



**HAL**  
open science

# Etude des supraconducteurs à haute température critique par diffusion des neutrons

Benoît Fauqué

► **To cite this version:**

Benoît Fauqué. Etude des supraconducteurs à haute température critique par diffusion des neutrons. Supraconductivité [cond-mat.supr-con]. Université Paris Sud - Paris XI, 2007. Français. NNT : . tel-00349921

**HAL Id: tel-00349921**

**<https://theses.hal.science/tel-00349921>**

Submitted on 5 Jan 2009

**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.



**Université Paris SUD  
U.F.R. Scientifique d'Orsay**

**Thèse présenté pour obtenir**

**Le grade de Docteur en Science de l'Université Paris XI Orsay**

**par Benoît Fauqué**

**Sujet : Étude des supraconducteurs à haute température critique par diffusion des neutrons**

**Défendu le : 24/10/2007 à 14h00 Amphiteatre Blandin Bâtiment 510 Université Paris XI**

**Commission d'examen :**

<b>Président du jury</b>	<b>Henry Alloul</b>	<b>LPS Université Paris XI</b>
<b>Directeur de Thèse</b>	<b>Philippe Bourges</b>	<b>LLB CEA Saclay</b>
<b>Examinateur</b>	<b>Antoine Georges</b>	<b>CPHT Ecole Polytechnique</b>
<b>Rapporteur</b>	<b>Thierry Giamarchi</b>	<b>DPMC Université de Geneve</b>
<b>Rapporteur</b>	<b>Louis-Pierre Regnault</b>	<b>DRFMC CEA Grenoble</b>
<b>co-Directeur de Thèse</b>	<b>Yvan Sidis</b>	<b>LLB CEA Saclay</b>



# Table des matières

<b>Table des matières</b>	<b>3</b>
<b>Remerciements</b>	<b>5</b>
<b>Introduction Générale</b>	<b>9</b>
<b>1 Introduction</b>	<b>11</b>
1.1 La supraconductivité conventionnelle : quelques concepts . . . . .	11
1.1.1 Le couplage électron-phonon comme moteur de l'instabilité . . . . .	12
1.1.2 Signature expérimentale de la théorie BCS . . . . .	13
1.1.3 Analyse critique de la théorie BCS . . . . .	17
1.2 Les supraconducteurs à haute température critique . . . . .	17
1.2.1 Présentation des SHTCs . . . . .	18
1.2.2 Une supraconductivité non conventionnelle . . . . .	22
1.2.3 Nature de la phase normale . . . . .	24
1.2.4 Quel moteur pour l'appariement supraconducteur ? . . . . .	29
1.3 Problématique de la thèse . . . . .	48
<b>2 Aspects expérimentaux</b>	<b>51</b>
2.1 Pourquoi le neutron est il une bonne sonde de la matière ? . . . . .	51
2.2 Section efficace de la diffusion de neutrons . . . . .	52
2.2.1 Interaction nucléaire . . . . .	52
2.2.2 Interaction électromagnétique . . . . .	53
2.2.3 Spécificité de l'interaction électromagnétique : les processus Spin Flip . . . . .	55
2.2.4 Lien entre susceptibilité et fonction de réponse . . . . .	55
2.3 Réalisation pratique d'une expérience de diffusion de neutrons . . . . .	57
2.3.1 Les différentes sources . . . . .	57
2.3.2 Principe de fonctionnement d'un trois axes . . . . .	57
2.3.3 Les neutrons polarisés sur un spectromètre trois axes . . . . .	58
2.4 Présentation des échantillons . . . . .	65
2.4.1 Présentation de la famille Bi-2212 . . . . .	65
2.4.2 Présentation de la famille $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ . . . . .	68
2.4.3 Présentation de la famille $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ . . . . .	70
<b>3 Etude des fluctuations de spins dans les composés supraconducteurs à haute température critique</b>	
<b><math>\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}</math></b>	<b>73</b>
3.1 Présentation du système Bi-2212 . . . . .	73
3.1.1 Résultats de spectroscopie de charge sur le composé Bi 2212 . . . . .	74
3.1.2 Résultats de DIN sur le composé Bi 2212 . . . . .	76
3.1.3 Résumé des caractéristiques de l'état supraconducteur du systèmes Bi-2212 . . . . .	78

3.2	Mesure des excitations magnétiques dans le composé Bi-2212 . . . . .	79
3.2.1	Extraction du signal magnétique . . . . .	79
3.2.2	Etude des excitations magnétiques à $(\pi, \pi)$ dans le composé bi-couche : $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$	79
3.2.3	Etude de la dispersion des excitations magnétiques du mode acoustique . . . . .	82
3.2.4	Etude des excitations magnétiques par diffusion de neutrons polarisés . . . . .	88
3.3	Discussion du spectre d'excitation magnétique dans l'état supraconducteur du composé Bi-2212 de $T_c=87\text{K}$ . . . . .	91
3.4	Interprétation des excitations magnétiques dans le cadre d'une approche itinérante . . . . .	94
3.4.1	Excitations au vecteur d'onde $q=(\pi, \pi)$ . . . . .	96
3.4.2	Etude de la dispersion des excitations magnétiques dans le cadre d'une approche itinérante du magnétisme . . . . .	101
3.5	Conclusion . . . . .	107
<b>4</b>	<b>Phase de pseudogap et ordre en compétition</b>	<b>109</b>
4.1	Ordre magnétique et phase de pseudogap . . . . .	109
4.1.1	Signature neutronique des phases de courant . . . . .	110
4.1.2	Cas de la phase $DDW$ . . . . .	113
4.1.3	Cas de la phase $CC - \theta_I$ . . . . .	115
4.1.4	Cas de la phase $CC - \theta_{II}$ . . . . .	115
4.2	Conditions expérimentales pour le test de la phase $CC - \theta_{II}$ . . . . .	120
4.2.1	Section efficace dans les canaux SF et NSF . . . . .	120
4.2.2	Détermination du signal magnétique . . . . .	121
4.3	Conclusion . . . . .	121
<b>5</b>	<b>Étude de la phase de pseudogap du composé <math>\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}</math> par diffraction de neutrons polarisés (DNP)</b>	<b>123</b>
5.1	Ordre magnétique dans la phase de pseudogap du composé $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ : hypothèse de travail	123
5.1.1	Sur quel pic de Bragg faire la mesure ? . . . . .	123
5.1.2	Présentations des échantillons . . . . .	125
5.2	Résultats . . . . .	125
5.2.1	Cas de la polarisation P//Q pour $Q=(011)$ . . . . .	125
5.2.2	Analyse complète de la polarisation . . . . .	129
5.2.3	Autres pics de Bragg . . . . .	133
5.2.4	Evolution de la contribution magnétique au-dessous de $T_c$ . . . . .	135
5.2.5	Longueur de corrélation . . . . .	136
5.2.6	Bilan des mesures expérimentales . . . . .	138
5.3	Discussion . . . . .	138
5.3.1	Evolution avec le dopage de l'ordre magnétique . . . . .	138
5.3.2	Source de l'ordre magnétique . . . . .	140
5.3.3	Cohérence vis-à-vis des autres sondes du magnétisme . . . . .	142
5.4	Conclusion . . . . .	146
<b>6</b>	<b>Etude de la phase de pseudogap du composé <math>\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4</math> par diffraction de neutrons polarisés (DNP)</b>	<b>147</b>
6.1	Ordre magnétique dans la phase de pseudogap du $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ : les différentes hypothèses	147
6.1.1	Cas où l'ordre est à longue portée . . . . .	148
6.1.2	Cas où l'ordre est à courte portée . . . . .	149

6.2	Recherche d'un ordre magnétique : test des différentes hypothèses . . . . .	150
6.2.1	Test d'un ordre à longue portée respectant la symétrie du réseau le long de l'axe $\mathbf{c}$ : hypothèse n°2 . . . . .	150
6.2.2	Test de l'hypothèse n°1 et n°3 pour un ordre à longue portée . . . . .	151
6.2.3	Test de l'hypothèse n°1 et n°2 pour une ordre à courte portée . . . . .	158
6.2.4	Conclusion . . . . .	163
6.3	Spectre de fluctuation dans la phase de pseudogap du composé $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ . . . . .	163
6.3.1	Principe de la mesure . . . . .	163
6.3.2	Résultat des mesures . . . . .	164
6.3.3	Discussion . . . . .	167
<b>7</b>	<b>Conclusion et Discussion</b> . . . . .	<b>171</b>
7.1	Bilan des résultats expérimentaux . . . . .	171
7.2	Discussion . . . . .	174
7.2.1	Un ou deux gaps? . . . . .	174
7.2.2	Dynamique de spin associée à la phase $CC - \theta_{II}$ . . . . .	176
7.2.3	Dynamique de spin dans la phase supraconductrice . . . . .	176
7.3	Quelques perspectives . . . . .	178
7.3.1	Dynamique de spin dans la phase surdopée . . . . .	178
7.3.2	Dynamique de spin dans la phase sous-dopée isolante . . . . .	178
7.3.3	Phase de pseudogap . . . . .	179
<b>A</b>	<b>Appendice</b> . . . . .	<b>181</b>
A.1	Distribution de courant pour la phase $DDW$ . . . . .	181
A.2	Distribution courant pour la phase $CC - \theta_I$ . . . . .	182
A.3	Distribution de courant pour la phase $CC - \theta_{II}$ . . . . .	183
A.4	Distribution de moment dans la phase $\theta_{II}$ . . . . .	185
A.5	Facteur Debye-Weller . . . . .	186
A.6	Conversion $m\text{bars} - \mu_B$ . . . . .	187
A.7	Buckling des plans $\text{CuO}_2$ . . . . .	188
A.8	Comparaison avec les autres sondes du magnétisme : cas de la $\mu\text{SR}$ . . . . .	190
	<b>Bibliographie</b> . . . . .	<b>190</b>

*Table des matières*

# Remerciements

Ce travail de thèse représente un peu plus de trois ans de travail au cours desquels j'ai eu la chance de faire de nombreuses rencontres. J'aimerais remercier dans ces quelques lignes l'ensemble des gens qui ont contribué de façon directe ou indirecte à ce travail.

Tout d'abord, j'aimerais remercier le jury de thèse dans son ensemble pour avoir participé à l'évaluation de ce travail et pour l'intérêt porté aux résultats présentés. Je tiens à remercier Henry Alloul de ses encouragements et d'avoir assumé la responsabilité de présider ce jury de thèse, et Thierry Giamarochi et Louis Pierre Regnault d'avoir accepté les rôles de rapporteurs. J'aimerais ici remercier particulièrement Louis Pierre Regnault pour nos nombreuses discussions sur le présent manuscrit et durant les expériences que nous avons réalisées ensemble. Son expertise technique et physique a été pour moi riche d'enseignements. J'aimerais remercier enfin Antoine Georges de m'avoir fait l'honneur de participer à ce jury de thèse.

Pendant ces trois années, ce travail de thèse s'est déroulé sous la direction conjointe de Philippe Bourges et Yvan Sidis, à qui je dois beaucoup plus que de simples remerciements. Il y aurait en fait beaucoup de choses à dire sur ce duo. Cependant, s'il y a bien une raison pour laquelle je dois les remercier, c'est pour le sujet de ma thèse. Merci de m'avoir permis de plonger dans un problème fascinant de la physique contemporaine et de m'avoir permis d'essayer d'y apporter quelques réponses. Merci aussi de m'avoir patiemment initié à cette physique riche et à la diffusion des neutrons. Merci de m'avoir intégré avec simplicité et bonne humeur à votre duo. Finalement, ce manuscrit pourrait être considéré comme un compte rendu de nos nombreuses discussions et des expériences et autres calculs qui en ont découlé. Merci pour tout les gars!

Cette thèse s'est déroulée au sein du groupe trois axes du LLB (Laboratoire Léon Brillouin), unité mixte CEA/CNRS. Je tiens à remercier le CEA d'avoir financé mon travail de thèse ainsi que l'Université Paris XI de m'avoir permis d'enseigner dans le cadre d'un monitorat, expérience riche d'enseignements. Par cette occasion, je remercie l'ensemble des intervenants rencontrés lors de mes divers enseignements. Je tiens aussi à remercier les différentes directions ainsi que le secrétariat du LLB pour son efficacité, en particulier Chantal Marais. Je tiens également à remercier chacun des membres du groupe trois axes et de ses ramifications pour la bonne ambiance qui y règne. Je remercie en particulier Stéphane Pailhès et Sylvain Petit de leur regard toujours bienveillant sur ce travail.

Au cours de ces trois années de thèse j'ai eu la chance de collaborer avec différents groupes sans qui la plupart des travaux présentés dans ce manuscrit n'existeraient pas. En premier lieu, je tiens à remercier Bernhard Keimer du Max Planck Institut de Stuttgart ainsi que ses étudiants : Luchia Capogna, Daniel Haug et Vladimir Hinkov. Je tiens à exprimer toute ma gratitude à John Tranquada du BNL (Brookhaven National Laboratory) pour m'avoir permis de participer à ses mesures qui ont pu étendre mon étude sur le composé Bi-2212. Bien que son approche de la physique des cuprates soit différente de celle utilisée dans ce manuscrit, cette rencontre a été extrêmement utile à la formation de mon esprit critique. Je tiens à remercier chaleureusement Joël Mesot du PSI (Paul Scherrer Institut). Bien que nos différents efforts pour l'étude de la phase de pseudogap dans le composé  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  n'aient pas encore abouti, ce travail et cette collaboration ont grandement contribué à ma formation et restent humainement un très bon souvenir. Aussi, je remercie Martin Greven et son groupe avec qui nous avons collaboré dans l'étude de la phase de pseudogap dans le composé  $\text{HgBa}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ . Mon travail a également grandement bénéficié des rencontres avec Chandra Varma et Vivek Aji de l'Université de Riverside qui nous a permis en particulier de dériver

## *Table des matières*

exactement la section efficace de diffusion magnétique associée aux phases de courants. Je tiens aussi à remercier Alexandre Ivanov de l'ILL (Institute Laïe Langevin) pour sa très grande efficacité en tant que "local contact". Sa connaissance de la diffusion des neutrons est une source inépuisable de discussions. Je tiens à remercier les différents chimistes qui ont contribué à la synthèse des échantillons utilisés durant toutes ces expériences : A.Y. Rykov (Université de Tokyo), X.Chaud (CRETA, Grenoble), C.T. Lin (Max Planck Institut de Stuttgart), G.Gu (BNL). Sans leur précieux travail, il aurait été impossible de réaliser toutes ces expériences.

Au cours de ces trois années de thèse j'ai eu la chance de rencontrer de nombreuses personnes de différentes communautés. De façon générale, j'aimerais remercier toutes les personnes avec qui j'ai eu un échange et qui voudraient se reconnaître dans ces lignes. J'aimerais remercier en particulier Cyril Proust pour ses encouragements tout au long de ce travail. J'ai également une pensée pour Michel Heritier qui tout au long de mes études m'a toujours sagement conseillé et Louis Taillefer avec qui mon intérêt pour la supraconductivité a commencé.

J'aimerais remercier Kamran Behnia de m'avoir accueilli dans son groupe pour cette année au Laboratoire Photon et Matière de l'Ecole Supérieure de Physique Chimie Industrielle de la Ville de Paris.

Pour finir, j'aimerais remercier mes amis, ma famille qui au fil des années m'ont patiemment accompagné. Enfin, je tiens à remercier mon amoureuse, Aurélie Méjean.

# Introduction Générale

Un peu plus de vingt ans après la découverte des supraconducteurs à haute température critique (SHTCs) par Berdnoz et Muller [1], l'origine de la supraconductivité dans ces composés n'est toujours pas comprise. Ce qui rend ces composés si singuliers est non seulement leur températures critiques qui peuvent dépasser les 100K mais aussi le fait que cette supraconductivité apparaît dans des oxydes de cuivre céramiques qui sont typiquement des isolants.

Tous les SHTCs se caractérisent par un empilement de plan  $\text{CuO}_2$  séparés de réservoirs de charge qui assurent le transfert des électrons depuis les orbitales planaires de l'oxygène vers les plans réservoirs. Cette propriété extrêmement importante permet de faire varier la concentration en lacunes électroniques dans les plans  $\text{CuO}_2$ . Les propriétés électroniques sont très fortement modifiées en fonction du nombre de porteurs dans les plans  $\text{CuO}_2$ . En l'absence de dopage, ces composés sont isolants et ordonnés antiferromagnétiquement. En augmentant le dopage, ces composés deviennent supraconducteurs. Bien que son origine reste inconnue, la supraconductivité des SHTCs peut être décrite par la théorie BCS. Ainsi, l'appariement entre les porteurs, idée fondamentale de la théorie BCS, n'est pas remis en cause. Cependant, contrairement aux cas BCS où la phase normale est considérée comme un bon métal, la situation dans les SHTCs est différente. En effet, la phase normale (souvent appelée phase de *pseudogap*) dans les SHTCs présente de fortes déviations à un métal standard. Au delà de l'origine de la supraconductivité dans ces composés, c'est la compréhension de l'ensemble du diagramme de phase qui est un défi posé aux physiciens du solide.

Bien que les SHTCs soient probablement, après les semi conducteurs, les systèmes qui ont été le plus étudiés par les physiciens du solide, il n'existe pas vraiment de consensus quant à la façon de décrire ce diagramme de phase. Néanmoins, il est généralement admis que ces composés sont des isolants de Mott : ce sont en effet les corrélations électroniques au sein des plans  $\text{CuO}_2$  qui sont responsables de leur caractère isolant et de l'antiferromagnétisme. Une partie du problème consiste donc à savoir comment traiter l'ajout de trous à *un isolant de Mott bi-dimensionnel*. En particulier, l'une des questions de fond est de savoir comment vont évoluer les corrélations AF dans la phase métallique.

Afin d'apporter des éléments de réponse à ces questions, de nombreuses études ont été réalisées afin de suivre les modifications du spectre des ondes de spin en fonction du dopage. L'une des techniques de choix pour sonder les corrélations magnétiques sont les mesures de diffusion inélastique de neutrons. Jusqu'à maintenant, l'étude par diffusion inélastique des neutrons dans les supraconducteurs à haute température critique s'est essentiellement portée sur deux familles de composés : la famille monocouche  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  et la famille bicouche  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ . Alors que dans la phase isolante les corrélations magnétiques peuvent être décrites de façon assez analogue, ce n'est pas le cas dans la phase métallique. Dans la mesure où les corrélations magnétiques sont invoquées comme moteur de l'instabilité supraconductrice, il est fondamental de différencier les éléments universels de ces corrélations magnétiques des spécificités de chacun des systèmes. Dans ce contexte, l'étude d'une troisième famille de composés telle que la famille  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$  est donc intéressante. La nécessité de disposer d'échantillons de volume suffisant (de l'ordre de la centaine de  $\text{mm}^3$ ) pour réaliser une étude de diffusion de neutrons a limité pendant longtemps le champ d'investigation de cette méthode sur le système  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ . Cependant, ce système est le système de référence pour les techniques de surface, en particulier pour les techniques de spectroscopie de charge telle que la photo-émission résolue en angle (ARPES) et la microscopie à effet tunnel (STM). Ainsi l'étude du système

$\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$  présente un second avantage, celui de pouvoir réaliser une étude quantitative entre les spectres d'excitation électronique et de spin. Tel est le but de notre étude des corrélations magnétiques dans la famille  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ .

De façon complémentaire, cette thèse s'est également intéressée à la nature particulière de la phase de pseudogap. A certains égards, la phase normale des SHTCs peut paraître encore plus mystérieuse que la supraconductivité elle-même. Dans la mesure où la supraconductivité est une instabilité de la phase normale, l'un des pré-requis à la compréhension de la supraconductivité dans les SHTCs est la compréhension de cette phase. Il existe principalement deux approches pour décrire la phase de pseudogap. Dans une première approche, la phase de pseudogap est vue comme une phase précurseur de la phase supraconductrice (la phase de pseudogap est alors vue comme un liquide de paires de Cooper incohérent). Dans une seconde approche, la phase de pseudogap est vue comme un ordre en compétition avec la supraconductivité. Différents paramètres d'ordre ont été proposés pour décrire cette phase de pseudogap. En particulier, certaines approches postulent l'existence d'un ordre de boucle de courant dans la maille élémentaire  $\text{CuO}_2$  qui respecte la symétrie de translation. De façon remarquable, ce type d'ordre peut être, en principe, sondé directement par la diffusion de neutrons. En effet, le champ magnétique créé par ces boucles de courant peut se coupler avec le spin du neutron pour donner lieu à une diffusion de type magnétique. Ce type d'ordre est tout à fait original et n'a été reporté à ce jour dans aucun système.

