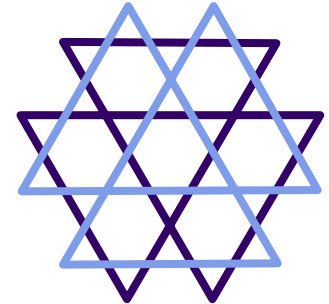


# Etude par RMN et $\mu$ SR des composés antiferromagnétiques fortement frustrés à géométrie de bicouches kagomé

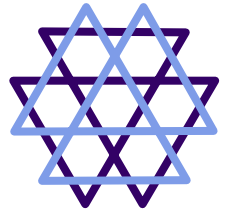
David Bono, Philippe Mendels  
Gaston Collin, Nicole Blanchard

*Laboratoire de Physique des Solides*

*Laboratoire Léon Brillouin*



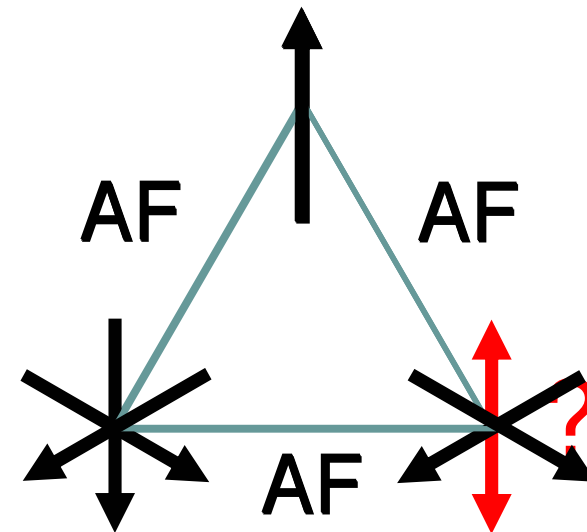
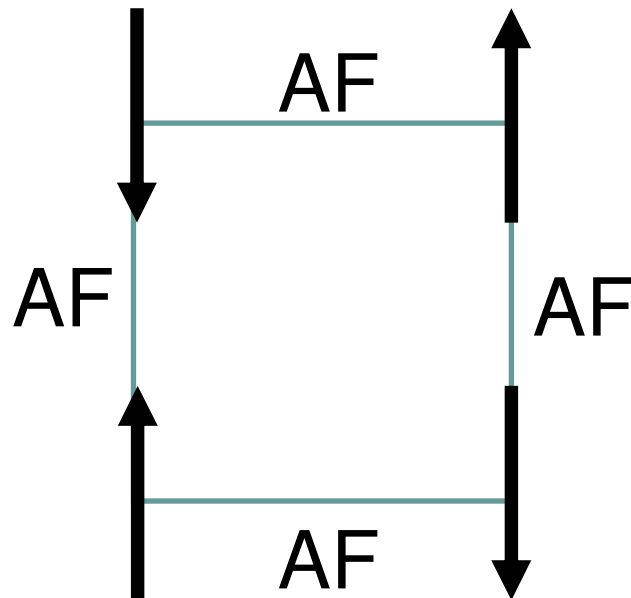
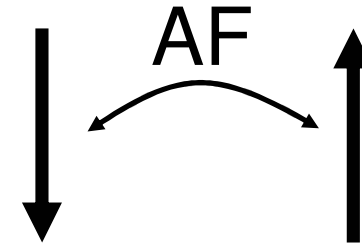
# Systemes antiferromagnetiques



- Couplage AF entre deux spins  
Hamiltonien  $H = J \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j$ ; ( $J > 0$ ) .

Spins Heisenberg

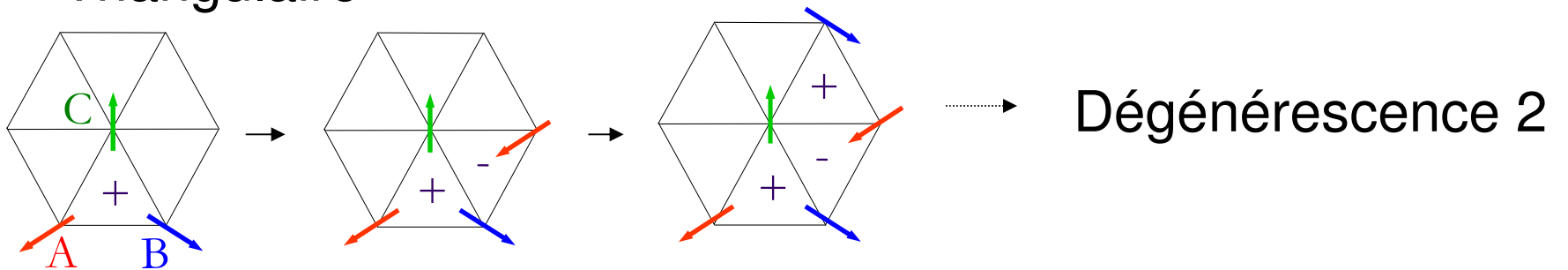
Ordre de Néel



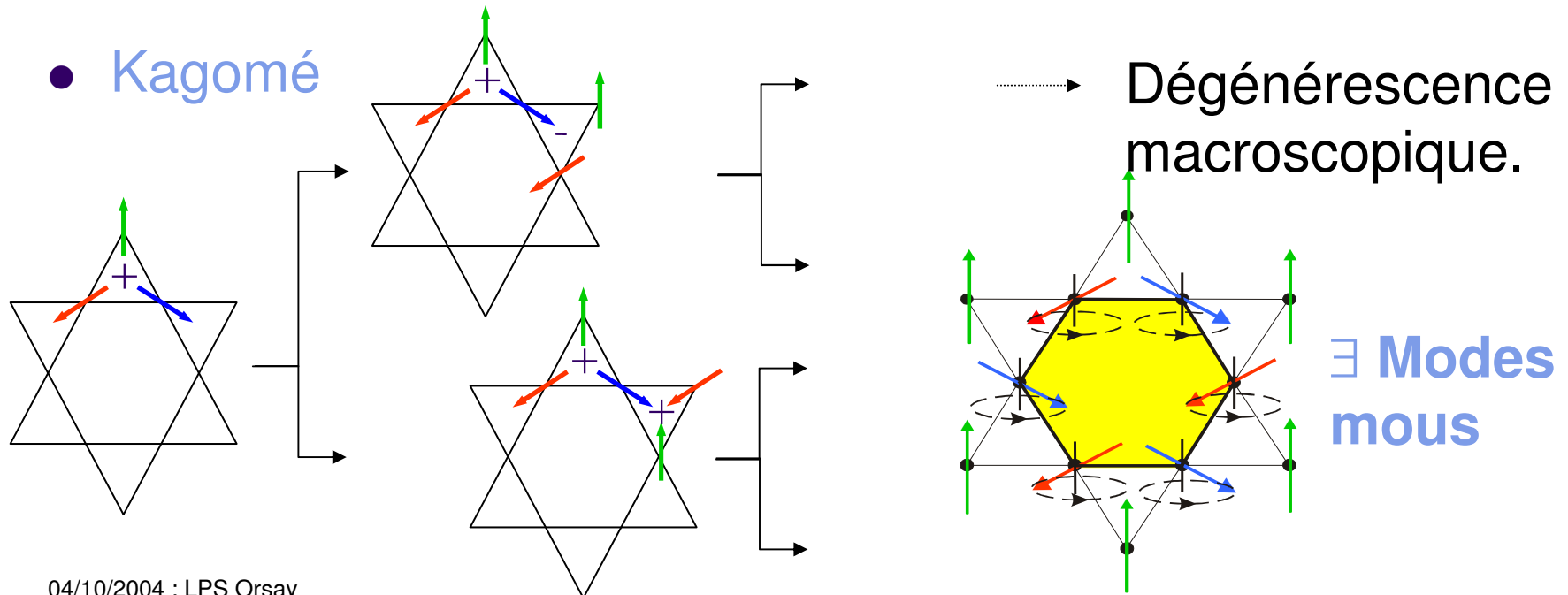
# Réseaux de taille macroscopique



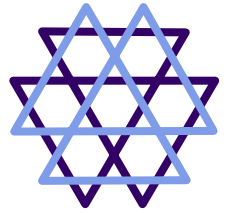
- Triangulaire



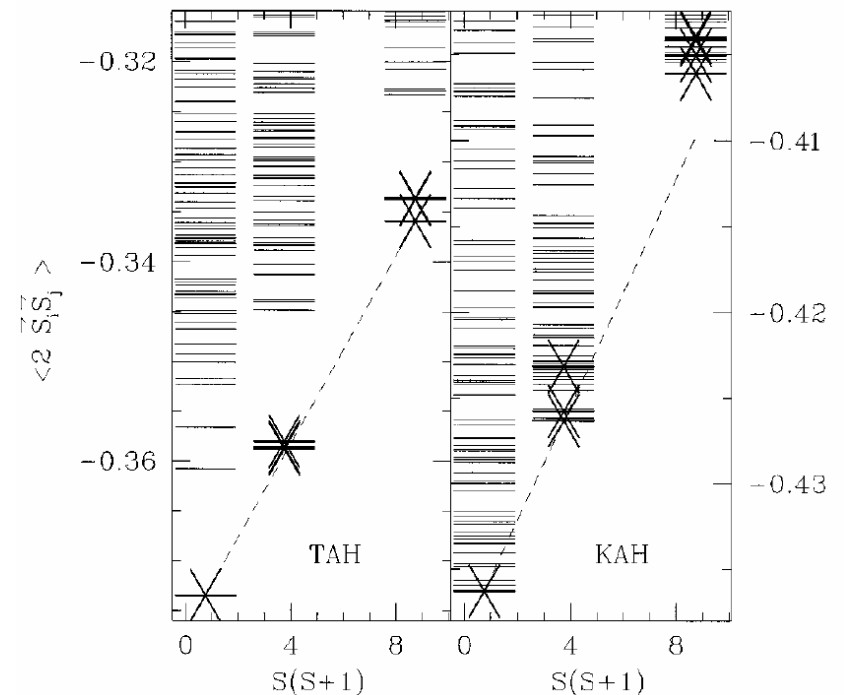
- Kagomé



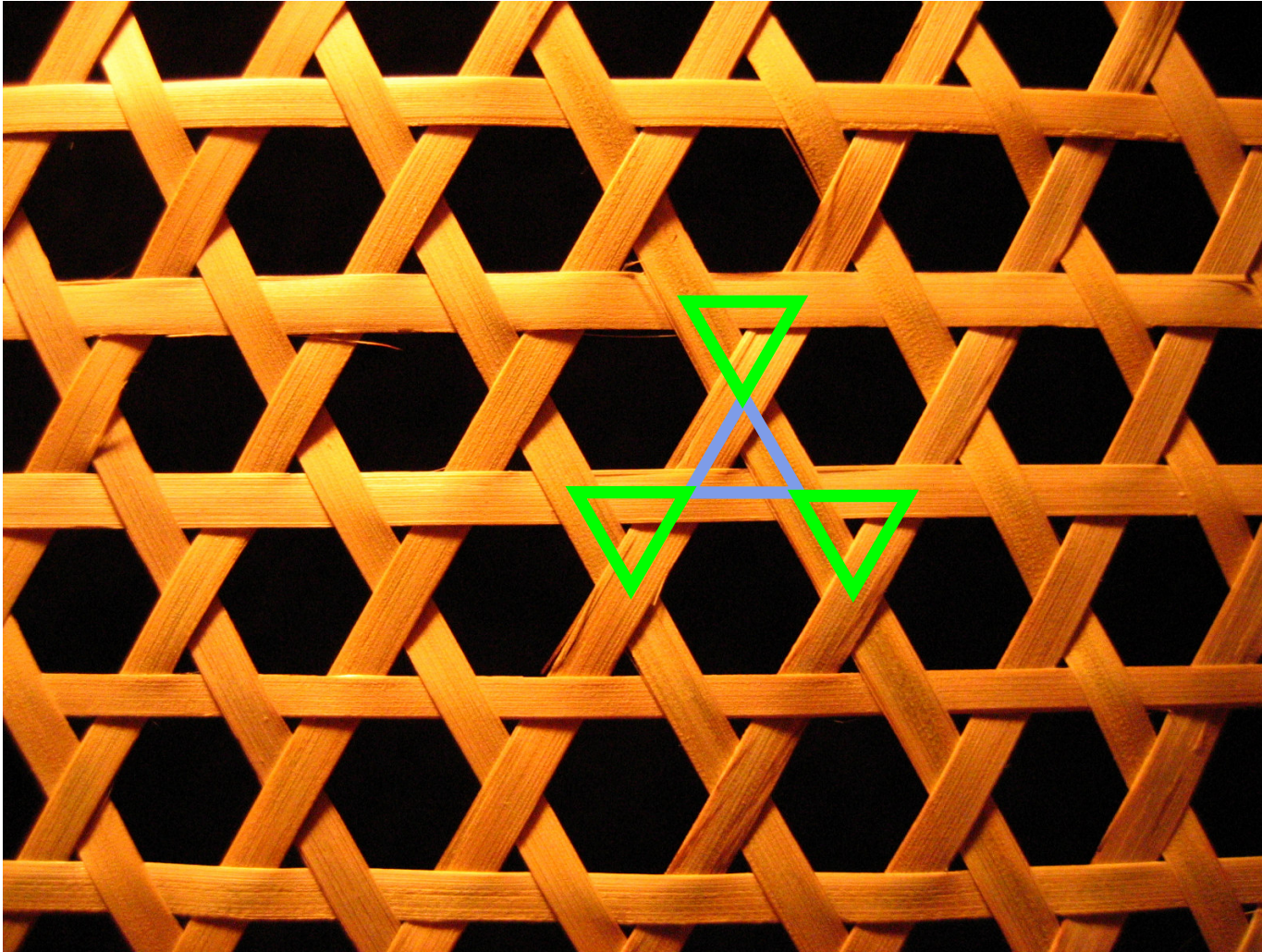
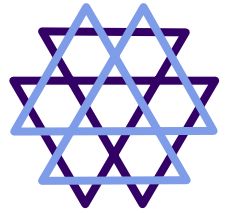
# Réseaux kagomé AF parfait : un fondamental *liquide de spins* ?



