

Des électrons schizophrènes dans le ruthénate $\text{Ba}_4\text{Ru}_3\text{O}_{10}$: magnétisme itinérant ou localisé ?

Les oxydes de ruthénium sont connus pour leur comportement électronique et magnétique imprévisible. Ainsi, du point de vue du transport électronique certains oxydes sont isolants, d'autres métalliques, voire supraconducteurs. Du point de vue du magnétisme, tous les types de comportements existent : paramagnétique, ferromagnétique ou bien antiferromagnétique. Au sein de cette famille, de très faibles variations de la structure cristalline peuvent entraîner un changement radical des propriétés physiques via des mécanismes complexes mettant en jeu la distorsion structurale, l'arrangement des moments de spin et l'occupation des orbitales magnétiques. Il est donc capital d'étudier globalement ces systèmes, au moyen de techniques de caractérisation structurale, de mesures de propriétés physiques et de calculs ab initio de structure électronique.

En 2011, des enseignants-chercheurs de l'IMP2 ont déterminé une structure magnétique surprenante par diffraction de neutrons dans l'oxyde de ruthénium de formule $\text{Ba}_4\text{Ru}_3\text{O}_{10}$. Aujourd'hui, ils viennent de franchir un nouveau pas en révélant l'origine physique de ce comportement grâce à des calculs théoriques, réalisés en collaboration avec un chercheur du CINaM (UMR 7325 CNRS - Marseille).

La structure de $\text{Ba}_4\text{Ru}_3\text{O}_{10}$ est basée sur des trimères formés par trois octaèdres RuO_6 partageant des faces et impliquant deux Ru^{4+} cristallographiquement inéquivalents (Ru(1) et Ru(2)). Ceux-ci sont ensuite joints par des sommets pour former des couches de type damier, qui s'empilent les unes sur les autres, et entre lesquelles s'insèrent les atomes de baryum (Figure 1).

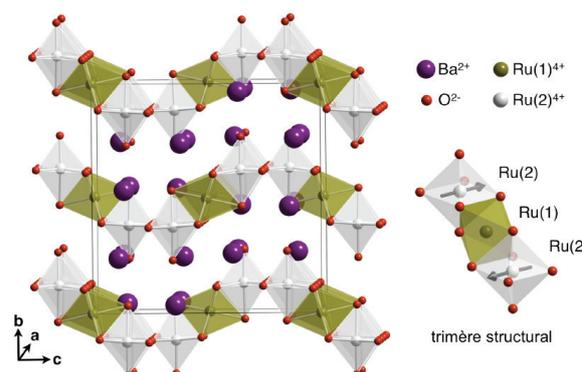


Figure 1
Structures cristallographique et magnétique du $\text{Ba}_4\text{Ru}_3\text{O}_{10}$

Ce composé présente une transition à 105 K correspondant à l'établissement d'un ordre antiferromagnétique à longue distance d'un type nouveau. En effet, de façon étonnante, la diffraction de neutrons indique que le moment porté par le ruthénium situé au centre du trimère (Ru(1)) ne semble pas s'ordonner alors que les moments portés par les deux ruthéniums situés aux extrémités du trimère (Ru(2)) se couplent de manière antiferromagnétique (AFM) (Figure 1).

Pourquoi le ruthénium central n'intervient-il pas dans cet ordre à longue distance ? Joue-t-il cependant un rôle dans la mise en ordre magnétique observée à basse température ? Il a été possible de répondre à ces questions grâce à l'analyse de la structure électronique et des couplages magnétiques entre les différents atomes de ruthénium. Par des calculs basés sur la théorie de la fonctionnelle de la densité, les physiciens ont montré que la formation d'orbitales moléculaires, liée à la forte interaction covalente entre orbitales 4d des ions Ru au sein des trimères, était responsable de l'absence de polarisation des Ru(1). En outre, ces ions semblent jouer le rôle de médiateur dans un mécanisme de super-échange AFM fort entre les deux Ru(2) d'un trimère et dont l'influence sur les propriétés magnétiques est encore visible au-dessus de la température de transition. Ces trimères structuraux se comportent ainsi comme des dimères magnétiques qui, sous l'influence d'interactions plus faibles entre trimères, mènent à l'établissement d'un ordre AFM à basse température.

Les propriétés magnétiques surprenantes du $\text{Ba}_4\text{Ru}_3\text{O}_{10}$ résultent donc d'un comportement paradoxal des électrons Ru-4d présentant à la fois certaines caractéristiques du magnétisme itinérant et du magnétisme localisé.

Les propriétés physiques des oxydes de ruthénium sont étroitement liées à leur structure cristallographique comme le montre l'exemple de $\text{Ba}_4\text{Ru}_3\text{O}_{10}$. La pression peut donc être un moyen simple de les modifier en agissant sur les distances interatomiques ou même la symétrie du réseau cristallin. Des mesures des propriétés magnétiques sous pression sont maintenant en cours de réalisation.

Références

"Magnetism of $\text{Ba}_4\text{Ru}_3\text{O}_{10}$ revealed by density functional calculations: structural trimers behaving as coupled magnetic dimers"

G. Radtke, A. Saül, Y. Klein and G. Rousse
Physical Review B. 2013, 87, (5), 054436.

"Antiferromagnetic order and consequences on the transport properties of $\text{Ba}_4\text{Ru}_3\text{O}_{10}$ "

Y. Klein, G. Rousse, F. Damay, F. Porcher, G. Andre, I. Terasaki
Physical Review B 2011, 84, (5). 054439.

Contacts

yannick.klein@imPMC.upmc.fr
guillaume.radtke@imPMC.upmc.fr
gwenaelle.rousse@imPMC.upmc.fr