\quad + \frac{1}{4\sqrt{3}}(\langle T_1^z \rangle \langle T_3^x \rangle + \langle T_1^x \rangle \langle T_3^z \rangle + \langle T_2^z \rangle \langle T_4^x \rangle + \langle T_2^x \rangle \langle T_4^z \rangle - \\
&\quad - \langle T_1^x \rangle \langle T_2^z \rangle - \langle T_1^x \rangle \langle T_2^z \rangle - \langle T_3^z \rangle \langle T_4^x \rangle - \langle T_3^x \rangle \langle T_4^z \rangle) \\
&\quad - \frac{1}{6}(\langle T_1^z \rangle \langle T_2^z \rangle \langle T_3^z \rangle + \langle T_1^z \rangle \langle T_2^z \rangle \langle T_4^z \rangle + \langle T_1^z \rangle \langle T_3^z \rangle \langle T_4^z \rangle + \langle T_2^z \rangle \langle T_3^z \rangle \langle T_4^z \rangle) \\
&\quad - \frac{1}{2\sqrt{3}}(\langle T_1^z \rangle \langle T_2^x \rangle \langle T_3^z \rangle + \langle T_1^x \rangle \langle T_2^z \rangle \langle T_4^z \rangle + \langle T_1^z \rangle \langle T_3^z \rangle \langle T_4^x \rangle + \langle T_2^z \rangle \langle T_3^x \rangle \langle T_4^z \rangle) \\
&\quad + \frac{1}{2\sqrt{3}}(\langle T_1^z \rangle \langle T_2^z \rangle \langle T_3^x \rangle + \langle T_1^z \rangle \langle T_2^z \rangle \langle T_4^x \rangle + \langle T_1^x \rangle \langle T_3^z \rangle \langle T_4^z \rangle + \langle T_2^x \rangle \langle T_3^z \rangle \langle T_4^z \rangle) \\
&\quad + \frac{1}{2}(\langle T_1^z \rangle \langle T_2^x \rangle \langle T_3^x \rangle + \langle T_1^x \rangle \langle T_2^z \rangle \langle T_4^x \rangle + \langle T_1^x \rangle \langle T_3^z \rangle \langle T_4^x \rangle + \langle T_2^x \rangle \langle T_3^x \rangle \langle T_4^z \rangle)
\end{aligned}$$

A.4 Interactions effectives dans le damier

La figure A.4 répertorie tous les types de diagrammes qui contribuent à l'hamiltonien effectif aux deuxième et troisième ordre des perturbations. On détaille par la

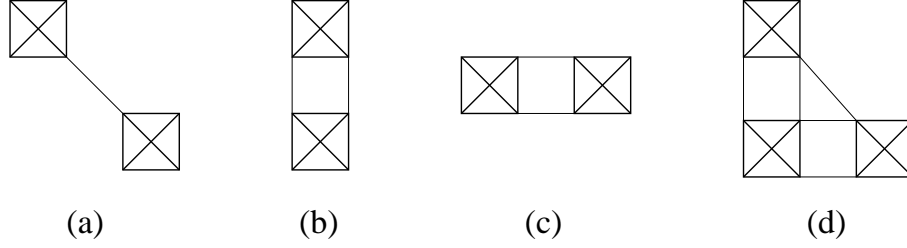


FIG. A.4 – Quatre types de diagrammes qui donnent des contributions non nulles aux deuxième et troisième ordre des perturbations. Les diagrammes du type (a) ne donnent que des corrections à l'énergie. Ceux du type (d) n'interviennent qu'au troisième ordre des perturbations

suite la contribution de chacun de ces diagrammes.

A.4.1 Contributions au deuxième ordre

Les diagrammes du type (a) donnent une correction à l'énergie $(-\frac{3J^2}{32J})$ mais pas d'interaction effective.

Le diagramme (b) donne une interaction effective :

$$\frac{J^2}{J} \left(-\frac{5}{24} - \frac{1}{24}(T_i^z + T_j^z) + \frac{1}{8\sqrt{3}}(T_i^x + T_j^x) - \frac{1}{12}T_i^z T_j^z - \frac{1}{4}T_i^x T_j^x + \frac{1}{4\sqrt{3}}(T_i^z T_j^x + T_i^x T_j^z) \right)$$

et le diagramme (c) :

$$\frac{J^2}{J} \left(-\frac{5}{24} - \frac{1}{24}(T_i^z + T_j^z) - \frac{1}{8\sqrt{3}}(T_i^x + T_j^x) - \frac{1}{12}T_i^z T_j^z - \frac{1}{4}T_i^x T_j^x - \frac{1}{4\sqrt{3}}(T_i^z T_j^x + T_i^x T_j^z) \right)$$

Les diagrammes du type (d) ne contribuent pas au deuxième ordre des perturbations.

A.4.2 Contributions au troisième ordre

Les diagrammes du type (a) donnent une correction à l'énergie $(-\frac{3J^3}{128J^2})$ mais pas d'interaction effective.

Le diagramme (b) donne une interaction effective :

$$\frac{J^3}{J^2} \left(-\frac{1}{16} - \frac{1}{32}(T_i^z + T_j^z) + \frac{\sqrt{3}}{32}(T_i^x + T_j^x) - \frac{1}{16}T_i^z T_j^z - \frac{3}{16}T_i^x T_j^x + \frac{\sqrt{3}}{16}(T_i^z T_j^x + T_i^x T_j^z) \right)$$

et le diagramme (c) :

$$\frac{J^3}{J^2} \left(-\frac{1}{16} - \frac{1}{32}(T_i^z + T_j^z) - \frac{\sqrt{3}}{32}(T_i^x + T_j^x) - \frac{1}{16}T_i^z T_j^z - \frac{3}{16}T_i^x T_j^x - \frac{\sqrt{3}}{16}(T_i^z T_j^x + T_i^x T_j^z) \right)$$

Les diagrammes du type (d) donnent des interactions effectives à un, deux et trois pseudo-spins :

$$\frac{J^3}{J^2} \left(\begin{aligned} & \frac{1}{12} + \frac{1}{24}T_i^z + \frac{1}{96}T_j^z + \frac{1}{96}T_k^z - \frac{1}{32\sqrt{3}}T_j^x + \frac{1}{32\sqrt{3}}T_k^x \\ & + \frac{5}{96}T_i^zT_j^z + \frac{5}{96}T_i^zT_k^z - \frac{1}{96}T_j^zT_k^z - \frac{\sqrt{3}}{32}T_i^xT_j^z - \frac{5}{32\sqrt{3}}T_i^zT_j^x - \frac{1}{32\sqrt{3}}T_j^zT_k^x \\ & + \frac{3}{32}T_i^xT_j^x + \frac{3}{32}T_i^xT_k^x + \frac{1}{32}T_j^xT_k^x + \frac{\sqrt{3}}{32}T_i^xT_k^z + \frac{5}{32\sqrt{3}}T_i^zT_k^x + \frac{1}{32\sqrt{3}}T_j^xT_k^z \\ & + \frac{1}{24}T_i^zT_j^zT_k^z - \frac{1}{8\sqrt{3}}T_i^zT_j^xT_k^z + \frac{1}{8\sqrt{3}}T_i^zT_j^zT_k^x - \frac{1}{8}T_i^zT_j^xT_k^x \end{aligned} \right)$$

où i est le spin ‘‘central’’, j celui dans la direction y (verticale) et k celui dans la direction x (horizontale), comme représenté sur la figure A.4.

