



**HAL**  
open science

**Influence du dopage sur les propriétés de transport à l'état normal de couches minces de  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Can}_{-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+4+y}$  ( $n=1$  et  $2$ ). Effet de pseudogap.**

Zorica Konstantinovic

► **To cite this version:**

Zorica Konstantinovic. Influence du dopage sur les propriétés de transport à l'état normal de couches minces de  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Can}_{-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+4+y}$  ( $n=1$  et  $2$ ). Effet de pseudogap.. Supraconductivité [cond-mat.supr-con]. Université Paris Sud - Paris XI, 2000. Français. NNT: . tel-00002003

**HAL Id: tel-00002003**

**<https://theses.hal.science/tel-00002003v1>**

Submitted on 22 Nov 2002

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Orsay

n° d'ordre

UNIVERSITE PARIS-SUD  
U.F.R. SCIENTIFIQUE D'ORSAY

**THESE**

Présentée pour obtenir

**LE GRADE DE DOCTEUR EN SCIENCE**  
**Spécialité Physique des Solides**

Par

**Zorica Konstantinović**

**SUJET : Influence du dopage sur les propriétés de transport à l'état normal  
de couches minces de  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+4+y}$  ( $n=1$  et  $2$ ). Effet de pseudogap.**

Soutenue le 03 juillet 2000 devant la commission d'examen :

M. Michel Héritier

Président

M. John Cooper

Rapporteur

M. Jean Louis Tholence

Rapporteur

M. Philippe Monod

Examineur

Mme. Hélène Raffy

Directeur de thèse

## *Remerciements*

Je suis très reconnaissante à Monsieur le Professeur M. Héritier de m'avoir accueillie au Laboratoire de Physique des Solides d'Orsay et d'avoir accepté la présidence du jury de thèse. Je le remercie vivement pour son aide précieuse lors des demandes des divers financements de ce travail de thèse sans lesquels elle n'aurait jamais pu être réalisée. Je remercie également M. le Professeur J. Friedel pour l'intérêt qu'il a eu pour ce travail et le soutien qu'il m'a apporté, ainsi que la Société des Amis des Sciences pour m'avoir accordé une bourse de 9 mois.

Je remercie Monsieur J. Charvolin, actuel directeur du Laboratoire, pour m'avoir également accueillie dans le Laboratoire de Physique des Solides d'Orsay et pour avoir aussi soutenu financièrement mon travail à un moment critique de mon séjour, fin 1999.

Pour m'avoir reçue dans ce laboratoire, pour avoir dirigé ce travail de thèse et pour en avoir rendu possible les conditions matérielles je remercie chaleureusement M<sup>me</sup> H. Raffy.

Je remercie M. le Professeur J. Cooper et M. J. L. Tholence d'avoir bien voulu accepté d'être les rapporteurs de cette thèse, ainsi que M. P. Monod pour sa participation au jury.

Pour sa contribution indispensable dans ce travail et sa sympathie à mon égard je remercie beaucoup M. Z. Z. Li.

Pour sa disponibilité et ses conseils précieux je remercie particulièrement Alberto Pomar.

Je remercie vivement M. O. Laborde et M. P. Monceau pour leur collaboration lors des mesures de magnétorésistance sous champ fort à Grenoble.

Je remercie également M. J. C. Campuzano, M<sup>me</sup> N. Bontemps et A. Santander pour les discussions dans le cadre leur collaboration, me permettant ainsi de voir un autre aspect du même phénomène.

Pour les discussions et conseils précieux je voudrais remercier M. I. Campbell, M. P. Lederer, M. M. Gabay, M. B. Coqblin, M. L. Fruchter, M. H. Alloul, M. P. Mendels, J. Bobroff...

J'adresse ma gratitude à M. P. Crozat pour la réalisation de la gravure mécanique et à M. M. Abecassis pour la gravure des échantillons par photolithographie.

Je tiens à remercier M. A. Boix pour la réparation de l'alimentation de l'électroaimant, M. D. Bréüs pour la conception et la réalisation de nombreuses pièces mécaniques et M. J. P. Sauvage pour l'approvisionnement en hélium.

Pour leur sympathie à mon égard et leurs aides ponctuelles, je remercie beaucoup Laurent, Didier, Dorothee, Joël, Andrea...

Je tiens à remercier tout le personnel administratif, notamment M<sup>me</sup> J. Houeix et M<sup>me</sup> C. Seguy, M<sup>me</sup> F. Mariotto, pour leur assistance indispensable. Je remercie également M<sup>me</sup> Y. Dufour pour les travaux de tirage de la thèse.

Tous mes remerciements vont aussi à l'ensemble des membres du laboratoire.

Enfin, je voudrais adresser toute ma reconnaissance et ma gratitude à la famille du Professeur P. G. de Gennes, en particulier M<sup>me</sup> Anne-Marie de Gennes, pour m'avoir accueillie à Orsay pendant ces dernières années.

# Table des matières

<i>Introduction</i> .....	<i>1</i>
---------------------------	----------

## *Chapitre I : Propriétés électroniques générales des Cuprates*

<b>A. Diagramme de phase</b> .....	<b>4</b>
A1. Région antiferromagnétique.....	5
A2. Etat supraconducteur.....	6
A3. Etat normal.....	11
<b>B. Quelques scénarios possibles</b> .....	<b>18</b>
B1. Modèles avec des corrélations faibles.....	18
B2. Modèles avec des corrélations fortes.....	24
B3. D'autres approches.....	28
<b>Références du chapitre I</b> .....	<b>30</b>

## *Chapitre II : Méthodes expérimentales*

<b>A. La famille BiSrCaCuO</b> .....	<b>37</b>
<b>B. Synthèse des dépôts de BiSrCaCuO par pulvérisation cathodique</b> .....	<b>39</b>
<b>C. Les recuits à basse température</b> .....	<b>41</b>
<b>D. Méthodes de caractérisation des échantillons étudiés</b> .....	<b>44</b>
D1. Mesure de la résistance électrique en fonction de la température.....	44
D2. Mesure de l'effet Hall.....	46
D3. Spectres de diffraction des rayons X.....	47
D4. Analyse de composition.....	49
D5. Mesure de la susceptibilité et de l'aimantation.....	49

<b>E. Techniques de mesure.....</b>	<b>53</b>
E1. Préparation des films pour la mesure.....	53
E2. Mesure de la résistance et de l'effet Hall.....	55
(a) Méthode de mesure.....	55
(b) La tête de mesure.....	55
(c) Le dispositif cryogénique.....	57
E3. Mesure de la magnétorésistance sous champ fort.....	57
<b>Références du chapitre II.....</b>	<b>59</b>

***Chapitre III : Etude comparée de l'influence de la teneur en oxygène sur le comportement de la résistivité et de l'effet Hall en fonction du dopage pour les films de la phase Bi-2212 et Bi(La)-2201***

<b>A. Influence de l'oxygène sur la résistivité.....</b>	<b>62</b>
A1. Réseau des courbes $\rho(T)$ à différents états du dopage.....	62
(a) Phase $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$ .....	62
(b) Phase $\text{Bi}_2\text{Sr}_{1,6}\text{La}_{0,4}\text{CuO}_y$ .....	65
A2. La dépendance de la température critique en fonction du dopage....	68
A3. Les différents comportements de $\rho(T)$ selon la position dans le diagramme de phase.....	71
(a) Région surdopée.....	71
(b) Région sous-dopée.....	75
(i) Détermination de $T^*$ .....	75
(ii) Détermination de $T_1$ .....	77
(iii) Lois d'échelle.....	80
(iv) Diagramme de phase universel.....	85
(v) Comparaison de l'effet de pseudogap pour les deux phases.....	89
(vi) Comparaison aux modèles théoriques.....	91
(c) Région fortement sous-dopée avec $T_c=0$ .....	94

<b>B. Influence de l'oxygène sur l'effet Hall.....</b>	<b>101</b>
B1. Coefficient de Hall $R_H(T)$ à différents états du dopage.....	101
B2. L'angle de Hall $\theta_H$ à différents états du dopage.....	105
B3. Signature du pseudogap sur l'effet Hall.....	111
<b>Références du chapitre III.....</b>	<b>114</b>

***Chapitre IV : Propriétés de transport sous fort champ magnétique  
de la phase  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_y$***

<b>A. Magnétorésistance de l'état normal.....</b>	<b>120</b>
A1. Résistivité et l'effet Hall des états considérés.....	121
A2. Magnétorésistance dans l'état normal.....	122
(a) Influence du champ magnétique sur l'effet de pseudogap.....	124
(b) Comportement de la magnétorésistivité en fonction de température.....	126
<b>B. Magnétorésistance dans l'état mixte.....</b>	<b>134</b>
B1. Anisotropie.....	136
B2. Ligne d'irréversibilité.....	138
B3. Energie d'activation.....	141
B4. Loi d'échelle.....	145
<b>Références du chapitre IV.....</b>	<b>149</b>

<b><i>Conclusion.....</i></b>	<b><i>152</i></b>
-------------------------------	-------------------

## ***Introduction***

Cette thèse est consacrée à l'étude des propriétés électroniques de transport à l'état normal de cuprates en fonction du dopage en oxygène.

L'intérêt majeur pour une telle étude vient principalement des propriétés de l'état normal des cuprates, inhabituelles par rapport à celles des métaux ordinaires (variation linéaire en fonction de la température de la résistivité, effet Hall dépendant de la température...), considérées surtout comme la manifestation des interactions fortes entre les électrons. De plus, le mécanisme à l'origine de l'instabilité qui mène à la formation des paires de Cooper et à l'apparition de la supraconductivité, indéterminé après plus de dix ans de recherche intense, doit se manifester à travers les propriétés électroniques dans l'état normal. Celles-ci sont fortement dépendantes du nombre de trous dans les plans  $\text{CuO}_2$ , sièges de supraconductivité, et elles changent progressivement, en diminuant le dopage, d'un comportement métallique vers un comportement isolant antiferromagnétique.

Le changement des propriétés électroniques le plus étonnant se passe dans la région dite sous-dopée où le nombre de porteurs est plus petit que celui qui maximise la température de transition supraconductrice. Ce changement, d'abord mis en évidence par les mesures de RMN et de neutrons dans le composé YBCO, a été attribué à la suppression des excitations magnétiques et à l'ouverture d'un pseudogap de spin. Par la suite, l'existence d'un pseudogap lié à la suppression des excitations électroniques des charges a été observé dans les spectres de photoémission du composé BiSrCaCuO. Finalement diverses manifestations de cet effet ont été établies par les différents types d'expériences sensibles au spin ou à la charge. Le pseudogap, observé bien au-dessus de la transition supraconductrice, indique l'existence d'un nouveau type de mouvement des électrons corrélés. Mais il n'y a pas encore de réponse quant à savoir s'il s'agit de paires de Cooper préformées ou d'une conséquence des fortes corrélations antiferromagnétiques...

Notre étude a été menée en parallèle sur les deux phases ( $n=1$  et  $n=2$ ) de la famille  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+4+\delta}$ . Le fait qu'il y ait le même réservoir de charges dans les deux phases permet une comparaison plus directe des propriétés électroniques en fonction du dopage, et de l'effet de pseudogap pour deux systèmes ayant un nombre différent de plans  $\text{CuO}_2$  et des températures critiques différentes. Les systèmes choisis sont réalisés sous la forme de films épitaxiés qui sont très bien adaptés pour les mesures de transport dans les plans  $\text{CuO}_2$ . De



plus, le changement de la teneur en oxygène, qui entraîne le changement du nombre de porteurs dans les films, se fait facilement et de façon réversible, comme cela a été démontré dans une étude précédente. Cet avantage des films par rapport aux autres formes d'échantillons (monocristaux, céramiques,...) a permis de suivre l'évolution des propriétés électroniques d'un même film à travers le diagramme de phase.

Ce mémoire est divisé en quatre parties :

- Chapitre I Il s'agit d'une introduction sur les propriétés caractéristiques des cuprates à partir de leur diagramme de phase (température vs. dopage). Le plus grand poids est donné à la partie normale du diagramme de phase et à l'ouverture du pseudogap du côté sous-dopé. Un choix d'expériences a été présenté concernant l'observation de cet effet sur  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+4+\delta}$  ( $n=1$  et  $n=2$ ) ainsi que quelques scénarios théoriques possibles en considérant surtout les propriétés de transport.
- Chapitre II Les composés étudiés sont présentés en même temps que leurs conditions d'élaboration sous forme de couches minces et que les méthodes de leur caractérisation. On a présenté également le procédé utilisé pour changer leurs propriétés électroniques et parcourir le diagramme de phase. A la fin de ce chapitre, on décrit les techniques expérimentales utilisées pour effectuer les mesures de transport.
- Chapitre III Ce chapitre est consacré à l'étude comparative des deux phases ( $n=1$  et  $n=2$ ) de la famille  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+4+\delta}$ . La variation de la résistivité et de l'effet Hall en fonction de la température est étudiée en parcourant le diagramme de phase sur les mêmes films avec une analyse détaillée de l'effet de pseudogap.
- Chapitre IV L'effet d'un champ magnétique intense (jusqu'à 20 Teslas) sur l'effet de pseudogap est étudié par la mesure de la magnétorésistance de la phase  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  ( $n=2$ ). La tendance générale de l'évolution des propriétés de l'état mixte (anisotropie, ligne d'irréversibilité, énergie d'activation) en fonction de dopage est également présentée.

## ***Chapitre I : Propriétés électroniques générales des Cuprates***

Le changement complexe des propriétés électroniques des cuprates est décrit à partir de leur diagramme de phase (T, dopage). Chaque région (la région antiferromagnétique, l'état supraconducteur et l'état normal) est introduite séparément. L'état supraconducteur est décrit brièvement afin d'introduire les notions utilisées dans la suite (gap supraconducteur, etc.) et afin de mettre en évidence les principales différences entre les cuprates et les supraconducteurs classiques.

La partie normale du diagramme de phase est considérée de façon plus détaillée et d'un point de vue surtout expérimental. On présente un choix d'expériences qui montrent l'ouverture du pseudogap dans la partie sous-dopée du diagramme de phase. Ces expériences ont été citées pour faciliter plus tard la comparaison avec nos résultats et pour présenter un autre aspect du même phénomène que celui décrit dans ce mémoire.

En deuxième partie de ce chapitre, les différents scénarios possibles concernant le pseudogap seront discutés comme précurseur de la supraconductivité ou comme effet d'origine magnétique. En raison du nombre énorme de publications, un choix limité de modèles théoriques (surtout ceux qui considèrent les propriétés de transport) sera présenté en essayant d'illustrer les différents types de mécanisme proposés.

## A. Diagramme de phase

Les supraconducteurs à haute température critique (SHTC) à base d'oxydes de cuivre présentent un diagramme de phase (température, dopage) analogue à celui schématisé sur la figure 1. En variant le dopage en porteurs, on fait varier les propriétés électroniques du système des propriétés d'un isolant antiferromagnétique (AF) aux propriétés d'un métal en passant par la région supraconductrice (SC).

Au fur et à mesure que l'on augmente le nombre de porteurs, la température critique,  $T_c$ , augmente à partir de zéro jusqu'à une valeur maximale qui correspond au dopage optimum, et après elle diminue jusqu'à destruction complète de la supraconductivité et restitution d'un comportement purement métallique lequel n'est pas accessible pour tous les systèmes. Les régions à droite et à gauche de l'état optimal s'appellent respectivement la région *surdopée* et la région *sous-dopée* du diagramme de phase. Dans la région sous-dopée une nouvelle ligne (ou même deux nouvelles lignes) apparaît qui correspond à la température  $T^*$  en dessous de laquelle il y a suppression des excitations électroniques de basse énergie. Ce passage connu sous le nom "d'ouverture d'un pseudogap" est observé dans pratiquement toutes les expériences (RMN, diffraction de neutrons, photoémission ARPES, chaleur spécifique, effet tunnel, réflectivité optique, transport électrique, etc.) [1].

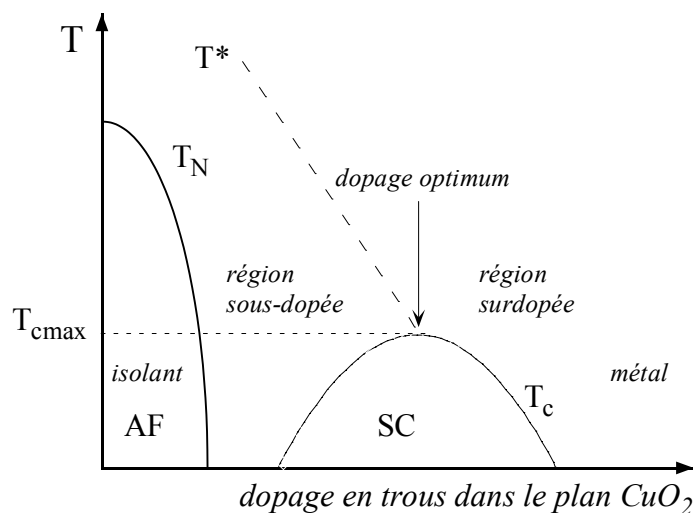


Figure 1 : Diagramme de phase schématisé et la variation des températures caractéristiques en fonction du nombre de porteurs pour les cuprates

## A1. Région antiferromagnétique

Les états parents des états supraconducteurs sont les états isolants antiferromagnétiques, au-dessous de la température de Néel  $T_N$ . Les propriétés magnétiques proviennent des électrons "d" situés sur les atomes de cuivre des plans  $\text{CuO}_2$ .

La bande "d" des atomes de cuivre est séparée en plusieurs niveaux d'énergie sous l'influence du champ cristallin (figure 2, à gauche). Le cuivre se trouve dans l'état  $\text{Cu}^{2+}$  ( $3d^9$ ) avec un électron célibataire de spin  $\frac{1}{2}$  (un trou par site) pour lequel la structure de bande prédit une bande à moitié remplie et des propriétés métalliques. Dû à la forte répulsion coulombienne  $U (=U_d)$ , la bande  $d_{x^2-y^2}$  est séparée en deux niveaux de Hubbard, le niveau bas occupé par l'électron célibataire et le niveau haut occupé par le trou (figure 2, à droite). La bande p de l'oxygène se trouve entre les deux niveaux de Hubbard [2], avec un gap d'énergie  $\Delta$ . Les trous restent localisés sur les sites du cuivre et les cuprates montrent un comportement isolant. Les moments magnétiques s'alignent antiferromagnétiquement via un mécanisme de super-échange d'Anderson [3].

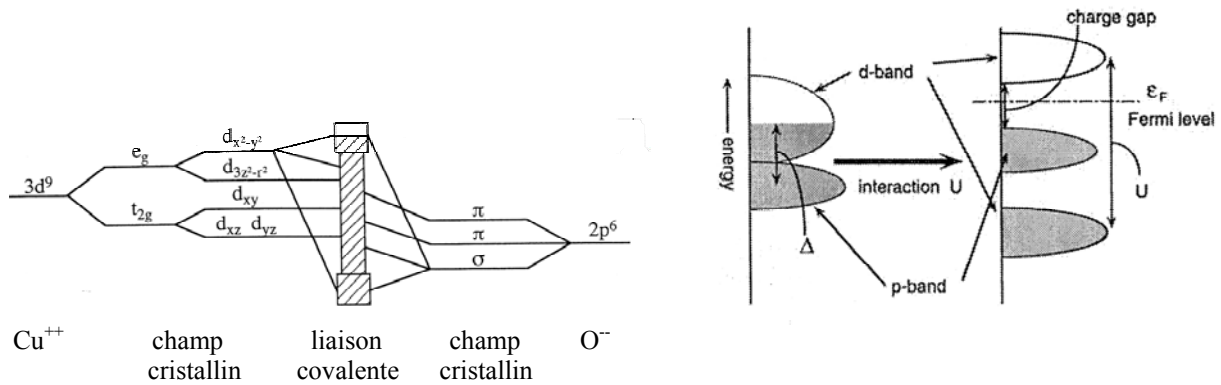


Figure 2 : A gauche, les niveaux d'énergie électronique (séparés sous l'influence du champ cristallin cubique et tétragonal) d'un plan  $\text{CuO}_2$  [4]. A droite, le diagramme schématisé d'énergie d'une bande à transfert de charges [2].

A cause du fort caractère 2D des SHTC et par conséquent des fortes fluctuations quantiques, la température  $T_N$  est réduite d'une valeur prévue de 1300-1700 K (qui correspond au couplage entre les spins premiers voisins) à la valeur  $T_N \approx 300$  K à dopage nul [5]. La température de Néel  $T_N$  diminue avec le dopage en porteurs jusqu'à disparition complète de l'ordre magnétique à grande distance. Vers la valeur du dopage  $p \sim 0,05$  trous par cuivre la phase supraconductrice apparaît.

## A2. Etat supraconducteur

L'annulation soudaine de la résistance électrique (conductivité infinie) au-dessous d'une température critique  $T_c$  [Kamerlingh-Onnes 1911 [6]], ainsi que le diamagnétisme parfait<sup>1</sup> (l'effet Meissner) découvert vingt-deux ans plus tard [Meissner et Ochsenfeld, 1933 [7]] sont les deux propriétés fondamentales de la supraconductivité.

Une autre caractéristique fondamentale de la phase supraconductrice est l'existence d'un gap dans le spectre des excitations observé d'abord par la mesure de chaleur spécifique [8], puis par des mesures optiques [9].

En 1950, le modèle phénoménologique de la supraconductivité de Ginzburg-Landau<sup>2</sup> [10] introduit le paramètre d'ordre  $\psi = |\psi|e^{i\varphi}$  qui brise la symétrie d'invariance de jauge dans la zone supraconductrice. La densité des superélectrons,  $n_s$ , est définie à partir de l'amplitude du paramètre d'ordre :  $|\psi|^2 = n_s$ . Le modèle introduit deux longueurs caractéristiques, la longueur de cohérence<sup>3</sup>  $\xi$  et la longueur de pénétration du champ magnétique<sup>4</sup>  $\lambda$ . Le rapport entre ces deux longueurs,  $\kappa = \frac{\lambda}{\xi}$ , le paramètre de Ginzburg-Landau, permet de classer les supraconducteurs en deux familles aux propriétés magnétiques distinctes<sup>5</sup>.

En 1957, le modèle microscopique BCS de Bardeen, Cooper et Schrieffer [11] propose une description microscopique de l'état supraconducteur basée sur l'appariement des électrons sous l'effet d'une interaction attractive en présence de la mer de Fermi. L'interaction attractive est ici produite via le couplage électron-phonon. La formation de ces paires induit un nouvel

---

<sup>1</sup> Un supraconducteur placé sous un champ magnétique faible expulse les lignes de flux magnétique.

<sup>2</sup> A partir de la théorie des transitions de phase du second ordre développée par L. Landau.

<sup>3</sup> Une échelle de longueur pour les variations spatiales du paramètre d'ordre, caractérisant la taille d'une paire supraconductrice,  $\xi(T) = \xi(0) / \sqrt{1 - T/T_c}$ .

<sup>4</sup> La longueur sur laquelle le champ magnétique pénètre dans l'échantillon,  $\lambda(T) = \lambda(0) / \sqrt{1 - T/T_c}$

<sup>5</sup> Pour un supraconducteur de type I ( $\kappa < 1/\sqrt{2}$ ) l'effet Meissner est total jusqu'à un champ magnétique critique  $H_c$  où la supraconductivité disparaît complètement et pour un supraconducteur de type II ( $\kappa \geq 1/\sqrt{2}$ ) l'effet Meissner est total jusqu'à  $H_{c1}$ , à partir duquel le champ magnétique pénètre partiellement sous forme de vortex (l'état mixte) jusqu'à  $H_{c2}$  où tout le volume devient normal. Le vortex est formé d'un cœur normal de rayon  $\xi$  autour duquel circulent des courants d'écran supraconducteurs sur une portée  $\lambda$ .

état fondamental, différent de l'état normal, qui mène à l'apparition de la supraconductivité. Le gap supraconducteur  $\Delta$ , qui sépare les états excités de l'état fondamental, est identifié comme l'énergie de liaison des paires d'électrons (paires de Cooper). Dans la limite de couplage faible entre les électrons, le gap supraconducteur est lié à la température critique par la relation :  $E_g = 2\Delta = 3,5 \cdot k_B T_c$  ( $k_B$  est la constante de Boltzmann), confirmée pour les supraconducteurs classiques (ex.:  $2\Delta/k_B T_c = 3.5$  pour Sn, 3.8 pour Nb) [12].

La correspondance entre le gap supraconducteur  $\Delta$  et le paramètre d'ordre  $\psi$  du modèle Ginzburg-Landau montré par Gor'kov en 1959 [13], a permis de déterminer les longueurs caractéristiques  $\xi$  et  $\lambda$  en fonction des paramètres microscopiques telles que la vitesse de Fermi  $v_F$ , la masse effective  $m^*$ , le charge des superélectrons  $e^*$  et la densité des paires de Cooper  $n_s$  ( $c$  est vitesse de la lumière et  $h$  est la constante de Planck). Dans le cas propre<sup>6</sup> :

$$\xi(0) = 0,74\xi_0 \quad \text{où} \quad \xi_0 = h v_F / \pi \Delta$$
$$\lambda(0) = 0,707\lambda_0 \quad \text{où} \quad \lambda_0 = \sqrt{m^* c^2 / 4\pi n_s e^{*2}}$$

Soixante-quinze ans après la découverte du premier supraconducteur (Hg), en 1986, le premier SHTC à base d'oxyde de cuivre, LaBaCuO, est découvert par Bednorz et Müller [14]. A leur suite, d'autres groupes synthétisent d'autres familles de cuprates. Ainsi les composés BiSrCaCuO sont découverts en 1988 par Maeda et al. [15]. Dès le départ, plusieurs expériences ont montré l'existence des paires de Cooper : par observation de la fréquence habituelle de l'effet Josephson *ac*  $2eV/h$  [16] ou par observation de la quantification du flux magnétique avec le quantum  $\phi_0 = h/2e$  [17]. A ce jour, il n'y a pas de consensus sur la nature de l'interaction attractive entre porteurs.

Outre leur température critique beaucoup plus élevée que celle des supraconducteurs classiques, les cuprates ont une forte anisotropie  $\gamma^7$ , liée à leur anisotropie cristalline (cf II.A) avec des longueurs caractéristiques anisotropes (tableau 1) et des longueurs de cohérence extrêmement courtes.

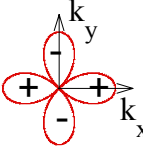
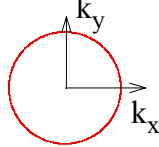
---

<sup>6</sup> La longueur de diffusion des électrons est plus grande que la longueur de cohérence :  $\ell \gg \xi_0$ .

<sup>7</sup> Le paramètre d'anisotropie  $\gamma$  est défini à partir du modèle Ginzburg-Landau anisotrope par :  $\gamma = \sqrt{m_c / m_{ab}}$

Au gap isotrope des supraconducteurs classiques correspond la symétrie "s" du paramètre d'ordre. La présence de nœuds dans le gap des SHTC a suggéré un gap anisotrope avec une symétrie différente de celle trouvée précédemment.

*Tableau 1 : Les longueurs caractéristiques des cuprates et supraconducteurs classiques*

longueurs caractéristiques	cuprates		supraconducteurs classiques
	Bi-2212	Bi-2201	ex. Nb ( $T_c=9,2$ K)
longueur de cohérence $\xi(0)$	$\xi_{ab} \sim 20$ Å [18] $\xi_c < 1$ Å	$40$ Å [19] $2$ Å	$\xi \sim 400$ Å
longueurs de pénétration $\lambda(0)$	$\lambda_{ab} \sim 0,20$ $\mu\text{m}$ [20] $\lambda_c \sim 40$ $\mu\text{m}$	$\lambda_{ab} \sim 0,4$ $\mu\text{m}$ [19] $\lambda_c \sim 8$ $\mu\text{m}$	$\lambda \sim 0,45$ $\mu\text{m}$
paramètre d'anisotropie $\gamma^8$ ( $\gamma = \xi_{ab}/\xi_c = \lambda_c/\lambda_{ab}$ )	$\gamma \sim 200$	$\gamma \sim 20$	$\gamma = 1$
paramètre de Ginzburg-Landau $\kappa = \lambda/\xi$	$\kappa_c = \lambda_{ab}/\xi_{ab} \sim 100$ ( $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ )		$\kappa \sim 11$
symétrie du paramètre d'ordre			

Une des preuves de la symétrie  $d_{x^2-y^2}$  du paramètre d'ordre des cuprates est venue de l'expérience dite du "tricristal" [21], sensible à la phase du paramètre d'ordre en utilisant la quantification du flux magnétique. Cette expérience initialement conduite sur un film d'YBCO a été également réalisée sur des films de  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$  synthétisés par notre équipe par la technique décrite au chapitre II [22]. Le dépôt est épitaxié sur un substrat composé de trois monocristaux de  $\text{SrTiO}_3$  avec un géométrie bien définie (figure 3 (b)). On obtient ainsi trois jonctions Josephson dite " $\pi$ " qui se réunissent au point "tricristal", où on doit s'attendre à observer un demi-quantum de flux pour une symétrie  $d_{x^2-y^2}$  du paramètre d'ordre. La figure 3(a) présente la carte magnétique établie à l'aide d'un microscope à SQUID à balayage du film de Bi-2212 refroidi sous un champ magnétique de 3,7mG. Outre les vortex piégés<sup>9</sup> dans l'échantillon, on observe au point "tricristal" le vortex Josephson portant le flux  $\phi_0/2$ , de

<sup>8</sup> Valeurs de  $\gamma$  mesurées sous champ magnétique.

<sup>9</sup> En champ nul, le seul vortex restant est le vortex portant le flux  $\phi_0/2$  généré spontanément au point "tricristal".

hauteur moitié de celle des autres vortex, ce qui démontre la symétrie "d" du paramètre d'ordre dans la phase Bi-2212.

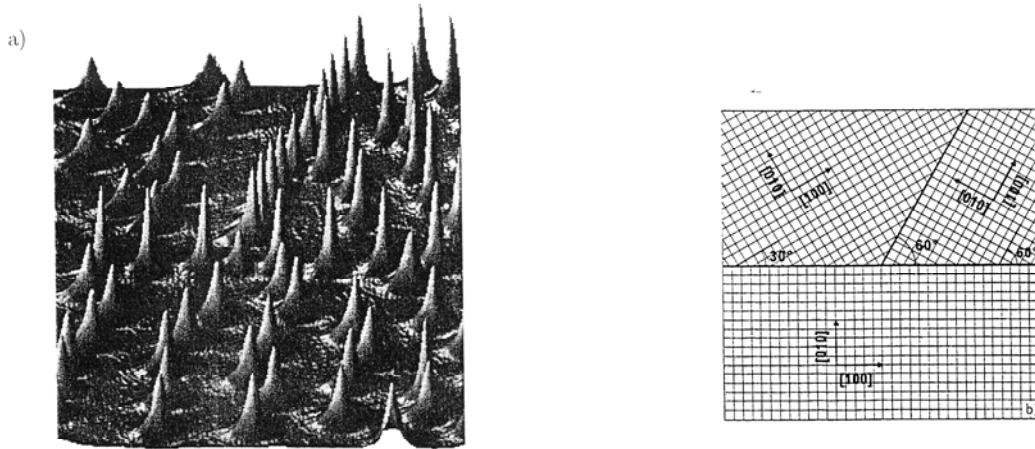


Figure 3 : A gauche, image de la carte magnétique ( $640 \times 640 \mu\text{m}^2$ ) à  $T=4,2 \text{ K}$  d'un film Bi-2212 déposé sur substrat "tricristal" et refroidi sous un champ magnétique de  $3,7 \text{ mG}$ . Noter le demi-quantum de flux situé au point "tricristal". A droite, diagramme schématique de la géométrie du substrat "tricristal" [22].

En même temps, une autre preuve de symétrie "d" du paramètre d'ordre est venue de mesures de photoémission (voir la figure 9 [40]).

La magnitude du gap observé dans le spectre des excitations électroniques varie en fonction du dopage ce qui a été établi à partir de différentes expériences : mesure de photoémission [23], mesure de l'effet tunnel [24, 25], mesure de la réflexion d'Andreev [26], mesure de l'effet Raman [27, 28], mesure de la longueur de pénétration de London [29] (figure 4).

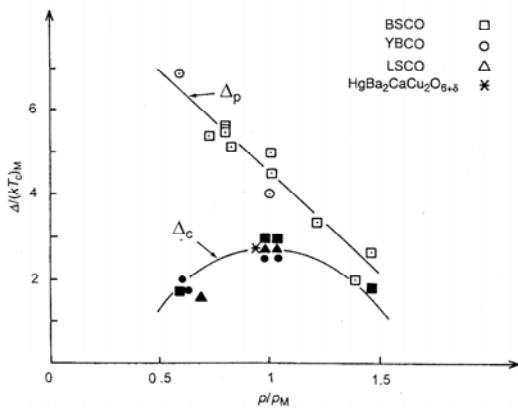


Figure 4 : Variation en fonction du dopage du gap d'énergie  $\Delta_p$ , déterminé à partir de mesures de l'effet tunnel et de mesures de photoémission (symboles vides), et celle de  $\Delta_c$  déterminé par la mesure de réflexion d'Andreev, la mesure de longueur de pénétration de London et de l'effet Raman (symboles pleins) [30].



L'auteur associe le gap  $\Delta_p$  à l'énergie d'excitation par particule nécessaire pour casser les paires des porteurs, tandis que  $\Delta_c$  serait l'énergie de cohérence de l'état supraconducteur qui est nécessaire pour la condensation des paires [30].

D'autres propriétés physiques supraconductrices varient aussi en fonction du dopage de façon non monotone. Sur la figure 5, l'énergie de condensation<sup>10</sup> montre un maximum au voisinage de l'état optimal ( $p \sim 0,19$ ) du côté surdopé, et une décroissance rapide en allant vers la région sous-dopée. Les variations du courant critique<sup>11</sup> et de la température irréversible<sup>12</sup> présentent aussi un comportement similaire en fonction du dopage.

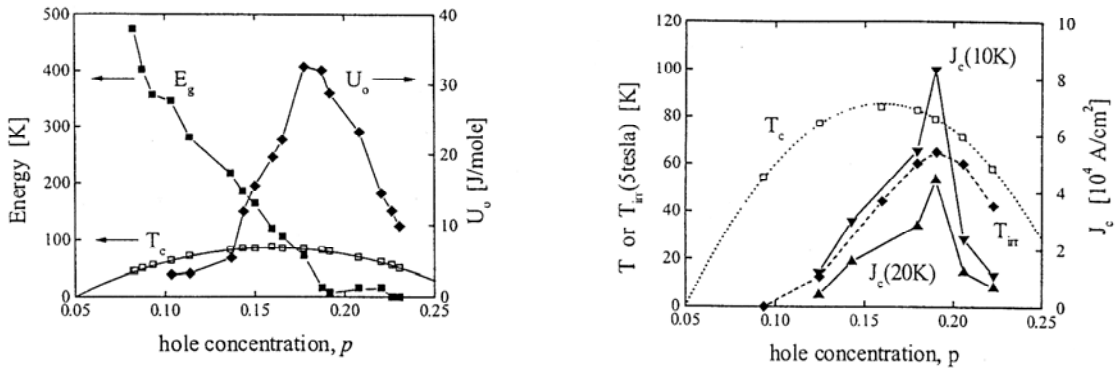


Figure 5 : A gauche, la variation de l'énergie de condensation  $U_o$ , de l'énergie du gap électronique  $E_g$  (voir le paragraphe suivant) et de la température critique  $T_c$  en fonction du dopage à partir des mesures de chaleur spécifique. A droite, variation du courant critique ( $H=0,2$  T) et de la température d'irréversibilité magnétique ( $H=5$  T). Ces études ont été faites sur le composé d' $Y_{0,8}Ca_{0,2}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$  [31].

<sup>10</sup> L'énergie de condensation est définie par la différence entre l'énergie électronique de l'état normal et celle de la phase supraconductrice.

<sup>11</sup> Courant maximal qui permet la conductivité infinie dans la région supraconductrice.

<sup>12</sup> La température qui sépare le régime réversible du régime irréversible de l'aimantation pour un champ magnétique donné.

### A3. Etat normal

On considère maintenant la partie de diagramme de phase au-dessus de la température critique de supraconductivité. Tandis que la partie surdopée du diagramme de phase (figure 1) présente les propriétés électroniques les plus proches de celles d'un métal, la partie sous-dopée montre l'existence d'un pseudogap au-dessus de  $T_c$ . Un grand nombre de résultats expérimentaux concernant un pseudogap lié en même temps au spin et à la charge a été rapporté précédemment [1]. Tandis que la phase Bi-2212 a été beaucoup étudiée surtout par mesure de photoémission<sup>13</sup> (ARPES) (et très peu par mesure de résonance magnétique nucléaire<sup>14</sup> (RMN) et par diffraction des neutrons<sup>15</sup>), les résultats concernant la phase Bi-2201 restent peu nombreux (cf II.A).

- Au départ le "gap de spin" vu par RMN a été observé sur la dépendance de  $1/^{63}\text{T}_1\text{T}$  en fonction de la température, quantité qui est proportionnelle à la susceptibilité dynamique  $\chi''(Q_{\text{AF}}, \omega \approx 0)$ . Du côté sous-dopé, elle montre un maximum à une température  $T^*$ , bien au-dessus de  $T_c$  et ensuite elle diminue avec la température, ce qui correspond à l'ouverture du gap de spin à  $Q_{\text{AF}} = (\pi/a, \pi/a)$  [32, 33]. Du côté surdopé, ce maximum apparaît au voisinage de la température critique. Les résultats obtenus sur l'état optimal et pour comparaison sur l'état surdopé d'un monocristal de Bi-2212 sont présentés sur la figure 6, à gauche [34]. Sur la même figure, l'auteur a présenté aussi le déplacement de la raie de  $^{63}\text{Cu}$  en fonction de la température dans les deux cas (voir la susceptibilité statique). Les mesures sous un champ magnétique de 15 T n'ont pas montré de changement de la position de ce maximum dans le cas d'un monocristal d'YBCO à l'état optimal avec la conclusion que l'effet de "spin-gap" ne change pas sous ce champ magnétique [35].

- Egalement, la susceptibilité statique à  $\mathbf{q}=\mathbf{0}$  mesurée par susceptibilité macroscopique ou par déplacement de la raie de RMN des noyaux couplés aux plans  $\text{CuO}_2$  [36] montre aussi une décroissance progressive au-dessous d'une autre température  $T_0$  ( $T_c < T^* < T_0$ ). La figure 6, à droite, montre les résultats obtenus sur des monocristaux de Bi-2212, avec  $T_0 = T_m$  d'autant plus élevée que le dopage est faible [37].

---

<sup>13</sup> Le composé BiSrCaCuO se clive facilement.

<sup>14</sup> Système trop "sale".

<sup>15</sup> Monocristaux trop petits.

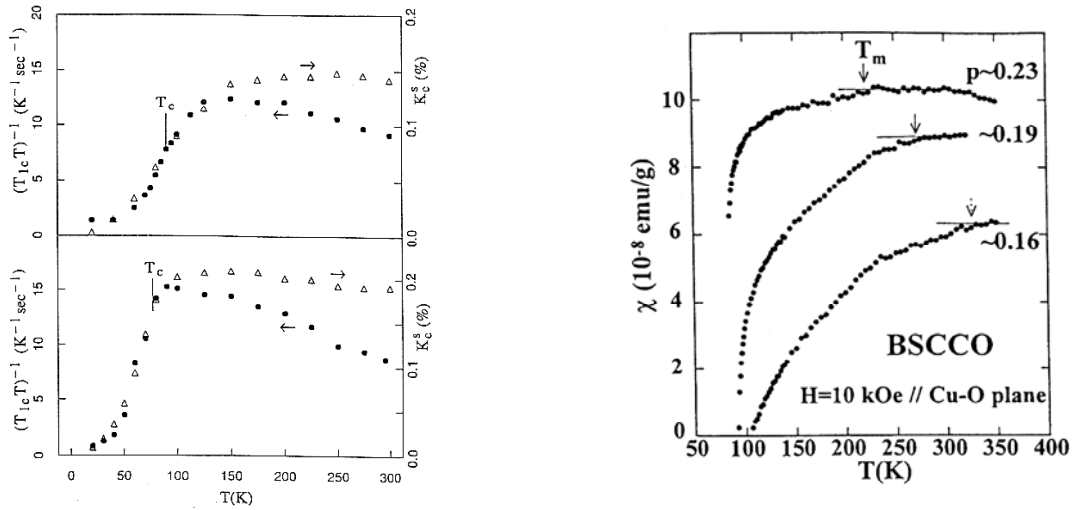


Figure 6 : A gauche, variation en fonction de la température de  $1/T_1T$  et  $K_c^S$  (déplacement de la raie de  $^{63}\text{Cu}$  qui représente la susceptibilité statique à  $q=0$ ) pour l'état optimal (en haut) et un état surdopé (en bas) de Bi-2212 [34]. A droite, susceptibilité macroscopique en fonction de  $T$  pour différents états de dopage de Bi-2212 [37].

- En même temps pour YBCO la mesure de diffusion inélastique des neutrons a montré l'existence d'un pic à  $Q_{AF}$ , dans la région supraconductrice persistant jusqu'à une température située au-dessus de  $T_c$ , signalant la présence de corrélations antiferromagnétiques dans l'état normal [38]. Pour le moment, la mesure récente effectuée sur Bi-2212 n'a mis en évidence l'existence de ce type de corrélations que dans la région supraconductrice (figure 7) [39].

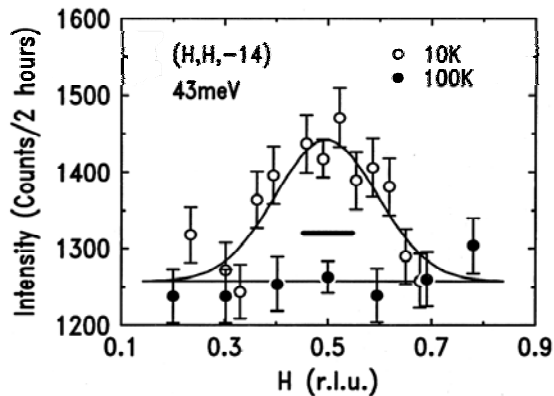


Figure 7 : Existence d'un pic d'origine magnétique, autour de 43 meV, à l'état optimal de Bi-2212 qui disparaît au-dessous de 100 K [39].

• Par *spectroscopie de photoémission résolue angulairement*<sup>16</sup> (ARPES), le déplacement par rapport à l'énergie de Fermi au-dessous de  $T^*$  du front ou "leading edge" de la courbe de distribution d'énergie a suggéré l'ouverture d'un pseudogap lié à un gap de charges [40, 41]. Les résultats montrent la disparition progressive de la surface de Fermi au-dessous de  $T^*$ , jusqu'aux nœuds de symétrie "d" au-dessous de  $T_c$  (figure 8, à gauche) [43]. Du côté surdopé le gap s'ouvre à tous les points de la surface de Fermi au même moment. Les résultats suggèrent également que la surface de Fermi reste bien définie dans la région sous-dopée (figure 8, à droite) [44]. Ce dernier point reste assez controversé jusqu'à aujourd'hui, avec la suggestion de l'existence de poches fermées centrées à  $\mathbf{k}=(\pi/2,\pi/2)$  [42].

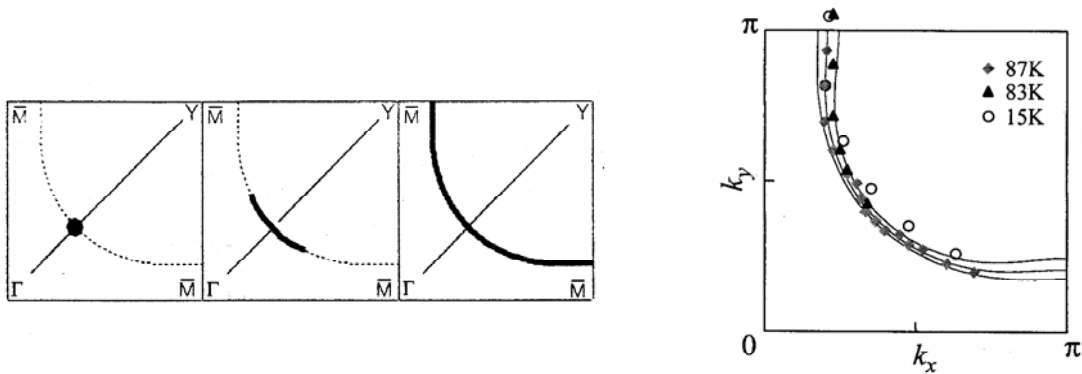


Figure 8 : A gauche, mesure de photoémission montrant l'évolution de la surface de Fermi avec la température; la température diminue en allant de la droite vers la gauche [43]. A droite, évolution de la surface de Fermi avec le dopage : pour un état surdopé avec  $T_c=83$  K et deux états sous-dopés avec  $T_c= 83$  K et 15 K de Bi-2212, mesurés dans l'état normal (en lignes continues, résultats théoriques qui prévoient l'expansion de la surface de Fermi en  $(1+x)$  en fonction du dopage,  $x$  étant le dopage en trous) [44].

L'évolution progressive du pseudogap avec la même symétrie "d" vers le gap supraconducteur sans aucune anomalie à  $T_c$  (figure 9, à gauche) a suggéré qu'il correspondait à la formation de paires supraconductrices incohérentes avec la cohérence de phase qui s'établit à  $T_c$  [23, 44]. La différence entre l'état normal et supraconducteur provient de l'existence du pic de cohérence visible au-dessous de  $T_c$ , mais pas dans l'état normal. Les dépendances en fonction

<sup>16</sup> Les photons incidents ( $\sim eV$ ) en interaction avec le matériau expulse les électrons ( $\sim meV$ ). L'énergie des électrons émis ainsi que leur angle d'émission sont mesurés. Si les états électroniques ont une dimension 2D il existe une correspondance (pour une énergie donnée) entre l'angle d'émission des électrons et leur vecteur  $\mathbf{k}$  dans la surface de Fermi. Cette approximation, bien satisfaite dans BiSrCaCuO, permet une spectroscopie de photoémission résolue angulairement.

du dopage des énergies du pic de cohérence, du pseudogap et d'une structure large ("hump") (signature vue en permanence dans l'état supraconducteur et l'état normal) sont présentées sur la figure 9, à droite [45].

Le pseudogap de la phase Bi-2201 a été aussi mis en évidence avec une magnitude du gap plus faible que dans le cas de Bi-2212, d'un facteur 3 [46]. Par contre, la phase Bi-2201 ne montre pas le pic de cohérence avec la structure dite "hump". Les spectres au-dessous et au-dessus de  $T_c$  sont très similaires.

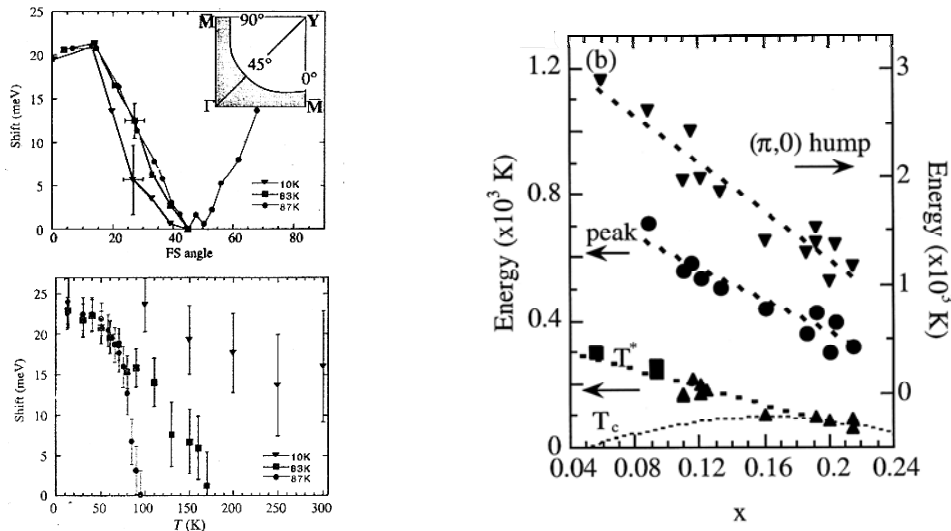


Figure 9 : A gauche, variation angulaire du gap supraconducteur autour de la surface de Fermi avec présence des nœuds sur la diagonale ( $\Gamma Y$ ) (en haut) et évolution progressive du gap supraconducteur (valeur maximale) vers le gap normal (en bas) pour l'état optimal ( $T_c=87$  K) et les états sous-dopés ( $T_c=83$  K et  $T_c=10$  K) [40]. A droite, évolution des énergies du pseudogap  $T^*$ , du pic de cohérence et du "hump" en fonction du dopage, déduites des mesures de photoémission [45].

- La partie électronique de la *chaleur spécifique* montre une dépression du coefficient  $\gamma$  au-dessous de  $T^*>T_c$  dans la région sous-dopée d'YBCO et LSCO [47], tandis que celui des états surdopés reste constant au-dessus de  $T_c$ .
- La mesure de *spectroscopie tunnel* par STM ("Scanning Tunneling Microscope") [24] ou sur des jonctions de type SIN<sup>17</sup> [48] a également montré la persistance du gap jusqu'à une température plus élevée que la température critique.

<sup>17</sup> Supraconducteur-isolant-normal metal

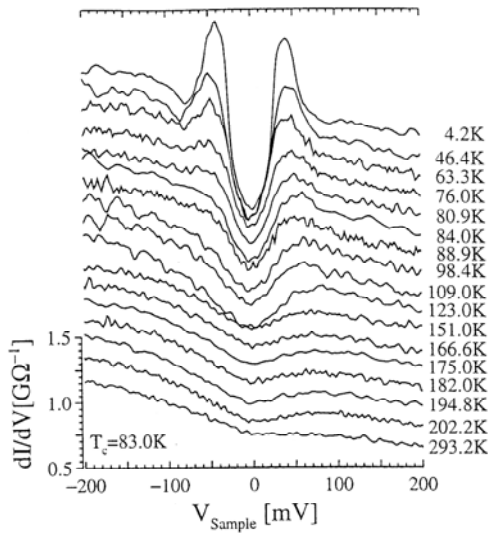


Figure 10 :

Evolution avec la température de la conductance tunnel  $dI/dV$  d'un état sous-dopé d'un monocristal Bi-2212 [24]. Un gap est toujours visible autour de  $V=0$ , même dans l'état normal ( $T > 83$  K).

- - La mesure de la *conductivité optique dans le plan (a,b)* montre également la suppression du taux de relaxation  $\tau^{-1}$  au-dessous d'une température caractéristique [49]. Au-dessus de  $700 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\tau^{-1}$ , mesuré sur un monocristal de Bi-2212 sous-dopé, présente une dépendance linéaire en fonction de la fréquence mais sans dépendance en température (figure 11). Au-dessous de  $700 \text{ cm}^{-1}$ , la variation de  $\tau^{-1}(\omega)$  s'écarte de cette loi linéaire vers le bas, avec une déviation d'autant plus grande que la T est plus basse [50].

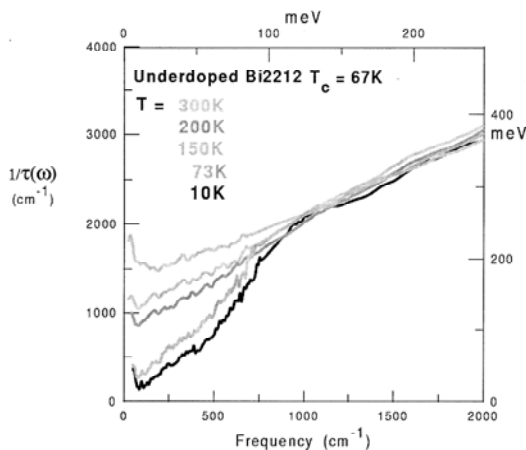


Figure 11 : La dépression de  $\tau^{-1}$  en fonction de la fréquence à partir de  $\omega = 700 \text{ cm}^{-1}$ , et se produisant au-dessous de 150-200 K, mesuré pour un état sous-dopé de Bi-2212 [50].

- La partie électronique de la conductivité optique *selon l'axe c* montre aussi une dépression au-dessous d'une température caractéristique pour les fréquences plus petites que  $400 \text{ cm}^{-1}$  dans le système YBCO [51].

- L'effet Raman montre l'existence d'un pic de symétrie  $B_{2g}$  autour de  $400\text{ cm}^{-1}$ , lié à l'apparition de la supraconductivité, bien au-dessus de  $T_c$  du côté sous-dopé [52]. Egalement, la suppression du poids spectral au-dessous de  $700\text{ cm}^{-1}$  dans la même symétrie est signalée pour les températures au-dessous de  $T^*$  (figure 12) [27].

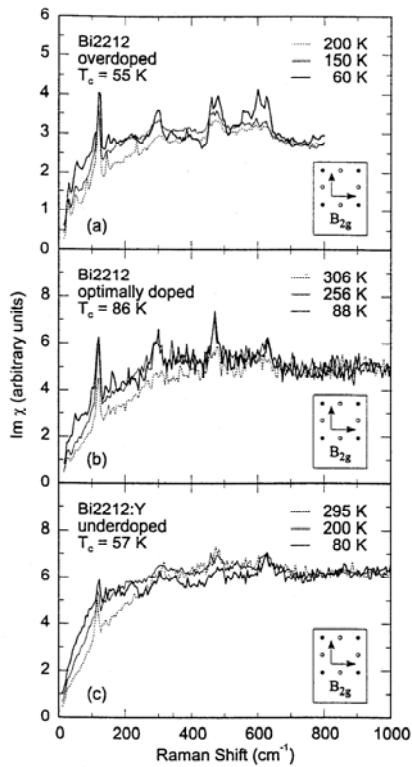


Figure 12 :

Spectres Raman de symétrie  $B_{2g}$  mesurés à différentes températures dans l'état normal et pour différents états de dopage de la phase Bi-2212 [27]. En encart, la polarisation de la lumière incidente et diffusée a été montrée par rapport à la position aux atomes de cuivre (cercles pleins) et celles des atomes d'oxygène (cercles vides) dans le plan  $\text{CuO}_2$ .

- - La mesure de la *résistivité dans le plan (a,b)* en fonction de la température a montré une variation linéaire à haute température et une déviation vers le bas par rapport à cette loi au-dessous de la température  $T^*$ , observée d'abord dans un composé de LaSrCuO et YBCO [53]. La figure 13, à gauche, montre le même comportement dans les monocristaux de BiSrCaCuO [54]. Cette déviation a été attribuée par les auteurs à l'ouverture d'un gap de spin.

- Dans les systèmes LSCO [55] et YBCO [56], la *résistivité selon c* montre aussi un comportement linéaire en fonction de la température à haute température et une déviation de celle-ci vers le haut. Ce changement se produit au même moment que celui visible dans  $\rho_{ab}(T)$ . Par contre le composé BiSrCaCuO montre dans toute la région du diagramme de phase un comportement semi-conducteur de  $\rho_c(T)$ , sans présenter la loi linéaire en fonction de la température trouvée précédemment (figure 13, à droite) [54].

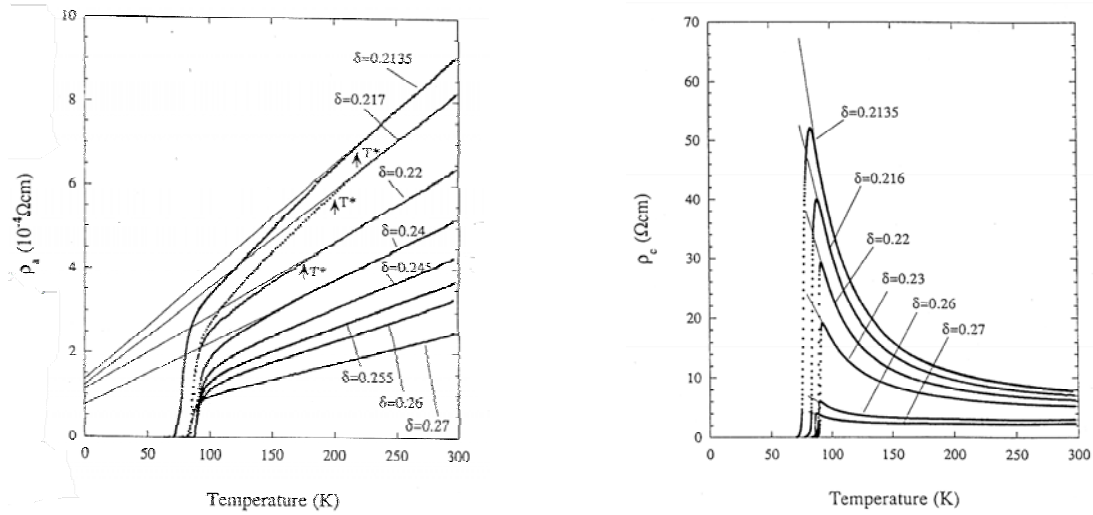


Figure 13 : La résistivité dans plan (a,b) (à gauche) et selon l'axe c (à droite) en fonction de la température et du dopage dans les monocristaux de Bi-2212 [54]. L'état  $\delta=0,245$  correspond à l'état optimal.

- La variation du *coefficient de Hall* en fonction de la température montre une déviation par rapport à la loi en  $\sim 1/T$  à la même température que celle observée dans la variation de la résistivité dans le plan (a,b) dans le système YBCO [57, 58].
- Tandis que le *pouvoir thermoélectrique* des états surdopés est négatif, il est positif pour les états sous-dopés avec un dépendance en fonction de la température non monotone, et l'apparition d'un maximum [59]. Un comportement similaire a été observé également dans le composé de  $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_6$  en variant la valeur de x [60].

Les variations des différentes températures caractéristiques en fonction du dopage, établies sur les composés Bi-2212 et Bi(La)-2201 par différents types de mesures, et aussi par la mesure de la résistivité sur les autres composés, seront comparées avec nos résultats dans le chapitre III.



## **B. Quelques scénarios possibles**

Jusqu'à présent aucun modèle théorique ne peut prendre en compte toutes les anomalies trouvées dans les cuprates. Si on considère pour le moment seulement les propriétés de transport à l'état optimal, il est nécessaire d'introduire deux différents types de mécanismes de diffusion ou deux différents temps de relaxation. C'est le seul point commun à tous les modèles. Un consensus est loin d'être atteint dans le cas de l'état optimal ce qui multiplie les scénarios possibles pour l'effet de pseudogap.

Le point de départ est habituellement l'hamiltonien de Hubbard qui introduit les états  $3d_{x^2-y^2}$  du cuivre hybridés avec les états  $p_{x,y}$  de l'oxygène [61]. Les énergies caractéristiques du système sont l'énergie cinétique, la répulsion coulombienne entre les électrons sur le même site  $U$  et l'énergie de sauts entre les sites voisins  $t$ .