- $\exists$  (?) gap fondamental-triplet  $\Delta \sim J/20$ .  
Lecheminant, PRB **56**, 2521 (1997) ;  
Waldtmann *et al.*, EPJB **2**, 501 (1998).
- $\nexists$  (?) gap fondamental-2<sup>ème</sup> singulet.
- Etat RVB ?  
Zengh *et al.*, PRB **51**, 2318 (1995) ;  
Mila, PRL **81**, 2356 (2000).



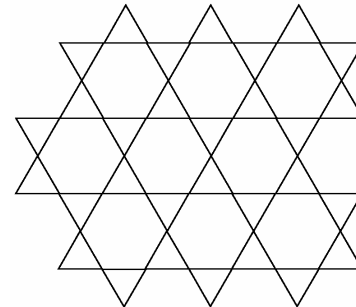
# Kagomé ?



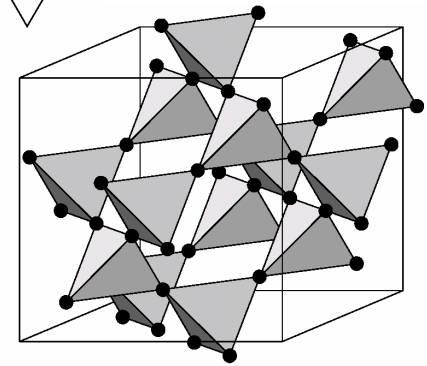
# Systemes experimentaux



- Kagomé : jarosites...



- Pyrochlores :  $Y_2Mo_2O_7$ ,  $Tb_2Ti_2O_7$ ...

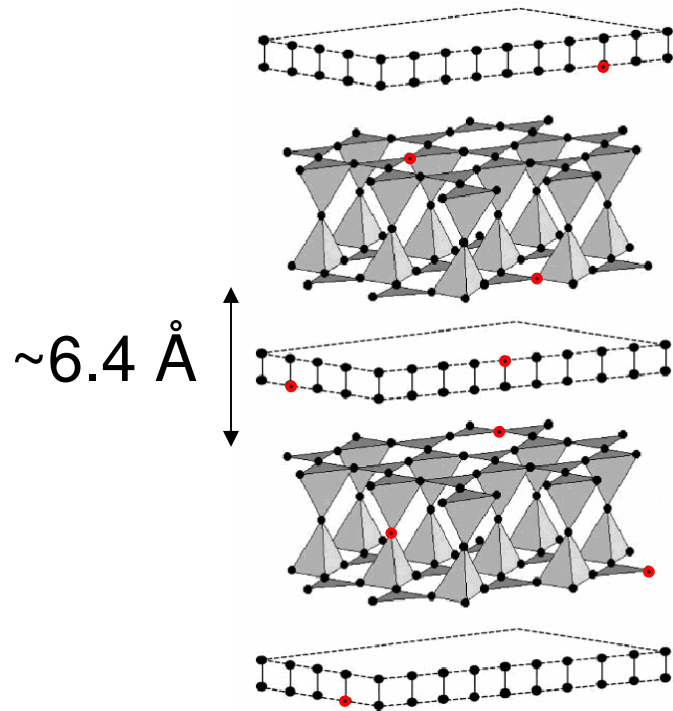


- $H = J \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + \text{perturbations ?}$

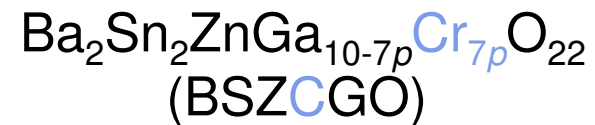
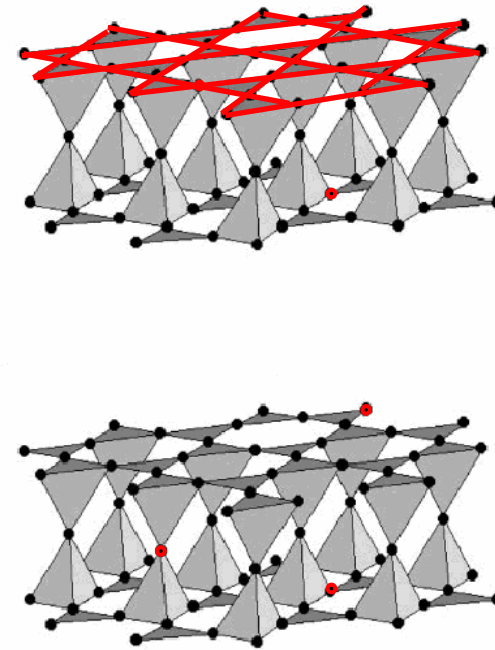
- Bicouches kagomé :  $SrCr_{9p}Ga_{12-9p}O_{19}$  et  $Ba_2Sn_2ZnGa_{10-7p}Cr_{7p}O_{22}$  ;  $Cr^{3+}$   $S=3/2$  Heisenberg



# Bicouches kagomé ( $S=3/2$ )



$p$  : taux  
d'occupation  
des sites Cr  
 $p \leq 0.97$

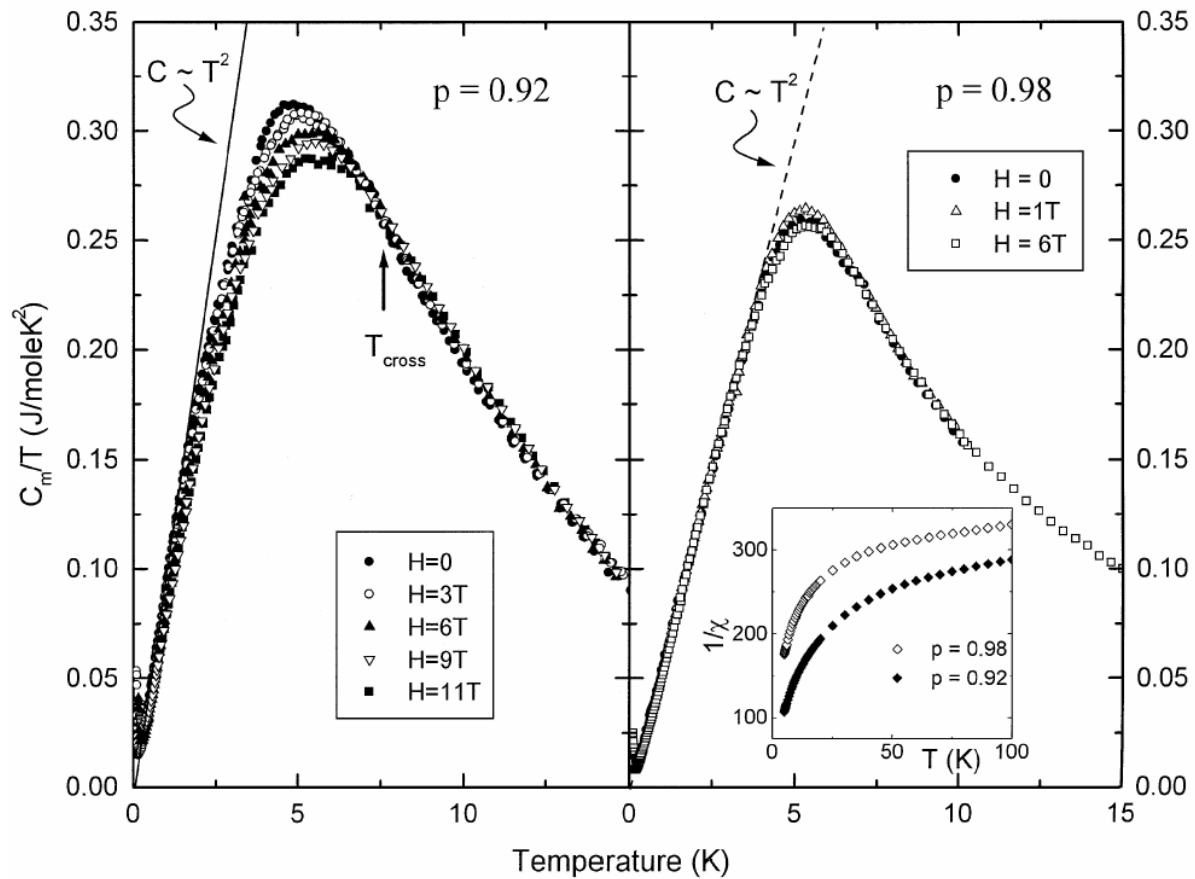


**SCGO** : Ramirez *et al.*, PRL **64**, 2070 (1990).

Mendels *et al.*, PRL **85**, 3496 (2000) ; Limot *et al.*, PRB **65**, 144447 (2002).

**BSZCGO** : Hagemann *et al.*, PRL **86**, 894 (2001).

# Chaleur spécifique



Ramirez *et al.*, PRL **84**, 2957 (2000).



# Plan

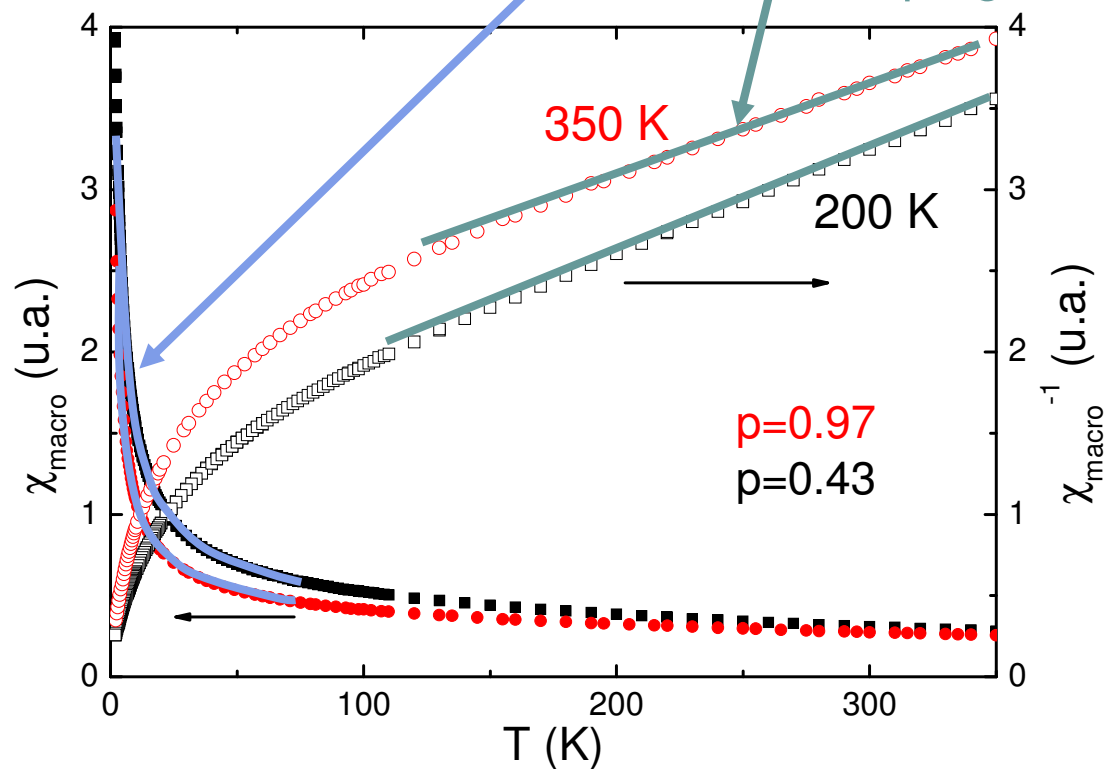


- Mesures de **susceptibilité** (SQUID, RMN)
- $\Rightarrow$  nature des corrélations, défauts
  
- Mesure de **dynamique** de spin ( $\mu$ SR)
- $\Rightarrow$  nature des excitations

# Susceptibilité macroscopique canonique (SQUID)



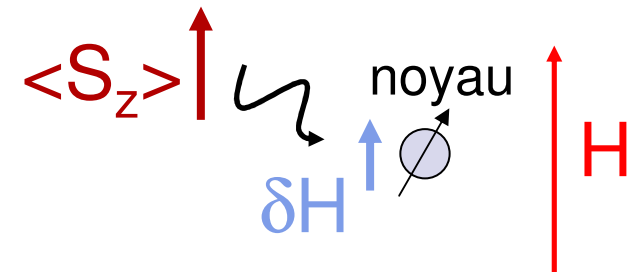
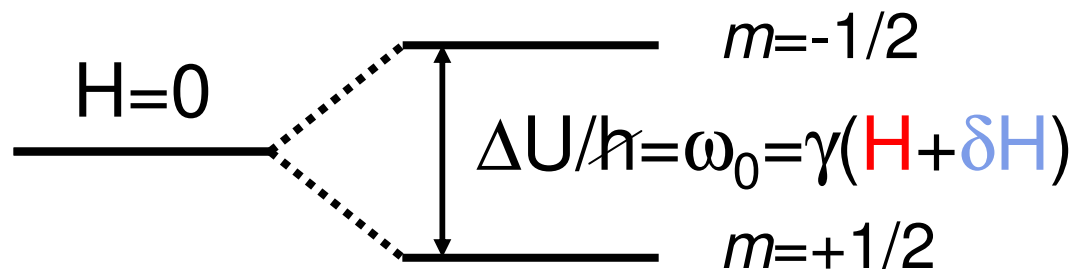
- Mesure SQUID :  $\chi = \frac{C}{T} + \frac{C_{CW}}{T + \theta_{CW}}$