Cette thèse s'intéresse donc à deux aspects du diagramme de phases des supraconducteurs à haute température critique, à savoir l'évolution des corrélations AF et la nature de la phase de pseudogap. Dans le Chap.1, nous présentons la problématique des SHTCs. La sonde expérimentale utilisée est la diffusion de neutrons que nous présenterons dans le Chap.2. Les trois familles de cuprates supraconducteurs que nous avons étudiées durant cette thèse sont :  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ ,  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  et  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ . Dans le Chap.3, nous reportons les résultats de l'étude de la dynamique de spin dans le composé  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ . Dans le Chap.4, nous présentons une étude détaillée de la section efficace magnétique associée à différents types d'ordres magnétiques non conventionnels proposés comme candidats possibles pour la phase de pseudogap. Au cours des Chap.5 et 6, nous reportons respectivement les résultats de nos études de la phase de pseudogap dans la famille de composés  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  et  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ . Enfin, dans le Chap.7, nous synthétisons l'ensemble des résultats expérimentaux obtenus au cours de cette thèse. Nous discutons en particulier les conséquences de nos résultats sur la description du diagramme de phase des SHTCs.

# 1 Introduction

## 1.1 La supraconductivité conventionnelle : quelques concepts

La supraconductivité a été mise en évidence dans le Mercure par le groupe de K. Onnes [2] en 1911 lors d'une étude sur la résistivité à basse température. Grâce à une avance technique sur la cryogénie, ils observent les premiers une chute de la résistivité de plusieurs ordres de grandeur en dessous d'une température communément appelée depuis température critique, notée  $T_c$ ; le nom de *supraconductivité* fut donné à cet effet. Suite à cette découverte, tous les métaux et autres alliages disponibles sont étudiés systématiquement. Cet effet n'est pas une spécificité du composé Mercure puisqu'environ 20% des éléments du tableau de Mendeleiev sont supraconducteurs à pression ambiante et 30% le sont sous pression[3]. La supraconductivité ne se caractérise pas seulement par la disparition de toute résistance électrique (conductivité infinie) en dessous de  $T_c$ , mais aussi par une réponse magnétique bien particulière : lorsqu'un supraconducteur est soumis à un champ magnétique, le supraconducteur écrante ce champ magnétique afin d'expulser les lignes de champs magnétique on parle alors de diamagnétisme parfait. Ce dernier effet donne lieu à l'image bien connue d'un supraconducteur lévitant au dessus d'un aimant. La supraconductivité est un phénomène quantique remarquable car il peut être mis en évidence à l'échelle macroscopique. Pendant plus de 40 ans, cet effet a animé de nombreux débats théoriques. C'est finalement Bardeen, Cooper et Schrieffer [4] qui proposèrent une théorie microscopique (noté théorie BCS) de cet effet en 1953. Comme on le verra, cette théorie est très robuste afin d'expliquer la supraconductivité dans les métaux et autres alliages. Alors que les physiciens du solide pensaient en avoir fini avec la supraconductivité, l'histoire rebondit autour des années 70 avec la mise en évidence d'une supraconductivité non conventionnelle dans les composés 1D[5], les fermions lourds [6]. Cette supraconductivité est non conventionnelle car l'approche BCS ne suffit pas pour comprendre son origine. L'histoire de la supraconductivité continue encore actuellement, avec en particulier deux nouvelles familles : les cobaltates [7] et les graphines intercalées [8]. Nous proposons dans cette partie de faire une brève description de la supraconductivité conventionnelle.

La supraconductivité est un nouvel état électronique de la matière dans la mesure où toutes les propriétés électroniques sont modifiées lorsque les métaux sont dans cet état, alors que cette transition n'est accompagnée d'aucun changement de structure, ni d'aucune modification des propriétés du réseau cristallin. Comme dans le cas de toute instabilité électronique, la compréhension de la supraconductivité passe par la réponse aux questions suivantes :

1. Quel état microscopique décrit l'état supraconducteur ?
2. Quelle interaction entre les quasiparticules de la phase normale est responsable de la supraconductivité ?

En se basant sur la théorie BCS [4, 9, 10], nous proposons ici de répondre à ces deux questions.

### La supraconductivité : un nouvel état de la matière

En ce qui concerne l'état microscopique qui décrit l'état supraconducteur, une partie de la réponse a été donnée par Cooper [11]. En effet, celui-ci a montré qu'en présence d'une interaction attractive à la surface de Fermi, noté  $V_{\mathbf{k},\mathbf{k}'c}$ , deux électrons de spins et de moments opposés peuvent former un état de paire : les paires de Cooper. Bien que son calcul concerne une paire d'électron, il permet de montrer que le système

## 1 Introduction

peut tendre vers une instabilité où la probabilité de présence d'un électron  $|\mathbf{k}, \uparrow\rangle$  est couplée à celle de  $|\mathbf{-k}, \downarrow\rangle$ . Dans le cas où l'on applique l'idée de Cooper à un nombre macroscopique d'électrons, la situation est beaucoup plus compliquée : les paires interfèrent entre elles, posant un problème à un N corps. Cependant l'approximation de paires généralisée à l'ensemble des électrons de la surface de Fermi donne de surprenants résultats. On part de l'Hamiltonien de paires suivant, noté  $H_{BCS}$ [10] :

$$H_{BCS} = \sum_{\mathbf{k}, \sigma} \epsilon_{\mathbf{k}} c_{\mathbf{k}, \sigma}^{\dagger} c_{\mathbf{k}, \sigma} + \sum_{(\mathbf{k}), (\mathbf{k}')} V_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} c_{\mathbf{k}, \uparrow}^{\dagger} c_{-\mathbf{k}, \downarrow}^{\dagger} c_{-\mathbf{k}', \downarrow} c_{\mathbf{k}', \uparrow} \quad (1.1)$$

En introduisant le paramètre d'ordre :

$$\Delta_{\mathbf{k}} = - \sum_{\mathbf{k}'} V_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} c_{-\mathbf{k}', \downarrow} c_{\mathbf{k}', \uparrow} \quad (1.2)$$

l'Hamiltonien  $H_{BCS}$  se réduit alors à un Hamiltonien  $H_m$  qui est bilinéaire pour les opérateurs de création et d'annihilation et qui se diagonalise simplement par une transformation canonique linéaire [9, 10](ou encore appelée transformation de Bogoluibov) :

$$c_{\mathbf{k}, \uparrow} = u_{\mathbf{k}} \gamma_{\mathbf{k}} + v_{\mathbf{k}}^* \gamma_{-\mathbf{k}}^{\dagger} \quad (1.3)$$

$$c_{-\mathbf{k}, \downarrow}^{\dagger} = -v_{\mathbf{k}} \gamma_{\mathbf{k}} + u_{\mathbf{k}}^* \gamma_{-\mathbf{k}}^{\dagger} \quad (1.4)$$

Les coefficients  $u_{\mathbf{k}}$  et  $v_{\mathbf{k}}$  sont choisis pour diagonaliser l'hamiltonien  $H_m$  et vérifient :  $|u_{\mathbf{k}}|^2 + |v_{\mathbf{k}}|^2 = 1$ . Ils vient alors que :

$$|u_{\mathbf{k}}|^2 = \frac{1}{2} \left( 1 + \frac{\epsilon_{\mathbf{k}}}{E_{\mathbf{k}}} \right) \quad (1.5)$$

$$|v_{\mathbf{k}}|^2 = \frac{1}{2} \left( 1 - \frac{\epsilon_{\mathbf{k}}}{E_{\mathbf{k}}} \right) \quad (1.6)$$

où  $E_{\mathbf{k}} = \sqrt{\epsilon_{\mathbf{k}}^2 + |\Delta_{\mathbf{k}}|^2}$ . Les opérateurs  $\gamma_{\mathbf{k}}$  et  $\gamma_{\mathbf{k}}^{\dagger}$  sont des combinaisons linéaires d'opérateurs de fermions. Ce sont donc aussi des opérateurs de fermions caractérisés par un spectre d'excitations électroniques :  $E_{\mathbf{k}}$ . Comme pour toute théorie de champ moyen, il existe une équation d'auto-cohérence imposée ici par l'Eq.1.1 qui se réécrit comme :

$$\Delta_{\mathbf{k}} = - \sum_{\mathbf{k}'} V_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} \Delta_{\mathbf{k}'} \frac{(1 - 2f(E_{\mathbf{k}}))}{2E_{\mathbf{k}}} \quad (1.7)$$

où  $f(E_{\mathbf{k}})$  est la fonction de distribution de Fermi Dirac pour les quasiparticules :  $f(E_{\mathbf{k}}) = \frac{1}{1 + \exp(E_{\mathbf{k}}/k_B T)}$ . Nous venons de présenter un traitement en champ moyen de l'idée de Cooper généralisée à l'ensemble de la surface de Fermi. En dessous d'une certaine température, l'Eq.1.1 admet une solution non triviale (c'est-à-dire  $\Delta_{\mathbf{k}} \neq 0$ ), l'état supraconducteur dans cette approche de champ moyen est alors décrit par de nouvelles quasiparticules  $\gamma_{\mathbf{k}}$  et  $\gamma_{\mathbf{k}}^{\dagger}$  caractérisées par une nouvelle relation de dispersion :  $E_{\mathbf{k}} = \sqrt{\epsilon_{\mathbf{k}}^2 + |\Delta_{\mathbf{k}}|^2}$ . Il faut noter que dans l'article original de BCS [4], ce n'est pas cette approche mais une approche variationnelle qui a été utilisée. Ces deux approches sont parfaitement équivalentes [10]. On dénommera donc la théorie présentée comme la théorie BCS.

### 1.1.1 Le couplage électron-phonon comme moteur de l'instabilité

Jusqu'à maintenant, nous avons postulé l'existence d'une interaction attractive dans le système qui dans une approche de champ moyen permet de transiter vers un état où les électrons sont appariés. Cependant nous n'avons pas abordé l'origine physique de cette attraction entre les électrons. Intéressons nous tout d'abord à

quelques ordres de grandeur. Le gain d'énergie dans la phase supraconductrice est de l'ordre de  $N(0)(k_B T_c)^2$  avec  $N(0)$  qui correspond à la densité d'état au niveau de Fermi dans la phase normale. Concrètement pour un supraconducteur conventionnel, cela signifie que  $10^{-3}$  électrons vont voir leur énergie changer de  $10^{-3}$  eV, d'où une variation de l'énergie par atome de l'ordre de  $10^{-6}$  eV. La variation d'énergie du système entre la phase supraconductrice et métallique est très faible par rapport aux énergies caractéristiques présentes dans le système, à savoir l'interaction Coulombienne (de l'ordre de 1eV par atome) et l'interaction électron-phonon (de l'ordre de  $10^{-3}$  eV). Il est donc clair que de telles considérations ne sont pas un bon moyen pour révéler le moteur de l'instabilité supraconductrice. En fait, pour chacune des interactions présentes dans le système (en l'occurrence les interactions Coulombienne et phononique), il faut à priori résoudre le problème complètement afin de conclure sur leur rôle dans l'instabilité. Malgré cette difficulté, Frölich a proposé une interaction [12] qui est maintenant reconnue comme le moteur de l'instabilité supraconductrice conventionnelle. L'interaction attractive résulte de l'interaction entre les électrons et les vibrations du réseau. Le rôle joué par cette interaction a été en particulier confirmé par la dépendance isotopique de  $T_c$  [13]. Dans une approche semi-classique [10], on considère un réseau de charges positives (caractérisé par une énergie  $\omega_{re}$ ) et un gaz d'électron qui se déplace librement sur ce réseau. Si on rajoute une charge dans le système d'énergie  $\omega_e$ , l'écrantage de la charge sera différent en fonction de la valeur de  $\omega_e$ . Si  $\omega_e \gg \omega_{re}$  alors le réseau ne peut écranter la charge, seuls les électrons contribuent à l'écrantage, la polarisabilité est celle du gaz d'électron :  $\epsilon_{el}(\mathbf{q}) = q + q_0$  où  $q_0$  correspond au vecteur d'onde de Thomas Fermi. Par contre, si  $\omega_e \approx \omega_{re}$ , le réseau contribue à l'écrantage. La constante diélectrique s'écrit alors :  $\epsilon(\mathbf{q}, \omega) = \epsilon_{el}(\mathbf{q}) \frac{\omega^2 - \omega_e^2}{\omega^2}$ . Etant donné deux électrons de vecteurs d'onde  $\mathbf{k}$  et  $\mathbf{k}'$  (et d'énergie  $\epsilon_{\mathbf{k}}$  et  $\epsilon_{\mathbf{k}'}$ ) leur énergie d'interaction effective s'écrit :  $V_{eff}(q, \omega) = \frac{4\pi e^2}{q^2 + q_0^2} (1 + \frac{\omega_p^2 h(q)}{\omega^2 + \omega_p^2 h(q)})$  avec  $\mathbf{q} = \mathbf{k} - \mathbf{k}'$  et  $\hbar\omega = \epsilon_{\mathbf{k}} - \epsilon_{\mathbf{k}'}$ . Cette interaction dépend à la fois de  $q$  et de la fréquence. Cette dépendance en fréquence traduit le fait que l'interaction n'est pas instantanée mais retardée par la vitesse de propagation des ondes élastiques, petite devant la vitesse des électrons. On reporte sur la Fig.1.1.a) la dépendance de l'interaction attractive pour un  $q$  donné. Qualitativement, cette interaction présente deux caractéristiques : (i) si  $\hbar\omega > \hbar\omega_D$  où  $\hbar\omega_D$  correspond à la fréquence de Debye, l'écrantage par le réseau est faible. Ainsi seuls les électrons d'énergie proche (typiquement  $10^{-1}$  eV) de celle des électrons de la surface de Fermi seront sensiblement affectés (ii) dans le cas où  $\hbar\omega < \hbar\omega_D$ , l'interaction est alors attractive. Suivant l'approche BCS (interaction indépendante de l'énergie), on peut simplifier cette interaction et la mettre sous la forme :

$$\begin{aligned} V_{eff}(\mathbf{q}, \omega) &= -V & \text{si } |E_F - \hbar\omega| < \hbar\omega_D \\ V_{eff}(\mathbf{q}, \omega) &= 0 & \text{sinon} \end{aligned}$$

Ainsi l'interaction attractive nécessaire à la formation des paires de Cooper est dans le cas de la théorie BCS [4] crée par le couplage électron phonon. On retiendra que ce couplage est indépendant de  $\mathbf{q}$  et peut être pris, dans une première approximation, indépendant de l'énergie jusqu'à une énergie de coupure  $\hbar\omega_D$  puis nul au delà.

### 1.1.2 Signature expérimentale de la théorie BCS

L'état supraconducteur tel qu'il est décrit par la théorie BCS se caractérise par de nouvelles quasiparticules et un spectre électronique modifié. Par sa nature microscopique, la théorie BCS permet de calculer les différentes fonctions de réponse de l'état supraconducteur et de les comparer aux mesures expérimentales. Nous proposons ici une brève illustration du succès de la théorie BCS pour décrire la supraconductivité des métaux et alliages.

### Calcul des fonctions de réponse dans l'état supraconducteur

La première conséquence de l'état supraconducteur est l'*ouverture d'un gap* dans le spectre électronique. Ainsi, toutes les techniques sensibles à la densité de porteurs au niveau de fermi doivent indiquer une diminution. Cette diminution est d'autant plus grande que T est petite et s'éloigne de  $T_c$ . C'est en effet ce qu'indiquent par exemple les mesures de chaleur spécifique et de spectroscopie tunnel (pour une revue voir par exemple [14]). La deuxième conséquence de l'état supraconducteur est l'apparition de *facteurs de cohérence* dus au changement de l'état fondamental entre la phase normale et la phase supraconductrice. En calculant les éléments de matrice entre les états des électrons de conduction dans l'état supraconducteur et dans l'état normal, on ne peut que constater la grande différence entre ces deux états [4]. En effet, entre  $T=0$  et  $T_c$ , le système est constitué :

- (i) de l'état fondamental dans lequel les électrons sont appariés
- (ii) des états excités constitués des paires de Cooper orthogonales à l'état fondamental et des électrons non appariés

Intéressons nous au calcul des fonctions de réponse dans l'état supraconducteur. Lorsque la perturbation est faible, le supraconducteur peut être décrit par l'Hamiltonien de champ moyen précédemment discuté. L'excitation induite va modifier l'état du supraconducteur qui peut être décrit par la création ou l'annihilation de quasiparticule. La perturbation peut être créée par une onde électromagnétique, une onde sonore ou encore un gradient de température. La réponse du système sera alors caractérisée par la susceptibilité associée à l'excitation appliquée au système. Dans tous les cas, le calcul de la fonction de réponse est le même, il faut tenir compte d'un nouveau terme  $H_i$  dans l'Hamiltonien de champ moyen. Généralement quelque soit la perturbation,  $H_i$  peut se mettre sous la forme,

$$H_i = \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}', \sigma} B_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} c_{\mathbf{k}', \sigma}^\dagger c_{\mathbf{k}, \sigma}$$

Le terme  $B_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'}$  correspond à l'élément de matrice de l'opérateur de perturbation qui diffuse un électron de l'état  $|\mathbf{k}, \sigma\rangle$  vers un état  $|\mathbf{k}', \sigma'\rangle$ . Dans le cas où la perturbation se couple à un opérateur de charge alors  $B_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} = B_{-\mathbf{k}, -\mathbf{k}'}$  (cas I). Dans le cas où la perturbation se couple à un opérateur de spin alors  $B_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} = -B_{-\mathbf{k}, -\mathbf{k}'}$  (cas II) [4].

La transformée de Bogolioubov permet de réécrire  $H_i$ . En effet, d'après les Eq.1.1 :

$$M_{op}(\mathbf{q}) = c_{\mathbf{k}', \uparrow}^\dagger c_{\mathbf{k}, \uparrow} \pm c_{\mathbf{k}', \downarrow}^\dagger c_{\mathbf{k}, \downarrow} = (u_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} u_{\mathbf{k}} + v_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} v_{\mathbf{k}}) (\gamma_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger \gamma_{\mathbf{k}} - \gamma_{-\mathbf{k}}^\dagger \gamma_{-\mathbf{k}+\mathbf{q}}) \quad (1.8)$$

$$\pm (u_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} v_{\mathbf{k}} - v_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} u_{\mathbf{k}}) (\gamma_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger \gamma_{-\mathbf{k}}^\dagger - \gamma_{-\mathbf{k}+\mathbf{q}} \gamma_{\mathbf{k}})$$

$\pm$  correspond aux cas (I) et (II) et  $M_{op}(\mathbf{q})$  correspond à la transformée de Fourier de l'opérateur qui se couple à la perturbation. On note  $H(\mathbf{q})$  la transformée de Fourier de l'opérateur de perturbation. Suivant un développement au second ordre en perturbation, la perturbation crée une réponse du système dont la transformée de Fourier, notée  $M(\mathbf{q})$ , est donnée par [4] :

$$M(\mathbf{q}) = \sum_f \frac{|\langle \Psi_f | M_{op}(\mathbf{q}) | \Psi_i \rangle|^2}{W_i - W_f} \quad (1.9)$$

où la somme s'effectue sur tous les états intermédiaires f. La décomposition de  $M_{op}(\mathbf{q})$  en fonction des opérateurs de création et d'annihilation (voir Eq.1.1.2) permet d'identifier les différents types de processus. A chacun de ces processus correspondront une augmentation d'énergie  $\Delta E = W_i - W_f$  et une certaine probabilité en fonction de l'occupation de l'état initial et de l'état final. La susceptibilité est alors donnée par :  $\chi(\mathbf{q}) = \frac{M(\mathbf{q})}{H(\mathbf{q})}$ . On résume dans le Tab.1.1.2 les différents paramètres qui permettent de calculer la susceptibilité magnétique.

Operateur	$\Delta E$	Facteur de Cohérence	Probabilité d'occupation
$\gamma_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger \gamma_{\mathbf{k}}$	$E_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - E_{\mathbf{k}}$	$(u_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} u_{\mathbf{k}} + v_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} v_{\mathbf{k}})$	$(1-f(E_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}))f(E_{\mathbf{k}})$
$\gamma_{-\mathbf{k}}^\dagger \gamma_{-\mathbf{k}-\mathbf{q}}$	$E_{-\mathbf{k}} - E_{-\mathbf{k}-\mathbf{q}}$	$(u_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} u_{\mathbf{k}} + v_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} v_{\mathbf{k}})$	$(1-f(E_{\mathbf{k}}))f(E_{\mathbf{k}+\mathbf{q}})$
$\gamma_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger \gamma_{-\mathbf{k}}^\dagger$	$E_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} + E_{\mathbf{k}}$	$(u_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} v_{\mathbf{k}} - v_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} u_{\mathbf{k}})$	$f(E_{\mathbf{k}+\mathbf{q}})f(E_{\mathbf{k}})$
$\gamma_{-\mathbf{k}+\mathbf{q}} \gamma_{\mathbf{k}}$	$-E_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - E_{\mathbf{k}}$	$(u_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} v_{\mathbf{k}} - v_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} u_{\mathbf{k}})$	$f(-E_{\mathbf{k}+\mathbf{q}})f(-E_{\mathbf{k}})$

TAB. 1.1: **Éléments de matrice pour les opérateurs de diffusion à une particule. Pour chaque opérateur qui apparaît dans le calcul de la susceptibilité, on reporte la variation d'énergie associée au processus de diffusion considéré, ainsi que le facteur de cohérence et le produit des probabilités d'occupation des états finaux et initiaux.**

On est donc maintenant capable de calculer les différentes fonctions de réponse de l'état supraconducteur dans l'approche BCS. Nous illustrerons notre propos en nous intéressant au cas de la susceptibilité magnétique (celui-ci sera repris dans les chapitres suivants) et au cas de la relaxation de spin nucléaire.

