

L'hématite sous pression : quand les spins font des cabrioles

L'hématite ($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$) est un oxyde de fer très important. Étant depuis des millénaires une source majeure de fer, ce minéral a joué un rôle crucial dans notre civilisation. L'hématite existe aussi sur Mars où elle contribue à la couleur caractéristique de la « planète rouge ». En physique fondamentale, l'intérêt de ce minéral est lié à la célèbre transition de Morin¹ : quand un échantillon est refroidi à 260 Kelvin, les spins (moments magnétiques du Fe^{3+}) tournent brutalement de 90° sans aucun changement manifeste de position des atomes. Dans un travail récent, l'équipe Physique des systèmes simples en conditions extrêmes (PHYSIX) de l'IMPMC a étudié comment varie la transition de Morin sous haute pression². Une augmentation massive de la température de transition de $+27$ Kelvin par gigapascal (1 GPa = 100000 fois la pression atmosphérique) a été détectée, ce qui permet d'accroître nos connaissances sur les origines microscopiques de ce phénomène remarquable.

La transition de Morin est un exemple d'école d'un phénomène appelé « transition de spin-flop ». Dans certains solides où les spins d'un élément magnétique sont alignés (ordonnés), leur direction change brutalement à une certaine température sans qu'une transition structurale survienne. C'est donc une transition purement magnétique, sans aucun réarrangement des atomes.

L'hématite cristallise dans une structure de type corindon (le minéral corindon a pour formule chimique Al_2O_3 ; dans l'hématite les atomes de fer prennent la place des aluminium) avec les atomes de fer arrangés dans des plans perpendiculaires à l'axe $\langle 111 \rangle$ rhomboédrique (**Figure 1**). À basse température et pression ambiante, leur spins pointent le long de cet axe mais renversent leur direction d'un plan à l'autre : l'hématite est antiferromagnétique. Quand on chauffe l'hématite, les spins tournent brutalement de 90° et se trouvent au dessus de 260 K, tous perpendiculaires à la direction $\langle 111 \rangle$. Cette transition se produit sans changement de structure cristalline, de positions d'atomes dans la maille, ni de volume. Elle ne peut donc pas être détectée par la diffraction de rayons-x. Par contre, c'est un jeu simple pour la diffusion de neutron car cette technique est hautement sensible à l'ordre magnétique.

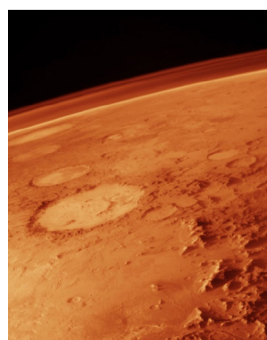
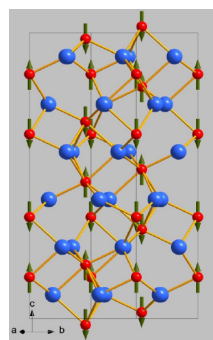


Figure 1

À gauche : structure d'hématite ($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$, R3c) avec des spins de Fe^{3+} (rouge) dans leur orientation au dessous de $T_M=260$ K.

À droite : photo de Mars prise par la sonde Voyager. L'hématite est une des sources de la couleur rougeâtre de la planète.

© 1997 C. J. Hamilton

1 F. J. Morin, *Phys. Rev.*, 78 (1950) 819

2 S. Klotz, Th. Strässle, Th. Hansen, *Europhys. Letters* 104, 16001 (2013)

Notre équipe a étudié la variation de la transition de Morin sous haute pression en utilisant la diffusion de neutrons afin d'en savoir plus sur l'origine microscopique de ce phénomène¹. Des mesures sous haute pression ont déjà été faites mais notre étude est la première réalisée sous conditions strictement hydrostatiques jusqu'à 8 GPa. C'est un détail important car les résultats publiés jusqu'à présent étaient incohérents en raison de l'extrême sensibilité aux conditions de pressurisation de la transition de Morin. Par exemple, toutes les mesures non-hydrostatiques indiquent qu'au-delà de 1 GPa les spins sont inclinés à seulement 45°, un effet incompatible avec la théorie².

La **figure 2** montre comment l'angle des spins par rapport à $\langle 111 \rangle$ varie en fonction de la pression, sous trois températures différentes. Quelle que soit la température, le spin-flop est toujours d'environ 90°, sans indication d'états magnétiques intermédiaires. On observe une augmentation massive de la température de transition T_M de +27 K/GPa (**Figure 3**) qui correspond à une augmentation de 20% de T_M pour une réduction de seulement 1% en volume. Par comparaison, la température de Néel dans les oxydes de fer augmente seulement de 3%, « Règle de 10/3 de Bloch », pour cette variation du volume.