# La RMN : une sonde locale du magnétisme

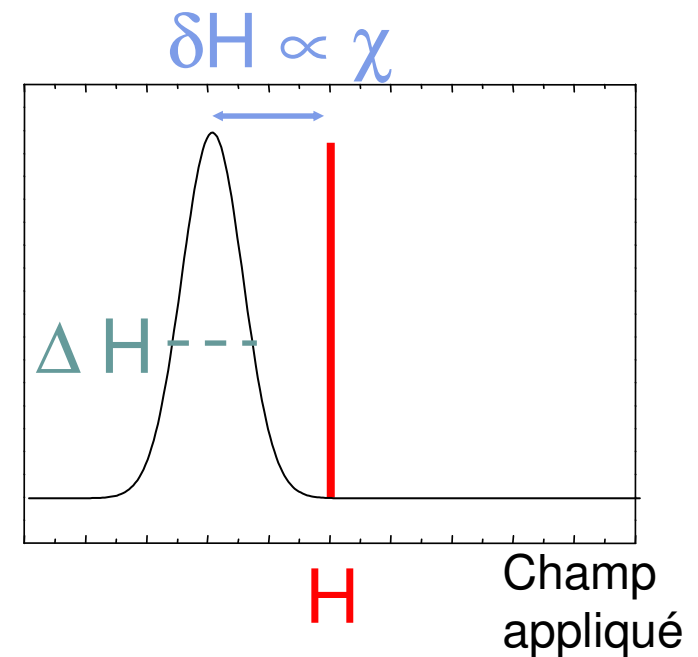


- Effet Zeeman ( $I=1/2$ )



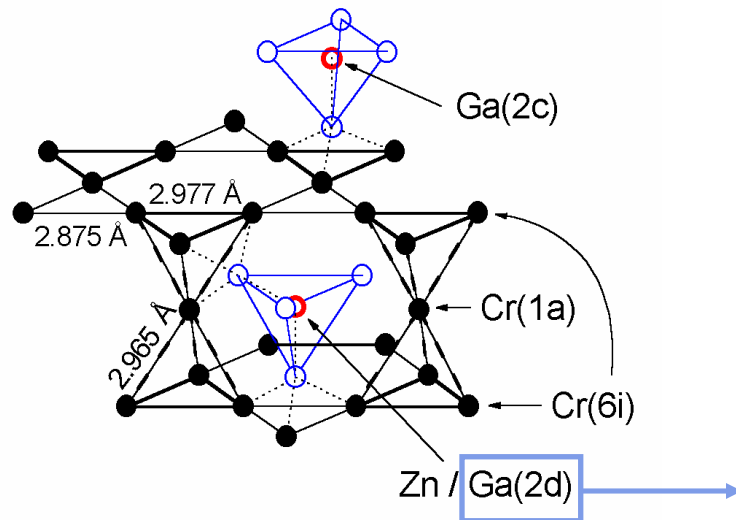
- Résonance

- Déplacement  $\propto$  susceptibilité moyenne.
- Largeur de raie : distribution de susceptibilité



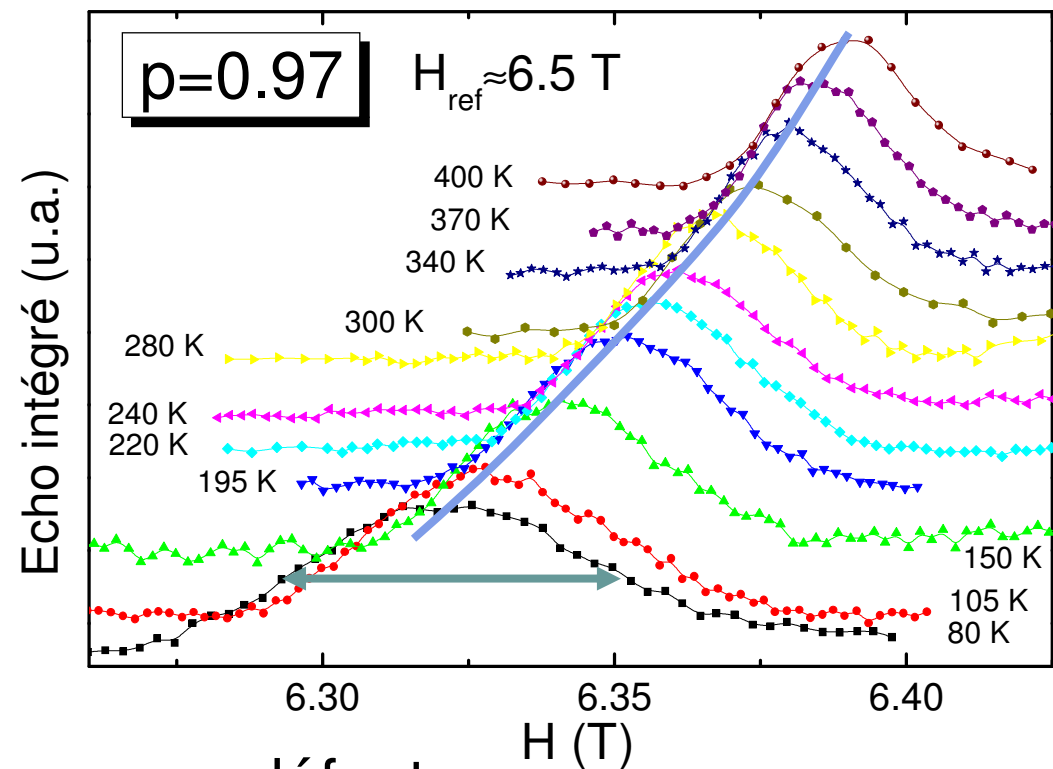


# RMN du $^{71}\text{Ga}$ dans BSZCGO



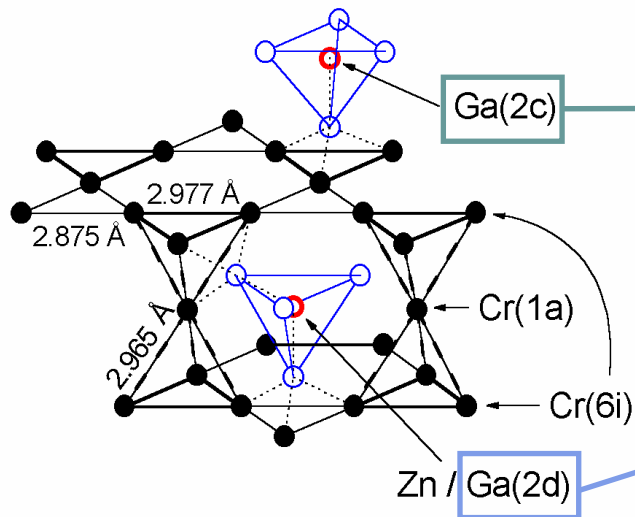
Noyau Ga(2d) ( $I=3/2$ )  
couplé à 12 Cr.

- Déplacement  $\propto$   
susceptibilité de la bicouche.

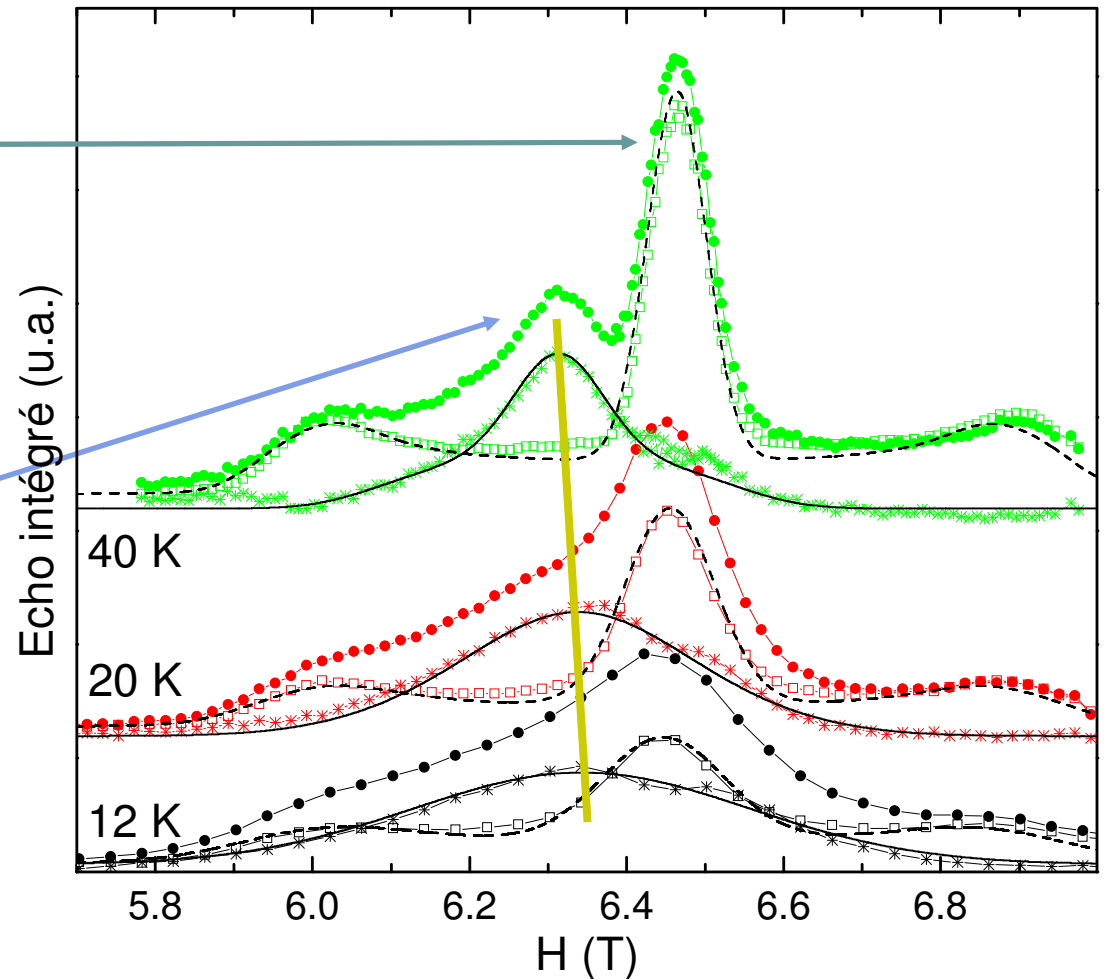


- Largeur  $\Rightarrow$  défauts.

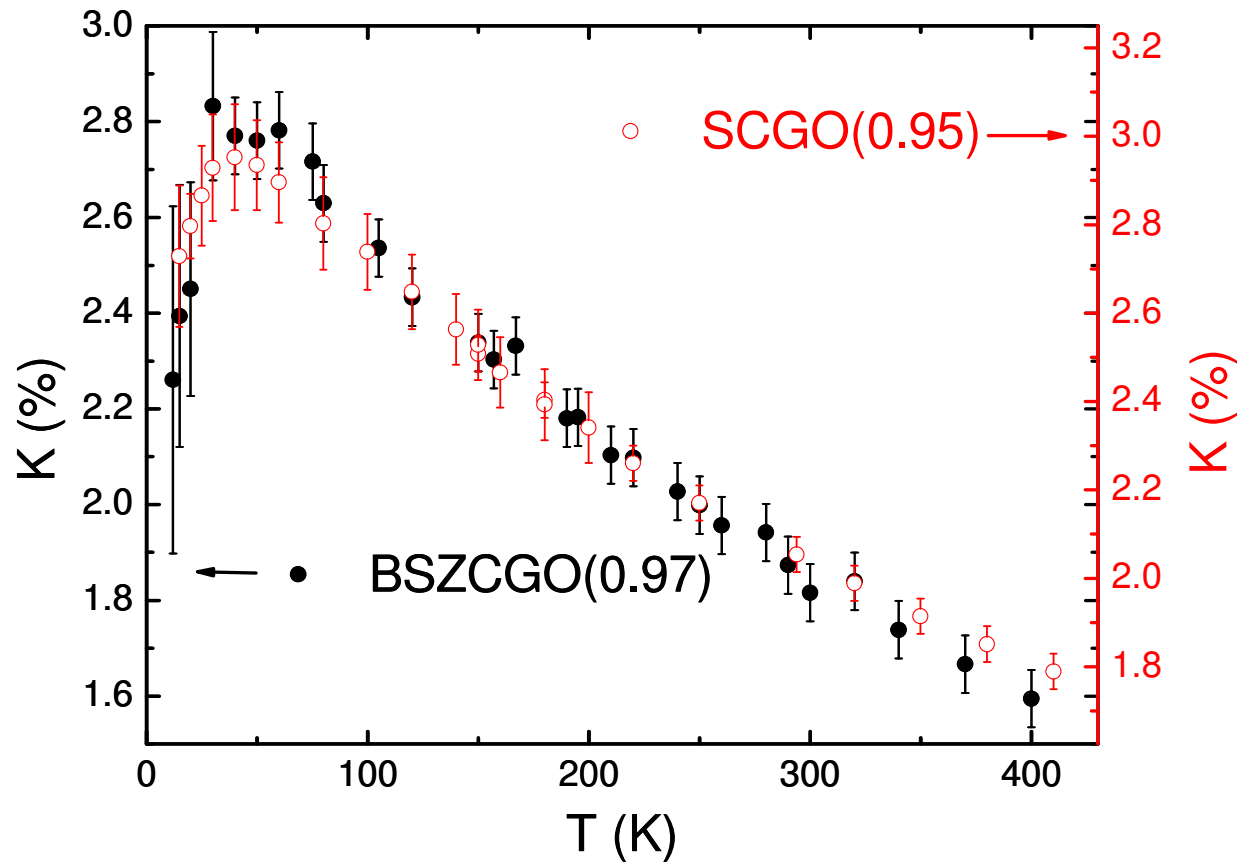
# RMN du $^{71}\text{Ga}$ dans BSZCGO (basses températures)