La classification adoptée divise les différents modèles selon l'importance des corrélations  $U$  par rapport à largeur de bande  $t$ . Les modèles de corrélations relativement faibles ( $U \ll t$ ) avec des propriétés de surface de Fermi pour une bande à moitié remplie sont basés sur la description du liquide de Fermi. Les modèles de corrélations fortes ( $t \ll U$ ) sont basés sur un modèle "RVB" (état à liaisons de valence résonnantes) où les degrés de liberté de spin et de charge sont séparés. Des modèles qui ne considèrent pas directement les corrélations sont présentés à la fin.

Dans le cas des cuprates, les résultats expérimentaux et théoriques indiquent que les corrélations  $U$  sont de l'ordre de la largeur de bande  $t$ . Le point de départ théorique peut être choisi aussi bien dans la limite des corrélations faibles que dans celle des corrélations fortes sachant qu'il faut arriver à décrire une situation de corrélations intermédiaires.

### **B1. Modèles avec des corrélations faibles**

Le modèle de liquide de Fermi est un modèle de quasiparticules itinérantes ayant à la fois le spin et la charge. Ces excitations de basse énergie déterminent les propriétés du système analogues à celles des électrons sans interactions .

- *Liquide de Fermi classique*

Dans le modèle du liquide de Fermi, la contribution de la diffusion électronique dans les propriétés de transport conduit à ( $\tau$  est le temps de diffusion des électrons) :

$$\rho \sim 1/\tau \sim T^2$$

$$R_H \sim \text{constant}$$

$$\cot g\Theta_H \sim 1/\tau$$

$$\Delta\rho(H) / \rho(0) \sim (H/\rho(0))^2 \sim \tau^2 H^2 \quad (\text{R\`egle de Kohler})$$

En considérant la surface de Fermi réelle avec différents libres parcours moyens selon la courbure correspondante, l'expression générale du coefficient de Hall peut être bien différente de  $R_H=1/ne$  (valable pour une seule bande parabolique,  $E(\mathbf{k})=(\hbar\mathbf{k})^2/2m^*$ ) et elle reflète directement la forme spécifique de la surface de Fermi [62]. La dépendance en température de  $R_H$  peut apparaître seulement si l'anisotropie du libre parcours moyen change avec la température.

La dépendance en température de la résistivité causée par la diffusion par les phonons est donnée par l'équation de Bloch-Grüneisen :  $\rho(T) \propto \left(\frac{T}{\theta_D}\right)^5 \int_0^{\theta_D/T} \frac{x^5 dx}{(e^x - 1)(1 - e^{-x})}$ , où  $\theta_D$  est la température de Debye. Dans la limite  $T \gg \theta_D$ , la résistivité est approximativement linéaire en  $T$  jusqu'à  $T \sim \theta_D/4$ , puis à basse température,  $T \ll \theta_D$ , elle varie en  $T^5$ . La saturation de la résistivité est attendue à hautes températures.

La variation linéaire de la résistivité en fonction de la température pourrait être compatible avec la diffusion des électrons par les phonons. Cependant, d'une part l'absence de saturation jusqu'à 1000 K indique un faible couplage électron-phonon dans le composé  $\text{La}_{1,85}\text{Sr}_{0,15}\text{CuO}_4$  [63]. D'autre part, la variation linéaire de la résistivité s'étend jusqu'à 10 K pour  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_6$  [64] et indique une très faible température de Debye ce qui n'est pas en accord avec les mesures de chaleur spécifique de cette phase qui donnent :  $\theta_D=200-300$  K [65].

Egalement, en ne considérant que la diffusion des porteurs par des phonons,  $R_H$  devrait saturer pour  $T > \theta_D$  ce qui n'est pas confirmé expérimentalement [66].

La diffusion par des phonons ne suffit pas pour décrire les résultats expérimentaux et un mécanisme de diffusion alternatif ou parallèle, lié à la diffusion électronique, est proposé par les différents auteurs.

A partir de la surface de Fermi réelle et du résultat précédent [62], la variation de l'angle de Hall en fonction de la température a été reproduite ( $\tau_H^{-1} \sim T^2$ ) avec l'approximation que le temps de relaxation relatif aux parties plates de la surface de Fermi a une dépendance linéaire en température tandis que celle des parties arrondies a une dépendance en  $T^2$  (figure 14) [67, 68]. La diffusion supposée est la diffusion des électrons par les fluctuations de spins [68], hypothèse qu'amènent de nombreuses études supposant l'origine magnétique des propriétés anormales de transport.

A partir du modèle de liquide de Fermi classique, différentes généralisations sont apparues avec les différents processus anormaux de diffusion [69], liés à la propriété d'emboîtement ("nesting") de la surface de Fermi près du demi-remplissage [70] ainsi qu'à l'anomalie de Van Hove [71, 72]. Toutes ces approches supposent un temps de relaxation, mais fortement anisotrope selon la position sur la surface de Fermi.

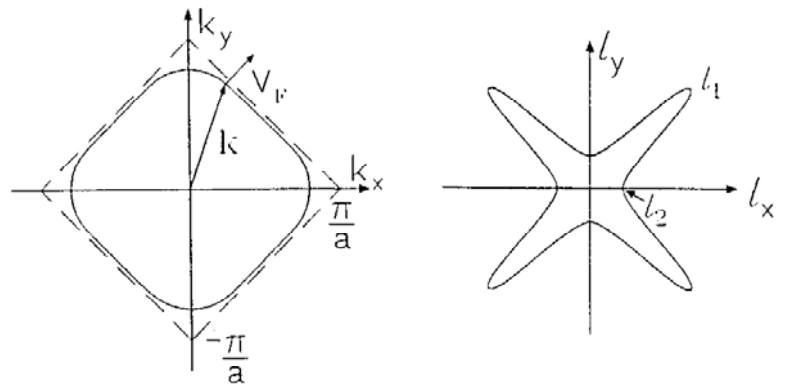


Figure 14 : Représentation schématique de la surface de Fermi et du libre parcours moyen pour une bande au voisinage du demi-remplissage [67].

- *Liquide de Fermi marginal*

Un des scénarios de liquide de Fermi marginal est basé sur les électrons itinérants 2D avec l'existence d'une singularité de Van Hove et des propriétés de "nesting" de la surface de Fermi pour une bande à moitié remplie [73]. La diffusion électron-électron correspond à des

fluctuations de spins près d'une instabilité d'onde de densité de spin autour de  $\mathbf{Q}(\pi/2, \pi/2)$  qui est une propriété de "nesting" parfait.

La dépendance linéaire de la résistivité avec la température est obtenue à haute température due aux fluctuations des spins, tandis qu'à basse température les fluctuations diminuent et un comportement de liquide de Fermi classique est rétabli. Cette température de passage est liée au potentiel chimique  $\mu$  qui détermine la déviation par rapport à un "nesting" parfait et elle est d'autant plus élevée que la concentration en porteurs est importante.

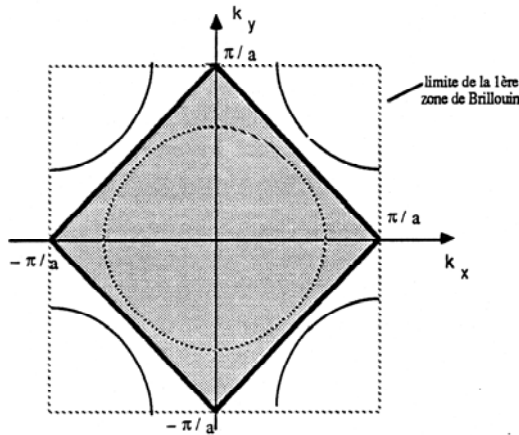


Figure 15 : Surface de Fermi dans l'approximation des liaisons fortes pour un réseau plan carré : bande plus qu'à moitié remplie (—), bande à moitié remplie (---) et bande moins qu'à moitié remplie (---). Pour une bande à moitié remplie, les points  $(\pm\pi/a, 0)$  et  $(0, \pm\pi/a)$  déterminent une singularité de Van Hove dans la densité d'états au niveau de Fermi [74].

Dans un autre modèle [75], le diagramme de phase proposé est présenté sur la figure 16, à droite. La partie centrale (région "1") de ce modèle de liquide de Fermi marginal [76] est une approche phénoménologique avec l'échelle de basse énergie caractérisée par l'existence d'un point critique près de l'état optimal. A droite, dans la région surdopée, un passage est attendu vers le modèle de liquide de Fermi classique. A gauche, dans la région sous-dopée, un passage est suggéré vers une phase "4" où l'état fondamental est représenté par des courants orbitaux à 4 plaquettes par cellule unité (figure 16, à gauche). Cette ligne correspond à l'ouverture du "pseudogap" tandis que la ligne qui sépare la région "4" de la région "2" correspond au passage d'un comportement métallique ( $dp/dT > 0$ ) vers un comportement semi-conducteur ( $dp/dT < 0$ ) de la résistivité. La région "4" est fortement dépendante du désordre dans le système.

Le liquide de Fermi marginal est basé sur une réponse anormale de spin et de charge. Le poids spectral des quasiparticules tend vers zéro de façon logarithmique près du niveau de Fermi à basse température et basse énergie. La variation linéaire de la résistivité en  $T$  s'obtient directement à partir des quasiparticules liées à l'échange des fluctuations de spin et de charge.

Dans ce modèle [77], l'effet Hall a été considéré en présence de diffusion magnétique oblique ("skew scattering") des électrons par des moments magnétiques locaux qui dans un champ magnétique donnent une diffusion sur la surface de Fermi différente selon l'orientation du champ magnétique [78]. Il suppose l'existence des fluctuations de courants "chiraux" qui par couplage avec les électrons provoque un diffusion oblique dépendant du champ avec un temps de relaxation  $\tau_{skew}^{-1} \sim H/T$ . L'angle de Hall est déterminé par  $\tau_H^{-1} = \tau_{tr}/\tau_{skew} \sim T^2$ , mais si le temps de relaxation  $\tau_{tr}$  change en présence de désordre ou par diminution du nombre de porteurs, la dépendance en  $T^2$  n'est plus valable.

Les propriétés de transport ne sont pas évaluées dans la région "4", où apparaît la déviation de la résistivité par rapport à la loi linéaire en T.

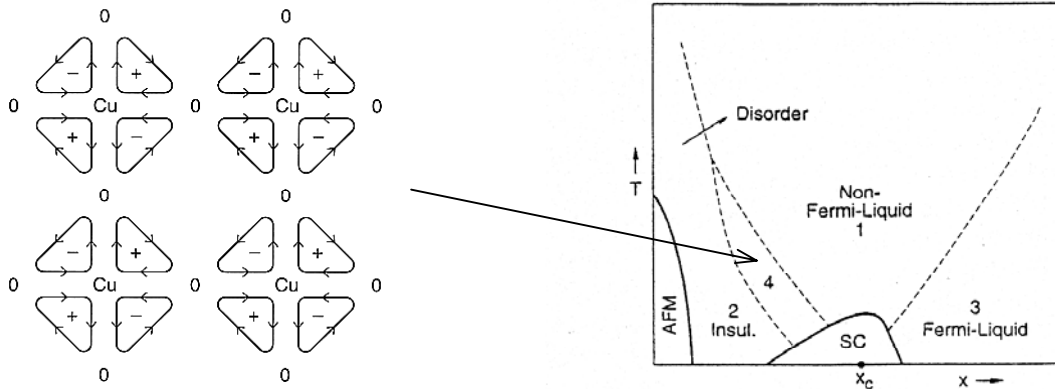


Figure 16 : A gauche, état fondamental dans la région "4" avec des courants orbitaux à 4 plaquettes. A droite, diagramme de phase proposé par C. M. Varma [75].

- *Liquide de Fermi presque antiferromagnétique*

Les modèles de liquide de Fermi presque antiferromagnétique sont basés sur la présence d'un ordre antiferromagnétique à longue portée dans la partie isolante, et l'effet de pseudogap est d'origine magnétique [79, 80, 81]. La motivation principale pour cette approche vient des mesures de RMN.

Dans un des modèles [79], on suppose qu'au voisinage des croisements de la surface de Fermi et de la zone magnétique de Brillouin, appelés *les points chauds* (figure 17, à gauche), les quasi-particules sont diffusées fortement par les fluctuations de spins par rapport aux autres parties de la surface de Fermi, *les points froids*. De cette façon, les temps de relaxation des quasiparticules sont très différents au voisinage des points chauds et froids avec

différentes évolutions en fonction de la température. L'interaction entre les quasiparticules est d'origine magnétique.

La résistivité est déterminée par les quasiparticules de toutes les régions de la surface de Fermi, ce qui mène à la loi linéaire de  $\rho(T)$  ( $\rho \sim g^2 (T/\omega_{SF}\xi_M)^2$ ) où  $g$  est le couplage entre quasiparticules,  $\omega_{SF}$  l'énergie des fluctuations de spins et  $\xi_M$  la longueur des corrélations magnétiques [82]) et la déviation par rapport à cette loi au-dessous d'une température  $T^*$  vient des quasi-particules des parties froides. L'angle de Hall est principalement déterminé par les quasi-particules des points froids ce qui conduit à une dépendance du temps de relaxation en  $T^2$ ,  $\cot g\Theta_H \sim (T/\omega_{SF}\xi_M)^2$  pour les températures  $T \ll \omega_{SF}\xi_M^2$  et la déviation par rapport à ce comportement apparaît si la condition précédente n'est plus valable.

Cette température  $T^*$  correspond au passage entre un régime de pseudogap faible ("weak pseudogap") et un régime de pseudogap fort ("strong pseudogap"). D'autre part  $T^*$  est plus faible qu'une autre température caractéristique  $T_{cr}$  correspondant au passage entre un régime de champ moyen ("mean field regime") et un régime de pseudogap faible, et déterminée à partir du maximum dans la susceptibilité uniforme.

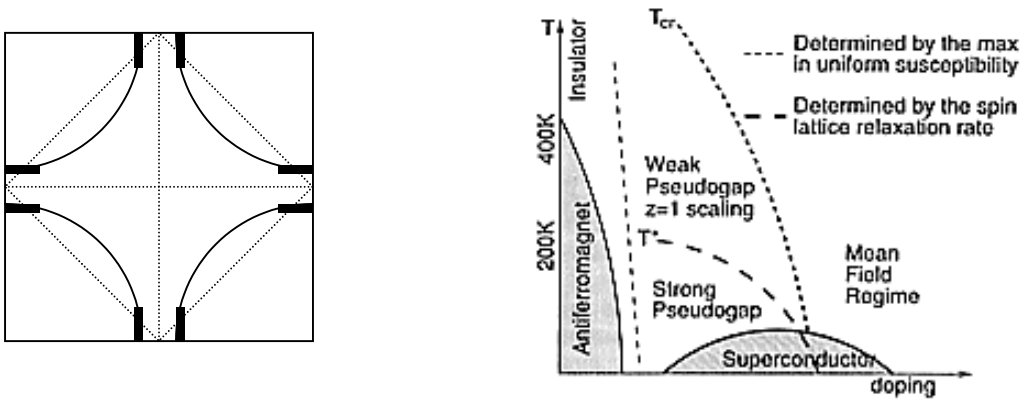


Figure 17 : A gauche, surface de Fermi (ligne continue) et zone de Brillouin magnétique (ligne en pointillés). Les points chauds sont les régions près du croisement de ces deux lignes. A droite, diagramme de phase [82].

## B2. Modèles avec des corrélations fortes

Une approche alternative par rapport à un modèle de quasi-particules vient de l'hamiltonien de Hubbard [61], où l'interaction dominante est la répulsion coulombienne<sup>18</sup>  $U_d$ . Les énergies caractéristiques du système, autres que  $U_d$ , sont les énergies de répulsion  $U_p$  et  $U_{pd}$ , l'énergie de transfert de charge  $\Delta$  et les énergies de saut entre les orbitales voisines  $t_{pd}$  et  $t_{pp}$ .

Une simplification de ce modèle en un modèle à une bande effective, valable à basse énergie, dans la limite  $U_d \rightarrow \infty$  (interdiction de la double occupation du site de cuivre), est le "modèle t-J" [83]. Le trou, qui occupe essentiellement l'orbitale "p" de l'oxygène [84], est couplé au spin du cuivre voisin, singulet de Zhang et Rice [85], ce qui a pour conséquence l'annihilation d'un spin du réseau antiferromagnétique. Le problème est réduit au déplacement d'un trou dans un réseau antiferromagnétique 2D. Les énergies caractéristiques du problème sont maintenant l'énergie  $t$  de saut du trou d'une orbitale "p" de l'oxygène à l'autre ce qui correspond au déplacement d'une lacune de spin au site voisin (habituellement l'interaction est réduite à l'interaction entre les premiers voisins) et l'énergie d'échange  $J$  entre les spins de cuivre. D'où l'hamiltonien :

$$H_{t-J} = \sum_{i,j,\sigma} (t c_{i\sigma}^+ c_{j\sigma} + J \bar{S}_i \bar{S}_j)$$

- *Séparation de spin et de charge*

A partir du modèle "t-J", en considérant un état à liaisons de valence résonnantes (RVB) [83] et en séparant les degrés de liberté de spin et de charge par la forte corrélation entre les électrons [86, 87], plusieurs scénarios ont été élaborés pour expliquer les propriétés de la résistivité et de l'effet Hall.

Dans un tel scénario, une des approches décrit les excitations de basse énergie par des modes collectifs d'oscillation de densité de charges (holons), et de densité de spins (spinons). Les holons portent la charge  $+e$  avec un spin nul tandis que les spinons possèdent un spin  $\frac{1}{2}$

---

<sup>18</sup> Energie qui consiste à placer deux électrons dans l'orbitale "d" du cuivre.

avec une charge nulle. Ces deux excitations constituent deux degrés de liberté du système ; le mouvement du holon est associé au terme cinétique  $t$  tandis que les fluctuations des spinons s'attachent à l'énergie d'échange  $J$  de l'hamiltonien " $t$ - $J$ ". Du côté sous-dopé, les spinons forment des paires au-dessous de  $T_D^{(0)}=T^*$  ce qui correspond à l'ouverture du gap de spin, puis la supraconductivité s'établit au-dessous  $T_c=T_{BE}^{(0)}$ , température de condensation des holons (figure 18).

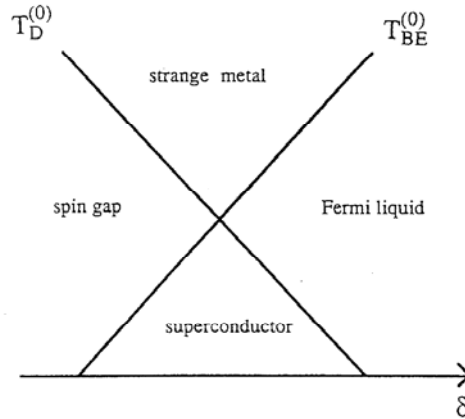


Figure 18 : Le diagramme de phase dans l'approximation du champ moyen dans le modèle  $t$ - $J$  [88].

Le mouvement des holons sous l'effet d'un champ électrique entraîne le mouvement des spinons dans un sens opposé. Le temps de relaxation des holons par des spinons est proportionnel au nombre de spinons excités ( $\sim kT$ ) ce qui mène à la dépendance linéaire en  $T$  de la résistivité ( $\tau_{tr}^{-1} \sim T$ ) [89]. Le temps de relaxation transversal  $\tau_H$ , responsable pour la réponse sous champ magnétique, est différent du temps de relaxation de transport. Il est déterminé principalement par des interactions entre les spinons eux-mêmes ce qui conduit à  $\tau_H^{-1} = cT^2$  où  $c$  est déterminé par la largeur de bande de spinons ( $\sim 1/J$ ) [90]. En présence d'impuretés magnétiques le temps de relaxation transversal a en plus un terme constant en température  $\tau_m$ . On a :  $\tau_H^{-1} = \tau_m + cT^2$  où  $\tau_m$  est proportionnel au nombre d'impureté ( $\tau_m \sim n_{scatt}$ ).

Dans la même approximation (champ moyen), la condensation des spinons au-dessous d'une température  $T_{SG}=T^*$  diminue la diffusion des holons par les spinons. La variation de la résistivité en  $T$  n'est plus linéaire et dans la limite de  $(T - T_{SG})/T_{SG} \ll 1$  peut s'exprimer par

$$\frac{\delta\rho}{\rho} = \left(\frac{T - T^*}{T^*}\right)^{1/2} \quad [91].$$



Lee et Nagaosa [92] ont considéré aussi les effets de la séparation spin-charge avec l'existence d'un couplage entre spinons et holons par un champ de jauge. Les interactions des holons avec le champ de jauge conduit à la variation linéaire de la résistivité en  $T$ .

A partir des résultats précédents, la formation des paires des spinons a été considérée en tenant compte du couplage entre les spinons d'un part et des holons d'autre part avec le champ de jauge [93]. Le gap de spin qui s'ouvre au-dessous de  $T^*$  a pour conséquence la suppression des fluctuations de champ de jauge et également la diminution de la diffusion des holons par ce dernier. La variation de la résistivité devient plus rapide par rapport à la loi linéaire en  $T$  et elle peut être décrite par l'expression suivante  $\rho(T) \propto T[1 - c(1 - T/T^*)^d]$ . Le paramètre  $c$  est fonction du dopage  $\delta$  et du rapport  $t/J$ , et  $d$  est un exposant critique qui introduit la déviation par rapport à la variation linéaire.

- *Rubans des charges*

La tendance des trous à s'agglomérer ensemble dans un milieu antiferromagnétique a été prévue théoriquement dès 1989 [94]. Les trous forment des rubans de charges (région riche en trous) qui séparent les régions antiferromagnétiques (région pauvre en trous) afin de diminuer le nombre de couplages antiferromagnétiques non satisfait. Cette idée de ségrégation de spins et de trous et différents types d'organisation des rubans de charges ont été considérés plus tard par S. A. Kivelson et al. [95]. Les propriétés de transport ont été également étudiées dans différents modèles [96, 97].

Le principal support de l'existence des rubans de charges vient de mesures de diffusion des neutrons. L'observation des fluctuations incommensurables aux positions  $(\pi/a(1\pm\delta), \pi/a)$  et  $(\pi/a, \pi/a(1\pm\delta))$  dans le système LSCO [98] et récemment YBCO [99] a suggéré une interprétation en terme d'ordre dynamique des charges. Les rubans de charges séparent les zones antiferromagnétiques avec une distance entre eux inversement proportionnelle à la valeur d'incommensurabilité  $\delta$ , qui augmente avec le dopage en trous.

Dans le modèle [96], la température caractéristique  $T^*$  correspond à la formation des rubans de charges dans les plans  $\text{CuO}_2$ , séparés par les zones antiferromagnétiques (figure 19, à droite). Les propriétés de transport sont gouvernées par la diffusion d'origine magnétique. Le pseudogap observé correspond à un gap de spin,  $\Delta$ , qui se forme dans un ruban 1D. La

résistivité est contrôlée par l'inverse de la conductivité quantique avec la longueur de diffusion inélastique  $L_\phi$  qui est déterminée par la longueur de corrélation magnétique (figure 19, à gauche). A basse température, le désordre perturbe les rubans des charges ce qui entraîne le rétablissement du régime 2D.

A haute température, au-dessus de  $T^*$ , on se trouve dans un régime de Heisenberg 2D [100] avec  $\sigma_{2D} \cong \frac{e^2}{\hbar} \ln \frac{\xi_{m2D}}{\ell}$ , où  $\ell$  représente le libre parcours moyen, et les corrélations magnétiques de courte portée sont données par  $\xi_{m2D} = \frac{e\hbar c}{8J} (1 - T/2J) \exp(J/T)$  [101]. Dans ce cas la variation linéaire de la résistivité apparaît à partir du terme exponentiel dans la longueur de diffusion.

Pour les températures  $T < T^*$ , la conductivité est dominée par le transport quantique 1D dans les rubans des charges avec  $\sigma \cong \frac{e^2}{\hbar} \xi_{m1D}$  où la longueur des corrélations pour les échelles de spin quantiques est donnée par  $(\Delta \xi_{m1D})^{-1} = 2/\pi + A(T/\Delta) \exp(-\Delta/T)$  (la valeur de  $A=1,7$  vient de simulations Monte Carlo) [102]. La résistivité au-dessous de  $T^*$  peut être décrite par :  $\rho(T) = \rho_0 + CT/\Delta \exp(-\Delta/T)$  avec  $C = \rho_0 A \pi / 2$ .

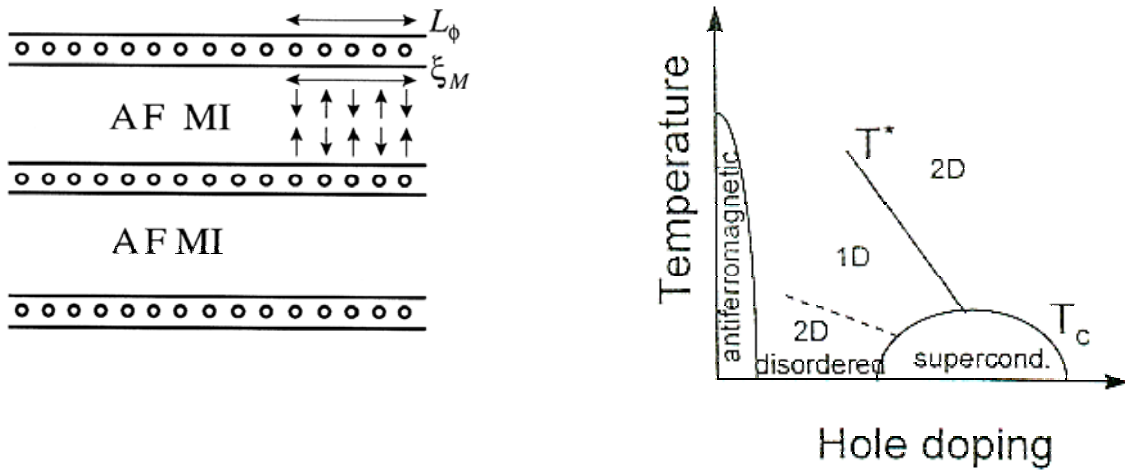


Figure 19 : A gauche, formation des rubans des charges, séparés par des régions antiferromagnétiques d'un isolant de Mott (AFMI) [103]. A droite, diagramme de phase prévu par Moshchalkov [103].

### B3. D'autres approches

- *Couplage entre le transport selon c et dans plan (a,b)*

La variation linéaire en T de la résistivité dans le plan (a,b) a été expliquée en relation avec le comportement de la résistivité selon l'axe c, gouvernée par l'effet tunnel résonnant par les états localisés des plans BiO (partie isolante) [104]. L'échange libre de charges selon l'axe c est empêché par l'énergie de Coulomb entre différents sites  $\Delta U^*$  ce qui mène à un comportement activé de  $\rho_c$  par les excitations de plasmons à l'interface des plans  $\text{CuO}_2$  et de la partie isolante. Les quasiparticules dans le plan (a,b) diffusent fortement du fait de l'échange perpendiculaire des charges par les états localisés de sorte que la longueur de diffusion dans le plan (a,b) est liée au transport selon l'axe c :  $l_{ab}(T) \sim 1/\rho_c(T)$ . Ce résultat connecte le pseudogap dans plan (a,b)  $T^*$  et l'échange de charges selon l'axe c, par la relation :  $\Delta U^* \approx kT^*$ . Par le dopage en oxygène les états localisés dans les plans BiO augmentent en taille ce qui diminue l'énergie de Coulomb  $\Delta U^*$  jusqu'à  $\Delta U^* < T_c$  du côté surdopé.

Pour  $T < \Delta U^*$ , l'échange de charges selon l'axe c, par l'effet tunnel résonnant, suit un comportement de la forme :  $\rho_c(T < T^*) \sim \exp(T^*/T)$  qui entraîne un comportement activé de la résistivité dans le plan (a,b),  $\rho_{ab} \sim \exp(-T^*/T)$ . Dans l'autre cas,  $T > \Delta U^*$ , l'échange de charges selon l'axe c est ouvert, ce qui mène à une loi linéaire en fonction de T de la résistivité dans le plan (a,b). L'échange selon l'axe c devrait diminuer avec l'application d'un champ magnétique ce qui doit diminuer la diffusion dans le plan (a,b) au-dessous de  $T^*$ .

Pour terminer, on résume les expressions analytiques proposées par différents modèles pour décrire la variation de la résistivité dans le plan (a,b) en fonction de la température au-dessous de  $T^*$  (tableau 2). Les expressions ci-dessous seront utilisées pour la comparaison avec nos résultats présentés dans la suite.

Tableau 2 : Les prévisions théoriques de la variation de la résistivité au-dessous de  $T^*$

modèle	$\rho(T)$	scénario
"t-J" champ moyen [91]	$\frac{\delta\rho}{\rho} = \left(\frac{T-T^*}{T^*}\right)^{1/2}$	<i>diffusion des holons par des spinons</i>
"t-J" [93]	$\rho(T) \propto T[1 - c(1 - T/T^*)^d]$	<i>diffusion des holons par des fluctuations de champs de jauge</i>
rubans de charge [96]	$\rho(T) \propto \rho_0 + cT \exp(-\Delta / T)$	<i>transport quantique 1D dans les rubans de charges, avec ouverture du gap de spin</i>
couplage selon c et dans plan (a,b) [104]	$\rho(T) = \rho_0 + b \exp(-\Delta U^*/T)$	<i>diffusion des quasi-particules dans le plan (a,b) par l'échange de charges selon l'axe c</i>

## Références du chapitre I

---

- [1] Pour revue récente voir T. Timusk et B. Statt, Rep. Prog. Phys. **62**, 61 (1999).
- [2] Pour revue récente voir M. Imada, A. Fujimori, Y. Tokura, Rev. Mod. Phys. **70**, 1039 (1998).
- [3] P. W. Anderson, Phys. Rev. **115**, 2 (1959).
- [4] W. E. Pickett, Rev. Mod. Phys. **61**, 433 (1989).
- [5] A. Aharony, R. J. Birgeneau, A. Coniglio, M. A. Kastner, H. E. Stanley, Phys. Rev. Lett. **60**, 1330 (1988).
- [6] H. Kamerlingh Onnes, Comm. Phys. Lab. Leiden. **120B**, 3 (1911).
- [7] W. Meissner et R. Ochsenfeld, Natur-Wissenschaften **21**, 787 (1933).
- [8] A. Brown, M. W. Zemansky et H. A. Boorse, Phys. Rev. **92**, 52 (1953) ; N. E. Phillips, Phys. Rev. **134**, 385 (1964).
- [9] R. E. Glover et M. Tinkham, Phys. Rev. **104**, 844 (1956) ; P. L. Richards et M. Tinkham, Phys. Rev. **119**, 575 (1959).
- [10] V. L. Ginzburg et L. D. Landau, J.E.T.P. **20**, 1064 (1950).
- [11] J. Bardeen, L. N. Cooper et J. R. Schrieffer, Phys. Rev. **108**, 1175 (1957).
- [12] " Superconductivity of Metals and Alloys", P. G. de Gennes, ed. W.A. Benjamin Incorp. New. York (1966); "Introduction to Superconductivity", M. Thinkam, ed. Mc Graw-Hill International Edition (1996); "La supraconductivité des métaux, des alliages et des films minces", J.-P. Burger, ed. Masson et Cie (1974).
- [13] L. P. Gor'kov, Sov. Phys. JETP **36**, 1364 (1959).
- [14] J. G. Bednorz et K. A. Müller, Z. Phys. B **64**, 189 (1986).
- [15] H. Maeda, Y. Tanaka, M. Fukotomi et T. Asano, Jap. J. Appl. Phys. **27**, L209 (1988).
- [16] D. Esteve , J. M. Martinis, C. Urbina, M. H. Devoré, G. Collin, P. Monod, M. Ribault et A. Revcolevschi, Europhys. Lett. **3**, 1237 (1987).
- [17] C. E. Gough, M. S. Colclough, E. M. Forgan, R. G. Jordan, M. Keene, C. M. Muirhead, A. I. M. Rae, N. Thomas, J. S. Abell et S. Sutton, Nature **326**, 855 (1987).
- [18] P. H. Kes, C. J. van der Beek, M. P. Maley, M. E. Henry, Phys. Rev. Lett. **67**, 2385 (1992). R. J. Drost, C. J. van der Beek, H. W. Zandbergen, M. Konczykowski, A. A. Menovsky et P. H. Kes, Phys. Rev. B **59** 13612 (1999).
- [19] M. Akamatsu, L. X. Chen, H. Ikeda et R. Yoshizaki, Physica C **235-240**, 1619 (1994).

- [20] J. Bouvier, N. Bontemps, A. C. Boccara, S. Labdi, et H. Raffy, *Journal of The Less Common Metals* **164-165**, 1092 (1990).
- [21] C. C. Tsuei, J. R. Kirtley, C. C. Chi, L. S. Yu-Jahnes, A. Gupta, T. Shaw, J. Z. Sun et M. B. Ketchen, *Phys. Rev. Lett.* **73** 593 (1994).
- [22] J. R. Kirtley, C. C. Tsuei, H. Raffy et Z. Z. Li, A. Gupta, J. Z. Sun et S. Megtert, *Europhys. Lett.* **36**, 707 (1996).
- [23] J. M. Harris, Z.-X. Shen, P. J. White, D. S. Marshall et M. C. Schabel, *Phys. Rev. B* **54**, 15665 (1996).
- [24] C. Renner, B. Revaz, Y.-Y. Genoud, K. Kadowaki, O. Fischer, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 149 (1998).
- [25] N. Miyakawa, P. Guptasarma, J. F. Zasadzinski, D. G. Hinks et K. E. Gray, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 157 (1998).
- [26] N. Hass, *J. Supercond.* **5**, 191 (1992); Y. Yagil, *Physica C* **250**, 59 (1995) ; D. Racah et G. Deutscher, *Physica C* **263**, 218 (1996); S. Sinha et K. W. Ng, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 1296 (1998).
- [27] R. Nemetschek, M. Opel, C. Hoffman, P. F. Müller, R. Hackl, H. Berger, L. Forro, A. Erb et E. Walker, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 4837 (1997).
- [28] X. K. Chen, J. C. Irwin, H. J. Trodahl, T. Kimura et K. Kishio, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 3290 (1994) ; A. Sacuto, R. Combescot, N. Bontemps, P. Monod, V. Viallet et D. Colson, *Europhys. Lett.* **39**, 207 (1997).
- [29] C. Panapogoulos, J. R. Cooper et T. Xiang, *Phys. Rev. B* **57**, 13422 (1998).
- [30] G. Deutscher, *Nature* **397**, 410 (1999).
- [31] J. L. Tallon, J. W. Loram, G. V. M. Williams, J. R. Cooper, I. R. Fisher, J. D. Johnson, M. P. Staines et C. Bernhard, *Phys. Stat. Sol. (b)***215**, 531 (1999) ; (cond/mat 9911157).
- [32] W. W. Warren Jr, R. E. Wajstedt, G. F. Brennert, R. J. Cava, R. Tycko, R. F. Bell et G. Dabbagh, *Phys. Rev. Lett* **62**, 1193 (1989) ; M. Horvatić, P. Ségransan, C. Berthier, Y. Berthier, P. Butaud, J. Y. Henry, M. Couach et J. P. Chaminade, *Phys. Rev. B* **39**, 7322 (1989).
- [33] M. Takigawa, A. Reyes, P. C. Hammel, J. D. Thompson, R. H. Heffner, Z. Fisk, K. C. Att, *Phys. Rev. B* **43**, 247 (1991).
- [34] R. E. Walstedt, R. F. Bell et D. B. Mitzi, *Phys. Rev. B* **44**, 7760 (1991).

- [35] K. Gorny, O. M. Vyaselev, J. A. Martindale, V. A. Nandor, C. H. Pennington, P. C. Hammel, W. L. Hults, J. L. Smith, P. L. Kuhns, A. P. Reyes et W. G. Moulton, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 177 (1999).
- [36] H. Alloul, T. Ohno, P. Mendels, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 1700 (1989).
- [37] M. Oda, K. Hoya, R. Kubota, C. Manabe, N. Momono, T. Nakano et M. Ido, *Physica C* **281**, 135 (1997).
- [38] J. Rossat-Mignod, L. P. Regnault, C. Vettier, P. Burlet, Y. Y. Nenry et G. Lapertot, *Physica B* **169**, 58 (1991) ; J. M. Tranquada, P. M. Gehring, G. Shirane, S. Shamoto et M. Sato, *Phys. Rev. B* **46**, 5561 (1992).
- [39] H. F. Fong, P. Bourges, Y. Sidis, L. P. Regnault, A. Ivanov, G. Gu, N. Koshizuka et B. Keimer, *cond-mat/9902262* (1999).
- [40] H. Ding, T. Yokota, J. C. Campuzano, T. Takahashi, M. Randeria, M. R. Norman, T. Mochiku, K. Kadowaki et J. Giapintzakis, *Nature* **382**, 51 (1996).
- [41] A. G. Loeser, Z.-X. Shen, D. S. Dessau, D. S. Marshall, C. H. Park, P. Fournier et A. Kapitulnik, *Science* **273**, 325 (1996).
- [42] D. S. Marchall, D. S. Dessau, A. G. Loeser, C.-H. Park, A. Y. Matsuura, J. N. Eckstein, I. Bozović, P. Fournier, A. Kapitulnik, W. E. Spicer et Z.-X. Shen, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 4841 (1996).
- [43] M. R. Norman, H. Ding, M. Randeria, J. C. Campuzano, T. Yokoya, T. Takeuchi, T. Takahashi, T. Mochiku, K. Kadowaki, P. Guptasarma et D. G. Hinks, *Nature* **392**, 157 (1998).
- [44] H. Ding, M. R. Norman, T. Yokoya, T. Takeuchi, M. Randeria, J. C. Campuzano, T. Takahashi, T. Mochiku et K. Kadowaki, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 2628 (1997).
- [45] J. C. Campuzano, H. Ding, M. R. Norman, M. Randeria, H. M. Fretwell, A. Kaminski, J. Mesot, T. Takeuchi, T. Sato, T. Yokoya, T. Takahashi, T. Mochiku, K. Kadowaki, P. G. Guptasarma, D. G. Hinks, Z. Konstantinović, Z. Z. Li et H. Raffy, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 3709 (1999).
- [46] J. R. Harris, P. J. White, Z.-X. Shen, H. Ikeda, R. Yoshizaki, H. Eisaki, S. Uchida, W. D. Si, J. W. Xiong, Z.-X. Zhao et D. S. Dessau, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 143 (1997).
- [47] J. W. Loram, K. A. Mirza, J. R. Cooper, W. Y. Liang, J. M. Wade, *J. of Superconductivity* **7**, 243 (1994) ; J. W. Loram, K. A. Mirza, K. A. Cooper et J. L. Tallon, *Physica C* **282-287**, 1405 (1997).
- [48] H. J. Tao, F. Lu, E. J. Wolf, *Physica C* **282-287**, 1507 (1997).

- [49] A. V. Puchkov, D. N. Basov et T. Timusk, *J. Phys.: condens. Matter* **8**, 10049 (1996).
- [50] A. V. Puchkov, P. Fournier, D. N. Basov, T. Timusk, A. Kapitulnik et N. N. Kolesnikov, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3212 (1996).
- [51] C. C. Homes, T. Timusk, R. Liang, D. A. Bonn et W. N. Hardy, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1645 (1993).
- [52] F. Slakey, M. V. Klein, J. P. Rice et D. Ginsburg, *Phys. Rev. B* **42**, 2643 (1990).
- [53] H. Takagi, B. Batlogg, H. L. Kao, J. Kwo, R. J. Cava, J. J. Krajewski and W. F. Peck Jr., *Phys. Rev. Lett.* **69**, 2975 (1992) ; B. Bucher, P. Steiner, J. Karpinski, E. Kaldis and P. Wachter, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 2012 (1993) ; T. Ito, K. Takenaka et S. Uchida, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 3995 (1993) ; A. Carrington, D. J. C. Walker, A. P. Mackenzie and J. R. Cooper, *Phys. Rev. B* **48** 13051 (1993) ; H. Y. Hwang, B. Batlogg, H. Takagi, H. L. Kao, J. Kwo, R. J. Cava, J. J. Krajewski and W. F. Peck Jr., *Phys. Rev. Lett.* **72**, 2636 (1994).
- [54] T. Watanabe, T. Fujii et A. Matsuda, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 2113 (1997).
- [55] Y. Nakamura et S. Uchida, *Phys. Rev. B* **47**, 8369 (1993)
- [56] K. Takenaka, K. Mizuhashi, H. Takagi et S. Uchida, *Phys. Rev. B* **50**, 6534 (1994).
- [57] T. Ito, K. Takenaka et S. Uchida, *Phys. Rev. Lett.* **70** 3995 (1993).
- [58] B. Wuyts, V. V. Moshchalkov et Y. Bruynseraede, *Phys. Rev. B* **51** 6115 (1995); B. Wuyts, V. V. Moshchalkov et Y. Bruynseraede, *Phys. Rev. B* **53** 9418 (1996).
- [59] S. D. Obertelli, J. R. Cooper et J. L. Tallon, *Phys. Rev. B* **46** 14928 (1992).
- [60] Y. Dumont, thèse Université Paris XI (1996).
- [61] V. J. Emery, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 2794 (1987).
- [62] N. P. Ong, *Phys. Rev. B* **43**, 193 (1991).
- [63] M. Gurvitch et A. T. Fiory, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 1337 (1987).
- [64] S. Martin, A. T. Fiory, R. M. Fleming, L. F. Schneemeyer et J. V. Waszczak, *Phys. Rev. B.* **41**, 846 (1990).
- [65] S. J. Collocott, R. Driver et C. Andrikidis, *Physica C* **173**, 117 (1991); M. K. Yu et J. P. Franck, *Physica C* **223**, 57 (1994); Y. Yamada, T. Okamoto, U. Mizutani et I. Hirabayashi, *Physica C* **232**, 269 (1994).
- [66] A. Davidson, P. Santhanam, A. Palevski et M. J. Brady, *Phys. Rev. B* **38**, 2828 (1988); A. T. Fiory et G. S. Grader, *Phys. Rev. B* **38** 9198 (1998).
- [67] C. Kendziora, D. Mandrus et L. Mihaly, *Phys. Rev. B* **46**, 14297 (1992).
- [68] A. Carrington, A. P. Mackenzie, C. T. Lin et J. R. Cooper, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 2855 (1992).



- [69] Ex. revue : K. Levin, J. H. Kim, J. P. Lu et Q. Si, *Physica C* **175**, 449 (1991).
- [70] A. Kampf et J. R. Schrieffer, *Phys. Rev. B* **41**, 6399 (1990) ; A. Viroszek et J. Ruvalds, *Phys. Rev. B* **42**, 4064 (1990).
- [71] J. Labbé et J. Bok, *Europhys. Lett.* **3**, 1225 (1987) ; J. Friedel, *J. Phys. France* **48**, 1787 (1987) ; J. Friedel, *J. Phys. Condens. Matter.* **1**, 7757 (1989).
- [72] C. C. Tsuei, D. M. Newns, C. C. Chi et P. C. Pattnaik, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 2724 (1990) ; P. C. Pattnaik, C. L. Kane, D. M. Newns et C. C. Tsuei, *Phys. Rev. B* **45**, 5714 (1990).
- [73] S. Charfi-Kaddour, R. J. Tarento et M. Héritier, *J. Phys. I France* **2**, 1853 (1992) ; A. Ben Ali, S. Charfi-Kaddour, R. Louati, R. Bennaceur et M. Héritier, *Physica C* **282-287**, 1801 (1997).
- [74] M. Héritier, "Transitions de phase électroniques : magnétisme itinérant , supraconductivité", D.E.A. de Physique des Solides (1994-1995).
- [75] C. M. Varma, *Phys. Rev. B* **55**, 14554 (1997) ; C. M. Varma, *Phys. Rev. Lett.*, **83**, 3538 (1999).
- [76] C. M. Varma, P. B. Littlewood, S. Schmitt-Rink, E. Abrahams et A. E. Ruckenstein, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 1996 (1989) ; E. Abrahams, *J. Phys. I France* **6**, 2191 (1996).
- [77] G. Kotliar, A. Sengupta et C. M. Varma, *Phys. Rev. B* **53**, 3573 (1996).
- [78] J. J. Rhyne, *Phys. Rev.* **172**, 523 (1968); A. Fert, *Physica B* **86-88**, 491 (1977).
- [79] A. Millis, H. Monien et D. Pines, *Phys. Rev. B* **42**, 167 (1990).
- [80] Bulut, D. Hone, D. J. Scalapino, N. E. Bickers, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2723 (1990); N. Bulut, D. W. Hone, D. J. Scalapino, N. E. Bickers, *Phys. Rev. B* **41**, 1797 (1990).
- [81] M. J. Lercher, J. M. Wheatley, *Phys. Rev. B* **52**, 7038 (1995).
- [82] B. P. Stojkovic et D. Pines, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 811 (1996) ; B. P. Stojkovic et D. Pines, *Phys. Rev. B* **55**, 8576 (1997).
- [83] P. W. Anderson, *Science* **235**, 1196 (1987).
- [84] J. M. Tranquada, S. M. Heald et A. R. Moodenbaugh, *Phys. Rev. B* **36**, 5263 (1987); N. Nücker, J. Fink, J. C. Fuggle, P. J. Durham et W. M. Temmerman, *Phys. Rev. B* **37**, 5158 (1998).
- [85] F. C. Zhang et T. M. Rice, *Phys. Rev. B* **37**, 3759 (1988).
- [86] G. Baskaran, Z. Zou et P. W. Anderson, *Solid State Commun.* **63**, 973 (1987).
- [87] S. A. Kivelson, D. S. Rokhsar et J. P. Sethna, *Phys. Rev. B* **35**, 8865 (1987).
- [88] N. Nagaosa et P. A. Lee, *Phys. Rev. B* **45**, 966 (1992).
- [89] P. W. Anderson et Z. Zou, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 132 (1988).

- [90] P. W. Anderson, Phys. Rev. Lett. **67**, 2092 (1991).
- [91] M. Gabay et P. Lederer, Phys. Rev. B **47**, 14462 (1993); M. Gabay et P. Lederer, Physica C **209**, 117 (1993).
- [92] N. Nagaosa et P. A. Lee, Phys. Rev. Lett. **64**, 2450 (1990); P. A. Lee et N. Nagaosa, Phys. Rev. B **46**, 5621 (1992).
- [93] M. Onoda, I. Ichinose et T. Maui, Jour. Phys. Soc. Jap **67** 2606 (1998); M. Onoda, I. Ichinose et T. Matsui, cond-mat/9903243 (1999).
- [94] D. Poilblanc et T. M. Rice, Phys. Rev. B **39**, 9749 (1989); J. Zaanen et O. Gunnarsson, Phys. Rev. B **40**, 7391 (1989); H. J. Schulz, J. Phys. France **50**, 2833 (1989).
- [95] S. A. Kivelson, E. Fradkin et V. J. Emery, Nature **393**, 550 (1998).
- [96] V. V. Moshchalkov, L. Trappeniers et J. Vanacken, Europhys. Lett. **46** 75 (1999); L. Trappeniers, J. Vanacken, P. Wagner, G. Teniers, S. Curras, J. Perret, P. Martinoli, J. -P. Locquet, V. V. Moshchalkov et Y. Bruynseraede, J. Low Temp. Phys. **117**, 681 (1999).
- [97] C. C. Tsuei et T. Doderer, European Phys. Jour. B **10**, 257 (1999).
- [98] J. M. Tranquada B. J. Sternlieb, J. D. Axe, Y. Nakamura et S. Uchida, Nature **375**, 561 (1995) ; J. M. Tranquada, Phys. Rev. Lett. **78**, 338 (1997); G. Aeppli, T. E. Mason, S. M. Hayden, H. A. Mook et J. Kulda, Science **278**, 1432 (1997).
- [99] H. A. Mook, P. Dai, S. M. Hayden, G. Aeppli, T. G. Perring et F. Dogan, Nature **395**, 580 (1998); H. A. Mook, P. Dai, F. Dogan, R. D. Hunt, Nature **404**, 729 (2000).
- [100] V. V. Moshchalkov, Solid State Commun. **86**, 715 (1993).
- [101] S. Chakravarty, B. I. Halperin, D. R. Nelson, Phys. Rev. B **39**, 2344 (1989); P. Hasenfratz, F. Niedermayer, Physics Lett. B **268**, 231 (1991).
- [102] M. Greven, R. J. Birgeneau, U. -J. Wiese, Phys. Rev. Lett. **77**, 1865 (1996).
- [103] V. V. Moshchalkov, L. Trappeniers et J. Vanacken, J. Low Temp. Phys. **117**, 1283 (1999).
- [104] J. Halbritter, J. Supercond. **11** 231 (1998).

## **Chapitre II : Méthodes expérimentales**

Dans ce chapitre on va présenter la structure cristallographique des phases  $n=1$  et  $2$  du composé  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+4}$ , synthétisées sous forme de films, utilisés pour l'étude des propriétés de transport électronique en fonction du dopage en oxygène. En même temps, on va présenter les méthodes de caractérisation des films, la procédure utilisée pour le changement de la teneur en oxygène ainsi que les techniques expérimentales pour l'étude du transport électrique.

Les films minces sont bien adaptés pour effectuer les mesures du transport électronique dans le plan (a,b). L'axe cristallographique **c** est orienté perpendiculairement aux plans du substrat : les plans conducteurs  $\text{CuO}_2$  sont parallèles à celui-ci. Les films sont epitaxiés. La direction des axes **a** et **b** est imposée par celle des axes du substrat. La gravure mécanique ou chimique permet de réaliser une géométrie de conducteur avec une piste bien définie qui d'une part permet la mesure de la résistance pour une distribution connue du courant et d'autre part permet une mesure de l'effet Hall avec une contribution minimale de la magnéto-résistance.

Le changement de teneur en oxygène du film se fait de façon plus rapide et nécessite des températures moins élevées que pour les monocristaux ou les céramiques qui mettent en jeu des volumes plus grands. Les propriétés électroniques d'un même film peuvent être changées de façon réversible dans un grand intervalle de dopage entre le comportement métallique et le comportement isolant.

Les mesures de transport effectuées sont la mesure de la résistance, de l'effet Hall et de la magnéto-résistance (LCMI) en fonction de la température ( $4,2 \leq T \leq 300$  K).

## A. La famille BiSrCaCuO

La famille des composés  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+4}$  fait partie des supraconducteurs à haute température critique à base de plans  $\text{CuO}_2$ .

Schématiquement, leur structure est lamellaire, composée de différents plans qui sont empilés successivement selon l'axe cristallographique  $c$  perpendiculaire aux plans  $(a,b)$  (figure 1) :

- les plans  $\text{CuO}_2$ , responsables des propriétés supraconductrices
- les doubles plans  $\text{BiO}$ , jouant le rôle de réservoir de charges
- les plans supplémentaires  $\text{SrO}$  assurant la stabilité de la structure.

Le nombre de plans  $\text{CuO}_2$  varie selon la valeur de  $n$  qui peut prendre les valeurs 1, 2 et 3 par demi-cellule. A partir de  $n=2$ , les plans des atomes de  $\text{Ca}$  s'intercalent entre les plans voisins de  $\text{CuO}_2$ . La structure lamellaire implique une forte anisotropie des propriétés électroniques.

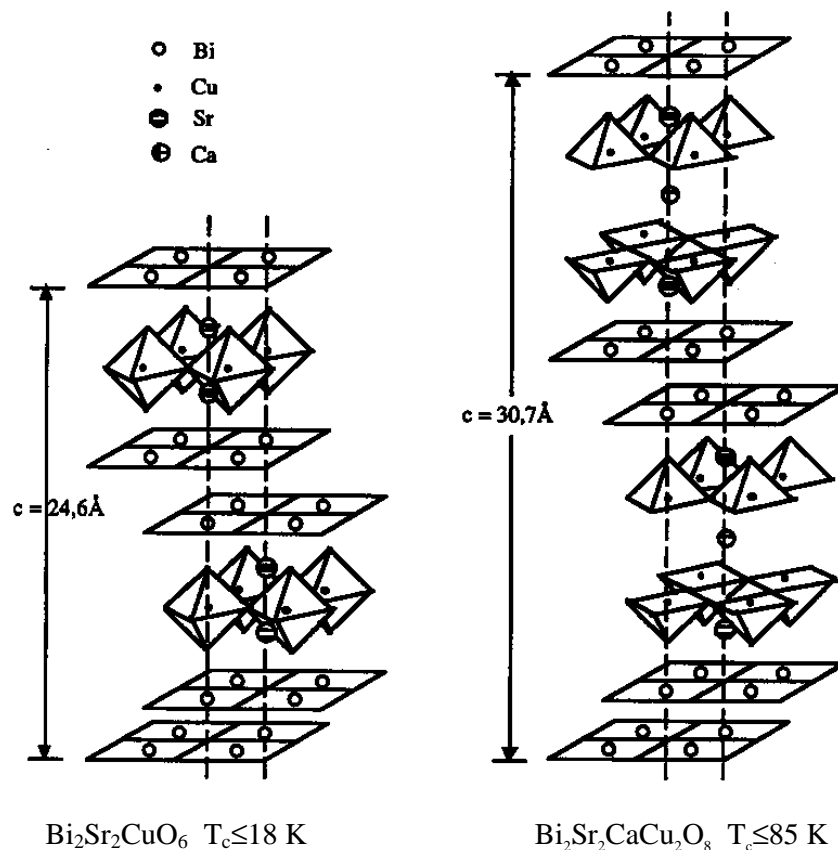


Figure 1 : Schéma de la structure cristallographique des phases Bi-2201 et Bi-2212 [4].

Dans cette étude, on s'intéresse principalement aux phases avec un et deux plans  $\text{CuO}_2$ , nommées respectivement Bi-2201 ( $n=1$ ) et Bi-2212 ( $n=2$ ) d'après leur composition cationique.

La structure des composés dans les deux cas est orthorhombique avec des paramètres cristallins  $a$  et  $b$  très proches, alors que le paramètre  $c$  varie selon la phase. Les paramètres cristallins, principalement  $c$ , varient en fonction de la teneur en oxygène (cf. II.D3) ainsi qu'en fonction de la composition cationique. Leurs valeurs moyennes au voisinage de l'état optimal sont données dans le tableau 1. La structure est orthorhombique avec une symétrie proche à  $Fmmm$  [1].

Notons enfin qu'une différence supplémentaire entre les axes  $\mathbf{a}$  et  $\mathbf{b}$  vient de la modulation incommensurable selon l'axe  $\mathbf{b}$  (déplacement atomique de période  $\sim 4,26b$  ( $q_b \sim 0,23$ ) [2, 3] et  $4,76b$  ( $q_b \sim 0,21$ ) [4] respectivement pour Bi-2201 et Bi-2212 pour les états au voisinage de l'état optimal) dans le plan  $\text{BiO}$ . Le vrai groupe de symétrie qui prend en considération ces modulations apparaît beaucoup plus petit [5].

Tableau 1 : Valeurs des paramètres cristallins selon la phase pour l'état optimal<sup>1</sup> [1,2,5].

phase	a (Å)	b (Å)	c (Å)	$T_{c(\text{max})}$ (K)
Bi-2201	5.362	5.374	24.6	18
Bi-2212	5.414	5.418	30.7	80-90
Bi-2223	5.414	5.418	37.1	110

Dans cette étude, la phase Bi-2201 étudiée est  $\text{Bi}_2\text{Sr}_{1,6}\text{La}_{0,4}\text{CuO}_y$  (nommée Bi(La)-2201) où un certain nombre d'atomes de strontium a été substitué par des atomes de lanthane. Cette substitution partielle a été choisie pour augmenter la température critique maximale  $T_{c\text{max}}$  (30 K au lieu de 18 K) et de cette façon élargir l'intervalle d'étude en  $T$  de la région sous-dopée.

<sup>1</sup> Les valeurs de  $a$  et  $b$  ont été obtenues à partir de monocristaux et de céramiques et celles de  $c$  et  $T_{c\text{max}}$  à partir de nos films.

Il faut remarquer aussi qu'avec différents rapports entre lanthane et strontium on peut varier les propriétés électroniques depuis un état isolant complet [6] jusqu'à un état supraconducteur avec  $T_{cmax}=30$  K (tableau 2). Par contre, la substitution de  $Sr^{2+}$  par  $La^{3+}$  en réduisant le nombre de trous rend le système plus sous-dopé et empêche l'obtention des états purement métalliques accessibles dans la phase Bi-2201 pure.

Tableau 2 : Valeurs des paramètres cristallins selon le taux de lanthane<sup>1</sup> [2,3,7,8].

$Bi_2Sr_{2-x}La_xCuO_y$	a (Å)	b (Å)	c (Å)	$T_{c(max)}$ (K)
x=0	5.362	5.374	24.7	18
x=0.4	5.373	5.377	24.47	30
x=0.9	~5.41	~5.41	24.16	isolant

Les deux phases  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_y$  et  $Bi_2Sr_{1,6}La_{0,4}CuO_y$  ont le même réservoir de charges mais un nombre différent de plans  $CuO_2$  et des températures critiques très différentes. Ces deux systèmes ont été choisis pour effectuer une étude comparée sur le changement des propriétés électroniques avec le dopage et plus précisément sur l'effet de pseudogap, pour lequel ils permettent une comparaison directe en fonction de nombre de plans  $CuO_2$  et de la température critique.

## **B. Synthèse des dépôts de BiSrCaCuO par pulvérisation cathodique**

Les films des SHTC sont synthétisés par différentes techniques [9]. En particulier les films de la phase  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$  ont été déposés par la technique d'ablation laser [10], par la technique d'épitaxie par jets moléculaires [11] et par les techniques de pulvérisation cathodique [12]. Les films de la phase  $Bi_2Sr_{1,6}La_{0,4}CuO_{6+\delta}$  ont été préparés uniquement par pulvérisation cathodique et seulement par deux groupes (notre étude et [13]).

Les films utilisés dans cette thèse ont été préparés dans notre groupe par pulvérisation cathodique RF ce qui a permis d'obtenir de bons résultats pour la phase Bi-2212 [14], pour la

phase Bi-2201 pure [15] et pour  $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_{6+\delta}$  ( $x=0,9$  et  $0,5$ ) [6]. La synthèse des films de  $\text{Bi}_2\text{Sr}_{1,6}\text{La}_{0,4}\text{CuO}_y$  avec  $T_{\text{cmax}}=30$  K a été réalisée au cours de cette thèse [16].