A.5 Champ moyen pour le réseau damier : solutions à deux sous-réseau

On recherche les solutions $\mathbf{q} = \mathbf{0}$ avec une maille magnétique qui contient deux sites. En suivant les notations de l’annexe A.3.2 :

$$\begin{aligned} \alpha_1 &= -\frac{1}{24} + \frac{1}{4} \langle T_2^z \rangle - \frac{1}{12} \langle T_1^z \rangle + \frac{1}{6} \langle T_2^z \rangle^2 + \frac{1}{3} \langle T_1^z \rangle \langle T_2^z \rangle - \frac{1}{2} \langle T_2^x \rangle^2 \\ \beta_1 &= -\frac{1}{4} \langle T_2^x \rangle + \frac{1}{4} \langle T_1^x \rangle - \langle T_1^x \rangle \langle T_2^z \rangle \\ \alpha_2 &= -\frac{1}{24} + \frac{1}{4} \langle T_1^z \rangle - \frac{1}{12} \langle T_2^z \rangle + \frac{1}{6} \langle T_1^z \rangle^2 + \frac{1}{3} \langle T_2^z \rangle \langle T_1^z \rangle - \frac{1}{2} \langle T_1^x \rangle^2 \\ \beta_2 &= -\frac{1}{4} \langle T_1^x \rangle + \frac{1}{4} \langle T_2^x \rangle - \langle T_1^z \rangle \langle T_2^x \rangle \\ f_1 + f_2 &= -\frac{85}{96} - \frac{1}{4} \langle T_1^z \rangle \langle T_2^z \rangle + \frac{1}{4} \langle T_1^x \rangle \langle T_2^x \rangle + \frac{1}{24} (\langle T_1^z \rangle^2 + \langle T_2^z \rangle^2) \\ &\quad - \frac{1}{8} (\langle T_1^x \rangle^2 + \langle T_2^x \rangle^2) - \frac{1}{3} (\langle T_1^z \rangle \langle T_2^z \rangle^2 + \langle T_1^z \rangle^2 \langle T_2^z \rangle) + \\ &\quad \langle T_1^z \rangle \langle T_2^x \rangle^2 + \langle T_1^x \rangle^2 \langle T_2^z \rangle \end{aligned}$$

A.6 Réseau carré avec des interactions entre seconds voisins

L’hamiltonien effectif a été obtenu par Kotov *et al* [57] pour une version modifiée du modèle $J_1 - J_2$ sur le réseau carré. Ils obtiennent au deuxième ordre des perturbations l’hamiltonien effectif suivant :

$$\begin{aligned}
\frac{H^{(2)}}{J^2} &= -N \frac{25}{48} + \sum_i \frac{2}{3} T_i^z \\
&+ \sum_{\langle ij \rangle_x} -\frac{1}{6} T_i^z T_j^z - \frac{1}{2} T_i^x T_j^x - \frac{1}{2\sqrt{3}} (T_i^z T_j^x + T_i^x T_j^z) \\
&+ \sum_{\langle ij \rangle_y} -\frac{1}{6} T_i^z T_j^z - \frac{1}{2} T_i^x T_j^x + \frac{1}{2\sqrt{3}} (T_i^z T_j^x + T_i^x T_j^z)
\end{aligned}$$

Dans la méthode d'hamiltonien effectif, on suppose qu'il suffit de dériver l'hamiltonien aux ordres les plus bas en perturbation pour capter l'essentiel du comportement du système. Nous avons calculé l'hamiltonien effectif à l'ordre suivant afin de vérifier si les interactions effectives décroissent en amplitude. On a obtenu les contributions aux interactions effectives au troisième ordre :

$$\begin{aligned}
\frac{H^{(3)}}{J^3} &= -N \frac{25}{192} + \sum_i \frac{1}{6} T_i^z \\
&+ \sum_{\langle ij \rangle_x} -\frac{1}{24} T_i^z T_j^z - \frac{1}{8} T_i^x T_j^x - \frac{1}{8\sqrt{3}} (T_i^z T_j^x + T_i^x T_j^z) \\
&+ \sum_{\langle ij \rangle_y} -\frac{1}{24} T_i^z T_j^z - \frac{1}{8} T_i^x T_j^x + \frac{1}{8\sqrt{3}} (T_i^z T_j^x + T_i^x T_j^z)
\end{aligned}$$

L'hamiltonien au troisième ordre vaut exactement $\frac{1}{4}$ de l'hamiltonien au deuxième ordre. Le fait que la forme de l'hamiltonien soit *exactement* inchangée n'est pas nécessaire pour valider la méthode, cela n'est pas le cas par exemple sur le réseau damier. Le résultat qui nous intéresse ici est que "globalement" les interactions effectives décroissent en amplitude avec l'ordre des perturbations.

Annexe B

Interactions Dzyaloshinsky-Moriya

Sommaire

B.1	Dérivation microscopique	116
B.1.1	Les fonctions d'ondes	116
B.1.2	Couplage spin-orbite	117
B.1.3	Rotations autour de l'axe Z	118
B.1.4	Introduction des termes de sauts entre sites	119
B.1.5	Relation entre la matrice des énergies et l'hamiltonien ma- gnétique	120
B.1.6	Rotation autour de l'axe X	120
B.2	Champ moyen	121
B.3	Développement en ondes de spins	123
B.3.1	Hamiltonien de bosons	123
B.3.2	Diagonalisation de l'hamiltonien	124
B.3.3	Intégration sur la première zone de Brillouin	126
B.4	Effets quantiques : diagonalisation exacte pour un tétra- èdre	127
B.4.1	Fluctuations quantiques sur le réseau pyrochlore	127
B.4.2	Diagonalisation exacte de l'hamiltonien pour un tétraèdre de spins $S = \frac{1}{2}$	128

B.1 Dérivation microscopique

B.1.1 Les fonctions d'ondes

Les $Y_{l=2}^m$:

$$\begin{aligned} Y_2^{\pm 2} &= \sqrt{\frac{15}{32\pi}} \sin^2 \theta e^{\pm 2i\varphi} \\ Y_2^{\pm 1} &= \mp \sqrt{\frac{15}{8\pi}} \sin \theta \cos \theta e^{\pm i\varphi} \\ Y_2^0 &= \sqrt{\frac{5}{16\pi}} (3 \cos^2 \theta - 1) \end{aligned}$$

Les $e_g - t_{2g}$:

$$\begin{aligned}
 |3z^2 - r^2\rangle &= Y_2^0 &= \sqrt{\frac{5}{16\pi}} (3 \cos^2 \theta - 1) \\
 |x^2 - y^2\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(Y_2^2 + Y_2^{-2}) &= \sqrt{\frac{15}{16\pi}} \sin^2 \theta \cos(2\varphi) \\
 |zx\rangle &= -\frac{1}{\sqrt{2}}(Y_2^1 - Y_2^{-1}) &= \sqrt{\frac{15}{4\pi}} \sin \theta \cos \theta \cos \varphi \\
 |yz\rangle &= \frac{i}{\sqrt{2}}(Y_2^1 + Y_2^{-1}) &= \sqrt{\frac{15}{4\pi}} \sin \theta \cos \theta \sin \varphi \\
 |xy\rangle &= \frac{1}{i\sqrt{2}}(Y_2^2 - Y_2^{-2}) &= \sqrt{\frac{15}{16\pi}} \sin^2 \theta \sin(2\varphi)
 \end{aligned}$$

Passage des $Y_{l=2}^m$ aux $e_g - t_{2g}$

La matrice suivante permet de passer facilement de l'expression d'un vecteur ou d'un opérateur dans la base des Y_2^m à la base des $e_g - t_{2g}$:

$$M = \begin{array}{c|ccccc}
 & |Y_2^2\rangle & |Y_2^1\rangle & |Y_2^0\rangle & |Y_2^{-1}\rangle & |Y_2^{-2}\rangle \\
 \hline
 \langle 3z^2 - r^2| & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 \\
 \langle x^2 - y^2| & \frac{1}{\sqrt{2}} & 0 & 0 & 0 & \frac{1}{\sqrt{2}} \\
 \langle zx| & 0 & -\frac{1}{\sqrt{2}} & 0 & \frac{1}{\sqrt{2}} & 0 \\
 \langle yz| & 0 & -\frac{i}{\sqrt{2}} & 0 & -\frac{i}{\sqrt{2}} & 0 \\
 \langle xy| & \frac{i}{\sqrt{2}} & 0 & 0 & 0 & \frac{-i}{\sqrt{2}}
 \end{array}$$

Soit \mathbf{u} un vecteur exprimé dans la base des Y_2^m , et \mathbf{u}' ce *même* vecteur dans la base des $e_g - t_{2g}$, alors : $\mathbf{u}' = M.\mathbf{u}$

De même, soit H un opérateur dans la base des Y_2^m et H' ce *même* opérateur dans la base des $e_g - t_{2g}$, alors : $H' = M.H.M^{-1}$

B.1.2 Couplage spin-orbite

On donne ici dans la base des Y_2^m puis des $e_g - t_{2g}$ la matrice représentative du couplage spin-orbite :

$$\lambda \mathbf{L}.\mathbf{S} = \lambda(L^z S^z + \frac{1}{2}(L^+ S^- + L^- S^+))$$

Dans la base Y_2^m

On note les états électronique de la façon suivante : $|m s_z\rangle$, par exemple $|1 \uparrow\rangle = |Y_{l=2}^{m=1}\rangle \otimes |s_z = \frac{1}{2}\rangle$.