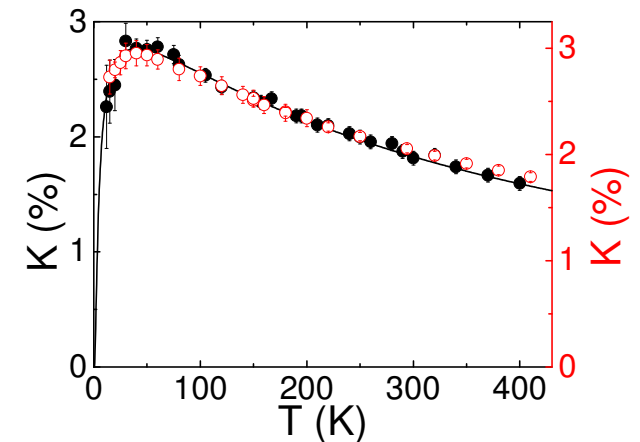
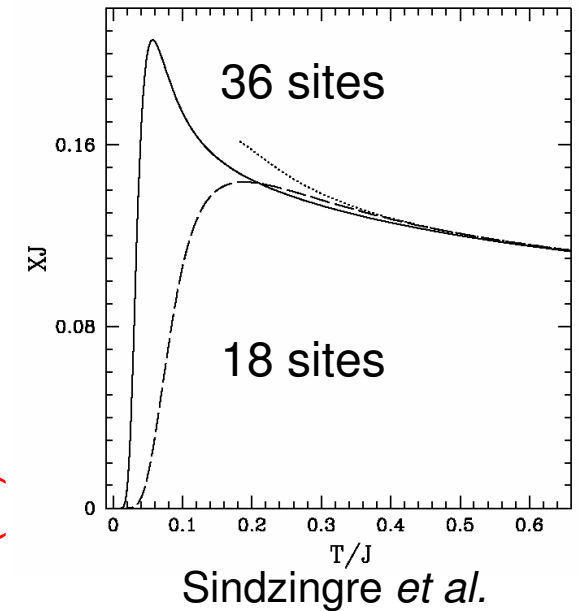
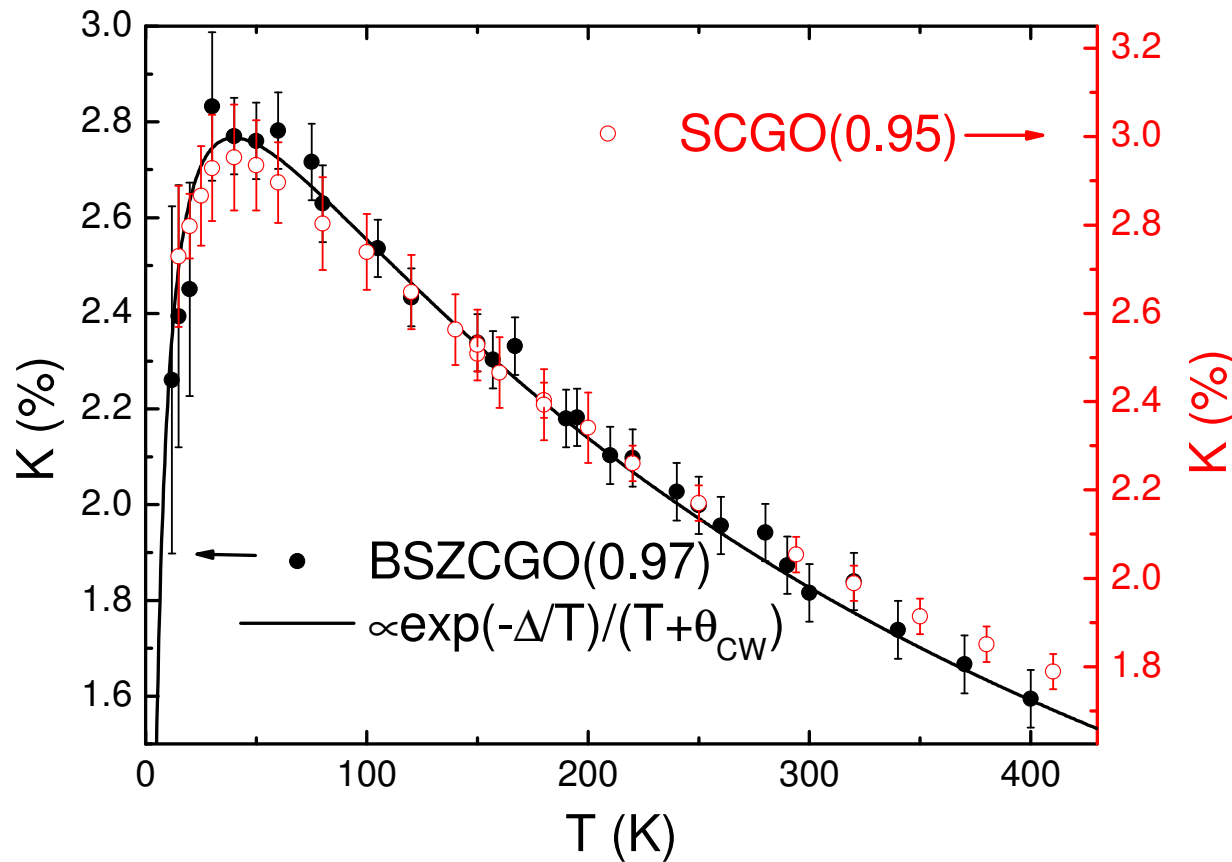
Utilisation du temps de relaxation transverse  $T_2$ .



# Susceptibilité intrinsèque des bicouches



# Susceptibilité des bicouches : existence d'un gap de spin ?

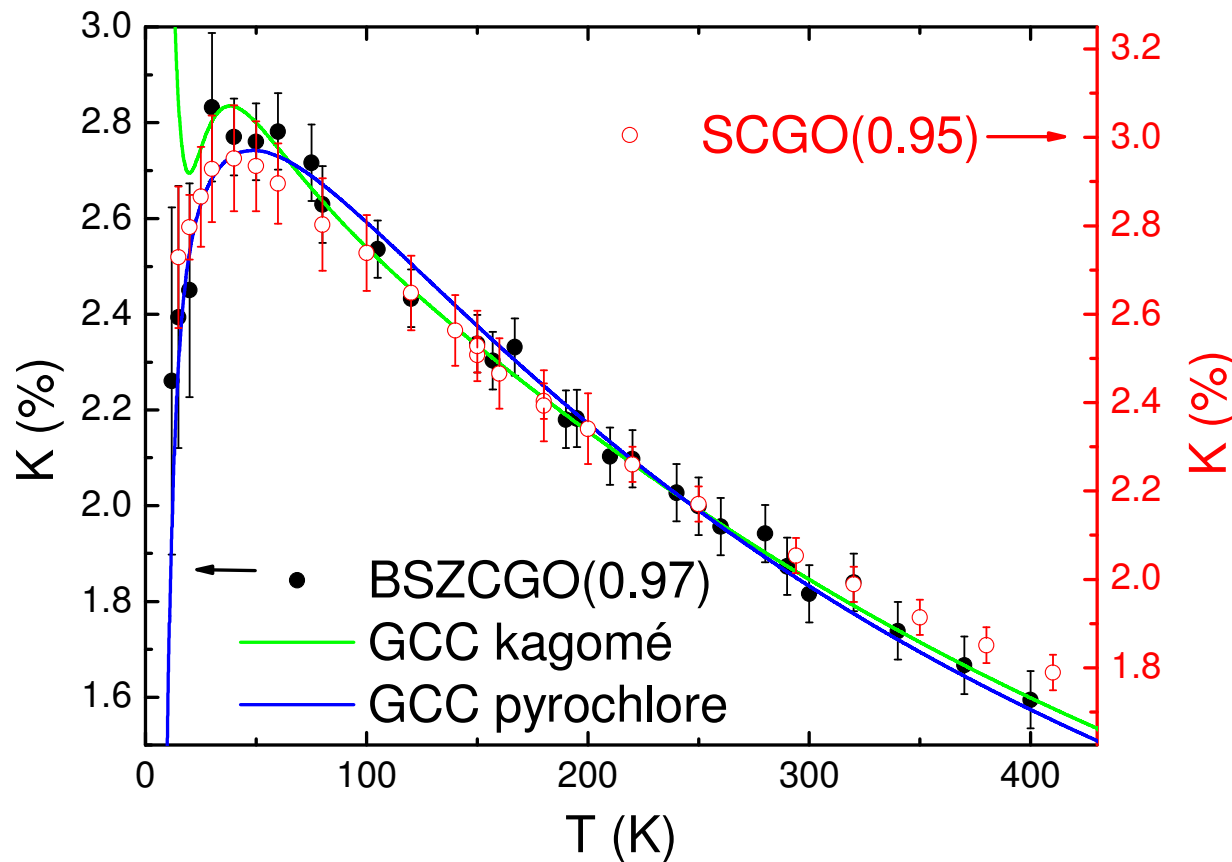




# Susceptibilité des bicouches : corrélations à courte portée



- Champ moyen appliqué à des clusters.

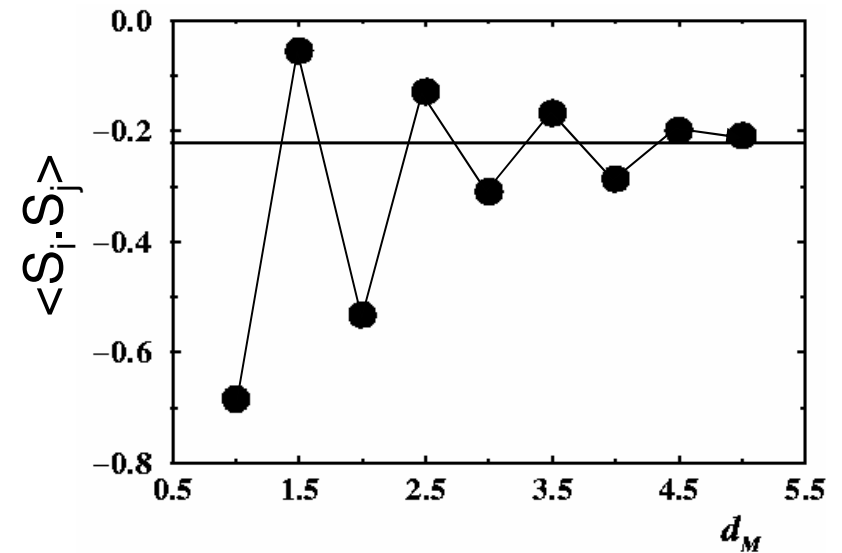
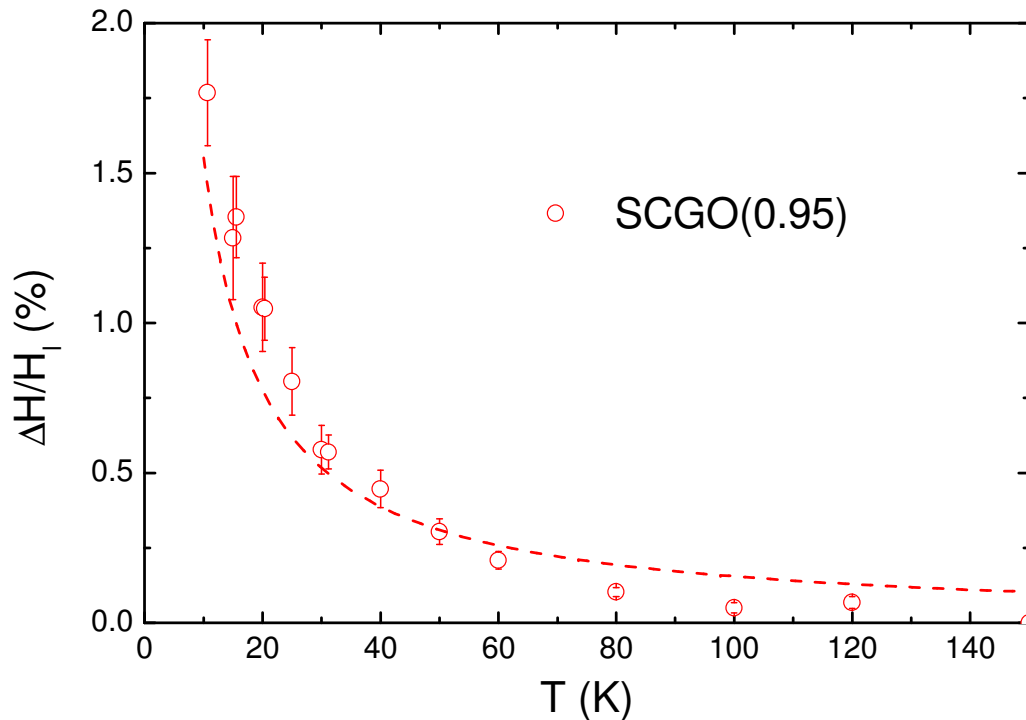


- Calcul HT (Garcia-Adeva et Huber, PRB **63**, 174433 ; PRB **64**, 172403 (2001)).

- Neutrons : Mondelli *et al.*, PB **267**, 139 (1999); Bonnet *et al.*, JPCM **16**, S835 (2004).