### Cas de la susceptibilité magnétique

Pour la susceptibilité magnétique, le champ magnétique se couple au spin de l'électron, on a donc  $B_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} = -B_{-\mathbf{k},-\mathbf{k}'}$ , on se trouve alors dans le cas (II) avec  $B_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} = -\mu_e H(\mathbf{k} - \mathbf{k}')$ , où  $H(\mathbf{q})$  représente alors la transformée Fourier du champ magnétique. Si l'on suppose que la symétrie d'inversion est respectée, alors  $E_{-\mathbf{k}-\mathbf{q}} = E_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}$ . L'expression se simplifie grâce à  $f(-E_{\mathbf{k}}) = 1 - f(E_{\mathbf{k}})$ , la susceptibilité s'écrit donc :

$$\chi(\mathbf{q}) = -2\mu_e^2 \sum_{\mathbf{k}} ((u_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} u_{\mathbf{k}} + v_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} v_{\mathbf{k}})^2 \frac{f(E_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}) - f(E_{\mathbf{k}})}{E_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - E_{\mathbf{k}}} + (u_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} v_{\mathbf{k}} - v_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} u_{\mathbf{k}})^2 \frac{1 - f(E_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}) - f(E_{\mathbf{k}})}{E_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} + E_{\mathbf{k}}}) \quad (1.10)$$

Dans le cas d'un champ magnétique uniforme :  $H(\mathbf{q}) = H_0 \delta(\mathbf{q})$ , l'expression de la susceptibilité uniforme dans la phase supraconductrice se simplifie en :  $\chi_s(\mathbf{q}) = -2\mu_e^2 \sum_{\mathbf{k}} \frac{df(E_{\mathbf{k}})}{dE_{\mathbf{k}}}$ . Ce résultat est en parfait accord avec les mesures de Yosida [15] reportées sur la Fig.1.1.c). Le fait le plus surprenant est que la susceptibilité est nulle à basse température. Dans l'approche BCS, cela correspond au fait que dans l'état fondamental les électrons sont appariés en paires avec un état de spin  $S=0$ .

### Cas du temps de relaxation du spin nucléaire

Historiquement, ce sont les mesures RMN de Hebel et Slichter qui ont montré la pertinence de la théorie BCS[16, 17]. Dans les métaux, le temps de relaxation nucléaire vient principalement de l'énergie d'échange des électrons au niveau de Fermi. Ainsi, on s'attend à une différence dans le temps de relaxation nucléaire entre la phase supraconductrice et la phase normale. Le temps de relaxation  $T_1$  est inversement proportionnel à l'opérateur densité de spin  $S_z(0) = u(0) \sum_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} c_{\mathbf{k}',\uparrow}^\dagger c_{\mathbf{k},\uparrow} - c_{-\mathbf{k}',\downarrow}^\dagger c_{\mathbf{k},\downarrow}$ . Comme dans le cas de la susceptibilité magnétique, on se trouve dans le cas (II)[4, 17]. La seule différence est que l'on somme aussi sur  $\mathbf{k}'$ . De la même façon que pour la susceptibilité magnétique, on peut dériver le rapport entre le temps de relaxation dans la phase supraconductrice et la phase normale.

$$\frac{R_s}{R_n} = -2 \int dE n(E) \left(1 + \frac{\Delta^2}{E^2}\right) \frac{df(E_{\mathbf{k}})}{dE_{\mathbf{k}}} \quad (1.11)$$

Hebel et Slichter ont été les premiers à mesurer le temps de relaxation du spin du noyau dans l'état supraconducteur de l'aluminium [16, 17]. Le rapport des temps de relaxation présente une évolution tout à fait singulière : à mesure que la température décroît le rapport augmente jusqu'à  $T=0.8T_c$  puis chute à

## 1 Introduction

zéro. Ce maximum est souvent référencé comme le pic d'Hebel et Slichter. Comme on peut le voir sur la Fig.1.1.d) (d'après [18]), il est bien décrit par l'Eq.1.1.2 [18]. Le pic d'Hebel et Slichter est une conséquence directe de l'effet des facteurs de cohérence.

Au delà du succès de la théorie BCS pour rendre compte des mesures de susceptibilités magnétiques et du pic d'Hebel et Slichter, c'est finalement l'ensemble de l'aptitude de la théorie BCS à rendre compte de la majeure partie des observations expérimentales qui a établi le succès cette théorie. Cependant, nous proposons dans une dernière partie une analyse critique de la théorie BCS.

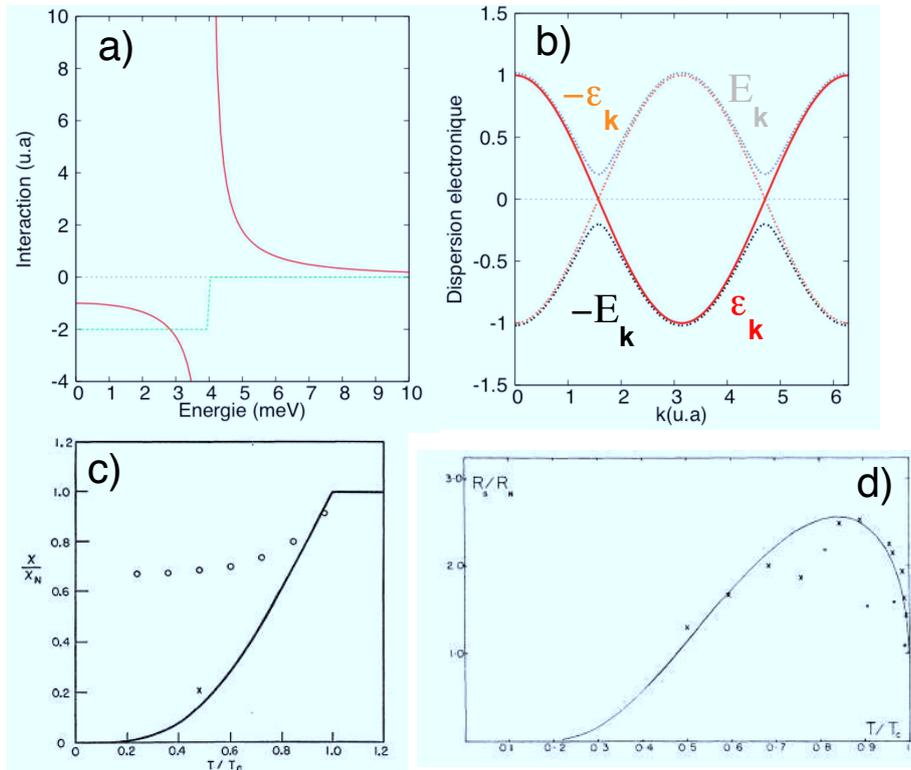


FIG. 1.1: La théorie BCS quelques concepts : a) Schéma de l'interaction effective entre deux électrons via l'interaction électron-phonon (en rouge celle déduite de la description semi-classique, en vert approximation utilisée dans la théorie BCS) b) Schémas de la dispersion électronique dans la phase normale (en rouge) et dans la phase supraconductrice (en vert) c) Rapport de la susceptibilité de la phase supraconductrice et de la phase normale, les points croix correspondent aux valeurs expérimentales d'après [15]. d) Rapport des temps de relaxation dans la phase supraconductrice et la phase normale pour l'Al. Les points correspondent aux mesures, la ligne correspond à la prédiction BCS d'après [18].

### 1.1.3 Analyse critique de la théorie BCS

#### Les raisons d'un succès

L'idée première de la théorie BCS est basée sur la formation de paires d'électrons. Bien que cette hypothèse soit valide lorsque l'on considère deux électrons à la surface de Fermi d'un métal, on peut s'interroger sur sa généralisation à l'ensemble de la surface de Fermi. En effet, la théorie BCS traite de façon indépendante les paires de Cooper alors qu'à priori ces paires de Cooper sont toutes "mêlées" les unes aux autres. La question est donc de savoir pourquoi l'approche de champ moyen que nous avons discutée marche t-elle si bien ?

Dans une approche gaussienne des fluctuations du paramètre l'ordre, le modèle gaussien reste valable tant que la longueur de corrélation ( $\epsilon(T)$ ) est petite par rapport à la longueur de Ginsburg (noté  $\epsilon_G$ ), c'est-à-dire la longueur de portée des interactions entre les fluctuations [10]. Dans le cas des supraconducteurs,  $\epsilon_G$  est de l'ordre des rayons des paires de Cooper (à savoir  $100\text{\AA}$ ) [10]. Cette distance est très grande devant la distance électron-électron, ce qui signifie que même près de la température de transition  $T_c$ , le modèle gaussien et donc le modèle de champ moyen décrivent les fluctuations de manière satisfaisante. Le succès de la théorie BCS réside ainsi dans la grande valeur des longueurs de corrélation des paires de Cooper.

#### Au-delà de la théorie BCS : l'approche couplage fort

Bien que la théorie BCS permette de comprendre qualitativement la plupart des phénomènes associés à la supraconductivité, certaines déviations existent entre les modèles et les expériences. On peut en citer deux : La première est le lien entre l'amplitude du gap supraconducteur à température nulle et  $T_c$ . Dans le cadre BCS, on attend un rapport de  $2\Delta(0)/k_B T_c = 3.53$ . Cependant, ce rapport passe à 4.3 pour le Plomb et à 4.6 pour le Mercure [19]. Une seconde déviation observée est liée à l'évolution en température du champ critique. Selon la théorie BCS,  $H_c = H_0(1 - (T/T_c)^2)$ . Néanmoins, dans les cas du Plomb et du Mercure, la concavité est opposée [20]. Pour comprendre ces déviations, il faut aller plus loin que l'approximation réalisée sur le potentiel attractif  $V_{eff}$  et tenir compte de la forme précise du spectre phononique de chacun des éléments, ainsi que de la nature dynamique de l'interaction. Un tel traitement est réalisé dans le cadre de la théorie de couplage fort Migdal-Eliasherberg.[9, 21, 22].

#### Quelle température critique maximale ?

Finissons cette brève revue de la théorie BCS en concluant sur la température critique maximale que l'on peut déduire dans le cadre de cette théorie. Selon la théorie BCS,  $T_c$  est donnée par :

$$T_c = 0.85\Theta_D \exp\left(-\frac{1}{N(0)V}\right)$$

Dans le cas d'un métal tridimensionnel, on s'attend typiquement à une  $T_c$  de l'ordre de quelque dizaine de K [23]. Partant de l'équation ci-dessus différents types de recherches ont été réalisés pour trouver des composés de grande valeur de  $T_c$ . En particulier, les chimistes se sont intéressés à des composés présentant une forte densité d'état au niveau de Fermi et un fort couplage électron-phonon. C'est dans ces conditions que Bednorz et Müller ont commencé à s'intéresser aux oxides contenant des métaux de transitions avec des orbitales  $e_g$  partiellement remplies tels que :  $Ni^{3+}$ ,  $Fe^{4+}$  ou  $Cu^{2+}$  présentant un fort effet Jahn-Teller [24].

## 1.2 Les supraconducteurs à haute température critique

La découverte de la supraconductivité dans les cuprates [1] et l'augmentation rapide de la température de transition au cours des années 1986 et 1987, passant au-dessus de la température de l'azote liquide [25], ont

## 1 Introduction

suscité un grand intérêt au sein de la communauté de la matière condensée. En effet, avant cette découverte, la température critique maximale culminait à 23K depuis plusieurs décennies. La découverte de Bednorz et Müller n'est pas seulement spectaculaire car les valeurs des  $T_c$  atteintes dans ces composés sont grandes, mais aussi car cette supraconductivité apparaît dans les oxydes de cuivre céramiques qui sont typiquement des isolants. Clairement, un nouveau mécanisme d'appariement supraconducteur peut être attendu [26].

Dans cette partie, nous proposons dans un premier temps une présentation du diagramme de phase et de la structure électronique des supraconducteurs à haute température critique (notés SHTC). Bien que la supraconductivité dans ces composés semble originale, il convient de s'interroger sur la pertinence de la théorie BCS pour sa description. Cette interrogation nous amènera alors à discuter la nature de la phase normale ainsi que les divers scénarios proposés pour décrire l'instabilité supraconductrice dans ces composés. On s'intéressera plus particulièrement dans une dernière partie au rôle ainsi qu'à la nature des corrélations antiferromagnétiques (notées AF).

### 1.2.1 Présentation des SHTCs

Toutes les familles de composés à haute température critique ont en commun la même structure de base : celle de plans  $\text{CuO}_2$  superposés les uns aux autres. Ces composés peuvent être dopés, et en fonction du dopage le nombre de porteurs dans les plans  $\text{CuO}_2$  varient. Tous ces composés sont caractérisés par un même diagramme de phase que nous reportons sur la Fig.1.2 a).

#### Diagramme de phase

A dopage nul, ces composés sont isolants et sont classés dans la catégorie des isolants de Mott [26]. Selon la théorie des bandes, le système devrait être un métal. Il est en fait isolant à cause de la forte répulsion électron-électron. Une discussion détaillée de cette phase sera proposée dans la section suivante.

Quand le système est dopé, les trous mobiles altèrent fortement les corrélations AF, l'ordre AF disparaît typiquement pour 2 à 4% de trous dans la matrice AF. Même si l'ordre à longue distance disparaît, le système reste isolant et de fortes corrélations AF à courte portée sont encore présentes. À basse température, quand les trous commencent à se localiser, la dynamique de spin se gèle et donne alors lieu à un état de verre de spin.

**La phase supraconductrice** Au dessus d'un dopage de 5 à 6% de trous, le système devient métallique et supraconducteur à très basse température. À mesure que le dopage augmente, la température critique augmente dans un premier temps, et sature à une valeur maximale autour d'un dopage de 15% et puis décroît. Le dopage pour lequel la température critique est maximale est appelé dopage optimal. De part et d'autre du dopage optimal, on définit la phase sous dopée où la  $T_c$  augmente à mesure que l'on dope, et la phase surdopée où la  $T_c$  diminue quand on dope le système. A travers le diagramme de phase, la température critique supraconductrice a une dépendance en forme de dôme centré au dopage optimal.

L'état métallique au dessus de  $T_c$  fait l'objet de nombreuses études et présente de nombreuses propriétés atypiques qui n'ont à ce jour été rencontrées que dans ce type de matériaux. Deux parties du diagramme de phase sont singulières, la phase sous dopée et la phase se trouvant au niveau du dopage optimal. La région anormale dans la phase sous dopée est appelée phase de *pseudogap*, la région anormale au niveau du dopage optimal est appelée phase de *métal étrange* (voir 1.2 a)).

**La phase de métal étrange** Comme son nom l'indique, cette phase se caractérise par un état métallique présentant des propriétés étranges. Dans une approche de type liquide de Fermi pour un système bi-

dimensionnel, la partie imaginaire de l'énergie propre des électrons (nommée aussi partie imaginaire de la "self énergie"), noté  $\Sigma''_{FL}$ , se met sous la forme  $\Sigma''_{FL}(\omega) \approx \omega^2 \log \omega$ , la résistivité déduite est alors linéaire en température et le nombre de porteur est indépendant de la température. Dans le cas de la phase étrange, la partie imaginaire de l'énergie propre est linéaire avec l'énergie, la résistivité est linéaire en fonction de la température, la constante de Hall augmente à mesure que la température diminue. Ces quelques éléments sont souvent cités comme exemples du comportement non liquide de Fermi de la phase métal étrange.

**La phase de pseudogap** La phase de pseudogap se caractérise par la suppression partielle des excitations de basse énergie tant dans le canal de charge que dans le canal de spin en dessous d'une certaine température  $T^* > T_c$  [27, 28, 29]. Bien que toutes les techniques expérimentales ne donnent pas exactement les mêmes valeurs pour  $T^*$ , ces valeurs sont souvent très proches et leurs évolutions en dopage sont similaires : à mesure que le dopage augmente,  $T^*$  diminue. Son origine ainsi que son interprétation ne font actuellement pas consensus. En effet, comme on le verra, pour certains cette phase correspond à une transition de phase et pour d'autres à une phase de croisement (traduit de l'anglais "cross-over") [27].

**La phase surdopée** La situation semble en revanche un peu plus simple dans la phase surdopée. En effet, les mesures de résistivité réalisées sur le Tallium indiquent une dépendance en  $T^2$  [30]. Les mesures de susceptibilité indiquent un comportement de type Pauli [31] et les mesures de photo-émission résolue en angle (notée ARPES de l'anglais "Angle Resolved Photo Emission Spectroscopy") [32] et les mesures des oscillations de la magnéto résistance résolue en angle (notée AMRO de l'anglais "Angle MagnetoResistance Oscillations") [30, 33] suggèrent la présence de quasiparticules obéissant à la théorie du liquide de Fermi. La phase normale surdopée est donc généralement considérée comme un bon métal.

### Structure électronique à dopage nul

Dans tous les cuprates, la valence du cuivre est 2+, ce qui signifie que son état électronique est dans la configuration  $3d^9$ . Le cuivre est entouré de six atomes d'oxygène formant un octaèdre au centre duquel se trouve l'atome de Cuivre. La distorsion à la structure parfaite de l'octaèdre sépare les orbitales  $e_g$  de façon à ce que l'orbite partiellement occupée de plus haute énergie soit l'orbite  $d_{x^2-y^2}$  (voir Fig.1.2 c). Les lobes de l'orbite  $d_{x^2-y^2}$  pointent directement le long des orbitales  $p$  des oxygènes voisins, formant ainsi une forte liaison covalente avec un paramètre de saut de l'orbite  $p$  vers l'orbite  $d$ , noté  $t_{pd}$  [26, 34]. A dopage nul, ces composés sont isolants et sont classés dans la catégorie des isolants de Mott. Selon la théorie des bandes, le système devrait être un métal. Il est en fait isolant à cause de la forte répulsion électron-électron. La structure électronique est décrite par un modèle à trois bandes, où dans chaque plaquette  $\text{CuO}_2$  on a l'orbitale du cuivre  $d_{x^2-y^2}$  et les deux orbitales  $p$  de l'oxygène. L'orbitale de cuivre est occupée par un seul électron alors que celle de l'oxygène est occupée par deux électrons, mais ses états sont hybridés à cause du terme de saut  $t_{pd}$ . La valeur de  $t_{pd}$  est grande et est de l'ordre de 1.5eV [35]. En fait, un mélange entre les orbitales des deux oxygènes existe aussi grâce à un terme  $t_{pp}$  non nul [36, 37], de l'ordre de 0.65eV [35]. Cependant, l'énergie la plus importante dans le système est l'énergie de répulsion Coulombienne sur le site du cuivre, noté  $U_d$  de l'ordre de 9.5eV [35]. Pour décrire cette énergie de répulsion, il est plus facile de partir d'une description en terme de trous : une représentation schématique est proposée sur la Fig.1.2 c. Le cuivre en configuration  $d^9$  est représenté par une énergie  $E_d$  occupée par un seul trou avec un spin  $S=\frac{1}{2}$ . L'orbitale  $p$  de l'oxygène est vide et se trouve à une énergie  $E_p$  plus grande que  $E_d$ . L'énergie pour doubler l'occupation du niveau d'énergie  $E_d$  (menant ainsi à une configuration  $d^8$ ) est notée  $U_d$  qui est très grande et peut être considérée comme infinie. L'énergie d'excitation la plus basse du système correspond au transfert d'une charge d'un trou de l'orbitale  $d$  vers l'orbitale  $p$  avec une amplitude  $-t_{pd}$ . Si  $E_p - E_d$  est suffisamment large comparée à  $t_{pd}$ , le trou formera un moment local sur le site du cuivre. Dans le schéma de Zaanen et al. [38], cela fait

## 1 Introduction

référence à un isolant à transfert de charge. Dans ce cas là,  $E_p - E_d$  joue le rôle du terme de Hubbard effectif, noté  $U$ , dans un modèle d'isolant de Mott à une bande. Expérimentalement, un gap de 2eV est observé et interprété comme une excitation de transfert de charge. Tout comme dans un isolant de Mott à une bande, où le saut virtuel pour avoir une double occupation donne un terme d'interaction d'échange  $J\mathbf{S}_1\mathbf{S}_2$  où  $J = \frac{4t^2}{U}$ , le moment local sur le site voisin du cuivre préfère être aligné AF parce que les deux spins peuvent ainsi sauter "virtuellement" sur l'orbital d'énergie  $E_p$ . Dans ce modèle effectif à une bande, si l'on ignore l'énergie  $U_p$  pour la double occupation de l'orbite p avec des trous, le terme de saut effectif entre deux cuivres est alors donné par  $t = \frac{t_{pd}^2}{E_p - E_d}$  l'intégrale d'échange s'écrit alors :

$$J \approx \frac{t_{pd}^4}{(E_p - E_d)^3}$$

. La faible valeur du gap de transfert de charge ( $E_p - E_d$ ) fait que la valeur du terme d'échange est attendue grande. C'est effectivement le cas expérimentalement. Les mesures Raman qui sondent les excitations à deux magnons [39] et les mesures de diffusion inélastique de neutrons [40, 41] qui permettent de remonter à la dispersion des magnons indiquent une valeur de  $J$  de l'ordre de 100 à 150meV en fonction du système considéré. Cette valeur de  $J$  est particulièrement grande. On retiendra donc qu'à dopage nul, les composés SHTC sont *des isolants de Mott ordonnés antiferromagnétiques de spin  $S=1/2$* .