	$ 2 \uparrow\rangle$	$ 2 \downarrow\rangle$	$ 1 \uparrow\rangle$	$ 1 \downarrow\rangle$	$ 0 \uparrow\rangle$	$ 0 \downarrow\rangle$	$ -1 \uparrow\rangle$	$ -1 \downarrow\rangle$	$ -2 \uparrow\rangle$	$ -2 \downarrow\rangle$
λ	$\langle 2 \uparrow $	1								
	$\langle 2 \downarrow $		-1	1						
	$\langle 1 \uparrow $		1	$\frac{1}{2}$						
	$\langle 1 \downarrow $			$\frac{-1}{2}$	$\sqrt{\frac{3}{2}}$					
	$\langle 0 \uparrow $			$\sqrt{\frac{3}{2}}$	0					
	$\langle 0 \downarrow $					0	$\sqrt{\frac{3}{2}}$			
	$\langle -1 \uparrow $					$\sqrt{\frac{3}{2}}$	$\frac{-1}{2}$			
	$\langle -1 \downarrow $							$\frac{1}{2}$	1	
	$\langle -2 \uparrow $							1	-1	
	$\langle -2 \downarrow $									1

Dans la base $e_g - t_{2g}$

		$ 3z^2 - r^2\rangle$		$ x^2 - y^2\rangle$		$ zx\rangle$		$ yz\rangle$		$ xy\rangle$	
		\uparrow	\downarrow	\uparrow	\downarrow	\uparrow	\downarrow	\uparrow	\downarrow	\uparrow	\downarrow
λ	$\langle 3z^2 - r^2 \uparrow $						$\frac{-\sqrt{3}}{2}$		$\frac{i\sqrt{3}}{2}$		
	$\langle 3z^2 - r^2 \downarrow $					$\frac{\sqrt{3}}{2}$		$\frac{i\sqrt{3}}{2}$			
	$\langle x^2 - y^2 \uparrow $						$\frac{1}{2}$		$\frac{i}{2}$		$-i$
	$\langle x^2 - y^2 \downarrow $					$-\frac{1}{2}$		$\frac{i}{2}$			i
	$\langle zx \uparrow $		$\frac{\sqrt{3}}{2}$		$-\frac{1}{2}$			$\frac{-i}{2}$			$\frac{i}{2}$
	$\langle zx \downarrow $	$-\frac{\sqrt{3}}{2}$		$\frac{1}{2}$					$\frac{i}{2}$	$\frac{i}{2}$	
	$\langle yz \uparrow $		$-\frac{i\sqrt{3}}{2}$		$-\frac{i}{2}$	$\frac{i}{2}$					$-\frac{1}{2}$
	$\langle yz \downarrow $	$-\frac{i\sqrt{3}}{2}$		$-\frac{i}{2}$			$\frac{-i}{2}$			$\frac{1}{2}$	
	$\langle xy \uparrow $			i			$-\frac{i}{2}$		$\frac{1}{2}$		
	$\langle xy \downarrow $				$-i$	$-\frac{i}{2}$		$-\frac{1}{2}$			

B.1.3 Rotations autour de l'axe Z

Les matrices de rotations suivantes permettent de faire tourner les états autour de l'axe Z, et donc d'obtenir les états pour les sites 2 et 3 à partir des états sur le site 1. Rotation d'un angle φ autour de l'axe Z pour les orbitales $e_g - t_{2g}$:

$$R_{orb} = \begin{array}{c|ccccc} & |3z^2 - r^2\rangle & |x^2 - y^2\rangle & |zx\rangle & |yz\rangle & |xy\rangle \\ \hline \langle 3z^2 - r^2 | & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \langle x^2 - y^2 | & 0 & \cos(2\varphi) & 0 & 0 & -\sin(2\varphi) \\ \langle zx | & 0 & 0 & \cos \varphi & -\sin \varphi & 0 \\ \langle yz | & 0 & 0 & \sin \varphi & \cos \varphi & 0 \\ \langle xy | & 0 & \sin(2\varphi) & 0 & 0 & \cos(2\varphi) \end{array}$$

Pour les fonctions d'ondes de spins la matrice de rotation s'écrit :

$$R_{spin} = \begin{array}{|c|c|c|} \hline & \uparrow & \downarrow \\ \hline \uparrow & e^{-\frac{i\varphi}{2}} & \\ \hline \downarrow & & e^{\frac{i\varphi}{2}} \\ \hline \end{array}$$

Soit un vecteur (ket) u . Il est transformé par la rotation R en un vecteur u' tel que $u' = R.u$ avec $R = R_{orb} \otimes R_{spin}$.

En fait on a le choix de faire tourner ou pas les parties de spin des fonctions d'onde. Il faut cependant prendre garde si on les fait tourner de bien effectuer la rotation inverse à la fin du calcul dans l'hamiltonien effectif pour avoir les *mêmes* axes x , y et z pour les variables de spins sur les différents sites.

B.1.4 Introduction des termes de sauts entre sites

L'hamiltonien de saut s'écrit :

$$H_s = \sum_{ijmm'\sigma} t_{ij}^{mm'} a_{im\sigma}^\dagger a_{jm'\sigma} \quad (B.1)$$

avec

$$t_{ij}^{mm'} = \left\langle i, m \left| \frac{-e^2}{|\mathbf{r} - \mathbf{R}_i|} \right| j, m' \right\rangle$$

où \mathbf{R}_i est la position du noyau i . On ne traite que le cas d'électrons de la même couche (d), donc toutes les parties radiales ($R(r)$) des fonctions d'ondes sont identiques et tous les éléments de matrice ci-dessus auront donc la même dépendance en r . En pratique on a à calculer le recouvrement des parties angulaires des fonctions d'ondes :

$$\langle Y_l^m(\theta, \varphi) | Y_l^{m'}(\theta, \varphi) \rangle$$

qui sont tabulés dans [103].

Les énergies au deuxième ordre des perturbations sont données par :

$$\sum_{e^*} \frac{\langle zx_i zx_j | H_s | e^* \rangle \langle e^* | H_s | zx_i zx_j \rangle}{\Delta E}$$

Dans cette formule, chaque ket $|zx_i zx_j\rangle$ ne précise que l'état orbital où il y a un seul électron sur chacun des sites i et j qui occupent les orbitales $|zx\rangle$ qui sont l'état fondamental pour le champ cristallin (voir figure 7.3). Pour cet état orbital, il reste 4 états de spins dégénérés. Les énergies au deuxième ordre des perturbations forment donc une matrice 4×4 que l'on traduit par des opérateurs de spins. La somme porte sur tous les états e^* où on a les 2 électrons sur le même site.

On fait l'hypothèse que la répulsion coulombienne sur chaque site est indépendante des orbitales considérées et qu'elle est grande devant le champ cristallin, ce qui revient à remplacer ΔE (qui dépend de l'état excité e^* considéré) par $-U$ ($U > 0$) qui est une constante.

B.1.5 Relation entre la matrice des énergies et l'hamiltonien magnétique

L'hamiltonien magnétique :

$$a.\mathbb{I}_4 + J\mathbf{S}_1.\mathbf{S}_2 + \mathbf{D}.\mathbf{(S}_1 \times \mathbf{S}_2)$$

où \mathbb{I}_4 est l'identité, s'écrit sous forme matricielle :

	$ \uparrow\uparrow\rangle$	$ \uparrow\downarrow\rangle$	$ \downarrow\uparrow\rangle$	$ \downarrow\downarrow\rangle$
$ \uparrow\uparrow\rangle$	$a + \frac{J}{4}$	$\frac{D_Y + iD_X}{4}$	$-\frac{D_Y + iD_X}{4}$	0
$ \uparrow\downarrow\rangle$	$\frac{D_Y - iD_X}{4}$	$a - \frac{J}{4}$	$+\frac{J}{2} + \frac{iD_Z}{2}$	$\frac{D_Y + iD_X}{4}$
$ \downarrow\uparrow\rangle$	$-\frac{D_Y + iD_X}{4}$	$+\frac{J}{2} - \frac{iD_Z}{2}$	$a - \frac{J}{4}$	$-\frac{D_Y + iD_X}{4}$
$ \downarrow\downarrow\rangle$	0	$\frac{D_Y - iD_X}{4}$	$-\frac{D_Y + iD_X}{4}$	$a + \frac{J}{4}$

alors que la matrice des énergie vaut :

	$ \uparrow\uparrow\rangle$	$ \uparrow\downarrow\rangle$	$ \downarrow\uparrow\rangle$	$ \downarrow\downarrow\rangle$
$-\frac{1}{U}$	$\frac{3}{8}(\pi + \delta)^2$	0	0	0
	0	$\frac{1}{2}\pi^2 + \frac{3}{2}\delta^2$	$-\frac{1}{8}(\pi - 3\delta)^2 + \frac{i\lambda\sqrt{3}}{4\Delta_1}(\pi - 3\delta)(\pi + \delta)$	0
	0	$-\frac{1}{8}(\pi - 3\delta)^2 - \frac{i\lambda\sqrt{3}}{4\Delta_1}(\pi - 3\delta)(\pi + \delta)$	$\frac{1}{2}\pi^2 + \frac{3}{2}\delta^2$	0
	0	0	0	$\frac{3}{8}(\pi + \delta)^2$

L'identification de ces deux matrice nous donne a, J et D, en fonction des paramètres microscopiques (voir 7.4).

