



## Doctoral Thesis

# **Novel states in magnetic materials under extreme conditions a high pressure neutron scattering study of the Shastry- Sutherland compound $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$**

**Author(s):**

Zayed, Mohamed

**Publication Date:**

2010

**Permanent Link:**

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-006249078> →

**Rights / License:**

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#) →

This page was generated automatically upon download from the [ETH Zurich Research Collection](#). For more information please consult the [Terms of use](#).

DISS. ETH NO. 19103

**Novel States in Magnetic Materials under Extreme  
Conditions: A High Pressure Neutron Scattering Study of the  
Shastry-Sutherland compound  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$**

A dissertation submitted to

ETH ZURICH

for the degree of

Doctor of Sciences

presented by

MOHAMED ZAYED

Dipl. Ing. Phys. EPFL

born 22.06.1974

citizen of Bern (BE)

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. M. Sigrist, examiner

Prof. Dr. H. M. Rønnow, co-examiner

Dr. Ch. Rüegg, co-examiner

Prof. Dr. J. Mesot, co-examiner

2010

# Abstract

This thesis is at the crossing point of different fields: Quantum Magnetism which studies the collective properties of low spin systems, Neutron Scattering a powerful technique that enables to probe the microscopic properties of matter, and High Pressure where the use of ultra hard materials allows discoveries in a previously unexplored range. Combining these, we shall search for novel states in magnetic materials under extreme conditions. The extreme conditions are the quantum spin  $s=1/2$ , the low dimensionality, the low temperatures, and the high pressures. The material is the Shastry-Sutherland compound  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ , a model quantum magnet which has attracted considerable interest over the last decade.

Three main results will be presented:

- 1) An unusual temperature dependence observed in  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  where the excitation spectrum measured by inelastic neutron scattering disappears into a flat continuum at surprisingly low temperatures. We will quantify the damping of the triplet excitations and give a microscopic picture which involves the simultaneous presence of two triplets in the same region for the decay to occur.
- 2) The tuning of  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  out of its ‘exact dimer’ ground state by application of hydrostatic pressure to a new gapped phase, which we identify as a ‘plaquette’ singlet. This occurs around  $\sim 18$  kbar and brings a decisive experimental evidence to a long debated question concerning the existence and the nature of the ‘intermediary phase’ in the Shastry-Sutherland model. Increasing the pressure even further leads the compound to order antiferromagnetically at 40 kbar with a high Neel temperature  $T_N=118$  K.
- 3) The study of the crystal structure of  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  as a function of pressure and tem-

perature. We will present the temperature dependence of the structure down to  $T=1.6$  K. It will be shown that the magnetic properties affect the structure upon entering the spin gap regime. The crystal structure will also be solved at 37 kbar and 66 kbar. At the higher pressure the compound is in a monoclinic phase that brings it beyond the original Shastry-Sutherland model.

Finally this thesis also provides a brief overview of the high pressure neutron scattering technique.

# Résumé français

Cette thèse se situe au croisement de différents domaines: le magnétisme quantique qui étudie les propriétés collectives de systèmes à petit spin, la diffusion de neutrons, une technique puissante qui permet de sonder les propriétés microscopiques de la matière et les hautes pressions par lesquelles, grâce à l'emploi de matériaux ultra durs, l'on peut accéder à des domaines encore inexplorés. En les combinant, nous allons rechercher de nouveaux états dans les matériaux magnétiques sous conditions extrêmes. Les conditions extrêmes sont le spin quantique  $s=1/2$ , la basse dimensionalité, les basses températures et les hautes pressions. Le composé étudié est  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ , un modèle d'aimant quantique, réalisation du réseau de Shastry-Sutherland, qui a reçu un attrait considérable au cours de cette dernière décennie.

Les trois résultats principaux qui seront présentés sont:

1) Une dépendance en température inhabituelle du  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  où l'excitation mesurée par diffusion inélastique de neutrons disparaît dans un continuum sans structure à des températures étonnamment basses. Nous allons quantifier l'amortissement des triplets et en donner une image microscopique qui implique la présence simultanée de deux triplets dans une même région pour que l'amortissement se produise.

2) Le 'tunning' des couplages magnétiques du  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  par l'application de pression hydrostatique. L'état fondamental de dimer 'exact' est perdu aux alentours de  $\sim 18$  kbar au profit d'une nouvelle phase que nous identifions comme un état singulet sur une plaquette. Ce résultat apporte une contribution décisive à la question longuement débattue de l'existence et de la nature d'une phase intermédiaire dans le modèle de Shastry-Sutherland. À plus haute pression, 40 kbar, le système entre finalement dans une phase d'ordre antiferromagnétique avec une haute température de Néel  $T_N=118$  K.

3) L'étude de la structure cristalline du  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  en fonction de la pression et de la température. Nous présentons la dépendance en température de la structure jusqu'à  $T=1.6$  K. Les propriétés magnétiques affectent la structure dans le régime du gap de spin. La structure cristalline est également résolue à 37 kbar and 66 kbar. À 66 kbar le système est dans une phase monoclinique qui ne peut plus être décrite par le modèle de Shastry-Sutherland.

Finallement cette thèse présentera également une introduction à la technique de diffusion de neutron sous haute pression.