### Trou de dopage

Tout le problème des cuprates consiste donc à comprendre quel est l'effet du dopage en trous sur les plans  $\text{CuO}_2$ . Encore aujourd'hui, cette question fait l'objet de nombreux débats. Différents types d'approches ont été développés au cours des années pour traiter de problème. Un certain nombre de théories considèrent le modèle à trois bandes comme le bon point de départ pour la description des supraconducteurs à haute température critique [42, 43]. Néanmoins, la description complète du déplacement des trous dans un modèle à trois bandes est compliquée [26].

A cause de cette difficulté, de nombreux modèles réduisent ce modèle à trois bandes à un modèle effectif à une bande. L'idée essentielle est que le trou de dopage résonne sur les quatre oxygènes entourant l'atome de cuivre et le spin du trou de dopage se combine avec le spin de l'atome de cuivre pour former un état singulet. Telle est l'idée du singulet Zhang-Rice [44]. Le singulet Zhang-Rice peut sauter d'un site à un autre. Puisque ce saut est un processus en deux étapes, le saut effectif (noté  $t$ ) associé au déplacement du singulet Zhang-Rice est de l'ordre de  $t_{pd}^2 / (E_p - E_d)$ . Le modèle à trois bandes dopé en trous peut donc se simplifier par un modèle à une bande sur un réseau carré d'atome semblable avec un terme de saut  $t$  donné précédemment et avec  $E_p - E_d$  qui joue le rôle analogue de  $U$ . Le modèle se réduit alors au modèle de Hubbard à une bande décrit par l'Hamiltonien suivant :

$$H = - \sum_{i,j,\sigma} t_{i,j} c_{i,\sigma}^\dagger c_{j,\sigma} + U \sum_i n_{i,\uparrow} n_{i,\downarrow} \quad (1.12)$$

où  $c_{i,\sigma}^\dagger$  ( $c_{i,\sigma}$ ) sont les opérateurs de création (respectivement d'annihilation), et  $n_{i,\sigma} = c_{i,\sigma}^\dagger c_{i,\sigma}$  est l'opérateur de nombre d'occupation dans l'état  $i$ . Les termes  $t_{i,j}$  correspondent aux termes de saut entre le site  $i$  et le site  $j$ . Suivant le rapport  $U/W$  ( $W=8t$  correspond à la largeur de bande), cet Hamiltonien est traité soit dans la limite couplage fort (c'est à dire  $U \gg W$ ), soit dans la limite couplage faible (c'est à dire  $U \ll W$ ).

Dans la limite de couplage faible, les quasiparticules sont des fermions faiblement corrélés par la répulsion intra-site  $U$ . Les corrélations magnétiques sont traitées comme des perturbations, dans une approximation de type RPA. Les propriétés du système sont alors essentiellement contrôlées par les effets d'emboîtement de la surface de Fermi et par la proximité de la singularité de Van Hove au demi remplissage. Bien que

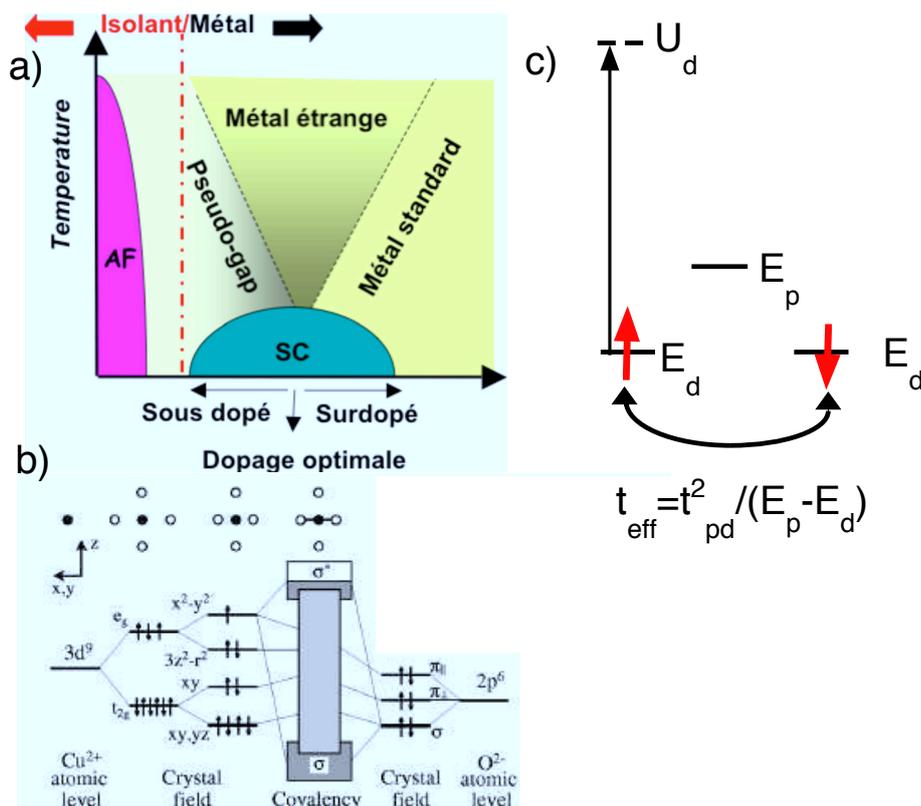


FIG. 1.2: Présentation des SHTC : a) Diagramme de phase des SHTCs (AF : Antiferromagnétisme, SC : Supraconducteur), b) Structure électronique des ions  $\text{Cu}^{2+}$  et  $\text{O}^{-1}$ . Le champ cristallin lève la dégénérescence des orbitales d. L'hybridation entre les orbitales d et p donne les bandes  $\text{CuO}$ . c) Schéma de la structure électronique du cuivre et de l'oxygène dans les plans  $\text{CuO}_2$  dans une approche de type trou.

## 1 Introduction

cette limite ne semble pas très adaptée à la problématique des cuprates, elle semble donner des résultats satisfaisants dans la phase surdopée du diagramme de phase.

Dans la limite de couplage fort, l'Hamiltonien de Hubbard se ramène au modèle t-J[26] :

$$H = P\left(-\sum_{(i,j)} t_{i,j} c_{i,\sigma}^\dagger c_{j,\sigma} + J \sum_{(i,j)} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j - \frac{1}{2} n_i n_j\right) P$$

où P est l'opérateur de projection qui restreint l'espace de Hilbert où la double occupation d'un site est interdite. Des calculs numériques partant du modèle de Hubbard à trois bandes suggèrent un bon recouvrement avec le modèle de Hubbard à une bande et le modèle  $t - t' - J$  avec des paramètres typiques  $J=128\pm 5$  et un rapport  $J/t$  de l'ordre de  $1/3$  [26] (le terme  $t'$  correspond au terme de saut vers les sites  $2^{eme}$  voisin plus proche). Dans ce type d'approche, le problème réside alors dans le traitement du modèle  $t - J$ , on pourra par exemple se référer à la revue de P.Lee sur le sujet.

En fait, les cuprates sont souvent présentés comme étant un régime intermédiaire où  $U \approx 8t = W$ . Il est intéressant de noter que dans cette limite les traitements numériques du modèle de Hubbard dans l'approche couplage fort et dans l'approche couplage faible donnent des résultats assez similaires [45, 46].

Il est clair que le diagramme de phase de ces composés est beaucoup plus compliqué que dans le cas des composés décrits par la théorie BCS. En effet, la supraconductivité dans ces composés n'est qu'une partie du problème dans ce diagramme de phase. C'est finalement le diagramme de phase entier qui pose problème.

### 1.2.2 Une supraconductivité non conventionnelle

Avant de décrire de façon précise les spécificités des SHTC tant dans la phase normale que dans la phase supraconductrice, nous voulons ici discuter la supraconductivité dans ces composés afin de voir dans quelle mesure elle peut être décrite par la théorie BCS.

**Des valeurs  $T_c$  impressionnantes** Pour certains physiciens de la matière condensée, le succès de la théorie BCS et de son raffinement sous la forme de la théorie de couplage fort Eliassberg [22] avaient fait de l'excellent traité sur la supraconductivité édité par R.D.Parks [9] en 1969 "*the last nail in the coffin (of superconductivity)*". On imagine assez bien quel choc a pu être la mise en évidence de composés ayant des températures critiques de 130K ( même 160K sous une pression de 250 kbar) dépassant ainsi la limite supérieure prédite par la théorie BCS. On reporte dans Tab.1.2, les valeurs de  $T_c$  maximales pour les principales familles de cuprates supraconducteurs.

Composé	$T_c^{max}$	Réf
$\text{La}_{2-x}(\text{Ba,Sr})_x\text{CuO}_4$	40K	[1]
$\text{YBa}_2\text{CuO}_{6+x}$	91K	[25]
$\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ (Bi-2212)	91K	[47]
$\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$	102K	[48]
$\text{HgBa}_2\text{CuO}_{4+\delta}$	95K	[49]

TAB. 1.2: **Température critique maximale pour les principales familles de supraconducteurs à haute température critique étudiées. On s'est limité aux familles étudiées par diffusion de neutrons**

Les grandes valeurs de  $T_c$  dans ces composés invitent à s'interroger sur la validité de la théorie BCS. Suivant D.Scalapino dans [9], la théorie BCS peut être mise en défaut d'au moins trois façons :

1. L'hypothèse de l'appariement des électrons n'est plus valide
2. La description en termes de quasiparticules tant dans la phase normale que dans la phase supraconductrice n'est plus applicable
3. La nature de l'interaction entre les quasiparticules responsables de l'appariement n'est pas celle proposée par BCS. En particulier, l'hypothèse d'une interaction instantanée en deux quasiparticules n'est plus valide.

Nous proposons ici de voir en quoi la supraconductivité dans les SHTCs met en défaut la théorie BCS. Pour cela, nous étudierons les trois propositions ci-dessus dans le cas des SHTCs.

**Des paires de Cooper bien présentes** Rapidement après la découverte des supraconducteurs à haute température, différentes mesures ont confirmé la présence de paires de Cooper dans l'état supraconducteur des SHTCs. Tout d'abord, des mesures de flux dans l'état supraconducteur du composé  $\text{YBa}_2\text{CuO}_{6+x}$  dans un champ magnétique statique [50] ont montré que le flux était quantifié avec pour quantum de flux :  $\hbar/2e$ , ce qui signifie que les porteurs de charge dans l'état supraconducteur des SHTCs sont bien des paires d'électrons comme dans le cas BCS. Ce résultat a été confirmé par l'observation de l'effet Josephson dans des jonctions à base de cuprates [51]. Les longueurs de cohérence des paires de Cooper dans le plan sont de l'ordre de quelques dizaines d'Å, c'est à dire 10 à 100 fois plus petites que dans les supraconducteurs classiques [52, 53]. Le long de l'axe  $c$ , ces longueurs de cohérence sont plus faibles, de l'ordre de 4Å. Ces mesures confirment la forte anisotropie de ces matériaux. Enfin, des mesures de RMN de l'atome  $^{89}\text{Y}$  au dopage optimal du composé  $\text{YBa}_2\text{CuO}_{6+x}$  ont permis de montrer l'existence d'un état singulet de spin sans pouvoir conclure quant à la symétrie du gap [54].

**Symétrie du gap supraconducteur** Comme on l'a vu dans la sous section précédente, les paires de Cooper sont dans un état de symétrie  $s$  singulet de spin dans les supraconducteurs conventionnels. Le paramètre d'ordre supraconducteur est alors isotrope. Dans le cas des SHTCs, il est maintenant bien établi que le paramètre d'ordre supraconducteur est anisotrope avec deux caractéristiques majeures : le gap supraconducteur possède des noeuds et le gap change de signe le long de la surface de Fermi. Expérimentalement, les mesures de longueur de pénétration dans l'état supraconducteur de Hardy et al [55] suggéraient l'existence de noeuds dans le gap supraconducteur. Ce résultat a été confirmé par les expériences sensibles à l'amplitude du gap supraconducteur telles que les mesures spectroscopiques comme l'ARPES [34] qui ont clairement mis en évidence la présence de noeuds dans le gap supraconducteur à 45° des axes cristallographiques ( $a^*$  et  $b^*$ ). Plus récemment, ces résultats ont été confirmés par des mesures de conductivité thermique [56] qui indiquent la présence de quasiparticules non appariées dans la phase supraconductrice. Néanmoins, toutes ces mesures ne peuvent pas distinguer le cas d'un gap de symétrie  $s$  anisotrope du cas d'un gap de symétrie  $d$ . Afin de distinguer ces deux hypothèses, Tsuei et al. [57] ont réalisé une expérience de tricristal sensible à la phase du paramètre d'ordre supraconducteur. En effet, la phase du gap supraconducteur de symétrie  $d$  varie de  $\pi$  lors d'une rotation de 90° alors que dans le cas d'un gap de symétrie  $s$  anisotrope, le gap ne change pas de signe. Le résultat des expériences de Tsui a permis d'établir l'existence d'un changement de signe du gap supraconducteur. Ces mesures ont permis d'établir la symétrie  $d$  du gap supraconducteur. On retiendra de cette courte revue que l'état supraconducteur des SHTCs se caractérise pas des paires de Cooper dans un état singulet de spin de symétrie  $d$ , l'hypothèse de l'appariement des électrons en paires de Cooper n'est donc pas à remettre en cause.

**Les facteurs de cohérence** La mise en évidence de la cohérence des particules dans l'état supraconducteur a été réalisée en particulier par des expériences de J.Campuzano [58]. Elles ont montré que dans l'état supraconducteur la branche de dispersion des trous présente un repliment quand elle croise le niveau de

## 1 Introduction

Fermi, comportement attendu dans le cas de la théorie BCS (voir Fig.1.1). Les récentes améliorations de la résolution en ARPES ont permis une vérification de la cohérence des trous et des particules dans l'état supraconducteur incluant les facteurs de cohérence BCS. On reporte le résultat principal sur la Fig.1.3 a). Sur cette figure, le mélange entre les trous et les particules dans l'état supraconducteur est clairement visible dans la dispersion des trous comme dans la dispersion des particules. Les deux dispersions sont symétriques par rapport à  $E_F$  et présentent un repliment typique pour  $k = k_f$ . Matsui et al [59] ont aussi étudié l'intensité spectrale des deux bandes en fonction de  $\mathbf{k} - \mathbf{k}_f$ . Ces poids correspondent aux facteurs de cohérence dans la théorie BCS, ils sont représentés sur la Fig.1.3a)c). Le résultat est en bon accord avec la théorie BCS. Les valeurs expérimentales sont très proches des valeurs des Eq.1.1 pour un gap de symétrie  $d$  :  $\Delta_{\mathbf{k}} = \Delta_0(\cos(k_x a) - \cos(k_y a))/2$ . Il faut remarquer que la somme au carré des facteurs de cohérence est égale à 1. Comme  $|u_{\mathbf{k}}|^2$  et  $|v_{\mathbf{k}}|^2$  sont déterminés indépendamment, cette condition n'est pas imposée mais elle est une vérification expérimentale de la règle de somme :  $|u_{\mathbf{k}}|^2 + |v_{\mathbf{k}}|^2 = 1$ . Cette étude démontre donc que les pics de quasiparticules observés près de  $(\pi, 0)$  sont des quasiparticules de type Bogoliubov décrites par les facteurs de cohérence  $u_{\mathbf{k}}$  et  $v_{\mathbf{k}}$ .

**Evolution du gap supraconducteur en fonction du dopage** Dans les supraconducteurs conventionnels, le gap  $\Delta$  est proportionnel à la transition supraconductrice  $T_c$ , typiquement le rapport  $2\Delta/k_B T_c$  varie entre 3.5 à 4.3. L'un des résultats les plus surprenants dans les SHTCs est le fait que le gap tel qu'il est mesuré par microscopie par effet tunnel (noté STM de l'anglais Scanning Tunneling Microscopy) et d'autres techniques comparables (ARPES ou encore conductivité thermique [56]) n'a pas la même dépendance en dopage que l'évolution de la température critique. On reporte sur la Fig.1.3 b) l'évolution de l'amplitude du gap supraconducteur en fonction du dopage d'après les mesures STM [60]. Dans la phase surdopée, le gap augmente quand  $T_c$  augmente avec typiquement un rapport  $2\Delta/k_B T_c$  de l'ordre de 4,5. Par contre, dans la phase sous dopée, le gap décroît quand  $T_c$  diminue et l'on peut obtenir des valeurs de  $2\Delta/k_B T_c$  de l'ordre de 8 à 10.

**Conclusion** Cette courte revue des propriétés de l'état supraconducteur des SHTCs invite à plusieurs conclusions. Tout d'abord, les hautes valeurs de  $T_c$  dans ces composés, la symétrie non conventionnelle  $d$  du gap supraconducteur et le lien singulier entre l'amplitude du gap et la  $T_c$  démontrent que la supraconductivité dans ces composés n'est pas conventionnelle. Néanmoins, ceci n'implique pas que le formalisme et les concepts introduits dans le cadre de la théorie BCS ne sont pas applicables à ces matériaux. En effet, les concepts de paires de Cooper, gap et facteur de cohérence sont toujours de rigueur. Finalement, ce n'est pas la nature de l'état fondamental de l'état supraconducteur dans les SHTCs mais le moteur de l'interaction  $V_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'}$  responsable de la supraconductivité et de l'équation du gap qui posent problème. Intéressons nous maintenant à la proposition (2), à savoir la nature de la phase normale des SHTCs.

### 1.2.3 Nature de la phase normale

L'un des pré-requis de la théorie BCS [4] est l'hypothèse que la phase normale est un métal avec des quasiparticules bien définies. Dans le cas des SHTCs, la question de l'existence de quasiparticules dans la phase normale reste encore à ce jour un problème. Si la situation est relativement claire dans la phase surdopée, elle est en revanche plus confuse au niveau du dopage optimal et dans la phase sous dopée. Nous proposons dans un premier temps une présentation phénoménologique de la phase de pseudogap pour ensuite aborder la question de la présence des quasiparticules dans la phase normale. On terminera enfin cette section par différentes descriptions possibles de la phase de pseudogap.

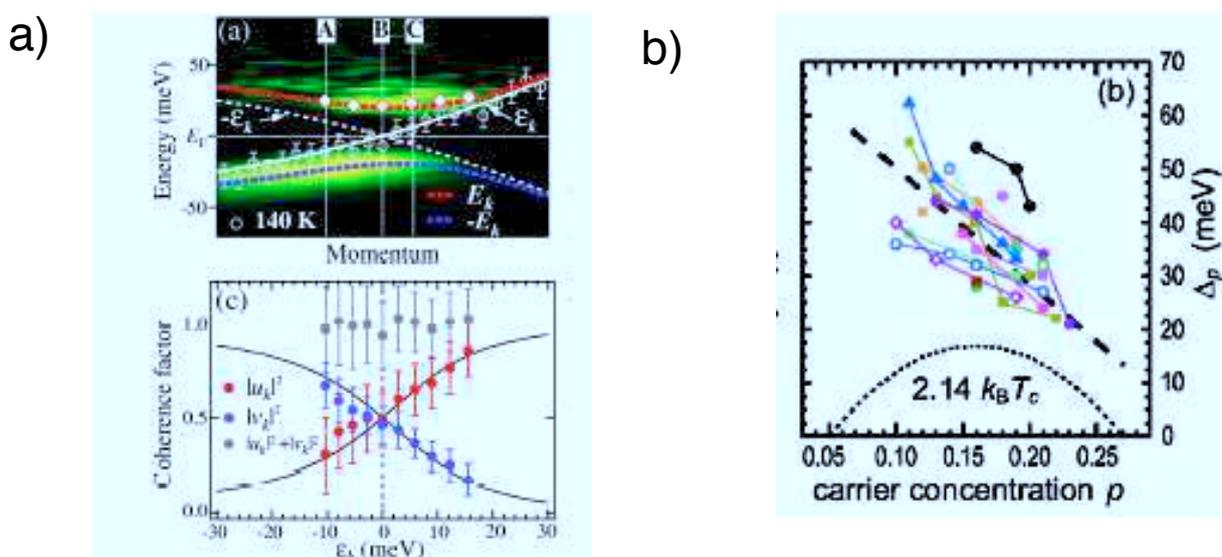


FIG. 1.3: a) Intensité mesurée en ARPES pour un composé surdopé  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$  de  $T_c=108\text{K}$  dans l'état supraconducteur ( $T=60\text{K}$ ) et dans la phase normale ( $T=140\text{K}$ ). Les lignes en pointillés représentent la dispersion dans une approche BCS :  $E_k = \sqrt{\epsilon_k^2 + |\Delta_k|^2}$  où  $\epsilon_k$  est déduit des mesures à haute température (ligne blanche) et où  $|\Delta_k|$  est déduit de la position expérimentale des pics de quasiparticules dans les coupes en énergie. On représente ensuite les facteurs de cohérence tels qu'ils sont déduits de la dispersion mesurée en ARPES b) Amplitude du gap supraconducteur  $\Delta_0$  obtenue par mesures de STM dans le composé  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$  d'après [60]. Pour comparaison, l'équation du gap BCS est représentée en ligne pointillée.