Dans ce procédé, la cible du matériau à déposer est bombardée par un flux de particules énergétiques créé par un plasma (argon-oxygène). La matière arrachée de la cible se dépose sur le substrat, chauffé à haute température ce qui permet la cristallisation au cours du dépôt. Le mode de pulvérisation utilisé ici est la pulvérisation diode magnétron RF. La source "magnétron" concentre le plasma et augmente la vitesse de dépôt ( $\sim 0,2-0,3$  Å/s). Dans notre équipement (figure 2), la cible est fixée sur une cathode avec une polarisation alternative (RF) tandis que le substrat est collé sur une anode porte-substrat, à un potentiel flottant. Le porte-substrat est chauffé au-dessus de  $700$  °C par des lampes halogènes.

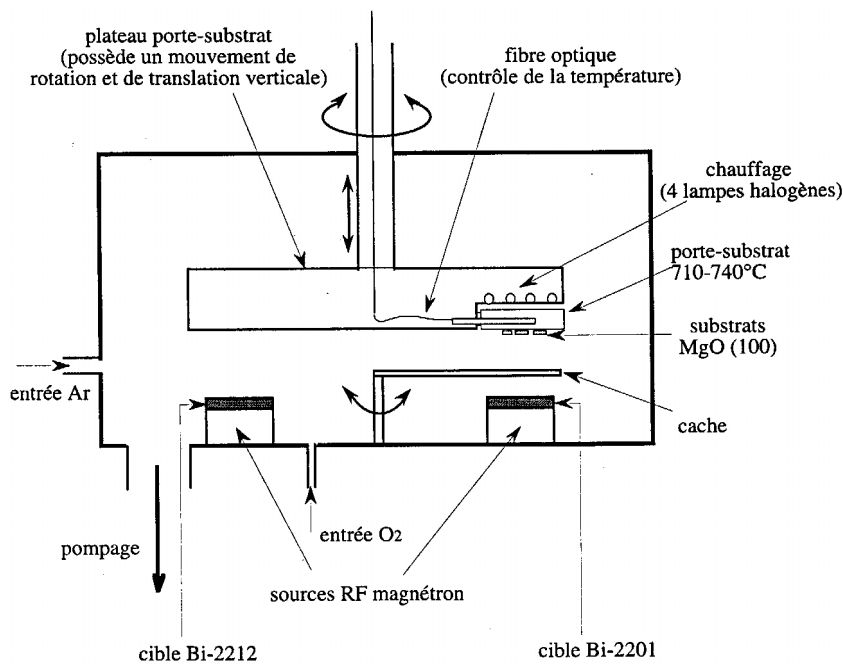


Figure 2 : Bâti de Pulvérisation

La cible doit être préparée avec la composition souhaitée [6]. On utilise une cible pour chaque phase :  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$  ou  $\text{Bi}_2\text{Sr}_{1,6}\text{La}_{0,4}\text{CuO}_y$  dans cette étude. Pour chaque dépôt des différentes phases, il faut déterminer les conditions optimales de température du porte-substrat, de pression dans la chambre de pulvérisation ainsi que la teneur en oxygène. Une fois le dépôt terminé, les conditions de refroidissement (vitesse de refroidissement, pression et teneur en oxygène) vont permettre d'obtenir les films dans l'état de dopage souhaité.

Le choix du substrat est aussi un paramètre très important. Sa structure cristalline doit être la plus proche possible de celle du matériau à déposer avec des coefficients de dilatation les plus voisins possibles et sans interdiffusion des atomes lors du dépôt à haute température. La plupart des films étudiés ici sont déposés sur un substrat monocristallin de  $\text{SrTiO}_3$  (001), de structure cubique avec  $a \approx 3,9 \text{ \AA}$ , ce qui permet d'obtenir des films épitaxiés. L'autre substrat utilisé est  $\text{MgO}$  (100) avec aussi une structure cubique,  $a \approx 4,2 \text{ \AA}$ . Ces valeurs sont à comparer à la valeur  $5,4/\sqrt{2} \text{ \AA}$  (la distance entre deux atomes de cuivre dans la direction -Cu-O-Cu-) pour les composés  $\text{BiSrCaCuO}$ .

### **C. Les recuits à basse température**

Les films préparés par le procédé ci-dessus sont habituellement dans un état voisin de l'état optimal. Le changement de la teneur en oxygène du film est effectué par des recuits de courte durée à basse température et dans une atmosphère contrôlée en oxygène ou sous vide. Les propriétés électroniques d'un même film sont changées de façon réversible et dans un grand intervalle de dopage. Le même procédé peut être aussi utilisé pour les monocristaux [17] ou les céramiques [18], mais en raison d'un volume plus grand les recuits durent plus longtemps et ils se font à plus haute température. Par la suite, il est difficile de désoxyder fortement un monocristal (voir fig. I.14 et ref. correspondant).

Les recuits des films étudiés ont été faits dans deux fours tubulaires différents. Pour obtenir les états surdopés, on a utilisé un four avec circulation d'oxygène qui permet au film d'être en contact avec l'oxygène pendant tout le traitement et de l'incorporer à l'intérieur. Une fois le film dans l'état surdopé, les recuits dans un four sous vide ( $p < 10^{-5}$  Torr) ont permis d'obtenir tous les autres états du diagramme de phase. Les deux fours sont chauffés de la



même façon, par un enroulement électrique avec un thermocouple (chromel-alumel) placé près de cet enroulement et connecté à un régulateur programmable qui assure la régulation de la température du four.

Lors d'un recuit, le film est chauffé jusqu'à un palier défini par sa température  $T_p$ , et sa durée  $t_p$ , après quoi le film est refroidi. Le choix des paramètres de palier  $T_p$  et  $t_p$ , dépend principalement de l'état que l'on veut atteindre pour le film ainsi que de son état initial. Les deux autres paramètres que l'on fixe dès le départ sont la vitesse de montée de la température intérieure du four  $v_{\uparrow}$ , pour aller de la température ambiante à la température de palier  $T_p$ , et également la vitesse de refroidissement  $v_{\downarrow}$ , pour aller de  $T_p$  jusqu'à une température de l'ordre de  $\sim 100$  °C à laquelle le film est retiré du four.

Les conditions habituelles des recuits sont données sur la figure 3. Pour atteindre l'état maximale surdopé par recuit sous oxygène, on a toujours utilisé les mêmes conditions établies précédemment [6]. Pour parcourir ensuite le diagramme de phase, à partir de cet état, on a retiré l'oxygène par petites quantités lors des recuits sous vide. Les propriétés électroniques du film changent d'autant plus pendant le recuit que la température de palier  $T_p$  est élevée, et que la durée de palier  $t_p$  est longue.

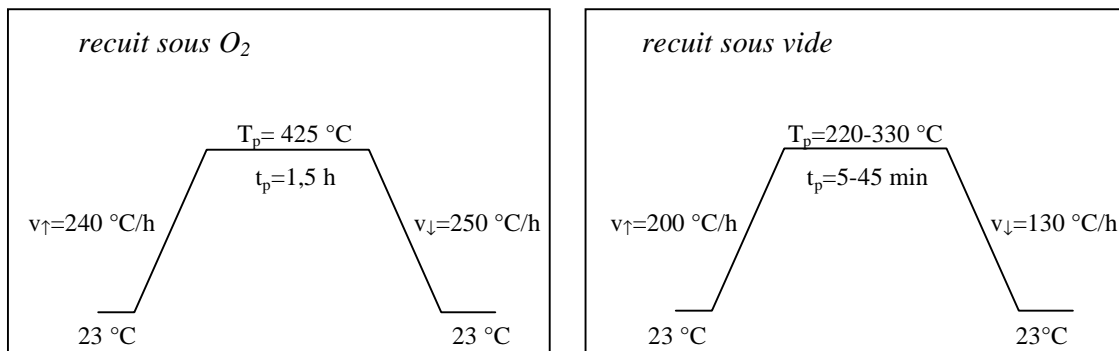


Figure 3 : Les conditions des recuits couramment utilisées afin de changer les propriétés électroniques de nos films.

Le procédé décrit est une méthode non destructive qui permet de revenir à un même état après un grand nombre de recuits. Sur la figure 4, on a représenté la variation de la résistance en fonction de la température de deux états du film M. M1 est l'état de départ du film après le 1<sup>er</sup> recuit sous oxygène, après lequel le film a subi 25 recuits différents sous vide et un recuit final sous oxygène pour atteindre l'état M27.

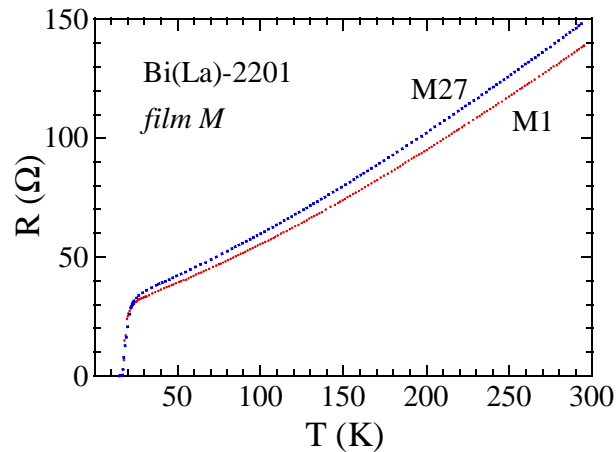


Figure 4 : Résistance  $R(T)$  du même film après recuit sous oxygène, mesurée à l'état de départ M1 et à l'état M27, entre lesquels l'état du film a été modifié 25 fois (la notation  $M_n$  indique la succession  $n$  des états, cf.III.A2).

Une fois que le diagramme de phase a été entièrement parcouru (cf.III.A2), on revient à l'état de départ lors du 27<sup>ième</sup> recuit sous oxygène. Les valeurs de résistance des états M1 et M27 diffèrent de moins de dix pourcent et la température critique est la même ( $T_c(R=0)=17$  K).

Enfin, il faut ajouter qu'un traitement sous plasma d'oxygène permet de suroxyder les films davantage qu'un recuit sous oxygène moléculaire. Les états obtenus de cette façon ont donné :  $T_c(R=0)\sim 50$  K (au lieu de 60 K) pour un film de la phase Bi-2212 et  $T_c(R=0)\sim 12$  K (au lieu de 17K) pour un film de la phase Bi(La)-2201.

## D. Méthodes de caractérisation des échantillons étudiés

### D1. Mesure de la résistance électrique en fonction de la température

Cette mesure permet de contrôler la température critique ainsi que les propriétés de conduction électrique du film, et de cette façon permet, de situer dans quelle région de dopage se trouve notre film.

Sur la figure 5(a) on a présenté la résistance du même film de la phase Bi-2212 dans trois états de dopage différents. L'état A2 est l'état optimal avec la température critique la plus élevée  $T_{c \text{ max}}$ , l'état A1 est l'état le plus surdopé et A3 un état sous-dopé avec une  $T_c$  comparable à celle de A1. De façon générale, la transition est plus large du côté sous-dopé, effet d'une part d'origine intrinsèque (lié à la plus forte anisotropie 2D) et d'autre part probablement lié à un effet d'inhomogénéité de l'échantillon (par ex. désoxydation des joints des grains) (figure 5(b)).

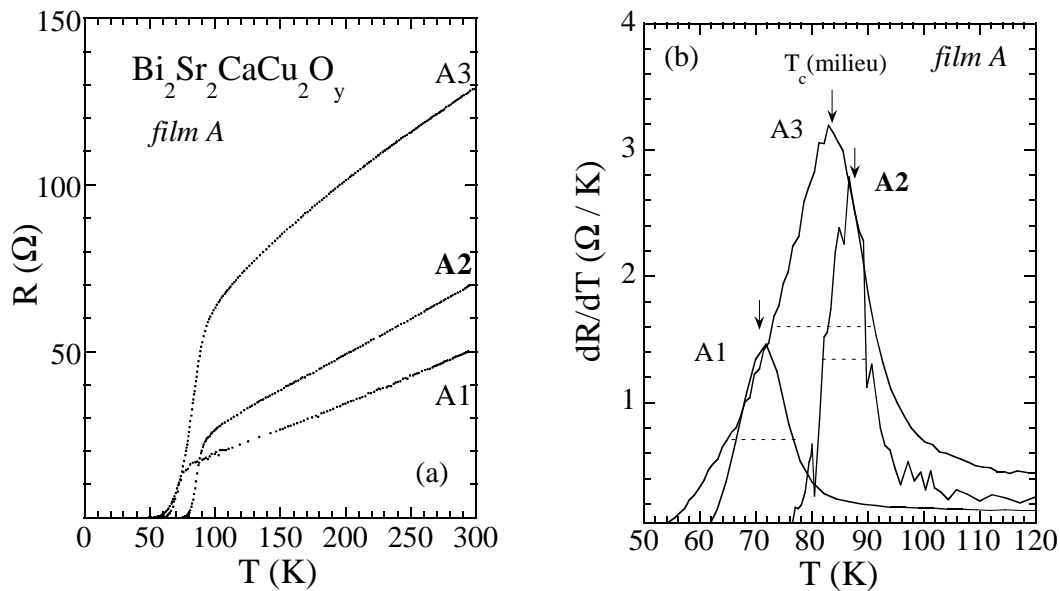


Figure 5 : (a)  $R(T)$  pour trois états caractéristiques d'un film de la phase Bi-2212. (b) La dérivée première,  $dR/dT$ , qui donne une information sur la largeur de la transition (les traits en pointillés) et sur la température critique au milieu de la transition (indiqué par des flèches). A2 est l'état optimal.

Pour caractériser l'état de dopage, le principe de l'analyse plus complète de  $R(T)^2$  utilisée dans cette étude, selon la position dans le diagramme de phase, est présenté sur la figure 6. Les deux états A1 et A3 ont une température critique  $T_c(R=0)$  similaire, mais un comportement de  $R(T)$  différent.

- La courbe  $R(T)$  de l'état surdopé A1 montre une courbure positive : la déviation de la quantité  $(R-R_0)/aT$  par rapport à la ligne de normalisation  $(R-R_0)/aT=1$  se fait vers le haut et la dérivée première  $dR/dT$ , décroît quand la température décroît.
- L'état optimal A2 présente la dépendance linéaire en  $T$  de la résistance  $R=R_0+aT$ , dans le plus grand intervalle de température : l'état A2 reste sur la ligne de normalisation de 300 K jusqu'à 120 K et dans cet intervalle de température on a  $dR/dT=const=a$ .
- La résistance de l'état sous-dopé A3 varie linéairement en fonction de  $T$ , entre 300 et 250 K, après quoi elle décroît plus rapidement et la courbe présente une courbure négative : la déviation de la ligne de normalisation se fait vers le bas et  $dR/dT$  augmente quand  $T$  diminue.

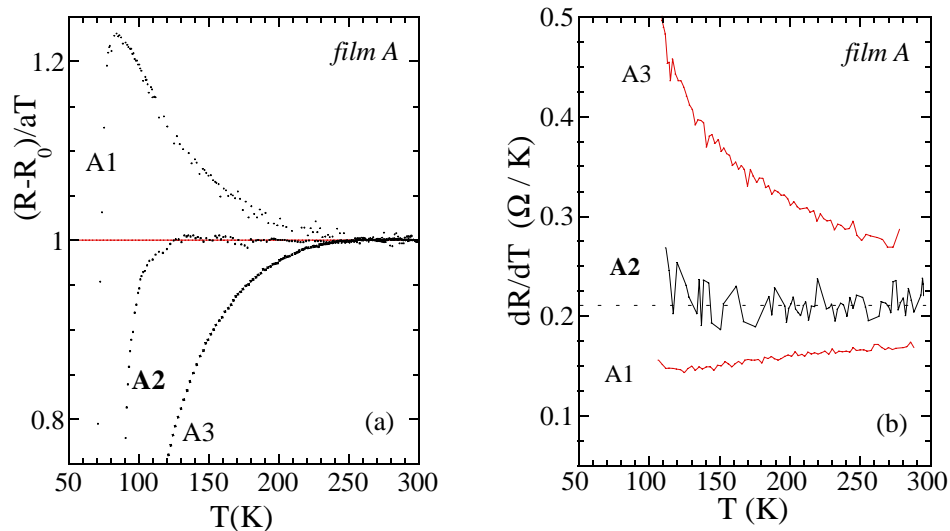


Figure 6 : Analyse permettant de voir l'état de dopage du film. (a)  $(R-R_0)/(aT)$  en fonction de  $T$  (les valeurs de  $R_0$  et  $a$  sont issues de la loi linéaire vérifiée à haute température) (b) La dérivée première,  $dR/dT$  en fonction de  $T$

<sup>2</sup> On détermine d'abord la partie linéaire de  $R(T)$  à haute température ( $R_0+aT$ ), puis on trace l'écart par rapport à cette loi sous la forme :  $(R-R_0)/aT$  en fonction de  $T$ .

## D2. Mesure de l'effet Hall

A partir de la mesure de l'effet Hall à température ambiante on peut estimer le nombre de porteurs dans le système.

Le coefficient de l'effet Hall  $R_H$  est défini par la relation :

$$R_H = \frac{V_H \cdot t}{I \cdot H}$$

où  $V_H$  représente la tension de Hall,  $t$  est l'épaisseur du film,  $H$  est le champ magnétique appliqué normalement au plan (a,b) et  $I$  est l'intensité du courant appliqué. A partir du coefficient de Hall, le nombre de Hall  $n_H$ , est défini par l'expression :

$$n_H = \frac{1}{R_H \cdot e}$$

$e$  étant la charge de l'électron.

La figure 7 présente la variation approximativement linéaire du nombre de Hall en fonction de nombre de trous "p" par cuivre par plan  $\text{CuO}_2$ , ( $H=1$  T et  $I=1$  mA). Le nombre de trous a été déterminé dans le chapitre suivant à partir de la loi phénoménologique (III.1) (cf. III.A2). On remarquera également que le changement de  $n_H$  après chaque recuit confirme le changement du nombre de porteurs dans les films, et correspond au changement de la conductivité à 300 K, .

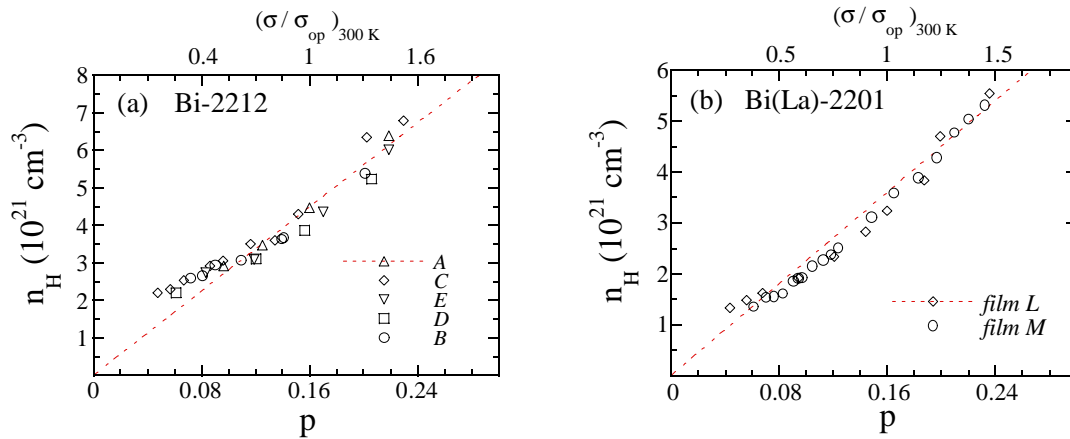


Figure 7 : Variation à température ambiante du nombre de Hall  $n_H$ , en fonction du dopage des films de la phase a) Bi-2212 et b) Bi(La)-2201. L'ajustement linéaire (trait pointillés) correspond à  $n_H=kp$  avec  $k_{2212}=(28\pm 0,8)10^{21} \text{ cm}^{-3}$  et  $k_{2201}=(22,5\pm 0,7)10^{21} \text{ cm}^{-3}$ .

### D3. Spectres de diffraction des rayons X

La diffraction des rayons X permet, d'une part à partir d'un diagramme  $\theta$ - $2\theta$  (figure 8), de vérifier que le film est monophasé. La présence des seules réflexions (0 0 2l) indique que l'axe  $c$  est perpendiculaire au substrat. La position des raies (0 0 2l) permet de déterminer le paramètre cristallin  $c$ , dépendant du taux d'oxygène dans le film.

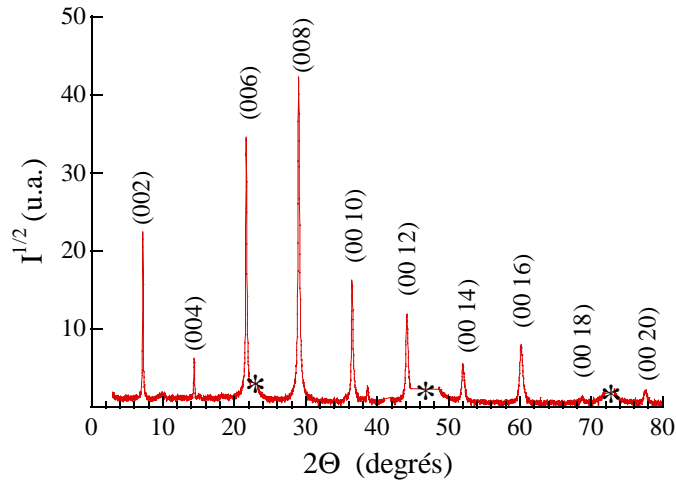


Figure 8 : Spectre de diffraction des rayons X (raie  $\text{Cu-K}\alpha$ ,  $\lambda=1,542 \text{ \AA}$ ) d'un film de la phase  $\text{Bi(La)-2201}$  au voisinage de l'état optimal. Les signes \* indiquent les positions des raies du substrat  $\text{SrTiO}_3$  ((100),(200) et (300)). La racine carrée de l'intensité est portée en fonction de l'angle  $2\theta$ .

D'autre part, la diffraction des rayons X permet d'obtenir des spectres  $I(\omega)$  de type "rocking curve" pour déterminer le degré de désorientation de l'axe  $c$  par rapport à la normale au plan de substrat. L'angle formé par l'axe  $c$  et la normale au substrat est de l'ordre  $0,2^\circ$ , (figure 9).

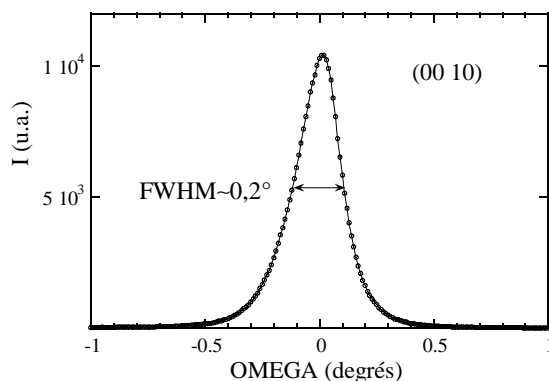


Figure 9 :

"Rocking curve"  $I(\omega)$  réalisée sur la raie (00 10) d'un film de la phase  $\text{Bi(La)-2201}$  montrant la qualité de l'orientation de l'axe  $c$  par rapport à la normale au plan du substrat ( $\text{FWHM} \sim 0,2^\circ$ ).

Enfin par diffraction des rayons X, on réalise des spectres  $I(\varphi)$  ou " $\varphi$  scan" qui permettent également de déterminer l'orientation des axes **a** et **b** du film par rapport aux axes du substrat. De cette façon, dans le cas du substrat MgO on trouve plusieurs orientations des axes cristallins **a** et **b** par rapport aux axes du substrat, tandis que dans le cas du substrat SrTiO<sub>3</sub> les axes **a** et **b** du film ont une seule orientation. Ils sont orientés à 45° par rapport aux axes de substrat (figure 10) avec un échange possible entre **a** et **b** d'un grain à l'autre. Le film est épitaxié et les directions -Cu-O-Cu- sont parallèles aux axes [100] et [010] du substrat.

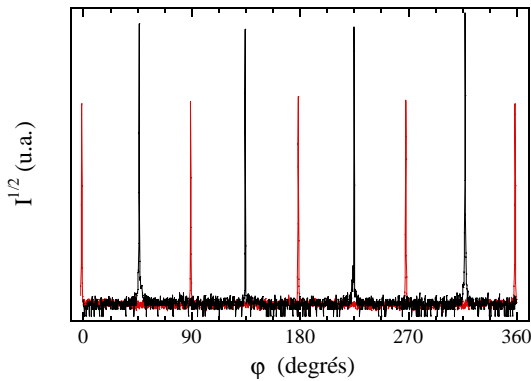


Figure 10 :

Le spectre de rayons X, " $\varphi$  scan" réalisé sur la raie (115) montrant une seule orientation des axes **a** et **b** des grains du film Bi(La)-2201 (les petits pics), orientés à 45° par rapport aux axes du substrat SrTiO<sub>3</sub> (la raie (110), les grands pics).

La variation du paramètre cristallin  $c$  mesurée en fonction du dopage d'un film Bi(La)-2201 est donnée sur la figure 11. En allant du côté surdopé vers le côté sous-dopé, la valeur de  $c$  augmente de façon approximativement linéaire, jusqu'à une certaine valeur, après quoi elle paraît saturer

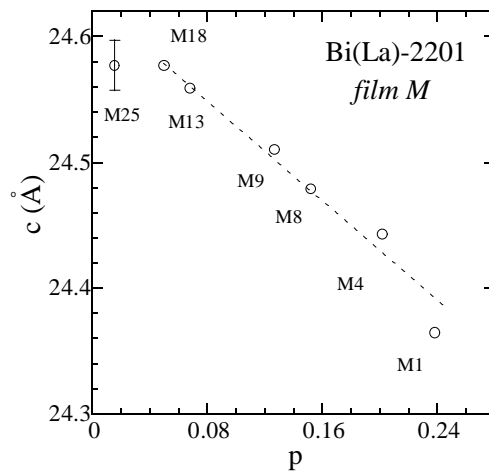


Figure 11 : Variation du paramètre cristallin  $c$  en fonction du dopage (cf. III) pour la phase Bi(La)-2201. La ligne en pointillés est un guide pour les yeux.

Une diminution de  $c$  pour les états surdopés a été également observée dans les phases Bi-2201 pure [6] et Bi-2212 [19], attribuée à l'effet des interactions répulsives de plus en plus grandes entre les plans BiO avec la diminution de la teneur en oxygène principalement situé entre ces plans. Cette augmentation du paramètre  $c$  en diminuant le dopage est opposée à la diminution observée en substituant des atomes de Sr par La (tableau 2), laquelle a été attribué à un rayon atomique plus petit des atomes de La par rapport à celui des atomes de Sr [8].

#### D4. Analyse de composition

Par la méthode non destructive de rétrodiffusion Rutherford de noyaux d'hélium (RBS) [20] on peut vérifier la composition des films. La méthode consiste à analyser l'énergie des particules  $^4\text{He}^+$  rétrodiffusées après interaction avec les différents éléments présents dans le film. Le rapport entre les énergies avant et après la diffusion est lié aux masses des éléments présents, ce qui permet leur identification, et à leur position par rapport à la surface de la couche. L'épaisseur du film peut également être déterminée (voir tableau III.1 et III.2). Cette analyse a été effectuée en collaboration avec le laboratoire CSNSM.

Tableau 3 : La composition cationique des films<sup>3</sup> (témoins sur MgO)

Bi(La)-2201	Film M	$\text{Bi}_{1,80\pm 0,04}\text{Sr}_{1,65\pm 0,03}\text{La}_{0,35\pm 0,03}\text{Cu}_{1,21\pm 0,03}\text{O}_x$
	Film L	$\text{Bi}_{1,77\pm 0,04}\text{Sr}_{1,63\pm 0,03}\text{La}_{0,37\pm 0,03}\text{Cu}_{0,99\pm 0,03}\text{O}_x$

#### D5. Mesure de la susceptibilité et de l'aimantation

L'utilisation d'un magnétomètre à SQUID (*Superconducting Quantum Interference Device*) permet de mesurer la susceptibilité et l'aimantation longitudinale<sup>4</sup> et ainsi d'avoir une information sur les propriétés magnétiques des films. L'intervalle de température accessible est situé entre 4,2 K et 300 K. Le champ continu appliqué peut aller de 0 à 5 T.

<sup>3</sup> Les valeurs sont normalisées de façon que l'addition de Sr et La donne la valeur 2.

<sup>4</sup> colinéaire au champ magnétique appliqué



Par mesure de la susceptibilité alternative, on peut vérifier la température critique de transition magnétique (figure 12). Les températures critiques ainsi obtenues sont tout à fait comparables à celles déterminées par les mesures  $R(T)$ . Sur la figure 12(a) l'état sous-dopé  $S_2$  a un signal beaucoup plus petit que l'état surdopé  $S_1$  principalement à cause de la diminution de nombre de paires d'électrons du côté sous-dopé et de la diminution de l'écrantage.

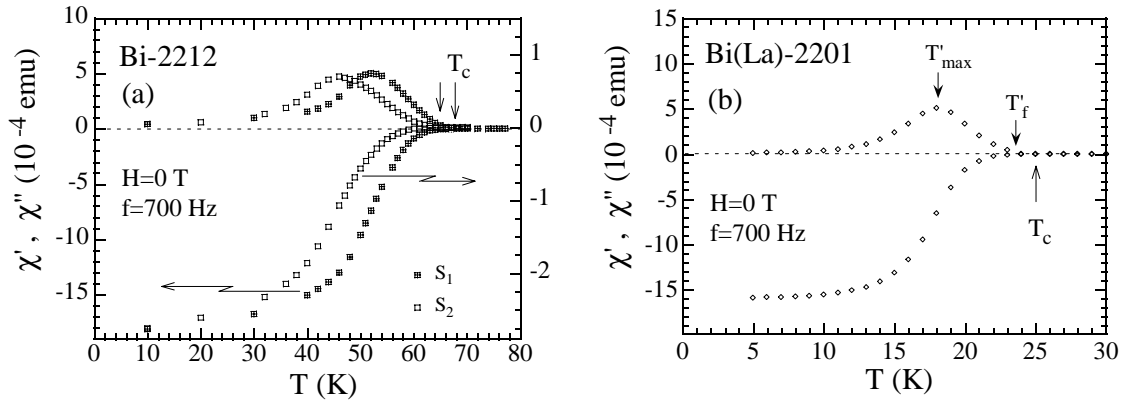


Figure 12 : La transition supraconductrice (a) de l'état surdopé  $S_1$  ( $T_c=68$  K) et de l'état sous-dopé  $S_2$  ( $T_c=65$  K) d'un film de la phase Bi-2212 et (b) de l'état sous-dopé d'un film Bi(La)-2201 ( $T_c=25$  K), mesurée par susceptibilité alternative sans champ magnétique dc  $H=0$  et avec une fréquence  $f=700$  Hz du champ magnétique alternatif. L'amplitude du champ alternatif utilisé dans toutes les mesures est  $h_{ac}=1$  G.

A partir d'une étude plus systématique, sous différents champs magnétiques (jusqu'à 5T) et à différentes fréquences (figure 13), on peut déterminer la ligne d'irréversibilité et l'énergie d'activation des vortex.

A partir de la température  $T'_f$  (repérée par une flèche sur la figure 12(b)), définie selon un critère sur  $\chi''$  ( $\chi''/\chi''_{\max}=0,033$ ) [21], et à partir des mesures de susceptibilité sous différents champs magnétiques (figure 13(a)), on peut déterminer la ligne d'irréversibilité. Sur la figure 14, on a représenté la ligne d'irréversibilité obtenue à la fréquence  $f=700$  Hz pour les deux états,  $S_1$  et  $S_2$ , de la phase Bi-2212 et pour le film Bi(La)-2201.

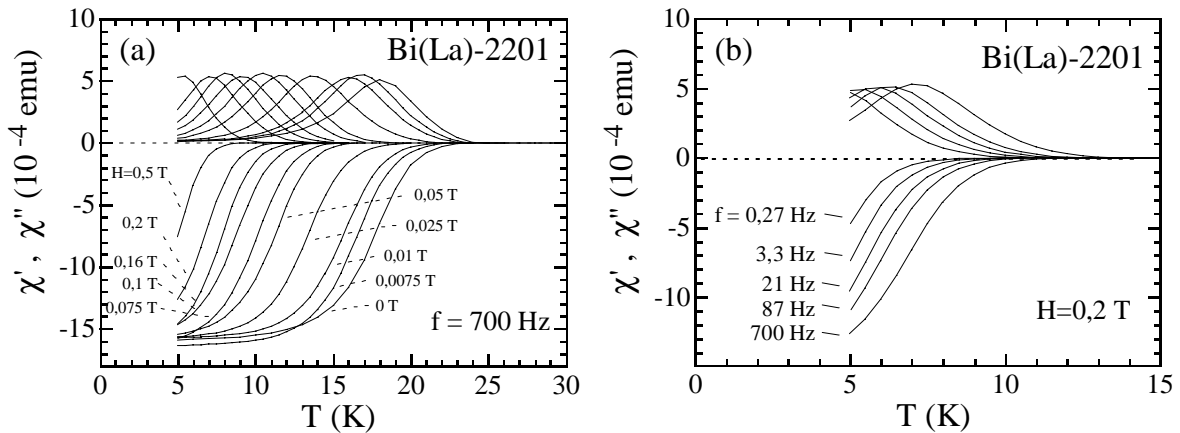


Figure 13 : Susceptibilité ac en fonction de  $T$  du film Bi(La)-2201 (a) mesurée sous différents champs magnétiques dc et à la fréquence  $f=700$  Hz. (b) mesurée à différentes fréquences et sous un champ magnétique dc de  $H=0,2$  T. ( $h_{ac}=1$  G)

D'autre part, l'énergie d'activation peut être estimée à partir de la position du maximum de  $\chi''(T)$ ,  $T_{max}'$ , (indiquée sur la figure 12), des courbes de susceptibilité à différentes fréquences pour un champ magnétique donné (figure 13(b)).

Pour chaque champ magnétique dc, à partir de la relation  $f = f_0 \exp(-E_0 / k_B T)$  dans le régime activé thermiquement [22] on peut déterminer l'énergie d'activation  $E_0$ . Sur la figure 14(b), on a représenté l'énergie d'activation en fonction du champ magnétique pour les deux états S1 et S2 de la phase Bi-2212 et pour un état du film Bi(La)-2201.

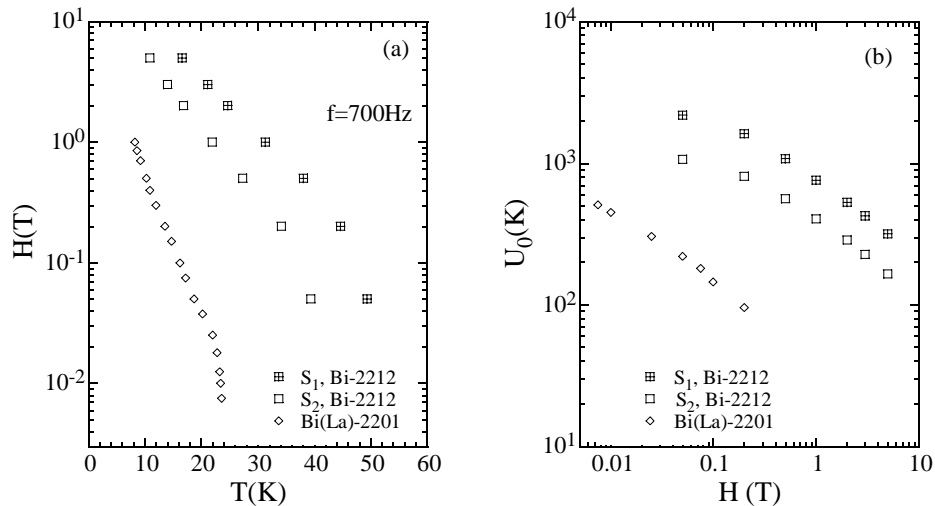


Figure 14 : (a) La ligne d'irréversibilité déterminée à partir des mesures de susceptibilité sous différents champs magnétiques. (b) L'énergie d'activation en fonction du champ magnétique pour les états S1 et S2 d'un film de la phase Bi-2212 et d'un film de la phase Bi(La)-2201.

D'autre part, les cycles d'aimantation (figure 15) permettent de déterminer le courant critique de l'échantillon, à partir du modèle de Bean [23].

Pour un film rectangulaire de dimensions  $a$  et  $b$  ( $a < b$ ), le courant critique est donné par l'expression [24] :

$$j_c = \frac{10 \cdot \Delta M / V}{R^*}$$

avec  $\Delta M$  l'amplitude du cycle d'aimantation et  $V$  le volume de l'échantillon. Le facteur géométrique  $R^*$  est égal à  $R^* = \frac{a(3b-a)}{6b}$ .

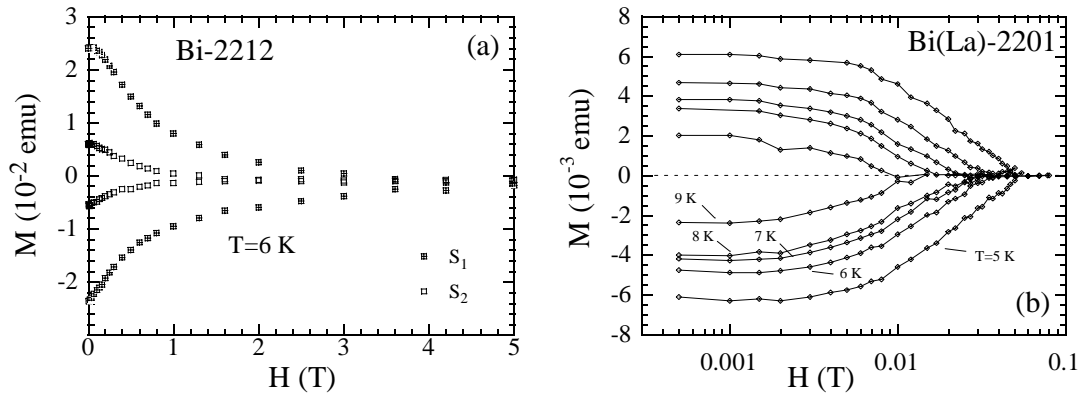


Figure 15 : (a) Courbes typiques d'aimantation de l'état surdopé  $S_1$  et l'état sous-dopé  $S_2$  d'un film de la phase Bi-2212 à température constante égale à  $T=6$  K. (b) Les cycles d'aimantation à différentes températures du film Bi(La)-2201.

Pour les films de dimensions typiquement  $a=3$  mm et  $b=5$  mm, le courant critique en fonction de  $H$  est présenté sur la figure 16.

Les résultats présentés ci-dessous dépassent une simple caractérisation et le comportement observé de la ligne d'irréversibilité, de l'énergie d'activation et du courant critique seront discutés dans le chapitre IV en même temps que les autres résultats obtenus par la mesure de la résistivité sous champ magnétique dans l'état mixte.

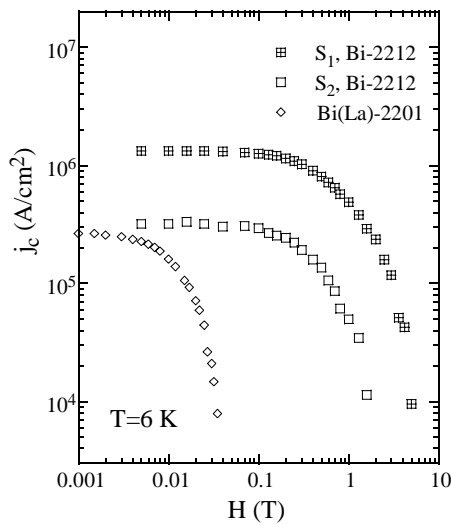


Figure 16 : Dépendance de courant critique en fonction du champ magnétique à  $T=6$  K du film Bi-2212 dans les états  $S_1$  et  $S_2$  de la phase et du film Bi(La)-2201.

## E. Techniques de mesure

### E1. Préparation des films pour les mesures de transport

Après caractérisation, les films choisis pour une étude de transport ont été équipés avec des contacts d'or, après quoi ils sont gravés selon un motif dépendant de l'expérience envisagée.

- Pour diminuer la résistance de contact (source principale de bruit), on dépose par pulvérisation cathodique triode des plots d'or sur le film à la place des prises de tension et de courant (Figure 17). De cette façon, les plots d'or assurent un meilleur contact électrique entre le film et les petites pointes métalliques rétractables (utilisées pour la mesure de la résistance) ou entre le film et les fils d'or, collés à laque d'argent (mesure de l'effet Hall).
- La gravure, mécanique ou par lithographie optique et attaque chimique, permet la mesure de la résistance d'une piste bien définie imposant une distribution connue du courant. La gravure mécanique a été réalisée grâce à P. Crozat (IEF, Université Paris XI) en utilisant un traceur de courbe de précision, piloté par ordinateur, où le stylet a été remplacé par une pointe métallique.

Pour la mesure de l'effet Hall, on a choisi une piste large, environ  $330 \mu\text{m}$ , avec une longueur de  $1000 \mu\text{m}$  (figure 17), ce qui permet le passage d'un courant plus fort,  $I=1 \text{ mA}$ , et ainsi une mesure plus précise.

Enfin, les prises de tension doivent être situées bien en vis à vis pour diminuer la contribution de la magnétorésistance dans la tension de Hall.

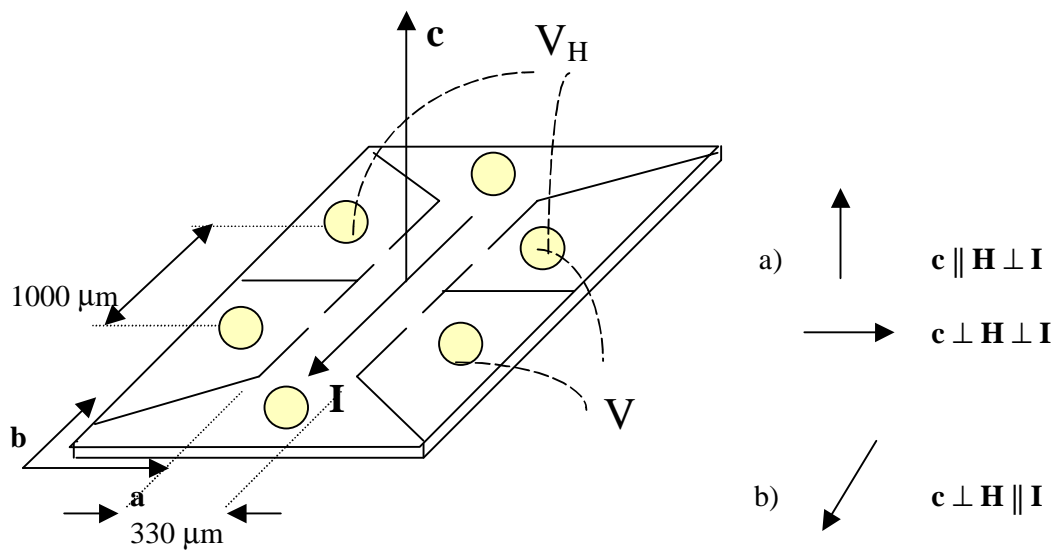


Figure 17 : Disposition expérimentale :

- a) géométrie transversale ( $c \parallel \mathbf{H} \perp \mathbf{I}$  et  $c \perp \mathbf{H} \perp \mathbf{I}$ )
- b) géométrie longitudinale ( $c \perp \mathbf{H} \parallel \mathbf{I}$ )

Les différents types de mesures effectuées dans cette étude sont la mesure de la résistance en fonction de T, la mesure de l'effet Hall en fonction de T et également la mesure de la magnétorésistance sous champ intense. Les techniques de mesure de la résistance et de l'effet Hall seront présentées ensemble, tandis que la technique de mesure de la magnétorésistance, réalisée dès le départ au LCMI (Laboratoire des Champ Magnétique Intenses) à Grenoble, sera discutée à la fin.

## E2. Mesure de la résistance et de l'effet Hall

### (a) Méthode de mesure

Les mesures sont réalisées selon la méthode des 4 points, parmi lesquels deux contacts sont utilisés pour injecter le courant et deux autres pour mesurer la tension (figure 17).

Pour la mesure de la résistance et de l'effet Hall, on a utilisé un nanovoltmètre (d'une résolution de 10 nV) pour la mesure de tension et une source de courant qui assure une intensité constante avec inversion du sens du courant, afin d'éliminer les effets thermoélectriques. Le courant typique utilisé pour la mesure de résistance est  $I=0,1-10 \mu\text{A}$  et  $I=1 \text{ mA}$  pour la mesure de l'effet Hall (dû à un signal beaucoup plus faible).

Pour la mesure de l'effet Hall, le champ magnétique ( $H=1\text{T}$ ) est orienté perpendiculairement au plan (a,b) du film ( $(\mathbf{c} \parallel \mathbf{H} \perp \mathbf{I})$ , figure 17). La direction du champ est vérifiée en mesurant la résistance d'une sonde de Hall collée à côté de l'échantillon. La tension de Hall est obtenue en mesurant la tension pour chaque sens du champ magnétique afin d'éliminer la contribution de la magnéto-résistance liée à la position des prises de tension (pas toujours parfaitement en vis à vis) :  $V_H=[V_H(H\uparrow)-V_H(H\downarrow)]/2$ . Il n'a pas été trouvé de différence entre les valeurs de  $R_H$  mesurées sous  $H=1 \text{ T}$  et  $H=20 \text{ T}$  (LCMI) pour un échantillon donné.

La source de courant, le voltmètre et les appareils pour la mesure des résistances des différentes sondes thermométriques sont reliés à un ordinateur (PC) par l'intermédiaire d'une carte IEEE (figure 18).

### (b) La tête de mesure

Le film est placé sur un bloc du cuivre, fixé sur un porte-échantillon qui se trouve à une des extrémités de la canne [25].

- Dans le cas de la mesure de  $R(T)$  le bloc de cuivre est équipé de sondes résistives pour la mesure de la température. La sonde de platine, située au milieu du bloc de cuivre, est prévue pour la mesure entre 30 K et 300 K. La sonde CLTS (Cryogenic Linear Temperature Sensor), alliage de manganin et nickel, est collée sur le bloc de

cuivre et prévue pour la mesure entre 4,2 et 30 K. Toutes les deux sondes, mesurées respectivement avec un pont ac et un multimètre (figure 18), donnent la température du bloc de cuivre qui étant un très bon conducteur thermique assure la même température pour le film.

- Dans l'autre cas (mesure de l'effet Hall), le dispositif dispose de trois sondes de contrôle de la température : une sonde de platine pour les hautes températures (entre 30 K et 300 K), une sonde de carbone (avec une magnétorésistance négligeable pour  $H \leq 1$  T) et une sonde de germanium pour les températures situées entre 30 K et 1,2 K (figure 18).

De plus deux autres sondes de carbone ( $R=570 \Omega$  et  $R=100 \Omega$ ) respectivement pour les hautes températures ( $300 \text{ K} \geq T \geq 15 \text{ K}$ ) et pour les basses températures ( $15 \text{ K} \geq T \geq 1,2 \text{ K}$ ) et un enroulement chauffant (de  $20 \Omega$ ) situé près de l'échantillon, alimentés par un pont de régulation ATNE, permettent de réguler la température (figure 18).

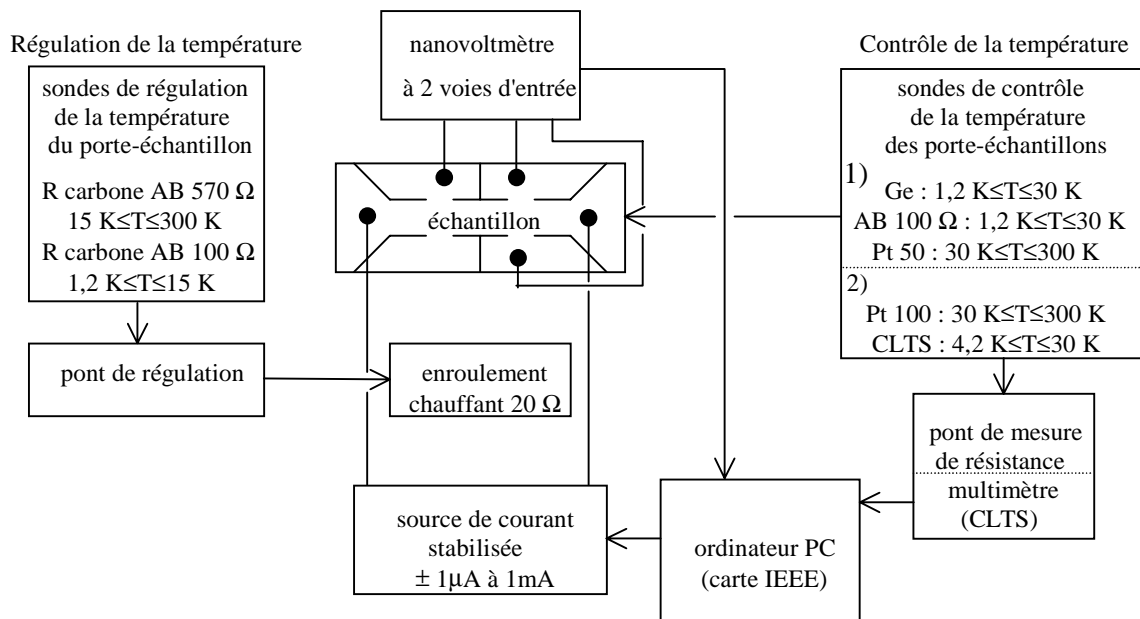


Figure 18 : Schéma du montage électronique de mesure de l'effet Hall et de la résistance de l'échantillon en fonction de la température. Les éléments concernant la régulation de la température font partie du montage de mesure de l'effet Hall.

(c) Le dispositif cryogénique

- La canne de mesure (mesure de résistance) est placée dans une bouteille d'hélium liquide avec le bain d'hélium et l'hélium gazeux à la pression atmosphérique ( $4,2 \text{ K} \leq T \leq 300 \text{ K}$ ). En descendant la canne, on diminue la distance entre le bain d'hélium et le film et de cette façon la température du film. Afin d'atteindre l'équilibre thermique entre l'hélium gaz, le film et le thermomètre la descente doit se faire très lentement. De même, en montant la canne on augmente la température du film et on peut parcourir le même intervalle de température en sens inverse, ce qui sert à confirmer la mesure.
- La canne de mesure (mesure de l'effet Hall) est introduite dans un cryostat à bain d'hélium isolé thermiquement par un vide d'isolement, d'un bain d'azote, lui même isolé thermiquement de l'extérieur, ce qui permet de parcourir séparément deux intervalles de température (entre 300 K et 77 K et entre 77 K et 4,2 K).

Un électro-aimant classique, orienté perpendiculairement à l'axe de la canne, produit un champ magnétique horizontal, d'intensité jusqu'à 1 T. Un support tournant permet de modifier l'orientation du champ magnétique autour de l'axe du cryostat et d'obtenir différentes orientations par rapport au film.

La mesure de l'effet Hall est réalisée en mesurant  $V_H$  pour chaque sens du champ magnétique séparément ( $V_H(H\uparrow)$  et  $V_H(H\downarrow)$ ) en fonction de la température. Pour contrôler les mesures, en même temps que la mesure des tensions de Hall on a mesuré les tensions longitudinales de magnétorésistance qui doivent être forcément les mêmes dans deux cas,  $H\uparrow$  et  $H\downarrow$ .

### E3. Mesure de la magnétorésistance sous champ fort (LCMI)

Ces expériences ont été réalisées en collaboration avec O. Laborde (CRTBT). La mesure est aussi réalisée selon la méthode des 4 points avec un pont de mesure en courant alternatif ( $I=0,1 \mu\text{A}$  ou  $1 \mu\text{A}$ ). La canne de mesure dispose aussi des éléments permettant le contrôle (sondes de Pt et de carbone) et la régulation de la température (sonde capacitive, chauffage) de l'échantillon. Elle est placée à l'intérieur d'un cryostat à bain d'hélium, où le film



monté dans un calorimètre est isolé thermiquement par un vide d'isolement de celui-ci. Le champ magnétique jusqu'à 20 T est produit par des bobines de Bitter résistives en cuivre. Selon le choix de la position du film, le champ magnétique est orienté soit perpendiculairement soit parallèlement au film, selon la géométrie souhaitée : a) configuration transversale, ( $\mathbf{c} \parallel \mathbf{H} \perp \mathbf{I}$ ) ou ( $\mathbf{c} \perp \mathbf{H} \perp \mathbf{I}$ ), et b) configuration longitudinale ( $\mathbf{c} \perp \mathbf{H} \parallel \mathbf{I}$ ) (figure 17).

Les expériences sont faites en balayant le champ magnétique de zéro jusqu'à 20 T à différentes températures choisies au-dessus ou au-dessous de la température critique pour l'étude de l'état normal ou de l'état mixte. L'évolution de la température pendant ce balayage en champ a été vérifiée en mesurant T avant et après, pour H=0, et la contribution de la magnétorésistance, liée à ces changements de température a été soustraite. La résolution de la mesure sous champ magnétique de 20 T est de l'ordre de :  $\Delta\rho/\rho < 10^{-4}$ .

## Références du chapitre II

---

- [1] S.A.Sunshine, T.Siegrist, L.F.Schneemeyer, D.W.Murphy, R.J.Cava, B.Batlogg, R.B.van Dover, R.M.Fleming, S.H.Glarum, S.Nakahara, R.Farrow, J.J.Krajewski, S.M.Zahurak, J.V.Waszcak, J.H.Marchall, P.Marsh, L.W.Rupp, Jr., W.F.Peck, *Phys.Rev.B* **38**, 893 (1988).
- [2] G. Pan, thèse Université Paris XI (1992) ; G. Pan, S. Megtert et G. Collin, *J. Phys. I France* **2**, 887 (1992).
- [3] X. Gaojie, M. Zhiquiang, T. Mingliang et Z. Yuheng, *Physica C* **271**, 251 (1996)
- [4] F.Herman, R.V.Kasowski, W.Y.Hsu, *Phys.Rev.B* **38**, 204 (1988).
- [5] J.Q.Li, C.Chen, D.Y.Yang, F.H.Li, Y.S.Yao, Z.Y.Ran, W.Kwang, Z.X.Zhao, *Z.Phys.B* **74** 165 (1989) ; K. Yvon et M. François, *Z. Phys. B* **76**, 413 (1989).
- [6] H. Rifi, thèse Université Paris XI (1996).
- [7] H. Nameki, M. Kikuchi et Y. Syono, *Physica C* **234**, 255 (1994); N. L. Wang, Y. Chong, C. Y. Wang, D. J. Huang, Z. Q. Mao, L. Z. Cao et Z. J. Chen, *Phys. Rev. B* **47**N. L. Wang, B. Buschinger, C. Geibel et F. Steglich, *Phys. Rev. B* **54**, 7449 (1996).
- [8] W. L. Yang, H. H. Wen, Y. M. Ni, J. W. Xiong, H. Chen, C. Dong, F. Wu, Y. L. Qin et Z. X. Zhao, *Physica C* **308**, 294 (1998).
- [9] Pour une revue voir par ex. J. P. Contour, *Journal de Physique III* **4**, 2159 (1994).
- [10] T. Brousse, G. Poullain, J. F. Hamet, H. Murray et B. Raveau, *Physica C* **170**, 545 (1990); R. P. Casero, F. Kerhervé, J. P. Enard, J. Perrière et P. Régnier, *Appl. Surface Science* **54**, 147 (1992); C. Maréchal, E. Lacaze, W. Seiler et J. Perrière, *Physica C* **294**, 23 (1998).
- [11] D. G. Schlom, A. F. Marchall, J. T. Sizemore et Z. J. Chen, *Journal of Crystal Growth* **102**, 361 (1990); M. Kanai, T. Kawai et S. Kawai, *Physica C* **190**, 57 (1991); I. Tsukada et K. Uchinokura, *Jpn. J. Appl. Phys.* **30** L1468 (1991); J. N. Eckstein, I. Bozovic, M. Klausmeier-Braun, G. Virshup, K. S. Rolls, *Thin Solid Films* **216**, 8 (1992); X. Z. Xu, M. Viret, H. Tebbji, C. Deville-Cavellin et M. Lagües, *Applied Superconductivity* **1**, 755 (1993).
- [12] H. Adachi, Y. Ichikawa, K. Setsune, S. Hatta, K. Hirochi et K. Wasa, *Jpn. J. Appl. Phys.* **27**, L643 (1988); P. Wagner, F. Hillmer, U. Frey, H. Adrian, T. Steinborn, L. Ranno, A. Elschner, I. Heyvaert et Y. Bruynseraede, *Physica C* **215**, 123 (1993).
- [13] Y. Z. Zhang, L. Li, D. G. Yang, B. R. Zhao, H. Chen, C. Dong, H. J. Tao, H. T. Yang, S. L. Jia, B. Yin, J. W. Li et Z. X. Zhao, *Physica C* **295**, 75 (1998).

- 
- [14] Z. Z. Li, S. Labdi, A. Vaures, S. Megtert et H. Raffy, Proceeding of Symposium A1 of the International Conference on Advanced Materials ICAM 91-EMRS, Strasbourg, 1991, L. Corraera (Elsevier, New York, 1992).
- [15] Z. Z. Li, H. Rifi, A. Vaures, S. Mertert et H. Raffy, *Physica C* **206**, 367 (1993).
- [16] A publier.
- [17] G. Briceno et A. Zettl, *Phys. Rev. B* **40**, 11352 (1989).
- [18] Y. Kubo, Y. Shimakawa, T. Manako et H. Igarashi, *Phys. Rev. B* **43**, 7875 (1991).
- [19] J. M. Gonzales-Calbet, A. Caneiro, J. Ramirez et M. Vallet-Regi, *Physica C* **185-189**, 637 (1991) ; J. Auge, U. Rüdiger, H. Frank, H. G. Roskos, G. Güntherodt et H. Kurz, *Appl. Phys. Lett.* **64**, 378 (1994).
- [20] J. Perrière, *Vacuum* **37**, 429 (1987).
- [21] A. Aburto et L. Fruchter, *Physica C* **271**, 214 (1996).
- [22] E. H. Brandt, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 2821 (1993).
- [23] C. P. Bean, *Phys. Rev. Lett.* **8**, 250 (1962).
- [24] S. F. Kim, Z. Z. Li et H. Raffy, *Physica C* **244**, 78 (1995).
- [25] S-A. Labdi, thèse Université Paris XI (1992).

### ***Chapitre III : Etude comparée de l'influence de la teneur en oxygène sur le comportement de la résistivité et de l'effet Hall en fonction du dopage pour les films de la phase Bi-2212 et Bi(La)-2201***

Les propriétés électroniques des cuprates sont fortement dépendantes du nombre de porteurs dans les plans  $\text{CuO}_2$ . Les nombreuses études de transport électronique, antérieures, ont mis en évidence des propriétés inhabituelles, principalement la variation linéaire de la résistivité et la variation de l'effet Hall en fonction de la température. L'effet de pseudogap, observé par la mesure de la résistivité sur YBCO et LSCO, a motivé cette étude systématique en fonction du dopage des propriétés de transport de Bi-2212 et Bi(La)-2201. Une étude précédente "préliminaire" sur Bi-2201 pur a facilité cette tâche.