B.1.6 Rotation autour de l'axe X

Afin de faire tourner les états autour de l'axe x , il faut faire tourner les parties orbitales et de spin des fonctions d'ondes. La matrice de rotation pour les fonctions d'ondes orbitales s'écrit :

	$ 3z^2 - r^2\rangle$	$ x^2 - y^2\rangle$	$ zx\rangle$	$ yz\rangle$	$ xy\rangle$
$R_{\text{orb}} =$	$\frac{3}{4}\cos(2\alpha) + \frac{1}{4}$	$\frac{\sqrt{3}}{4}\cos(2\alpha) - \frac{\sqrt{3}}{4}$	0	$\frac{\sqrt{3}}{2}\sin(2\alpha)$	0
	$\frac{\sqrt{3}}{4}\cos(2\alpha) - \frac{\sqrt{3}}{4}$	$\frac{1}{4}\cos(2\alpha) + \frac{3}{4}$	0	$\frac{1}{2}\sin(2\alpha)$	0
	0	0	$\cos\alpha$	0	$\sin\alpha$
	$-\frac{\sqrt{3}}{2}\sin(2\alpha)$	$-\frac{1}{2}\sin(2\alpha)$	0	$\cos(2\alpha)$	0
	0	0	$-\sin\alpha$	0	$\cos\alpha$

La matrice de rotation pour la partie spin s'écrit :

$$R_{\text{spin}} = \begin{array}{c|cc} & \uparrow & \downarrow \\ \hline \uparrow & \cos\frac{\alpha}{2} & -i\sin\frac{\alpha}{2} \\ \downarrow & -i\sin\frac{\alpha}{2} & \cos\frac{\alpha}{2} \end{array}$$

La matrice de rotation totale vaut $R = R_{\text{orb}} \otimes R_{\text{spin}}$.

B.2 Champ moyen

Partant de l'hamiltonien :

$$H = J \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{D}_{ij} \cdot (\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j)$$

où l'ordre des spins i et j dans le second terme de l'hamiltonien est tel que l'on va du spin i au spin j en tournant dans le sens trigonométrique à l'intérieur des hexagones (prendre la convention inverse revient à changer le sens des vecteurs \mathbf{D}), on obtient après découplage en champ moyen :

$$\frac{H}{N_m} = H_1 + H_2 + H_3 + H_0$$

où N_m est le nombre de mailles magnétiques (trois sites par maille magnétique), H_i représente le hamiltonien relatif à un spin de type i (voir figure 7.5), et H_0 est la partie 'constante' (qui ne dépend que des valeurs moyennes des aimantations).

$$H_1 = 2J\mathbf{S}_1 \cdot (\langle \mathbf{S}_2 \rangle + \langle \mathbf{S}_3 \rangle) + 2\mathbf{D}_{12} \cdot (\mathbf{S}_1 \times \langle \mathbf{S}_2 \rangle) + 2\mathbf{D}_{31} \cdot (\langle \mathbf{S}_3 \rangle \times \mathbf{S}_1)$$

$$H_2 = 2J\mathbf{S}_2 \cdot (\langle \mathbf{S}_1 \rangle + \langle \mathbf{S}_3 \rangle) + 2\mathbf{D}_{23} \cdot (\mathbf{S}_2 \times \langle \mathbf{S}_3 \rangle) + 2\mathbf{D}_{12} \cdot (\langle \mathbf{S}_1 \rangle \times \mathbf{S}_2)$$

$$H_3 = 2J\mathbf{S}_3 \cdot (\langle \mathbf{S}_1 \rangle + \langle \mathbf{S}_2 \rangle) + 2\mathbf{D}_{31} \cdot (\mathbf{S}_3 \times \langle \mathbf{S}_1 \rangle) + 2\mathbf{D}_{23} \cdot (\langle \mathbf{S}_2 \rangle \times \mathbf{S}_3)$$

$$H_0 = -2J (\langle \mathbf{S}_1 \rangle \cdot \langle \mathbf{S}_2 \rangle + \langle \mathbf{S}_2 \rangle \cdot \langle \mathbf{S}_3 \rangle + \langle \mathbf{S}_1 \rangle \cdot \langle \mathbf{S}_3 \rangle) - \\ -2\mathbf{D}_{12} \cdot (\langle \mathbf{S}_1 \rangle \times \langle \mathbf{S}_2 \rangle) - 2\mathbf{D}_{31} \cdot (\langle \mathbf{S}_3 \rangle \times \langle \mathbf{S}_1 \rangle) - 2\mathbf{D}_{23} \cdot (\langle \mathbf{S}_2 \rangle \times \langle \mathbf{S}_3 \rangle)$$

Chaque spin a donc un hamiltonien (dans la base $|S^z = \frac{1}{2}\rangle, |S^z = -\frac{1}{2}\rangle$) :

$$\begin{pmatrix} \alpha & \beta - i\gamma \\ \beta + i\gamma & -\alpha \end{pmatrix}$$

qui a pour valeurs propres : $\pm \sqrt{\alpha^2 + \beta^2 + \gamma^2}$, et les deux états propres correspondant ont pour valeurs moyennes des aimantations :

$$\langle S^x \rangle = \pm \frac{\beta}{2\sqrt{\alpha^2 + \beta^2 + \gamma^2}}, \quad \langle S^y \rangle = \pm \frac{\gamma}{2\sqrt{\alpha^2 + \beta^2 + \gamma^2}} \text{ et } \langle S^z \rangle = \pm \frac{\alpha}{2\sqrt{\alpha^2 + \beta^2 + \gamma^2}}$$

Pour les trois types de sites, on a :

$$\alpha_1 = J (\langle S_2^z \rangle + \langle S_3^z \rangle) + \frac{D_p}{2} \left(\sqrt{3} \langle S_3^y \rangle - 2 \langle S_2^x \rangle - \langle S_3^x \rangle \right)$$

$$\beta_1 = J (\langle S_2^x \rangle + \langle S_3^x \rangle) + \frac{D_p}{2} (2 \langle S_2^z \rangle + \langle S_3^z \rangle) + D_z (\langle S_2^y \rangle - \langle S_3^y \rangle)$$

$$\gamma_1 = J (\langle S_2^y \rangle + \langle S_3^y \rangle) - D_p \frac{\sqrt{3}}{2} \langle S_3^z \rangle + D_z (\langle S_3^x \rangle - \langle S_2^x \rangle)$$

$$\alpha_2 = J (\langle S_1^z \rangle + \langle S_3^z \rangle) + \frac{D_p}{2} \left(2 \langle S_1^x \rangle + \sqrt{3} \langle S_3^y \rangle + \langle S_3^x \rangle \right)$$

$$\beta_2 = J (\langle S_1^x \rangle + \langle S_3^x \rangle) - \frac{D_p}{2} (2 \langle S_1^z \rangle + \langle S_3^z \rangle) + D_z (\langle S_3^y \rangle - \langle S_1^y \rangle)$$

$$\gamma_2 = J(\langle S_1^y \rangle + \langle S_3^y \rangle) - D_p \frac{\sqrt{3}}{2} \langle S_3^z \rangle + D_z (\langle S_1^x \rangle - \langle S_3^x \rangle)$$

$$\alpha_3 = J(\langle S_1^z \rangle + \langle S_2^z \rangle) + \frac{D_p}{2} (\langle S_1^x \rangle - \langle S_2^x \rangle - \sqrt{3} \langle S_1^y \rangle - \sqrt{3} \langle S_2^y \rangle)$$