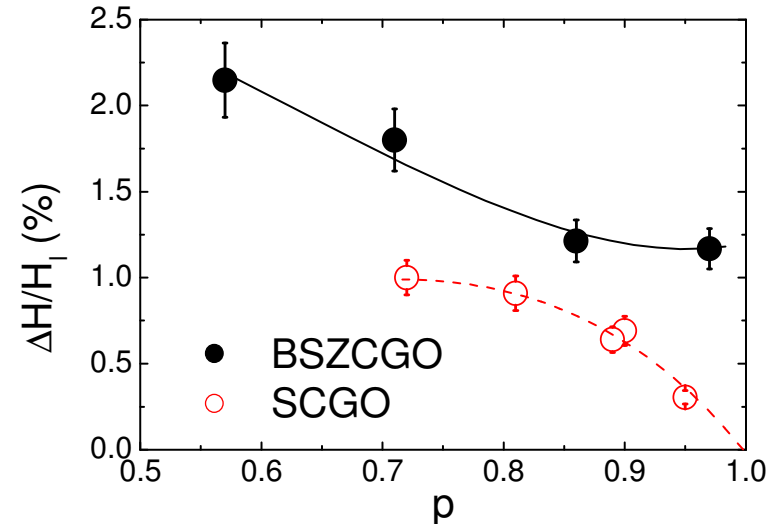
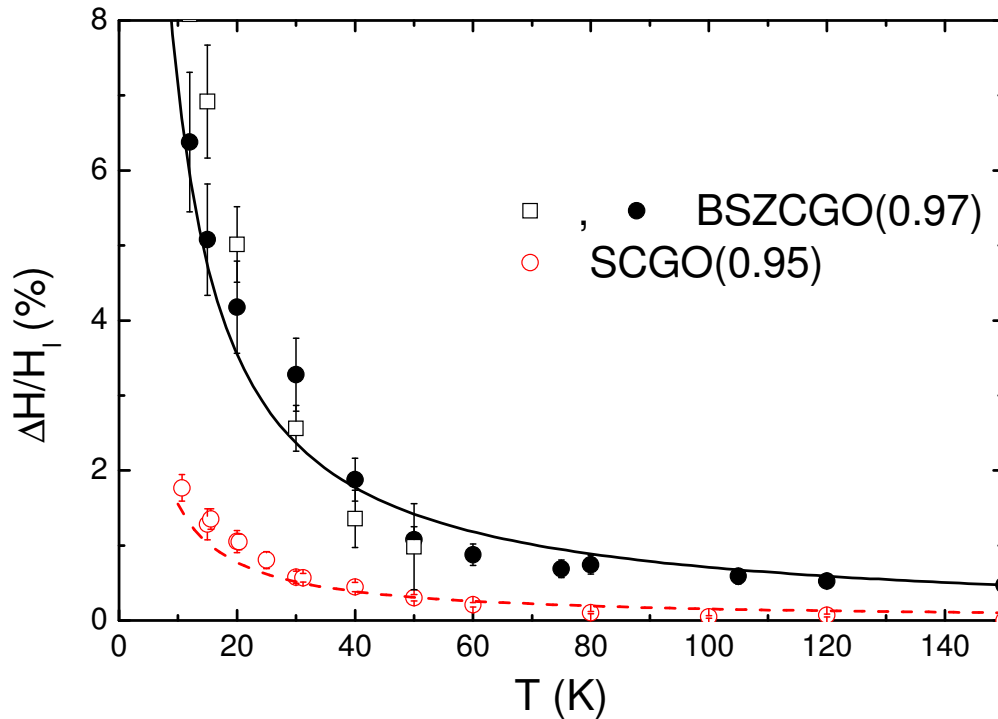
Bono *et al.*, PRL **92**, 217202 (2004).

# Largeur de raie RMN : défauts étendus dans SCGO

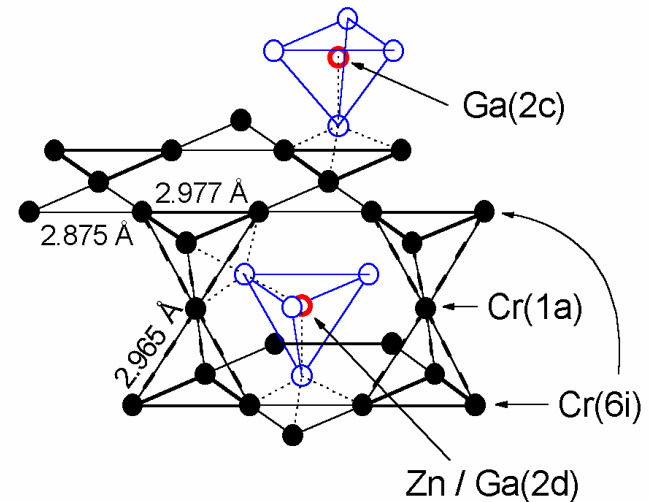


- Largeur et forme des raie  $\Rightarrow$  défauts étendus (Limot *et al.*, PRB **65**, 144447 (2002)).
- Théorie : polarisation alternée (Dommande *et al.*, PRB **68**, 24416 (2003)).

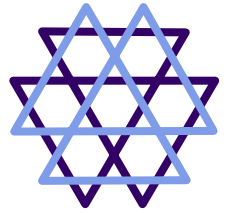
# Largeur de raie RMN : nouveaux défauts dans BSZCGO



Existence de défauts indépendants de  $p$ .



# Susceptibilité hautes températures : conclusions

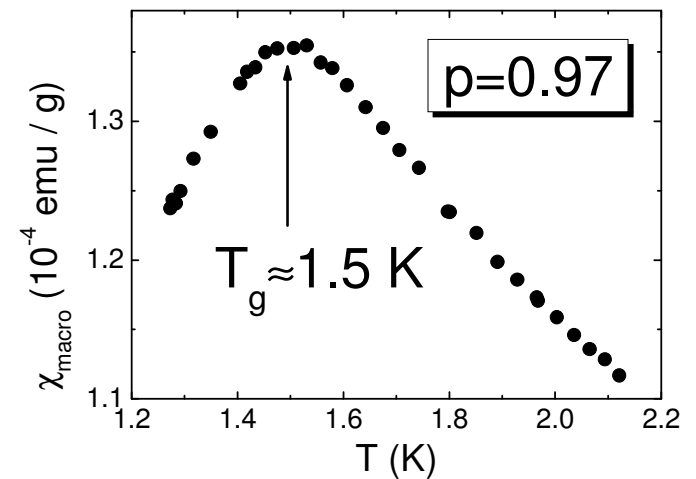
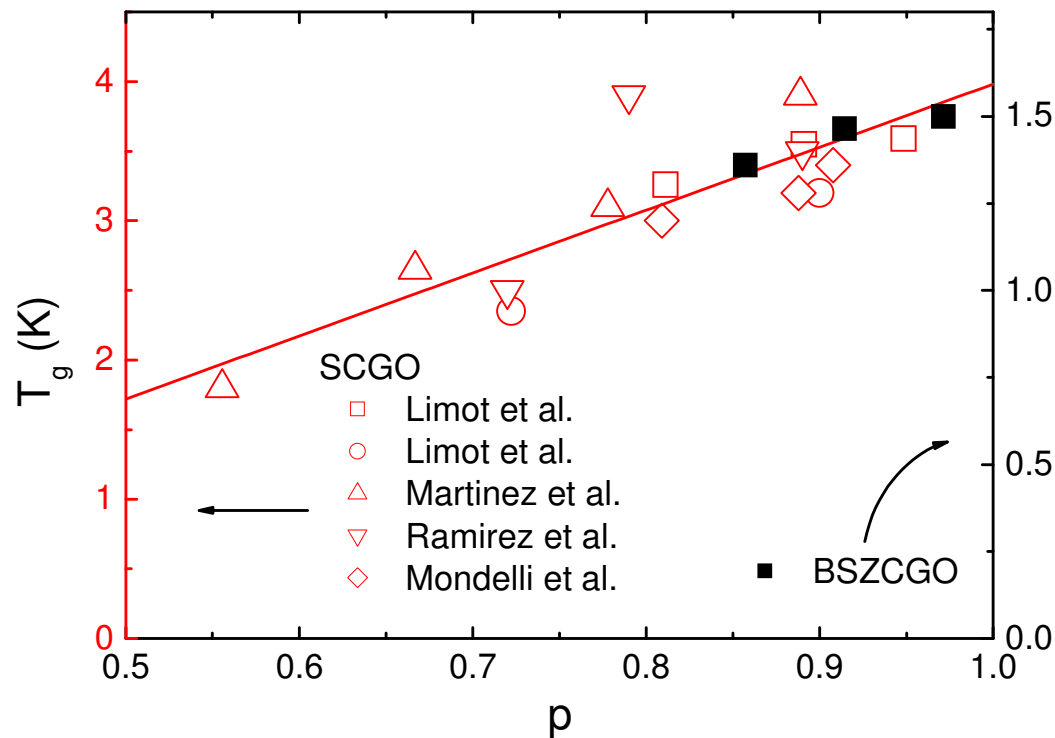


- Absence de transition pour  $T \ll \theta_{CW}$ .
- Corrélations à très courte portée.
- Gap ? (<4 K ?)
- Nouveaux défauts dans BSZCGO.
- Susceptibilité intrinsèque.
  
- Limitations de la RMN dans BSZCGO :
  - Largeur de raie.
  - Fluctuations ?

# Une transition de *type* verre de spin



- Transition intrinsèque... liée aux défauts ?



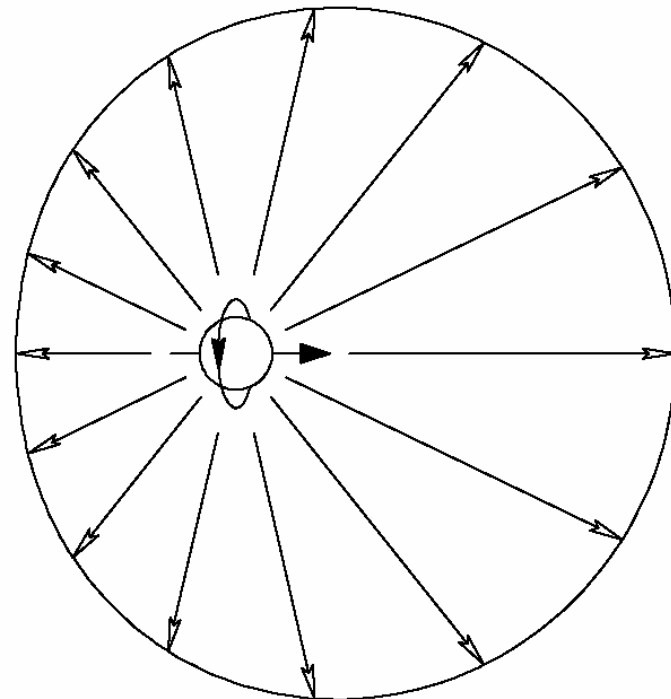
Mila *et al.*, EPJB **26**, 301 (2001) ;  
 Ferrero *et al.*, PRB **68**,  
 214431(2003).

# Etude de la dynamique de spins par $\mu$ SR



- Résonance/Relaxation/Rotation de spin de muon
- Muon  $\mu^+$ 
  - Spin 1/2.
  - Faisceau 100 % polarisé.
  - Temps de vie 2.2  $\mu$ s.
  - $\mu^+ \rightarrow e^+ + \text{neutrinos}$ .

$\Rightarrow$  Sonde locale du magnétisme.



# Lignes utilisées



TRIUMF



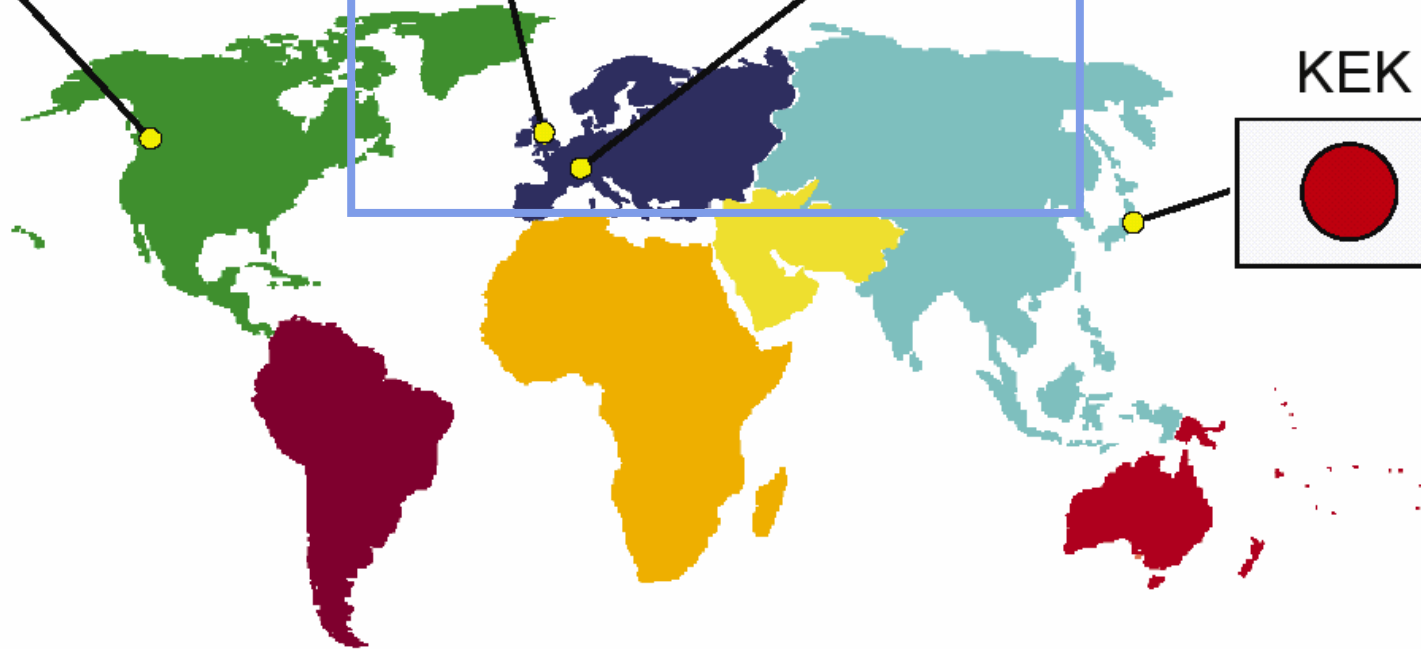
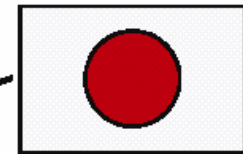
ISIS