Une façon de changer le nombre de porteurs pour suivre l'évolution des propriétés électroniques est de modifier progressivement la concentration en oxygène dans l'échantillon (voir chapitre II). Comme on l'a déjà mentionné, on peut étudier de cette manière les propriétés physiques d'un *seul échantillon* en fonction du dopage, ce qui constitue l'avantage principal par rapport à la substitution cationique.

Dans ce chapitre on présente les résultats de l'étude de la résistivité et de l'effet Hall dans l'état normal en fonction du dopage en oxygène ainsi obtenu. Les propriétés des films de la phase Bi-2201 et Bi-2212 ont été changées à plusieurs reprises par des recuits successifs à partir des états maximalelement surdopés, en passant par les états à dopage optimal et sous-dopés pour atteindre des états fortement sous-dopés avec  $T_c=0$ . On peut passer de façon réversible d'un état à l'autre.

## **A. Influence de l'oxygène sur la résistivité**

### **A1. Réseau des courbes $\rho(T)$ à différents états du dopage**

Une des propriétés remarquables, observée dès la découverte des SHTC, mais encore mal comprise, est la variation linéaire en fonction de la température de leur résistivité [1]. L'étude suivante va montrer que cette variation linéaire de la résistivité est observée dans un grand intervalle de la température en un seul point du diagramme phase ( $T_c$  vs dopage) et que, selon la position dans ce diagramme, le comportement de  $\rho(T)$  est qualitativement et quantitativement différent [2].

#### (a) Phase $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$

Dans cette partie, nous allons présenter l'étude complète de la résistivité  $\rho(T)$  en fonction du dopage, effectuée sur plusieurs films de la phase Bi-2212. Les différents états de dopage sont obtenus par des recuits à basse température, les états surdopés par des recuits sous oxygène tandis que tous les autres états sont obtenus par une série de recuits sous vide (cf. II.C). Tous les échantillons étudiés sont présentés dans le tableau 1.

L'étude la plus complète en fonction du dopage a été faite pour l'échantillon D (figure 1) et elle va être présentée en détail dans chaque région séparément. Les états obtenus pour les échantillons autres que A (cf. II.D1) et D sont présentés sur la figure 2, parmi lesquels quelques-uns ont été choisis pour l'étude de l'effet Hall en fonction de la température et aussi pour la mesure de la magnéto-résistance sous champ fort à Grenoble (cf. IV).

*Tableau 1 : Caractéristiques des échantillons étudiés (phase Bi-2212)*

N° de série	nom utilisé	$T_{\text{cmax}}(R=0)$ (K)	substrat	épaisseur (Å)
191295mm	A	80	SrTiO <sub>3</sub>	2400±120
211295mm	B	80	MgO	2600±130
151295mm	C	80	SrTiO <sub>3</sub>	2600±130
160198mb	D	80	SrTiO <sub>3</sub>	1100±55
230198ml	E	80	SrTiO <sub>3</sub>	1100±55

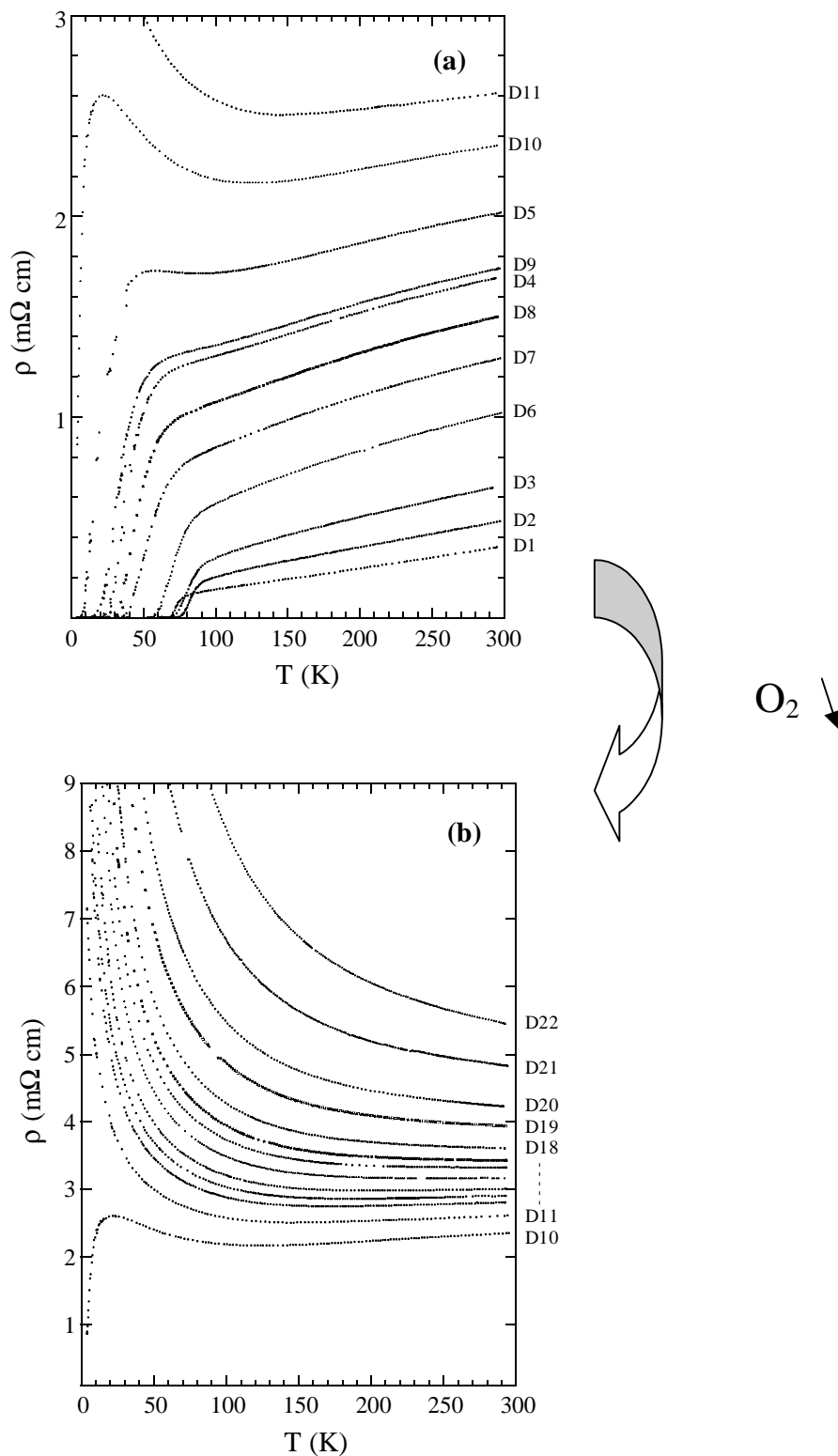


Figure 1 : La variation de  $\rho(T)$  en fonction du dopage : (a) la région supraconductrice et (b) la région isolante.

L'indice indique le n° du recuit de l'échantillon D de la phase Bi-2212.

L'état D1, l'état initial, est obtenu par un recuit sous oxygène (l'état maximale suroxygéné de cette façon). Ensuite les recuits sous vide ont permis d'obtenir tous les autres états de D2 jusqu'à D22 (cf. II.C).

Le même type de procédé a été utilisé pour tous les autres films, dont les courbes  $\rho(T)$  sont montrées sur la figure ci-dessous. L'état C11 a été obtenu par un traitement sous plasma d'oxygène à partir de l'état C10 ( $T_c=0$ ), une fois toute la région supraconductrice étudiée. La température critique est plus faible que pour tous les autres états ( $T_c=53$  K au lieu de  $T_c=63$  K pour l'état C1) et correspond à l'état le plus surdopé.

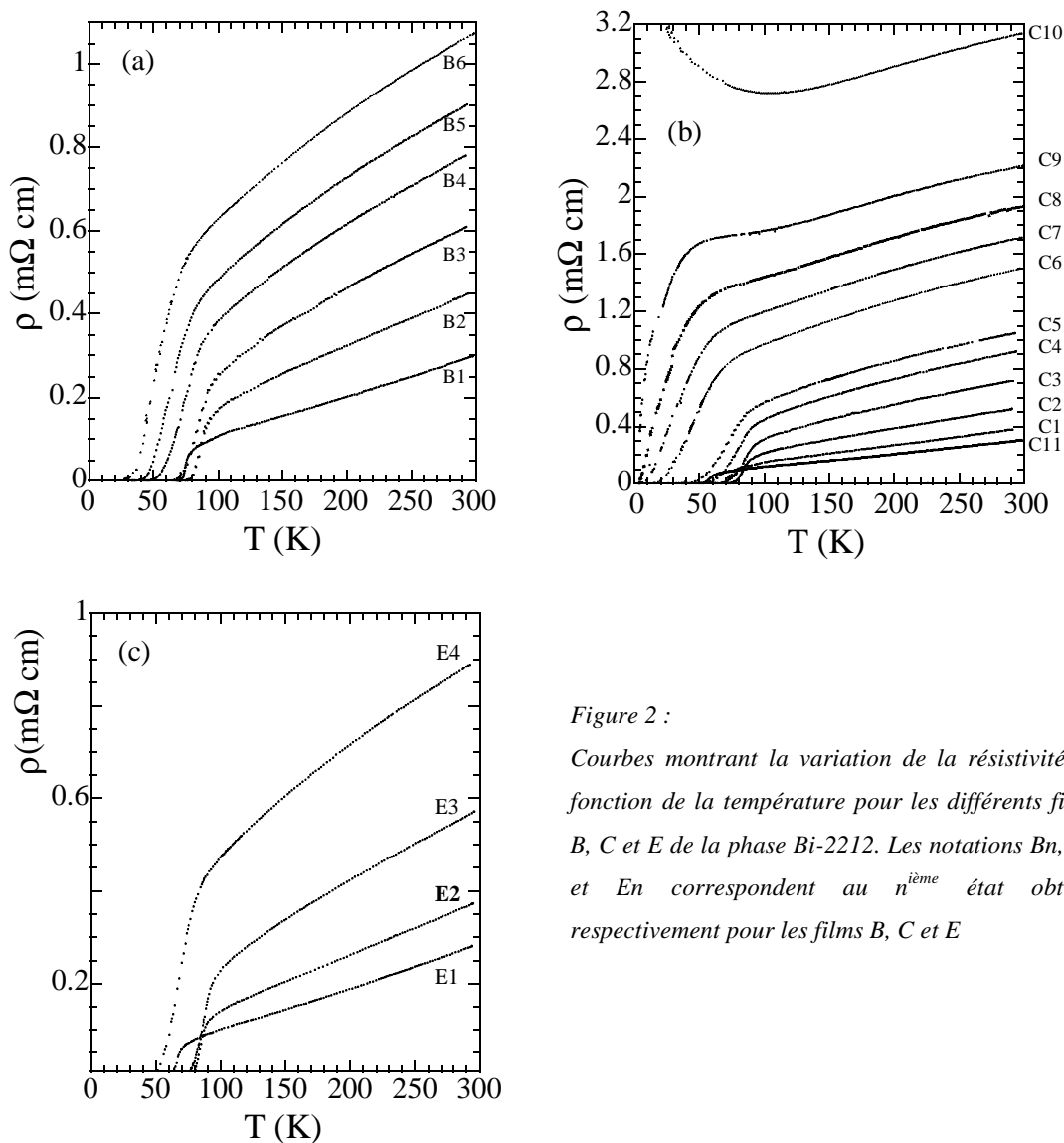


Figure 2 :  
 Courbes montrant la variation de la résistivité en fonction de la température pour les différents films B, C et E de la phase Bi-2212. Les notations  $B_n$ ,  $C_n$  et  $E_n$  correspondent au  $n^{\text{ième}}$  état obtenu respectivement pour les films B, C et E

(b) Phase  $\text{Bi}_2\text{Sr}_{1,6}\text{La}_{0,4}\text{CuO}_y$

Dans cette partie, nous allons présenter les résultats de la variation de la résistivité en fonction de la température pour différentes concentrations en oxygène, obtenus sur les films de la phase Bi-2201 dopée au lanthane, (Bi(La)-2201). Comme on l'a déjà mentionné, la substitution partielle de Sr par La a été choisie afin d'augmenter la température critique maximale et avoir de cette façon des états sous-dopés sur un plus large intervalle de T ( $T_{\text{cmax}}=30$  K pour Bi-2201 dopé au lanthane ( $x=0,4$ ) par rapport à  $T_{\text{cmax}}=18$  K pour Bi-2201 pur). Les différents états de dopage en oxygène ont été obtenus par une série de recuits ex-situ à basse température. Les caractéristiques principales des deux films étudiés en détail sont donnés dans le tableau 2.

*Tableau 2 : Caractéristiques des échantillons étudiés (phase Bi(La)-2201)*

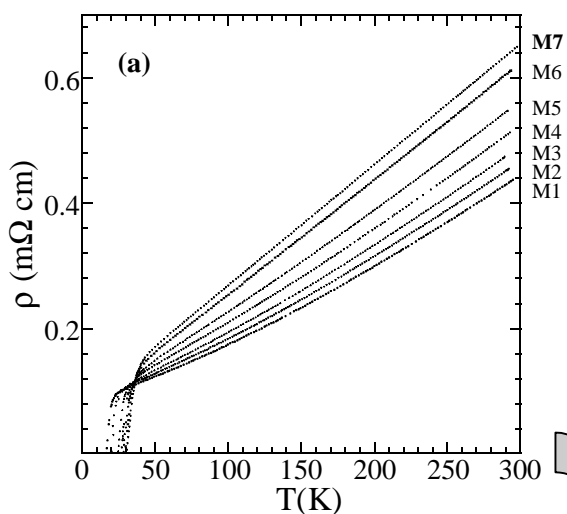
N° de série	nom utilisé	$T_{\text{cmax}}(\text{R}=0)$ (K)	substrat	épaisseur (Å)
280998mb	M	30	SrTiO <sub>3</sub>	950±50
300998ma	L	30	SrTiO <sub>3</sub>	1900±95

De même que dans le cas de la phase Bi-2212, on a commencé l'étude à partir de l'état M1 de l'échantillon M, obtenu par le recuit sous oxygène, avec  $T_c=17$  K. Tous les autres états du même film, présentés dans la figure 3, ont été obtenus successivement par des recuits sous vide.

Une fois que le diagramme de phase a été parcouru entièrement, l'échantillon a été ramené à son état de départ par recuit sous oxygène. L'état de l'échantillon M27 ainsi obtenu et l'état M1 ont la même température critique. Les valeurs de la résistivité à 300 K des deux états diffèrent de moins de dix percent (voir la figure II.5).

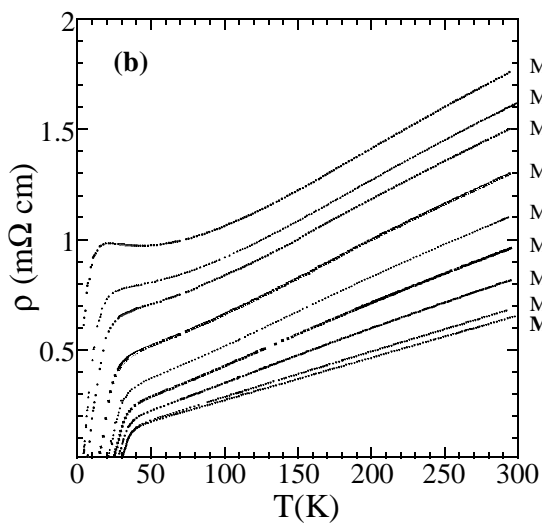
Pour confirmer la variation de  $\rho(T)$  au voisinage de l'état optimal, un certain nombre des états ont été réobtenus. Le grand nombre de recuits effectués sur le même échantillon a eu comme conséquence la diminution de  $T_c$  pour l'état optimal (maintenant 28,5 K au lieu de 30 K) et l'apparition d'un plateau dans le diagramme de phase (cf. A2). Malgré la légère diminution de la température critique  $T_{\text{cmax}}$  la variation de la résistivité en fonction de T au divers états du dopage est restée intacte.





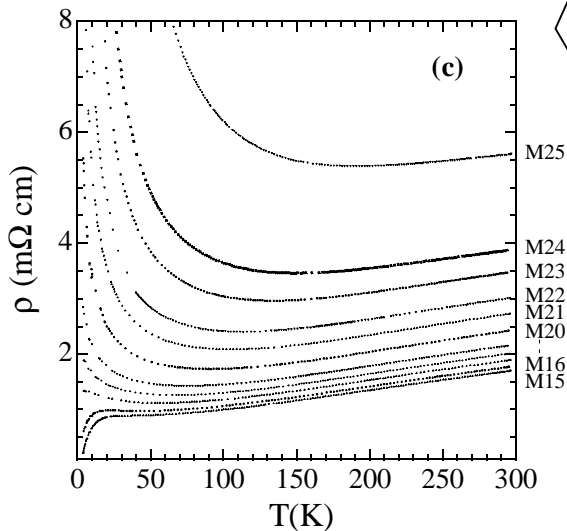
*Figure 3(a) :*

*Les états surdopés du même film M de la phase Bi(La)-2201 obtenus successivement à partir de l'état le plus surdopé par des recuits à basse température. La notation Mn indique la succession n des états. M7 est l'état optimal.*



*Figure 3(b) :*

*Les états sous-dopés du même film. Les courbes  $\rho(T)$  présentent d'abord une courbure négative et pour les états faiblement oxygénés une remontée de la résistivité aux basses températures apparaît.*



*Figure 3(c) :*

*Les états fortement sous-dopés du même film avec  $T_c=0$  et des propriétés semi-conductrices.*

Le même type d'étude a été fait sur l'échantillon L (figure 4), sur lequel on a étudié l'effet Hall en fonction de la température en même temps que  $\rho(T)$  (cf. III.B). L'état de départ est l'état surdopé L1 obtenu par un recuit sous oxygène. Par une série de recuits sous vide, les états L2 jusqu'à L9 ont été obtenus. Une fois le diagramme de phase établi, l'état surdopé L10 a été obtenu par un traitement sous plasma d'oxygène. Les résultats obtenus pour les deux échantillons sont tout à fait comparables et indépendants de l'échantillon choisi.

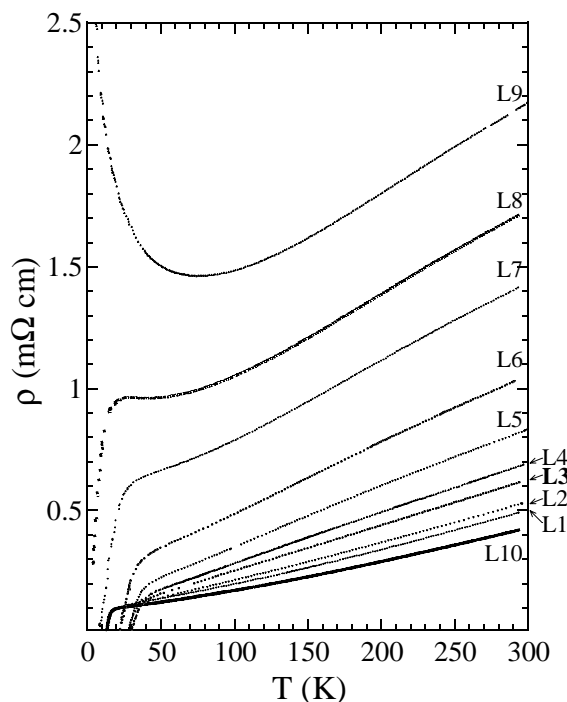


Figure 4 :  
L'échantillon L sur lequel on a suivi la dépendance en température de la résistivité et de l'effet Hall en fonction du dopage. La notation indique la succession des états obtenus. L3 est l'état optimal.

*De façon générale, la résistivité à température ambiante,  $\rho_{300K}$ , augmente à chaque expérience de désoxygénation et elle suit l'état de dopage d'une façon réversible. La température critique,  $T_c$ , augmente en partant de l'état surdopé vers l'état optimal et après elle diminue en allant vers les états de plus en plus sous-dopés jusqu'à l'état purement isolant avec  $T_c=0$ .*

La variation précise de la température critique en fonction de la résistivité à 300 K, en fait de la conductivité  $\sigma_{300K}=1/\rho_{300K}$ , sera présentée dans la suite.

## A2. La dépendance de la température critique en fonction du dopage

Avant de présenter chaque région de dopage séparément, on va montrer le comportement général de  $T_c$  avec le dopage en oxygène pour tous les films de la phase Bi-2212 et Bi(La)-2201.

Comme la stœchiométrie en oxygène ne peut pas être obtenue directement pour les films et comme la conductivité à 300 K change avec chaque recuit de façon reproductible,  $\sigma_{300K}$  peut être utilisée pour déterminer précisément la position dans le diagramme de phase [3]. De plus, il a été montré précédemment que ce paramètre permet de situer l'état du dopage d'une façon comparable à celles existant dans la littérature (les régions sous-dopée et surdopée se trouveront respectivement à gauche et à droite de l'état optimal) [3].

La figure 5 montre la variation de  $T_c$  en fonction de la conductivité réduite, à la température ambiante,  $(\sigma/\sigma_{op})_{300K}$ . Il est nécessaire de normaliser la conductivité  $\sigma_{300K}$  par la conductivité à 300 K pour le dopage optimal,  $\sigma_{op}$ , afin d'éliminer l'incertitude sur les valeurs de l'épaisseur des différents films. De cette façon, on obtient un diagramme de phase général pour tous les échantillons de la phase Bi-2212 ainsi que de la phase Bi(La)-2201, similaire à celui déjà obtenu pour la phase Bi-2201 pure [3].

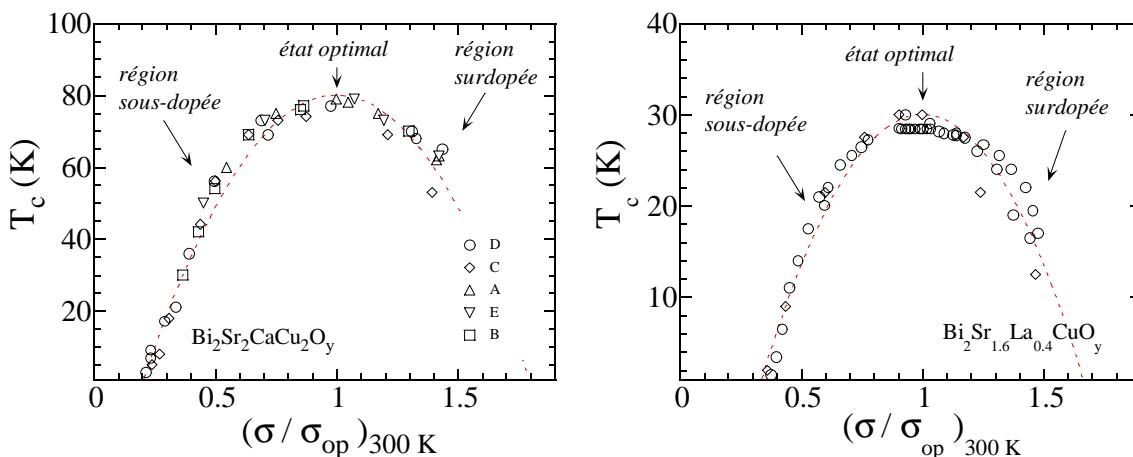


Figure 5 : Courbe unique montrant la variation de  $T_c$  en fonction de  $(\sigma/\sigma_{op})_{300K}$  pour les films minces de la famille (a) Bi-2212 et (b) Bi(La)-2201. La ligne en pointillés représente l'ajustement parabolique décrit dans le texte.

La dépendance de  $T_c$  en fonction du nombre de porteurs peut être décrite par une loi phénoménologique déterminée pour tous les cuprates [4, 5] :

$$\frac{T_c}{T_{c\max}} = 1 - 82,6(p - 0,16)^2 \quad (\text{III.1})$$

où  $p$  représente le nombre de trous par Cu par plan  $\text{CuO}_2$ . Si l'on réécrit cette formule en fonction de la conductivité normalisée par sa valeur optimale on arrive à une équation avec un seul paramètre libre  $A$  qui peut servir pour comparer nos résultats avec cette loi phénoménologique :

$$T_c = T_{c\max} (1 - A \cdot ((\sigma / \sigma_{\text{op}})_{300\text{K}} - 1)^2) \quad (\text{III.2})$$

Les courbes en pointillés sur la figure 5 montrent le résultat de cette comparaison. Les températures critiques maximales prises sont  $T_{c\max}(\text{R}=0)=80$  K et  $T_{c\max}(\text{R}=0)=30$  K respectivement pour la famille Bi-2212 et Bi(La)-2201. Les meilleurs ajustements correspondent à un paramètre  $A_{\text{Bi-2212}}=1,6\pm 0,1$  et  $A_{\text{Bi(La)-2201}}=2,2\pm 0,1$ . Le bon accord entre cette loi parabolique et nos résultats confirme que la conductivité à 300 K peut être utilisée pour caractériser le dopage. Le paramètre  $A_{\text{Bi(La)-2201}}$  est plus en accord avec la valeur  $82,6 \cdot 0,16^2 = 2,1$  que le paramètre  $A_{\text{Bi-2212}}$ .

L'autre confirmation d'une relation étroite entre conductivité et nombre de trous vient de la mesure du nombre de Hall (cf. II.D2). La variation de la température critique peut aussi être représentée en fonction du nombre de Hall (figure 6).

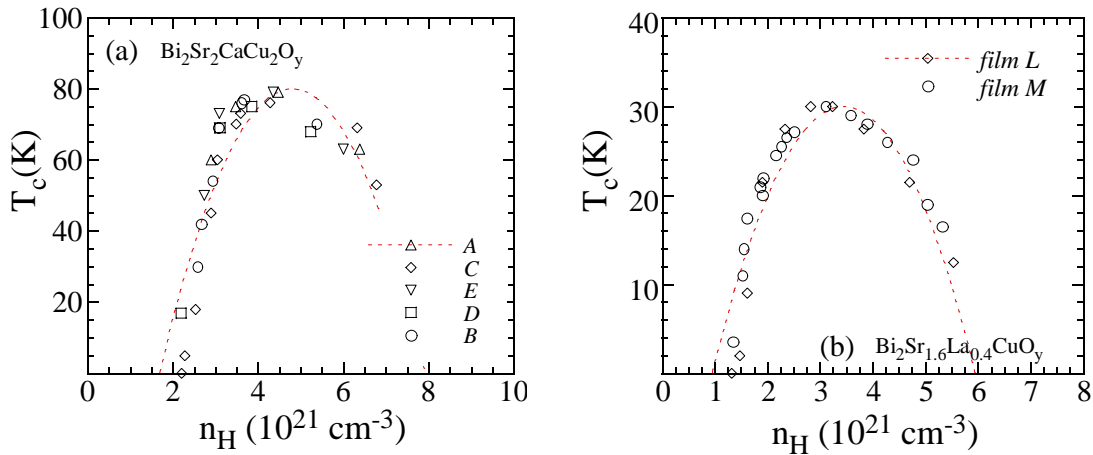


Figure 6 : Variation de  $T_c$  en fonction de nombre de Hall pour la phase (a) Bi-2212 et (b) Bi-2201. La ligne en pointillés représente l'ajustement parabolique, similaire à l'équation (III.2).

L'ajustement parabolique similaire :  $T_c = T_{c\max}(1 - B \cdot (n_H - (n_H)_{op})^2)$  (la ligne en pointillés) avec  $B_{Bi-2212} = (0,10 \pm 0,02) \cdot 10^{-42}$  et  $B_{Bi(La)-2201} = (0,16 \pm 0,02) \cdot 10^{-42}$  ( $(n_{H2212})_{op} \sim 4,8 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$  et  $(n_{H2201})_{op} \sim 3,45 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ ) décrit moins biens les résultats expérimentaux

Pour simplifier la comparaison, on va déterminer à partir de l'ajustement (III.2) (les résultats sur le nombre de Hall ne sont pas assez complets) le nombre de trous par Cu, pour chaque état obtenu :  $p = 0,16 + \sqrt{A/82,6} (\sigma/\sigma_{op})_{300K} - 1$ . On représentera ensuite en fonction de  $p$  la température  $T^*$  et les autres températures caractéristiques pour les films minces de Bi-2212 et Bi(La)-2201.

Enfin, on va comparer les différents choix possibles de la température critique (figure 7). Comme la transition  $\rho(T)$  s'élargit du côté sous-dopé, seule la représentation  $T_c(R=0)$  semble être correcte et donner la loi parabolique en fonction du dopage. A cause de cela et de la coïncidence de  $T_c(R=0)$  avec celle déterminée par la susceptibilité alternative (cf. II.D5), la température critique utilisée pour présenter le diagramme de phase sera  $T_c$  à  $R=0$ . Il faut remarquer aussi que si on choisit la température critique au milieu ou au début de la transition, la température critique maximale va apparaître du côté sous-dopé (vers  $(\sigma/\sigma_{op})_{300K} = 0,8-0,9$ ). Dans ce cas là, la loi linéaire de  $\rho(T)$  dans l'intervalle le plus grand en  $T$  apparaît légèrement du côté surdopé.

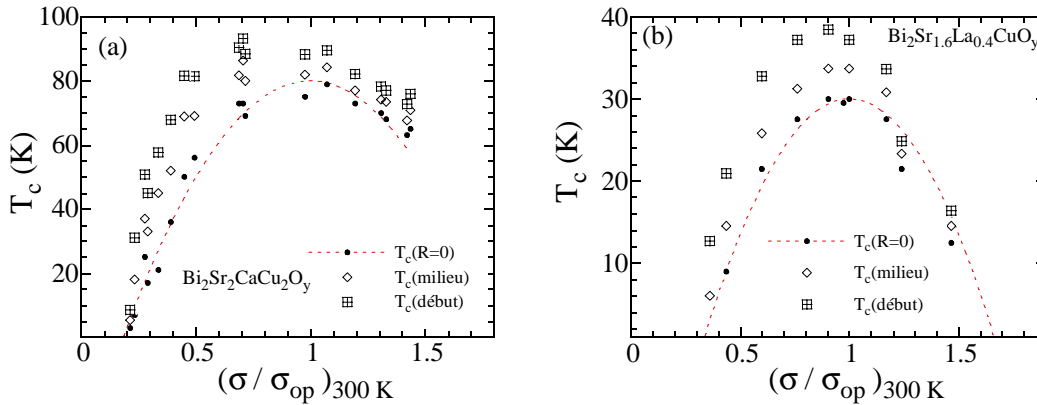


Figure 7 : Les différentes valeurs choisies pour la température critique en fonction de  $(\sigma/\sigma_{op})_{300K}$  :  $T_c$  à  $R=0$ ,  $T_c$  au milieu et  $T_c$  au début de la transition (a) pour les films D et E de la phase Bi-2212 et (b) pour le film L de la phase Bi(La)-2201. La ligne en pointillés montre l'ajustement déterminé sur la figure précédente.

### A3. Les différents comportements de $\rho(T)$ selon la position dans le diagramme de phase

Dans la suite, les résultats présentés pour les phases Bi-2212 et Bi(La)-2201 seront discutés pour chaque région séparément.

#### (a) Région surdopée

Comme on l'a déjà remarqué (cf. II.D1), les courbes de la résistivité en fonction de la température présentent une courbure positive, d'autant plus accentuée que les états sont plus surdopés. La loi phénoménologique  $\rho(T)=\rho_0+\alpha'T^n$  s'applique dans le plus grand intervalle de T pour tous les cuprates dans la région surdopée.

Cette loi phénoménologique a été d'abord observée pour les composés avec un seul plan  $\text{CuO}_2$ . La valeur de n augmente avec le dopage en porteurs, p, et la valeur maximale observée varie selon le composé :  $n_{\text{max}}=1,3$  pour l'état métallique de  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_y$  [3],  $n_{\text{max}}=1,5$  dans le cas de  $\text{La}_{1,7}\text{Sr}_{0,3}\text{CuO}_4$  [6] et  $n_{\text{max}}=1,88$  dans le cas de  $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_{6,1}$  [7].

Pour mettre en évidence cette loi phénoménologique pour les états surdopés des films de la phase Bi-2212 et Bi(La)-2201, on a réécrit la formule ci-dessus sous la forme :

$$\ln(\rho - \rho_0) = \ln \alpha' + n \ln T \quad (\text{III.3})$$

et on a représenté  $\ln(\rho-\rho_0)$  en fonction de  $\ln T$  (figure 8).

Les valeurs de  $\rho_0$  utilisées pour cette représentation ainsi que les valeurs déterminées pour  $\alpha'$  et n sont portées en fonction du nombre de porteurs, p, pour tous les échantillons sur la figure 9. Elles ont été déterminées pour chaque état, à partir de l'ajustement sur le plus grand intervalle de température.

Comme il s'agit de plusieurs films de la phase Bi-2212, les valeurs de  $\rho_0^1$  sont dispersées entre 40 et 60  $\mu\Omega\text{cm}$  et elles sont du même ordre de grandeur que celles observées dans le cas de monocristaux ( $\rho_0 \sim 25-50 \mu\Omega\text{cm}$ ) [8]. Elles sont inférieures, d'un facteur 1,5-2, à celles de Bi(La)-2201 (encart de la même figure) ce qui correspond à un rapport des

---

<sup>1</sup> La résistivité résiduelle,  $\rho_0$ , est principalement liée aux imperfections dans le plan  $\text{CuO}_2$ .

résistances résiduelles par carré<sup>2</sup> de  $\rho_{\square 2212}/\rho_{\square 2201}=1,2-1,6$ . La résistivité résiduelle de la phase Bi(La)-2201 ne varie pas beaucoup en fonction de la teneur en oxygène d'un même film (figure 8). Ces valeurs, comprises entre 75 et 100  $\mu\Omega\text{cm}$ , correspondent bien à celles de  $\rho_0$  des états surdopés des monocristaux  $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_6$  ( $\rho_0 \sim 50 \mu\Omega\text{cm}$ ) [9].

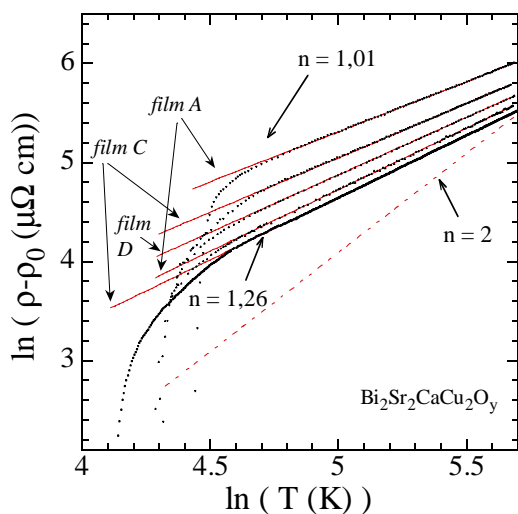
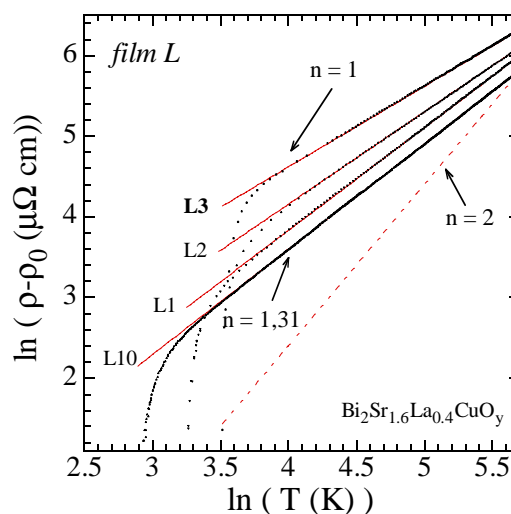
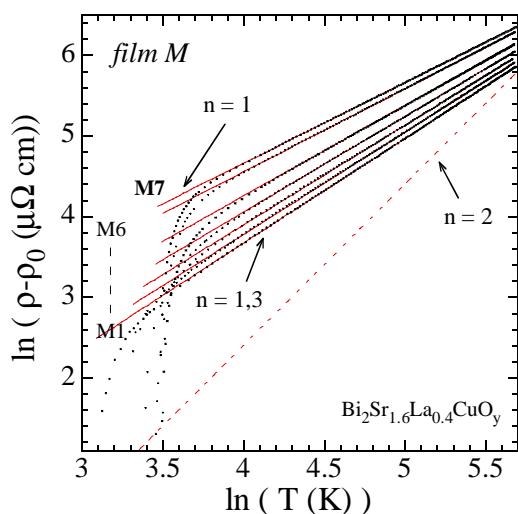


Figure 8 :

Une représentation classique donnant  $\ln(\rho-\rho_0)$  en fonction de  $\ln T$ . Les lignes en pointillés présentent l'ajustement à l'équation (3) pour les états surdopés ci-contre, des films A, C et D de la phase Bi-2212 et ci-dessous, des films M et L de la phase Bi(La)-2201. La ligne en tirets pointillés donne la loi en  $T^2$  attendue dans le modèle de liquide de Fermi.



Le coefficient  $\alpha'$  augmente progressivement pour les deux phases quand on s'approche de l'état optimal. Le rapport entre les valeurs de  $\alpha'$  de la phase Bi(La)-2201 et Bi-2212 varie entre 1 et 1,5 (encart de la même figure).

<sup>2</sup>  $\rho_{\square} = \rho / (c/2)$  où c est valeur du paramètre selon l'axe c

A l'état optimal les valeurs de  $\alpha^3$  sont en accord avec les valeurs correspondantes des monocristaux Bi-2212 ( $\alpha \sim 1,2 \mu\Omega\text{cm/K}$ ) [8] et  $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_6$  ( $\alpha \sim 1,7 \mu\Omega\text{cm/K}$ ) [9]. Au dopage optimal, le rapport entre les pentes  $\alpha_{2201}/\alpha_{2212} = 1,85/1,25 = 1,48$  correspond bien au rapport entre les nombres de Hall :  $n_{\text{H}2212}/n_{\text{H}2201} = 4,8/3,4 = 1,41$ , ce qui suggère la relation  $\alpha \sim 1/n_{\text{H}}$ .

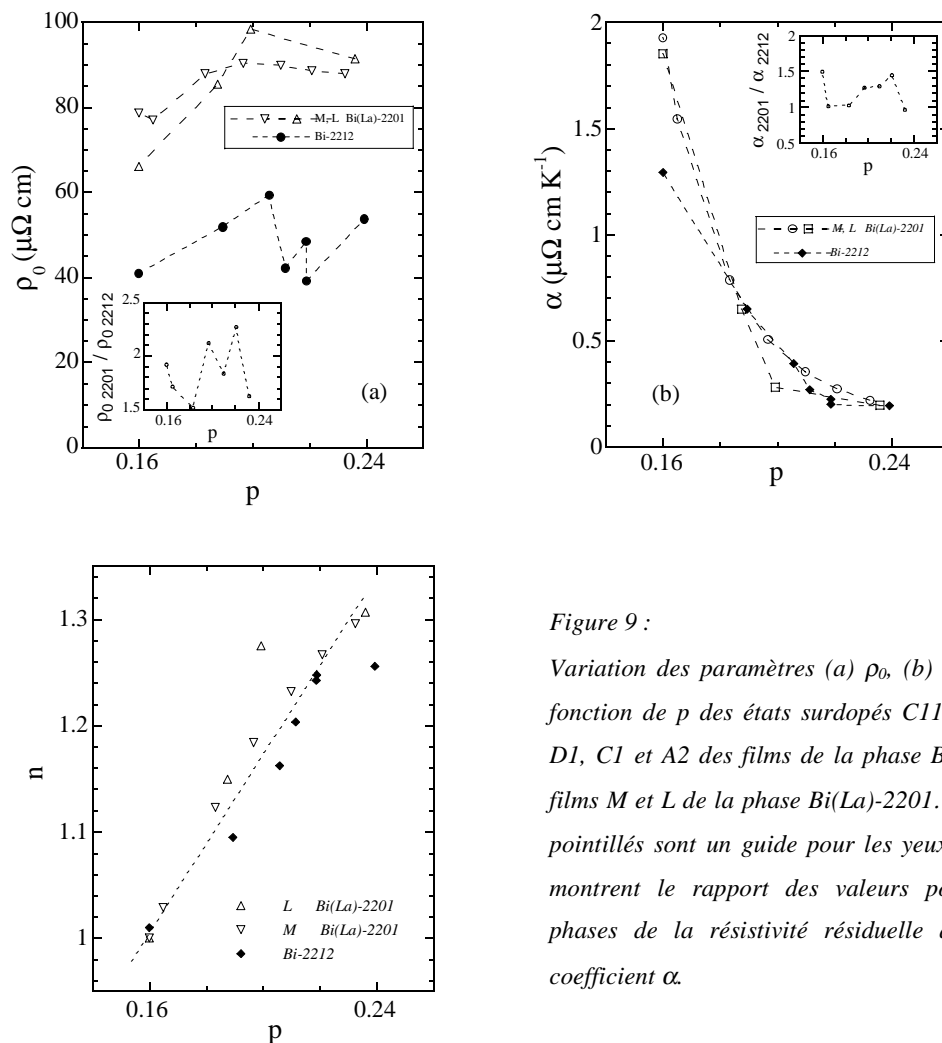


Figure 9 :

Variation des paramètres (a)  $\rho_0$ , (b)  $\alpha$  et (c)  $n$  en fonction de  $p$  des états surdopés C11, E1, A1, B1, D1, C1 et A2 des films de la phase Bi-2212 et des films M et L de la phase Bi(La)-2201. Les lignes en pointillés sont un guide pour les yeux. Les encarts montrent le rapport des valeurs pour les deux phases de la résistivité résiduelle ainsi que du coefficient  $\alpha$ .

L'exposant  $n$  diminue de façon approximativement linéaire depuis sa valeur maximale pour l'état le plus surdopé ( $n_{\text{max}} = 1,26 \pm 0,01$  et  $n_{\text{max}} = 1,31 \pm 0,01$  respectivement pour Bi-2212 et Bi(La)-2201) jusqu'à 1 qui correspond à la loi linéaire valable pour l'état optimal (même figure).

<sup>3</sup> Pour  $n=1$ , la loi utilisée dans la suite sera  $\rho_0 + \alpha^*T = \rho_0 + \alpha T$ .



La valeur maximale  $n_{\max}=1,26$  de Bi-2212 correspond à l'état C11 ( $T_c=53$  K), obtenu par un traitement sous plasma d'oxygène. Tous les autres états, E1, A1, B1, D1 et C1 (A2 est l'état optimal), ont été obtenus par un recuit sous oxygène et selon l'échantillon la température critique est abaissée jusqu'à 70 K ou au plus jusqu'à 63 K. La différence entre les échantillons a été attribuée à une petite variation de la composition entraînée par la substitution cationique qui peut changer les différents niveaux du dopage atteints.

Egalement, la valeur  $n_{\max}=1,31$  de Bi(La)-2201 correspond à l'état L10, obtenu par le traitement sous plasma. La température critique correspondante est  $T_c=12$  K par rapport aux  $T_c=17$  K de l'état M1 et  $T_c=21$  K de l'état L1, obtenus par un recuit sous oxygène. Tous les autres états sont réalisés par une série de recuits sous vide.

D'une façon générale, les états purement métalliques ( $T_c=0$ ) ne peuvent pas être atteints dans le cas de Bi-2212 et Bi(La)-2201 alors qu'ils le sont pour la phase Bi-2201 pure. Malgré la différence d'état électronique atteint au dopage maximal, les valeurs de  $n_{\max}$  de Bi-2201 pur et Bi(La)-2201 sont les mêmes ( $n_{\max}=1,3$  pour Bi-2201 pur [3]) et un peu plus grandes que  $n_{\max}=1,26$  obtenu pour Bi-2212. Comme il s'agit du même réservoir de charges pour les deux phases, la différence entre elles peut provenir de la distribution des charges entre deux plans  $\text{CuO}_2$  dans la phase Bi-2212.

Enfin, il faut remarquer que les valeurs maximales de l'exposant  $n$ , dépendant principalement du réservoir de charges, de la famille  $\text{BiSr(La)CaCuO}$  restent relativement faibles par rapport à celles des familles Tl-2201 et LaSrCuO respectivement avec  $n_{\max}=1,88$  (état purement métallique) [7] et  $n_{\max}=1,5$  (état encore supraconducteur) [4]. Si l'on considère que la valeur  $n=2$  (la plus approchée par le système Tl-2201 pour l'état le plus surdopé) vient des interactions entre les électrons dans le modèle de liquide de Fermi, ces interactions diminuent avec la diminution des porteurs au profit du mécanisme responsable de la loi linéaire de  $\rho(T)$  à l'état optimal.

*On peut conclure que le comportement de  $\rho(T)$  dans la région surdopée est tout à fait similaire pour les deux phases et il est bien décrit par la loi phénoménologique  $\rho_0 + \alpha T^n$ . La valeur maximale de l'exposant  $n$  reste relativement faible mais sa variation monotone entre 1,3 et 1 permet de situer le niveau du dopage du côté surdopé.*

(b) Région sous-dopée

(i) Détermination de  $T^*$

La variation linéaire de la résistivité en fonction de la température à l'état optimal a été soulignée principalement dans le cas de la phase Bi-2201 [1]. La décroissance plus rapide que la loi linéaire de  $\rho(T)$  à partir de la température  $T^*$  est vue, pour la première fois pour un composé à un seul plan  $\text{CuO}_2$ , dans le cas de  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  [10]. L'effet du "pseudogap" observé par la mesure du transport électronique a été confirmé récemment dans le cas des monocristaux de  $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_6$  en fonction du dopage par substitution de différentes concentrations  $x$  de lanthane [9].

Les premières études de la phase Bi-2212 en fonction du dopage sont rapportées dans le cas de monocristaux [11, 12]. La décroissance plus rapide que la loi linéaire de la résistivité quand  $T$  diminue à partir de la température  $T^*$  a été d'abord établie pour les cuprates à deux plans  $\text{CuO}_2$  dans le cas de monocristaux [13] et de films d'YBCO [14, 15] et plus récemment dans le cas des monocristaux de Bi-2212 [8, 16]. On a observé le même type de comportement attribué à l'ouverture du pseudogap dans le cas des films Bi-2212 [17], rapporté ci-dessous.

Pour mettre en évidence la déviation de  $\rho(T)$  par rapport à la loi linéaire observée pour l'état optimal on utilise la même représentation que dans la chapitre II.D1. Les états sous-dopés (D2, D3, D6, D7 et C2, C3, C4, C5) ainsi que les états surdopés D1 et C1 (afin de remarquer la différence dans le comportement de  $\rho(T)$  entre les deux régions) des échantillons D et C sont considérés sur la figure 10(a,b). Egalement, les états au voisinage de l'état optimal pour les films M et L de la phase Bi(La)-2201 sont représentés sur la figure 10(c,d).

Les valeurs de  $T^*$ , ainsi déterminées, correspondent bien à la température qui limite inférieurement la partie constante de la dérivé première  $d\rho/dT$  en fonction de  $T$  (figures 12-14 dans la partie suivante).

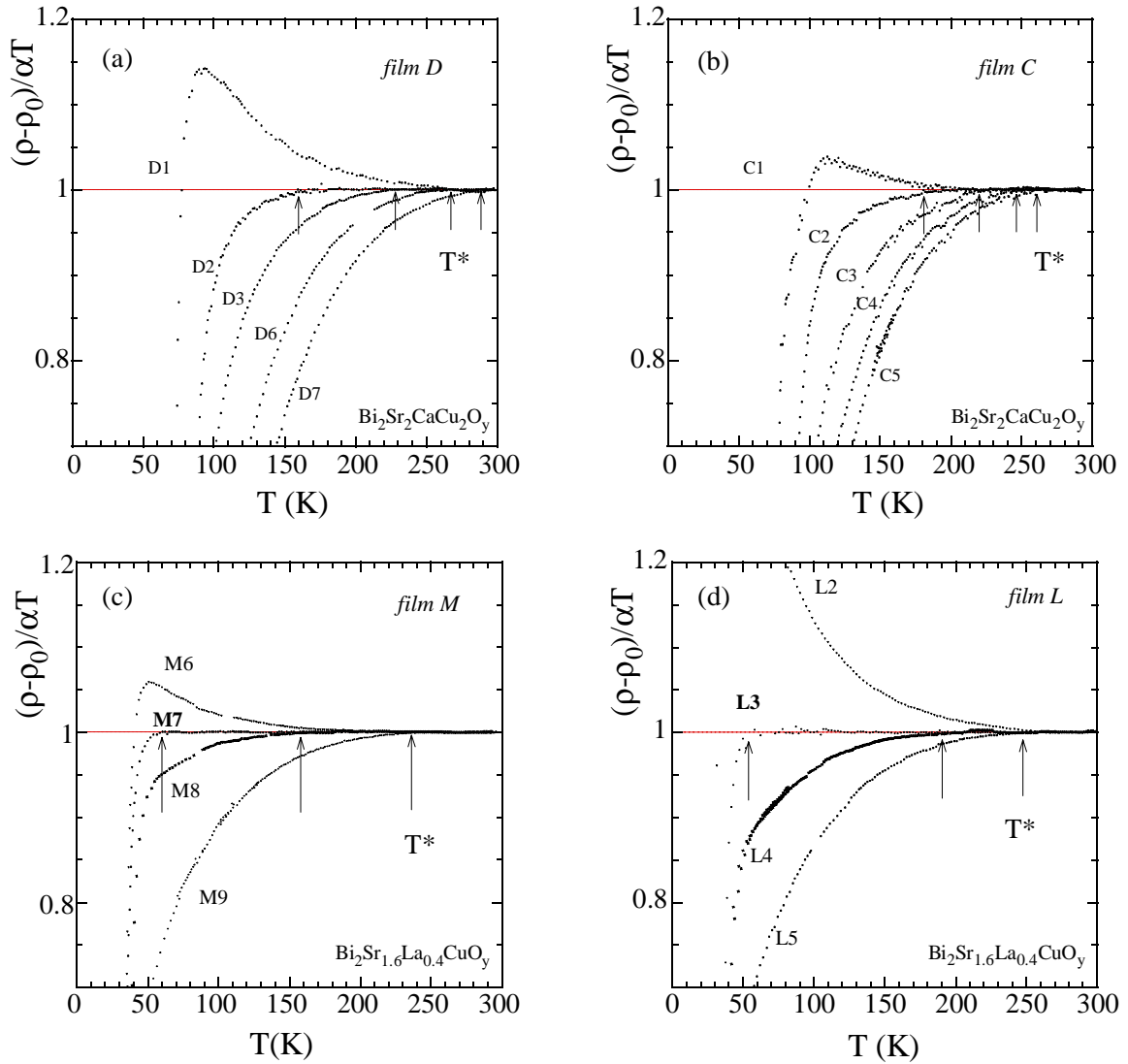


Figure 10 : La quantité  $(\rho-\rho_0)/\alpha T$  en fonction de  $T$  (a) pour l'état surdopé D1 et les états sous-dopés D2, D3, D6 et D7 du film D, (b) pour l'état surdopé C1 et les états sous-dopés C2, C3, C4 et C5 du film C, (c) pour l'état surdopé M6, l'état optimal M7 et les états sous-dopés M8 et M9 du film M et (d) pour l'état surdopé L2, l'état optimal L3 et les états sous-dopés L4 et L5 du film L. Les valeurs utilisées de  $\rho_0$  et  $\alpha$  pour les états sous-dopés sont données ultérieurement sur la figure 16. Les flèches indiquent la température  $T^*$  à partir de laquelle la loi linéaire de  $\rho(T)$  ne s'applique plus.

Dans le cas des états où la valeur de l'intervalle linéaire de  $\rho(T)$  est plus étroite que 50 K (ici C5, D6 et D7), la détermination de  $T^*$  commence à être incertaine parce qu'on peut toujours trouver une variation linéaire sur un petit intervalle de  $T$  alors qu'elle n'existe pas réellement (voir le cas des états surdopés C1 et D1). Les autres états sous-dopés des films D,

C, M et L ne sont pas présentés parce que l'intervalle où  $\rho(T)$  suit la loi linéaire à haute température sort de l'intervalle de mesure. On a déterminé  $T^*$  de la même façon pour les deux autres films B et E.

*La température  $T^*$  augmente quand le dopage diminue, contrairement au comportement de la température critique dans cette région.*

Le diagramme de phase correspondant sera présenté ensuite.

### (ii) Détermination de $T_1$

Une autre température caractéristique,  $T_1$ , peut être déterminée à partir du maximum de la dérivée première  $d\rho/dT$  en fonction de la température, présentée sur la figure 11 pour le film D.

Comme on l'a déjà discuté au sujet de la figure II.7(b),  $d\rho/dT$  pour l'état surdopé D1 décroît lorsque  $T$  décroît. L'état sous-dopé D2 (au voisinage de l'optimal), ainsi que D3 montrent une valeur constante de  $d\rho/dT$  (la valeur de la pente  $\alpha$ ) dans un intervalle de  $T$  à haute température (au-dessus de  $T^*$ ), au-dessous duquel  $d\rho/dT$  augmente quand  $T$  diminue. A partir de l'état sous-dopé D8, un maximum se développe (figure 11 (b)) qui correspond à un point d'inflexion de  $\rho(T)$  et la température où il se produit est nommée  $T_1$ . La courbure d'abord négative, caractéristique générale des états sous-dopés, devient positive à plus basse température. Ce maximum est présent même dans le cas des états fortement sous-dopés avec  $T_c=0$  (l'état D11).

Les films A, B et E montrent les mêmes caractéristiques mais ils ne développent pas le point d'inflexion comme le film C qui a été étudié dans une région plus grande de dopage. La dérivée première de  $\rho(T)$  de cinq états caractéristiques du film C est représentée sur la figure 12. Ces états montrent le même comportement que celui déjà établi dans le cas du film D (figure 11). Le point d'inflexion se développe à partir de l'état sous-dopé C6 ( $T_c=18$  K) et il peut être défini pour tous les autres états de la région sous-dopée avec une température critique plus faible que 18K dans le cas de l'échantillon C.

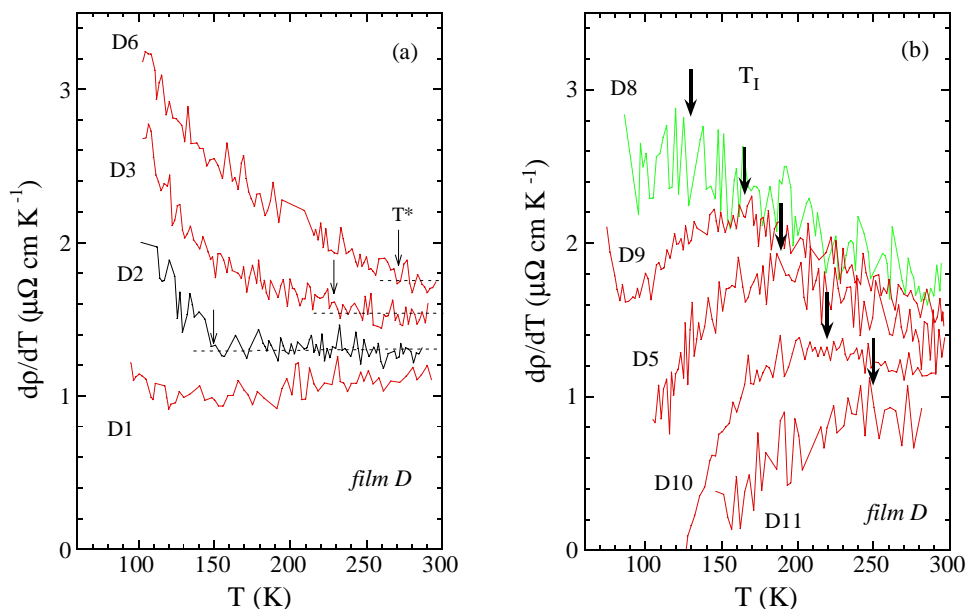


Figure 11 : La dérivée première  $dp/dT$  en fonction de  $T$  pour quelques états du film D : (a) à partir de D1 jusqu'à D6 et (b) à partir de D8 jusqu'à D11. Sur la figure (b) un maximum peut être défini à  $T_I$ , indiquée par des flèches en gras, qui correspond au point d'inflexion de  $\rho(T)$ . Les valeurs de  $T^*$  sont aussi indiquées par des flèches en trait fin (a).

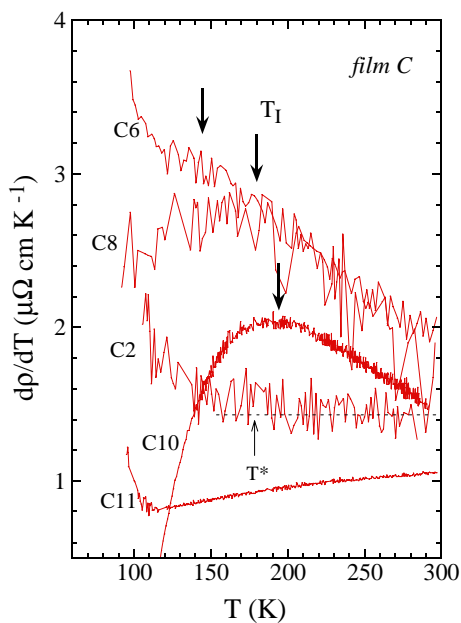


Figure 12 :

Les courbes  $dp/dT$  en fonction de  $T$  pour cinq états du film C : l'état surdopé C11 (obtenu par un traitement sous plasma), les états sous-dopés C2, C6, C8 et l'état C10 avec  $T_c=0$ . En se déplaçant depuis la région surdopée vers la région sous-dopée le point d'inflexion se développe à partir de l'état sous-dopé C6.

Le même type de courbes a été retrouvé dans le cas des films M et L de la phase Bi(La)-2201 (figure 13). La température caractéristique,  $T_I$ , apparaît dès que l'on arrive dans la région sous-dopée (les flèches en gras indiquent les points d'inflexion ainsi déterminés) et il peut être défini pour tous les états suivants.