$$\beta_3 = J(\langle S_1^x \rangle + \langle S_2^x \rangle) + \frac{D_p}{2} (\langle S_2^z \rangle - \langle S_1^z \rangle) + D_z (\langle S_1^y \rangle - \langle S_2^y \rangle)$$

$$\gamma_3 = J(\langle S_1^y \rangle + \langle S_2^y \rangle) + D_p \frac{\sqrt{3}}{2} (\langle S_1^z \rangle + \langle S_2^z \rangle) + D_z (\langle S_2^x \rangle - \langle S_1^x \rangle)$$

et

$$\begin{aligned} H_0 = & -2J(\langle S_1^x \rangle \langle S_2^x \rangle + \langle S_1^y \rangle \langle S_2^y \rangle + \langle S_1^z \rangle \langle S_2^z \rangle) + \\ & + \langle S_1^x \rangle \langle S_3^x \rangle + \langle S_1^y \rangle \langle S_3^y \rangle + \langle S_1^z \rangle \langle S_3^z \rangle + \\ & + \langle S_2^x \rangle \langle S_3^x \rangle + \langle S_2^y \rangle \langle S_3^y \rangle + \langle S_2^z \rangle \langle S_3^z \rangle + \\ & + 2D_p (\langle S_1^z \rangle \langle S_2^x \rangle - \langle S_1^x \rangle \langle S_2^z \rangle) - 2D_z (\langle S_1^x \rangle \langle S_2^y \rangle - \langle S_1^y \rangle \langle S_2^x \rangle) + \\ & + \sqrt{3}D_p (\langle S_2^y \rangle \langle S_3^z \rangle - \langle S_2^z \rangle \langle S_3^y \rangle) - D_p (\langle S_2^z \rangle \langle S_3^x \rangle - \langle S_2^x \rangle \langle S_3^z \rangle) - 2D_z (\langle S_2^x \rangle \langle S_3^y \rangle - \langle S_2^y \rangle \langle S_3^x \rangle) - \\ & - \sqrt{3}D_p (\langle S_3^y \rangle \langle S_1^z \rangle - \langle S_3^z \rangle \langle S_1^y \rangle) - D_p (\langle S_3^z \rangle \langle S_1^x \rangle - \langle S_3^x \rangle \langle S_1^z \rangle) - 2D_z (\langle S_3^x \rangle \langle S_1^y \rangle - \langle S_3^y \rangle \langle S_1^x \rangle) \end{aligned}$$

où D_p et D_z sont les (normes des) projections de \mathbf{D} sur le plan kagomé et l'axe z (ce sont les mêmes pour tous les vecteurs \mathbf{D} dû à la symétrie).

Les équations de self-consistence sont :

$$\begin{aligned} S_i^x &= -\frac{\beta_i}{2\sqrt{\alpha_i^2 + \beta_i^2 + \gamma_i^2}} \tanh\left(\frac{\sqrt{\alpha_i^2 + \beta_i^2 + \gamma_i^2}}{T}\right) \\ S_i^y &= -\frac{\gamma_i}{2\sqrt{\alpha_i^2 + \beta_i^2 + \gamma_i^2}} \tanh\left(\frac{\sqrt{\alpha_i^2 + \beta_i^2 + \gamma_i^2}}{T}\right) \\ S_i^z &= -\frac{\alpha_i}{2\sqrt{\alpha_i^2 + \beta_i^2 + \gamma_i^2}} \tanh\left(\frac{\sqrt{\alpha_i^2 + \beta_i^2 + \gamma_i^2}}{T}\right) \end{aligned} \quad i = 1, 2, 3$$

Une fois résolu ce système de 9 équations aux neuf inconnues : $S_{1,2,3}^{x,y,z}$, on a l'énergie de la phase correspondante :

$$E_{CM} = H_0 - \sum_{i=1,2,3} \sqrt{\alpha_i^2 + \beta_i^2 + \gamma_i^2} \tanh\left(\frac{\sqrt{\alpha_i^2 + \beta_i^2 + \gamma_i^2}}{T}\right)$$

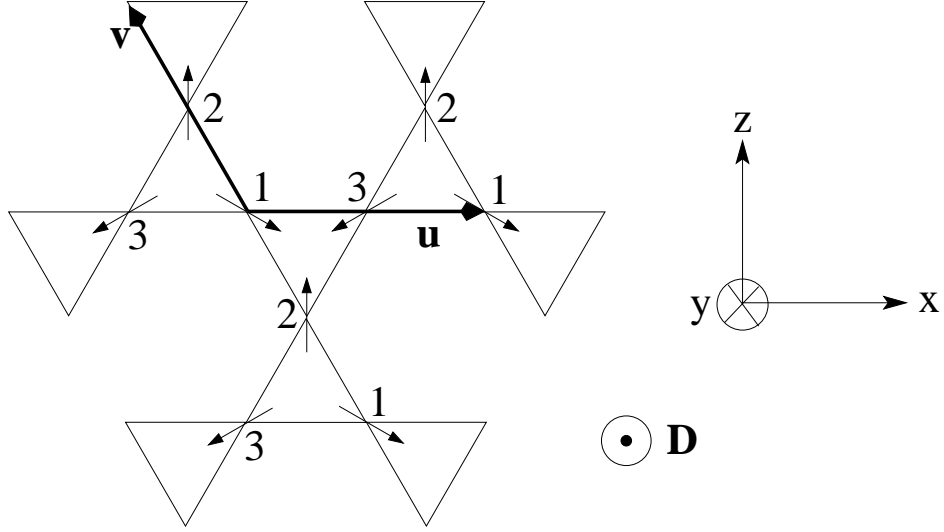


FIG. B.1 – 1, 2 et 3 sont les trois types de bosons introduits pour le calcul d’ondes de spins. Représenté également le vecteur \mathbf{D} responsable de cette structure magnétique. \mathbf{u} et \mathbf{v} sont les vecteurs de base du réseau de Bravais triangulaire qui génère le réseau kagomé, la maille élémentaire étant constituée d’un triangle de trois spins.

B.3 Développement en ondes de spins

Dans cette annexe on donne les détails du développement en ondes de spins dont il a été question à la section 7.6. L’accent est mis sur les détails du calcul et on se reportera à la section 7.6 pour la discussion physique des résultats.

Harris *et al.* [40] ont effectué le développement en ondes de spins pour la phase $\mathbf{q} = \mathbf{0}$ du réseau kagomé avec interactions d’échange isotropes (J). On reprend ici leur calcul en y incluant l’interaction de Dzyaloshinsky-Moriya.

B.3.1 Hamiltonien de bosons

On introduit trois types de bosons comme représenté sur la figure B.1. Pour les spins des sites 2, la transformation de Holstein-Primakoff [45], et le développement limité pour S grand s’écrivent :

$$\begin{aligned}
 S_2^+ &= \sqrt{2S - c_2^\dagger c_2} c_2 \simeq \sqrt{2S} c_2 & S_2^x &\simeq \sqrt{\frac{S}{2}}(c_2^\dagger + c_2) \\
 S_2^- &= c_2^\dagger \sqrt{2S - c_2^\dagger c_2} \simeq \sqrt{2S} c_2^\dagger & S_2^y &\simeq i\sqrt{\frac{S}{2}}(c_2^\dagger - c_2) \\
 & & S_2^z &= S - c_2^\dagger c_2
 \end{aligned} \tag{B.2}$$

Par rotation de $\pm \frac{2\pi}{3}$ autour de l’axe des y (voir la figure B.1 pour la définition des axes), on obtient pour les sites 1 et 3 :

<i>site 1</i>	<i>site 3</i>	
$S_1^x \simeq \frac{\sqrt{3}}{2}(S - c_1^\dagger c_1) - \frac{\sqrt{S}}{2\sqrt{2}}(c_1^\dagger + c_1)$	$S_3^x \simeq -\frac{\sqrt{3}}{2}(S - c_3^\dagger c_3) - \frac{\sqrt{S}}{2\sqrt{2}}(c_3^\dagger + c_3)$	(B.3)
$S_1^y \simeq i\sqrt{\frac{S}{2}}(c_1^\dagger - c_1)$	$S_3^y \simeq i\sqrt{\frac{S}{2}}(c_3^\dagger - c_3)$	
$S_1^z \simeq -\frac{1}{2}(S - c_1^\dagger c_1) - \frac{\sqrt{3S}}{2\sqrt{2}}(c_1^\dagger + c_1)$	$S_3^z \simeq -\frac{1}{2}(S - c_3^\dagger c_3) + \frac{\sqrt{3S}}{2\sqrt{2}}(c_3^\dagger + c_3)$	

On définit les transformées de Fourier suivantes :

$$\begin{aligned}
c_{1\mathbf{r}} &= \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} c_{1\mathbf{k}} \\
c_{2\mathbf{r}} &= \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k}\cdot(\mathbf{r}-\frac{\mathbf{v}}{2})} c_{2\mathbf{k}} \\
c_{3\mathbf{r}} &= \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k}\cdot(\mathbf{r}+\frac{\mathbf{u}}{2})} c_{3\mathbf{k}}
\end{aligned} \tag{B.4}$$

où \mathbf{r} est un point du réseau triangulaire dont les vecteurs de base \mathbf{u} et \mathbf{v} sont représentés sur la figure B.1 et \mathbf{k} un point du réseau réciproque associé.