## Phénoménologie de la phase de pseudogap

L'ensemble des mesures suggère que la phase de pseudogap se caractérise par une diminution du poids spectral au niveau de Fermi tant dans le canal de spin que de le canal de charge [28, 27]. La première mise en évidence d'une diminution de poids spectral a été réalisée grâce aux mesures du Knight shift, noté  $K_s$ , par H.Alloul et al [61]. On reporte le résultat d'Alloul et al. sur la Fig. 1.4a). Dans une approche de type liquide de Fermi,  $K_s \approx \rho(E_F)$  où  $\rho(E_F)$  correspond à la densité d'état au niveau de Fermi. On observe pour les échantillons sous dopés une diminution du  $K_s$  avec la température. Plus l'échantillon est sous dopé, plus la température à laquelle l'effet apparaît diminue. Une diminution du poids spectral a aussi été mise en évidence par d'autres sondes expérimentales. Voici une liste non exhaustive, on pourra se référer à [28] pour une discussion plus complète. Les mesures de STM de Renner et al. [62] suggèrent la persistance d'un gap au dessus de  $T_c$ . En effet, la conductivité tunnel en fonction de la tension appliquée permet de sonder la densité d'état autour du niveau de Fermi. A basse température, les spectres ont la forme typique d'un supraconducteur  $d$ -wave avec un minimum autour de  $V=0$  ( $E=E_f$ ) et deux pics de cohérence de part et d'autre de  $V=0$ . Il est remarquable que pour  $T > T_c$ , ce minimum soit toujours présent, il disparaît typiquement autour de 200K pour un échantillon de Bi-2212 de  $T_c=83K$ . Aussi, les mesures de chaleur spécifique (notée  $C_v$ ) de Loram et al [63] indiquent une diminution du poids spectral au dessus de  $T_c$  dans la phase sous dopée. A basse température, la conduction thermique est principalement réalisée par les électrons et elle dépend linéairement de la température :  $C_v = \gamma T$  où  $\gamma$  est proportionnel à la densité d'état. Les mesures de Loram et al. [63] à travers tout le diagramme de phase du composé  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  indiquent une diminution de  $\gamma$  avec  $T$ . Néanmoins, aucune anomalie n'a jamais été reportée dans les mesures de chaleur spécifique, n'indiquant pas la présence d'une transition de phase associée à la phase de pseudogap. Pour finir, on peut aussi citer les mesures de conductivité optique le long de l'axe  $c$  qui montrent une nette diminution du poids spectral au dessus de  $T_c$  dans la phase sous dopée (on pourra se référer en particulier aux résultats de C.Homes [64]).

Quasiment toutes les sondes de la matière sensibles à la densité d'état au niveau de Fermi indiquent l'existence d'une diminution de la densité dans la phase sous dopée des SHTCs pour une température, notée  $T^*$ , supérieure à  $T_c$ . Cependant, la phénoménologie de la phase de pseudogap ne s'arrête pas là puisque les mesures de RMN ont les premières mis en évidence un changement des propriétés autour du vecteur d'onde AF. En effet, les mesures de temps de relaxation du spin nucléaire de l'atome de  $^{63}Cu$  (noté  $1/^{63}T_1$ ) des plans  $CuO_2$  permettent de remonter à la partie imaginaire de la susceptibilité au vecteur d'onde AF. On reporte le résultat de Takigawa et al. [65] sur la Fig.1.4 b). Comme dans le cas de  $K_s$ , on observe une diminution du temps de relaxation à mesure que  $T$  diminue au dessus de  $T_c$ . Dans le cas de la Fig..1.4 b), cette température est de 150K. Il faut noter que les températures d'ouverture du pseudogap au point AF se situent systématiquement à une température inférieure à celle mesurée en  $\mathbf{q} = 0$  (déduite des mesures de  $K_s$ ). Ceci a suggéré à certains auteurs [28] l'existence de deux phénomènes physiques distincts correspondant à deux parties de l'espace réciproque. L'ouverture de la phase de pseudogap a aussi une signature dans les mesures de transport, en particulier dans les mesures de résistivité dans le plan  $CuO_2$ . On reporte les résultats de Ito et al. [66] de l'étude de la résistivité dans le plan  $CuO_2$  pour des échantillons de  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  de  $x=0.35$  à  $x=0.9$ . sur la Fig.1.4 c). L'entrée de la phase de pseudogap se caractérise par un éloignement de la résistivité par rapport à son comportement linéaire de la phase métal étrange. À l'époque, cette diminution de la résistivité avait été interprétée comme l'existence de l'ouverture d'un gap de spin diminuant ainsi la diffusion des électrons par les fluctuations de spin.

La phase de pseudogap se caractérise donc par une diminution du poids spectral au niveau de Fermi mais aussi par une modification du spectre des fluctuations de spin AF. La phase de pseudogap ne peut donc se réduire à un métal simple comme dans le cas de la phase normal des supraconducteurs conventionnels. La nature de la phase de pseudogap fait actuellement grand débat, nous proposons dans la suite de présenter

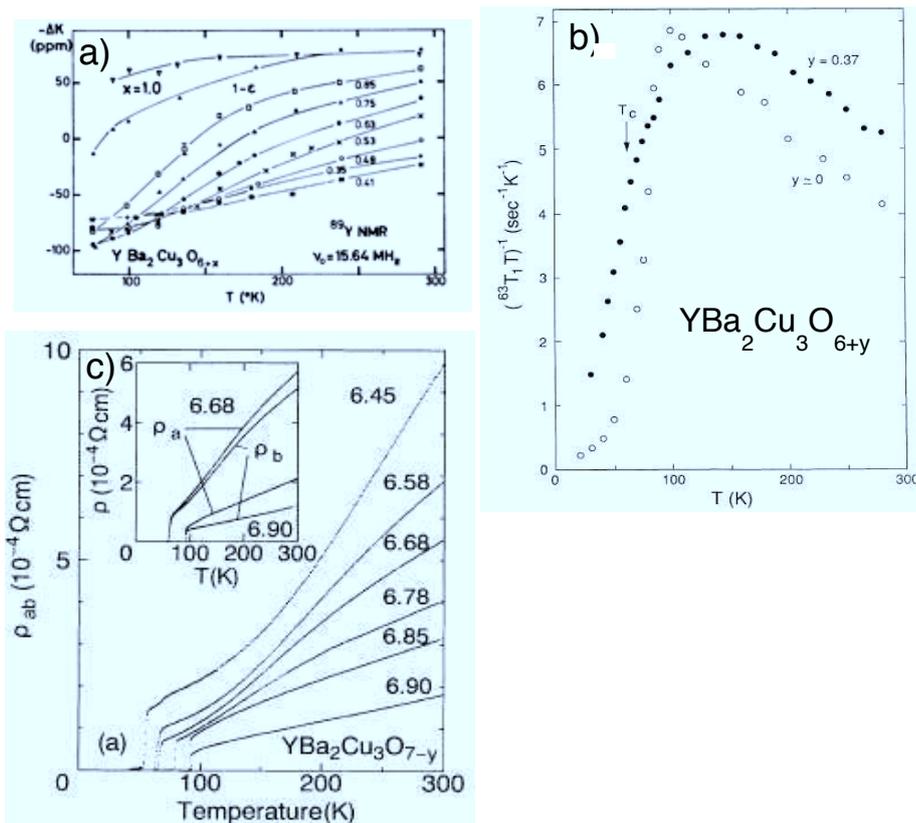


FIG. 1.4: a) Mesure du Knight Shift de l'atome  $^{89}\text{Y}$  dans le composé  $\text{YBa}_2\text{CuO}_{6+x}$  pour dopage variant de  $x=6.35$  à  $x=1$ . b) Temps de relaxation du spin nucléaire  $(T_1 T)^{-1}$  de l'atome de Cu des plans  $\text{CuO}_2$  du composé  $\text{YBa}_2\text{CuO}_{6+y}$  pour  $y=0$  et  $y=0.37$   $T_c=62\text{K}$  d'après [65] c) Mesure de résistivité planaire dans le composé  $\text{YBa}_2\text{CuO}_{6+x}$  du dopage  $x=0.35$  à  $x=6.9$ . d'après [66]

divers descriptions proposées pour la décrire. En particulier, l'une des questions de fond concerne la présence ou non de quasiparticules dans la phase normale des SHTCs.

### Y a-t-il des quasiparticules dans la phase normale ?

La technique la plus directe pour constater la présence de quasiparticules est l'ARPES. Nous proposons dans l'encadré suivant un bref rappel concernant cette technique. Dans le cas des cuprates le système de référence pour cette technique est Bi-2212.

**Principe de la photo-émission résolue en angle (ARPES) :** *En spectroscopie de photoémission, une lumière monochromatique d'énergie cinétique  $h\mu$  (typiquement de l'ordre de 100eV) éclaire la surface d'un solide. L'intensité ainsi que l'énergie cinétique du photoélectron émis sont mesurées. L'intensité mesurée est une fonction de l'énergie et du moment, elle peut être décrite comme :  $I(\mathbf{k}, \omega) = I_0(\mathbf{k}, \omega, \mathbf{k})f(\omega)A(\mathbf{k}, \omega)$  où  $\mathbf{k}=\mathbf{k}_{//}$  est la composante planaire de l'impulsion de l'électron,  $\omega$  est l'énergie de l'électron par rapport au niveau de Fermi et  $A(\mathbf{k}, \omega, \mathbf{k})$  correspond à la fonction spectrale. La fonction spectrale,  $A(\mathbf{k}, \omega, \mathbf{k})$ , est reliée à la fonction de Green (noté  $G(\omega, \mathbf{k})$ ) suivante :*

$$A(\omega, \mathbf{k}) = -\frac{1}{\pi} \text{Im}G(\omega, \mathbf{k}) = \frac{-\Sigma''(\omega, \mathbf{k})}{(\omega - \epsilon_{\mathbf{k}} - \Sigma'(\omega, \mathbf{k}))^2 + (\Sigma''(\omega, \mathbf{k}))^2}$$

où  $\Sigma'(\omega, \mathbf{k})$  et  $\Sigma''(\omega, \mathbf{k})$  correspondent respectivement à la partie réelle et imaginaire de la self énergie,  $\epsilon_{\mathbf{k}}$  correspond à la dispersion des électrons sans interaction. Les mesures d'ARPES sont des mesures de surface, elles sont donc bien adaptées aux systèmes de basse dimensionalité tels que les cuprates. Comme toute technique de surface, la qualité des surfaces est cruciale. Ces expériences nécessitent donc une préparation de l'échantillon et une réalisation de l'expérience sous pression contrôlée (de l'ordre de  $10^{-7}$  torr). Typiquement la résolution en énergie varie de 8 à 25meV et celle en moment est de l'ordre de  $0.01$  à  $0.02\text{\AA}^{-1}$

Il existe pour le composé Bi-2212 un consensus général en faveur d'une surface de Fermi (SF) à  $T=300\text{K}$  de type trou centrée autour du point  $(\pi, \pi)$  pour des échantillons sous-dopés comme pour les échantillons surdopés. Le volume de la SF est en accord avec la densité d'électron, suivant ainsi le théorème de Luttinger [67]. Comme on peut le voir sur la Fig.1.5a), une étude systématique de la SF du composé Bi-2212 à travers le diagramme de phase (de la phase sous dopé, noté UD, pour un échantillon de  $T_c=76\text{K}$  à la phase surdopé, noté OD, pour un échantillon de  $T_c=69\text{K}$ ) a permis de montrer qu'il n'y pas de changement de topologie de la SF sur une vaste gamme de dopage [67]. Néanmoins, certaines études suggèrent une transition vers une SF de type électron pour des échantillons surdopés de  $T_c < 2\text{K}$ [68], d'autres au contraire suggèrent plutôt une transition pour un échantillon surdopé de  $T_c=55\text{K}$ [69]. Quoiqu'il en soit le changement de topologie de la surface de Fermi n'est associé à aucun changement dans la valeur de  $T_c$ . Bien que certains auteurs définissent une surface de Fermi d'après les mesures d'ARPES, la largeur des pics de quasiparticules évoluent fortement avec le dopage et avec la température. Dans la phase supraconductrice, les pics de quasiparticules sont fins. Les mesures dans la phase normale et dans la phase sous dopée suggèrent qu'à mesure que l'on chauffe, le pic de quasiparticules s'élargit, rendant la notion de quasiparticules difficile à appliquer [70] : pour certains les quasiparticules n'existent pas, pour d'autres elles existent mais sont très amorties. Des mesures de résistance de Hall sous très fort champ magnétique ( $H=62\text{T}$ ) dans  $\text{YBa}_2\text{CuO}_{6.5}$  (ortho II) ont récemment apporté de nouveaux éléments [71]. En effet à partir de  $50\text{T}$ , des oscillations quantiques sont présentes. Cette découverte a au moins deux conséquences : elle suggère d'une part l'existence de quasiparticules et

d'autre part suggère qu'il existe une poche d'électron dans la surface de Fermi des cuprates sous dopés ce qui jusqu'à maintenant n'avait jamais été observé par ARPES. Ces dernières mesures ne manqueront pas d'être reproduites et d'alimenter un peu plus le débat sur la nature des quasiparticules et de la surface de Fermi dans la phase de pseudogap des SHTCs.

Même si la notion de quasiparticule reste ambiguë dans les spectre d'ARPES, on peut définir un gap au niveau de Fermi dans la phase sous dopée. L'étude en température suggère qu'à mesure que l'on refroidit, il y a une perte de poids spectral aux points  $(\pi,0)$  et  $(0,\pi)$  [72, 73, 74], la surface formant ainsi des arcs, ("arcs de Fermi")[73, 74]. On représente sur la Fig.1.5 b) et c) la surface de Fermi déduite des mesures d'ARPES pour deux températures pour un échantillon sous dopé de Bi2212 de  $T_c=70K$  d'après [74]. À mesure que l'on refroidit, la taille des arcs diminue jusqu'à se réduire en un point en dessous de  $T_c$  pour laisser place aux gap  $d$ -wave.

Ainsi, la surface de Fermi dans la phase de pseudogap semble se caractériser par la diminution du poids spectral au niveau de Fermi aux vecteurs  $(\pi,0)$  et  $(0,\pi)$ . Cette diminution de poids spectral est en accord avec l'ensemble des mesures discutées dans la partie précédente.

### Quelle description pour la phase normale ?

Les propriétés de la phase de pseudogap peuvent paraître à certains égards encore plus mystérieuses que celle de la phase supraconductrice. Dans la mesure où la supraconductivité est une instabilité de la phase normale, il est clair que la description de l'appariement supraconducteur doit passer par la compréhension de la phase normale (sauf si il existe dans le système plusieurs instabilités électroniques en présence). Nous proposons ici une discussion des diverses approches proposées pour décrire cette phase de pseudogap[27, 29]. Les différentes interprétations théoriques de la phase de pseudogap peuvent se classer en deux groupes. On représente schématiquement sur la Fig.1.5 les deux cas de figures discutés. (i) Le pseudogap est une manifestation d'un ordre, statique ou fluctuant, souvent d'origine magnétique qui se trouve en compétition avec la phase supraconductrice. Dans ce cas, la phase de pseudogap et la phase supraconductrice sont deux phases distinctes. (ii) Alternativement, le pseudogap est décrit comme un précurseur de la phase supraconductrice et reflète les fluctuations de paires au dessus de  $T_c$ . Dans ce cas, la phase de pseudogap correspond à une température de "crossover" correspondant à la formation des paires de Cooper sans cohérence de phase.

De manière générale, la façon dont la phase de pseudogap est décrite est intimement liée à la façon dont la supraconductivité apparaît dans ces modèles. Dans la partie suivante, on propose de rentrer un peu plus dans les détails de ces différentes théories. Cette courte revue de la phase normale nous invite à conclure sur le point (2) : contrairement au cas de la théorie BCS, les SHTCs se caractérisent par une phase normale indiquant de fortes anomalies à un liquide de Fermi. En particulier, l'existence de quasiparticules dans la phase de pseudogap est encore débattue. Intéressons nous maintenant au point (3) c'est-à-dire au moteur de l'instabilité supraconductrice dans les SHTCs.

### 1.2.4 Quel moteur pour l'appariement supraconducteur ?

Dès 1995 [75], D.Scalapino remarquait que différentes approches théoriques des SHTCs pouvaient donner lieu à une supraconductivité de type  $d$ -wave. Nous proposons dans une première partie une brève revue des modèles théoriques donnant lieu effectivement à une supraconductivité de type  $d$ -wave. Comme nous le verrons, l'un des moyens de différencier ces modèles se trouve dans leur aptitude à comprendre les spécificités de la phase supraconductrice (par exemple le spectre des corrélations magnétiques) et de la phase normale (cf section.1.2.3 ).

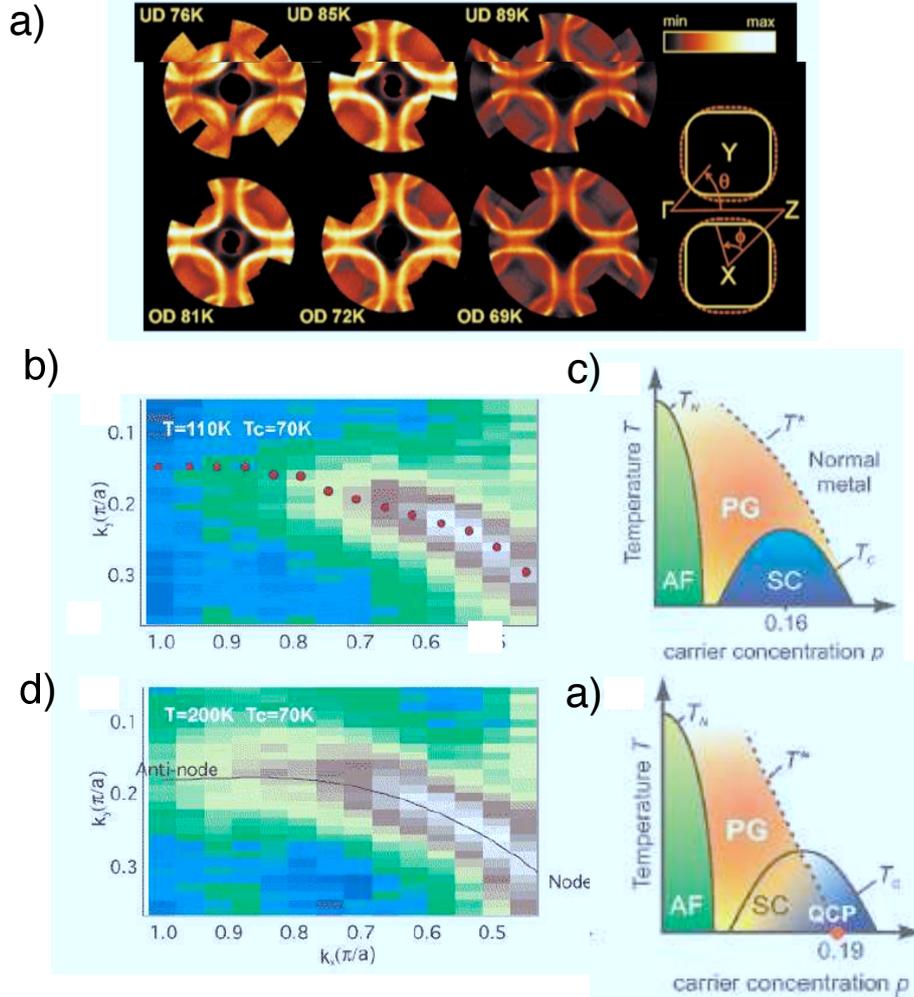


FIG. 1.5: a) Surface de Fermi du cuprate Bi-2212 à  $T=300K$  pour différents dopages : de la phase sous dopée ( $T_c=76K$ ) à la phase surdopée ( $T_c=69K$ ). Les lignes d'intensité maximale indiquent le niveau de Fermi. Diminution du poids spectral au point  $(\pi, 0)$  de la surface de Fermi du composé sous dopé Bi-2212 :  $T=110K$  (b) et  $T=200K$  (d). Deux approches du diagramme de phase des cuprates supraconducteurs : c) la phase de pseudogap est vue comme un précurseur de la phase supraconductrice, d) la phase de pseudogap est vue comme une phase en compétition avec la phase supraconductrice. Ce type de diagramme de phase est caractérisé par l'existence d'un point critique quantique (noté QCP).