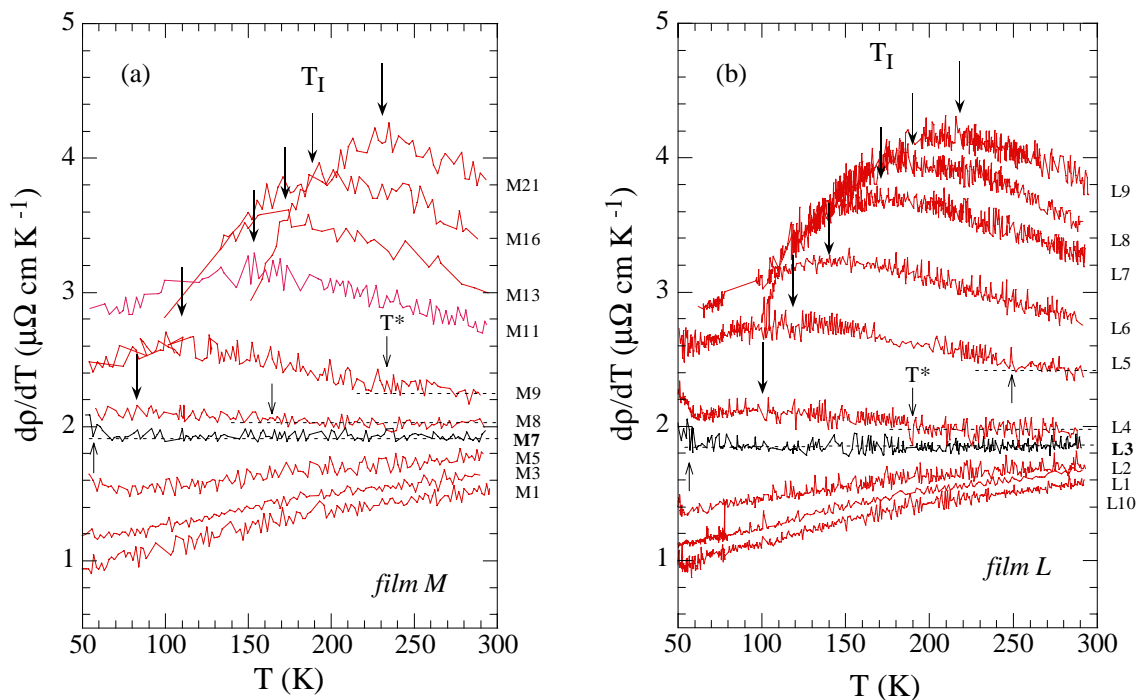


Figure 13 :  $dp/dT$  en fonction de  $T$  pour quelques états caractéristiques (a) du film M et (b) du film L. Les flèches (en trait gras) montrent le maximum qui apparaît à partir des états M8 et L4 respectivement dans le cas du film M et L. Les valeurs de  $T^*$  sont aussi indiqués par des flèches (en trait fin).

La température caractéristique,  $T_I$ , montre le même comportement que  $T^*$  en fonction du dopage. Elle peut être définie du côté sous-dopé pour tous les états de la phase Bi(La)-2201 tandis que dans le cas de la phase Bi-2212 elle est visible seulement pour les états fortement sous-dopés.

Comme en le verra dans la suite, le rapport entre les deux températures caractéristiques est fixe et vaut environ 2 :  $T_I/T^* \sim 2$ .

(iii) Lois d'échelle

Dans le cas de films d'YBCO, une superposition des courbes  $\rho(T)$  du côté sous-dopé a été observée en normalisant  $T$  par  $T^*$  et la résistivité par sa valeur à  $T^*$  [14]. Dans le cas où la résistivité résiduelle est grande il faut la soustraire à cause de la contribution de la diffusion des électrons par des défauts qui semble être additive et dépendante de l'échantillon [18].

Nous observons une superposition des courbes de  $\rho(T)$  du côté sous-dopé dans le cas de nos films en soustrayant cette partie résiduelle  $\rho_0$  [19]. Sur les figures 14 et 16, la variation de  $(\rho(T) - \rho_0)/(\rho(T^*) - \rho_0)$  est représentée en fonction de  $T/T^*$ , montrant l'existence d'une relation universelle entre cette quantité et la température réduite pour *chaque phase*. Les encarts des mêmes figures montrent la même superposition pour la dérivée première  $d\rho/dT$ , normalisée par sa valeur  $\alpha$  (pour  $T > T^*$ ), en fonction de  $T/T^*$  qui montre que le rapport entre les deux températures caractéristiques  $T_I$  et  $T^*$  est environ 2.

La superposition est observée dans un intervalle de température s'étendant jusqu'à  $T \sim 0,2-0,3 T^*$ . Cependant, un certain nombre de courbes montre une déviation par rapport à cette courbe universelle à  $T$  plus élevée à cause de l'apparition de la supraconductivité (on peut ainsi estimer la température où les fluctuations supraconductrices commencent : entre 100 et 120 K pour la phase Bi-2212 et entre 55 et 70 K pour la phase Bi(La)-2201). Egalement, une déviation se produit à cause des effets de localisation qui apparaissent pour les états fortement sous-dopés et qui entrent en compétition avec les effets de pseudogap. Il faut remarquer aussi que la superposition existe même pour les états isolants (D11, C10, M17 et L9) sur un intervalle entre 150 K et 300 K, ce qui suggère que la supraconductivité et l'effet de pseudogap ne sont pas obligatoirement liés entre eux.

Pour obtenir cette superposition, on a utilisé les paramètres  $\rho_0$ ,  $\alpha$  et  $T^*$  déjà déterminés pour les états présentés sur la figure 10, tandis que pour les autres états on a déterminé d'abord la résistivité résiduelle (qui par soustraction de cette dernière permet d'avoir des courbes parallèles dans une représentation log-log). Une fois le point d'inflexion apparu, la translation des courbes par rapport à l'axe représentant la température a été fixée ( $T_I$ ) et la translation selon l'autre axe est déterminée de façon unique (donnée par la valeur de la pente  $\alpha$ ).

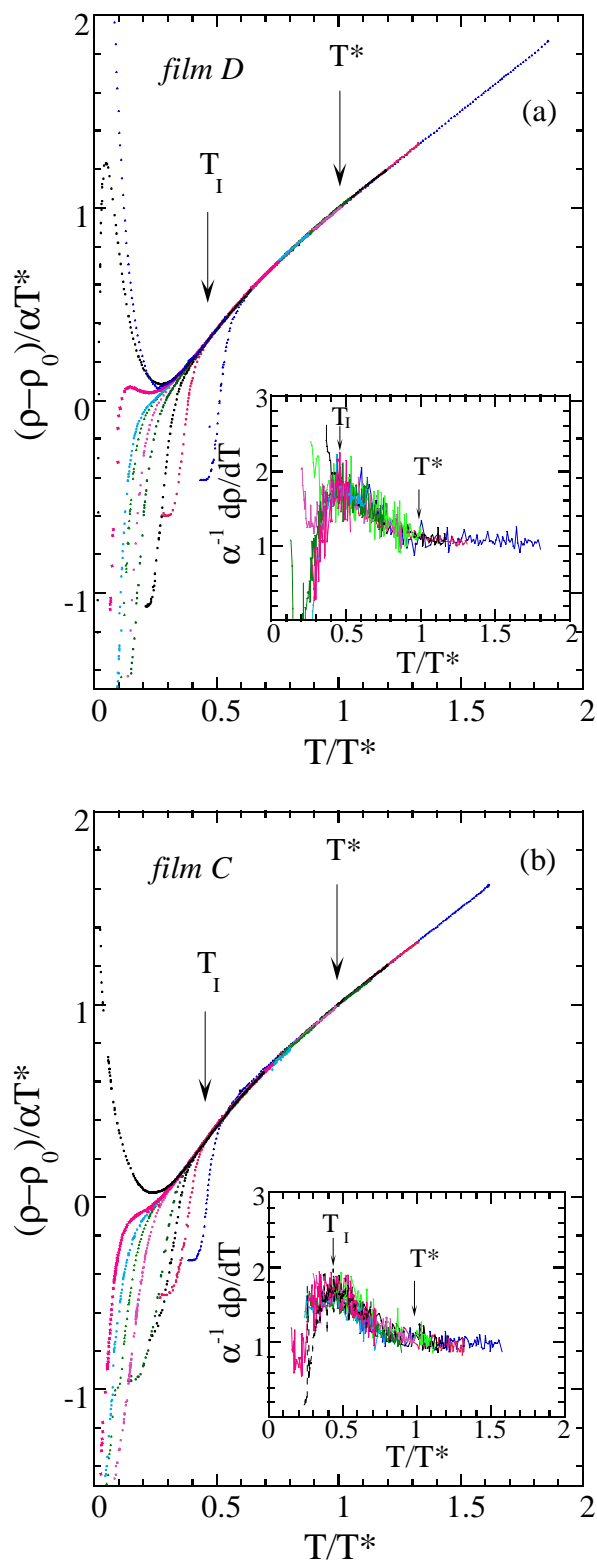


Figure 14 : Résultat de la superposition des courbes  $(\rho(T) - \rho_0) / \alpha T^*$  ainsi que des courbes de la dérivée  $\alpha^{-1} dp/dT$  (encart) en fonction de  $T/T^*$  pour (a) le film D et (b) le film C de la phase Bi-2212 à différents états de dopage.



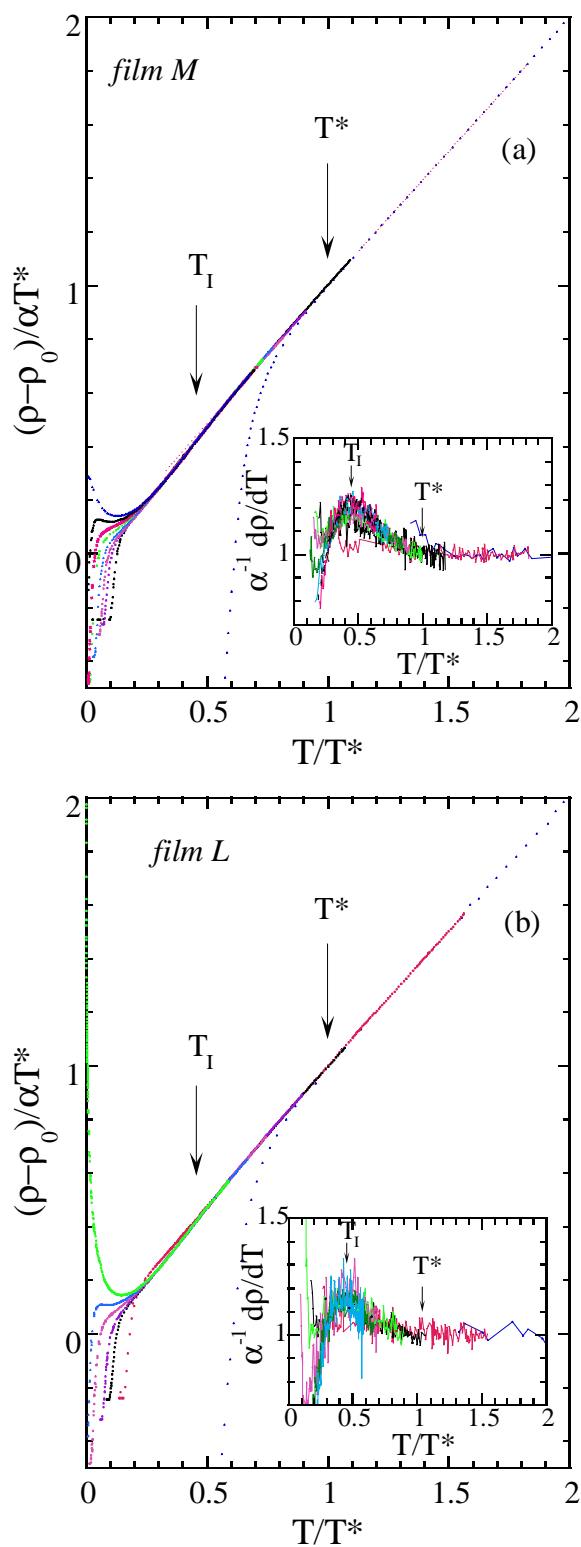


Figure 15 : Résultat de la superposition des courbes  $(\rho(T)-\rho_0)/\alpha T^*$  ainsi que des courbes de la dérivée  $\alpha^{-1} dp/dT$  (encart) en fonction de  $T/T^*$  pour (a) le film M et (b) le film L de la phase Bi(La)-2201 à différents états de dopage.

Les paramètres utilisés afin d'obtenir la superposition sont présentés sur la figure 16.

La résistivité résiduelle  $\rho_0$  monte rapidement quand le dopage diminue et elle représente la diffusion des porteurs par des défauts dont la densité augmente avec chaque recuit (figure 16(a)). Le paramètre qui quantifie la contribution du désordre à 2D s'évalue à partir de la résistivité par carré  $\rho_{\square}$  :  $k_f \ell = (h/e^2)/\rho_{\square}$  avec la longueur de diffusion élastique  $\ell$  et le vecteur de Fermi  $k_f$ . La dépendance en fonction du dopage de  $k_f \ell$  est similaire dans la phase Bi-2212 et Bi(La)-2201. Au-dessous de  $p \sim 0,08$ , le rapport  $\rho_{02212}/\rho_{02201}$  augmente plus rapidement (encart de la même figure) ce qui diminue  $k_f \ell$  un peu plus rapidement dans la phase Bi-2212 que dans la phase Bi(La)-2201. La transition supraconducteur-isolant apparaît respectivement pour la phase Bi-2212 et Bi(La)-2201 autour d'une valeur de  $(k_f \ell)_{2212} \sim 1,7$  et  $(k_f \ell)_{2201} \sim 3$ .

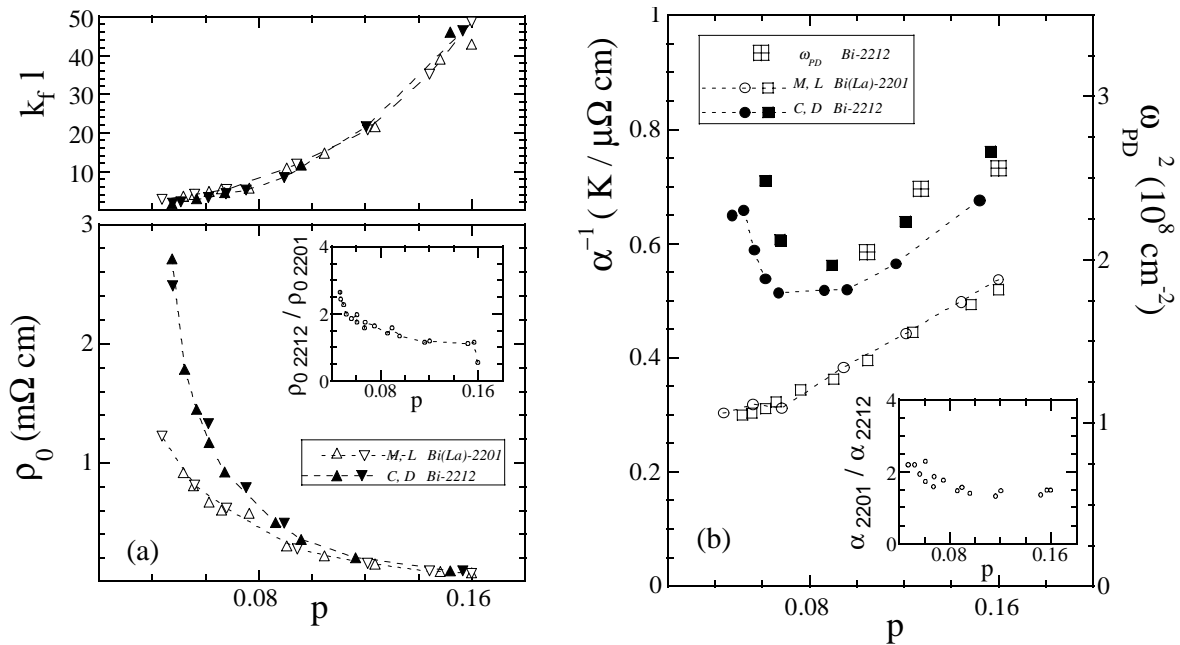


Figure 16 : Variation en fonction du dopage des paramètres (a)  $\rho_0$  et  $k_f \ell$  (voir le texte) et (b)  $\alpha^{-1}$  du film D et C (les symboles vides) et du film M et L (les symboles pleins) permettant d'obtenir une courbe unique. La variation de  $\omega_p^2$  de la phase Bi-2212 en fonction du dopage [20] est montrée avec celle de  $\alpha^{-1}$ . Les lignes en pointillés sont un guide pour les yeux. L'encart de la même figure montre la variation en fonction du dopage du rapport (a)  $\rho_{02212}/\rho_{02201}$  et (b)  $\alpha_{2212}^{-1}/\alpha_{2201}^{-1}$ .

La pente  $\alpha$  d'abord augmente du côté surdopé et ensuite elle diminue quand on s'approche de plus en plus des états isolants.

A partir de la même variation en fonction de  $p$  de  $\alpha^{-1}$  et  $\omega_p^2$ , où  $\omega_p$  est la fréquence de plasma, dans le système YBCO tout le changement de la résistivité en fonction de dopage a été attribué au changement du nombre de porteurs ( $\omega_p^2 \sim n/m^*$  dans le modèle de Drude) [13]. En suivant la même idée on a représenté, sur la figure 16(b), la variation de  $\alpha^{-1}$  et  $\omega_p^2$  en fonction du dopage. Les valeurs des fréquences de plasma utilisées pour cette comparaison ont été déterminées à partir de la mesure de conductivité optique dans plan (a,b) sur les monocristaux de Bi-2212 dans la référence [20]. Comme dans le cas d'YBCO, l'augmentation de la pente  $\alpha$  jusqu'à  $p \sim 0,07$  semble principalement être due à la diminution de la fréquence de plasma et donc due à la diminution de nombre du porteurs dans la phase Bi-2212. Cependant, cette conclusion ne semble pas tout à fait évidente en ce qui concerne les résultats récents de la conductivité optique sur les mêmes films de la phase Bi-2212 qui montrent aussi une variation importante de  $\tau^{-1}$  en fonction du dopage [21].

Le rapport entre les pentes  $\alpha$  de la phase Bi(La)-2201 et Bi-2212 reste approximativement constant ( $\sim 1,5$ ) entre  $p=0,16$  et  $p=0,07$ , valeur à partir de laquelle la variation de  $\alpha$  de la phase Bi-2212 ne peut plus être expliquée par la diminution du nombre de porteurs (encart de la même figure).

*Le comportement similaire des composés YBCO avec une anisotropie beaucoup plus faible que celle de Bi-2212 (cf. IV.B1) montre que l'effet de pseudogap n'est pas lié à la dimensionalité du système, mais qu'il s'agit d'une propriété intrinsèque des plans  $\text{CuO}_2$ . D'autre part, les superpositions des courbes indiquent que le mécanisme dominant de diffusion (principalement attribué à changement de  $\tau^{-1}$  avec la température) reste le même quand le nombre de porteurs diminue, en allant de l'état optimal jusqu'à l'état fortement sous-dopé avec  $T_c=0$ , avec une énergie caractéristique  $T^*$  qui augmente en même temps.*

*En fin, on peut déjà remarquer que l'effet de pseudogap est plus marqué dans la phase Bi-2212 que dans la phase Bi(La)-2201.*

La comparaison plus détaillée entre les deux phases sera présentée dans la suite.

L'existence d'une loi d'échelle en fonction de la température réduite  $T/T^*$  a été également suggérée pour le coefficient de Hall [14] et le pouvoir thermoélectrique [22] pour le système YBCO du côté sous-dopé.

(iv) Diagramme de phase universel

Les températures caractéristiques  $T^*$  et  $T_I$  suivent une même variation en fonction du dopage pour tous les films de la phase Bi-2212 et de la phase Bi(La)-2201 (figure 17). On peut distinguer trois différents régimes concernant la dépendance de la température caractéristique  $T^*$  en fonction de  $p$ . Autour de l'état optimal,  $T^*$  augmente très rapidement quand  $p$  diminue pour arriver à une région où elle augmente approximativement de façon linéaire avec le nombre de trous, effet rapporté pour les systèmes YBCO, Bi-2212 et Hg-1212 [23]. On retrouve aussi cette variation linéaire pour le point d'inflexion  $T_I$  qui montre un changement de la pente à  $p \sim 0,06$  pour les deux phases. Ce changement de la pente est également présenté par  $T^*(p)$  ( $T^* \sim 2T_I$ ) et on se trouve ensuite dans la troisième région caractéristique où  $T^*$  augmente plus rapidement quand  $p$  diminue. Ce changement de la pente est étroitement lié à l'apparition du changement d'un comportement métallique vers un comportement isolant à une température  $T_M$  (voir la figure 25 dans A3(c)).

On peut remarquer que le changement de la pente de la courbe représentant la température caractéristique  $T_I(p)$ , influencé par l'apparition de la transition métal-isolant (cf. III.A3(c)), ne signifie pas obligatoirement que  $T^*$  reste dans un rapport 2 avec  $T_I$  (la superposition des courbes  $\rho(T)$  observée pour ces états peut être un artefact dû à un intervalle de validité réduit) et  $T^*$  n'est alors plus accessible.

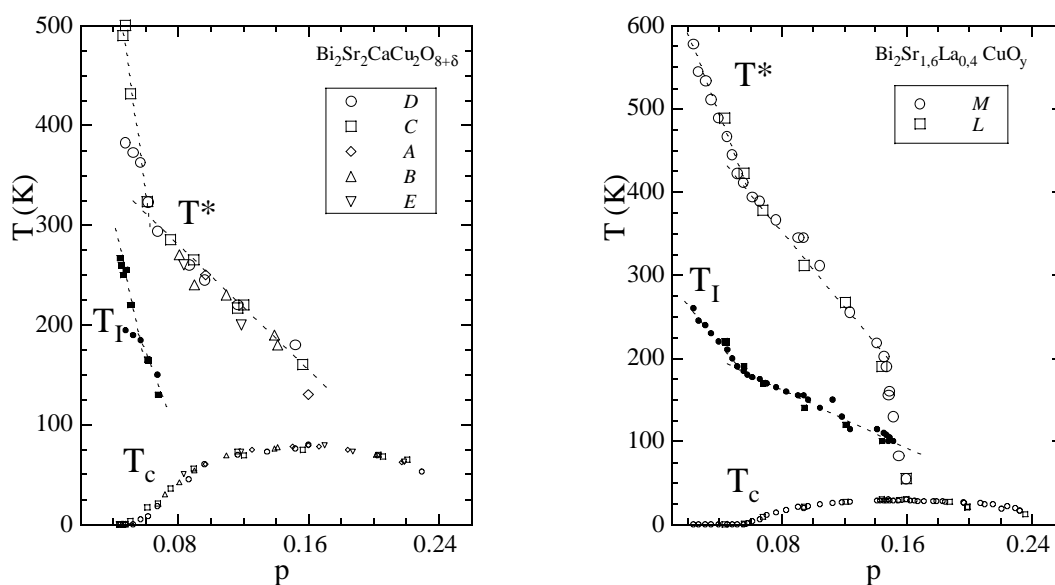


Figure 17 : Le diagramme de phase (température vs dopage) pour tous les films (a) de la phase Bi-2212 et (b) de la phase Bi(La)-2201. Les lignes en pointillés sont un guide pour les yeux.

L'autre possibilité est un changement réel de la pente  $T^*(p)$  qui apparaît avec les effets de localisation et qui favorise plutôt un scénario indépendant de la supraconductivité. Que cette observation ne soit pas un simple artefact semble confirmé par les valeurs de  $T^*$  déterminées par la mesure de résistivité dans système YBCO (figure 18)[14] et également par la mesure de chaleur spécifique du même système (voir la variation de  $E_g$  sur la figure I.5), bien que ce changement de pente ne soit pas discuté. L'extrapolation de  $T^*$  à dopage nul mène à une valeur de 700-1000 K qui est l'ordre de grandeur de l'énergie d'échange  $J$  dans la région antiferromagnétique.

Dans la suite on va discuter seulement la variation de  $T^*$  sans cette troisième région.

Les résultats concernant  $T^*$  (la région intermédiaire) sont en bon accord avec ceux obtenus par mesure de résistivité sur les monocristaux de Bi-2212 [8, 16] ainsi qu'avec les résultats obtenus avec les autres systèmes à deux plans  $\text{CuO}_2$  par demi-cellule, YBCO [13, 14] et Hg-1212 [24] (figure 18(a)).

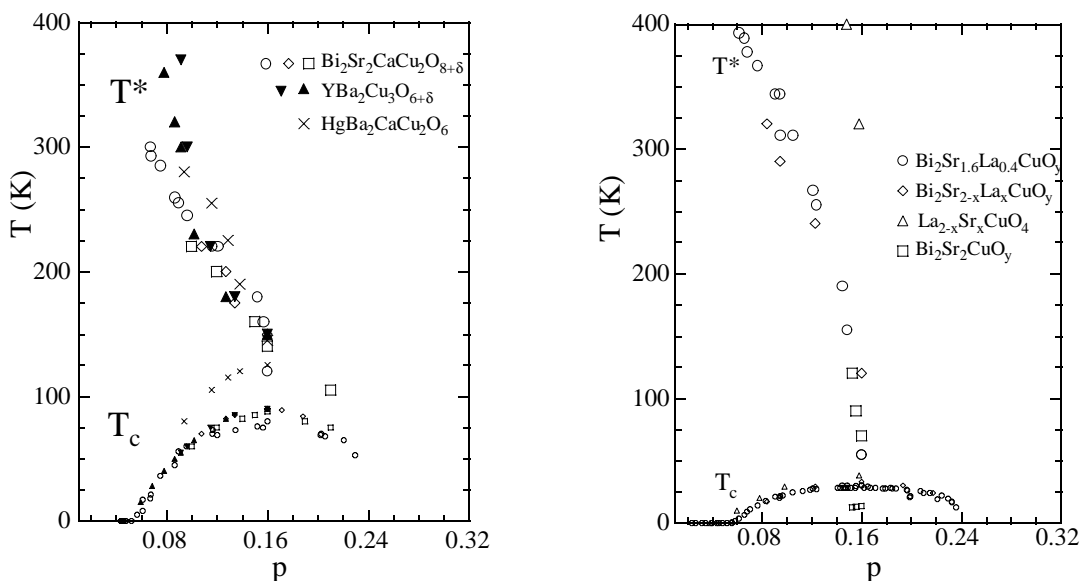


Figure 18 : Comparaison des nos valeurs de  $T^*$  (cercles vides) avec les différentes mesures (a) de transport Bi-2212 (diamants vides) [8], (carrés vides) [16], d'YBCO (triangles pointant vers le haut, pleins) [14], (triangles pointant vers le bas, pleins) [13] et (croix) Hg-1212 [24] des systèmes avec deux plans  $\text{CuO}_2$  et (b) BiSrLaCuO (diamants) [9] et LSCO (triangles) [25] et Bi-2201 pur (carrés) [3] des systèmes avec un seul plan  $\text{CuO}_2$ .

Les valeurs de  $T^*$  de la phase Bi(La)-2201 sont comparables avec celles que nous déterminons de la même façon dans le cas des films Bi-2201 pur pour les états au voisinage de l'optimum [3]. Cette dernière observation confirme que  $T^*$  a une dépendance en fonction du dopage indépendante de la température critique pour une même phase. Les valeurs de  $T^*$  sont aussi comparables avec celles de monocristaux BiSrLaCuO [9], mais nettement plus faibles que celles mesurées sur LaSrCuO [25] (figure 18(b)).

Sur la figure 19, on a comparé également les valeurs de  $T^*$  de la phase Bi-2212 avec les valeurs déterminées sur la même phase à partir d'autres techniques expérimentales : de la mesure de photoémission sur monocristaux et films [26, 27] et de la mesure de susceptibilité magnétique sur les monocristaux [16] (on n'a pas trouvé les résultats correspondants pour la phase Bi(La)-2201). Les mesure de RMN et des neutrons ne sont faites que pour des états au voisinage de l'optimum (cf. I.A3).

En l'absence de mesures de RMN dans la région sous-dopée, il n'est pas possible de comparer nos résultats avec le diagramme de phase proposé par Pines (figure I.17). Dans le système YBCO, il a été trouvé que les températures caractéristiques à partir de la résistivité et à partir de la susceptibilité uniforme coïncident entre elles, et qu'elles se placent au-dessus de celles déterminées à partir des mesures de  $1/^{63}\text{T}_1\text{T}$  [].

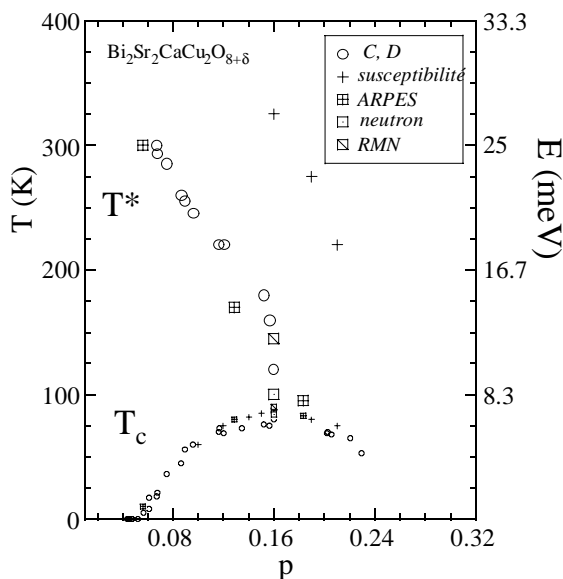


Figure 19 :  
 Comparaison des nos valeurs de  $T^*$  (cercle) avec la mesure de photoémission (ARPES) [26], de susceptibilité magnétique [16], de neutrons [28] et de RMN (maximum de  $1/^{63}\text{T}_1\text{T}$ ) [29].

Cependant dans notre cas, la variation de la température caractéristique déterminée à partir de la susceptibilité magnétique en fonction du dopage [16] ne semble pas être en accord avec nos valeurs de  $T^*$ <sup>4</sup>. La liaison avec la température caractéristique déduite de la mesure de la susceptibilité reste à révéfier.

D'un autre côté, nos valeurs de  $T^*$  sont en accord avec celles déterminées par la mesure de photoémission (ARPES). Les valeurs de  $T^*$  observées dans ce cas correspondent à l'ouverture du pseudogap d'abord au voisinage du point M (cf I, figure I. 9, à gauche) de la surface de Fermi. La coïncidence avec les valeurs de  $T^*$  de nos mesures suggère qu'une contribution importante de la diffusion des électrons viendrait du voisinage de ces points et que la suppression de celle-ci mène à une modification mesurable de la loi linéaire de  $\rho(T)$ .

Finalement, on peut s'intéresser à la variation de  $T^*$  au voisinage de l'état optimal.

La ligne semble disparaître (ou apparaître) autour de  $p \sim 0,17$ , légèrement du côté surdopé (ce qui est plus clair pour la phase Bi(La)-2201 sur la figure 17) et ce qui peut être l'indication de l'existence d'un point critique. L'existence d'un point critique a été suggérée autour de  $p \sim 0,19$  à partir de la variation en fonction du dopage du courant critique, de la température d'irréversibilité magnétique et de l'énergie de condensation (figure I.6) qui montrent toutes un maximum à ce point et également prévu dans le modèle de C. M. Varma (figure I.17 et ref. correspondante).

Son existence jusqu'à présent reste très discutée.

*Les valeurs de  $T^*$  sont du même ordre de grandeur dans les deux phases (même légèrement plus grandes pour Bi(La)-2201), malgré une température critique maximale plus petite pour la phase Bi(La)-2201 par rapport à la phase Bi-2212 (d'un facteur 2,6).*

---

<sup>4</sup> Les auteurs eux-mêmes [16] n'ont pas trouvé un accord entre leurs valeurs de  $T^*$ , déterminées d'une part par la mesure de la résistivité et d'autre part par la mesure de susceptibilité magnétique.

(v) Comparaison de l'effet de pseudogap pour les deux phases

Pour comparer l'effet du pseudogap sur  $\rho(T)$  au-dessous de  $T^*$  pour les deux phases, on a représenté sur la figure 20(a) la quantité  $(T/T^*)^{-1}(\rho(T)-\rho_0)/(\rho(T^*)-\rho_0)$  en fonction de  $T/T^*$  pour différents états du dopage et deux échantillons de chaque phase (figures 14 et 15). On obtient pour chaque phase une courbe unique, une fois que l'on a supprimé la déviation provoquée par la supraconductivité. Lorsque  $(T/T^*)^{-1}(\rho(T)-\rho_0)/(\rho(T^*)-\rho_0)=1$  la résistivité est décrite par  $\rho(T)=\rho_0+\alpha T$  et la déviation par rapport à 1, appelée  $A$ , montre l'effet de réduction de  $\rho(T)$  causée par l'ouverture du pseudogap.

Sur la figure 20(b), on a représenté cette déviation  $A$  ( $A=1-(T/T^*)^{-1}(\rho(T)-\rho_0)/(\rho(T^*)-\rho_0)$ ), qui met en évidence la différence de magnitude d'un facteur 4 de l'effet du pseudogap entre les phases Bi-2212 et Bi(La)-2201 dans cette représentation. La superposition entre les courbes représentant  $A_{2212}$  et  $4A_{2201}$  en fonction de  $T/T^*$  reste valable dans le même intervalle de température que celui où on a défini la courbe unique représentant l'effet de pseudogap pour chaque phase. Cette superposition montre clairement que cet effet a la même origine dans les deux phases. Ce fait est en contradiction avec certains résultats précédents relatifs au gap de spin, qui ont suggéré que le rôle principal y est joué par le couplage entre les plans  $\text{CuO}_2$  et que l'origine est différente pour les composés à un plan et à deux plans  $\text{CuO}_2$  [30].

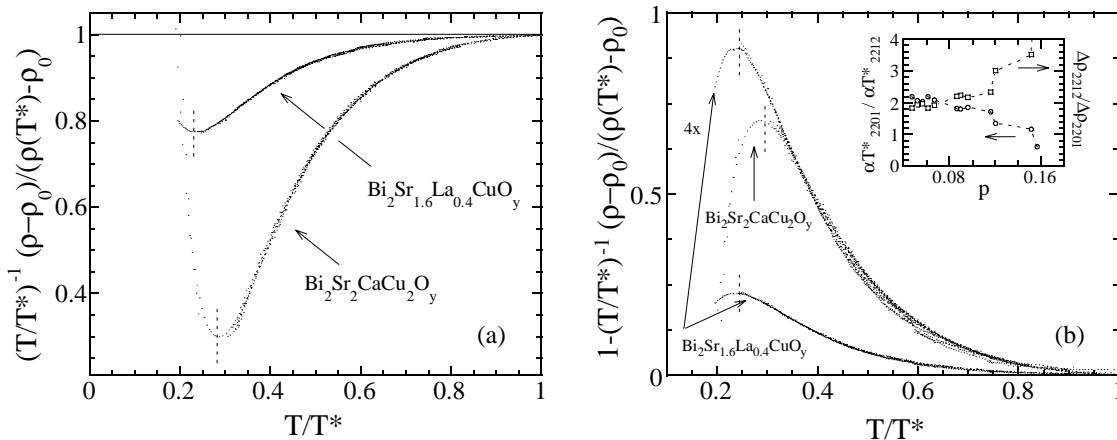


Figure 20 : L'effet de pseudogap sur  $\rho(T)$  pour les phases Bi-2212 et Bi(La)-2201. La courbe unique obtenue pour Bi-2212 coïncide avec celle de Bi(La)-2201 après multiplication par un facteur 4 de la quantité  $A$  en fonction de la température réduite  $T/T^*$ . L'encart montre les rapports  $(\alpha T^*)_{2201}/(\alpha T^*)_{2212}$  et  $\Delta\rho_{2212}/\Delta\rho_{2201}$  en fonction de  $p$ .



Pour analyser plus précisément ce facteur 4, on peut réécrire la quantité A de la façon suivante :  $A = \left(\frac{T}{T^*}\right)^{-1} \frac{(\rho_0 + \alpha T) - \rho(T)}{\alpha T^*}$ . Pour la même température réduite  $T/T^*$ , le facteur 4 vient d'une part du rapport des valeurs  $\alpha T^*$  pour les deux phases et d'autre part de la déviation par rapport à la loi linéaire  $[(\rho_0 + \alpha T) - \rho(T)]$ . Sur l'encart de la même figure on voit que ce premier rapport est égal environ à  $\Delta\rho = (\alpha T^*)_{2201} / (\alpha T^*)_{2212} \sim 2$  ce qui mène à un rapport de l'ordre de 2 entre les déviations observées dans les deux phases,  $\frac{\Delta\rho_{2212}}{\Delta\rho_{2201}} \sim 2$ .

Le pseudogap observé par mesure de photoémission dans  $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_{6+\delta}$  est aussi plus faible que dans Bi-2212, mais plutôt d'un facteur 3 ce qui a été relié à la différence entre la température critique maximale,  $T_{c \text{ max}}$ , entre les deux phases [31].

D'autre part la magnitude de l'effet de pseudogap de Bi-2201 pur [3] coïncide avec celle de Bi(La)-2201 bien que leurs températures critiques maximales soient différentes (figure 21(a)). Ce dernier point indique que la magnitude du pseudogap dépend principalement du nombre de plans  $\text{CuO}_2$  et pas de la température critique maximale correspondante.

Sur la figure 21(b), on a également comparé la courbe universelle de la phase Bi-2212 avec la courbe universelle obtenue sur YBCO [18]. Pour une comparaison directe on a renormalisé le résultat sur la figure 14 par rapport à  $\Delta = T_1$  et on a superposé les deux figures avec les mêmes échelles. La grandeur des deux effets est comparable et par suite ne semble dépendre que du nombre de plans  $\text{CuO}_2$ .

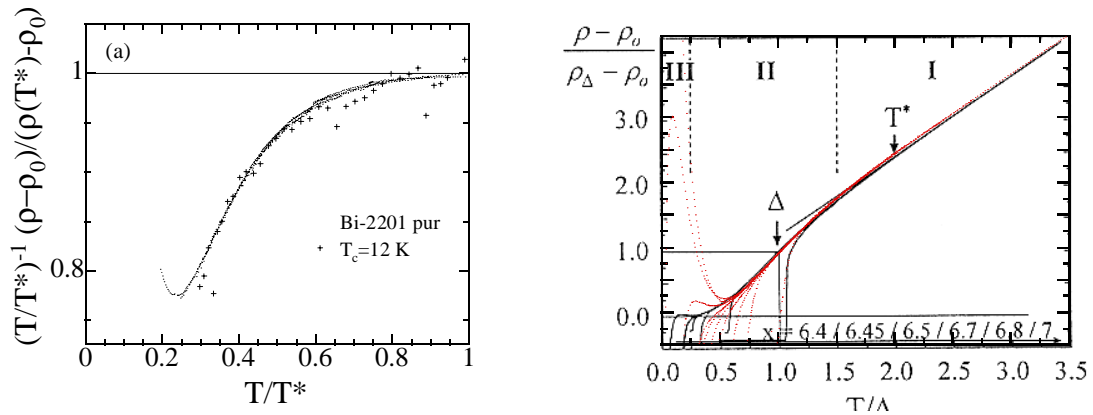


Figure 21 : Comparaison de l'effet de pseudogap observé (a) dans les films de la phase Bi(La)-2201 et dans un film de Bi-2201 pur au voisinage de l'état optimal (b) dans les films de la phase Bi-2212 avec le même effet observé sur des films YBCO [18].

*En conclusion, il faut souligner que la superposition entre les courbes universelles des deux phases démontre la même origine de l'effet dans ces systèmes. Le facteur d'environ 2 sur la grandeur de l'effet du pseudogap peut être expliqué par le nombre différent de plans de  $\text{CuO}_2$  ou comme cela a été suggéré par quelques auteurs par la différence de la température critique maximale des deux phases. Cependant, l'effet comparable entre la phase Bi-2201 pure et Bi(La)-2201 avec différentes températures critiques maximales indique que la température critique n'est pas un facteur déterminant.*

(vi) Comparaison aux modèles théoriques

L'origine du pseudogap n'est pas connue jusqu'à présent. Les théories existantes considérant les propriétés de transport sont très peu nombreuses et loin d'expliquer la loi d'échelle et de donner une expression de la conductivité valable dans toute la région de T. Malgré ce dernier fait on a comparé nos résultats avec les expressions analytiques existant dans la littérature.

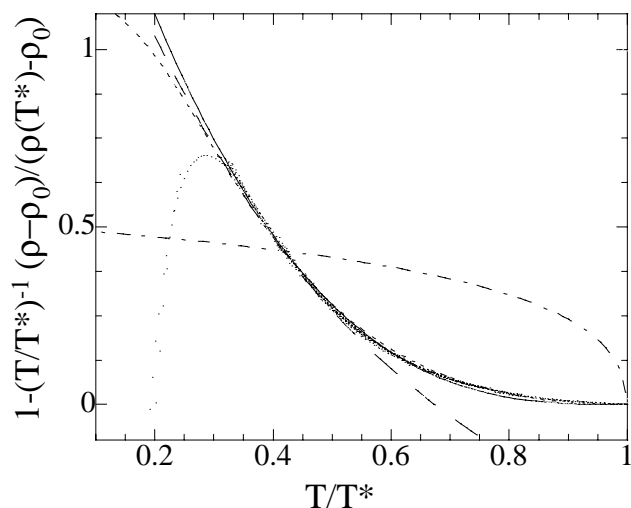


Figure 22 : Les différents types d'ajustement à différents modèles de nos résultats obtenus dans le cas de la phase Bi-2212 : "modèle t-J" dans l'approximation du champ moyen (- - -), "modèle t-J" (—), la loi exponentielle à partir d'un modèle quantique 1D (— — —) et la loi activée (· · ·).

- "modèle t-J", champ moyen

Une des premières prévisions théoriques (cf. I) a été faite dans la limite des très fortes corrélations électroniques par un "modèle t-J" dans l'approximation de champ moyen [32]. La conductivité du système est déterminée par les excitations de basse énergie, holons (des charge +e sans spin) qui assurent la variation linéaire de  $\rho(T)$ . La décroissance plus rapide de  $\rho(T)$  à partir de  $T^*$  se produit due à la condensation des spinons (de spin  $1/2$  sans charge) qui a pour conséquence la suppression de la diffusion des holons par les spinons. Au-dessous de  $T^*$ , on a relation  $\frac{\delta\rho}{\rho} = \left(\frac{T - T^*}{T^*}\right)^{1/2}$  [32].

La quantité correspondante A (définie au début de A3b(v)) dans ce modèle est égale :

$$A = 1 - \frac{1}{1 + (1 - T/T^*)^{1/2}} \quad (\text{III.4})$$

et ne dépend que de la température de condensation des spinons  $T^*=T_{SG}$ .

☹ Le modèle ne décrit les résultats expérimentaux que d'une façon qualitative (voir (---) sur la figure 22).

- "modèle t-J", au delà du champ moyen

Dans le même modèle, au delà du champ moyen, tenant compte des fluctuations de phase des spinons et des holons [33], la résistivité au-dessous de  $T^*$  est décrite par  $\rho(T) \sim T[1 - c'(1 - T/T^*)^d]$ , qui mène à la déviation A :

$$A = c'(1 - T/T^*)^d \quad (\text{III.5})$$

avec deux paramètres libres :  $c'$  qui est fonction du dopage et du rapport  $t/J$  et l'exposant critique  $d$ . Les valeurs de  $c'$  et  $d$  qui donnent le meilleur ajustement sur le plus grand intervalle de température sont  $c'=2,08\pm 0,01$  et  $d=2,89\pm 0,01$  (voir la ligne continue qui correspond à l'ajustement avec 5(b)).

☺ L'expression décrit bien les résultats expérimentaux dans le plus grand intervalle de T.

☺ Elle prévoit bien la relation entre la température caractéristique  $T^*$  et le point d'inflexion

$$T_1 : T_1 = 2/(d+1) T^* = 0,51 T^*$$

☹ Les auteurs ne prévoient pas la loi d'échelle (d augmente avec la diminution du dopage).

- "loi activée"

Une autre loi a été proposée à partir des résultats expérimentaux pour le système YBCO pour  $T < T^*$  :  $\rho(T) = \rho_0' + b \exp(-\Delta U^*/T)$  avec trois paramètres  $\rho_0'$ ,  $b$  et  $\Delta U^*$  [34]. En prenant la résistivité résiduelle à partir de  $\rho(T^*) = \rho_0 + \alpha T^*$  ( $\rho_0' = \rho_0 + \alpha T^* - b \exp(-1)$ ) et  $\Delta U^* = T^*$ , la déviation  $A$  peut s'exprimer sous la forme :

$$A = 1 - (T/T^*)^{-1} [1 + b_1 (\exp(-T^*/T) - \exp(-1))] \quad (\text{III.6})$$

avec le paramètre libre  $b_1 = b/\alpha T^*$  ( $b_1 = 2,76 \pm 0,01$ , pour la ligne en pointillés sur la même figure). Cette loi a été expliquée en relation avec le comportement de la résistivité selon l'axe  $c$ , gouvernée par l'effet tunnel résonant par les états localisés des plans BiO (partie isolante) [35]. La résistivité dans le plan  $(a,b)$  pour  $T > \Delta U^*$  est gouverné par la diffusion e-e principalement par l'échange de charges avec la partie isolante selon l'axe  $c$ , qui conduit à une loi linéaire en fonction de  $T$ , tandis que pour  $T < \Delta U^*$  cet échange est empêché, ce qui mène à un comportement activé de  $\rho_{ab}$ .

☺ L'expression décrit bien les résultats expérimentaux.

☺ Elle prévoit bien la relation entre la température caractéristique  $T^*$  et le point d'inflexion  $T_I$  :  $T_I = 1/2 T^*$ .

- "rubans de charges"

Une autre loi a été proposée dans un modèle avec des rubans de charges formés dans le plan  $\text{CuO}_2$  [36]. La température caractéristique  $T^*$  est attribuée au passage d'un régime Heisenberg 2D à haute température [37] à un régime de transport quantique 1D avec pseudogap qui correspond à un gap de spin qui se forme dans un ruban 1D. L'expression proposé :  $\rho(T) = \rho_0'' + cT/\Delta \exp(-\Delta/T)$  contient le paramètre  $\Delta$  qui caractérise la grandeur du gap qui s'ouvre dans le ruban de charge. La loi a été prévue pour décrire les résultats dans la région au-dessous de  $T^*$  ( $T/T^* \leq 0,75$ ), ce qui ne permet pas de déterminer la résistivité résiduelle  $\rho_0''$ , qui mène à la déviation  $A$  :

$$A = 1 - (T/T^*)^{-1} [c_1 + c_2 T^* / \Delta [T/T^* \exp(-(\Delta/T^*)(T^*/T))]] \quad (\text{III.7})$$

Comme la loi proposée ne prévoit pas le point d'inflexion de  $\rho(T)$  à  $T_I = T^*/2$ , en prenant  $\Delta = T^*/2$  le meilleur ajustement s'obtient au-dessous de  $T/T^* = 0,5$  avec des paramètres libres  $c_1 = (\rho_0 - \rho_0'') / (\rho(T^*) - \rho_0) = -0,044$  et  $c_2 = c / (\rho(T^*) - \rho_0) = 1,12$  ( $c = 1,466 \text{ m}\Omega\text{cm}$  et  $(\rho_0 - \rho_0'') = -0,058 \cdot \text{m}\Omega\text{cm}$ , voir (---) sur la même figure).

☺ L'expression ne décrit nos résultats expérimentaux que dans un intervalle restreint ( $0,2 \leq T/T^* \leq 0,5$ ).

☹ Elle ne prévoit pas le point d'inflexion ( $T_I \rightarrow \infty$ ).

*Les expressions analytiques examinées peuvent plus ou moins bien décrire les résultats expérimentaux mais elles sont loin de donner une description complète de l'effet du pseudogap concernant sa magnitude dans les systèmes avec un nombre de plans  $\text{CuO}_2$  différent (lequel semble être responsable de la grandeur de l'effet) et concernant la variation de  $T^*$  avec le dopage. Cependant, il faut aussi remarquer qu'il existe un certain nombre de calculs numériques basés sur d'autres modèles qu'on ne pouvait pas comparer facilement avec nos résultats.*

### (c) Région fortement sous-dopée avec $T_c = 0$

La transition supraconducteur-isolant dans le cas des SHTC a été étudiée la plupart du temps par substitution cationique de Ba par Pr dans le cas de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7.8}$  [38, 39]. Dans le cas de la phase Bi-2212, cette transition a été induite par la substitution cationique de Ca avec différents éléments, le plus souvent par Y [40, 41, 42, 43, 44] mais aussi par Tm, Gd, Pr, Er [44, 45, 46, 47, 48]. La transition supraconducteur-isolant a été induite aussi par diminution du dopage en oxygène dans le cas des films d'YBCO [49] et dans le cas de monocristaux  $\text{BiSrCaCuO}$  [50].

Dans le cas des systèmes avec un seul plan  $\text{CuO}_2$  par demi-cellule, la transition supraconducteur-isolant est induite également par substitution cationique, le plus souvent dans le cas de  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  avec différentes concentrations en Sr [51, 52, 53, 6, 4] et plus récemment par substitution de Cu par Zn et Ni [57] dans le même composé. Dans le cas de la

phase Bi-2201, la transition a été réalisée par la substitution cationique de Sr par La [54] et aussi en changeant la valeur de rapport Bi/Sr [55].

Les films de la phase Bi(La)-2201 sont devenus isolants par diminution de la teneur en oxygène comme dans le cas de Bi-2212.

Dans le cas d'un système 2D et de la transition supraconducteur-isolant induite par le désordre, il a été prédit que la transition se produirait autour de la valeur universelle de la résistance par carré  $R_{\square} = h / 4e^2 \approx 6,5 \text{ K}\Omega$  (valeur quantique pour les paires d'électron). Dans le cas des SHTC la transition autour de cette valeur universelle a été obtenue par la substitution de Cu par Zn dans le cas de LaSrCuO et ainsi dans le cas de la substitution de Cu par Zn dans le cas de YBCO [39]. Mais dans la plupart des expériences des systèmes à deux plans  $\text{CuO}_2$ , la transition apparaît entre  $3 \text{ m}\Omega\text{cm} < \rho_0 < 60 \text{ m}\Omega\text{cm}$  [38-50] ce qui correspond à une résistance par carré plus grande que cette valeur universelle  $R_{\square} > 15 \text{ K}\Omega$  et entre  $1,5 \text{ m}\Omega\text{cm} < \rho_0 < 100 \text{ m}\Omega\text{cm}$  [51-54] pour lesquelles  $R_{\square} > 12 \text{ K}\Omega$  pour les systèmes à un plan  $\text{CuO}_2$ . La transition supraconducteur-isolant dans le cas de nos films se produit autour de la valeur de la résistance par carré  $R_{\square} \approx 17 \text{ K}\Omega$  et  $R_{\square} = 9-10 \text{ K}\Omega$  (figure 23) respectivement pour Bi-2212 et Bi(La)-2201.

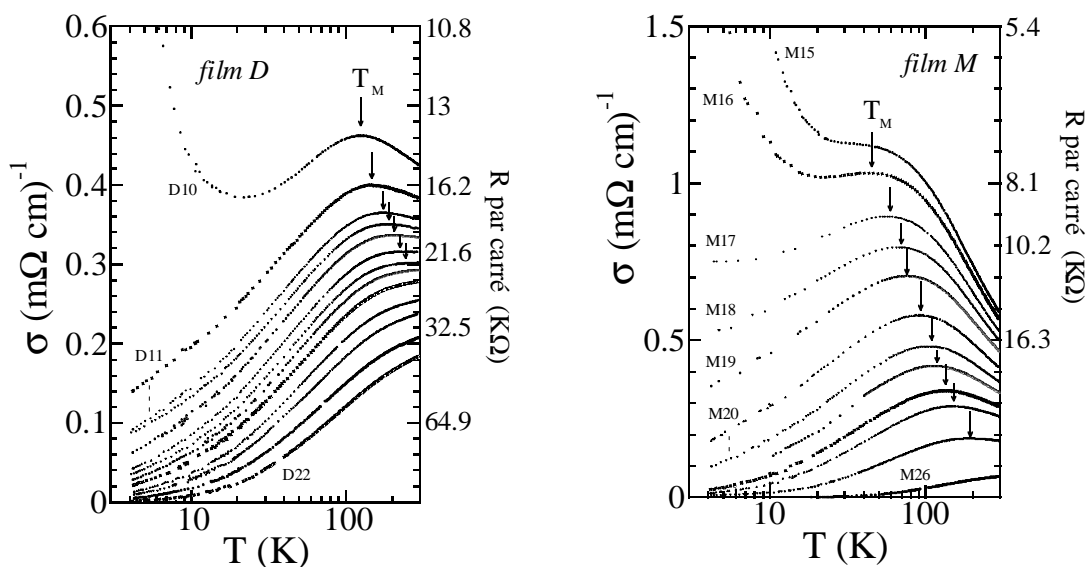


Figure 23 : La conductivité en fonction de la température. La transition supraconducteur-isolant apparaît autour de  $R_{\square} = \rho/(c/2) \approx 17 \text{ k}\Omega$  pour le film D (phase Bi-2212) et  $R_{\square} \approx 10 \text{ k}\Omega$  pour le film M (phase Bi(La)-2201) ( $c$  paramètre de cellule). Les flèches indiquent la température  $T_M$  où  $\rho(T)$  passe d'un comportement métallique vers un comportement semi-conducteur.

Ces valeurs de la résistance par carré étant plus grandes que la valeur universelle indiquent que le désordre n'est pas le seul paramètre qui change dans ces systèmes pour introduire la transition supraconducteur-isolant, sauf dans le cas de la substitution de Cu par Zn qui a pour effet principal l'augmentation du désordre dans le plan  $\text{CuO}_2$ . Dans notre cas, le paramètre qui change également est le nombre de porteurs (voir la figure II.7).

La transition de l'état supraconducteur vers l'état isolant a été étudiée dans le cas du film D (Bi-2212) et du film M (Bi(La)-2201). Les états au voisinage de la transition (à partir de l'état D10 et M16) commencent à passer d'un comportement métallique ( $d\rho/dT > 0$ ) vers un comportement semi-conducteur ( $d\rho/dT < 0$ ) à une température  $T_M$  (ce maximum de  $\sigma(T)$  est indiqué sur la figure 23).

La température  $T_M$  apparaît au même moment dans les deux phases  $p \sim 0,05-0,06$  (figure 24). Elle augmente de façon monotone avec la diminution des porteurs, ainsi que la température  $T_I$  (mise en évidence aussi pour les états fortement sous-dopés avec  $T_c=0$ ) mais sans rapport fixe entre elles. Il faut remarquer qu'un changement de la pente de  $T_I(p)$  se produit au moment de l'apparition de  $T_M$ . Les courbes  $(\rho-\rho_0)/\alpha T$  ne peuvent se superposer en fonction de  $T/T^*$  que dans un intervalle très restreint au-dessus de  $T_M$  à partir des états D13 et M19. La ligne  $T_M$  a été prévue dans le diagramme de phase proposé par C.M.Varma (figure I.16).

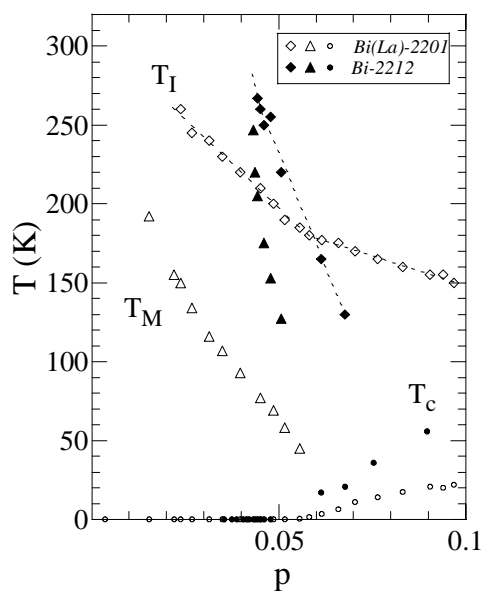


Figure 24 :  
Variation de  $T_M$ , la température où apparaît le minimum dans  $\rho(T)$ , en fonction du dopage<sup>5</sup> pour les deux phases. La température caractéristique  $T_I$  est représentée pour mettre en évidence la position où se produit le changement de la pente. Les lignes en pointillés sont un guide pour les yeux.

<sup>5</sup> Il n'est pas évident que la relation entre la conductivité à température ambiante et  $p$  établie dans la région supraconductrice reste valable aussi dans la région isolante mais c'est le seul moyen dont on dispose pour estimer  $p$  et pour comparer de façon simple les deux phases.

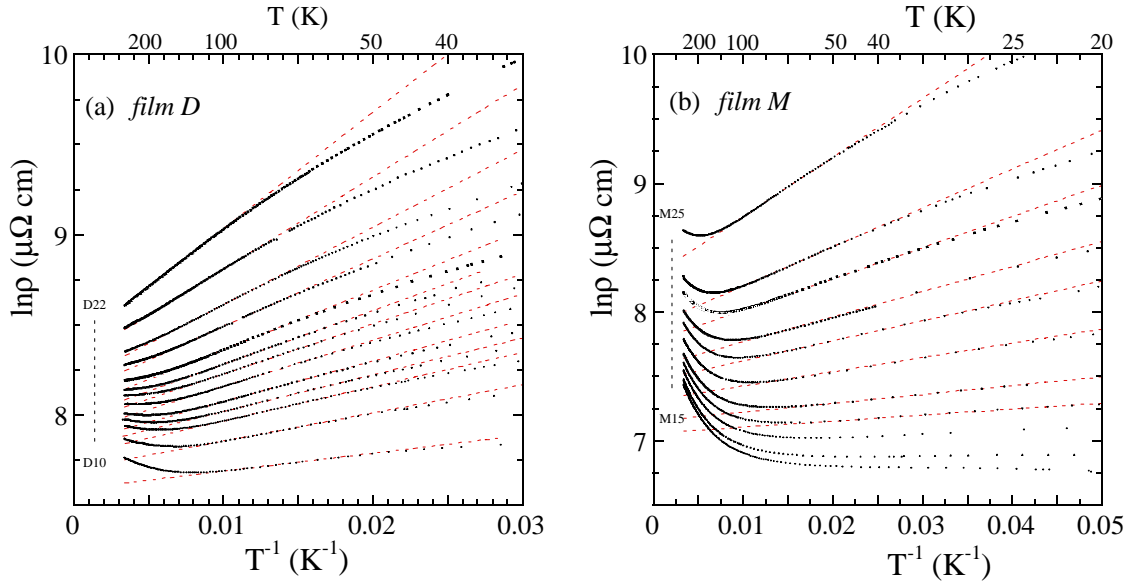


Figure 25 :  $\ln \rho$  en fonction  $1/T$  pour les états (a) D10-D22 de Bi-2212 et (b) M15-M25 de Bi(La)-2201. L'énergie d'activation  $E_a$  est déterminée par la pente des lignes en pointillés

Tous les états au-dessous de  $T_M$  montrent d'abord un comportement thermiquement activé :  $\rho \sim \exp(E_a/k_B T)$  (figure 25) observé aussi dans le cas de  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  [56] et  $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{Cu}_{1-x}\text{Ni}_x\text{O}_{4+\delta}$  [57]. L'énergie d'activation  $E_a$  augmente de 0,85 meV pour D10 jusqu'à 5,5 meV pour D22 et de 0,4 meV pour M15 jusqu'à 3,8 meV pour M25 (figure 26(a)). L'énergie d'activation est plus grande pour Bi-2212 mais elle reste plus faible que les valeurs observées (10-120 meV) pour  $\text{LaSrCuNiO}$  [57].