Notre point de départ est l'hamiltonien :

$$H = \sum_{\langle ij \rangle} J \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + \mathbf{D}_{ij} \cdot (\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j) \tag{B.5}$$

où i et j sont plus proches voisins du réseau kagomé et avec $\mathbf{D}_{ij} = -D\hat{\mathbf{y}}$ comme représenté sur la figure B.1. A l'aide des transformations B.2, B.3, et des transformées de Fourier B.4, l'hamiltonien B.5 se réécrit :

$$\begin{aligned}
H = & -3NS^2 (J + D\sqrt{3}) + \\
& + S \sum_{\mathbf{k}\alpha\beta} \left(2(J + D\sqrt{3}) \delta_{\alpha\beta} + \frac{J-D\sqrt{3}}{2} \Lambda_{\alpha\beta}(\mathbf{k}) \right) c_\alpha^\dagger(\mathbf{k}) c_\beta(\mathbf{k}) - \\
& - \frac{3J+D\sqrt{3}}{4} \Lambda_{\alpha\beta}(\mathbf{k}) \left(c_\alpha^\dagger(\mathbf{k}) c_\beta^\dagger(-\mathbf{k}) + c_\alpha(\mathbf{k}) c_\beta(-\mathbf{k}) \right)
\end{aligned} \tag{B.6}$$

où δ est la matrice unité et :

$$\Lambda = \begin{pmatrix} 0 & \cos \frac{k_x - \sqrt{3}k_z}{2} & \cos k_x \\ \cos \frac{k_x - \sqrt{3}k_z}{2} & 0 & \cos \frac{k_x + \sqrt{3}k_z}{2} \\ \cos k_x & \cos \frac{k_x + \sqrt{3}k_z}{2} & 0 \end{pmatrix} \tag{B.7}$$

B.3.2 Diagonalisation de l'hamiltonien

Une série de transformations vont nous mener à une forme diagonale pour l'hamiltonien B.6. Les valeurs propres de Λ (voir B.7) sont :

$$\begin{aligned}
\lambda_1 &= -1 \\
\lambda_{2,3} &= \frac{1}{2} \left(1 \pm \sqrt{-3 + 4 \left(\cos^2 k_x + \cos^2 \left(\frac{k_x - \sqrt{3}k_z}{2} \right) + \cos^2 \left(\frac{k_x + \sqrt{3}k_z}{2} \right) \right)} \right)
\end{aligned} \tag{B.8}$$

et les vecteurs propres (non normés) correspondants :

$$v_{1,2,3} = \begin{pmatrix} \cos \frac{k_x + \sqrt{3}k_z}{2} \cos \frac{k_x - \sqrt{3}k_z}{2} + \lambda_{1,2,3} \cos k_x \\ \cos k_x \cos \frac{k_x - \sqrt{3}k_z}{2} + \lambda_{1,2,3} \cos \frac{k_x + \sqrt{3}k_z}{2} \\ \lambda_{1,2,3}^2 - \cos^2 \frac{k_x - \sqrt{3}k_z}{2} \end{pmatrix}$$

ou plus simplement pour v_1 :

$$v_1 = \begin{pmatrix} \sin \frac{k_x + \sqrt{3}k_z}{2} \\ -\sin k_x \\ \sin \frac{k_x - \sqrt{3}k_z}{2} \end{pmatrix}$$

On passe alors dans la base des vecteurs propres de Λ afin de découpler les trois familles de bosons. Ceci se fait à l'aide de la transformation :

$$d_\mu^\dagger(\mathbf{k}) = \sum_{\alpha} A_{\mu\alpha} c_\alpha^\dagger(\mathbf{k})$$

avec :

$$A_{\mu\alpha} = \frac{v_{\mu\alpha}}{|v_\mu|}$$

où $v_{\mu\alpha}$ est la composante α du vecteur propre v_μ . L'hamiltonien B.6 s'écrit alors :

$$\begin{aligned} H = & -3NS^2(J + D\sqrt{3}) + \\ & + S \sum_{\mathbf{k}\mu} \left(2(J + D\sqrt{3}) + \frac{J - D\sqrt{3}}{2} \lambda_\mu(\mathbf{k}) \right) d_\mu^\dagger(\mathbf{k}) d_\mu(\mathbf{k}) - \\ & - \frac{3J + D\sqrt{3}}{4} \lambda_\mu(\mathbf{k}) \left(d_\mu^\dagger(\mathbf{k}) d_\mu^\dagger(-\mathbf{k}) + d_\mu(\mathbf{k}) d_\mu(-\mathbf{k}) \right) \end{aligned} \quad (\text{B.9})$$

On se ramène ensuite à une assemblée d'oscillateurs harmoniques à l'aide du changement de variable :

$$\begin{aligned} Q_\mu(\mathbf{k}) &= \frac{i}{\sqrt{2}} (d_\mu(-\mathbf{k}) - d_\mu^\dagger(\mathbf{k})) \\ P_\mu(\mathbf{k}) &= \frac{1}{\sqrt{2}} (d_\mu^\dagger(\mathbf{k}) + d_\mu(-\mathbf{k})) \end{aligned}$$

Les nouveaux opérateurs vérifient bien la relation de commutation pour un oscillateur harmonique :

$$[P_\mu(\mathbf{k}), Q_\nu(\mathbf{q})] = -i\delta_{\mathbf{k}, -\mathbf{q}} \delta_{\mu, \nu}$$

l'hamiltonien B.9 devient alors :

$$\begin{aligned} H = & -3NS^2(J + D\sqrt{3}) - 3NS(J + D\sqrt{3}) + \\ & + S \sum_{\mathbf{k}\mu} (J + D\sqrt{3}) \left(1 - \frac{\lambda_\mu(\mathbf{k})}{2} \right) P_\mu(\mathbf{k}) P_\mu(-\mathbf{k}) \\ & + (J + D\sqrt{3} + J\lambda_\mu(\mathbf{k})) Q_\mu(\mathbf{k}) Q_\mu(-\mathbf{k}) \end{aligned}$$

On introduit ensuite les variables réduites :

$$\begin{aligned}\tilde{P}_\mu(\mathbf{k}) &= P_\mu(\mathbf{k}) \sqrt{\frac{\epsilon_\mu(\mathbf{k})}{2(J + D\sqrt{3} + J\lambda_\mu(\mathbf{k}))}} \\ \tilde{Q}_\mu(\mathbf{k}) &= Q_\mu(\mathbf{k}) \sqrt{\frac{\epsilon_\mu(\mathbf{k})}{(J + D\sqrt{3})(2 - \lambda_\mu(\mathbf{k}))}}\end{aligned}$$

qui vérifient les mêmes relations de commutation que P et Q. On obtient une forme plus simple de l'hamiltonien :

$$\begin{aligned}H &= -3NS^2(J + D\sqrt{3}) - 3NS(J + D\sqrt{3}) + \\ &+ \frac{S}{2} \sum_{\mathbf{k}\mu} \epsilon_\mu(\mathbf{k}) \left(\tilde{P}_\mu(\mathbf{k})\tilde{P}_\mu(-\mathbf{k}) + \tilde{Q}_\mu(\mathbf{k})\tilde{Q}_\mu(-\mathbf{k}) \right)\end{aligned}$$

où

$$\epsilon_\mu(\mathbf{k}) = \sqrt{2 \left(J + D\sqrt{3} + J\lambda_\mu(\mathbf{k}) \right) \left(J + D\sqrt{3} \right) (2 - \lambda_\mu(\mathbf{k}))}$$

Les trois branches d'excitations avec et sans interaction de Dzyaloshinsky-Moriya sont représentées sur la figure 7.17.