### Une brève revue des candidats

On propose ici une brève revue des différents modèles théoriques en présence qui tentent de décrire les SHTC. On verra en particuliers comment chaque modèle décrit la supraconductivité  $d$ -wave et explique les grandes valeurs de  $T_c$  observées.

**Le couplage électron-phonon** Etant donné le succès de la théorie BCS, il convient de commencer notre revue par l'étude du couplage électron phonon comme moteur de la formation des paires de Cooper. La symétrie  $d$ -wave peut paraître incompatible avec une supraconductivité d'origine phononique. Les choses ne sont en fait pas si simples. En effet, il a été proposé que le phonon associé au déplacement des atomes d'oxygènes des plans  $\text{CuO}_2$  le long de l'axe  $c$  ( phonon actif en diffusion Raman dans le canal  $B_{1g}$  [76]) en présence de corrélations AF puissent donner de la supraconductivité  $d$ -wave [77]. Pour ce phonon, le couplage entre la densité électronique et ce phonon  $g(\mathbf{q})$  prend la forme :  $|g(\mathbf{q})|^2 = g_0^2(\cos^2 q_x/2 + \cos^2 q_y)$  [75], l'interaction électron-phonon est alors de la forme :  $V_{ep} = -\frac{2g(\mathbf{q})}{\omega_0}$ ,  $V_{ep}$  est donc moins négative à large  $q$ . En présence de répulsion coulombienne sur site, un terme doit être rajouté :  $V_{ep} = -\frac{2g(\mathbf{q})}{\omega_0} + U$ . Ainsi, la présence de forte interaction peut donner lieu à une interaction attractive donnant lieu à une supraconductivité de type  $d$ -wave[77, 78]. Aucun calcul de  $T_c$  n'a été réalisé dans ce type d'approche. D'un point de vue expérimental, aucun effet isotopique n'a été reporté. Néanmoins, l'absence d'effet isotopique n'est pas nécessairement incompatible avec un rôle joué par les phonons dans l'appariement [79]. Récemment, deux expériences ont suscité l'intérêt de la communauté. La première reporte l'existence d'un changement dans le spectre électronique de haute énergie par la substitution isotopique  $^{16}\text{O}$  par  $^{18}\text{O}$  dans le composé Bi-2212 de dopage optimal[80]. Néanmoins, ce type de mesure n'a pas été reproduit par l'équipe de Dessau et remet en cause le résultat [80]. Aussi, une étude récente de STM a mis en évidence l'existence d'un mode dans le spectre électronique du composé Bi-2212, l'énergie du mode est indépendant du dopage mais change par une substitution isotopique. Il a été proposé que ce mode soit un phonon et qu'il soit relié à la supraconductivité dans ce composé [81]. Néanmoins, d'autres interprétations suggèrent que ce phonon ne joue aucun rôle avec la supraconductivité [82]. Dans l'état actuel des choses, il semble donc qu'il n'y ai pas de preuve évidente du rôle des phonons dans la supraconductivité des SHTCs. Néanmoins, dans la mesure où il existe un couplage entre le spectre électronique et le spectre phononique, l'étude des phonons peut présenter un intérêt, on pourra se référer par exemple à l'étude [83] pour une illustration potentielle.

**Rôle des corrélations AF** La proximité entre les zones de dopage où le système est AF et supraconducteur invite évidemment à considérer que les fluctuations AF soient un candidat possible pour l'appariement supraconducteur [84]. Dans cette approche, on part du modèle de Hubbard à deux dimensions au voisinage du demi remplissage et dans un régime de couplage faible ( $U < W$ , on approche le problème de la phase métallique). D'après [75, 85], l'interaction  $V_{\mathbf{k},\mathbf{k}'}$  est directement liée à la susceptibilité magnétique suivant l'Eq.1.2.4 <sup>1</sup>.  $V_{\mathbf{k},\mathbf{k}'}$  est alors une fonction de l'énergie (on se trouve donc dans la limite Migdal-Eliashberg[21]) :

$$V_{\mathbf{k},\mathbf{k}'}(\omega) = V_{\mathbf{q}}(\omega) \approx \frac{3}{2}I^2\chi(\mathbf{q}, \omega) \quad (1.13)$$

où  $\mathbf{q}=\mathbf{k}-\mathbf{k}'$  et  $I$  le terme d'interaction entre électron ( $U$ ). La présence d'interactions entre électrons contribue à l'amplification de la susceptibilité magnétique  $\chi(\mathbf{q}, \omega)$ . Dans l'approximation RPA,  $\chi(\mathbf{q}, \omega)$  prend la forme

$$\chi(\mathbf{q}, \omega) = \frac{\chi_0(\mathbf{q}, \omega)}{1 - I\chi_0(\mathbf{q}, \omega)} \quad (1.14)$$

<sup>1</sup>cette expression est vrai quelque soit la nature des fluctuations magnétiques : ferromagnétique, antiferromagnétique...

## 1 Introduction

où  $\chi_0(\mathbf{q}, \omega)$  représente la susceptibilité sans interaction. Dans la partie 1.1.2, nous avons dérivé la susceptibilité magnétique statique ( c'est à dire à énergie nulle), il est possible de la même façon que nous l'avons fait de dériver la susceptibilité magnétique à énergie non nulle, on trouve alors que :

$$\begin{aligned} \chi_0(q, \omega) = \sum_k \left\{ \frac{1}{2} \left( 1 + \frac{\epsilon_k \epsilon_{k+q} + \Delta_k \Delta_{k+q}}{E_k E_{k+q}} \right) \frac{f(E_{k+q}) - f(E_k)}{\omega - (E_{k+q} - E_k) + i\delta} \right. \\ \left. + \frac{1}{4} \left( 1 - \frac{\epsilon_k \epsilon_{k+q} + \Delta_k \Delta_{k+q}}{E_k E_{k+q}} \right) \frac{1 - f(E_{k+q}) - f(E_k)}{\omega + (E_{k+q} + E_k) + i\delta} \right. \\ \left. + \frac{1}{4} \left( 1 - \frac{\epsilon_k \epsilon_{k+q} + \Delta_k \Delta_{k+q}}{E_k E_{k+q}} \right) \frac{f(E_{k+q}) + f(E_k) - 1}{\omega - (E_{k+q} + E_k) + i\delta} \right\} \end{aligned} \quad (1.15)$$

Ces fluctuations AF conduisent en général à une solution de l'équation du gap de type  $d$ -wave[86].  $V_{\mathbf{q}}(\omega)$  dépend fortement de  $\mathbf{q}$ . Cette interaction est répulsive sur site mais attractive sur les sites voisins. Sa structure spatiale est directement liée à la forme de  $\chi(\mathbf{q}, \omega)$ .

Les théories basées sur les fluctuations de spin sont fondamentalement différentes de celles basées sur la supraconductivité d'origine phononique. Là, l'attraction effective qui est responsable de l'appariement des électrons est générée par les corrélations électroniques (c'est à dire par les électrons eux-mêmes). La résolution du problème est donc beaucoup plus difficile que dans le cas de la supraconductivité classique car elle nécessite de traiter de façon auto-cohérente l'équation du gap, le spectre des quasiparticules ( $A(\mathbf{k}\omega)$ ) et la susceptibilité ( $\chi(\mathbf{q}, \omega)$ ). En effet, la présence de corrélations AF va modifier la dispersion des électrons (plus exactement leur self énergie  $\Sigma(\omega)$ ). La modification de la dispersion va donc modifier la susceptibilité  $\chi_0(\mathbf{q}, \omega)$  et donc l'appariement supraconducteur et  $\Sigma(\omega)$ .

Face à cette difficulté, plusieurs approches ont été suivies. Nous présentons une revue non exhaustive sur le sujet afin de donner quelques idées concernant les différentes approximations réalisées.

Une façon de simplifier le problème est d'imposer la forme de la susceptibilité  $\chi(\mathbf{q}, \omega)$ . En particulier dans la phase supraconductrice, le spectre de fluctuation de spin peut se modéliser par la superposition d'un mode collectif qui affecte fortement les propriétés des quasiparticules de basse énergie plus un continuum électronique au dessus d'une énergie  $2\Delta$ . Ce type de spectre permet d'expliquer l'essentiel des anomalies observées dans la self énergie des SHTCs dans l'état supraconducteur. Ce type d'approche à l'avantage de pouvoir réaliser une partie de la modélisation sans calcul numérique. Pour une revue, on pourra par exemple consulter [87]. On peut aussi résoudre le problème en imposant certaines relations d'auto-cohérence. L'approximation des fluctuations d'échange (FLEX en anglais) repose sur cette idée. La self énergie de la fonction de Green à une particule est choisie pour satisfaire certaines relations d'auto cohérence sur l'énergie libre, la self énergie et la fonction de Green. Ce type de calcul est difficile car il faut aussi tenir compte des corrections de vertex dans le calcul de la susceptibilité de spin [45, 46].

Enfin, on peut citer deux méthodes numériques : QMC (de l'anglais Quantum Monte Carlo) et DMRG (de l'anglais Density Matrix Renormalisation Group) qui ont été développées pour étudier les systèmes à électrons fortement corrélés tels que le modèle de Hubbard[86]. Ces techniques permettent de déterminer si la supraconductivité existe ou non sans faire d'approximation préalable pour décrire les excitations de basse énergie. Malheureusement, ce type de méthode ne marche pas à basse température. Les résultats à haute température restent encore assez controversés mais semblent plutôt compatible avec l'existence d'une supraconductivité de symétrie  $d$  [46].

**L'approche RVB** Dans l'approche RVB, le point de départ est la description de l'état fondamental de l'Hamiltonien d'Heisenberg AF. En effet contrairement au cas d'un ordre ferromagnétique où l'état fondamental

est connu, on ne connaît pas l'état fondamental dans le cas AF. L'état de Néel n'est qu'une approximation de cet état . Ainsi d'autres types de solution peuvent être envisagés.

En particulier, Anderson a proposé qu'un état d'énergie proche à l'état de Néel soit un liquide formé de paires de valence résonante (de l'anglais Resonant Valence Bound)[88]. Ainsi il a proposé qu'une fois l'état de Néel tué par l'ajout de trous dans la matrice AF, l'état fondamental des cuprates sous dopé soit une fluide de paires singulets de spin. Cet état se décrit comme une superposition cohérente de phase de toutes les configurations de paires singulets de spins possibles (on reporte sur la Fig.1.6.a) une configuration possible des paires singulets de spins).

Dans une approche RVB des SHTCs, une explication possible du diagramme de phase est obtenue en considérant deux échelles de température, noté  $T^*$  et  $T_{coh}$ [89]. Les singulets du liquide RVB se forment à  $T^*$  qui diminue à mesure que l'on s'éloigne du demi remplissage. D'un autre côté, l'augmentation du nombre de trou augmente les fluctuations du nombre de particules qui étaient supprimées au demi remplissage. Il en résulte une seconde échelle de température,  $T_{coh}$ , qui augmente avec le dopage et en dessous de laquelle les porteurs supraconducteurs sont en cohérence de phase. La température critique  $T_c$  est alors déterminée par le minimum de  $T^*$  et de  $T_{coh}$  comme cela est représenté sur la Fig.1.6.b).

L'une des prédictions les plus remarquables de la théorie RVB est très certainement la prédiction de la nature  $d$ -wave du paramètre d'ordre supraconducteur par Kotliar et al [90]. Dans cette approche, le moteur de l'interaction est directement le super échange  $J$ . Néanmoins, il n'existe à ce jour aucune preuve de l'existence de paires préformés dans les SHTCs [91].

**Ordre en compétition avec la supraconductivité** La phase de pseudogap peut être décrite comme une phase en compétition avec la supraconductivité. Dans ce type d'approche, le diagramme de phase est caractérisé par la présence d'un point critique quantique (noté QCP de l'anglais Quantum Critical Point). Les fluctuations critiques quantiques associées aux QCP sont responsables de la formation des paires de Cooper et du comportement non liquide de Fermi de la phase normale. Dans cette approche, les deux effets sont intimement liés. La revue complète des ordres proposés pour décrire la phase de pseudogap serait assez longue à faire. On peut se référer par exemple à la revue de Norman [29]. Nous discutons ici deux types d'ordres.

**L'ordre de stripe** Un ordre proposé pour décrire la phase de pseudogap est celui des stripes. Des calculs sur cluster ont montré que lorsque l'on dope le composé AF avec des trous, il se forme dans le composé une ségrégation de phase entre des zones riches en trous et des zones pauvres en trous. L'ajout de trous dans la matrice AF a pour effet de briser des liaisons AF : le système a tendance à regrouper les trous de dopage afin de minimiser le nombre de liaisons cassées. Cet effet est contrebalancé par la répulsion Coulombienne intersite qui provoque une dispersion des porteurs de charge et qui peut également favoriser un gain d'énergie cinétique. La combinaison de ces deux effets donne lieu à la formation de "stripes". Ce type d'ordre brise la symétrie de translation et se caractérise par de nouveaux pics de Bragg en position incommensurable. Cet ordre est caractérisé par une ordre de charge de vecteur de propagation  $(\pi(1 \pm \delta/2), 0)$  et  $(0, \pi(1 \pm \delta/2))$  et un ordre de spin de vecteur de propagation  $(\pi(1 \pm \delta), 0)$  et  $(0, \pi(1 \pm \delta))$  où  $\delta$  dépend du dopage. Ce type d'ordre a été reporté dans deux cuprates non supraconducteurs : les composés  $\text{La}_{1.6-x}\text{Nd}_{0.4}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  et  $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$  (pour  $x=1/8$ ) [92]. Cependant, aucun supraconducteur à haute température critique de  $T_c^{max} > 40\text{K}$  n'a montré un ordre de stripe jusqu'à présent . Bien que l'ordre de stripe semble incompatible avec la supraconductivité d'un point vue phénoménologique (lorsque l'ordre de stripe est présent,  $T_c=0$ ), la présence d' hétérogénéités pourrait induire de la supraconductivité. Contrairement à l'approche BCS [93, 79], ce type de mécanisme n'est pas basé sur l'existence de quasiparticules dans la phase normale. Il est basé sur une physique de basse dimensionalité (quasi 1D) et de fortes corrélations. Localement, les paires de Cooper peuvent se former dans les chaînes avec une amplitude du gap  $\Delta_0$  grande. Dans ce type d'approche, c'est la

## 1 Introduction

répulsion Coulombienne à courte portée des électrons qui donne lieu à la formation des paires de Cooper. Néanmoins, les grandes valeurs de  $\Delta_0$  n'assure pas une grande valeur de  $T_c$ . En effet, c'est l'effet de proximité entre les chaînes qui crée une supraconductivité 2D. Ainsi, une trop grande hétérogénéité crée de trop fortes fluctuations de phase et tue la supraconductivité bien que des paires de Cooper existent. La température critique est donc maximale lorsqu'un certain degré d'hétérogénéités est atteint [79]. L'ordre de stripe serait donc le cas extrême d'une mise en ordre complète des trous et des spins.

Il est donc proposé que la compétition entre l'interaction coulombienne et la brisure de l'ordre AF due à l'ajout de trous donne lieu à la formation d'une structure mésoscopique [93]. À basse température, il est possible d'imaginer une organisation sous forme d'un cristal liquide électronique[94]. D'un point de vue de la supraconductivité, la formation de ces objets mésoscopiques n'est pas incompatible avec la supraconductivité tant que la taille de la structure est supérieure à la taille des paires de Cooper (c'est à dire à  $10\text{\AA}$ ). Ainsi dans ce type d'approche, la phase de pseudogap est vue comme un ordre de type nématique ou smectique d'objets de taille mésoscopique qui s'ordonnent à basse température. Une représentation schématique de ce type d'ordre est proposé sur la Fig.1.6c), d'après [94]. A plus haute température, la physique est contrôlée par le spectre de fluctuation de ces objets. L'une des signatures expérimentales de ce type d'objet serait la dynamique de spin.

**Boucles de courant** D'autres types d'ordre ont été proposés pour décrire la phase de pseudogap. En particulier, certains types d'ordre postulent l'existence de boucles de courant dans la plaquette  $\text{CuO}_2$ . On peut citer par exemple les phases de flux proposées par Affleck et Marson [96], la phase onde de densité de symétrie  $d$  [95] (noté DDW de l'anglais Density D Wave schématisé sur la Fig.1.6.d)) ainsi que les phases de courants circulant proposés par C.Varma schématisées sur la Fig.1.6.e) et f) [43].

Intéressons nous d'abord aux deux premières phases, à savoir les phases de flux et la phase DDW. Bien que l'origine théorique de ces deux phases soient différentes, la phase ordonnée est caractérisée dans les deux cas par une même phase qui se caractérise par la présence de courant circulant dans la plaquette  $\text{CuO}_2$  (c.f Fig.1.6.d)). Afin d'assurer la nullité du courant à travers le cristal, le sens de parcours du courant est alterné d'une plaquette  $\text{CuO}_2$  à l'autre. Cet ordre brise donc la symétrie de translation et de renversement de temps. Théoriquement, les phases de flux ont été proposées par Affleck et Marson en 1989 comme solution possible de l'Hamiltonien du modèle  $t - J$  [96]. A dopage nul, la phase de flux se trouve à énergie plus élevée que l'ordre AF de type Heisenberg. Néanmoins, une fois que l'onde dope le système, il a été proposé que cette phase de flux devienne énergétiquement plus favorable que l'ordre AF de type Heisenberg. La phase DDW a été proposée par S.Chakraverty et al.[95]. Elle postule l'existence d'une onde de densité de charge de symétrie  $d$  qui se caractérise dans l'espace réciproque par la même distribution de courant que la phase de flux. Dans cette approche, c'est l'échange  $J$  qui est responsable de la formation de cette phase DDW mais qui favorise aussi la supraconductivité de type  $d$ -wave[95].

Intéressons nous maintenant à la phase proposée par C.Varma. Dans cette approche, l'état chimique particulier des plans  $\text{CuO}_2$  est décrit par un modèle à trois bandes avec des interactions à longue portée liées aux fluctuations de charge ( $H_{int}^2$ ) sur le cuivre et sur le site de l'oxygène, ainsi qu'un terme de répulsion Coulombienne sur site U ( $H_{int}^1$ ). Une approche en champ moyen (CM) de cet hamiltonien minimal (noté  $H_{CM}$ ) est utilisée. La principale difficulté est dans le traitement du terme  $H_{int}^2$  en champ moyen. Etant donnée la phénoménologie connue de la phase de pseudogap, on suppose qu'il n'y a pas de brisure de l'invariance par translation et/ou de rotation des spins : on cherche donc un paramètre d'ordre qui par construction ne brise pas la symétrie de translation. Le paramètre d'ordre choisie est une recombinaison linéaire des orbitales  $d$  et  $p$ .