L'intervalle de validité se déplace vers les hautes températures et suit l'augmentation de  $T_M$ . L'intervalle de validité en température du comportement thermiquement activé reste plus bas et plus étroit que celui observé dans le cas de  $\text{LaSrCuNiO}$ .

A basse température  $\rho(T)$  commence à s'écarter de cette loi et elle passe à un régime de saut à portée variable de Mott :  $\rho \sim \exp(T_0/T)^\beta$  où  $\beta=1/3$  ( $\beta$  dépend de la dimensionalité de ce comportement :  $\beta=1/3$  pour un comportement 2D et  $\beta=1/4$  pour 3D). Le paramètre  $\beta$  peut être déterminé à partir de la représentation donnée dans l'encart de la figure 27, mais avec la possibilité d'une description 3D surtout autour de l'état D11.



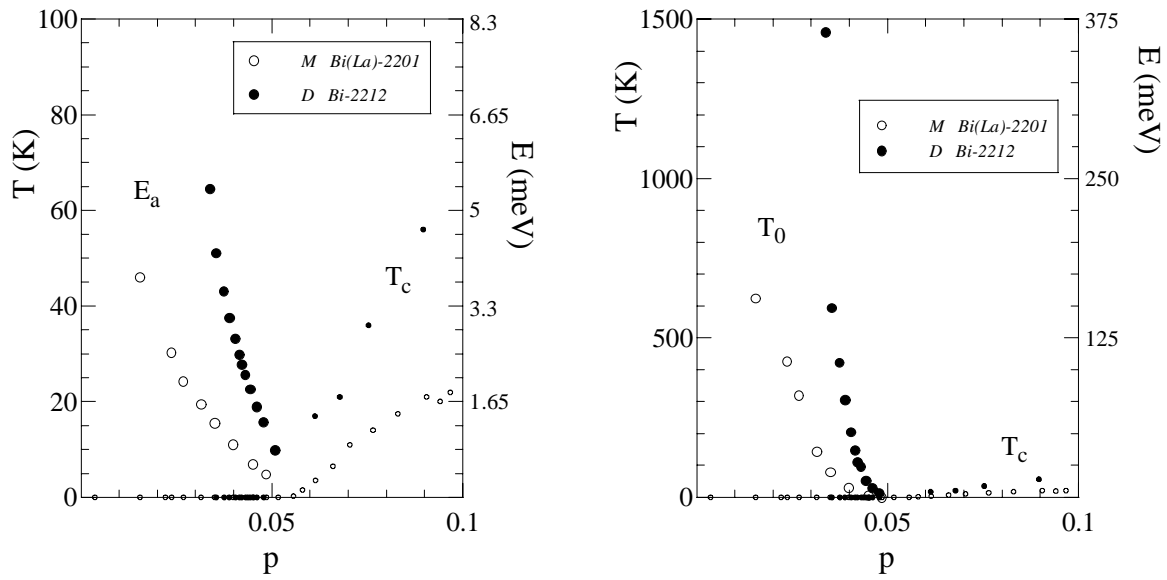


Figure 26 : Variation en fonction du dopage (a) de l'énergie d'activation  $E_a$  et (b) du paramètre  $T_0$  du régime de saut à portée variable de Mott 2D.

Ce comportement 2D est en accord avec les rapport précédents sur le même composé [41, 43, 46] avec un passage possible par le comportement 3D [43, 46] quand on passe de l'état isolant à l'état supraconducteur. La valeur  $\beta=1/2$  a été aussi observée dans le cas de la phase Bi-2212 [42, 44], qui correspond à l'ouverture d'un gap de Coulomb, conséquence des fortes interactions entre les électrons. La valeur  $\beta=1/3$  est aussi observée dans le cas de LaSrCuO [52]. Un passage vers  $\beta=1/4$  est aussi suggéré au voisinage de la transition supraconducteur-isolant [53, 54] et pour LaSrCuNiO [57] et Bi-2201 [58].

La variation du paramètre  $T_0$  du régime de saut à portée variable de Mott 2D, en fonction du dopage est présentée sur la figure 26(b).

Dans le modèle qui suppose que les trous sont localisés par le désordre (dans le cas de LSCO par Sr) et que les trous se déplacent par des sauts entre les différents sites avec assistance des phonons, les différents régimes observés peuvent être expliqués [56].

La loi thermiquement activée est attribuée au transport de trous localisés dans un site qui, en absorbant l'énergie d'un phonon, se déplace sur le site plus proche libre. A hautes températures des phonons de toutes les énergies sont présents et le trou peut sauter sur le site voisin sans égard à la différence d'énergie entre sites. L'énergie d'activation,  $E_a$ , représente une énergie moyenne dont un trou a besoin pour se déplacer jusqu'au site voisin.

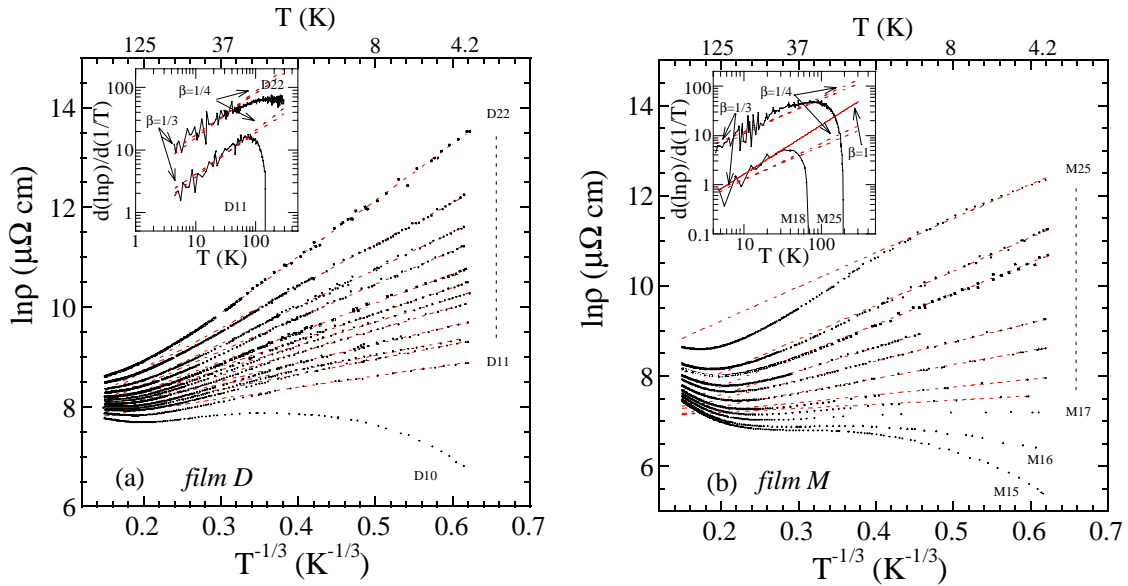


Figure 27 :  $\ln \rho$  en fonction de  $1/T^{1/3}$  pour les états (a) D10-D22 de Bi-2212 et (b) M15-M25 de Bi(La)-2201. La pente des lignes en pointillés donne la température  $T_0$ . L'encart dans la même figure donne la représentation permettant de déterminer le paramètre  $\beta$  qui donne la dimensionalité du régime de conduction. (la ligne en pointillés montre les cas  $\alpha=1/3$  et  $\alpha=1/4$ , tandis que la ligne continue montre le comportement thermiquement activé ( $\alpha=1$ )).

Dans le même modèle, quand la température diminue les sauts des trous à des sites voisins peuvent être interdits du fait de l'absence de phonons ayant l'énergie correspondante. Dans ce cas le trou peut sauter sur un site plus loin si l'énergie de déplacement est plus petite : c'est le saut à portée variable de Mott.

Le troisième régime observé dans la littérature, avec un exposant  $1/2$  [42, 44], correspond aux très basses températures ( $<4,2$  K) où la différence d'énergie entre le site initial et le site final est du même ordre de grandeur que l'énergie de corrélation de Coulomb, ce qui provoque l'ouverture du gap de Coulomb. Des mesures à très basses températures auraient été nécessaires pour l'observer.

Le diagramme de phase proposé, correspondant aux cas des films Bi-2212 et Bi(La)-2201, est présenté sur la figure 28. La température caractéristique  $T_M$  sépare la région de "métal étrange" et la région semi-conductrice. Une autre ligne (figure 28, symboles diamants) est déterminée par les températures qui séparent le régime de la loi thermiquement activée et du régime de saut à portée variable 2D à plus basse température (figures 25 et 27). Le passage vers la région du gap de Coulomb n'a pas été mis en évidence.

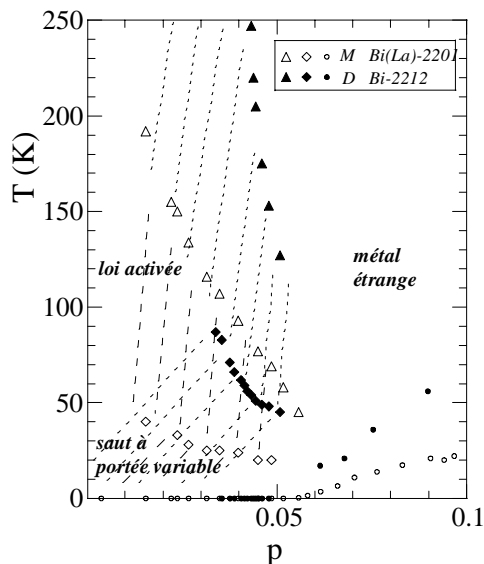


Figure 28 :  
Diagramme de phase pour les états fortement sous-dopés avec  $T_c=0$ .

### Résumé des points importants :

- Dans l'état optimal, on observe la loi linéaire de la résistivité en fonction de la température de 300 K jusqu'à 120 K pour Bi-2212 et 50 K pour Bi(La)-2201.
- Dans la région surdopée, les deux phases montrent un comportement similaire,  $\rho \sim T^n$  ( $1 \leq n \leq 1,31$ ), avec l'exposant  $n$  qui reste bien inférieur à 2, valeur attendue dans le modèle de liquide de Fermi.
- La déviation de  $\rho(T)$  par rapport à la loi linéaire, signature du pseudogap, est observée dans les deux phases. Toutes les courbes se superposent sur une courbe unique, différente pour chaque phase, qui reflète une différence de grandeur de l'effet de pseudogap dans  $\rho(T)$  d'un facteur 2, liée au différent nombre de plans  $\text{CuO}_2$ . La superposition de  $\rho(T)$  sur la courbe universelle même pour des états isolants aussi bien que l'effet comparable entre Bi(La)-2201 et Bi-2201 pur avec des valeurs  $T_{c\text{max}}$  différentes ne confirme pas la liaison entre la supraconductivité et le pseudogap. La dépendance de  $T^*$  en fonction du dopage est comparable dans les deux phases et elle peut indiquer l'existence d'un point critique au voisinage de l'état optimal. Le diagramme de phase établi est compatible avec celui proposé par C. M. Varma (figure I.16).
- La résistivité des états isolants, similaire dans les deux phases, se trouve dans un régime de saut à portée variable de Mott à basses températures, gouverné principalement par les phonons.

## **B. Influence de l'oxygène sur l'effet Hall**

L'autre propriété remarquable de l'état normal des HTSC, outre la variation linéaire de  $\rho(T)$  qui a été déjà discutée, est la forte dépendance de l'effet Hall en fonction de la température [2].

### **B1. Coefficient de Hall $R_H(T)$ à différents états du dopage**

Dès les premiers résultats, la variation non monotone du coefficient de Hall  $R_H$  avec présence d'un maximum pour tous les états du dopage, a été rapportée dans pratiquement toutes les phases : Tl-2201 [7, 59], Bi-2201 [3, 60, 61], LaSrCuO [4, 52, 62, 63], YBCO [64, 15, 65, 66, 13, 14], Tl-2212 [67], Bi-2212 [50, 68]. A l'état optimal,  $R_H$  décroît approximativement en  $\sim 1/T$  à haute température (au-dessus du maximum).

L'effet de pseudogap sur  $R_H(T)$  n'a été observé clairement que dans le système YBCO à la température où commence la déviation de  $R_H$  par rapport à la loi en  $1/T$ . Cette température coïncide avec la température  $T^*$ , déterminée à partir de  $\rho(T)$  [13, 14]. De plus, une superposition des courbes de  $R_H^{-1}$  et  $\cotg \theta_H$  en fonction de  $T/T^*$  a été montrée en même temps que la loi d'échelle de  $\rho(T)$  [14].

L'étude de l'effet Hall sur les films de la phase Bi-2212 a été menée principalement sur le film C, dans ses états sous-dopés C5, C6, C8, C10 et surdopé C11. Les autres états présentés ici sont l'état surdopé A1, l'état optimal A2 et les états sous-dopés A3 et D3 (cf. II.D1 et III.A1(a)). Dans le cas de la phase Bi(La)-2201, il s'agit d'un seul film L étudié dans différents états de dopage L1-L10 (cf. III.A1(b)). La comparaison entre différents états de dopage est ainsi simplifiée par rapport au cas de la phase Bi-2212 où on a considéré plusieurs films avec une incertitude de 10% sur la valeur absolue de  $R_H$ , provenant de l'incertitude sur l'épaisseur des films.

La variation de coefficient du Hall  $R_H$  des états mentionnés ci-dessus est présentée sur la figure 29. Le degré de dopage en oxygène diminue en passant de C11 à A3<sup>6</sup> et puis de D3 à C10 et de L10 et L1 vers L9 respectivement pour la phase Bi-2212 et Bi(La)-2201.

---

<sup>6</sup> L'état D3 est plus oxygéné que l'état A3 et le coefficient de Hall  $R_H$  du film D3 aurait dû être plus faible que celui de l'état A3, mais la différence entre eux est contenue dans les 10% d'erreur introduits principalement par l'incertitude sur l'épaisseur des films.

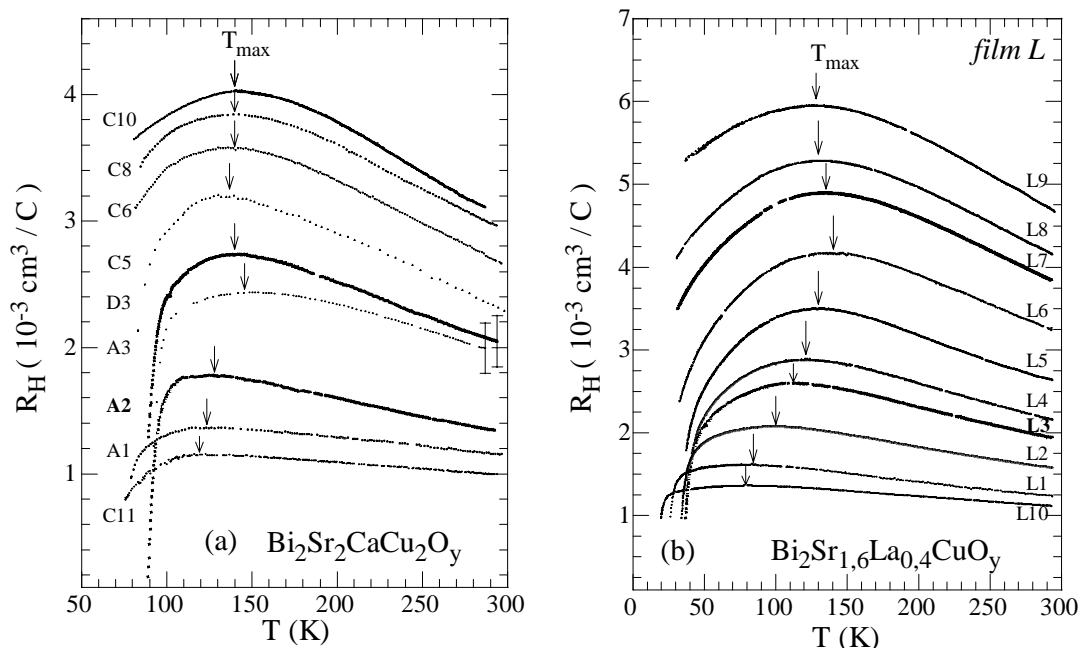


Figure 29 :  $R_H$  vs  $T$  à différents états de dopage (a) de film de la phase Bi-2212 et (b) d'un film de la phase Bi(La)-2201. ( $R_H = V_H t / HI$ , cf. II.C2). Les états A2 et L3 sont les états optimaux.

La valeur de  $R_H$  augmente progressivement quand le dopage diminue, ce qui indique une diminution du nombre de porteurs, d'environ 4 fois entre l'état le plus surdopé (C11, L10) et l'état le plus sous-dopé avec  $T_c=0$  (C10, L10) (voir aussi la figure 31).

Le coefficient de Hall  $R_H$  varie de façon non monotone en fonction de la température avec l'apparition d'un maximum à  $T_{max}$ , indiqué par des flèches sur la figure ci-dessus. Cette température  $T_{max}$  se déplace vers les hautes températures lorsque le dopage diminue, en allant de C11 à A3 et de L10 à L6, après quoi elle ne change pas beaucoup, et même elle diminue un peu (figure 30). Du côté surdopé  $T_{max}$  apparaît à une valeur plus basse dans le cas de la phase Bi(La)-2201, ce qui est permis par une température critique plus faible. Du côté sous-dopé, sa variation en fonction du dopage est tout à fait similaire pour les deux phases.

La variation en  $1/T$  de  $R_H$ , ainsi que la variation en  $T$  de  $n_H \sim R_H^{-1}$  à l'état optimal ne peuvent être approximativement observées que pour  $T > 200$  K (figure 31).

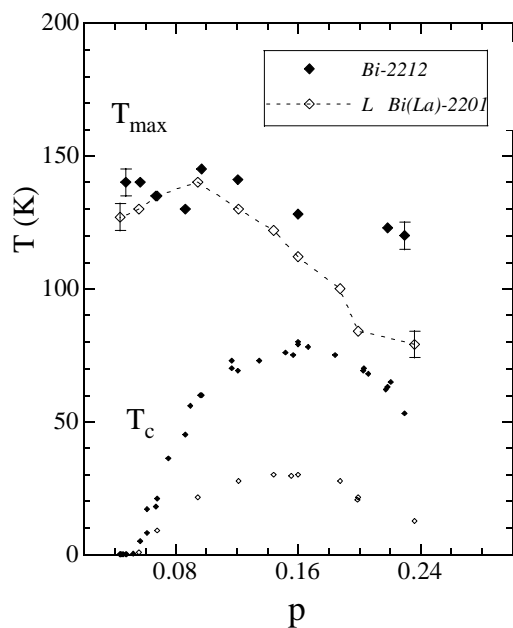


Figure 30 :

Variation de la position  $T_{max}$  du maximum de  $R_H(T)$ , en fonction du dopage des phases Bi-2212 et Bi(La)-2201.

La différence par rapport au système YBCO, où cette variation a été établie, est la grande contribution de la diffusion par le désordre (visible par la résistivité résiduelle  $\rho_0$ ) qui donne une contribution non négligeable au coefficient de Hall  $R_H$  et au nombre de Hall  $n_H$ .

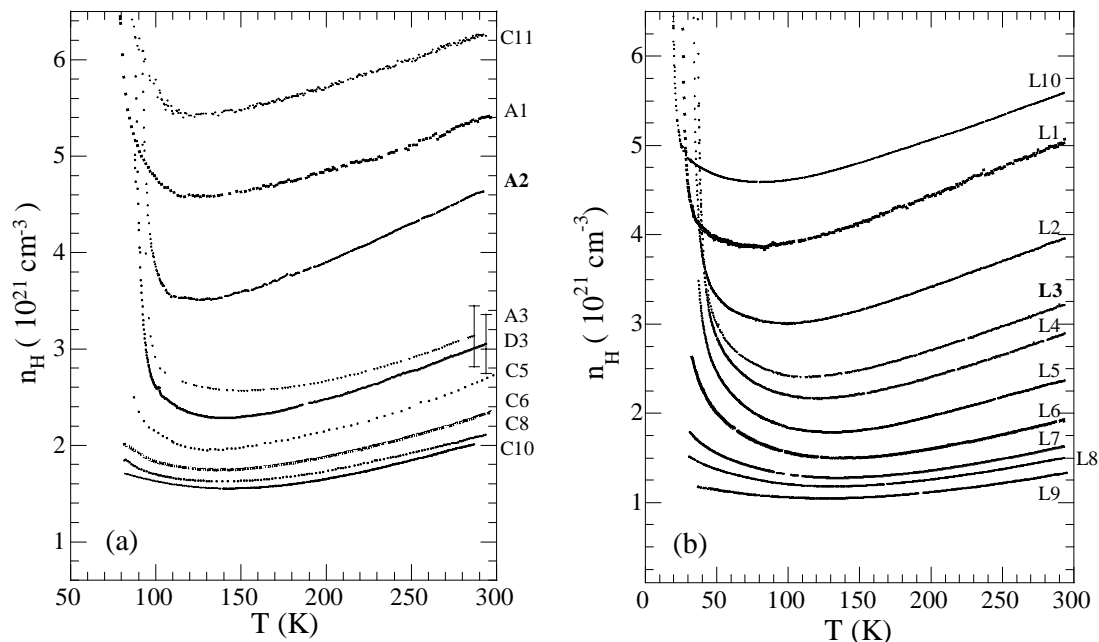


Figure 31 :  $n_H$  vs  $T$  dans les mêmes états (a) de la phase Bi-2212 et (b) de la phase Bi(La)-2201. ( $n_H=1/eR_H$  avec  $e$  la charge de l'électron)

De plus, l'analyse du coefficient de Hall  $R_H$  n'a pas révélé de signature claire du pseudogap à la température  $T^*$ , déterminée à partir de  $\rho(T)$ , comme dans le cas d'YBCO [13, 14]. La signature du pseudogap est plus difficile à mettre en évidence tenant compte de la non observation de la loi  $R_H \sim 1/T$  à haute température.

Egalement, une superposition de  $n_H$  en fonction de  $T/T^*$ , suggérée dans le système YBCO [14], n'est pas obtenue d'une part à cause de la contribution inconnue de la diffusion par le désordre qu'il faut soustraire (cf A.3b(iii)). D'autre part l'intervalle où la superposition  $n_H=f(T/T^*)$  peut être valable est fortement réduit par l'existence de  $T_{max}$ , qui varie de façon différente par rapport à  $T^*$ . De plus pour confirmer la superposition, la variation importante de  $T^*$  en fonction du dopage exige un grand nombre d'états très peu différents entre eux (figure 32).

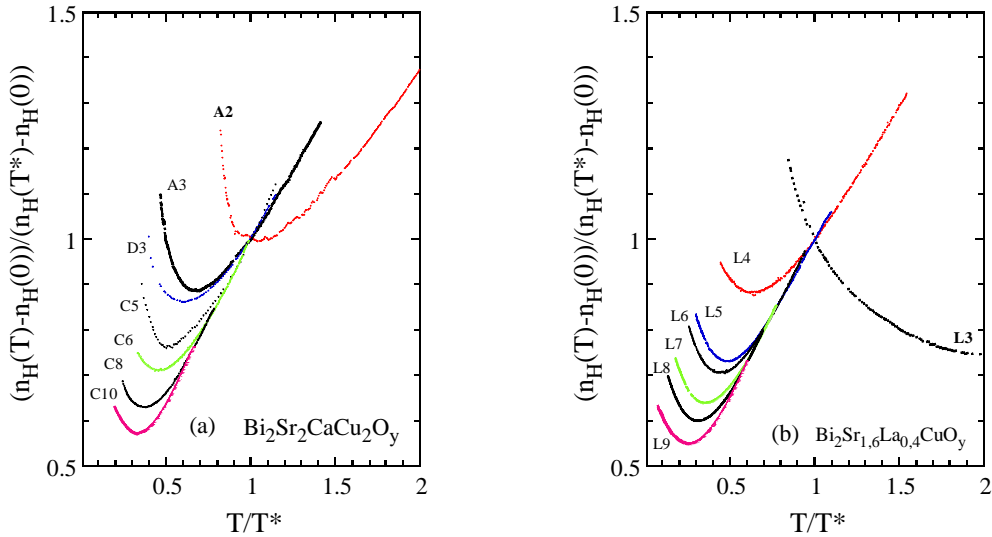


Figure 32 : Variation de  $(n_H(T) - n_H(0)) / (n_H(T^*) - n_H(0))$  en fonction de  $T/T^*$ , où  $T^*$  a été déterminé à partir des mesures de  $\rho(T)$ , (a) de la phase Bi-2212 et (b) Bi(La)-2201 ( $n_H(0) = \cotg \theta_H(T=0)H / e\rho_0$ , voir la suite).

## B2. L'angle de Hall $\theta_H$ à différents états du dopage

Une autre quantité importante qui montre un comportement relativement simple en fonction de T par rapport à celui du coefficient de Hall  $R_H$  dans tout les systèmes et pour tous les niveaux du dopage, et qui est proportionnelle à l'inverse de la mobilité du système  $\mu_H^{-1}$  est la cotangente de l'angle de Hall, définie par :

$$\cotg\theta_H = \rho / H R_H = \mu_H^{-1} / H \quad (\text{III.8})$$

avec  $\rho$  la résistivité mesurée dans le plan (a,b) et H le champ magnétique appliqué parallèlement à l'axe c ( $H = 1$  T).

Les analyses précédentes de l'angle de Hall  $\theta_H$  ont donné une variation de  $\cotg\theta_H$  en  $T^2$  générale pour tous les systèmes [59, 61, 62-66, 67, 68], malgré certaines déviations observées dans le cas des états surdopés de Bi-2201 [61] et LaSrCuO [63] et dans le cas de YBCO [65, 14]. Une modification de cette loi en  $T^m$  avec m dépendant du dopage ( $1 < m < 2,15$ ) au lieu de  $T^2$  a été proposée pour expliquer l'évolution en fonction du dopage de  $\cotg\theta_H$ , dans le cas de BiSrCaCuO [69] et LaSrCuO [70], ce qui a été confirmé récemment dans le cas d'YBCO [71, 72] et BiSrLaCuO [9, 73].

Sur les figures 33 et 34 on a représenté la variation de l'angle de Hall dans les différents états de dopage. Le comportement observé est plus en accord avec une loi en  $T^m$  [69, 70] :

$$\cotg\theta_H = \cotg\theta_H(T=0) + CT^m \quad (\text{III.9})$$

qu'avec une loi en  $T^2$  qui a été proposée au départ.

L'exposant m varie entre 1,65 et 1,7 pour les états les plus surdopés (respectivement pour L10 et C11) et 2 dans la région sous-dopée (des valeurs de m plus grandes que 2 peuvent aussi décrire les états fortement sous-dopés (L7, L8, L9 et C10) dans un intervalle de température un peu plus grand, et qui correspondent à des valeurs de  $\cotg\theta_H(T=0)$  plus grandes et des valeurs du coefficient C plus petites (voir la figure 35)). Ces différents ajustements donnent une estimation de l'erreur sur les paramètres déterminés. Une valeur de  $\alpha > 2$  a été aussi rapportée dans le cas de  $\text{Bi}_2\text{Sr}_{1,26}\text{La}_{0,74}\text{CuO}_6$  ( $m=2,05$ ) [73] et  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6,63}$  ( $m=2,15$ ) [71].



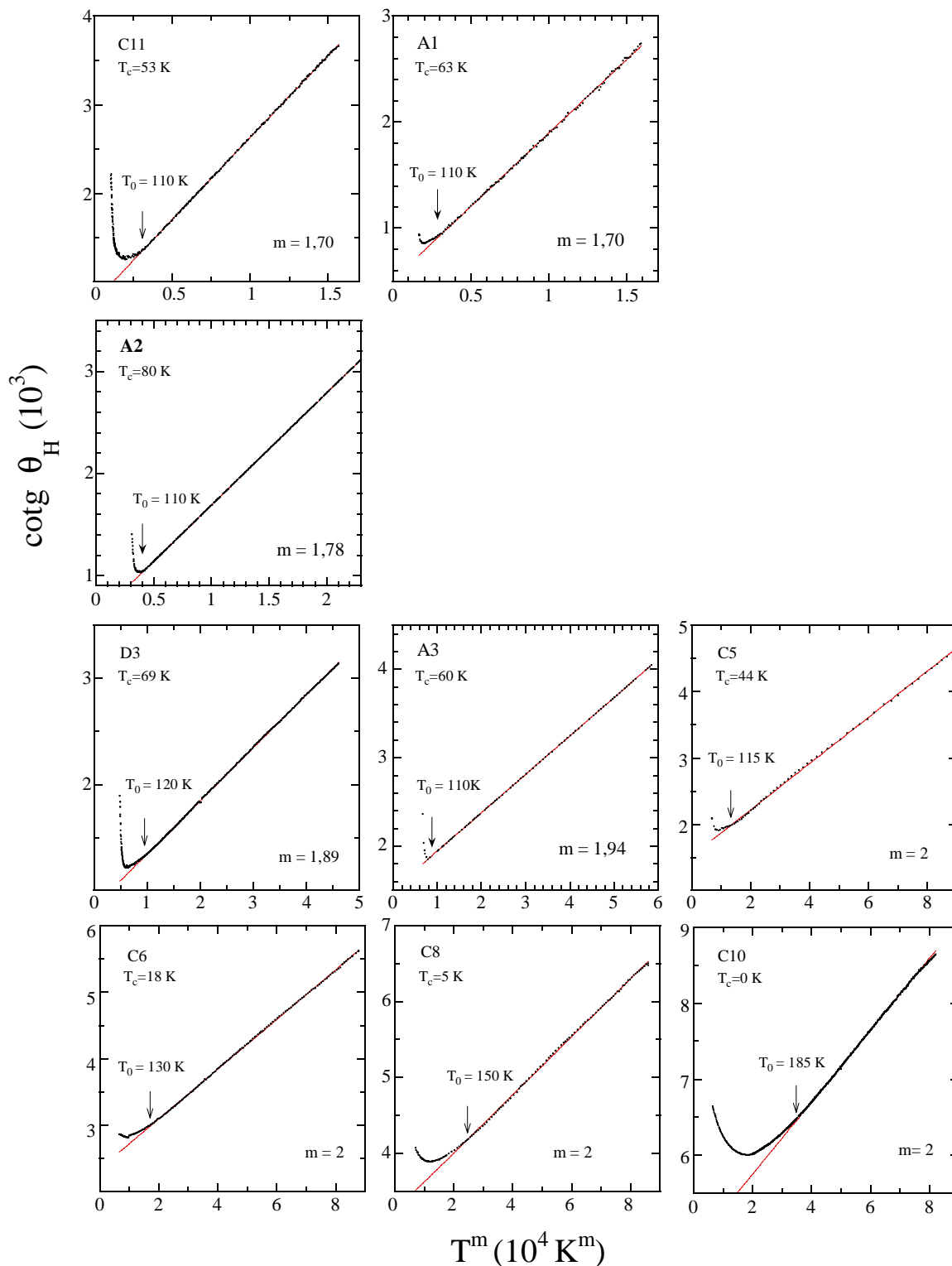


Figure 33 : Variation en  $T^m$  de l'angle de Hall  $\cotg \theta_H$  en fonction du dopage pour des films de la phase Bi-2212 dans différents états du dopage ( $\cotg \theta_H = \rho / HR_H$  avec  $H=1T$ ). Les lignes en traits continus montrent cette variation jusqu'à une température  $T_0$ , indiquée par les flèches.

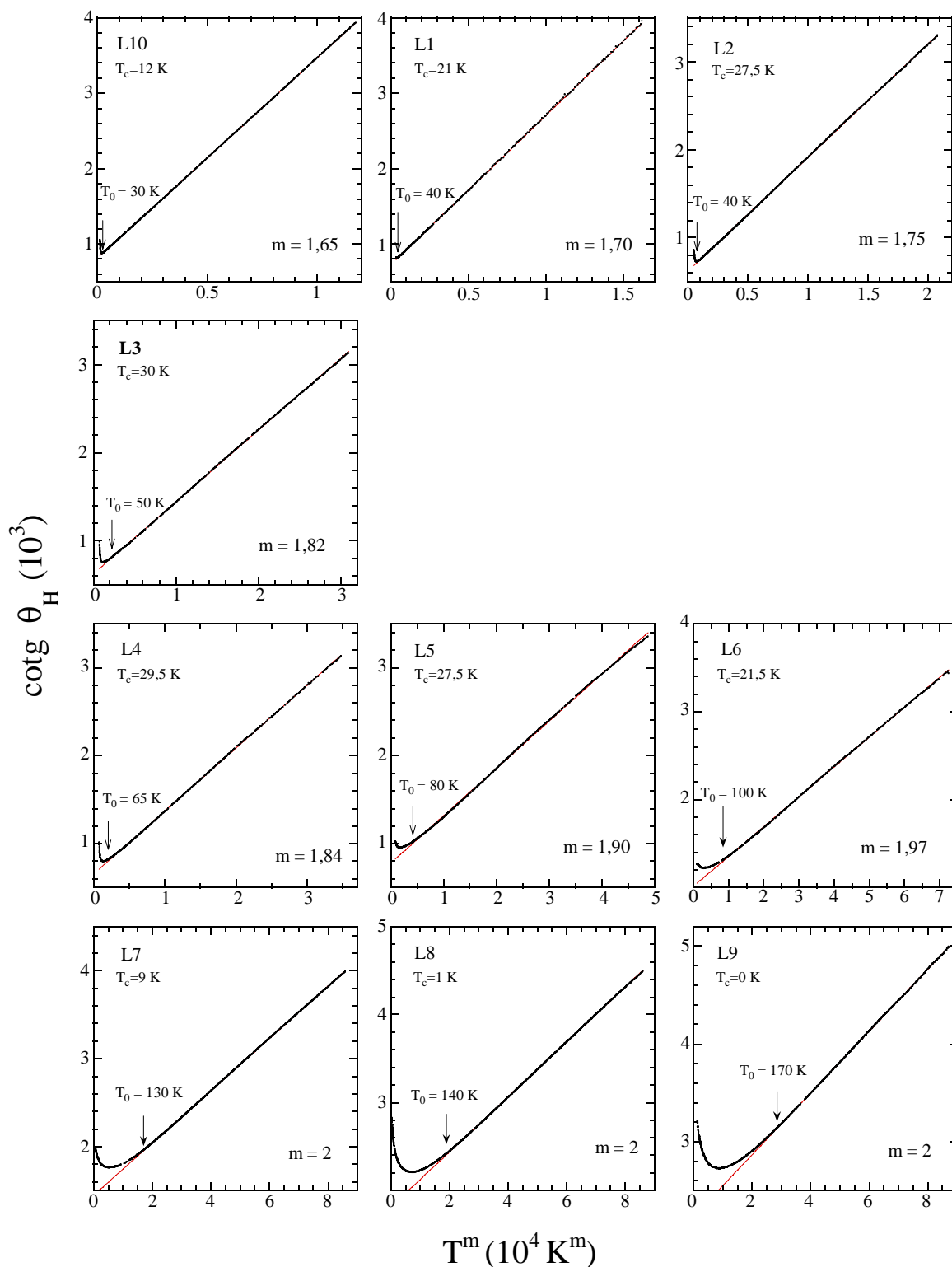


Figure 34 : Variation en  $T^m$  de  $\cotg \theta_H$  pour les différents états du film L de la phase Bi(La)-2201 ( $\cotg \theta_H = \rho / HR_H$  avec  $H=1 \text{ T}$ ). Les lignes continues montrent cette variation ainsi que la déviation à  $T_0$ , indiqué par les flèches.

Les valeurs de  $m$  sont plus grandes que les valeurs rapportées précédemment pour les mêmes phases : entre 1 et 2 (1,7 pour l'état optimal par rapport à 1,78 dans notre cas) pour les films Bi-2212 [69] et aussi entre 1,6 et 2 (1,7 pour l'état optimal par rapport à 1,82 dans nos cas) pour  $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_6$  [9].

La valeur  $m$  augmente avec la substitution de Cu par Zn (dans le plan  $\text{CuO}_2$ ) dans le système d'YBCO ce qui a pour effet principal une augmentation de la diffusion par le désordre [72], et ce qui peut expliquer éventuellement la différence observée entre nos résultats et les résultats des autres auteurs. La résistivité résiduelle,  $\rho_0$ , de monocristaux de  $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_6$  est légèrement plus petite par rapport à celle de nos films (cf. A3(a)).

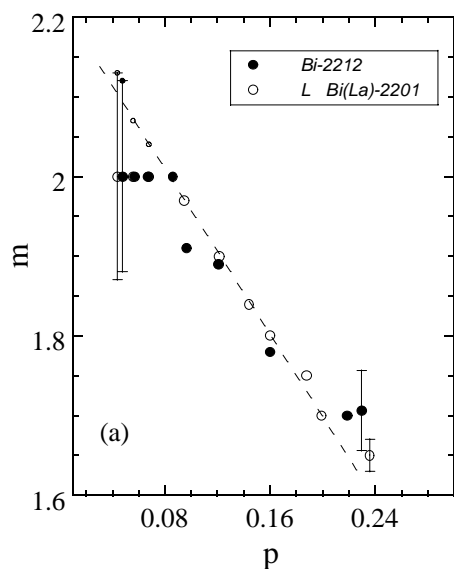
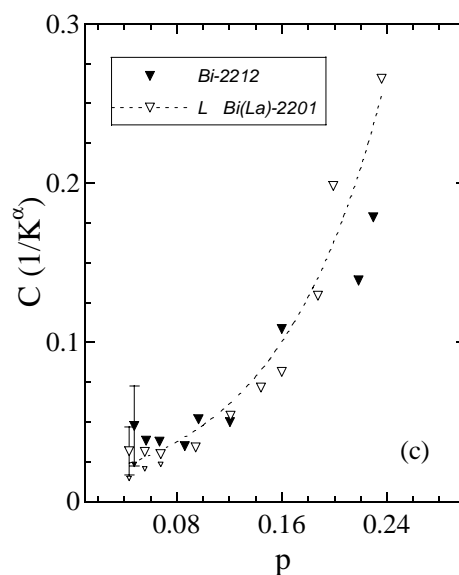
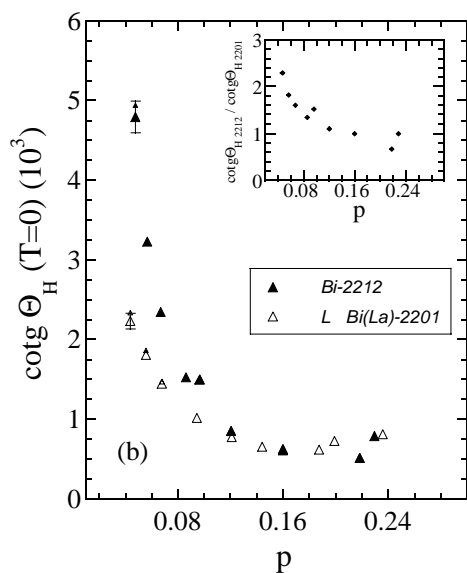


Figure 35 :

Variation (a) de l'exposant  $m$ , (b) de la partie résiduelle  $\cotg\theta_H(T=0)$ , (c) de la pente  $C$  en fonction du dopage de la phase Bi-2212 et Bi(La)-2201.



La résiduelle  $\cotg\theta_H(T=0)$  a tendance à augmenter quand le dopage diminue dans les deux phases (figure 35(b)). Le même comportement de la résiduelle a été rapporté pour les monocristaux de Bi-2212 [68] ainsi que dans le cas de la substitution de Cu par Zn dans YBCO [64, 72] et, parmi les systèmes à un seul plan  $\text{CuO}_2$ , dans Tl-2201 [59] ainsi que dans le cas de substitution de Cu par les différents éléments (Fe, Co, Ni, Zn Ga) dans LaSrCuO [62]. Cette augmentation est principalement attribuée à l'augmentation de la diffusion par le désordre.

Il faut remarquer que l'augmentation de la diffusion par le désordre magnétique du côté sous-dopé reste relativement faible par rapport à l'augmentation de la résistivité résiduelle. Les résiduelles  $\cotg\theta_H(T=0)$  du côté sous-dopé augmentent plus dans la phase Bi-2212 que dans Bi(La)-2201 qui suivent bien la tendance vue en considérant  $\rho_0$  dans cette région (cf. A3(b)) (encart de la même figure).

D'autre part, la pente C a tendance à diminuer quand le dopage diminue, de façon tout à fait similaire dans les deux phases (figure 35(c)). La même variation est observée dans le cas de la substitution de Cu par Co dans l'YBCO [65] et dans LaSrCuO en diminuant le degré de dopage par substitution de La par Sr avec une résiduelle constante [63]. Ces résultats indiquent que la diminution de C est liée à la diminution du nombre de porteurs, par rapport au cas précédent où la pente reste constante avec une augmentation des résiduelles.

Les résultats précédents montrent qu'à chaque processus de désoxydation on diminue le nombre de porteurs mais en même temps on ajoute une contribution constante à l'angle de Hall aussi bien qu'à la résistivité  $\rho_0$  liée à la diffusion par le désordre.

La ligne continue sur les figures 33 et 34 montre la validité de cette loi phénoménologique (III.8), ainsi que la déviation observée à partir de la température  $T_0$ , indiquée par une flèche. Cette température  $T_0$  augmente avec la diminution du dopage (un comportement similaire à celle des autres températures caractéristiques). Cette variation est différente pour les deux phases du côté surdopé, tandis qu'elle est la même du côté sous-dopé. La variation de  $T_0$  est similaire à la variation de  $T_{\max}$  mais tandis que cette dernière sature à faible dopage,  $T_0$  continue à augmenter.

*Il faut aussi remarquer qu'aucun changement ne se produit à la température  $T^*$ , les courbes étant insensibles au changement observé dans la résistivité.*

Comme l'angle de Hall  $\theta_H$  ne montre aucun changement à  $T^*$ , l'effet de pseudogap dans  $R_H$  doit compenser la différence provoquée par la résistivité ( $\cotg\theta_H = \rho/HR_H$ ).

De plus, l'influence du pseudogap sur l'effet Hall dans le cas d'YBCO a été récemment rapportée se produire à cette température  $T_0$ , plus basse que celle observée dans  $\rho(T)$ , où la loi en  $T^m$  de  $\theta_H$  n'est plus valable. Selon les auteurs, si la loi phénoménologique (III.8) reste valable jusqu'à  $T_c$  il n'y aura pas de maximum dans  $R_H$  et donc la décroissance de  $R_H(T)$  lorsque  $T$  diminue peut s'expliquer par une manifestation du pseudogap à  $T_0 < T^*$  [71, 72]. Une discussion similaire a été présentée dans le cas de BiSrLaCuO en prenant la température  $T_{max}$  comme la signature du pseudogap observée dans l'effet Hall [73].

Les différents aspects du pseudogap sur l'effet Hall seront discutés dans la suite.

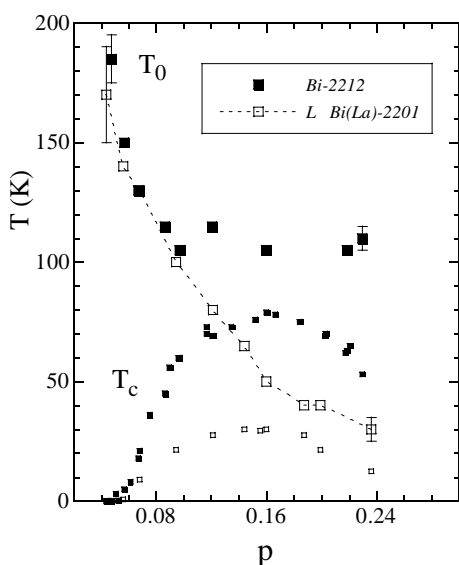


Figure 36 :  
Variation de  $T_0$ , limite de la validité de la loi de la loi  $\cotg\theta_H(T=0) + CT^m$  en fonction du dopage de la phase Bi-2212 et Bi(La)-2201.

Les modèles théoriques existants donnent essentiellement l'explication de la loi phénoménologique en  $T^2$  (III.8), observée approximativement dès les premiers résultats expérimentaux. Une des explications vient du modèle proposé par Anderson [74], à partir du modèle "t-J"(cf. I.B). La cotangente de l'angle de Hall est déterminée par des interactions entre les spinons qui donnent une dépendance en  $T^2$  qui peut expliquer la variation du côté sous-dopé. Le modèle reste assez rigide et il ne peut pas prendre en compte l'évolution du comportement de l'effet Hall vers le côté surdopé (vers un liquide de Fermi). Les autres modèles avec une diffusion différente venant des points froids et des points chauds, comme le scénario magnétique proposé par Pines [75], ou par mécanisme de "skew" diffusion [76], expliquent aussi bien le comportement du côté sous-dopé. Nos résultats ne sont pas complètement incompatibles avec ces derniers modèles qui peuvent prévoir des exposants différents de  $n=2$ .

### B3. Signature du pseudogap sur l'effet Hall

Comme l'analyse directe du coefficient de Hall  $R_H$  n'a pas révélé de signature claire du pseudogap comme dans le cas d'YBCO [13, 14] nous avons essayé de la voir à partir du comportement de la résistivité et de l'angle de Hall en fonction de  $T$ . Pour mettre en évidence l'effet du pseudogap vu dans  $\rho(T)$  ainsi que cette déviation de l'angle de Hall par rapport à la loi phénoménologique (III.8) dans le coefficient de Hall, on a considéré plusieurs comportements hypothétiques de  $R_H(T)$  à partir de  $R_H - \rho / \cotg\theta_H$ .

Si on suppose qu'aucun effet du pseudogap n'est visible dans l'angle de Hall l'effet de pseudogap dans  $R_H$  doit compenser la différence provoquée par la résistivité. Pour mettre en évidence cet effet, sur la figure 37, nous avons comparé nos courbes expérimentales de  $R_H$  (les états de A2 à C10 et de L3 à L9) avec l'expression hypothétique  $(\rho_0 + \alpha T) / \cotg\theta_H(T)$  ne tenant compte que de la partie linéaire de  $\rho(T)$ .

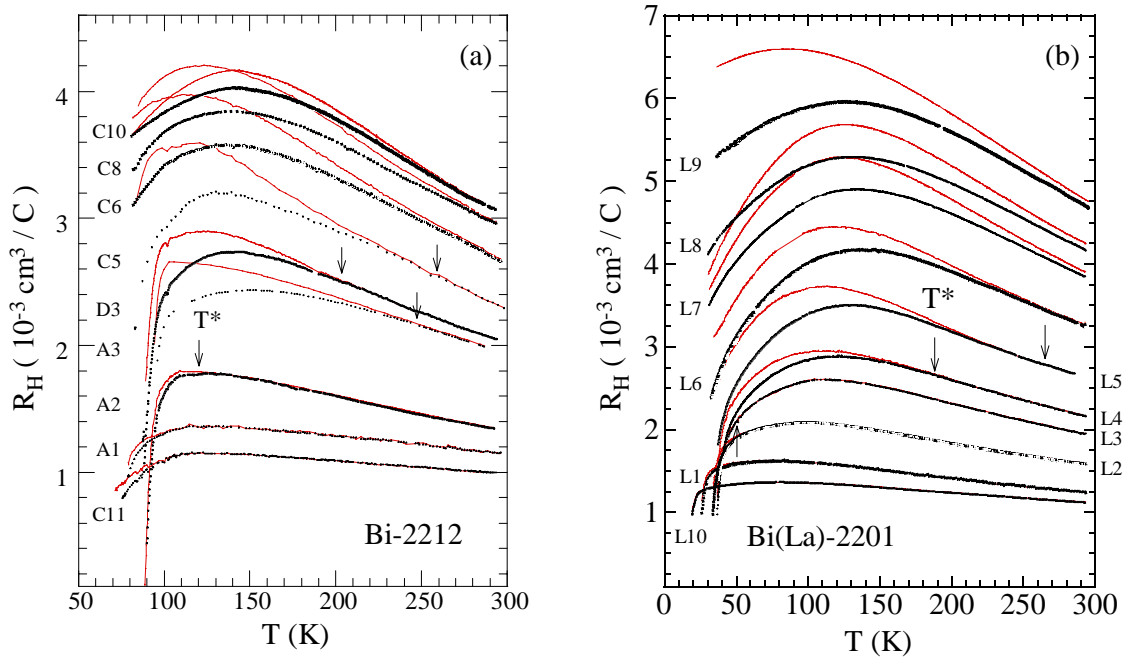


Figure 37 :  $R_H$  en fonction de  $T$  pour les films de (a) Bi-2212 et (b) Bi(La)-2201. Les lignes continues correspondent à l'ajustement avec la loi  $(\rho_0 + \alpha T) / \cotg\theta_H(T)$  du côté surdopé et avec  $(\rho_0 + \alpha T) / \cotg\theta_H(T)$  du côté sous-dopé pour mettre en évidence l'effet de pseudogap vu dans le comportement de la résistivité.

L'accord entre les lignes en traits continus, représentant  $R_H$  sans l'effet du pseudogap, avec les points expérimentaux s'arrête au voisinage de  $T^*$ , indiqué par les flèches. Les lignes continues montrent ensuite l'apparition d'un maximum. La position de ce maximum a été déplacée vers les températures plus basses par rapport aux courbes expérimentales mais, dans ce cas, son apparition n'est pas liée à l'ouverture du pseudogap à  $T^*$ . Egalement,  $R_H$  ne suit pas forcément une loi en  $1/T$  à hautes températures due à une valeur non nulle de  $\cotg\theta_H(T=0)$ , déterminée précédemment.

Dans la région surdopée, en tenant compte de la description phénoménologique de  $\rho(T)$  (cf. III-A2(c(i)) et III-A3(c(i))), on obtient un bon accord entre nos résultats et l'ajustement  $(\rho_0 + \alpha T^m) / \cotg\theta_H(T)$  (sur la même figure voir les états C11, A1 et L10, L1 L2). L'apparition d'un maximum dans  $R_H$  et sa position sont bien décrits à partir des comportements de la résistivité et de l'angle de Hall.

Si d'un autre côté, on suppose que la température  $T_0$ , la limite de validité de la loi phénoménologique de  $\cotg\theta_H$ , manifeste aussi l'effet de pseudogap à une température plus basse que  $T^*$  on peut en mettre en évidence la conséquence sur  $R_H$  de la même façon (figure 38). Les lignes continues montrent la variation de  $\rho(T) / (\cotg\theta_H(T=0) + CT^m)$  comparée aux points expérimentaux.

La température  $T_0$ , indiquée par des flèches, montre la limite de validité de cette loi et en même temps l'écart entre nos résultats et l'expression correspondante. La température  $T_{max}$ , proposée pour être la conséquence de l'ouverture du pseudogap à  $T_0$  [71, 72, 73], semble être plutôt la conséquence de la dépendance en  $T$  de l'angle de Hall. Un maximum dans les lignes en traits continus peut être défini jusqu'aux états C6 et L8, à partir desquels un maximum ne peut plus être décrit. Enfin, il faut remarquer que dans les systèmes "purs" où  $\cotg\theta_H \sim T^m$  et  $\rho \sim T^n$ , le maximum dans  $R_H$  ne peut pas être obtenu, (voir les lignes en pointillés dans la figure 38).

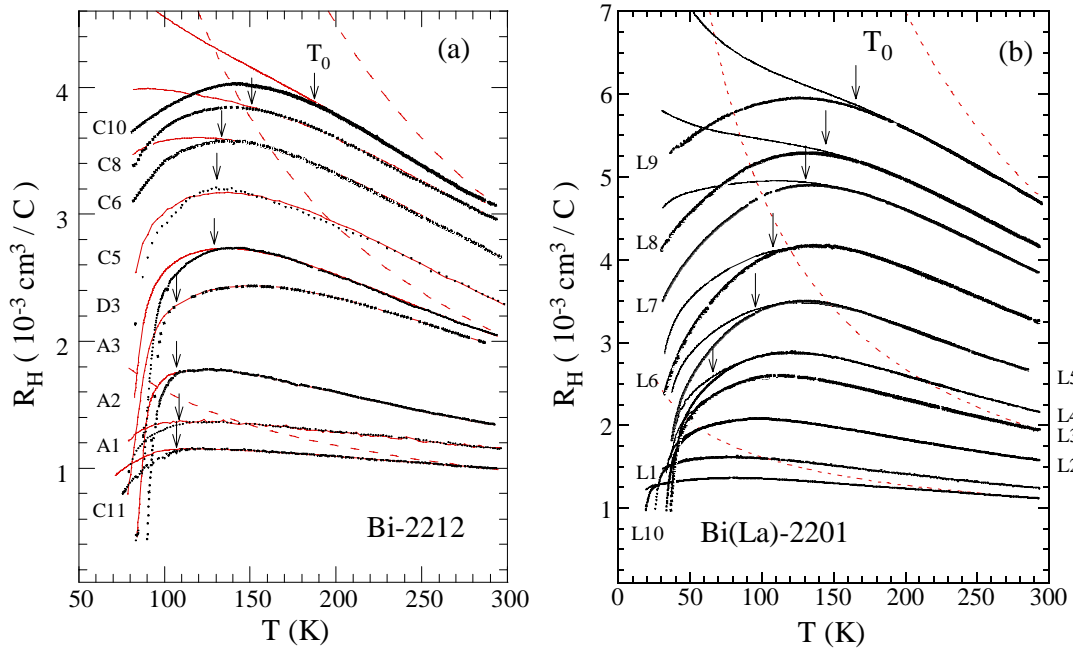


Figure 38 :  $R_H$  en fonction de  $T$  pour (a) Bi-2212 et (b) Bi(La)-2201. Les lignes en traits continus correspondent à l'ajustement avec la loi  $\rho(T)/(\cotg\theta_H(T=0)+CT^m)$  qui met en évidence la différence due à la déviation par rapport à loi phénoménologique de  $\cotg\theta_H$ . Les lignes en pointillés correspondent à une loi de la forme avec  $\sim T^n/T^m$  qui peut être attendu dans le cas des échantillons "purs".

### Résumé des points importants :

- Le comportement du coefficient de Hall et de l'angle de Hall en fonction du dopage est similaire dans les deux phases.
- L'angle de Hall suit une loi simple en  $T^m$ , avec l'exposant  $m$  qui varie en fonction du dopage.
- Aucune anomalie n'est visible sur le comportement de l'angle de Hall en fonction de la température à  $T^*$  déterminée à partir de  $\rho(T)$ .
- L'ouverture du pseudogap dans le comportement du coefficient de Hall a été mis en évidence de façon indirecte afin de compenser la différence provoquée par la résistivité.
- Il n'y a pas une liaison claire entre le maximum  $T_{\max}$  (maximum déterminé à partir de courbes  $R_H(T)$ ) et la signature de pseudogap.
- L'interprétation de  $T_0$  (limite de validité de la loi phénoménologique de l'angle de Hall) comme une autre température de signature du pseudogap reste ouverte.



### Références du chapitre III

---

- [1] M. Gurvitch et A. T. Fiory, Phys. Rev. Lett. **59**, 1337 (1987); S. Martin, A. T. Fiory, R. M. Fleming, L. F. Schneemeyer et J. V. Waszczak, Phys. Rev. Lett. **60**, 2194 (1988).
- [2] Par exemple Y. Iye, "Physical Properties of High Temperature Superconducteurs", edited by D. M. Ginsberg (World Scientific, Singapore, 1992), Vol.3.
- [3] H. Rifi, thèse Université Paris XI (1996).
- [4] H. Takagi, T. Ido, S. Ishibashi, M. Uota, S. Uchida et Y. Tokura, Phys. Rev. B **40**, 2254 (1989).
- [5] M. R. Presland, J. L. Tallon, R. G. Buckley, R. S. Liu et N. E. Flower, Physica C **176**, 95 (1991).
- [6] H. Takagi, H. Batlogg, H. L. Kao, J. Kwo, R. J. Cava, J. J. Krajewski et W. F. Peck, Phys. Rev. Lett. **69**, 2975 (1992).
- [7] Y. Kubo, Y. Shimakawa, T. Manako et H. Igarashi, Phys. Rev. B **43**, 7875 (1991).
- [8] T. Watanabe, T. Fujii et A. Matsuda, Phys. Rev. Lett. **79**, 2112 (1997).
- [9] Y. Ando et T. Murayama, Phys. Rev. B **60** 6991 (1999).
- [10] B. Batlogg, H. Y. Hwang, H. Takagi, R. J. Cava, H. L. Kao et J. Kwo, Physica C **235-240**, 130 (1994).
- [11] C. Kendziora, M. C. Martin, J. Hartge, L. Mihaly et L. Forro, Phys. Rev. B **48**, 3531 (1993).
- [12] Y. Kotaka, T. Kimura, H. Ikuta, J. Shimoyama, K. Kitazawa, K. Yamafuji, K. Kishio et D. Pooke, Physica C **235-240**, 1529 (1994) ; C. Kendziora, L. Forro, D. Mandrus, J. Hartge, P. Stephens, L. Mihaly, R. Reeder, D. Moecher, M. Rivers et S. Sutton, Phys. Rev B **45**, 13025 (1992).
- [13] T. Ito, K. Takenaka, S. Uchida, Phys. Rev. Lett. **70**, 3995 (1993).
- [14] B. Wuyts, E. Osquiguil, M. Maenhoudt, S. Libbrecht, Z. X. Gao et Y. Bruynseraede, Phys. Rev. B **47**, 5512 (1993); B; Wuyts, V. V. Moshchalkov et Y. Bruynseraede, Phys. Rev. B **53**, 9418 (1996); B; Wuyts, V. V. Moshchalkov et Y. Bruynseraede, Phys. Rev. B **51**, 6115 (1995).
- [15] A. Carrington, D. J. Walker, A. P. Mackenzie et J. R. Cooper, Phys. Rev. B **48**, 13051 (1993).
- [16] M. Oda, K. Hoya, R. Kubota, C. Manabe, N. Momono, T. Nakano et M. Ido, Physica C **281**, 135 (1997).

