# ÉTUDE OPTIQUE DE MATÉRIAUX MULTIFERROÏQUES

Aurore Finco

Équipe SQUAP, Laboratoire Matériaux et Phénomènes Quantiques, Université Paris VII

16 mai 2014

#### La coexistence de plusieurs ordres



#### La coexistence de plusieurs ordres



# Deux familles de multiferroïques : types I et II

#### Type I

- Ferroélectricité et magnétisme dus à des phénomènes différents
- Bons ferroélectriques (P ∼ 100 µC/cm<sup>2</sup>)
- Hautes températures de transition
- Couplage magnétoélectrique faible

# Deux familles de multiferroïques : types I et II

#### Type I

- Ferroélectricité et magnétisme dus à des phénomènes différents
- Bons ferroélectriques (P ∼ 100 µC/cm<sup>2</sup>)
- Hautes températures de transition
- Couplage magnétoélectrique faible

#### Type II

- Ferroélectricité induite par le magnétisme
- Polarisation plus faible (P  $\sim 10^{-2} \ \mu C/cm^2$ )
- Basses températures de transition
- Fort couplage magnétoélectrique

#### La diffusion inélastique de la lumière



#### **Diffusion Rayleigh**

Diffusion **élastique** due aux fluctuations **spatiales** 

Diffusion Raman Diffusion inélastique due aux fluctuations temporelles

- Permet de sonder les propriétés dynamiques
- Observation de plusieurs types d'excitations : phonons, magnons, etc.

#### Intensité diffusée

$$|I_s \propto |\hat{e_s} \cdot \mathcal{R} \cdot \hat{e_i}|^2$$

- Tenseur Raman  $\mathcal{R} \Leftrightarrow$  Filtre
- Lumière visible : on sonde à  $\mathbf{q} \simeq \mathbf{0}$

En changeant les polarisations incidentes  $\hat{e}_i$  et diffusées  $\hat{e}_s$ , on observe des excitations de symétries différentes.

## Schéma du montage



## Le spectromètre



Montage expérimental

# TbMnO<sub>3</sub>



#### Multiferroïque de type II

- Transition à T<sub>1</sub> = 28 K : phase cycloïdale ferroélectrique
- Polarisation dans le plan de la cycloïde



## Les électromagnons dans TbMnO3

Électromagnon : Onde de spin possédant un moment dipolaire et pouvant être excitée par un champ électrique oscillant

- Excitations de basse énergie : 30 cm<sup>-1</sup> et 65 cm<sup>-1</sup>
- Observées en spectroscopie THz et infrarouge



Contrôle des électromagnons dans TbMnO3 par un champ électrique

#### Contact électrique



Contrôle des électromagnons dans TbMnO<sub>3</sub> par un champ électrique

#### Photographies de l'échantillon





Contrôle des électromagnons dans TbMnO3 par un champ électrique

# Écartement des deux électromagnons



Contrôle des électromagnons dans TbMnO3 par un champ électrique

# Écartement des deux électromagnons



# Évolution des positions



Contrôle des électromagnons dans TbMnO3 par un champ électrique

# Évolution des largeurs



Contrôle des électromagnons dans TbMnO3 par un champ électrique

## Conclusion sur TbMnO<sub>3</sub>



- Effet proche de celui d'un champ magnétique suivant l'axe ĉ
- Nécessité de refaire la mesure avec l'ITO pour en tirer des conclusions plus précises
- On peut contrôler la fréquence des électromagnons dans TbMnO<sub>3</sub> avec un champ électrique

Rovillain et al., PRL, vol 107, p 027202, 2011

Contrôle des électromagnons dans TbMnO<sub>3</sub> par un champ électrique

# CuCrO<sub>2</sub>



#### Multiferroïque de type II

- Transition à T<sub>N</sub> = 25 K : phase hélicoïdale ferroélectrique
- Polarisation suivant l'axe de l'hélice [110]



#### Cryostat et bobine





#### Modes attendus et règles de sélection

4 atomes par maille  $\rightarrow$  12 modes normaux de phonons

$$\blacktriangleright \Gamma = A_{1g} + E_g + 3A_{2u} + 3E_u$$

Modes observables en Raman : A<sub>1g</sub> et E<sub>g</sub>

$$A_{1g} = \begin{pmatrix} a & 0 & 0 \\ 0 & a & 0 \\ 0 & 0 & b \end{pmatrix}, \ E_g(1) = \begin{pmatrix} c & 0 & 0 \\ 0 & -c & d \\ 0 & d & 0 \end{pmatrix}$$
$$E_g(2) = \begin{pmatrix} 0 & -c & -d \\ -c & 0 & 0 \\ -d & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

#### Modes attendus et règles de sélection

4 atomes par maille  $\rightarrow$  12 modes normaux de phonons

$$\blacktriangleright \Gamma = A_{1g} + E_g + 3A_{2u} + 3E_u$$

Modes observables en Raman : A<sub>1g</sub> et E<sub>g</sub>



#### Spectre Raman à 5 K, $\lambda$ = 532 nm



#### Spectre Raman de CuCrO<sub>2</sub>



Aktas *et al.*, Journal of Phys. : Condensed Matter, vol 24, no 3, p 036003, 2012

Les phonons dans CuCrO<sub>2</sub>

## Pics autour de 560 cm<sup>-1</sup> : liés au désordre ?



 $CuCr_{1-x}Co_xO_2$ 

Elkhouni *et al.*, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, vol 330, p 101-105, 2013

#### Pics autour de 560 cm<sup>-1</sup> : liés au désordre ?



 $CuCr_{1-x}Ti_xO_2$ 

Elkhouni *et al.*, Journal of Superconductivity and Novel Magnetism, vol 26, no 9, p 2795-2802, 2013

## Pics autour de 560 cm<sup>-1</sup> : liés au désordre ?



Elkhouni *et al.*, World Journal of Condensed Matter Physics, vol 03, no 1, p 1-8, 2013

### Dépendance en température



Aktas *et al.*, Journal of Phys. : Condensed Matter, vol 24, no 3, p 036003, 2012

Les phonons dans CuCrO<sub>2</sub>

#### Origine possible des modes supplémentaires

Calculs *ab initio* des relations de dispersion des phonons et dépendance en pression dans CuGaO<sub>2</sub>.



Pellicer-Porres et al., PRB, vol 76, no 6, p 064301, 2005

### B = 10 T, polarisations parallèles



#### B = 10 T, polarisations parallèles



#### B = 10 T, polarisations parallèles











## Spectre à basse énergie, polarisations parallèles



#### TbMnO<sub>3</sub>

- Mise en évidence du contrôle de la fréquence des électromagnons par un champ électrique
- Résultat qualitatif
- Nouvelle mesure à réaliser avec une électrode d'ITO

#### TbMnO<sub>3</sub>

- Mise en évidence du contrôle de la fréquence des électromagnons par un champ électrique
- Résultat qualitatif
- Nouvelle mesure à réaliser avec une électrode d'ITO

#### CuCrO<sub>2</sub>

- Observation de modes non attendus
- Origine de ces modes à déterminer
- Nouvelles mesures à réaliser avec d'autres longueurs d'ondes à basse énergie