L' Hamiltonien est diagonalisé afin de déterminer les nouveaux états propres et niveaux d'énergie. L'énergie libre est minimisé par rapport à la phase et l'amplitude du paramètre d'ordre.  $H_{CM}$  ne commute pas avec

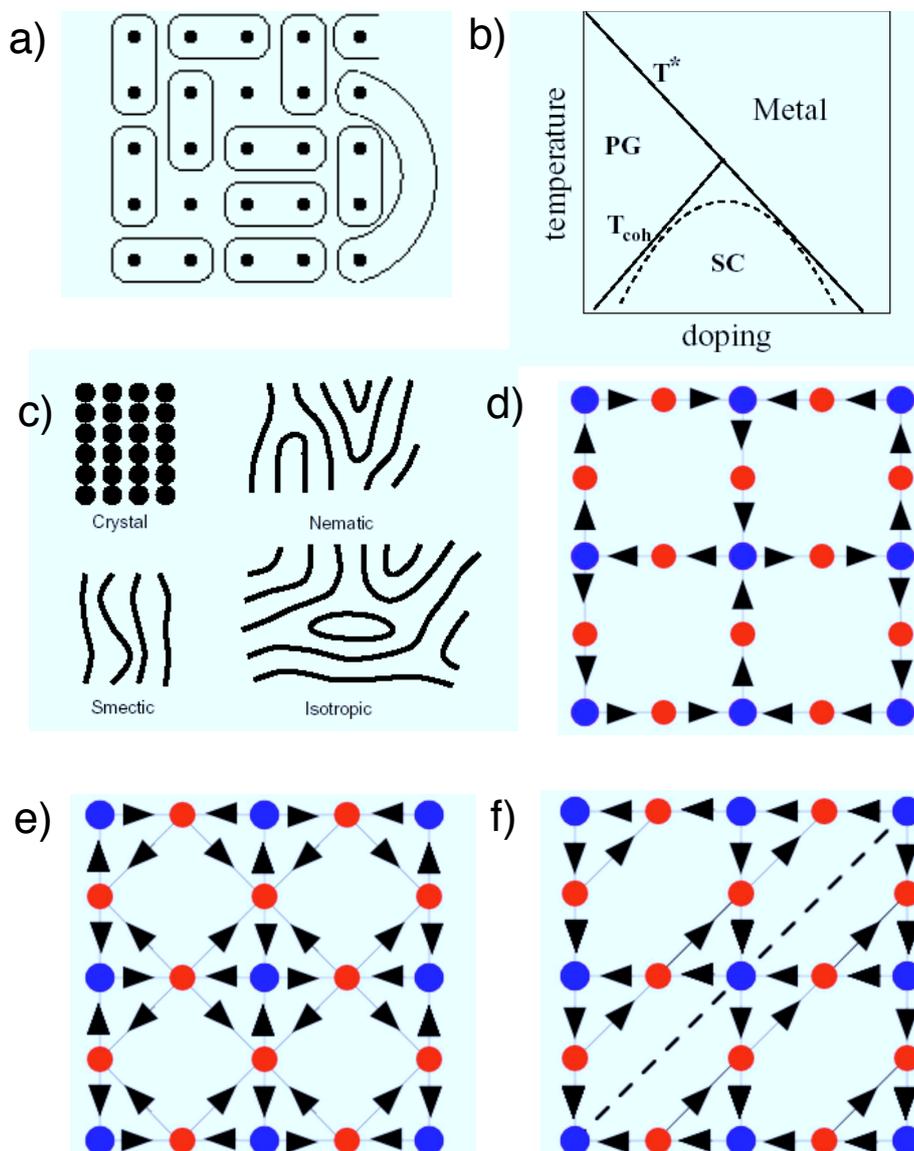


FIG. 1.6: a) "photo instantané" de l'état RVB : représentation d'une configuration possible des paires de singulet avec quelques trous. Le liquide RVB est une combinaison linéaire des différentes configurations équivalente d'après [89] b) Diagramme de phase des SHTCs dans l'approche RVB :  $T^*$  correspond à la formation des singulet et  $T_{coh}$  correspond à la température de cohérence (SC : supraconducteur, PG : pseudogap) d'après [89] .c) Vue schématique de l'ordre local de stripe dans les différents phases proposé par [94]. d) Distribution de courant dans le plan  $\text{CuO}_2$  associé aux phase de flux et à la phase [95] (les atomes bleus correspondent aux atomes de cuivres et les atomes rouges aux atomes d'oxygène) e) et f) Distribution de courant dans le plan  $\text{CuO}_2$  associé aux phase  $CC-\theta_I$  et  $CC-\theta_{II}$  [43]

## 1 Introduction

l'opérateur de renversement de temps quelque soit la transformation unitaire. Cela signifie que les états propres brisent nécessairement l'invariance par renversement du temps (TRV). La minimisation conduite a deux phases possibles : la phase  $\theta_I$  et la phase  $\theta_{II}$ . Une fois transformées dans l'espace réel, les fonctions d'onde de  $H_{CM}$  conduisent à la représentation suivante. La phase  $\theta_I$  (schématisé sur la Fig.1.6.e)) se caractérise par quatre boucles de courant par maille élémentaire  $\text{CuO}_2$ , deux tournant dans le sens horaire et deux dans le sens anti-horaire. La phase  $\theta_{II}$  (schématisé sur la Fig.1.6.f)) se caractérise par deux boucles de courant par maille élémentaire tournant en sens inverse.

La brisure de l'invariance par renversement du temps n'est pas en soit une instabilité de la surface de Fermi. Cependant les fluctuations du paramètre d'ordre entraîne une instabilité de la surface de Fermi à  $\mathbf{q} = \mathbf{0}$  et donc l'ouverture d'un gap anisotrope au niveau de Fermi. C'est ce gap qui permet de rendre compte des grandeurs thermodynamiques ainsi que de la formation des arcs de Fermi dans la phase de pseudogap discuté dans la partie 1.2.3. Les nouvelles quasiparticules se caractérisent par la relation de dispersion suivante :

$$E_{\mathbf{k}} = e_{\mathbf{k}} + \text{signe}(e_{\mathbf{k}})D(\mathbf{k})$$

Dans l'approche de C.Varma, ce sont les fluctuations de plus basse énergie qui imposent la forme du gap :  $D(\mathbf{k}) = \frac{D_0}{2}(\cos k_x - \cos k_y)^2$  [43].

Dans cette approche, la supraconductivité émerge grâce aux fluctuations associé à l'ordre de ces boucles de courant. Le spectre de fluctuation associé à ces objets est celui du liquide de Fermi marginal qui est postulé faiblement dépendant de  $q$ . Apriori ce type de spectre conduirait plutôt à un gap  $s$ -wave que  $d$ -wave. La symétrie du gap supraconducteur  $d$  serait en fait imposé par l'anisotropie des constantes de couplage entre les électrons et les fluctuations [43].

### Nature des corrélations AF

Dans la mesure où les corrélations AF sont susceptibles de jouer un rôle dans l'instabilité supraconductrice, il est naturel d'étudier les corrélations magnétiques en fonction du dopage. Bien que l'ordre AF disparaisse rapidement avec le dopage en trous, des corrélations AF dynamiques de courte portée survivent dans les états métallique et supraconducteur. La diffusion inélastique de neutrons (noté DIN) permet d'étudier les corrélations magnétiques dans une large gamme de moment et d'énergie. Il s'agit d'une sonde en volume qui requiert de larges échantillons, typiquement de l'ordre de  $100\text{mm}^3$ . Cette contrainte a pendant longtemps restreint l'étude de la dynamique de spins à un petit nombre de cuprates, essentiellement  $\text{YBa}_2\text{CuO}_{6+x}$  et  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ . Récemment, grâce aux progrès réalisés dans la croissance de cristaux et dans l'augmentation des flux de neutrons, de plus en plus de familles de SHTCs ont pu être étudiées par DIN. Ceci est fondamental pour établir l'universalité des propriétés magnétiques observées et donc leur pertinence pour la physique des SHTCs. Nous proposons dans cette partie une revue des résultats obtenus par DIN dans les phases supraconductrice et normale.

**Une excitation non conventionnelle dans la phase supraconductrice : le pic de résonance** La DIN a permis de mettre en évidence l'existence d'une excitation magnétique dans l'état supraconducteur : le *le pic de résonance magnétique* [97]. L'observation de cette excitation a d'abord été reportée par J.Rossat-Mignot et al [98] dans le SHTC  $\text{YBa}_2\text{CuO}_{6.95}$  ( $T_c=91\text{K}$ ). Dans l'état supraconducteur, le pic de résonance magnétique apparaît comme une excitation de spin  $S=1$  à  $41\text{meV}$  et centrée au vecteur d'onde  $\mathbf{Q}=(0.5, 0.5, L)$  (vecteur d'onde qui caractérise les corrélations AF planaires). En augmentant en température, l'énergie caractéristique du pic de résonance magnétique reste inchangée. L'intensité se comporte comme un paramètre d'ordre en fonction de la température car le signal disparaît à  $T_c$ . Il faut noter que ce type d'excitation magnétique n'a jamais été reporté dans les supraconducteurs conventionnels.

Le pic de résonance magnétique a été observé dans d'autres familles de cuprates : au dopage optimal de  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  [99] ( $T_c=91\text{K}$ ) à une énergie de 43mev ainsi que dans  $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_4$  [100] ( $T_c=90\text{K}$ ) à une énergie de 47mev. Ainsi, pour tous les supraconducteurs ayant une  $T_c$  qui peut être supérieure à 90K, l'existence d'une excitation AF non conventionnelle peut être vue comme une propriété générique. Dans les cas de  $\text{YBa}_2\text{CuO}_{6.95}$  et de  $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_4$ , la résonance magnétique possède une largeur en énergie limitée par la résolution. Le signal est beaucoup plus large dans le cas du composé  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  [99]. Cet élargissement en énergie peut être associé à un effet intrinsèque ou aux impuretés dans ce matériau. En effet, un tel effet peut être artificiellement reproduit par une substitution d'un autre ion 3d tel que Ni dans  $\text{YBa}_2\text{CuO}_{6.95}$ [101].

On remarque aussi que dans le cas du composé  $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_4$  qui ne possède qu'un plan  $\text{CuO}_2$ , l'énergie du pic de résonance magnétique se trouve à une énergie légèrement supérieure à celle des composés  $\text{YBa}_2\text{CuO}_{6.95}$  et  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  qui possèdent deux plans  $\text{CuO}_2$ . Ceci peut s'expliquer par le fait que dans les composés bi-plans, il n'y a pas d'excitation résonante mais deux excitations [102, 103, 104]. Dans un échantillon légèrement sous dopé de  $\text{YBa}_2\text{CuO}_{6.85}$  ( $T_c=89\text{K}$ ), une première résonance magnétique est observée à une énergie de 41mev et une seconde est observée à une énergie de 53mev avec une intensité plus faible que la première. De façon évidente, les deux modes sont localisés à  $47\pm 6\text{mev}$ , c'est-à-dire à équidistance de l'énergie à laquelle la résonance apparaît dans un composé monocouche.

L'existence de deux excitations résonantes dans un système bi-plan n'est pas vraiment une surprise. Dans la phase isolante, le spectre d'excitation magnétique est caractérisé par des excitations magnétiques collectives [105, 106] : les ondes de spins. La faible interaction AF entre les plans du bi-plan ( $J_\perp=10\text{mev}$ ) sépare les ondes de spins en deux modes : le mode acoustique et le mode optique, correspondant respectivement à une fluctuation en opposition de phase et en phase des ondes de spins des plans  $\text{CuO}_2$  du biplan. Dans ce cas, la partie imaginaire de la susceptibilité magnétique dynamique s'écrit comme [105] :

$$\text{Im}\chi(\mathbf{Q}, \omega) = \sin^2(\pi zL)\text{Im}\chi_{ac}(\mathbf{Q}, \omega) + \cos^2(\pi zL)\text{Im}\chi_{op}(\mathbf{Q}, \omega) \quad (1.16)$$

où  $z$  correspond à la distance réduite entre les plans  $\text{CuO}_2$  dans le biplan ( $z=d/c$  avec  $d=3.3\text{Å}$ ). En plus du fait que les modes acoustiques et optiques ne sont pas localisés à la même énergie, ils peuvent être facilement identifiés par leur modulation le long de l'axe  $c$  (Eq.1.2.4). Dans l'état supraconducteur, le pic de résonance magnétique le plus intense (c'est-à-dire celui de plus basse énergie) possède une modulation le long de l'axe  $c$  en sinus carré, alors que le moins intense (celui de plus haute énergie) possède une modulation en cosinus carré. Ainsi, l'existence de deux pics de résonance magnétique dans l'état supraconducteur pour les composés bi-plans indiquent qu'il existe encore un couplage AF entre les plans  $\text{CuO}_2$  dans l'état supraconducteur et qu'il est du même ordre de grandeur que le  $J_\perp$  de la phase isolante.

Intéressons nous maintenant à l'évolution en fonction du dopage des énergies caractéristiques associées aux modes acoustique et optique, notées respectivement  $E_r^{ac}$  et  $E_r^{op}$ , et comparons les à l'évolution de  $T_c$  et  $\Delta_m$  (amplitude maximale du gap mesuré par ARPES et STM). On reporte l'ensemble des résultats sur la Fig.1.7.II.e). Dans le cas du composé  $\text{YBa}_2\text{CuO}_{6+x}$ , il a été trouvé que  $E_r^{ac}$  suit la même évolution que  $T_c$  avec une loi en  $E_r^{ac} \approx 5k_B T_c$ . Pour le mode optique,  $E_r^{op}$  sature dans la phase sous dopée et diminue à partir du dopage optimal [107]. L'évolution en dopage de  $E_r^{op}$  est assez proche de celle de  $2\Delta_m$ . Dans la phase surdopée, pour un nombre de porteurs supérieur à 20%,  $E_r^{ac}$ ,  $E_r^{op}$  et  $2\Delta_m$  convergent vers une même énergie de l'ordre de  $5k_B T_c$ . En dessous de ce dopage, on observe la hiérarchie suivante :  $E_r^{ac} < E_r^{op} < 2\Delta_m$  [97, 107]. Ainsi, il semble qu'il coûte moins d'énergie d'exciter les pics de résonance magnétique que de créer une excitation élémentaire électron-trou qui brise les paires de Cooper ( $E \approx 2\Delta_m$  à  $\mathbf{Q}_{AF}$ ).

Les pics de résonance magnétiques sont des excitations observées dans l'état supraconducteur au vecteur d'onde AF, mais l'observation de ces excitations magnétiques n'est pas restreinte à ce vecteur d'onde [108].

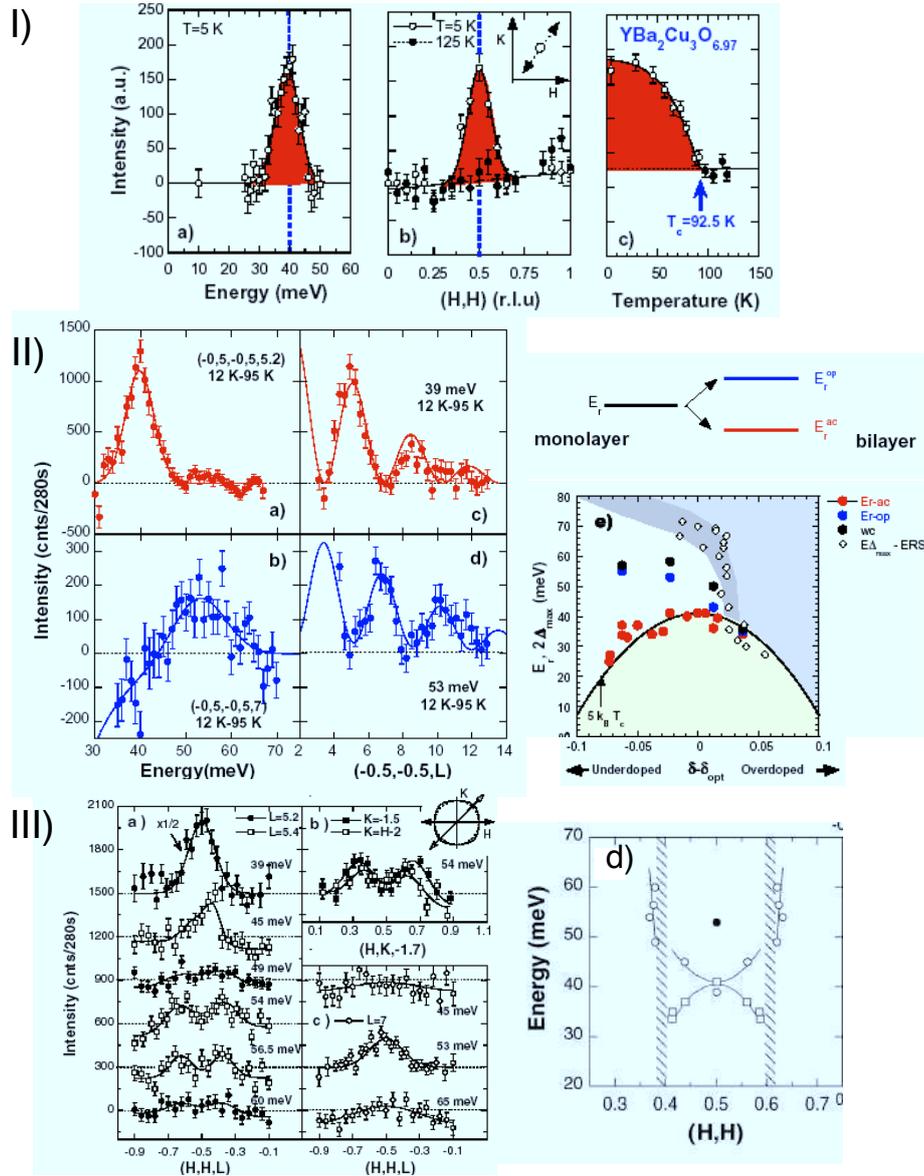


FIG. 1.7: I) Présentation du pic de résonance magnétique mesuré dans le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.97}$  de  $T_c = 92.5\text{ K}$  par DIN : a) Intensité mesurée à basse température  $T = 5\text{ K}$  en fonction de l'énergie au vecteur d'onde AF, b) Intensité le long de la direction  $(H,H)$  pour une énergie de 41 meV à basse (point blanc) et haute température (point noir) c) Evolution en température mesurée aux vecteurs d'ondes  $Q = (0.5, 0.5, 4.7)$  pour une énergie de 41 meV. II) Différence entre les scans au vecteur d'onde AF à basse température et juste au dessus de  $T_c$  pour un échantillon  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$  de  $T_c = 89\text{ K}$  a) et c) Pics de résonance magnétique dans le canal acoustique avec sa modulation typique en sinus carré b) et d) Même chose dans le canal optique. e) Dépendance en dopage de l'énergie caractéristique du mode acoustique (en rouge) et du mode optique (en bleu). Les deux modes se trouvent en dessous de  $2\Delta_m$  qui représente l'énergie minimum pour créer une excitation élémentaire au vecteur d'onde AF.  $2\Delta_m$  peut être mesuré par ARPES, SIS ou encore Raman. III) Différence d'intensité entre basse température ( $T = 10\text{ K}$ ) et  $T_c$  plus 10K dans un échantillon  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$  de  $T_c = 89\text{ K}$ , le long de la direction  $(H,H)$  pour différentes énergies a)  $L = 5.2$  ou  $5.4$  (canal acoustique) c)  $L = 7$  (canal optique) et b) coupe à énergie constante pour deux directions de l'espace réciproque  $(1,0,0)$  et  $(1,1,0)$  d) Dispersion des excitations magnétiques dans la phase supraconductrice déduite des mesures reportées en a).

En fait, il a été montré que cette résonance magnétique fait partie d'un mode d'excitation  $S=1$  dispersif. Partant du vecteur d'onde AF, le mode disperse vers le bas et vers le haut, la dispersion est en forme de X ou de sablier [108, 103, 109]. Dans cette dispersion, on note la quasi disparition du signal quand le mode approche des vecteurs d'onde particuliers [103], les "bandes muettes" (de l'anglais silent bands). Dans les cuprates très sous dopés ( $T_c < 62\text{K}$ ), une dispersion similaire a été reportée, mais seulement la partie de la dispersion dispersant vers le bas apparaît en dessous de  $T_c$  alors que la dispersion vers le haut ne change quasiment pas à travers  $T_c$  [110].

**Les corrélations AF dans la phase normale** Il existe de fortes corrélations magnétiques dans la phase sous dopée des SHTCs. Ce spectre de fluctuation magnétique s'étend sur une large gamme d'énergie (typiquement jusqu'à  $150\text{meV}$ ). Il se caractérise par : (i) une partie haute énergie qui est indépendante de la température et (ii) une partie basse énergie qui change beaucoup avec la température avec comme principale caractéristique l'apparition du pic de résonance magnétique. Dans une approche de type fluctuation de spins, la question est évidemment de connaître la partie du spectre d'excitation magnétique qui contribue à l'interaction attractive nécessaire à la supraconductivité.

**Spectre des fluctuations à haute énergie** Dans l'état normal du régime sous dopé, de fortes fluctuations de haute énergie persistent (typiquement à partir de  $50\text{meV}$ ). En effet, des études réalisées sur un échantillon de  $\text{YBa}_2\text{CuO}_{6.5}$  ( $T_c=55\text{K}$ ) indiquent l'existence d'excitations magnétiques autour du vecteur d'onde  $Q_{AF}$  de  $60\text{meV}$  à  $85\text{meV}$ , c.f. Fig.1.8 a) [111, 112].