- [17] Z. Konstantinovic, Z. Z. Li et H. Raffy, *Physica B* **259-261**, 567 (1999).
- [18] L. Trappeniers, J. Vanacken, P. Wagner, G. Teniers, S. Curras, J. Perret, P. Martinoli, J.-P. Locquet, V. V. Moshchalkov et Y. Bruynseraede, *J. Low Temp. Phys.* **117**, 681 (1999).
- [19] Z. Konstantinovic, Z. Z. Li et H. Raffy, *Physica C*, à paraître.
- [20] A. V. Puchkov, D. N. Basov et T. Timusk, *J. Phys.:Condens. Matter* **8**, 10049 (1996).
- [21] A. Santander et N. Bontemps, communication privée.
- [22] J. R. Cooper et J. W. Loram, *J. Phys. I France* **6**, 2237 (1996), J. R. Cooper, H. Minami, V. W. Wittorf, D. Babic et J. W. Loram, *Physica C*, à paraître.
- [23] L. J. Shen, C. C. Lam, Y. S. Chen, V. Anand et X. Jin, *Physica C*, à paraître.
- [24] L. J. Shen, C. C. Lam, V. Anand, S. H. Li et X. Jin, *Physica C*, à paraître.
- [25] B. Batlogg, H. Y. Hwang, H. Takagi, R. J. Cava, H. L. Kao et J. Kwo, *Physica C* **235-240**, 130 (1994).
- [26] H. Ding, T. Yokoya, J. C. Campuzano, T. Takahashi, M. Randeria, M. R. Norman, T. Mochiku, K. Kadowaki and J. Giapintzakis, *Nature (London)* **382**, 51 (1996).
- [27] J. C. Campuzano, H. Ding, M. R. Norman, H. T. Fretwell, M. Randeria, A. Kaminski, J. Mesot, T. Takeuchi, T. Sato, T. Tokoya, T. Takahashi, T. Mochiku, K. Kadowaki, P. Guptasarma, D. G. Hinks, Z. Konstantinovic, Z. Z. Li, H. Raffy, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 3709 (1999).
- [28] H. A. Mook, F. Dogan et B. C. Chakoumakos, *cond-mat/9811100* (1998).
- [29] R. E. Walstedt, R. F. Bell et D. B. Mitzi, *Phys. Rev. B* **44**, 7760 (1991).
- [30] B. L. Altshuler, L. B. Ioffe et A. J. Millis, *Phys. Rev. B* **53**, 415 (1996).
- [31] J. M. Harris, P. J. White, Z.-X. Shen, H. Ikeda, R. Yoshizaki, H. Eisaki, S. Uchida, W. D. Si, J. W. Xiong, Z.-X. Zhao et D. S. Dessau, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 143 (1997).
- [32] M. Gabay et P. Lederer, *Phys. Rev. B* **47** 14462 (1993); M. Gabay et P. Lederer, *Physica C* **209**, 117 (1993).
- [33] M. Onoda, I. Ichinose et T. Maui, *Jour. Phys. Soc. Jap* **67** 2606 (1998).
- [34] S. K. Tolpygo, J.-Y. Lin, M. Gurvitch, S. Y. Hou et J. M. Phillips, *Phys. Rev. B* **53**, 12454 (1996).
- [35] J. Halbritter, *J. Supercond.* **11**, 231 (1998).
- [36] V. V. Moshchalkov, L. Trappeniers et J. Vanacken, *Europhys. Lett.* **46**, 75 (1999).
- [37] V. V. Moshchalkov, *Solid State Commun.* **86**, 715 (1993).

- 
- [38] L. Soderholm, K. Zhang, D. G. Hinks, M. A. Beno, J. D. Jorgensen, C. U. Segre et I. K. Schüller, *Nature* **328**, 604 (1987); Y. Dalichaouch, M. S. Torikachvili, E. A. Early, B. W. Lee, C. L. Seaman, K. N. Yang, H. Zhou et M. B. Maple, *Solid State Commun.* **65**, 1001 (1988); A. Matsuda, K. Kinoshita, T. Ishii, H. Shibata, T. Watanabe et T. Yamada, *Phys. Rev. B* **38**, 2910 (1988).
- [39] Y. Fukuzumi, K. Mizuhashi, K. Takenaka et S. Uchida, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 684 (1996).
- [40] T. Tamegai, A. Watanabe, K. Koga, I. Oguro et Y. Iye, *Jpn. J. Appl. Phys.* **27**, L1074 (1988); R. Yoshizaki, Y. Saito, Y. Abe et H. Ikeda, *Physica C* **152**, 408 (1998); A. Maeda, M. Hase, I. Tsukada, K. Noda, S. Takebayashi et K. Uchinokura, *Phys. Rev. B* **41**, 6418 (1990).
- [41] T. Tamegai, K. Koga, K. Suzuki, M. Ichihara, F. Sakai et Y. Iye, *Jpn. J. Appl. Phys.* **28**, L112 (1989).
- [42] D. Mandrus, L. Forro, C. Kendziora et L. Mihaly, *Phys. Rev. B* **44**, 2418 (1991).
- [43] P. Mandal, A. Poddar, B. Ghosh et P. Choudhury, *Phys. Rev. B* **43**, 13102 (1991).
- [44] C. Quitmann, D. Andrich, C. Jarchow, M. Fleuster, B. Beschoten, G. Güntherodt, V. V. Moshchalkov, G. Mante et R. Manzke, *Phys. Rev. B* **46**, 11813 (1992).
- [45] J. Clayhold, S. J. Hagen, N. P. Ong, J. M. Tarascon et P. Barboux, *Phys. Rev. B* **39**, 7324 (1989).
- [46] B. Jayaram, P. C. Lanchester et M. T. Weller, *Phys. Rev. B* **43**, 5444 (1991).
- [47] B. Beschoten, C. Quitmann, R. J. Kelley, M. Onellion et G. Güntherodt, *Physica B* **223&224**, 519 (1996)
- [48] A. Sattar, J. P. Srivastava, S. V. Sharma et T. K. Nath, *Physica C* **226**, 335 (1996).
- [49] P. Bernstein, J. Bok et A. Zylbersztein, *Solid State Commun.* **70**, 271 (1989).
- [50] G. Briceno et A. Zettl, *Phys. Rev. B* **40**, 11352 (1989).
- [51] M. Oda, Y. Hidaka, M. Suzuki, Y. Enomoto, T. Murakami, K. Yamada et Y. Endoh, *Solid State Commun.* **67**, 257 (1988).
- [52] M. Suzuki, *Phys. Rev. B* **39**, 2312 (1989).
- [53] B. Ellman, H. M. Jaeger, D. P. Katz, T. F. Rosenbaum, A. S. Cooper et G. P. Espinosa, *Phys. Rev. B* **39**, 9012 (1989).
- [54] N. L. Wang, Y. Chong, C. Y. Wang, D. J. Huang, Z. Q. Mao, L. Z. Cao et Z. J. Chen, *Phys. Rev. B* **47**, 3347 (1993).
- [55] M. Inoue, H. Matsushita, H. Hayakawa et K. Ohbayashi, *Phys. Rev. B* **51**, 15448 (1995).
- [56] E. Lai et R. J. Gooding, *Phys. Rev. B* **57**, 1498 (1998).

- [57] M. Zhiqiang, X. Gaojie, Y. Hongjie, W. Bin, Q. Xueyin et Z. Yuheng, *Phys. Rev. B* **58**, 15116 (1998).
- [58] M. A. Gonzales, J. L. Vincent, F. Garcia-Alvarado, E. Morgan et M. A. Alario-Franco, *Solid State Commun.* **80**, 697 (1991).
- [59] Y. Kubo et T. Manako, *Physica C* **197**, 378 (1991).
- [60] A. P. Mackenzie, S. D. Hughes, J. R. Cooper, A. Carrington, C. Chen et B. M. Wanklyn, *Phys. Rev. B* **45**, 527 (1992).
- [61] Y. Ando, G. S. Boebinger, A. Passner, N. L. Wang, C. Geibel, F. Steglich, I. E. Trofimov et F. F. Balakirev, *Phys. Rev. B* **56**, 8530 (1997).
- [62] G. Xiao, P. Xiong et M. Z. Cieplak, *Phys. Rev. B* **46**, 8687 (1992).
- [63] H. Y. Hwang, B. Batlogg, H. Takagi, H. L. Kao, J. Kwo, R. J. Cava, J. J. Krajewski et W. F. Peck, Jr., *Phys. Rev. Lett.* **72** 2636 (1994); B. Batlogg, H. Y. Hwang, H. Takagi, H. L. Kao, J. Kwo, R. J. Cava, *Jour. Low. Temp. Phys.* **95**, 23 (1994).
- [64] T. R. Chien, Z. Z. Wang et N. P. Ong, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 2088 (1991).
- [65] A. Carrington, A. P. Mackenzie, C. T. Lin et J. R. Cooper, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 2855 (1992); B. Wuyts, S. Osquiguil, M. Maenhoudt, S. Libbrecht, Z. X. Gao et Y. Bruynseraede, *Phys. Rev. B* **47**, 5512 (1993).
- [66] W. Jiang, J. L. Peng, S. J. Hagen et R. L. Greene, *Phys. Rev. B* **46**, 8694 (1992); P. Xiong, G. Xiao et X. D. Wu, *Phys. Rev. B* **47**, 5516 (1993).
- [67] P. S. Wang, J. C. Williams, K. D. D. Rathnayaka, B. D. Hennings, D. G. Naugle et A. B. Kaiser, *Phys. Rev. B* **47**, 1119 (1993).
- [68] C. Kendziora, D. Mandrus, L. Mihaly et L. Forro, *Phys. Rev. B* **46**, 14297 (1992).
- [69] B. Beschoten, U. Rüdiger, J. Auge, C. Quitmann, H. Frank, H. Kurz et G. Güntherodt, *Physica C* **235-240**, 1373 (1994); B. Beschoten, S. Sadewasser, G. Güntherodt et C. Quitmann, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 1837 (1996).
- [70] B. Beschoten, C. Quitmann, R. Borowski, N. Knauf et G. Güntherodt, *Physica B* **194-196**, 1519 (1994).
- [71] Z. A. Xu, Y. Zhang et N. P. Ong, *cond-mat/9903123* (1999).
- [72] Y. Abe, K. Segawa et Y. Ando, *Phys. Rev. B* **60**, 15055 (1999).
- [73] Y. Ando, T. Murayama et S. Ono, *J. Low Temp. Phys.* **117**, 1117 (1999).
- [74] P. W. Anderson, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 2092 (1991).

[75] B. P. Stojkovic et D. Pines, Phys. Rev. Lett. **76**, 811 (1996) ; B. P. Stojkovic et D. Pines, Phys. Rev. B **55**, 8576 (1997).

[76] G. Kotliar, A. Sengupta et C. M. Varma, Phys. Rev. B **53**, 3573 (1996).

## ***Chapitre IV : Propriétés de transport sous fort champ magnétique de la phase $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$***

Les mesures de transport dans *l'état normal* sous un champ magnétique d'intensité allant jusqu'à 20 T ont permis d'examiner l'influence du champ magnétique sur l'effet de pseudogap. Les échantillons étudiés sont des films de la phase Bi-2212 où l'effet de pseudogap est plus grand. Toutes les régions du diagramme de phase sont étudiées, aussi bien du côté surdopé que sous-dopé. Malgré une faible influence du champ magnétique, on a pu mettre en évidence la dépendance, en fonction de la température et du champ magnétique jusqu'à 20 T, de la magnéto-résistance dans cette région.

D'autre part, la mesure de la magnéto-résistance au-dessous de la température critique, dans la *région liquide de vortex*, a permis d'évaluer le changement de l'anisotropie, le déplacement de la ligne d'irréversibilité et le changement de l'énergie d'activation avec le dopage, ainsi que l'existence de la loi d'échelle en température de la magnéto-résistance.

Comme indiqué au chapitre II, les mesures de magnéto-résistance ont été effectuées au LCMI, en collaboration avec O. Laborde.

## A. Magnétorésistance de l'état normal

La magnétorésistance (MR) de l'état normal de la phase Bi-2212 a été mesurée en fonction du champ magnétique et de la température dans l'état surdopé A1 et les états sous-dopés A3, E4, B6, D9 et C8 (tableau 1).

La magnétorésistance de tous les états a été mesurée dans la configuration transversale qui donne la contribution principale dans la magnétorésistance orbitale (la magnétorésistance orbitale représente la différence entre les parties transversale et longitudinale). Comme la contribution de spin commence à être importante du côté très sous-dopé, la magnétorésistance longitudinale a été déterminée dans le cas de trois états sous-dopés : C8, D9 et E4 (tableau 1).

*Tableau 1 : Résumé des mesures de magnétorésistance ( $0 \leq H \leq 20$  T), effectuées au-dessus de  $T_c$*

nom des échantillons	$T_c$ (R=0)	p (nombre de trous par Cu)	Températures des mesures (K)	
			magnétorésistance transversale $\mathbf{I} \perp \mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$	magnétorésistance longitudinale $\mathbf{I} \parallel \mathbf{H} \perp \mathbf{c}$
A1	63 K	0,21	$70 \leq T \leq 300$	
A3	60 K	0,105	$80 \leq T \leq 300$	
E4	50 K	0,093	$70 \leq T \leq 300$	$105 \leq T \leq 300$
B6	30 K	0,073	$80 \leq T \leq 300$	
D9	17 K	0,062	$40 \leq T \leq 300$	$70 \leq T \leq 300$
C8	5 K	0,053	$40 \leq T \leq 300$	$70 \leq T \leq 300$

↓ état surdopé

↑ états sous-dopés

↓

### A1. Résistivité et l'effet Hall des états considérés

La variation de la résistivité en fonction de la température ainsi que celle du coefficient de Hall sont représentées, pour les états mesurés sous champ fort, sur la figure 1. La loi phénoménologique concernant l'angle de Hall est donnée sur la figure 2.

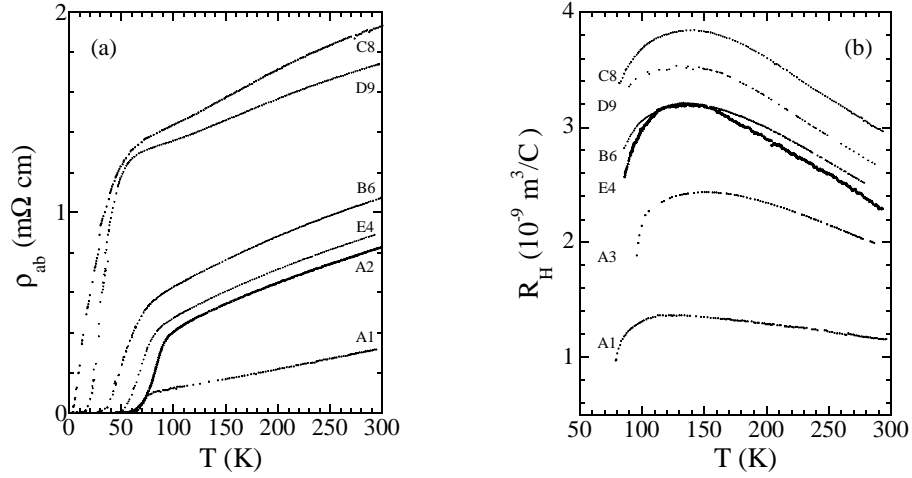


Figure 1 : La variation en fonction de  $T$  de la résistivité et du coefficient de Hall pour tous les états pour lesquels on a mesuré la magnétorésistance

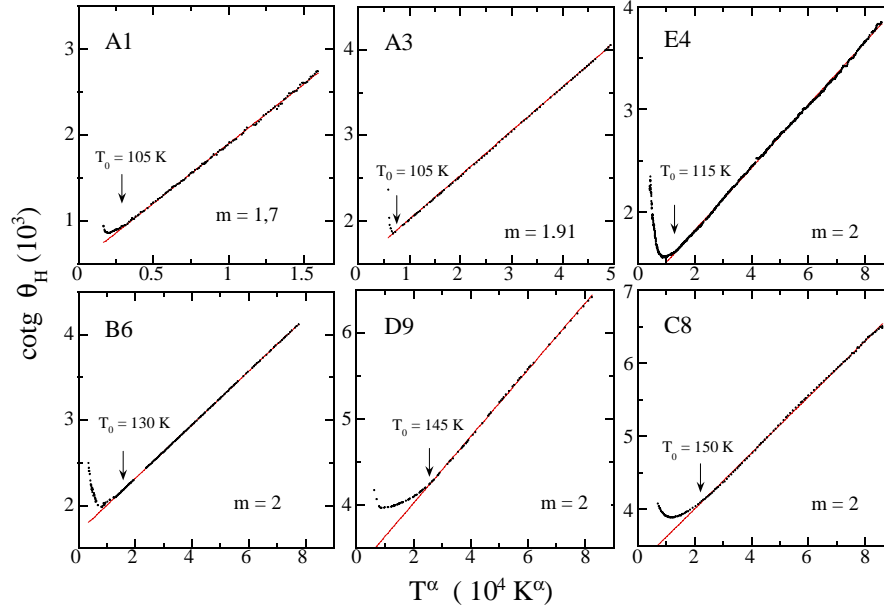


Figure 2 : L'angle de Hall dans les différents états de dopage avec l'ajustement (lignes continues) à la loi  $a+bT^m$  (cf. III.B.2).



## A2. Magnéto-résistance dans l'état normal

La magnéto-résistance dans le plan (ab) des HTSC est généralement faible ( $\Delta\rho/\rho < 1,5 \cdot 10^{-3}$  à 140 K et  $\Delta\rho/\rho < 2,5 \cdot 10^{-4}$  à 300 K sous 20 T) et positive  $\Delta\rho/\rho > 0$  [1] comme cela a été aussi rapporté dans le cas de "whiskers" de Bi-2212 [2] et de monocristal Bi-2212 [3] et aussi dans les systèmes YBCO [4], Tl-2201 [5, 6, 7], LaSrCuO [4, 8, 9, 10], BiSr(La)CuO [11] et LaBaCuO [12]. L'observation d'une magnéto-résistance négative dans le plan (ab) a été rapportée dans le cas de LaSrCuO [13], mais ces résultats sont attribués à la diffusion de spin par les défauts magnétiques [10].

La magnéto-résistance dans le plan (ab) (transversale et longitudinale) est proportionnelle à  $H^2$ , dans la région de faible champ ( $\omega_c \tau \ll 1$ , où  $\omega_c = eH/mc$  est la fréquence cyclotron et  $\tau$  est le temps de la diffusion), dans un large domaine de dopage et du champ accessible indépendamment du système considéré [1-13]. Un champ de  $H=60$  T a permis de sortir de cette région dans le cas d'un monocristal surdopé de  $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+\delta}$  ( $T_c=30$  K) [6] ainsi qu'un champ de  $H=16$  T dans le même système mais dans l'état plus surdopé ( $T_c=11$  K) [5]. Dans notre cas, même l'échantillon surdopé A1, ainsi que tous les autres états se trouvent dans la région de faible champ jusqu'à 20 T (tableau 2).

La figure 3 présente la magnéto-résistance transversale normalisée,  $\Delta\rho / \rho = [\rho(H, T) - \rho(0, T)] / \rho(0, T)$ , en fonction du champ magnétique à différentes températures choisies au-dessus de la température critique dans tous les états du dopage.

*Tableau 2 : Région de faible champ*

nom des échantillons	région de faible champ		T* (K)
	MR transversale	MR longitudinale	
A1	T > 114 K		
A3	T > 119 K		250
E4	T > 105 K	T > 105 K	260
B6	T > 101 K		280
D9	T > 108 K	T > 70 K	330
C8	T > 108 K	T > 70 K	380

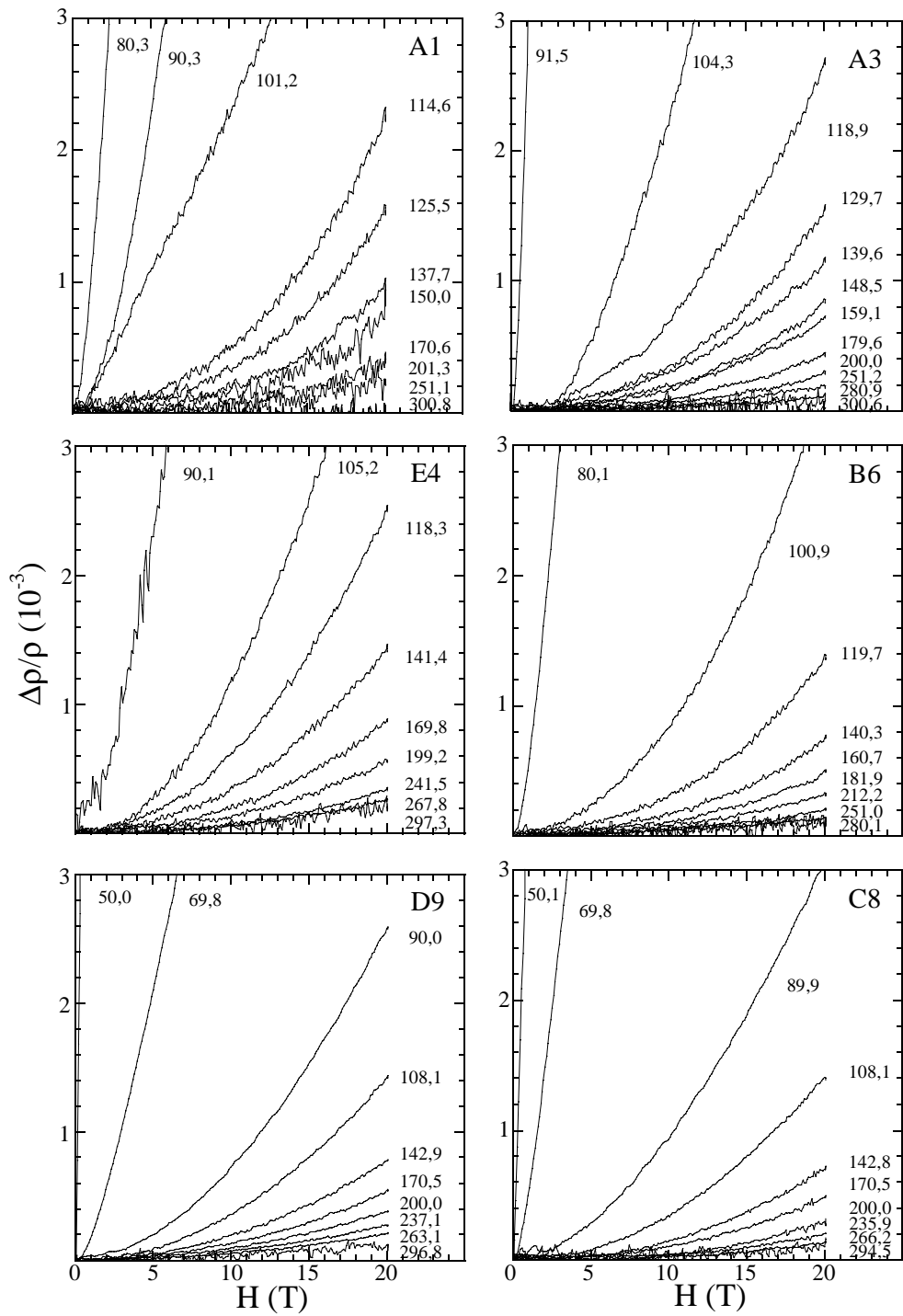


Figure 3 : La magnétorésistance transversale en fonction du champ magnétique dans différentes situations de dopage (tableau 1), à différentes températures (valeurs indiquées en Kelvin).

(a) Influence du champ magnétique sur l'effet de pseudogap

Sur la figure 4, on a porté la magnétorésistance transversale à 20 T,  $[\rho(20\text{T}, T) - \rho(0, T)] / \rho(0, T)$ , en fonction de la température pour tous les états. La magnitude de la magnétorésistivité normalisée ne varie pas beaucoup avec le dopage. La magnétorésistivité transversale de l'état surdopé A1 décroît vers zéro au-dessus de 200 K (elle tombe au-dessous de la résolution de la mesure) tandis que les MR de tous les autres états restent au voisinage de  $1 \cdot 10^{-4}$  jusqu'à la température ambiante.

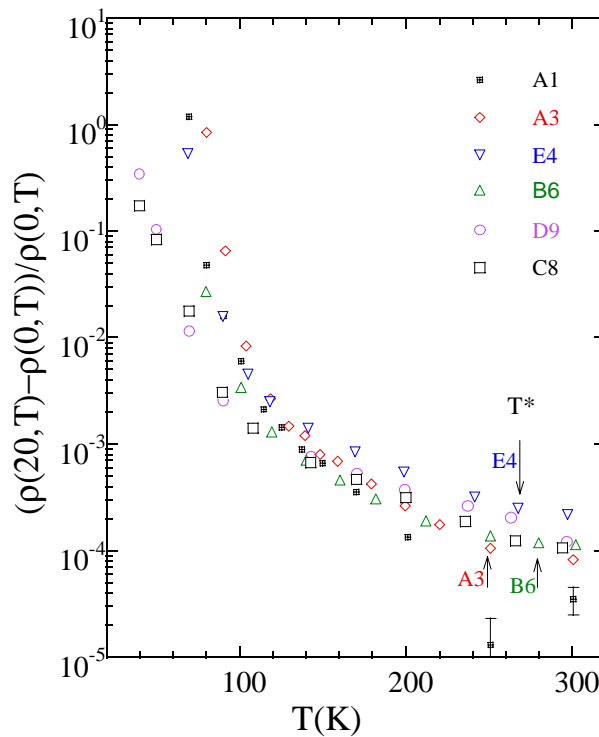


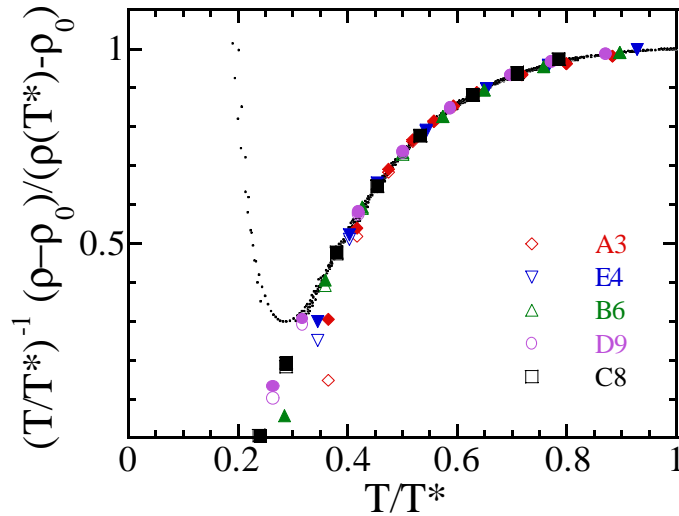
Figure 4 : La magnétorésistance transversale à 20 T en fonction de la température pour tous les états du dopage.

Les flèches indiquent la température de l'ouverture du pseudogap  $T^*$  (pour les états A3, E4 et B6), déterminée à partir de la mesure de la résistivité sans champ magnétique (cf. III.B). Les résultats présentés suggèrent que  $T^*$  ne change pas sous champ magnétique (jusqu'à 20 T). Pour mettre en évidence l'influence de ce dernier sur la magnitude du pseudogap on a utilisé, dans la figure 5, la même représentation que précédemment (chapitre

III) :  $(T/T^*)^{-1}(\rho(T) - \rho_0)/(\rho(T^*) - \rho_0)$  en fonction de  $T/T^*$ , où  $\rho_0$  est la résistivité résiduelle à  $T=0$  de la partie linéaire de  $\rho(T)$ . Les paramètres utilisés sont ceux déjà déterminés pour la résistivité  $\rho(T)$  à champ nul pour chaque état sous-dopé (cf. chapitre III). La magnétorésistance à 20 T, aussi que les états correspondants à champ nul se placent sur la courbe universelle, représentant le pseudogap dans la phase Bi-2212. La différence entre les courbes sous champ (symboles pleins sur la même figure) et sans champ (symboles vides) commence à être visible en dehors de la courbe universelle dans la région où les fluctuations supraconductrices apparaissent.

La valeur positive de la magnétorésistance  $\Delta\rho/\rho > 0$  indique que le champ magnétique a tendance à supprimer l'ouverture du pseudogap, mais que l'effet d'un champ de 20 T reste au-dessous de la précision de détermination de la température caractéristique  $T^*$  et de la courbe universelle ( $\sim 10^{-3}$ ). Les résultats présentés sont en accord avec la non observation de l'effet du champ magnétique (jusqu'à 15 T) sur le temps de relaxation de spin du  $^{63}\text{Cu}$  par la mesure de RMN dans le cas de l'état au voisinage de l'optimum d'YBCO [14].

Malgré un effet faible du champ magnétique on peut déterminer le comportement de la magnétorésistance transversale dans cette région.



*Figure 5 : Absence d'influence du champ magnétique (jusqu'à 20 T) dans la région du pseudogap. Les symboles vides correspondent au courbes à  $H=0$  et les symboles pleins à  $H=20$  T (le même symbole correspond à même état du dopage).*

(b) Comportement de la magnétorésistivité en fonction de température

- Règle de Kohler

La façon classique d'étudier ce comportement de la magnétorésistance en fonction du champ et de la température dans les métaux est de tracer la figure de Kohler. La théorie semi-classique du transport, basée sur l'équation de Boltzmann, avec un seul type de porteurs et un temps de diffusion isotrope en tous les points de la surface de Fermi, prévoit la règle de Kohler [15]:

$$\Delta\rho(H,T)/\rho(0,T)=f(H/\rho(0,T))=f(\tau H)$$

où  $f$  est une fonction dépendant de la nature du conducteur. Dans la région de faible champ, la magnétorésistance varie en  $H^2$  et la superposition des courbes obtenues aux différentes températures en fonction du champ magnétique est attendue pour  $\Delta\rho(T)/\rho(T)=\text{const} (H/\rho)^2$ .

Dans le cas des SHTC, la règle de Kohler n'a été vérifiée que dans l'état métallique ( $T_c=0$ ) de  $\text{La}_{1,72}\text{Sr}_{0,28}\text{CuO}_4$  [9]. Dans toutes les autres expériences on observe la déviation à cette loi dans tous les autres états, aussi bien sous-dopés qu'optimal et légèrement surdopés : dans l'état optimal ( $T_c=90\text{K}$ ) et sous-dopé ( $T_c=60\text{K}$ ) d'YBCO et dans l'état optimal de  $\text{LaSrCuO}$  ( $T_c=38\text{ K}$ ) [4], ainsi que dans l'état optimal ( $T_c=80\text{ K}$ ) [6] et surdopé ( $T_c=15-25\text{ K}$ ) [7] de  $\text{TlBaCuO}$  et dans le système  $\text{BiSr(La)CuO}$  dans une grande région du dopage [11]. Dans le cas de Bi-2212, la violation de la règle de Kohler a été observée pour les états au voisinage de l'optimum [2, 3] ce qui est en accord avec nos résultats où nous observons la violation de la règle de Kohler dans tous les états du dopage [1] (figure 6).

La magnétorésistance longitudinale a été mesurée dans le cas de trois états E4, D9 et C8 situés du côté très sous-dopé (tableau 1). Elle est aussi positive,  $\Delta\rho/\rho>0$ , et plus faible que la magnétorésistance transversale (figure 7). La même représentation,  $\Delta\rho/\rho$  en fonction de  $H^2/\rho^2$ , montre aussi la déviation par rapport à la règle de Kohler comme dans le cas de la magnétorésistance transversale.

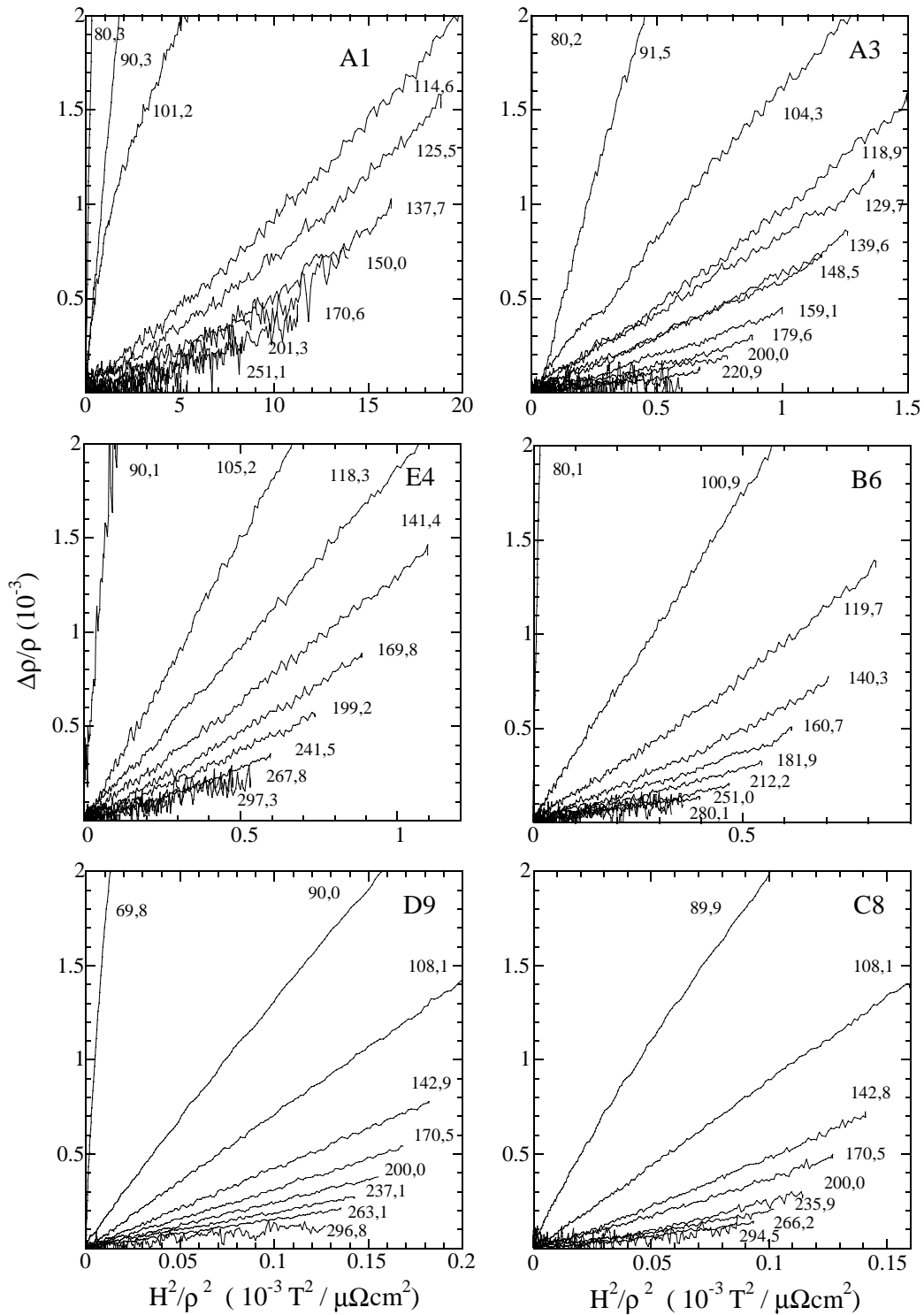


Figure 6 : Figures de Kohler des films de la phase Bi-2212 mesurés dans tous les états de dopage à différentes températures (valeurs indiquées en Kelvin).

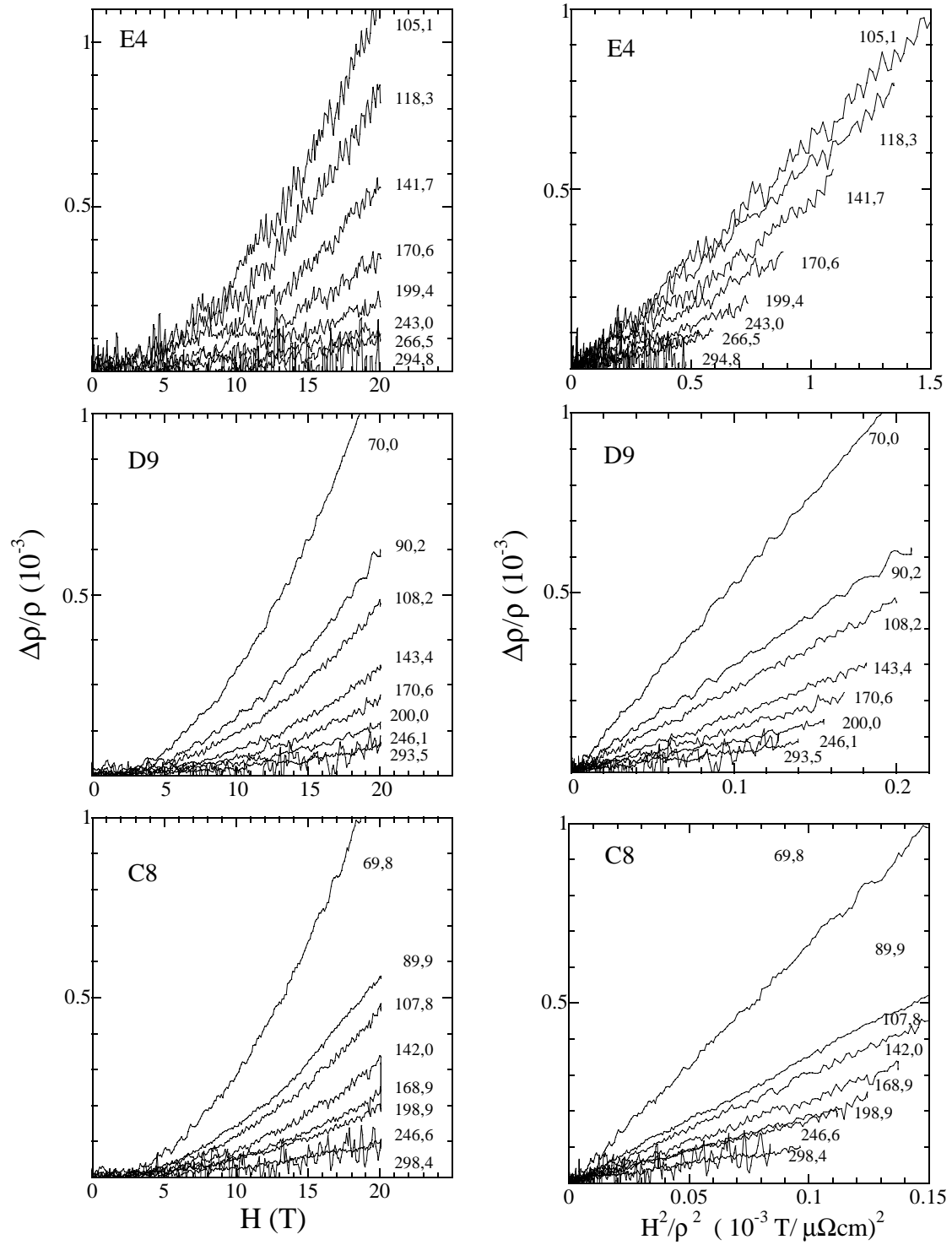


Figure 7 : La magnétorésistance longitudinale en fonction du champ magnétique et la figure de Kohler correspondante dans différents états du dopage (valeurs indiquées en Kelvin).

- Loi en puissance de la magnétorésistivité

Bien que la loi de Kohler ne soit pas satisfaite, on peut décrire le comportement de la magnétorésistance transversale, normalisée, en fonction de la température par une loi en puissance de  $T$ :  $\Delta\rho(T)/\rho(T)=\text{const} (H^2/T^m)$ , avec un exposant  $m$  qui varie selon chaque état mais avec une tendance à diminuer avec la diminution du dopage de  $m=4,3\pm 0,1$  pour l'état surdopé A1 vers  $m=2,15\pm 0,1$  pour D9 et  $m=2,6\pm 0,1$  pour C8 (figures 8 et 9).

Une variation en  $T^{3,76}$  de la magnétorésistance transversale a été observée pour des monocristaux de Bi-2212 au voisinage de l'optimum ( $T_c=85$  K) [3] et une variation en  $T^3$  dans le cas de whiskers de Bi-2212 avec  $T_c\sim 75$  K [2]. Les exposants sont comparables aux valeurs observées dans notre cas pour une position comparable dans le diagramme de phase. Des valeurs similaires de  $m=3,5$  et  $3,9$  sont rapportées dans le cas de la magnétorésistance orbitale d'YBCO respectivement avec  $T_c=90$  K et  $60$  K [4] et  $m=2$  dans le cas de l'état sous-dopé de LaSrCaCu avec  $T_c=23$  K [8].

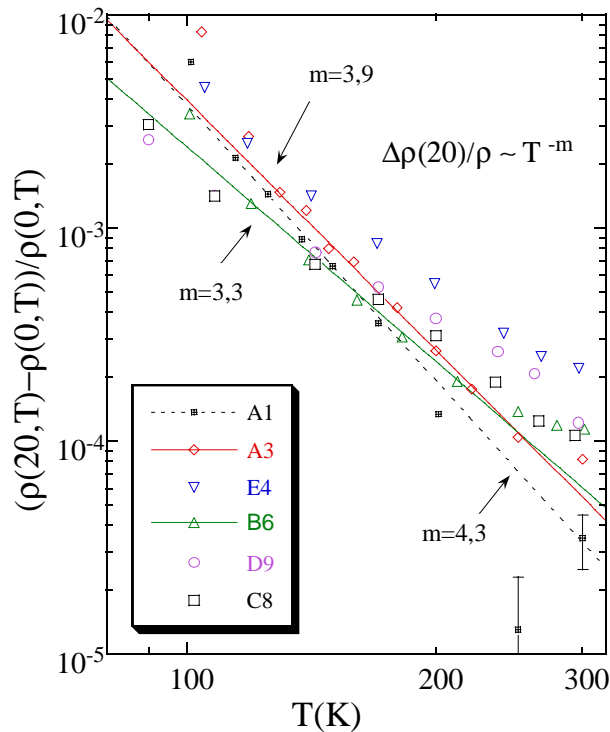


Figure 8 : Variation de la magnétorésistivité transversale, normalisée, en fonction de la température, à  $H=20$  T dans une représentation log-log,  $\Delta\rho(T)/\rho(T)=\text{const} (H^2/T^m)$ .



De la même façon, on peut voir le comportement de la magnétorésistivité longitudinale (contribution de spin) et sa contribution dans la magnétorésistivité transversale afin d'obtenir la magnétorésistivité orbitale. Sur la figure 9 on a représenté les variations de la magnétorésistivité transversale, longitudinale et orbitale pour les états E4, D9 et C8.

La partie longitudinale de MR dans les états E4 et D9 représente entre 30 et 40 % de la partie transversale ce qui est en accord avec les résultats de LaBaCuO [12].

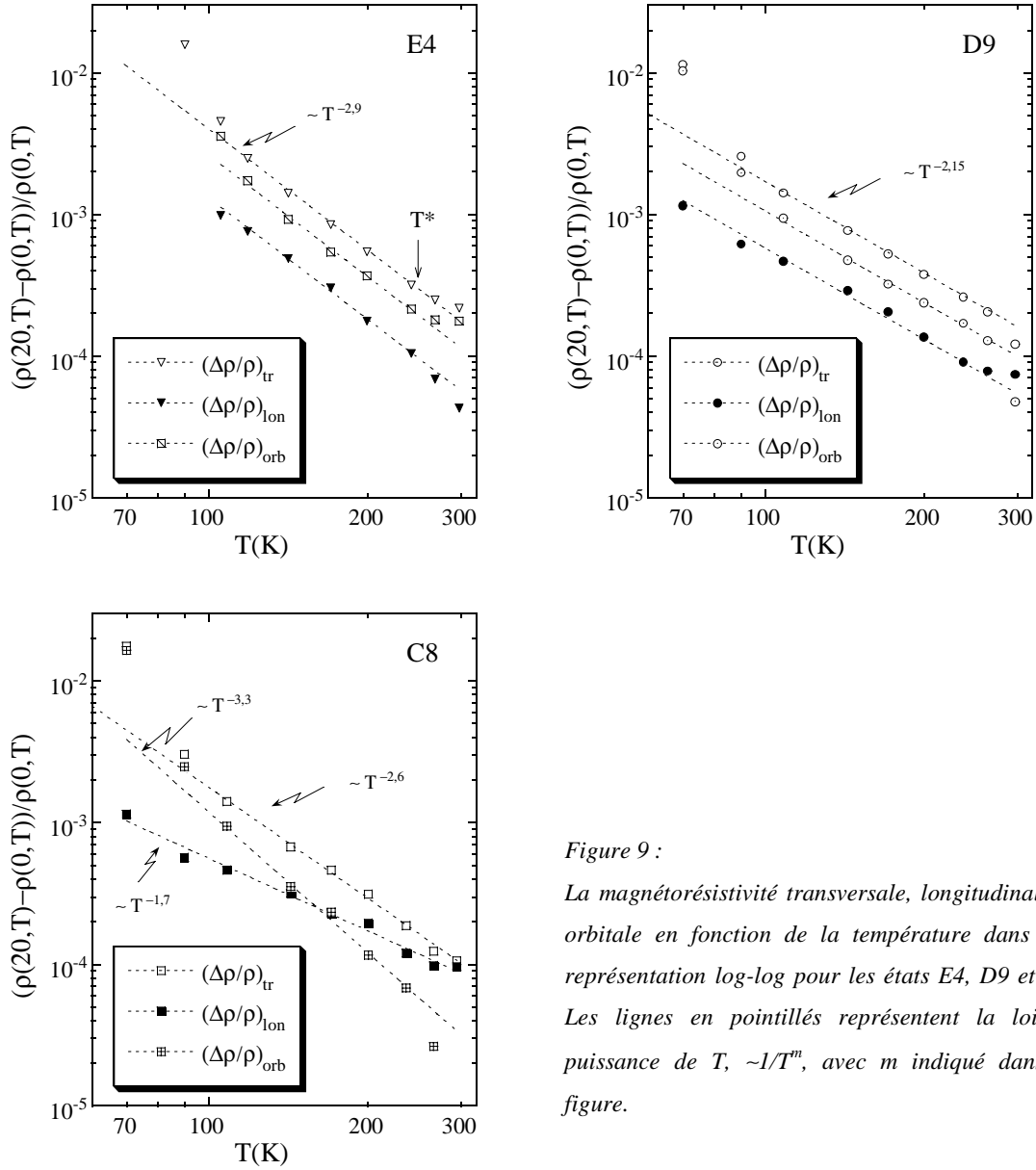


Figure 9 :  
La magnétorésistivité transversale, longitudinale et orbitale en fonction de la température dans une représentation log-log pour les états E4, D9 et C8. Les lignes en pointillés représentent la loi en puissance de  $T$ ,  $\sim 1/T^m$ , avec  $m$  indiqué dans la figure.

La magnétorésistivité longitudinale de l'état C8 commence à être du même ordre de grandeur que la magnétorésistivité transversale à haute température ce qui est cohérent avec le voisinage des états antiferromagnétiques. L'augmentation de la magnétorésistivité longitudinale ainsi entraîne la diminution rapide de la magnétorésistivité orbitale à haute température. La dépendance en température ( $\sim T^{2,6}$ ) est aussi plus forte que pour l'état précédent D9 ( $\sim T^{2,15}$ ).

La magnétorésistivité longitudinale suit aussi une loi en puissance de la température  $\Delta\rho/\rho \sim 1/T^m$ , avec m qui décroît de  $m=2,9$  pour E4 vers  $m=2,15$  pour D9 et  $m=1,7$  pour C8. Due à une augmentation de la contribution des spins, importante dans la région très sous-dopée, la partie orbitale décroît de plus en plus vite à haute température (les états D9 et C8) et les résultats concernant le pseudogap pour l'état C8 doivent être pris avec beaucoup de précaution.

Finalement, la loi que suit la magnétorésistance sous un champ magnétique jusqu'à 20 T est donnée par l'expression :

$$\rho(T, H) = \rho(T) \left( 1 + \text{const} \frac{H^2}{T^m} \right)$$

avec m qui diminue avec le dopage.

- "Règle de Kohler modifiée "

En finale on peut comparer les résultats de l'effet Hall précédemment obtenus et la magnétorésistance. Il a été proposé que la magnétorésistance orbitale pour un système 2D reflète la variation de l'angle local de Hall  $\theta(s)$  autour de la surface de Fermi (SF) avec une symétrie d'ordre 4 (s représente la longueur de l'arc le long de SF) :  $\Delta\rho / \rho = \langle \theta(s)^2 \rangle - \langle \theta(s) \rangle^2$  et la MR doit être proportionnelle à  $\theta_H^2$  [4] ("règle de Kohler" modifiée).

L'observation de cette "règle de Kohler modifiée" est rapporté dans le cas d'YBCO ( $T_c=90$  K et 60 K) et LaSrCuO ( $T_c=38$  K) [4], de  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  ( $x=0,15$  et  $0,18$ ) [9] et de l'état optimal de Tl-2201 [6]. Contrairement à ces derniers, les autres auteurs observent pour le système de  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  cette proportionnalité seulement pour  $x=0,225$  et  $x=0,15$  à haute

température tandis que pour les états sous-dopés le rapport  $(\Delta\rho/\rho)/\theta_H^2$  montre un minimum (dans la représentation log-log) [10]. De la même manière, la "règle de Kohler modifiée" n'est pas bien appliquée pour tous les états du dopage de  $\text{BiSr(La)CuO}$  [11] et pour l'états  $\text{La}_{1,905}\text{Ba}_{0,095}\text{CuO}_4$  ( $T_c=30$  K) [12].

Pour vérifier cette proportionnalité on a porté, sur la figure 10, le rapport entre la magnéto-résistance et l'angle de Hall au carré pour tous les états du dopage. Le rapport entre la magnéto-résistivité transversale et l'angle de Hall au carré n'est pas constant pour tous les états. A haute température un minimum ( $T\sim 250$  K) peut être observé pour les états A3, E4 et B6, comme dans le cas de  $\text{LaSrCuO}$  [10]. Pour les états D9 et C8 la magnéto-résistivité transversale contient la contribution importante de spin qui résulte en une décroissance rapide à haute température de  $(\Delta\rho/\rho)_{\text{orb}}/\theta_H^2$  et une non observation de la "règle de Kohler modifiée".

La violation forte de la règle de Kohler ainsi que la non observation de la "règle de Kohler modifiée" peut se comprendre en analysant les lois phénoménologiques, en fonction de la température, de la résistivité, de la cotangente de l'angle de Hall et de la magnéto-résistivité.

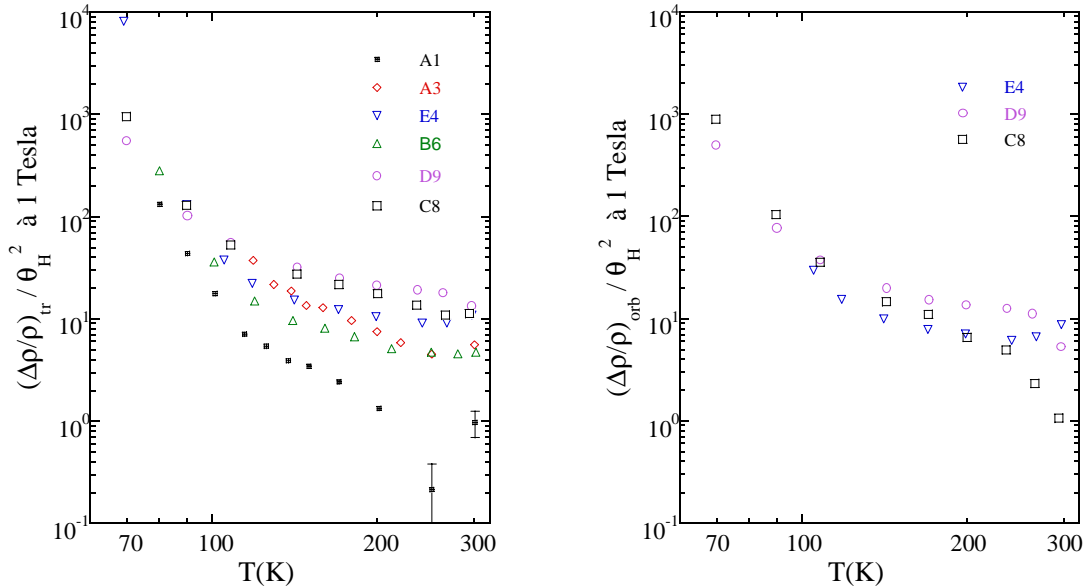


Figure 10 : (a) Le rapport entre la magnéto-résistivité transversale  $\Delta\rho/\rho$  et le carré de l'angle de Hall à  $H=1$  T en fonction de la température pour tous les états du dopage.(b) Le rapport entre la magnéto-résistivité orbitale  $\Delta\rho/\rho$  et le carré de l'angle de Hall pour E4, D9 et C8.

La figure de Kohler (figure 6) montre la dispersion la plus petite pour l'état A1, mais pour obtenir la superposition sur une seule ligne, la résistivité devrait avoir une dépendance en fonction de la température en  $\sim T^2$  alors que la valeur la plus grande de l'exposant observé correspond à  $T^{1.3}$  pour les états les plus suroxygénés (la magnéto-résistivité varie en  $\sim T^4$ ).

En général, si deux temps de relaxation différents interviennent pour la résistivité et l'effet Hall [16] ou si le temps de relaxation est fortement anisotrope [17, 18], ce qui semble être le cas des SHTC, la règle de Kohler ne doit pas être observée.

D'autre part la "règle de Kohler modifiée " à haute température est presque valable pour les états A3, E4 et B6 qui présentent la différence la plus petite entre la dépendance en fonction de la température de la magnéto-résistivité et de l'angle de Hall. Cette observation favorise les modèles avec deux temps de relaxation différents pour  $\rho(T)$  et  $\theta_H$  par rapport à un seul temps fortement anisotrope [4]. La contribution de spin et le voisinage de la transition antiferromagnétique pour les états plus sous-dopés D9 et C8 rendent la situation encore plus compliquée et le rapport entre la magnéto-résistivité et l'angle de Hall plus complexe.

#### **Résumé des points importants :**

- La magnéto-résistance dans le plan (ab) est positive ( $\Delta\rho/\rho > 0$ ) et elle se trouve dans la région de faible champ magnétique jusqu'à 20 T dans tous les états de dopage.
- La valeur positive de la magnéto-résistance indique que le champ magnétique est en compétition avec l'effet du pseudogap, mais que l'effet d'un champ de 20 T reste très faible par rapport à ce dernier ( $\Delta\rho/\rho < 10^{-3}$ ).

## B. Magnétorésistance dans l'état mixte

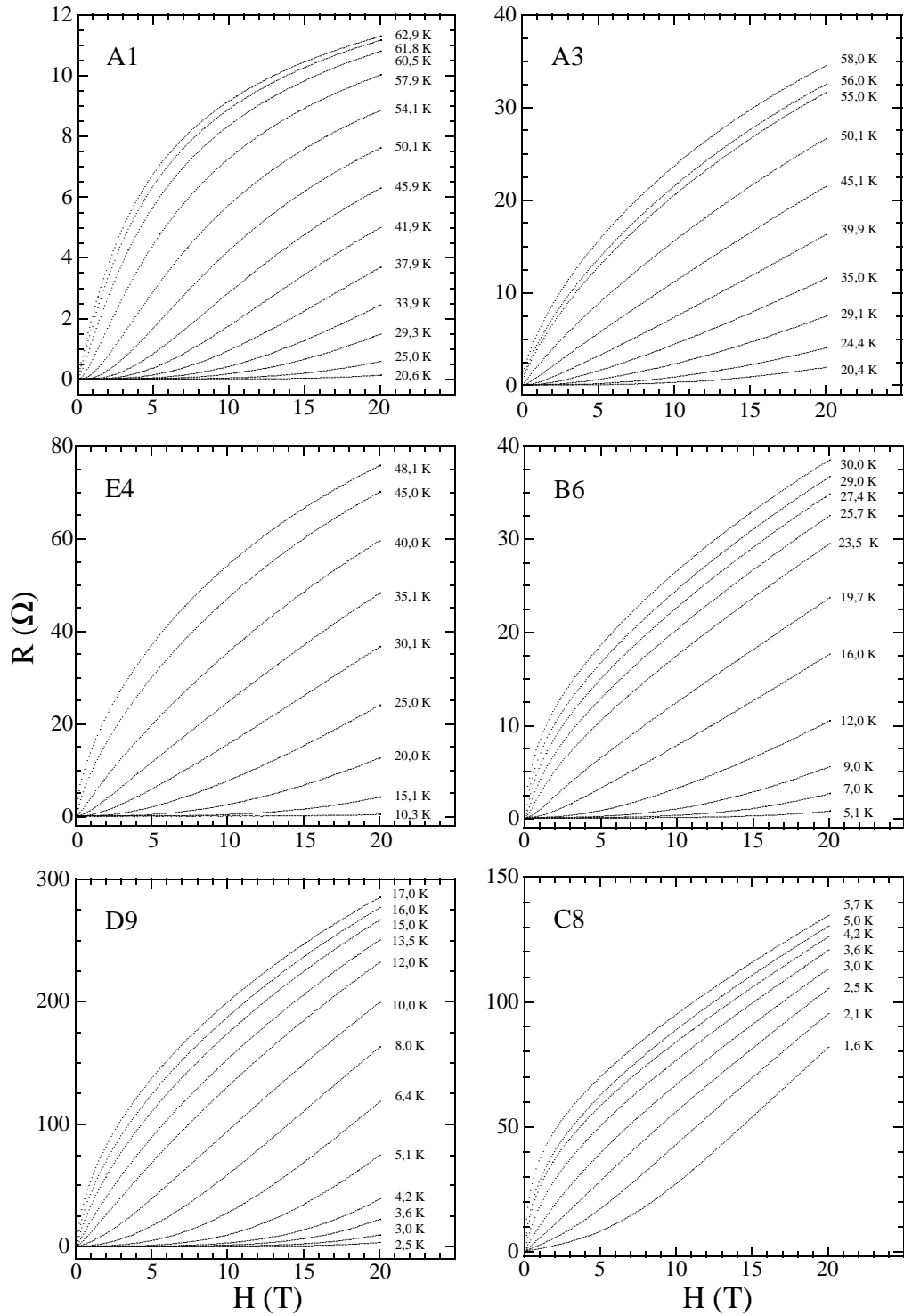
Les mesures complémentaires de la magnétorésistance dans l'état mixte, sur les mêmes états présentés précédemment (même chapitre), ont permis de déterminer l'anisotropie sous champ magnétique, la ligne d'irréversibilité et l'énergie d'activation en fonction du dopage. On a également vérifié la validité de la loi d'échelle en température de la magnétorésistance transversale, observée précédemment à l'état optimum de  $\text{BiSrCaCuO}$  [19, 20, 21, 22].

Comme dans le cas des mesures à l'état normal, toutes les expériences ont été faites en balayant le champ magnétique jusqu'à 20 T à différentes températures constantes choisies au-dessous de  $T_c$  (Tableau 3). La magnétorésistance transversale (voir la configuration expérimentale, ch.II.E) a été mesurée dans tous les états, tandis que la magnétorésistance longitudinale a été mesurée dans trois états A1, A3 et B6 près de la transition supraconductrice afin de déterminer l'anisotropie sous champ magnétique (voir le même tableau).

Sur la figure 11, on a présenté les magnétorésistances transversales en fonction du champ magnétique pour tous les états du dopage.