PSI



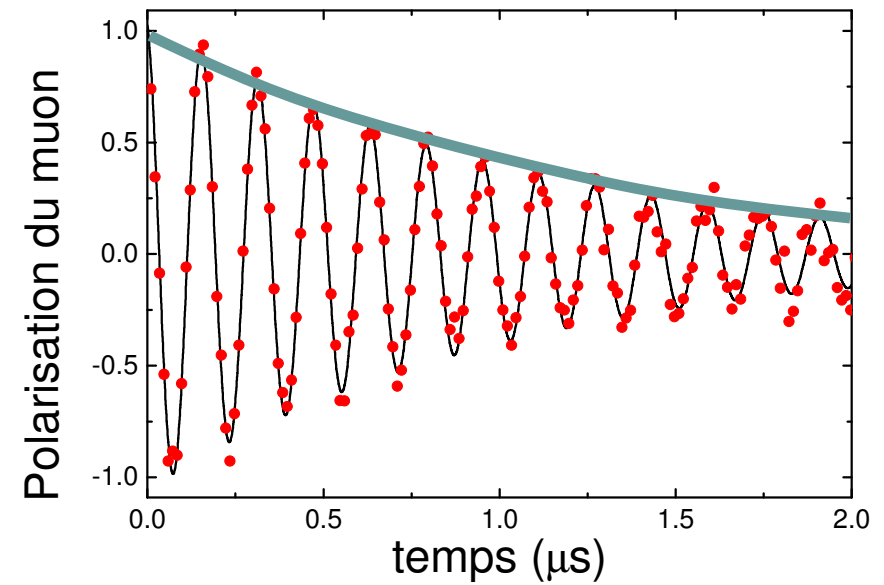
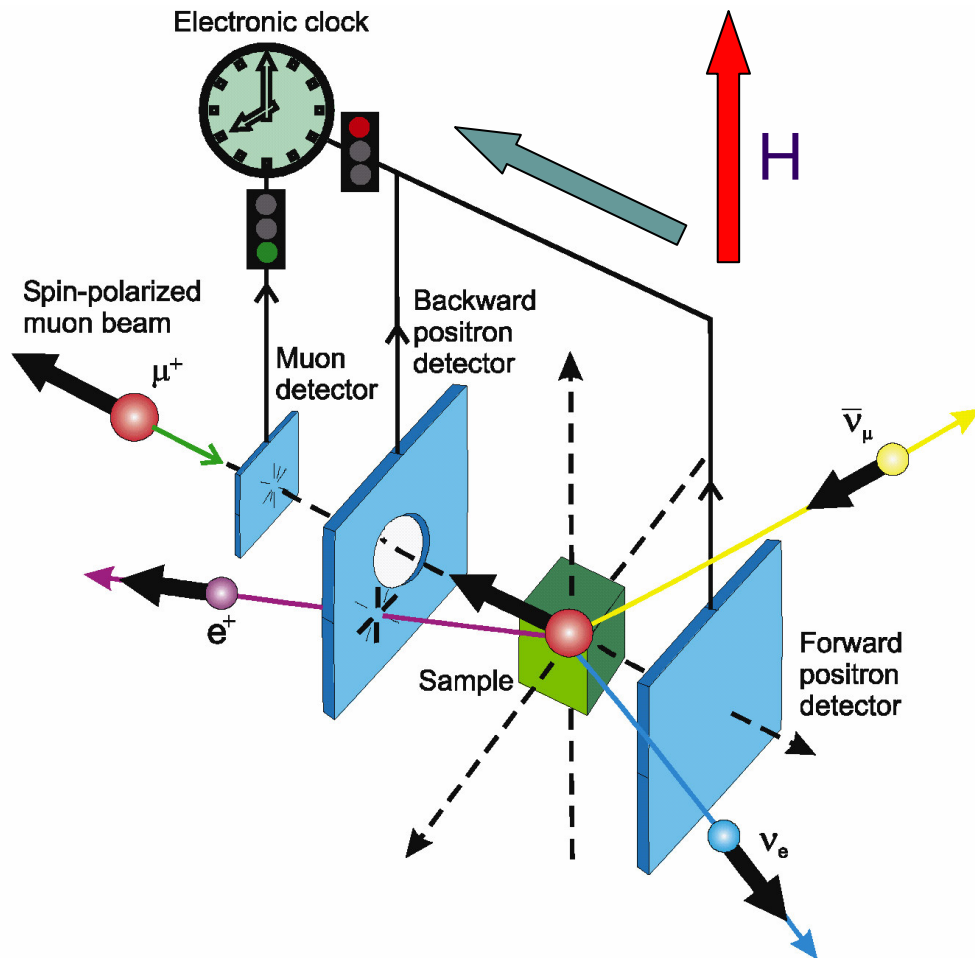
KEK



Responsables d'instruments : A. Amato (PSI), C. Baines (PSI)  
A.D. Hillier (ISIS)



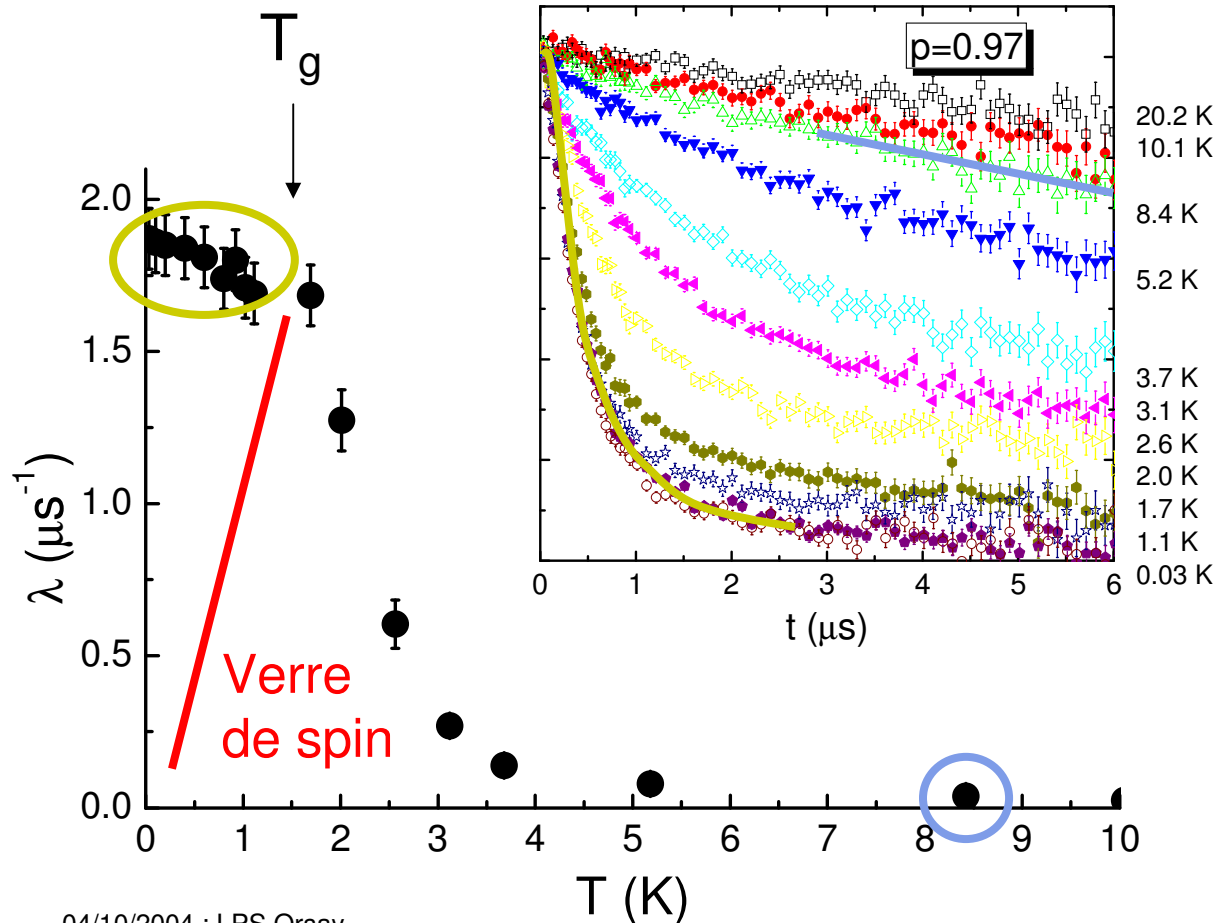
# Dispositif expérimental



# Plateau de relaxation et polarisation non conventionnelle



- BSZCGO...

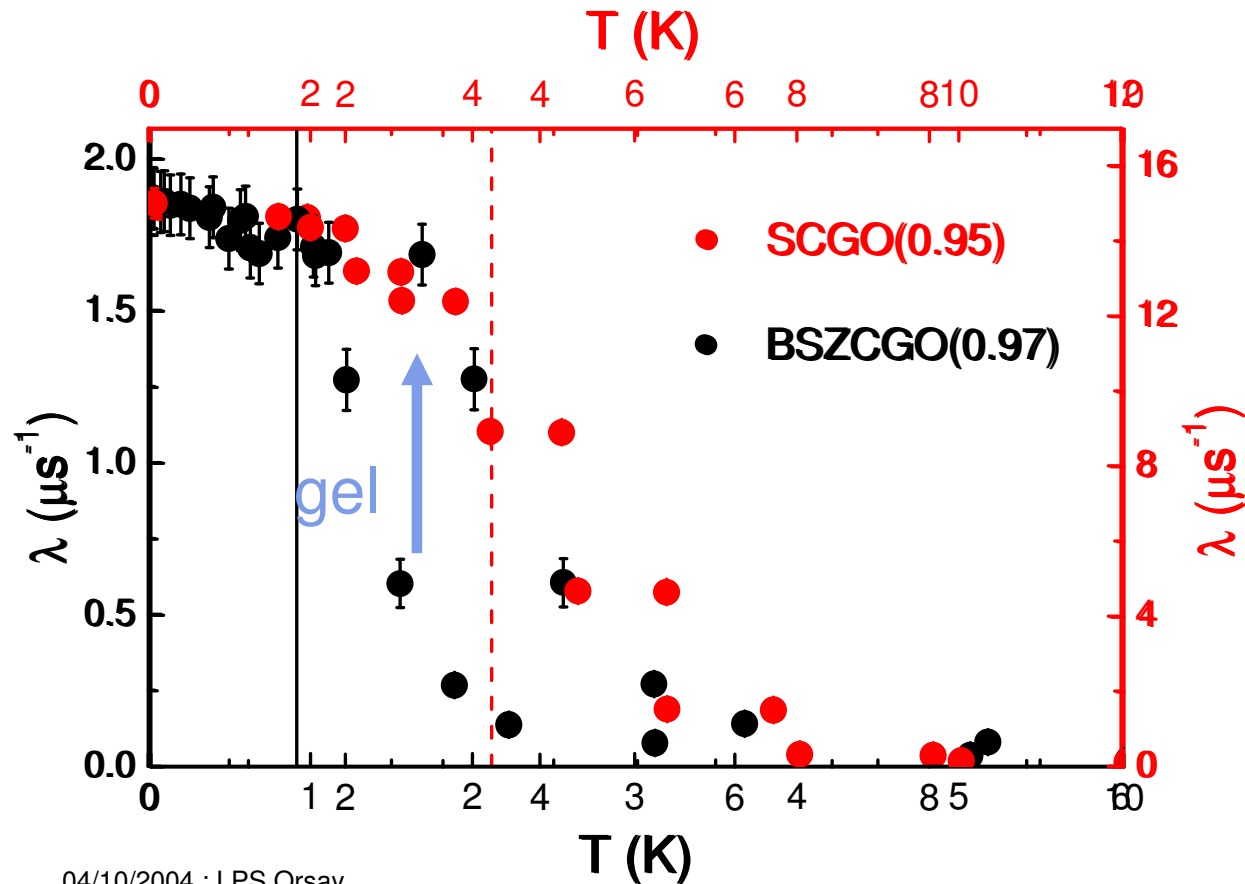


- Absence de gel.
- Neutrons : 70% non-gelé (Broholm *et al.*, PRL **65**, 3173 (1990)).