On introduit finalement les opérateur de création et d'annihilation :

$$\begin{aligned}\tilde{P}_\mu(\mathbf{k}) &= \frac{1}{\sqrt{2}}(a_\mu(-\mathbf{k}) + a_\mu^\dagger(\mathbf{k})) \\ \tilde{Q}_\mu(\mathbf{k}) &= \frac{i}{\sqrt{2}}(a_\mu(-\mathbf{k}) - a_\mu^\dagger(\mathbf{k}))\end{aligned}$$

qui vérifient la relation de commutation :

$$[a_\mu(\mathbf{k}), a_\nu^\dagger(\mathbf{q})] = \delta_{\mu,\nu} \delta_{\mathbf{k},\mathbf{q}}$$

Enfin, l'hamiltonien diagonalisé s'écrit :

$$H = -3NS^2(J + D\sqrt{3}) - 3NS(J + D\sqrt{3}) + S \sum_{\mathbf{k}\mu} \epsilon_\mu(\mathbf{k}) \left(a_\mu^\dagger(\mathbf{k})a_\mu(\mathbf{k}) + \frac{1}{2} \right) \quad (\text{B.10})$$

B.3.3 Intégration sur la première zone de Brillouin

Le calcul des grandeurs physiques telles que l'énergie de l'état fondamental ou l'aimantation implique des sommes sur la première zone de Brillouin (voir 7.15 et 7.16). Une façon de la construire est d'introduire, en plus des deux vecteurs de base \mathbf{u} et \mathbf{v} qui servent à décrire le réseau (voir figure B.1), le vecteur $\mathbf{w} = -\hat{\mathbf{y}}$ et on définit les vecteurs de base du réseau réciproque :

$$\begin{aligned}\tilde{\mathbf{u}} &= \frac{2\pi}{|\mathbf{u} \cdot (\mathbf{v} \times \mathbf{w})|} \mathbf{v} \times \mathbf{w} \\ \tilde{\mathbf{v}} &= \frac{2\pi}{|\mathbf{u} \cdot (\mathbf{v} \times \mathbf{w})|} \mathbf{w} \times \mathbf{u}\end{aligned}$$

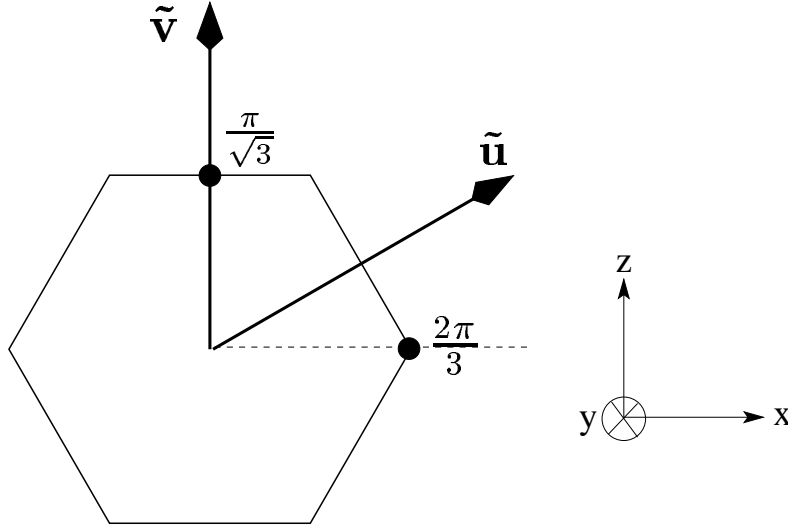


FIG. B.2 – Vecteurs de base du réseau réciproque et première zone de Brillouin du réseau kagomé

Ces deux vecteurs ainsi que la première zone de Brillouin sont représentés sur la figure B.2.

Avant de passer au calcul des grandeurs physiques, il faut prendre la limite thermodynamique ($N \rightarrow \infty$) et passer d'une somme sur la première zone de Brillouin à une intégrale. Cette intégrale est ensuite évaluée numériquement à l'aide d'une intégration Monté Carlo en prenant N_{al} vecteurs \mathbf{k}_{al} au hasard dans la première zone de Brillouin :

$$\begin{array}{ccccc}
 \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k} \in ZB} & \xrightarrow{N \rightarrow \infty} & \frac{\sqrt{3}}{2\pi^2} \int_{ZB} & = \lim_{N_{\text{al}} \rightarrow \infty} & \frac{1}{N_{\text{al}}} \sum_{\mathbf{k}_{\text{al}} \in ZB} \\
 & \downarrow & & \downarrow & \\
 & \text{limite} & & \text{Evaluation} & \\
 & \text{thermodynamique} & & \text{Monté Carlo} &
 \end{array}$$

B.4 Effets quantiques : diagonalisation exacte pour un tétraèdre

L'étude des interactions Dzyaloshinsky-Moriya sur le réseau pyrochlore a été faite avec des spins classiques. Dans ce paragraphe, on aborde le problème quantique, de façon qualitative sur le réseau pyrochlore puis en diagonalisant exactement l'hamiltonien pour un tétraèdre de spins $S = \frac{1}{2}$.

B.4.1 Fluctuations quantiques sur le réseau pyrochlore

Sur le réseau pyrochlore, dans le cas d'une interaction "direct", trois raisons laissent penser que les effets des fluctuations quantiques seront mineurs :

- L’anisotropie induite est de type Ising (axes faciles), ce qui augmente la robustesse vis à vis des fluctuations.
- Par analogie avec ce qui se passe dans le réseau kagomé, on s’attend à un faible effet des fluctuations quantiques en présence d’interactions Dzyaloshinsky-Moriya, sauf peut-être pour des spins très petits ($S = \frac{1}{2}$?)
- Le réseau est tridimensionnel, ce qui réduit l’importance des fluctuations (thermiques et quantiques).

Dans le cas d’une interaction “indirecte”, la situation est moins claire. Comme cela a été montré au paragraphe 8.3, les fluctuations thermiques sélectionnent les états coplanaires parmi un ensemble d’états dégénérés énergétiquement. On peut se demander si les fluctuations quantiques jouent le même rôle ou pas. Un développement en ondes de spins autour de deux états, l’un coplaire et l’autre non-coplaire pourrait répondre à cette question.

Par ailleurs, l’anisotropie est cette fois de type planaire (les spins sont soit réellement dans des plans soit limités à certaines surfaces dans l’espace). Malgré cela, les fluctuations quantiques ne devraient pas remettre en cause l’ordre de type Néel obtenu avec des interactions “indirectes”, encore une fois à cause de l’aspect tridimensionnel et par analogie avec le réseau kagomé avec des vecteurs \mathbf{D} perpendiculaires au plan, où l’anisotropie est également planaire.

B.4.2 Diagonalisation exacte de l’hamiltonien pour un tétraèdre de spins $S = \frac{1}{2}$

Aborder le problème des interactions Dzyaloshinsky-Moriya avec des spins $S = \frac{1}{2}$ sur le réseau pyrochlore n’est pas évident a priori. On se contente ici de diagonaliser exactement l’hamiltonien avec interactions d’échange antiferromagnétiques et Dzyaloshinsky-Moriya pour un tétraèdre de quatre spins $S = \frac{1}{2}$. On ne prétend en aucun cas approcher le spectre que l’on obtiendrait sur le réseau pyrochlore, mais juste se faire une idée des caractéristiques qui pourraient être introduites par des interactions Dzyaloshinsky-Moriya. Cette étude pourrait aider à la compréhension du composé $\text{Cu}_2\text{Te}_2\text{O}_5\text{Br}_2$ constitué de tétraèdres faiblement couplés où les courbes d’aimantation montrent un caractère ferromagnétique faible [74, 61, 49].

En l’absence d’interactions Dzyaloshinsky-Moriya, l’hamiltonien est isotrope et $\mathbf{S}_{\text{total}}^2$ dont les valeurs propres sont $S(S+1)$ ($S = 0, 1, 2$) commute avec l’hamiltonien. Le niveau fondamental est alors dégénéré et constitué de deux singulets ($S=0$). Le premier niveau excité est constitué de 9 états triplets ($S=1$). Ces états magnétiques sont séparés des singulets par un gap de valeur J , ce qui se traduit par une décroissance exponentielle de la susceptibilité en fonction de la température. En présence d’interactions Dzyaloshinsky-Moriya, S n’est plus un bon nombre quantique. En l’absence de champ, l’état fondamental reste dégénéré deux fois, mais la valeur moyenne de $\mathbf{S}_{\text{total}}^2$ n’est plus nulle, l’état fondamental du tétraèdre est un état magnétique. On a représenté sur la figure B.3 l’évolution de la valeur moyenne de $\mathbf{S}_{\text{total}}^2$ en fonction de l’intensité de l’interaction Dzyaloshinsky-Moriya.