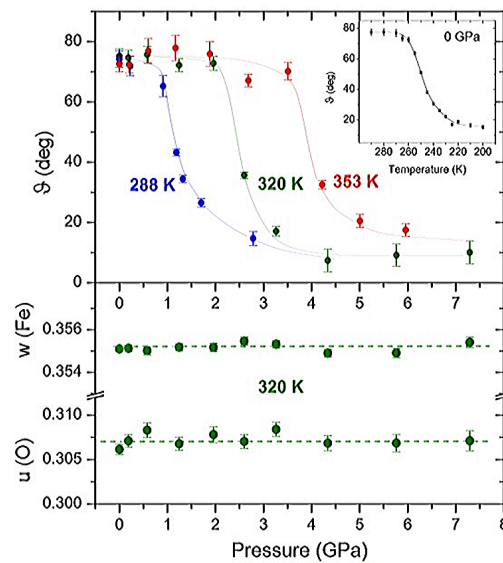


Figure 2

Variation de l'angle θ entre direction des spins et l'axe $\langle 111 \rangle$ en fonction de la pression pour 3 différentes températures (en haut).

En bas : variation des paramètres de coordonnées atomiques en fonction de la pression.

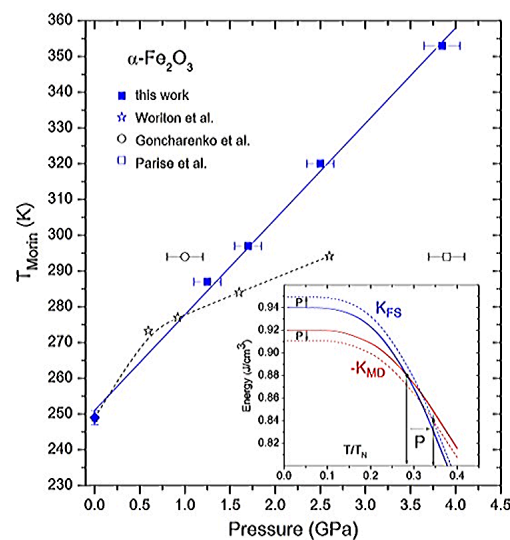


Figure 3

Variation de la température de Morin en fonction de la pression, obtenue par des expériences hydrostatiques, comparée aux mesures antérieures¹. L'insert illustre la variation de T_M induit par une variation de que 1% de l'énergie K_{MD} (rouge) and K_{FS} (bleu) à 0 K selon le modèle d'Artman et al.².

1 J.B. Parise et al., *Physica B*, 385-386 (2006) 391
 2 J.O. Artman et al., *Phys. Rev. A*, 138 (1965) 912

Grâce à ces mesures, que nous avons confrontées à la théorie, l'origine de la transition de Morin nous semble plus claire. Nous pensons que ce phénomène est le résultat de deux effets compétitifs : l'énergie dipolaire entre les spins, appelée K_{MD} et l'énergie générée par l'interaction des spins avec l'orbite de l'électron, appelée K_{FS} . À 0 K les deux quantités s'annulent mutuellement à 2% près. Mais comme elles ont des dépendances en température différentes, l'énergie totale change le signe quand $|K_{MD}(T_M)| = |K_{FS}(T_M)|$; c'est la température de Morin. Les résultats de diffraction neutronique fournissent des paramètres structuraux qui permettent le calcul exact de K_{MD} en fonction de P. Il s'avère que la forte augmentation de T_M en fonction de la pression est totalement gouvernée par la variation de K_{FS} . Le calcul montre qu'il suffit d'une augmentation d'environ 1% de K_{FS} par GPa pour produire l'effet observé sur T_M , un coefficient de pression qui n'est pas inhabituel dans les oxydes de fer.

Ces expériences clarifient le vrai comportement de la transition de Morin sous pression et donne un fort soutien expérimental à une théorie qui fournit une explication microscopique de ce phénomène.

Références

« Pressure dependence of Morin transition in α -Fe₂O₃ hematite »
S. Klotz, Th. Strässle, Th. Hansen
Europhys. Letters 104, 16001 (octobre 2013)

Cet article fait l'objet d'un highlight dans le Rapport Annuel 2014 de l'Institut Laue-Langevin (Grenoble).

Contact

Stefan.Klotz@imPMC.jussieu.fr