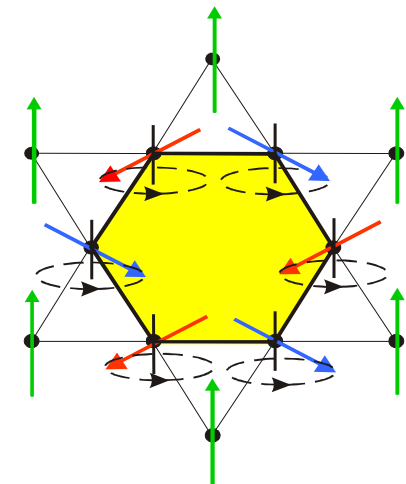
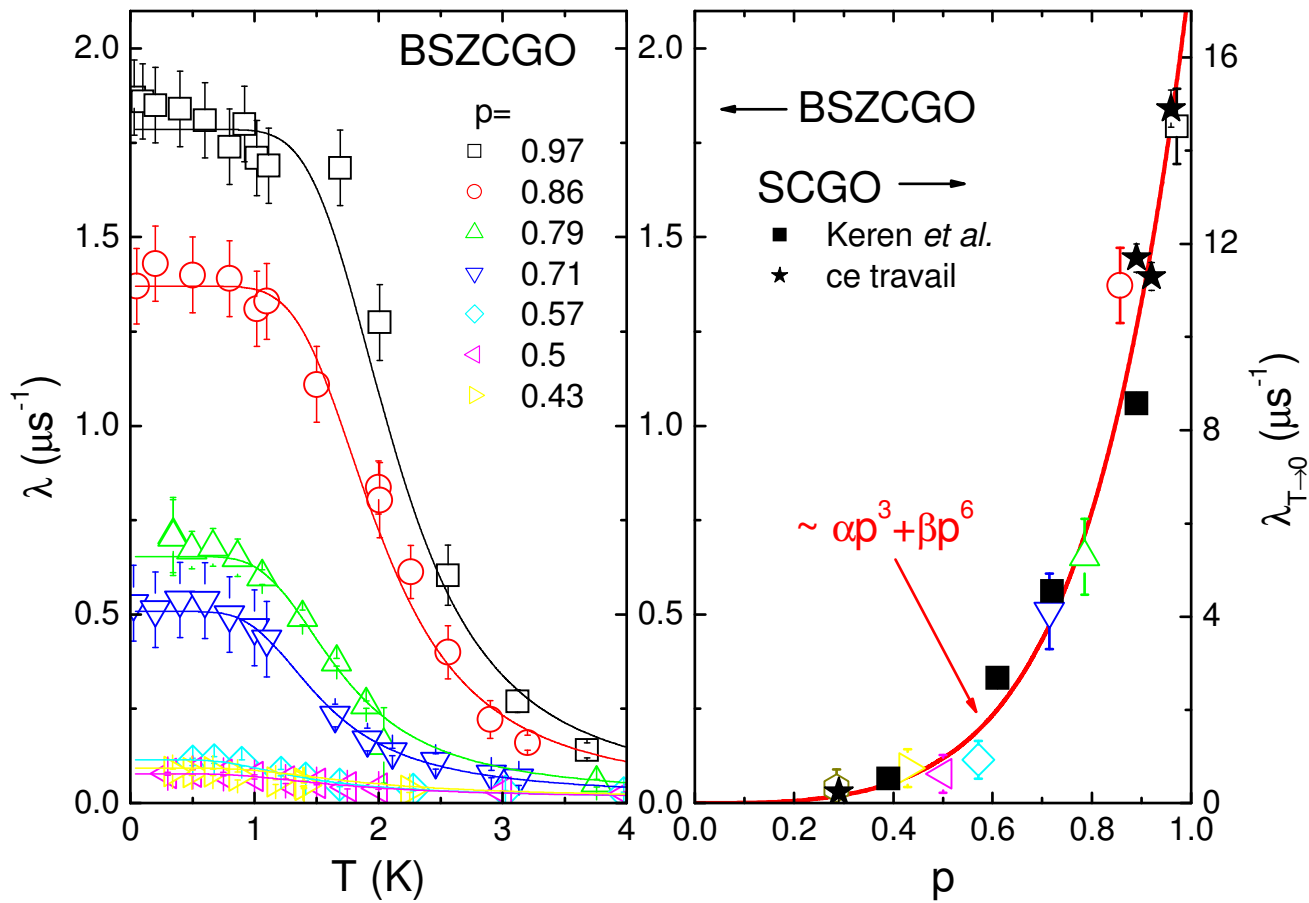
# Corrélation $T_g$ (défauts ?)- dynamique (intrinsèque)



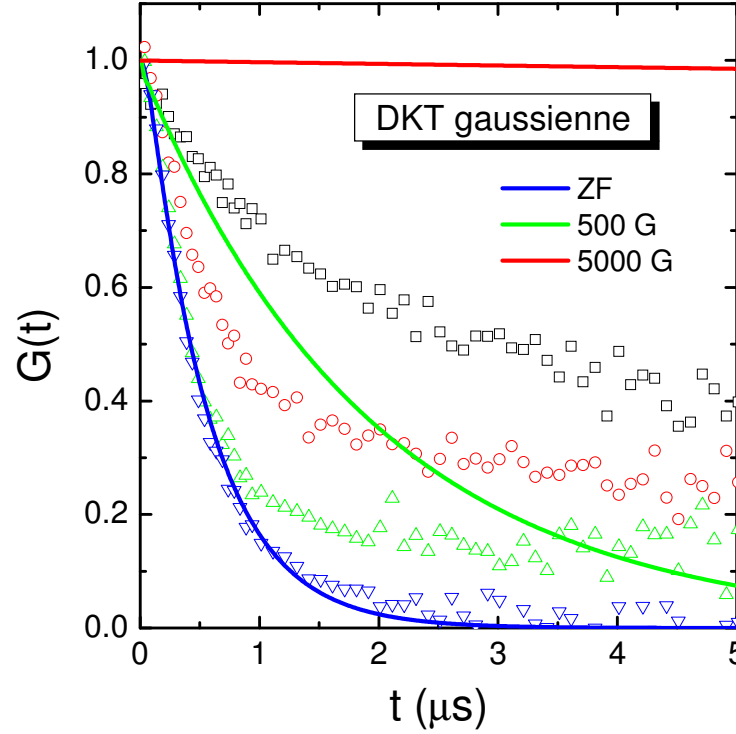
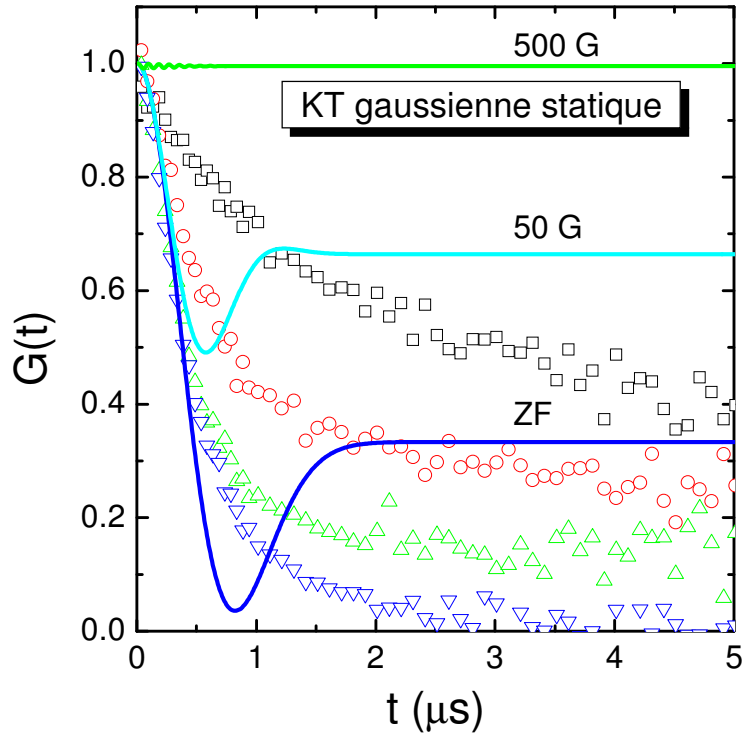
- BSZCGO... et SCGO : même comportement.



# Modes d'excitations classique ?



# Une fonction de relaxation inhabituelle

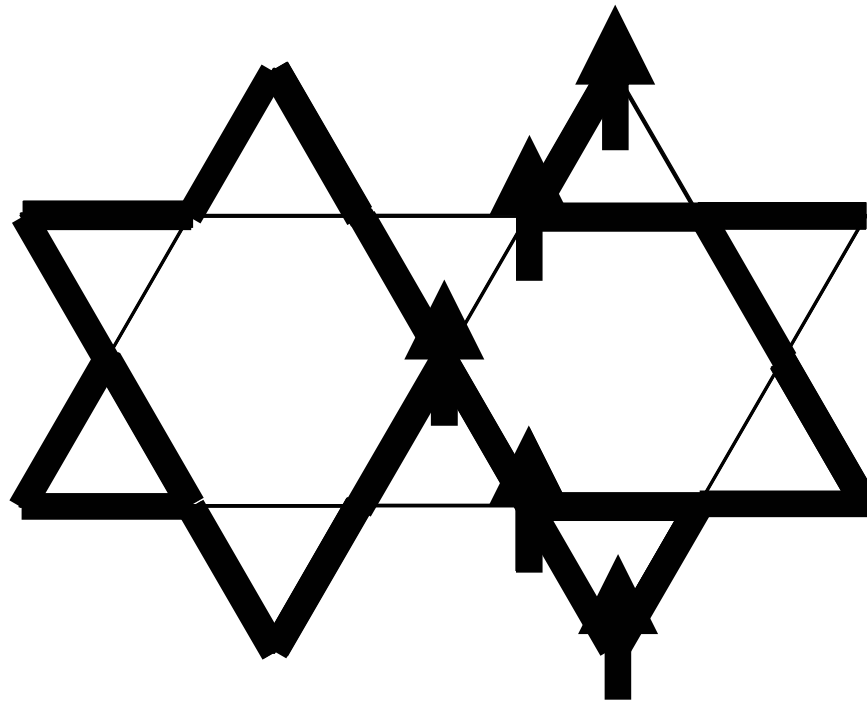


20000 G  
5000 G  
500 G  
20 G

# Modes d'excitations quantiques : des spinons déconfinés ?



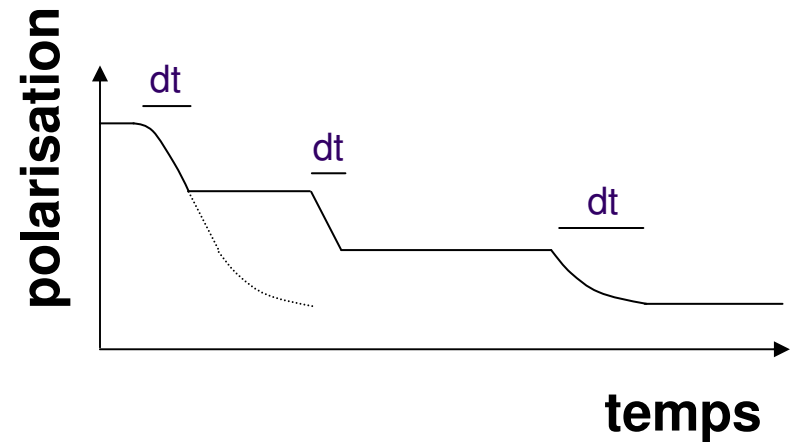
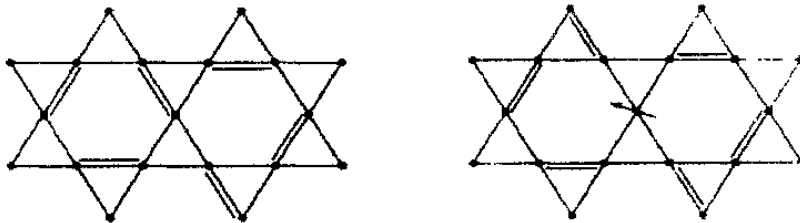
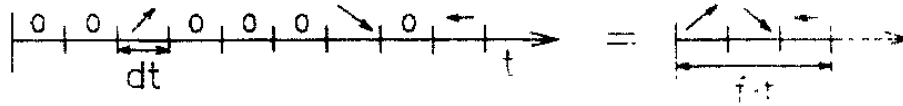
- Etat RVB :
  - Etat fondamental non magnétique.
  - Excitations : spinons déconfinés ?



# Modes d'excitations quantiques ?



- Etat RVB :
  - Etat non magnétique,
  - Excitations : spinons déconfinés  $\Rightarrow P_z(t) \propto P^{DKT}(ft)$  ; ( $f \sim 0.01$ )  
(Uemura *et al.*, PRL **73**, 3306 (1994))

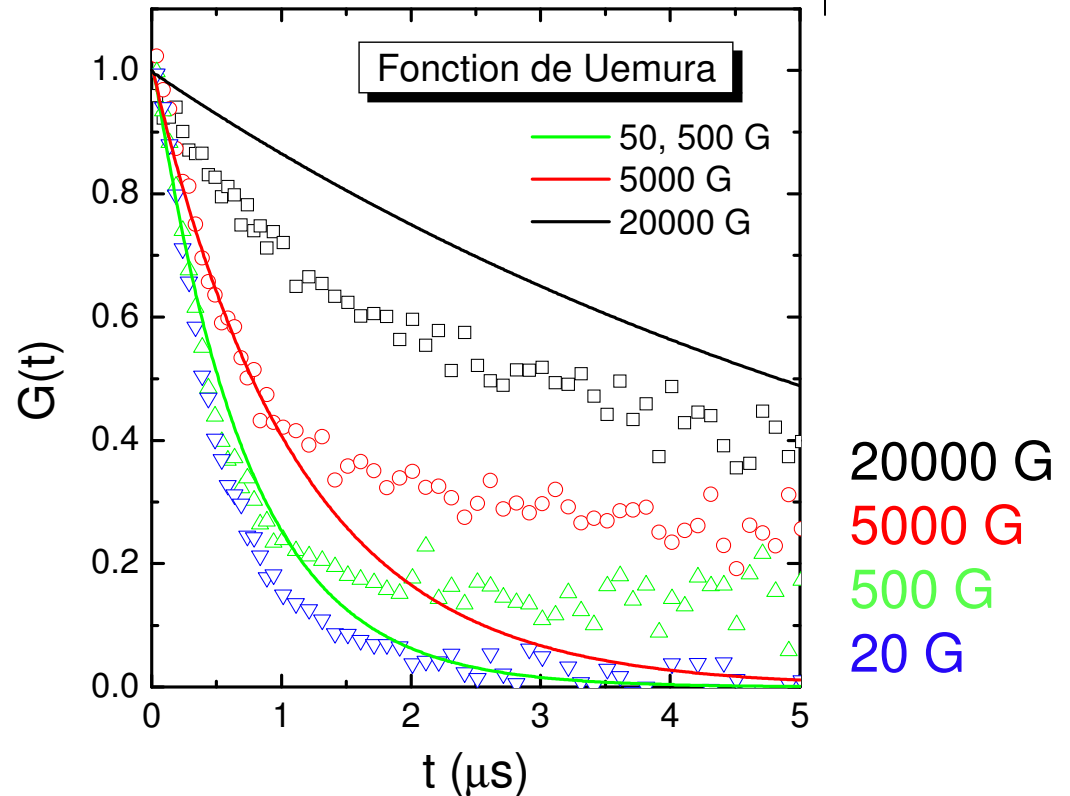




# Limitations de ce modèle de fluctuations sporadiques



- Insuffisant pour :
  - Temps longs.
  - Dépendance en champ.
  - Dépendance en  $T$ .
  - Echantillons dilués.