Sur la figure B.4 on a représenté l’évolution de l’aimantation en fonction du champ pour un système avec et sans interactions Dzyaloshinsky-Moriya. L’application d’un champ magnétique lève totalement la dégénérescence de l’état fondamental du système. On voit sur la figure B.4 que l’effet des interactions Dzyaloshinsky-Moriya ne

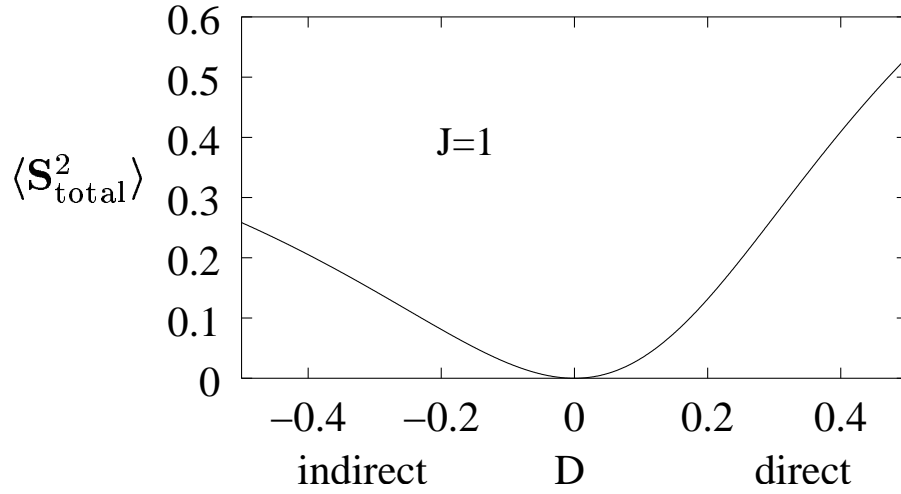


FIG. B.3 – Carré de l’aimantation totale pour un tétraèdre de spins $S = \frac{1}{2}$. $\mathbf{S}_{\text{total}} = \mathbf{S}_1 + \mathbf{S}_2 + \mathbf{S}_3 + \mathbf{S}_4$. S_{total} n’est plus un bon nombre quantique. Les interactions Dzyaloshinsky-Moriya font apparaître un moment magnétique, l’état fondamental n’est plus un singulet.

se limite pas à la susceptibilité en champ nul qui acquiert une valeur finie en présence d’interactions Dzyaloshinsky-Moriya (les courbes d’aimantation ont une pente finie à l’origine). Tout le processus d’aimantation est affecté, de manière différente selon le type d’interaction (directe ou indirecte). Le saut d’aimantation pour un champ appliqué de ~ 0.7 est dû à un croisement de niveaux d’énergie.

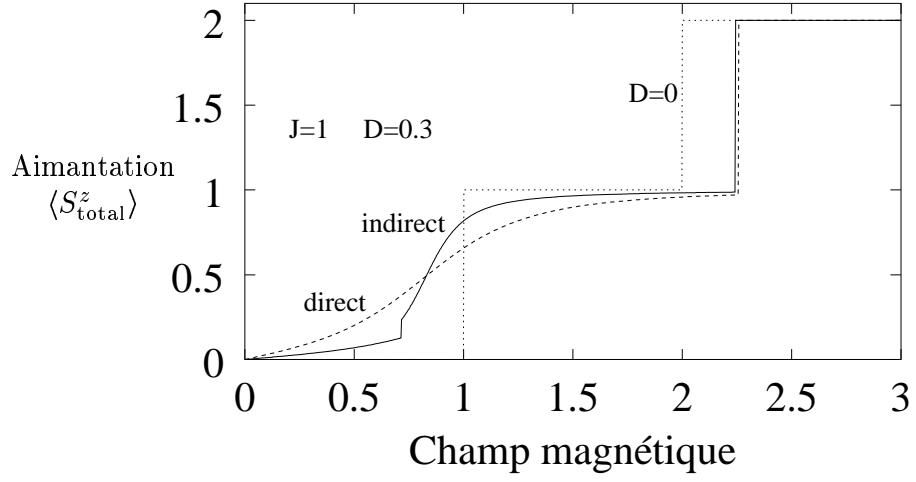


FIG. B.4 – Aimantation totale pour un tétraèdre de spins $S = \frac{1}{2}$. $S_{\text{total}}^z = S_1^z + S_2^z + S_3^z + S_4^z$. S_{total}^z n'est plus un bon nombre quantique. Pour comparaison on a représenté aussi le système sans interactions Dzyaloshinsky-Moriya ($D=0$). Le saut d'aimantation pour le cas indirect à $\sqrt{2}$ est dû à un croisement de niveaux.

Résumé

Cette thèse est consacrée à l'étude de quelques aspects théoriques de systèmes géométriquement frustrés.

Dans certains réseaux (pyrochlore, ...) où les interactions antiferromagnétiques entre spins ($S=1/2$) plus proches voisins sont fortement frustrées l'état fondamental ainsi que les premiers états excités sont des singulets ($S_{total}=0$). Par ailleurs, les corrélations spin-spin sont à courte portée dans ces liquides de spins. En prenant en compte ces deux caractéristiques, ainsi que la géométrie du réseau pyrochlore, on dérive un hamiltonien effectif pour décrire ce système à basse température. En résolvant cet hamiltonien à l'approximation du champ moyen, on obtient la structure singulet de l'état fondamental.

Le réseau kagomé a été l'objet de nombreuses études qui montrent que l'hamiltonien de Heisenberg conduit à un état désordonné liquide de spins sur ce réseau. Ceci est en désaccord avec l'ordre magnétique observé dans certaines réalisations expérimentales du réseau kagomé (de la famille des jarosites). On montre que les interactions Dzyaloshinsky-Moriya sont autorisées par la géométrie du réseau kagomé (et des jarosites), on en précise la structure et une dérivation microscopique de ces interactions est faite. Les propriétés magnétiques qui en découlent sont étudiées dans l'approximation du champ moyen et par simulations Monté Carlo. Les fluctuations quantiques sont sondées par un développement en ondes de spins. On montre que les interactions de Dzyaloshinsky-Moriya expliquent la mise en ordre de certains composés jarosites.

Le cas du réseau pyrochlore est également considéré : on explicite les interactions Dzyaloshinsky-Moriya autorisées par la géométrie de ce réseau et les structures magnétiques qui en découlent. Cette interaction pourrait expliquer l'ordre magnétique qui apparaît dans certains composés pyrochlores.

Abstract

The work presented in this thesis is divided in two parts, both related to geometrically frustrated spins systems.

In some highly frustrated lattices (pyrochlore, ...) with an antiferromagnetic interaction between nearest neighbour $S=1/2$ spins, the ground state as well as the first excited states are singlets ($S_{total}=0$). Furthermore, the spin-spin correlations in these spin-liquids are short ranged. In order to study the low temperature behaviour of these systems we derive an effective hamiltonian restricted to the singlet sector and which takes into account the local character of the singlets as well as the lattice geometry. Solving this hamiltonian within the mean field approximation, we are able to extract the singlet structure of the ground state.

The kagomé antiferromagnet has been widely studied for its peculiar magnetic properties and disordered ground state. However, some experimental realizations of the kagomé lattice (jarosites compounds) have an ordered low temperature magnetic structure. Taking into account the geometry of the kagomé lattice (or the related jarosites compounds), we show that Dzyaloshinsky-Moriya interactions are relevant for these systems, and a microscopic derivation of this interaction is done. On the other hand, we show by mean-field calculations as well as Monté Carlo simulations that this interaction explains the magnetic structure of the jarosites. Monté Carlo simulations are also used to study the magnetic properties at finite temperature. Quantum fluctuations are considered through a spin-wave expansion.

A similar work is done for the pyrochlore lattice. We explicit the Dzyaloshinsky-Moriya interactions allowed by the symmetry of this lattice and the magnetic ordering which appears. We propose that the ordering of some pyrochlore compounds might be due to Dzyaloshinsky-Moriya interactions.