Tableau 3 : Résumé des mesures de magnétorésistance ( $0 \leq H \leq 20$  T), effectuées au-dessous de  $T_c$ .

nom des échantillons	$T_c$ (R=0)	p (nombre de trous par Cu)	Températures des mesures		
			magnétorésistance transversale $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$	magnétorésistance longitudinale $\mathbf{H} \perp \mathbf{I} \perp \mathbf{c}$	
A1	63 K	0,21	20,6 ≤ T ≤ 62,9 K	60,5 K, 61,8 K, 62,9 K	
A3	60 K	0,105	20,4 ≤ T ≤ 58 K	55 K, 56 K, 58 K	
E4	50 K	0,093	10,3 ≤ T ≤ 48,1 K		
B6	30 K	0,073	5,1 ≤ T ≤ 30 K	27, K, 29 K, 30 K	
D9	17 K	0,062	2,5 ≤ T ≤ 17 K		
C8	5 K	0,053	1,6 ≤ T ≤ 5,7 K		



*Figure 11 : Magnétorésistances transversales en fonction du champ magnétique à différentes températures pour des films de la phase Bi-2212 dans différents états du dopage.*

## B1. Anisotropie

Une des façons d'estimer l'anisotropie  $\gamma$  sous champ magnétique est de déterminer le rapport entre les valeurs du champ dans le plan (a,b) et du champ perpendiculaire à celui-ci :  $\gamma = H^{\parallel} / H^{\perp}$ , pour la même valeur de magnétorésistance transversale et longitudinale  $R(H^{\parallel}) = R(H^{\perp})$  à une température fixée  $T \leq T_c$  [20].

Les magnétorésistances transversale et longitudinale pour les états A1, A3 et B6 au voisinage de la température critique sont présentées sur la figure 12.

Pour mettre en évidence le changement d'anisotropie avec le dopage, on a représenté sur la figure 13 la variation de l'anisotropie  $\gamma$  en fonction du champ magnétique  $H^{\parallel}$  pour  $T/T_c \sim 0,96$ . La valeur de  $\gamma$  ne change pas avec la température au voisinage de  $T_c$  ( $0,92 \leq T/T_c \leq 1$ ).

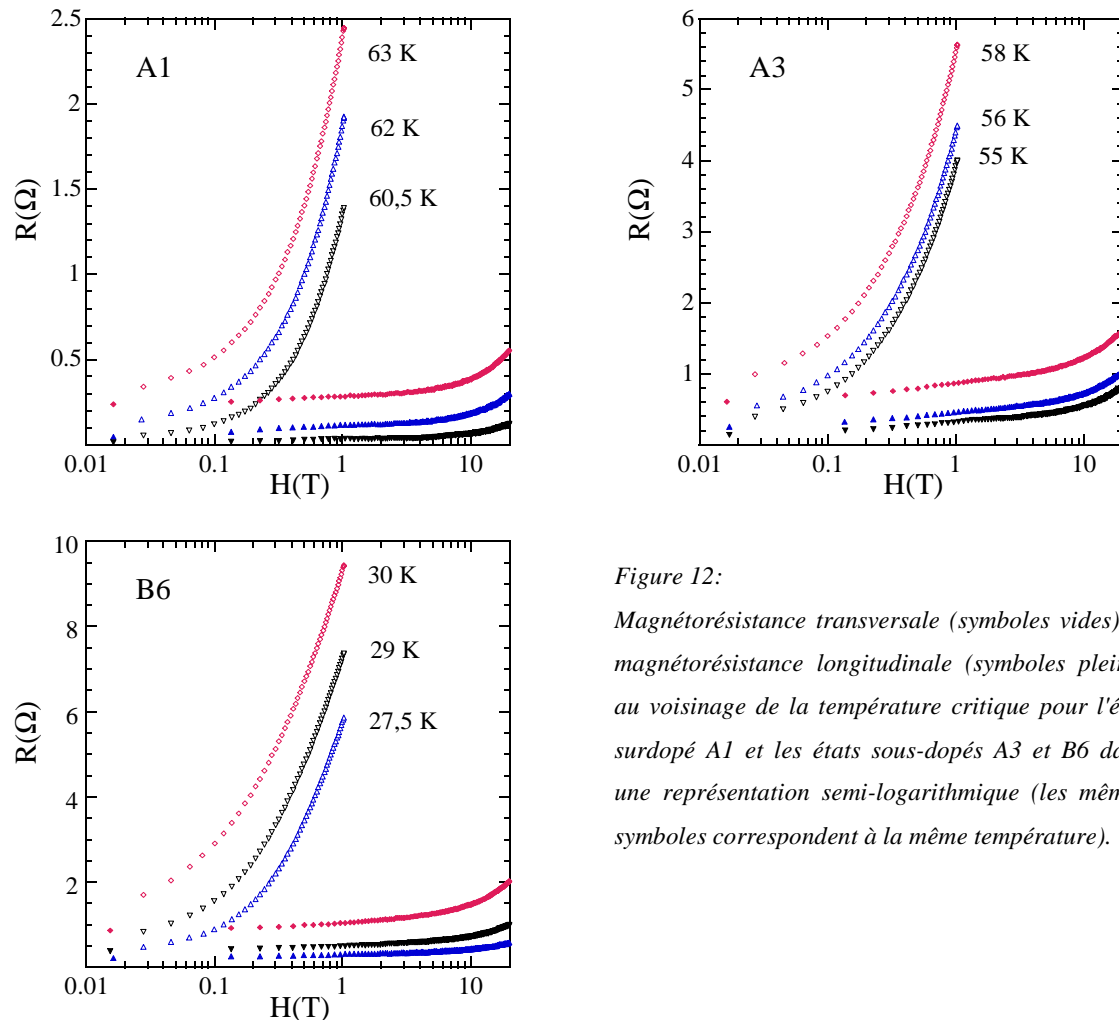


Figure 12:

*Magnétorésistance transversale (symboles vides) et magnétorésistance longitudinale (symboles pleins) au voisinage de la température critique pour l'état surdopé A1 et les états sous-dopés A3 et B6 dans une représentation semi-logarithmique (les mêmes symboles correspondent à la même température).*

Les valeurs observées sont en bon accord avec les valeurs de  $\gamma$  estimées dans un étude précédente ( $\gamma=250-300$ ) [20], aussi bien qu'avec celles rapportées dans la littérature dans le cas de la phase Bi-2212 [23].

Dans tous les cas l'anisotropie augmente approximativement de façon linéaire avec le champ longitudinal (avec une pente de plus en plus grande quand le dopage diminue :  $d\gamma/dH \sim 16 \text{ T}^{-1}$ ,  $35 \text{ T}^{-1}$  et  $67 \text{ T}^{-1}$  respectivement pour A1, A3 et B6) et tend à saturer à partir d'un champ qui dépend de l'état de dopage ( $H \sim 13\text{T}$ ,  $8\text{T}$  et  $11\text{T}$  pour A1, A3 et B6). Les valeurs de  $\gamma$  augmentent en allant du côté surdopé et de l'état A1 ( $\gamma \sim 150$ ) vers le côté sous-dopé et les états A3 ( $\gamma \sim 180$ ) et B6 ( $\gamma \sim 450-500$ ).

La même dépendance en fonction du dopage a été observée aussi dans le système YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub> (malgré une valeur plus faible de l'anisotropie) [24], où l'anisotropie arrive à la valeur  $\gamma=105$  ( $T_c \sim 20 \text{ K}$ ) lorsque  $y=6,4$  [25] par rapport à  $\gamma \sim 5-10$  autour de l'état optimal [26].

Le changement d'anisotropie en fonction de  $H$  pourrait s'interpréter comme le changement de dimension 3D vers 2D induit par le découplage des plans supraconducteurs sous champ magnétique, d'autant plus important que l'état des films est plus sous-dopé. Cependant, le caractère 2D anisotrope des films de la phase Bi-2212 est visible dès le début de l'application du champ magnétique, même dans le cas de l'état surdopé A1.

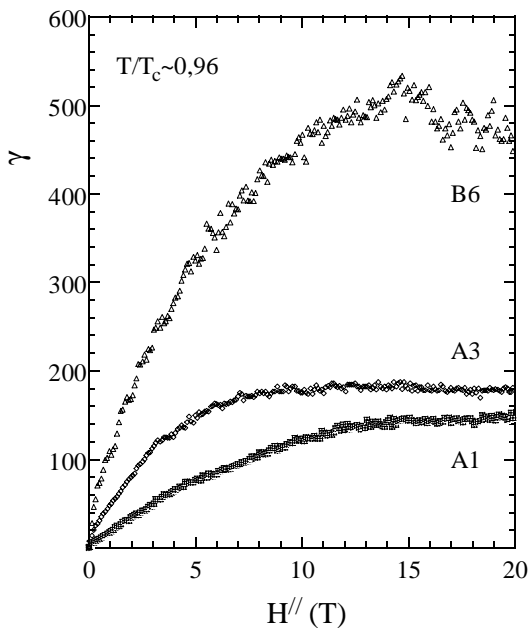


Figure 13 :  
Variation du paramètre d'anisotropie  $\gamma$  en fonction du champ magnétique  $H_{//}$  pour les états A1, A3 et B6.



## B2. Ligne d'irréversibilité

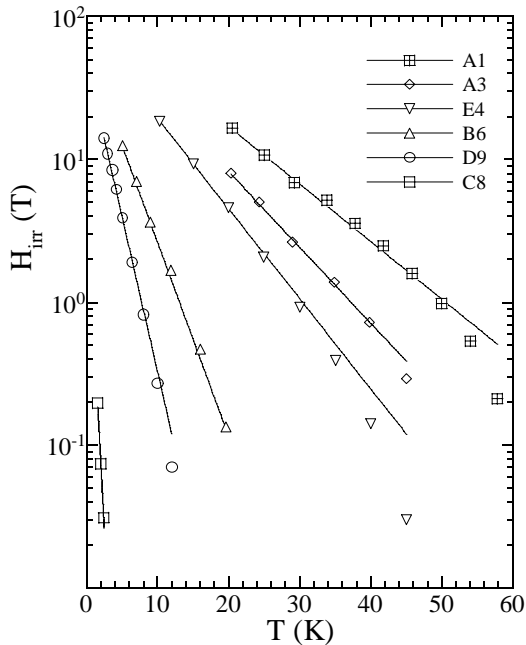
Pour chaque film, la ligne d'irréversibilité est déterminée de la façon suivante. Pour chaque courbe  $R(H)$  (figure 11) on a déterminé le champ magnétique où la résistivité non nulle apparaît selon la résolution de la mesure ( $\sim 10^{-3}R_N$  où  $R_N$  présente la résistance normale à température ambiante).

La ligne d'irréversibilité, dans le cas de systèmes très anisotropes, suit une loi exponentielle à forts champs magnétiques déterminée par l'interaction dominante entre les vortex, reportée dans le cas de  $\text{Bi}_{2-x}\text{Pb}_x\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$  [27] ainsi que dans le cas des films [19] et des monocristaux  $\text{BiSrCaCuO}$  [28] à l'état optimal :

$$H_{\text{irr}} = H' \exp\left(-\frac{T}{T_0}\right) \quad (\text{IV.1})$$

La même loi n'a été observée dans le cas d'YBCO que pour les états sous-dopés [29].

La figure 14 présente la ligne d'irréversibilité, obtenue selon le critère ci-dessus, pour tous les états du diagramme de phase étudiés.



nom	$H'(T)$	$T_0(K)$	$T_c/T_0$
A1	108	10,8	5,8
A3	94	8,2	7,3
E4	82	6,9	7,2
B6	60	3,2	9,4
D9	49	2,0	8,5
C8	7	0,45	11,1

Figure 14 : Ligne d'irréversibilité pour les différents états de dopage du surdopé  $A_1$  jusqu'au sous-dopé  $C_8$ , et ajustement à l'expression théorique (IV.1). Le tableau correspondant donne les paramètres obtenus par cet ajustement

Les lignes continues montrent l'ajustement à la loi exponentielle (IV.1) (voir le tableau correspondant), observée à basse température, suffisamment loin de la température critique. La pente de la ligne d'irréversibilité est contrôlée par  $T_0^{-1}$  et elle augmente au fur et à mesure que le dopage diminue (figure 15).

Le paramètre  $H'$  décroît de plus d'un facteur 10 pour les deux cas extrêmes A1 et C8. Une décroissance similaire de la ligne d'irréversibilité d'un facteur 10 entre  $\delta=0,03$  et  $\delta=0,35$  a été rapportée dans le cas d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  [29]. Ces derniers auteurs attribuent ce comportement en même temps que l'augmentation d'anisotropie et la diminution d'énergie de condensation (déterminée à partir de la mesure de chaleur spécifique) au développement du pseudogap dans l'état normal dans la région sous-dopée [29].

La ligne d'irréversibilité déterminée par la mesure de susceptibilité alternative pour les états  $S_1$  et  $S_2$  de Bi-2212 et un état de Bi(La)-2201 (fig.II.14(a), chapitre II) montre le même type de comportement : la loi exponentielle à basses températures et la déviation à partir de celle-ci près de  $T_c$ . L'état surdopé  $S_1$  et l'état sous-dopé  $S_2$ , comparables respectivement à l'état surdopé  $A_1$  et l'état sous-dopé  $A_3$ , ont les paramètres  $T_0$  assez proches de ceux-ci ( $T_0=9$  K et  $8,7$  K respectivement pour  $S_1$  et  $S_2$ ) tandis que les valeurs de  $H'$  sont relativement faibles ( $H'=31$  T et  $19$  T pour  $S_1$  et  $S_2$ ). La variation de  $H_{\text{irr}}$  pour l'état de la phase Bi(La)-2201 au voisinage de l'optimum ( $T_0=3,8$  K et  $H'=7$  T) est représentée avec les autres résultats de la phase Bi-2212 sur la figure 15 dans une représentation renormalisée  $H/H'=f(T/T_c)$ .

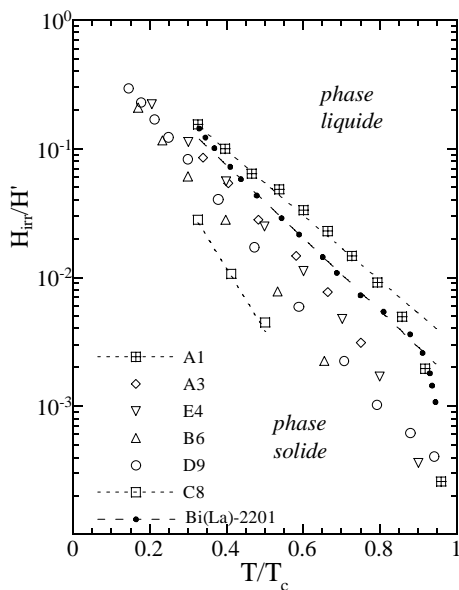


Figure 15 :  
Variation de  $H_{\text{irr}}/H'$  en fonction de  $T/T_c$ . Les lignes en traits pointillés montrent les ajustements à l'expression (IV.1) pour les deux cas extrêmes A1 et C8, et qui indiquent le changement de pente en fonction du dopage.

La ligne d'irréversibilité délimitant la phase solide du diagramme de phase (H,T) est déterminée par la force d'ancrage des vortex. Le désordre présent dans le système favorise le piégeage et a tendance à élargir la phase solide (voir l'étude récente sur les mêmes films avec des défauts colonnaires [30]). Cependant, dans notre cas le désordre augmente en allant de A1 vers C8 (cf. III.A.3(iii)) mais la phase solide diminue (figure 15) ce qui suggère que le désordre introduit, principalement ponctuel, n'est pas un paramètre déterminant pour le piégeage des vortex à haute température.

Le paramètre qui semble être déterminant dans notre cas est le paramètre d'anisotropie. L'augmentation de l'anisotropie montre le couplage de plus en plus faible entre les plans supraconducteurs qui défavorise le piégeage des vortex, et entraîne l'apparition plus rapide de la région liquide de vortex. Egalement, la ligne d'irréversibilité du film Bi(La)-2201 avec un paramètre d'anisotropie  $\gamma \sim 200$  [31] se place entre celles des états  $A_1$  et  $A_3$  de Bi-2212 avec une valeur de  $\gamma$  similaire.

Finalement, pour comparer la dépendance en fonction du dopage de la température d'irréversibilité magnétique,  $T_{\text{irr}}$ , obtenue pour un champ de 5 T sur  $\text{Y}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (figure I.6 (à droite)) [32], on a porté nos valeurs de  $T_{\text{irr}}$  (H=5 T et 10 T) en fonction du nombre de trous  $p$  (figure 16). L'existence d'un maximum de  $T_{\text{irr}}(p)$  au voisinage de l'état optimal (prévision de point critique), observé dans le composé d'YBCO, est visible également dans le cas Bi-2212 bien qu'il existe une incertitude sur sa position au voisinage de l'optimum. La valeur à l'état optimal correspond à une étude précédente [20].

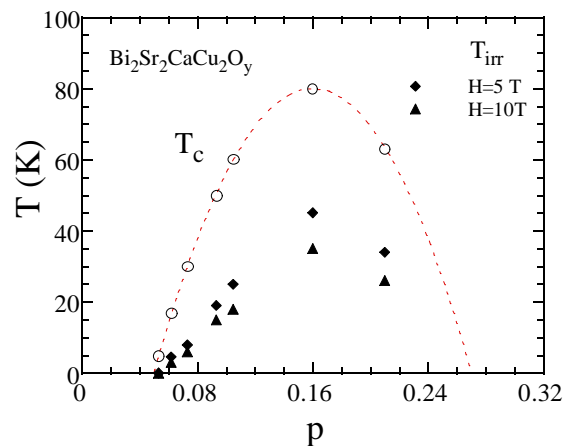


Figure 16 : Variation de  $T_{\text{irr}}$ , déterminé pour les champs magnétiques de 5 T et 10 T (mesure de magnétorésistance) en fonction du dopage  $p$  de la phase Bi-2212. La valeur à l'état optimal a été obtenue dans une étude précédente [20].

### B3. Energie d'activation

A partir des courbes R(T) sous différents champs magnétiques (H=1, 5, 10, 15, 20T sur la figure 17), déterminées à partir de R(H) à différentes températures, on a estimé l'énergie d'activation dans différents états du dopage, ce qui donne directement une information sur la force d'ancrage des vortex.

Dans une région de faible résistance  $R \ll R_N$ , où  $R_N$  représente la résistance normale, la résistance suit une loi thermiquement activée, décrite par une loi d'Arrhénius [33] :

$$R = R_0 \exp(-U(H)/k_B T) \quad (IV.2)$$

où U(H,T) est l'énergie d'activation. Pour la phase Bi-2212, cette loi a été observée dans le cas des films [34, 35] aussi bien que dans le cas des monocristaux [36].

En traçant  $\ln R$  en fonction de  $1/T$  (représentation d'Arrhénius), la pente de la partie linéaire ( $10^{-6} \leq R/R_N \leq 10^{-2}$ ) détermine l'énergie d'activation pour chaque valeur du champ magnétique. La variation de l'énergie d'activation en fonction du champ magnétique ainsi obtenue est représentée pour tous les états de dopage sur la figure 18. Dans notre cas, on trouve que l'énergie d'activation suit une loi de puissance en fonction du champ magnétique pour les faibles valeurs de champ magnétique (lignes continues sur la même figure) :

$$U_0(H) = U_0(0) / H^n \quad (IV.3)$$

où l'exposant n varie de  $n=0,5$  à  $n=0,3$  en allant de l'état A1 à l'état C8, i.e. en diminuant le dopage (voir le tableau correspondant). L'énergie d'activation diminue quand le dopage diminue et elle a tendance à varier de moins en moins avec le champ magnétique. Le premier point indique une diminution de la force d'ancrage et du courant critique (voir figure II.16 et la discussion dans la suite).

La valeur de l'exposant  $n=0,5$  a été déjà observée pour des films au voisinage de l'état optimal de la phase Bi-2212 [34,] et des monocristaux [36]. Cette dépendance en  $H^{1/2}$  peut être expliquée par la formation et par le mouvement plastique de boucles de vortex dans l'échantillon [37].

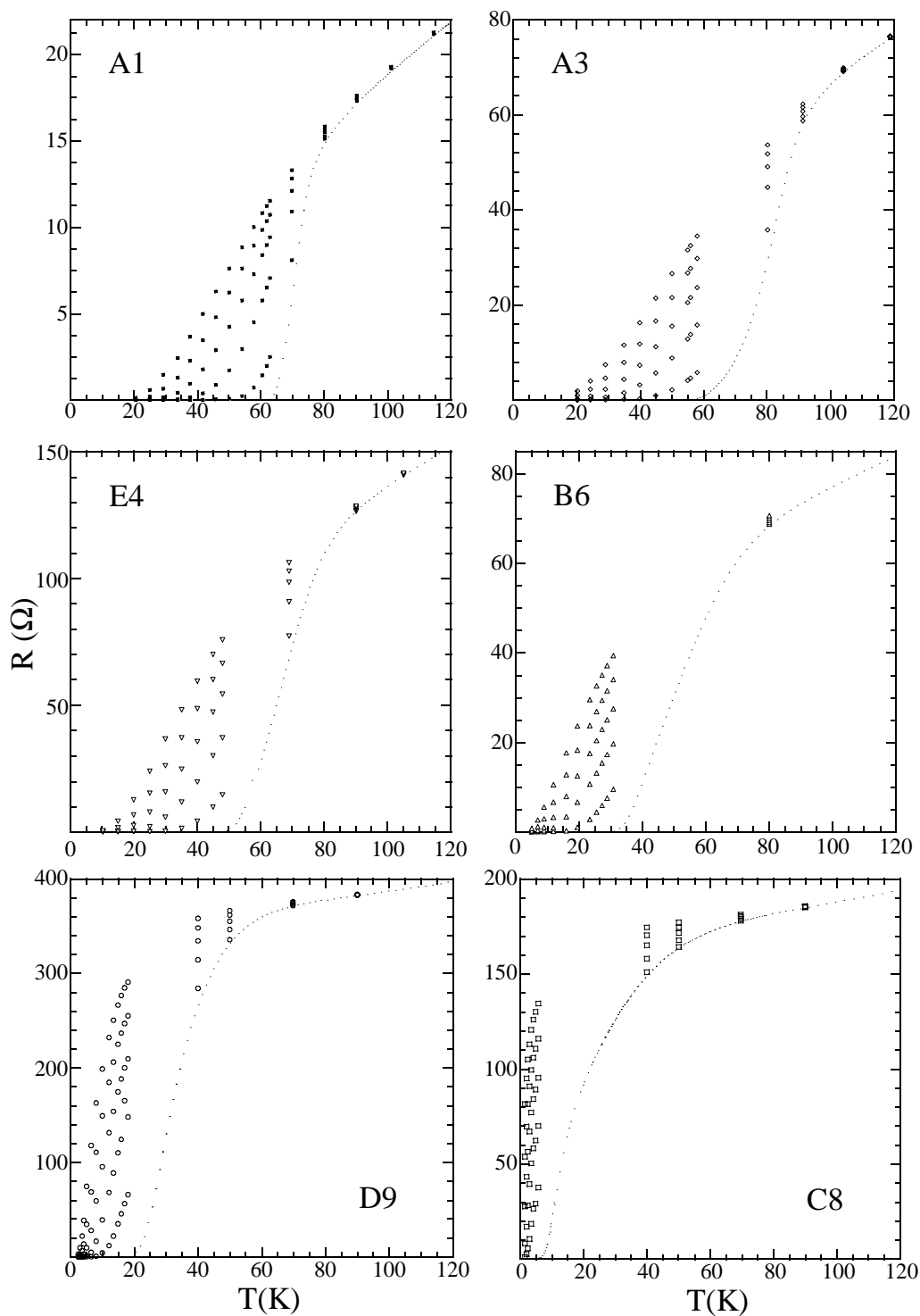
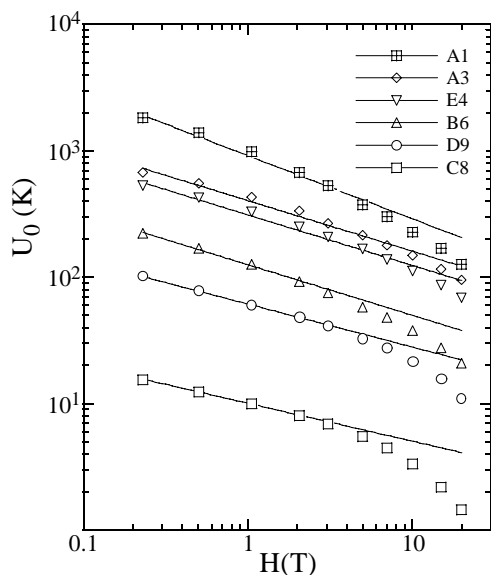


Figure 17 : Résistances en fonction de la température pour les échantillons étudiés sous les champs magnétiques de 1, 5, 10, 15 et 20 T. Les courbes en pointillés représentent les résistances à champ nul.

L'énergie d'activation, estimée à partir de la susceptibilité magnétique (figure II.14(b), chapitre II) pour les états S<sub>1</sub> et S<sub>2</sub> de Bi-2212 et un état de Bi(La)-2201 montre le même type de comportement. Les paramètres estimés à partir de la loi en  $U_0 \sim H^{-1/2}$  des états S<sub>1</sub> ( $U_0(0)=752$  K) et S<sub>2</sub> ( $U_0(0)=398$  K) sont proches de ceux des états A<sub>1</sub> et A<sub>3</sub>, tandis que l'état de Bi(La)-2201 ( $U_0(0)=48$  K) se place au voisinage de l'état D9 (température critique similaire) dans la région de champ plus faible ( $0,01 \text{ T} \leq H \leq 0,1 \text{ T}$ ). Le même comportement est observé pour le courant critique en fonction du champ magnétique (figure II.16, chapitre II) avec une valeur de champ qui limite la région de l'ancrage individuel, ou fort, des vortex par les défauts présents dans le film. Ce régime d'ancrage fort se manifeste par l'existence d'un plateau jusqu'à  $H \sim 0,1 \text{ T}$  pour la phase Bi-2212 (S<sub>1</sub> et S<sub>2</sub>) et jusqu'à  $H \sim 0,01 \text{ T}$  pour l'état de Bi(La)-2201, ce qui est compatible avec le déplacement de l'énergie d'activation du film Bi(La)-2201 vers les champs plus faibles (figure II. 14(b)).



nom	$U_0(0)$ (K)	n
A1	913	0,50
A3	402	0,40
E4	310	0,40
B6	125	0,40
D9	61	0,34
C8	10	0,30

Figure 18 : Variation de l'énergie d'activation en fonction du champ magnétique pour différents états du dopage. Les lignes droites montrent l'ajustement à la loi de puissance  $U_0(0)/H^n$  à bas champ et à température suffisamment éloignée de la température critique. Les paramètres déterminés  $U_0(0)$  et  $n$  sont donnés dans le tableau correspondant.

Il faut aussi noter que la présence d'un maximum dans la courbe  $T_{\text{irr}}(p)$  n'est pas un cas unique. Tous les paramètres déterminés à partir de la ligne d'irréversibilité,  $H'$  et  $T_0$ , et l'énergie d'activation  $U_0(0)$  présentent un comportement non monotone en fonction du dopage avec présence d'un maximum au voisinage de l'état optimal (figure 19). Les valeurs pour l'état optimal ont été déterminées à partir d'une étude précédente [30]. Bien que la position des différents maximums ne soit pas précisément déterminée, leur existence en même temps que l'apparition de  $T^*$  au voisinage de l'état optimal (cf. III.A3(iv)) peut indiquer l'existence d'un point critique. Il serait intéressant d'approfondir ce résultat dans une étude future.

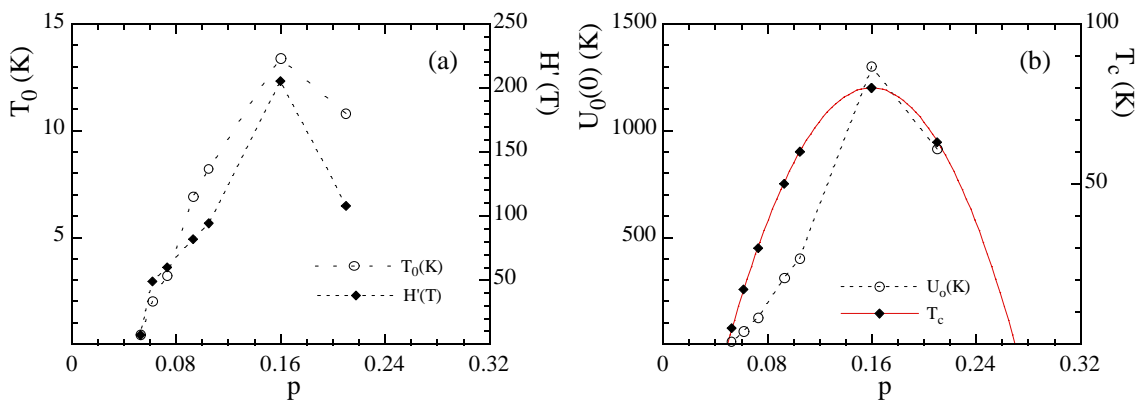


Figure 19 : Variation en fonction du dopage des paramètres (a)  $H'$  et  $T_0$ , déterminés à partir des ajustements à la loi (IV.1) et (b)  $U_0(0)$  déterminé à partir de l'ajustement à la loi (IV.3). Les valeurs des paramètres de l'état optimal ont été obtenues dans une étude précédente [30].

### Résumé des points importants :

- La diminution de l'énergie d'activation, du courant critique et le déplacement de la ligne d'irréversibilité vers les champs plus petits avec la diminution du dopage montrent tous la diminution de la force d'ancrage des vortex, ce qui est en accord avec l'augmentation du paramètre d'anisotropie et la diminution du couplage entre les plans supraconducteurs, qui défavorise le piégeage des vortex.
- La présence d'un maximum au voisinage de l'état optimal de la température irréversible  $T_{\text{irr}}$  et des paramètres  $H'$ ,  $T_0$  et  $U_0(0)$  peut indiquer l'existence d'un point critique.

## B4. Loi d'échelle

Dans cette partie, on s'intéresse principalement à la variation de la résistance en fonction du champ magnétique à différentes températures ( $T < T_c$ ) au-dessus de  $10^{-2}R_N$ .

Suivant l'étude de l'existence d'une loi d'échelle en température de la magnétorésistance de films Bi-2212 au voisinage du dopage optimal [19], on a examiné le comportement de la magnétorésistance en fonction du dopage. Cette loi d'échelle a été premièrement observée dans notre groupe pour des films Bi-2212 texturés [19] et puis pour un monocristal de la même phase par Fu et al. [21]. Le même comportement a été également observé dans le cas des multicouches YBCO/PrBCO [38] et Bi-2212/Bi-2201 [20]. Tous ces systèmes sont fortement anisotropes. Par contre dans le cas de Bi-2201 pur, présentant une faible anisotropie sous champ magnétique, la loi d'échelle n'a pas été observée [20]. Ce fait a suggéré que cette propriété est principalement liée aux composés fortement anisotropes. Cette relation a été confirmée dans nos mesures indépendamment de la température critique du film (sauf pour l'état C8).

La figure 20 montre le résultat de la superposition des courbes de la magnétorésistance pour tous les états de dopage déjà considérés. Pour obtenir cette superposition des courbes  $R(H, T = \text{constant})$  sur la courbe  $R(H, T)$  mesurée à la température la plus proche de  $T_c$ , le champ magnétique et la magnétorésistance  $R$  sont divisés par des paramètres  $h$  et  $r$ . Seul l'état fortement sous-dopé, C8, ne montre pas cette superposition, ce qui peut être lié au voisinage des états antiferromagnétiques et à la contribution des spins dans la magnétorésistance transversale (vue à l'état normal). Il serait intéressant de mesurer la magnétorésistance longitudinale pour confirmer ce fait.

Pour l'état surdopé A1, la superposition de la magnétorésistance en fonction du champ magnétique a été observée dans un intervalle de champ fort qui se rétrécit progressivement avec la diminution de température : entre  $H=20\text{T}$  et  $2,5\text{T}$  pour  $T=63\text{ K}$  et entre  $H=20\text{T}$  et  $10\text{T}$  pour  $T=21\text{ K}$ . Pour tous les autres états (états sous-dopés sauf C8), la superposition des courbes est vérifiée pour les valeurs de champ magnétique entre  $20\text{ T}$  et un champ de l'ordre de moins de  $1\text{T}$ .

La variation des coefficients  $h$  et  $r$  en fonction de la température est représentée sur la figure 21 pour tous les états (sauf C8) ainsi que pour l'état optimal, obtenue dans l'étude précédente [19]. Les coefficients  $h$  et  $r$  augmentent de plus en plus rapidement avec la diminution du dopage.



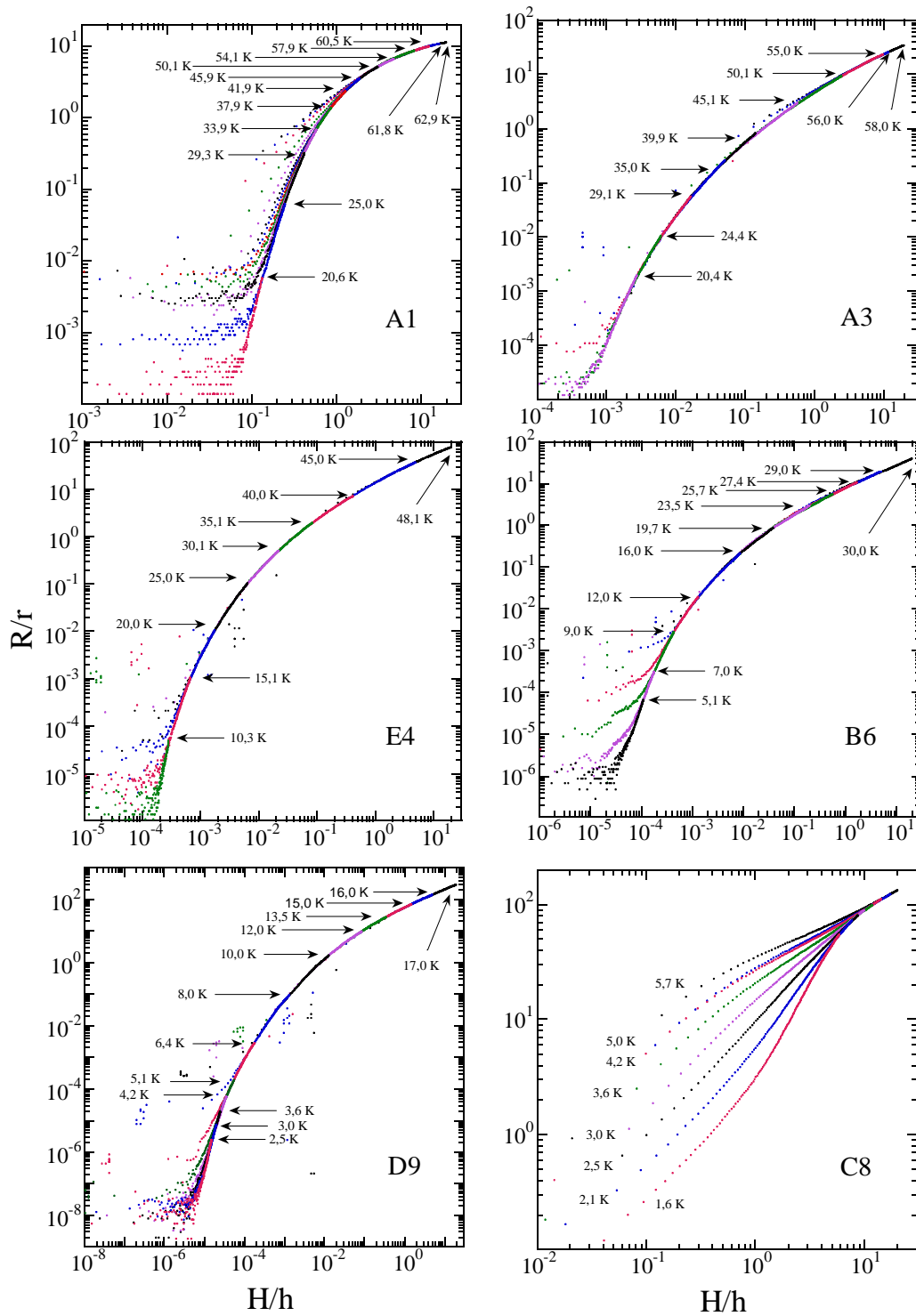


Figure 20 : Résultat de la superposition des courbes  $R(H)$  à  $T=\text{const}$  pour tous les états de dopage dans une représentation log-log. Pour chaque température, la superposition est obtenue en normalisant la résistance  $R$  par un coefficient  $r$  et le champ magnétique par un coefficient  $h$ . Les flèches indiquent, pour chaque  $T$ , la valeur de  $R/r$  du film lorsque  $H=20$  T.

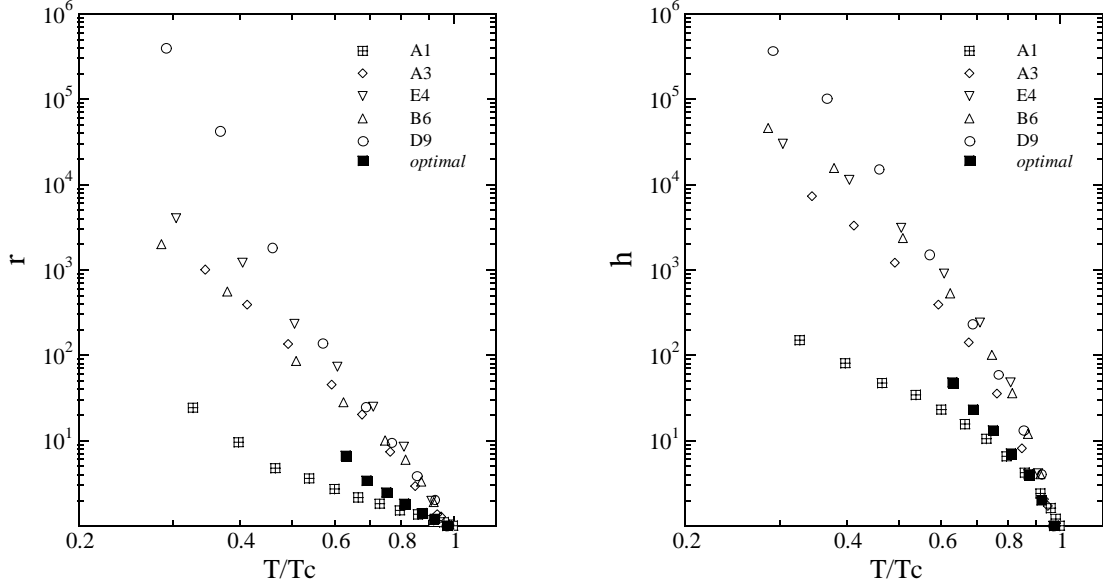


Figure 21 : Variation en fonction de  $T/T_c$  des coefficients  $r$  et  $h$  utilisés pour obtenir les superpositions des courbes  $R(H, T=\text{const})$  présentées sur la figure précédente.

Il a été montré que la loi d'échelle en température, décrite dans les études précédentes [19, 20], était la même que celle décrivant la diffusion des électrons par des fluctuations supraconductrices bidimensionnelles (Maki-Thomson) selon le modèle proposé par Larkin [39]. Ce modèle prévoit que la magnétorésistance au-dessus de  $T_c$  suit la loi :

$$\Delta R = A(T)f_2(H/H_\phi) \quad (\text{IV.4})$$

où  $f_2(x) = \Psi\left(\frac{1}{2} + \frac{1}{x}\right) + \ln x$  où  $\Psi$  est la fonction digamma et  $A(T)$  et  $H_\phi$  sont deux paramètres ajustables. Le paramètre  $H_\phi$  est le champ qui brise la cohérence de phase électronique et le paramètre  $A(T)$  mesure l'amplitude des fluctuations supraconductrices.

La magnétorésistance de l'état optimal de Bi-2212 est également bien décrite par l'expression (IV.4) au-dessous de  $T_c$  pour les champs magnétiques suffisamment élevés [19]. Cette fonction  $f_2(H/H_\phi)$  est représentée sur la figure 22(a) à la place de l'état optimal en même temps que les résultats de la superposition obtenus dans les autres états du dopage. Les courbes  $R(H, T=\text{const})$  dans l'état surdopé et les états sous-dopés ne sont pas bien décrites par cette même expression et une évolution des courbes est visible en allant du côté surdopé vers le côté sous-dopé.

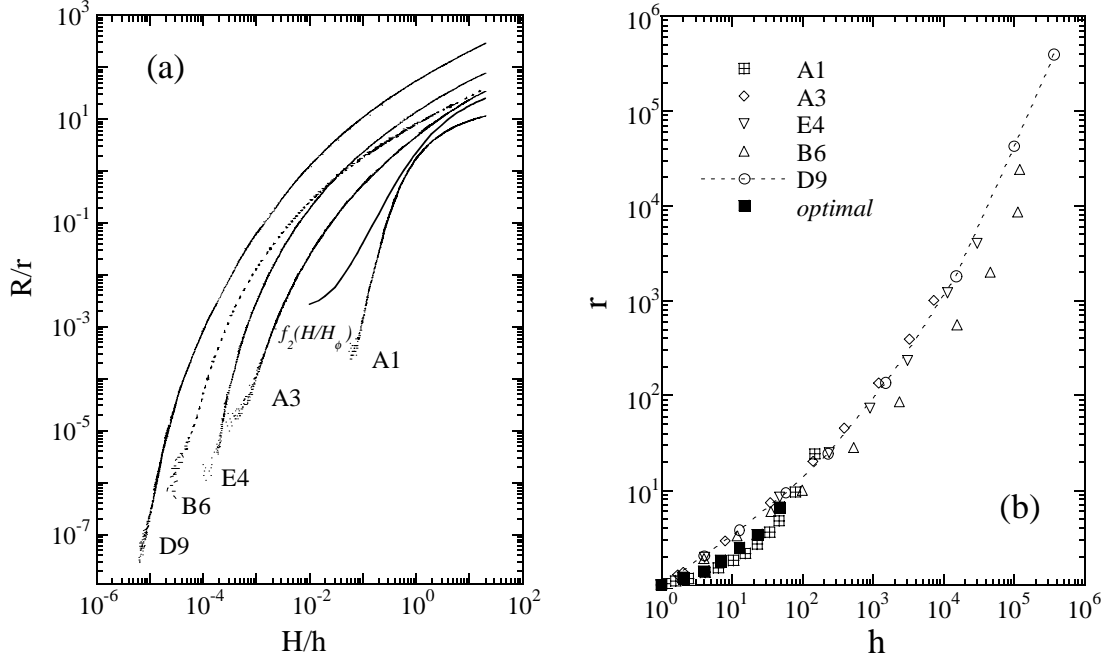


Figure 22 : (a) Comparaison des courbes normalisées  $R/r=f(H/h)$  en fonction du dopage et de la fonction digamma qui décrit bien l'état optimal [19] (b) Variation du coefficient  $r$  en fonction du coefficient  $h$ .

Si on porte les valeurs du paramètre  $r$  en fonction de celles du paramètre  $h$  (figure 22(b)), on obtient une seule courbe pour les états sous-dopés (la ligne en pointillés). La superposition de la variation  $r(h)$  pour les paramètres  $r$  et  $h$  du côté sous-dopé, proportionnels respectivement aux amplitudes des fluctuations supraconductrices  $A(T)$  et au champ qui brise la cohérence de phase électronique  $H_\phi$  dans le modèle de Larkin, peut aussi suggérer que le mécanisme responsable pour le comportement de la magnétorésistance en fonction de la température reste le même.

Les fluctuations supraconductrices 2D peuvent être considérées comme une propriété intrinsèque aux supraconducteurs présentant un comportement quasi-2D [38]. Comme le paramètre d'anisotropie de l'état  $A_1$  est le plus faible, ce résultat peut expliquer l'observation de la loi d'échelle dans l'intervalle du champ le plus petit. Egalement, la non description de la magnétorésistance par la fonction  $f_2(H/H_\phi)$ , issue du modèle de Larkin, est compatible avec cette interprétation. Par contre, on constate aussi que les courbes de magnétorésistance ne sont pas, non plus, bien décrites par l'expression (IV.4) du côté sous-dopé bien que l'anisotropie soit plus forte. L'influence éventuelle du pseudogap dans l'état mixte est à considérer.

## Références du chapitre IV

---

- [1] Z. Konstantinovic, O. Laborde, P. Monceau, Z. Z. Li et H. Raffy, *Physica B* **259-261**, 569 (1999).
- [2] Yu. I. Latyshev, O. Laborde, P. Monceau, *Europhys. Lett.* **29**, 495 (1995).
- [3] T. Watanabe et A. Matsuda, *Physica C* **263**, 313 (1996).
- [4] J. W. Harris, Y. F. Yan, P. Matl, N. P. Ong, P. W. Anderson, T. Kimura et K. Kitazawa, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1391 (1995).
- [5] A. P. Mackenzie, S. R. Julian, D. C. Sinclair et C. T. Lin, *Phys. Rev B* **53**, 5848 (1996).
- [6] A. W. Tyler, Y. Ando, F. F. Balakirev, A. Passner, G. S. Boebinger, A. J. Schofield, A. P. Mackenzie, O. Laborde, *Phys. Rev. B* **57**, 728 (1998).
- [7] N. E. Hussey, J. R. Cooper, J. M. Wheatley, I. R. Fisher, A. Carrington, A. P. Mackenzie, C. T. Lin et O. Miltat, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 122 (1996).
- [8] A. Lacerda, J. R. Rodriguez, M. F. Hundley, Z. Fisk, P. C. Canfield, J. R. Thompson et S. W. Cheong, *Phys. Rev. B* **49**, 9097 (1994).
- [9] T. Kimura, S. Miysaka, H. Takagi, K. Tamasaku, H. Eisaki, S. Uchida, K. Kitazawa, M. Hiroi, M. Sera et N. Kobayashi, *Phys. Rev. B* **53**, 8733 (1996).
- [10] F. F. Balakirev, I. E. Trofimov, S. Guha, M. Z. Cieplak et P. Lindenfeld, *Phys. Rev. B* **57**, 8083 (1998).
- [11] Y. Ando et T. Muruyama, *Phys. Rev. B* **60**, 6991 (1999).
- [12] Y. Abe, Y. Ando, J. Takeya, H. Tanabe, T. Watauchi, I. Tanaka et H. Kojima, *Phys. Rev. B* **59**, 14753 (1999).
- [13] N. W. Preyer, M. A. Kastner, C. Y. Chen, R. J. Birgeneau et Y. Hidaka, *Phys. Rev. B* **44**, 407 (1991).
- [14] K. Gorny, O. M. Vyaselev, J. A. Martindale, V. A. Nandor, C. H. Pennington, P. C. Hammel, W. L. Hults, J. L. Smith, P. L. Kuhns, A. P. Reyes et W. G. Moulton, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 177 (1999).
- [15] "Principles of the theory of solids", J. M. Ziman, ed. Cambridge University Press (1965).
- [16] P. W. Anderson, *Phys. Rev. Lett.* **67** 2092 (1991).
- [17] A. Carrington, A. P. Mackenzie, C. T. Lin et J. R. Cooper, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 2855 (1992).
- [18] B. P. Stojkovic et D. Pines, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 811 (1996).
- [19] H. Raffy, S. Labdi, O. Laborde, P. Monceau, *Physica C* **184**, 159 (1991).

- [20] H. Rifi, thèse à Université Paris-Sud, Orsay (1996).
- [21] C. M. Fu, W. Boon, Y. S. Wang, V. V. Moshchalkov et Y. Bruynseraede, *Physica C* **200**, 17 (1992).
- [22] D. Babić, J. Ivkov, N. Heinrich et B. Leontić, *Phys. Rev. B* **49**, 15965 (1994).
- [23] Y. Iye, I. Oguro, T. Tamegai, W. R. Datars, N. Mohorita et K. Kitazawa, *Physica C* **199**, 154 (1992); K. Okuda, S. Kawamata, S. Noguchi, N. Itoh et K. Kadowaki, *J. Phys. Soc. Jpn* **60**, 3226 (1991); S. Martin, A. T. Fiory, R. M. Fleming, L. F. Schneemeyer et J. V. Waszczak, *Phys. Rev. Lett* **60**, 2194 (1988).
- [24] B. Janossy, D. Prost, S. Pekker et L. Fruchter, *Physica C* **181**, 51 (1991).
- [25] T. R. Chien, W. R. Datars, B. W. Veal, A. P. Paulikas, P. Kostic, C. Gu et Y. Jiang, *Physica C* **229**, 273 (1994).
- [26] Y. Iye, T. Tamegai, H. Takeya et H. Takei, *Jpn. J. Appl. Phys.* **26**, L1057 (1987); T. K. Worthington, W. J. Gallagher et T. R. Dinger, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 1160 (1987); U. Welp, W. K. Kwork, G. W. Crabtree, K. G. Vandervoort et J. Z. Liu, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 1908 (1989); D. E. Farrel, C. M. Williams, S. A. Wolf, N. P. Bansal et V. G. Kogan, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2805 (1998).
- [27] P. de Rango, B. Giordanengo, R. Tournier, A. Sulpice, J. Chaussy, G. Deutscher, J. L. Genicon, P. Lejau, R. Retoux et B. Raveau, *J. Phys. (France)* **50**, 2857 (1989).
- [28] E. Zeldov, D. Majer, M. Konczykowski, V. K. Geshkenbein, N. Chikumoto et H. Shtrikman, *Europhys. Lett.* **30**, 367 (1995).
- [29] D. Babic, J. R. Cooper, J. W. Hodby et C. Changkang, *Phys. Rev. B* **60**, 698 (1999).
- [30] L. Martel, thèse à l'Université Paris-Sud, Orsay (1999).
- [31] A publier.
- [32] J. L. Tallon, J. W. Loram, G. V. M. Williams, J. R. Cooper, I. R. Fisher, J. D. Johnson, M. P. Staines et C. Bernhard, *Phys. Stat. Sol. (b)* **215**, 531 (1999) ; (cond/mat 9911157).
- [33] T. T. M. Palstra, B. Batlogg, L. F. Schneemeyer et J. V. Waszczak, *Phys. Rev. Lett.* **61** 1662 (1988); T. T. M. Palstra, B. Batlogg, R. B. van Dover, L. F. Schneemeyer et J. V. Waszczak, *Phys. Rev. B* **41**, 6621 (1990).
- [34] J. T. Kucera, T. P. Orlando, G. Virshup, J. N. Eckstein, *Phys. Rev. B* **46**, 11004 (1992).
- [35] P. Wagner, F. Hillmer, U. Frey et H. Adrian, *Phys. Rev. B* **49**, 18 (1994).
- [36] R. Fastampa, M. Giura, R. Marcon et E. Silva, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 1795 (1991).

[37] V. Geshkenbein, A. Larkin, M. Feigel'man, V. Vinokur, *Physica C* **162-164**, 239 (1989);  
V. M. Vinokur, M. V. Feigel'man, V. B. Geshkenbein, A. I. Larkin, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 259  
(1990).

[38] C. M. Fu, V. V. Moshchalkov, E. Rossel, M. Baert, W. Boon, Y. Bruynseraede, G.  
Jakob, T. Hahn et H. Adrian, *Physica C* **206**, 110 (1993).

[39] A. I. Larkin, *JETP Letters* **31**, 219 (1980).

## **Conclusion**

Dans ce travail de thèse on s'est intéressé aux changements des propriétés électroniques en fonction du dopage de la famille BiSrCaCuO, étudiées par mesures de transport, et principalement à l'effet de pseudogap observé par ces mesures. Les deux phases  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  et  $\text{Bi}_2\text{Sr}_{1,6}\text{La}_{0,4}\text{CuO}_{6+\delta}$  sont comparées.

- On a établi le comportement de la résistivité en fonction de la température pour les deux phases selon la position dans le diagramme de phase (T,dopage), établi expérimentalement.
  - Du côté surdopé il s'agit d'une description phénoménologique du comportement de la résistivité en fonction de la température qui est en accord avec les observations dans les autres systèmes mais qui reste assez loin d'un comportement de liquide de Fermi, attendu pour les états métalliques.
  - A partir de l'état optimal et en allant vers la région sous-dopé on a mis en évidence pour les deux phases une diminution plus rapide de la résistivité (signature de l'ouverture du pseudogap) que la dépendance linéaire en T. La température à partir de laquelle le pseudogap s'ouvre augmente quand le dopage diminue et sa valeur est comparable dans les deux cas. La disparition de  $T^*$  au voisinage du dopage optimum peut être l'indication de l'existence d'un point critique. De plus une superposition de toutes les courbes  $\rho(T)$  sur une courbe unique représentant chaque phase est observée. La superposition des courbes obtenue même pour des états non supraconducteurs au voisinage de  $p=0,05$  suggère une origine pas nécessairement liée au phénomène de supraconductivité. L'effet de pseudogap est plus grand d'un facteur 2 dans la phase Bi-2212 que dans Bi(La)-2201 ce qui peut être expliqué par le nombre différent de plans de  $\text{CuO}_2$ . L'effet de pseudogap dans la phase Bi-2212 est très comparable à celui vu dans le système YBCO ce qui suggère une universalité pour les systèmes à deux plans  $\text{CuO}_2$ . Nous avons comparé nos résultats à plusieurs descriptions théoriques. Les expressions analytiques décrivent plus ou moins bien nos résultats mais ne permettent pas encore d'expliquer l'amplitude différente du pseudogap et le même ordre de grandeur de la température caractéristique  $T^*$  dans les deux phases.

- La résistivité des états non supraconducteurs est dominée par les phonons et elle se trouve dans le régime de saut à portée variable de Mott à basse température, avec un régime intermédiaire entre ce régime et un comportement métallique.
- Le comportement selon le dopage en fonction de la température du coefficient de Hall et de l'angle de Hall est similaire pour les deux phases. L'angle de Hall suit une loi en  $T^m$  avec  $m$  fonction du dopage. Aucun changement de l'angle de Hall n'est visible à la température d'ouverture du pseudogap établie à partir des mesures de la résistivité. Ces dernières ont permis de mettre en évidence l'ouverture du pseudogap dans le comportement du coefficient de Hall d'une façon indirecte. La signification de l'ouverture du pseudogap dans l'effet Hall qui se produirait à une autre température plus basse, proposée par quelques autres auteurs, reste une question ouverte.
- L'effet d'un champ magnétique jusqu'à 20 Teslas reste très petit, au-delà de la précision d'établissement de la courbe universelle de  $\rho(T)$ , et de la détermination de la température de pseudogap. Le pseudogap semble être à l'origine, ou au moins être accompagné, de l'augmentation de l'anisotropie du côté sous-dopé ainsi que de la diminution de la température irréversible et de la diminution de l'énergie d'activation établie dans l'état mixte en fonction du dopage. L'existence d'un point critique au voisinage de l'état optimal reste très discuté.

Les descriptions phénoménologiques simples de la résistivité, de l'effet Hall et de la magnétorésistance, celles que nous avons vérifiées ou établies, permettent d'espérer que des travaux théoriques ultérieurs permettront de dégager le mécanisme responsable de l'effet de pseudogap et une description complète du diagramme de phase.

Enfin d'autres expériences, conduites actuellement par d'autres groupes sur les mêmes films, mettant en œuvre d'autres techniques (expériences du tricristal et symétrie du paramètre d'ordre, de réflectivité optique, de photoémission ARPES, STM...) devraient permettre une comparaison intéressante entre les différents résultats et ainsi obtenir divers aspects du même phénomène dans les mêmes systèmes.



## *Résumé*

Dans ce travail de thèse, on s'est intéressé aux changements des propriétés électroniques en fonction du dopage de couches minces épitaxiées des composés supraconducteurs  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_y$  : phase  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$  ( $T_{\text{cmax}}=80$  K) et  $\text{Bi}_2\text{Sr}_{1.6}\text{La}_{0.4}\text{CuO}_y$  ( $T_{\text{cmax}}=30$  K) respectivement avec un et deux plans  $\text{CuO}_2$ . Le changement des propriétés électroniques le plus étonnant se passe dans la région sous-dopée du diagramme de phase où un pseudogap s'ouvre à l'état normal dans le spectre des excitations électroniques. La mesure de la résistivité  $\rho(T)$ , de l'effet Hall  $R_{\text{H}}(T)$  et de la magnétorésistance  $\rho(T,H)$  sur ces deux phases ayant le même réservoir de charges ont permis une étude directe de l'effet de pseudogap en fonction du nombre de plans  $\text{CuO}_2$  et de la température critique. Cet effet se manifeste par une déviation de  $\rho(T)$  par rapport à la loi linéaire se produisant au-dessous d'une température caractéristique  $T^*$  et il est observé dans les deux phases. Toutes les courbes peuvent être superposées en fonction de  $T/T^*$  sur une courbe unique, différente pour chaque phase, ce qui reflète une différence d'amplitude de l'effet de pseudogap dans  $\rho(T)$  d'un facteur 2, relié au nombre différent de plan  $\text{CuO}_2$ . Par contre la température d'ouverture du pseudogap  $T^*$  a le même ordre de grandeur dans les deux phases. Sa disparition rapide au voisinage de l'état optimal semble exclure une relation entre  $T^*$  et  $T_{\text{c}}$ . De plus, l'existence d'un point critique au voisinage de l'état optimal est discutée ainsi que la corrélation possible entre les propriétés supraconductrices et les propriétés de l'état normal.

## *Abstract*

In this work the electronic properties of epitaxial single-layered  $\text{Bi}_2\text{Sr}_{1.6}\text{La}_{0.4}\text{CuO}_y$  ( $T_{\text{cmax}}=30\text{K}$ ) and double-layered  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$  ( $T_{\text{cmax}}=80\text{K}$ ) thin films were investigated as a function of various oxygen content in the same sample. The most intriguing phenomena is observed in the underdoped region of the phase diagram where a pseudogap opens in the electronic excitation spectra in the normal state. Resistivity  $\rho(T)$ , Hall effect  $R_{\text{H}}(T)$  and magnetoresistance  $\rho(T,H)$  measurements in these phases with the same charge reservoir allows a direct study of the pseudogap effect as a function of the number of  $\text{CuO}_2$  planes and of the critical temperature. For both phases, in the underdoped region, one observes a downward deviation from this linear  $T$  dependence below a characteristic temperature  $T^*$ , attributed to the opening of a pseudogap in this region. All the curves can be superposed on a unique curve, different for each phase. It shows twice bigger pseudogap effect in bilayer than in monolayer system, related with the different number of  $\text{CuO}_2$  planes in both systems. The nearly same order of magnitude of pseudogap opening temperature  $T^*$  in both phases, also as its steep decrease ending around the optimally doped state does not show evidence of a correlation between  $T^*$  and  $T_{\text{c}}$ . The existence of one critical point around the optimally doped state is also discussed as well as the possible correlation between the superconducting and normal state properties.