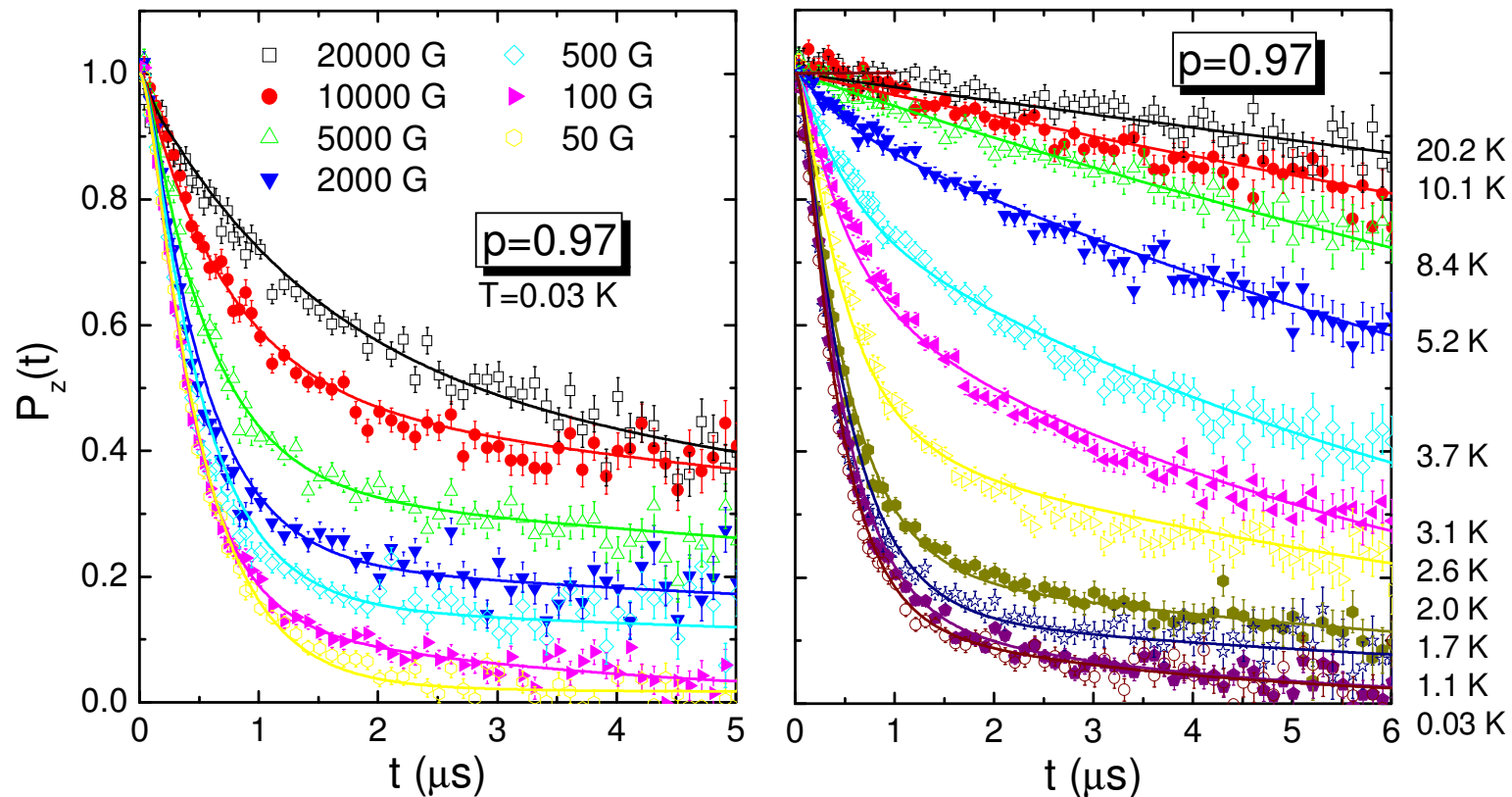
- RVB + terme exponentiel lié aux défauts de substitutions.

$$P_z(t) = \underbrace{x P^{DKT}(ft)}_{\text{« Spinons »}} + \underbrace{(1-x) \exp(-\lambda't)}_{\text{Dynamique « conventionnelle »}}$$

# Modèle résonnant cohérent avec les expériences



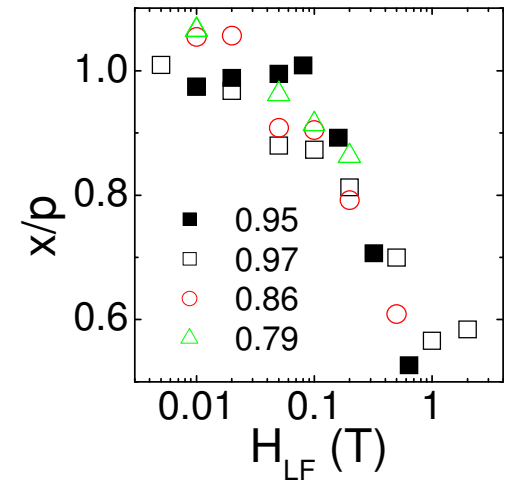
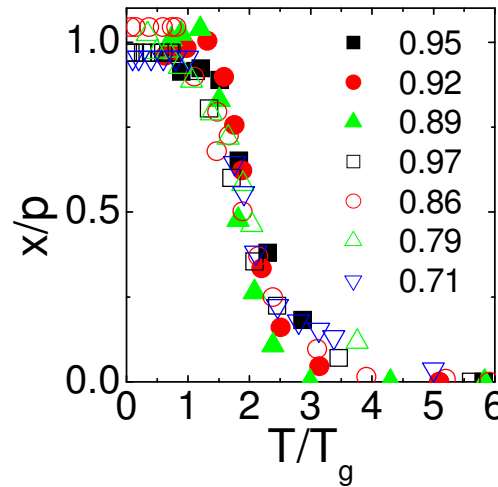
- Ce modèle permet d'ajuster les dépendances en  $T$ ,  $H$  et  $p$ .



# Etat RVB pour $T < T_g$ , Gel autour des défauts



Fraction « spinon »

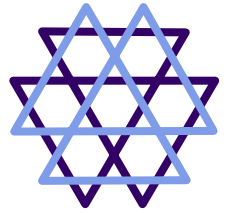


- $P_z(t) = x P^{DKT}(ft) + (1-x) \exp(-\lambda't)$

Fraction

« conventionnelle »

# Conclusion ; bicouches kagomé : le liquide de spin ?



- Forte frustration des interactions.
- Corrélations à très courte portée.
- $\exists$  comportement de la relaxation singulier pour  $T < 3 T_g$ .
- $\exists$  excitations magnétiques dynamiques pour  $T > 0.03$  K peu sensibles au champ.
- $\Rightarrow$  excitations type « spinons déconfiné ». Etat cohérent en dessous de  $T_g$ .

# Perspectives

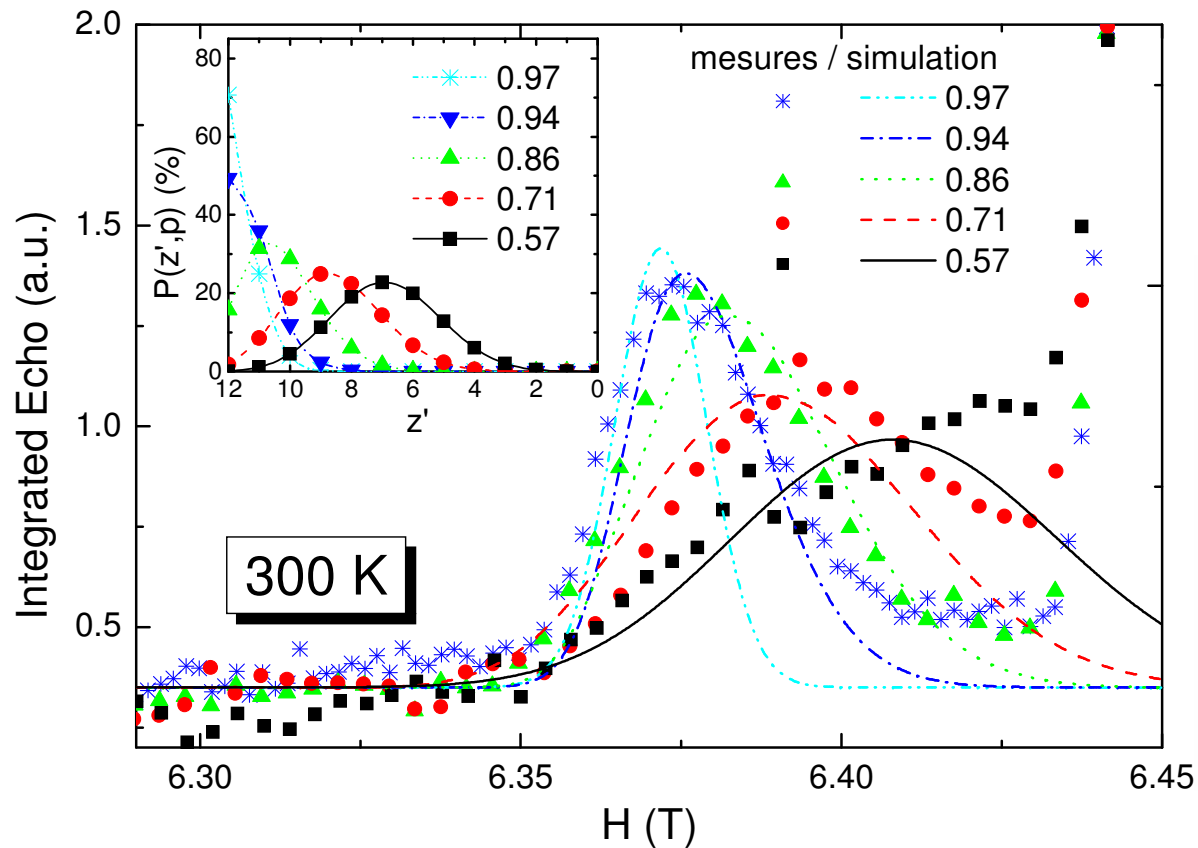


- Etude de la dynamique par écho de spin de neutron (collaboration avec G. Ehlers, H. Mutka, C. Payen, R. Stewart).
- Etat liquide de spin
  - Systèmes kagomé quantiques (spin 1/2,  $\text{Cu}^{2+}$ ), plateau d'aimantation  $\Rightarrow$  Volborthite, organiques.
  - Systèmes  $J_1$ - $J_2$ .
- Rôle de la frustration dans les systèmes métalliques ?
  - Delafossites, Cobaltites, Cuprates

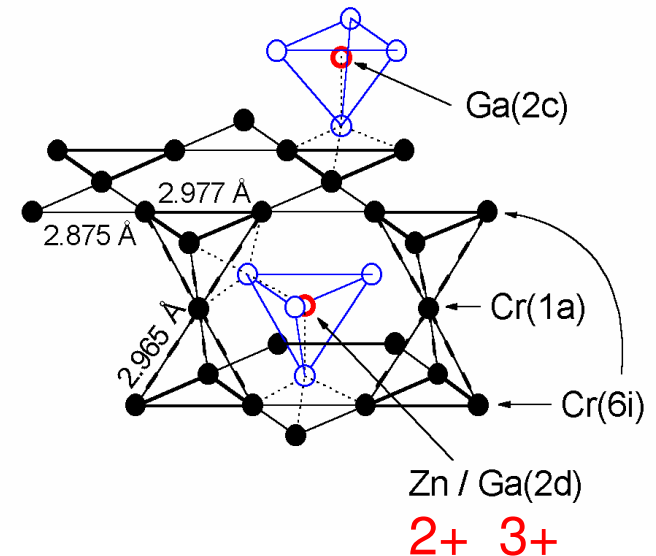
# Défauts indépendants des dilutions non magnétiques



- Valeur effective de  $p$  correcte (RMN, RX)



Existence de défauts indépendants de  $p$ .





# Modèle généralisable ?

- Chaîne de Haldane  $S=1$  ;  $(Y_{2-x}Ca_x)BaNiO_5$ 
  - « Valence Bond Crystal », singulets localisés.
  - $\mu$ SR : Kojima *et al.*, PRL **74**, 3471 (1995).