Récemment, l'étude des excitations a été reprise essentiellement grâce à l'augmentation de flux des sources à spallation qui permettent d'accéder plus facilement à de plus grands transferts d'énergie que les spectromètre trois axes. L'étude de S.Hayden et al. [113] dans un échantillon de  $\text{YBa}_2\text{CuO}_{6.6}$  ( $T_c=63\text{K}$ ) a permis de confirmer que le signal de haute énergie ne bouge pas en température. On reporte sur la Fig.1.8 b) la carte en couleur de l'intensité magnétique à une énergie de  $85\text{meV}$  pour trois températures  $T=300, 100$  et  $10\text{K}$ . Pour chacune des températures, on constate l'existence d'un signal autour du vecteur d'onde AF. Aussi, comme on peut le constater, il semble que le signal ne soit pas réparti de façon isotrope autour du vecteur onde AF mais plutôt sous la forme de structure carré centrée à  $Q_{AF}$  avec des maxima le long des diagonales. Cette structure particulière a soulevé un intérêt dans la communauté puisqu'elle est très similaire aux excitations magnétiques de haute énergie dans le composé  $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$  pour  $x=1/8$  qui présente un ordre de stripe. Néanmoins, une étude récente de Stocks et al sur un échantillon démaclé à 70% suggèrent en fait que ce signal est bien isotrope comme on peut le voir sur la Fig.1.8 c). L'étude de Stocks [112] permet aussi de déterminer la dispersion de ce signal de haute énergie. Il s'ajuste avec un modèle d'onde de spin de célérité  $J$  de  $70\text{meV}$ . La célérité de ces excitations AF est de l'ordre de 60% de celle des magnons dans la phase AF, suggérant une interaction de super-échange effective, réduite dans le plan de base. L'élargissement des excitations traduit également un amortissement non négligeable. De même dans le canal optique, les mesures révèlent la persistance d'un gap optique et d'excitations dispersives. La réduction du gap optique est en accord avec un échange effectif dans le plan de l'ordre de 60 %. Ces mesures sont en accord avec [111].

Il semble donc que le signal de haute énergie présent dans la phase sous-dopée soit compatible avec des excitations réminiscentes de la phase antiferromagnétique dont la célérité dépend du dopage. Plus la "rigidité" de l'interaction d'échange AF diminue, plus les excitations sont suramorties.

**Spectre des fluctuations de basse énergie** Le spectre de fluctuation AF de basse énergie du composé  $\text{YBa}_2\text{CuO}_{6+x}$  évolue en fonction du dopage. On définit trois zones : une zone de très fort sous dopage, un zone sous dopée et une zone surdopée. Le spectre de fluctuation magnétique n'est pas le même entre la zone très sous dopée et dopée. La transition entre ces deux zones se fait autour d'un dopage de 6.5 qui correspond

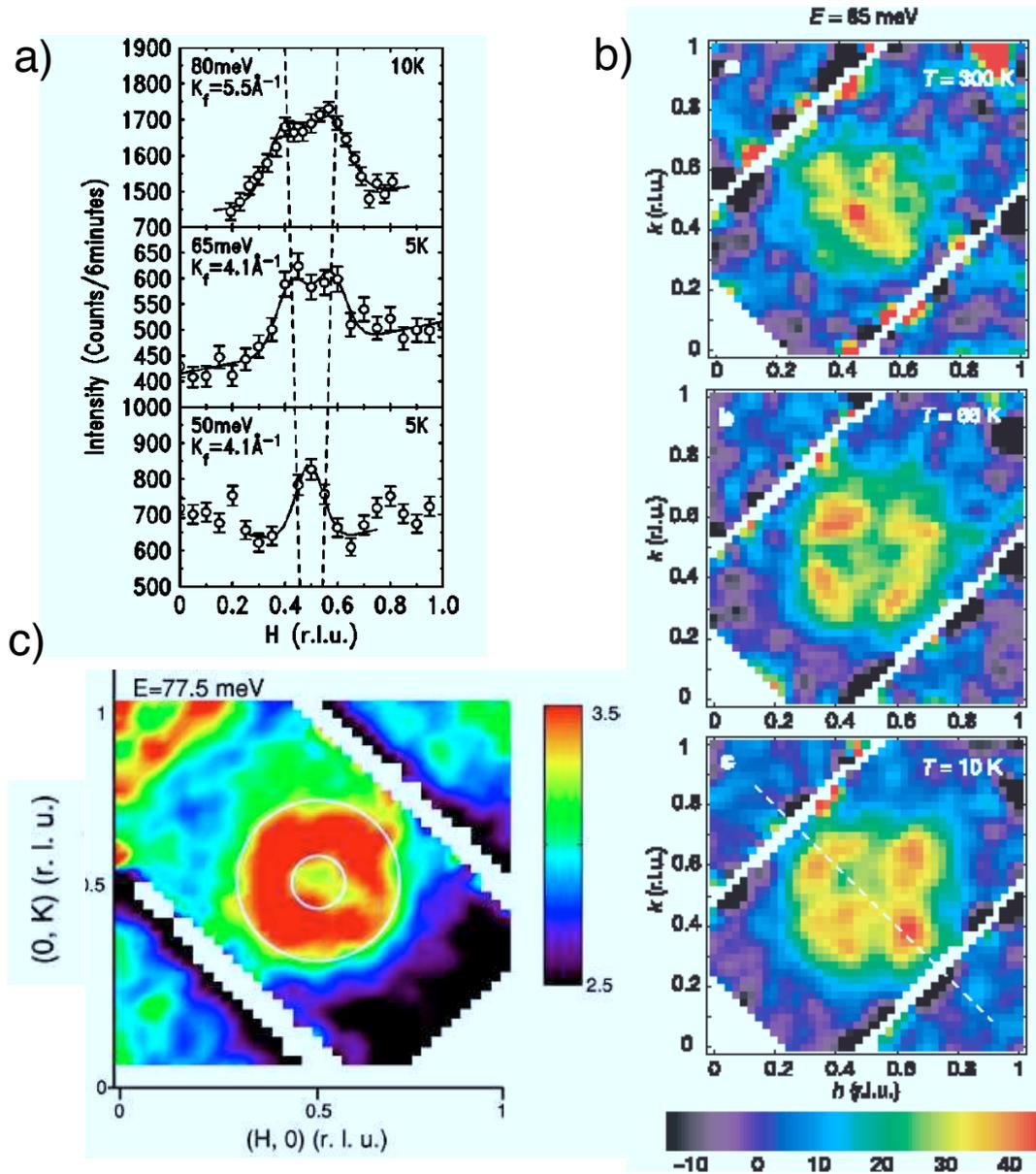


FIG. 1.8: Susceptibilité magnétique de haute énergie ( $\hbar > 60 \text{ meV}$ ) dans la phase de pseudogap  $\text{YBa}_2\text{CuO}_{6+x}$  : a) évolution de l'intensité mesurée le long de la direction  $(H, H)$  pour trois énergies  $E = 50, 60$  et  $70 \text{ meV}$  d'après [111] ( $\text{YBa}_2\text{CuO}_{6.5}$ ) b) évolution de l'intensité mesurée à ISIS pour différentes températures d'après [113] ( $\text{YBa}_2\text{CuO}_{6.6}$ ) c) même chose d'après Stocks [112] pour  $\hbar = 78 \text{ meV}$  ( $\text{YBa}_2\text{CuO}_{6.5}$ ) le cercle blanc correspond à un modèle de spin.

à peu près au dopage de la transition isolant-métal. On séparera donc le diagramme de phase comme ceci : la phase sous dopée isolant, la phase sous dopée métallique et la phase surdopée.

Dans la phase sous dopée isolant, le spectre des fluctuations AF ressemble beaucoup à l'état isolant faiblement dopé en trous. En particulier, en dessous de  $T_c$ , le spectre n'indique pas de pic de résonance ni de gap de spin. Ce spectre se décompose en deux parties comme on peut le voir sur la Fig.1.9a). Une première partie se trouve à énergie nulle et correspond à l'existence d'un ordre AF à courte portée (avec des longueurs typiques de corrélation de l'ordre de  $40\text{\AA}$  pour  $x=0.35$ ) [114]. Ce pic quasi-élastique s'élargit à mesure que la température augmente comme on peut le voir sur la Fig.1.9.a). Le spectre se caractérise aussi par des fluctuations de basse énergie bien reproduites par un oscillateur amorti d'énergie caractéristique  $\omega_0$  qui dépend du dopage (typiquement  $\omega_0$  est de l'ordre de  $2\text{meV}$  pour  $x=0.35$  et de l'ordre de  $25\text{meV}$  pour  $x=0.5$ )[114].

Dans la partie sous dopée métallique, les fluctuations AF sont bien décrites par une forme lorentzienne[115]. On reporte sur la Fig.1.9.b) l'évolution de la partie imaginaire du mode acoustique de la susceptibilité de spin dans l'état normal à  $T=100\text{K}$  au vecteur d'onde AF pour différents taux d'oxygène pour le composé  $\text{YBa}_2\text{CuO}_{6+x}$ . Comme on peut le constater, le spectre magnétique évolue fortement en fonction du dopage. A mesure que l'on dope le système, on observe un déplacement vers les hautes énergies et une réduction du poids spectral. Le poids des fluctuations AF est considérablement réduit dans la phase surdopée [115, 116]

Intéressons nous maintenant aux dépendances en  $Q$  et en température de ce signal. Quelque soit le dopage, le signal est centré autour du vecteur d'onde AF avec une largeur typique bien plus large que la résolution expérimentale [110, 115, 117]. On reporte sur la Fig.1.9II)b)et e), l'évolution de l'intensité magnétique de basse énergie dans le composé  $\text{YBa}_2\text{CuO}_{6.6}$  démaclé à 90% le long des deux directions  $a^*$  et  $b^*$ . Comme on peut le voir, la largeur du signal est indépendante de l'énergie. Le signal est plus large le long de la direction  $a^*$  que  $b^*$ , ce qui suggère une anisotropie dans le spectre. Aussi, quelque soit le dopage, le spectre est modifié lorsque  $T < T_c$ . L'entrée dans la phase supraconductrice se caractérise par l'apparition d'un *gap de spin* dans le spectre de fluctuations, d'un *pic de résonance* au vecteur d'onde AF et d'un *changement dans la forme de la dispersion* des excitations. En dessous de  $T < T_c$ , la dispersion est en forme de X (voir Fig.1.9II)a)et b)) alors que pour  $T > T_c$ , la dispersion est en forme de Y (Fig.1.9II)c)et d)). Cette modification est d'autant plus évidente à observer que les fluctuations dans la phase normale sont faibles. Ils est intéressant de voir que l'anisotropie de la réponse persiste dans la phase supraconductrice [110].

### Interprétation des corrélations AF : localisation versus itinérance

L'un des sujets les plus débattus dans la physique des SHTCs est l'interprétation des corrélations AF dans la phase métallique. Ce débat est en fait directement lié à la problématique de l'addition de trous dans un isolant de Mott. Au cours des années, deux types d'interprétation ont été proposés. La première approche, dite approche localisée, prend comme point de départ la phase AF isolante, dans laquelle les spins sont essentiellement localisés sur les sites du cuivre ( $S=1/2$ ). La seconde approche, l'approche itinérante, part de la phase métallique du diagramme de phase des SHTCs, le pic de résonance magnétique y est décrit comme une excitation collective de spin  $S=1$ . Nous proposons dans cette partie une discussion de ces deux approches.

**L'approche localisée** Dans l'approche "localisé", les excitations magnétiques peuvent être décrites comme des réminiscences du spectre des excitations collectives d'une phase magnétique isolante avec des spins localisés. Cette phase peut être la phase antiferromagnétique à dopage nul ou une nouvelle phase magnétique telle que la phase de type stripe. Celle-ci correspond à une mise en ordre des trous de dopage sous forme de lignes séparant des domaines AF pauvres en trous [118, 119]. L'observation d'une mise en ordre des spins et des charges dans les composés non supraconducteurs  $\text{La}_{1-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$  ( $x=1/8$ ) et  $(\text{La}, \text{Nd})_{1-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  sont

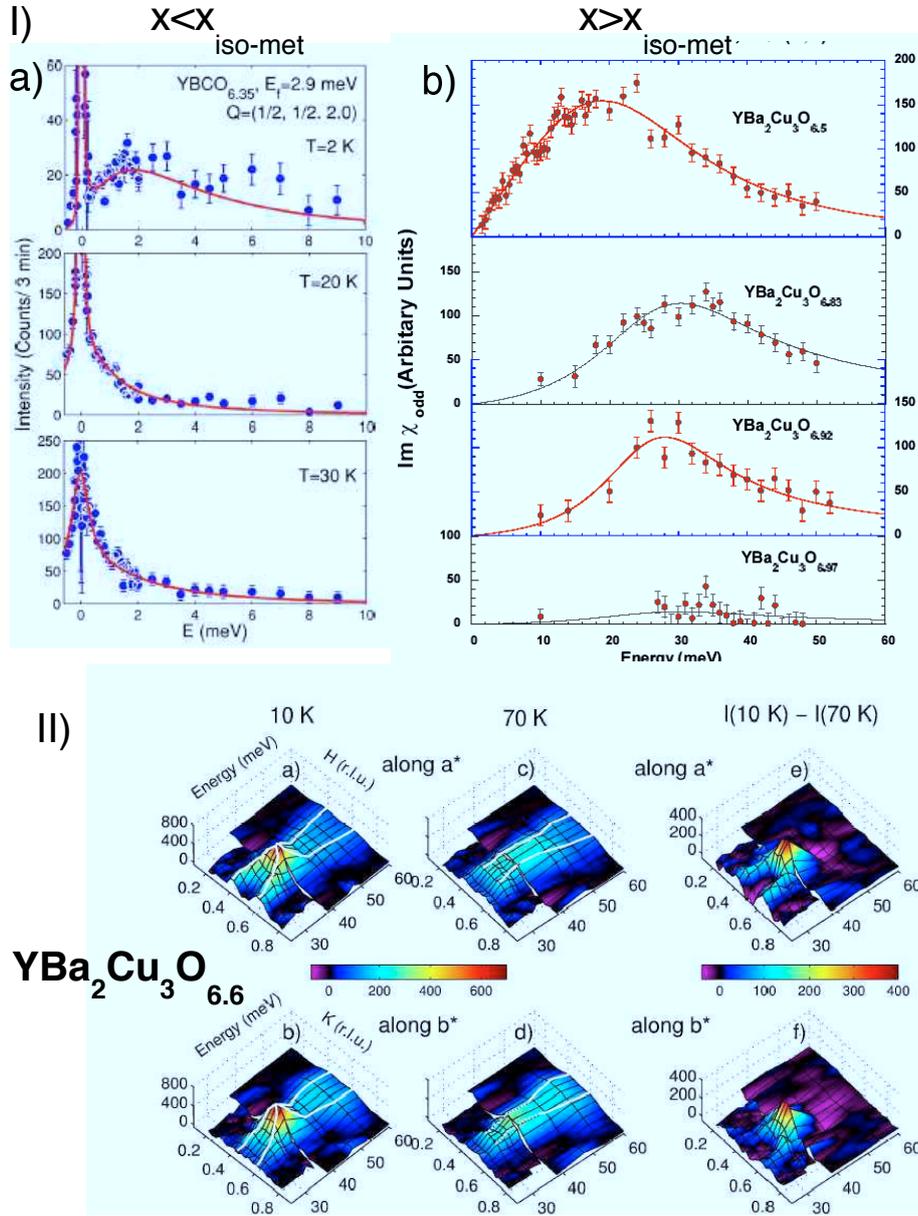


FIG. 1.9: Susceptibilité magnétique de basse énergie dans la phase normale : a) évolution de l'intensité en fonction de l'énergie mesurée aux vecteurs d'ondes  $Q=(0.5,0.5,2)$  pour différents températures pour un échantillon  $YBa_2CuO_{6.35}$  ( $T_c=18K$ ) d'après les mesures de [114] b) évolution de l'intensité mesurée en fonction de l'énergie aux vecteurs  $Q=(0.5,0.5)$  à  $T=100K$  pour un dopage de  $YBa_2CuO_{6.5}$  à  $YBa_2CuO_{6.97}$  d'après [115] c) carte en couleur de l'intensité mesurée autour du vecteur d'onde AF  $T=10K$  et  $T=70K$  pour un échantillon de  $YBa_2CuO_{6.6}$  ( $T_c=63K$ , échantillon démaclé à 90%) d'après [117].

interprétés comme la signature de la phase de stripes [92, 118] . Il n'existe toutefois pas d'autres cuprates dopés en trous présentant un ordre similaire. L'état métallique des SHTCs est alors vu comme une phase de stripe désordonnée où les lignes de charges peuvent fluctuer[93]. Partant des mesures de la dynamique du spin dans le composé  $\text{La}_{1-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$  ( $x=1/8$ ) [119], on a proposé que  $E_r$  soit un point selle dans la dispersion associée à l'ordre de stripes. On reporte sur la Fig.1.10.a) l'ordre de stripe proposé pour décrire l'ordre de charge et de spin dans le composé  $\text{La}_{1-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$  ( $x=1/8$ ). Cet ordre dans le plan  $\text{CuO}_2$  est caractérisé par deux lignes de charge séparés par une échelle de spins couplée AF. Les excitations de basse énergie (c'est-à-dire en dessous de  $E_r$ ) correspondent aux excitations collectives entre les deux échelles de spins (elles se propagent donc perpendiculairement à l'échelle) alors que la partie haute énergie correspond aux excitations intra échelles (elles se propagent donc le long de la chaîne). Ce type d'image a par la suite été soutenue par différents calculs [120]. Dans ce type d'approche, l'effet de la supraconductivité sur cette dynamique de spin n'est que très rarement évoqué. L'effet principal est l'ouverture d'un gap de spin (noté  $E_g$  et proportionnel à  $T_c$  comme on peut le voir sur la Fig.7.2.3.d)) qui entraîne une redistribution du poids spectral. Comme la  $T_c$  varie d'un composé à un autre, la redistribution du poids spectral ne se fera pas toujours à la même énergie. Dans la cas des SHTCs de  $T_c^{max} \approx 90\text{K}$ , le gap de spin se trouve à une énergie assez haute, typiquement de l'ordre de 30meV au dopage optimal, la redistribution de poids spectral se ferait alors dans la même gamme d'énergie que le poids selle de la dispersion. Dans le cas des SHTCs de  $T_c^{max} \approx 40\text{K}$ , le gap de spin est plus faible, la redistribution du poids spectral se fait alors à bien plus basse énergie. On reporte sur la Fig.1.10.b), les différents cas de figure discutés. Ainsi, dans ce type d'approche, le spectre d'excitation magnétique est toujours le même quelque soit le cuprate envisagé, la seule différence vient de l'amplitude du gap de spin et de la redistribution du poids spectral associé à l'ouverture du gap de spin. La résonance est alors une conséquence directe des excitations qui préexistent dans la phase normale.

Tant dans la phase supraconductrice que dans la phase normale, ce type de spectre magnétique est caractérisé par une très forte anisotropie dans le plan ( $a^*, b^*$ ). Ceci n'est pas tout à fait en accord avec les excitations de spins mesurées dans les phases sous dopée et optimalement dopée du composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ [110]. En effet, il a été prouvé que le spectre d'excitation possède une symétrie 2D au-dessous et au-dessus de l'énergie de la résonance, ce qui est en désaccord avec l'existence d'un point selle. Cependant, des calculs récents qui considèrent la dynamique de spin de segments de stripe fluctuantes (fluctuations orientationnelles) indiquent une perte du caractère 1D[121, 122]. Néanmoins, il est important de rappeler que le pic de résonance magnétique ainsi que la dispersion associée à ce pic possèdent une dépendance en température marquée. Ainsi, dans ce type d'approche, *il convient de comparer le spectre magnétique du composé  $\text{La}_{1-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$  ( $x=1/8$ ) et le spectre magnétique du composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$  dans la phase normale et non dans la phase supraconductrice.*

**L'approche itinérante** Il est également possible d'aborder le problème de la nature des corrélations AF en partant du régime surdopé et en considérant une approche itinérante du magnétisme. Les porteurs de charge sont délocalisés et leurs propriétés sont décrites dans un modèle de bandes. Dans ce type d'approche, les excitations élémentaires se présentent sous la forme d'excitations électron-trou. Une fois dans l'état supraconducteur, ces excitations ne sont autorisées qu'au-dessus d'une énergie qui correspond à l'énergie des paires brisées. L'énergie minimum pour créer une excitation élémentaire (avec retournement de spin) est  $\hbar\omega_c(\mathbf{q}) = \min(E_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} + E_{\mathbf{k}})$ . Cette énergie définit la bordure du continuum électron-trou. L'entrée dans la phase supraconductrice modifie donc le spectre d'excitation de basse énergie mais se caractérise aussi comme on l'a discuté par une modification des fonctions de réponse. Dans le cas des SHTCs, la susceptibilité magnétique augmente à cause des interactions magnétiques  $I(\mathbf{q})$  présentes dans le système. La susceptibilité peut être obtenue grâce à l'approche RPA. En l'absence de propriétés d'emboîtement de la surface de Fermi ou d'une interaction très forte, l'amplitude de ce type d'excitation de spin est assez faible et reste

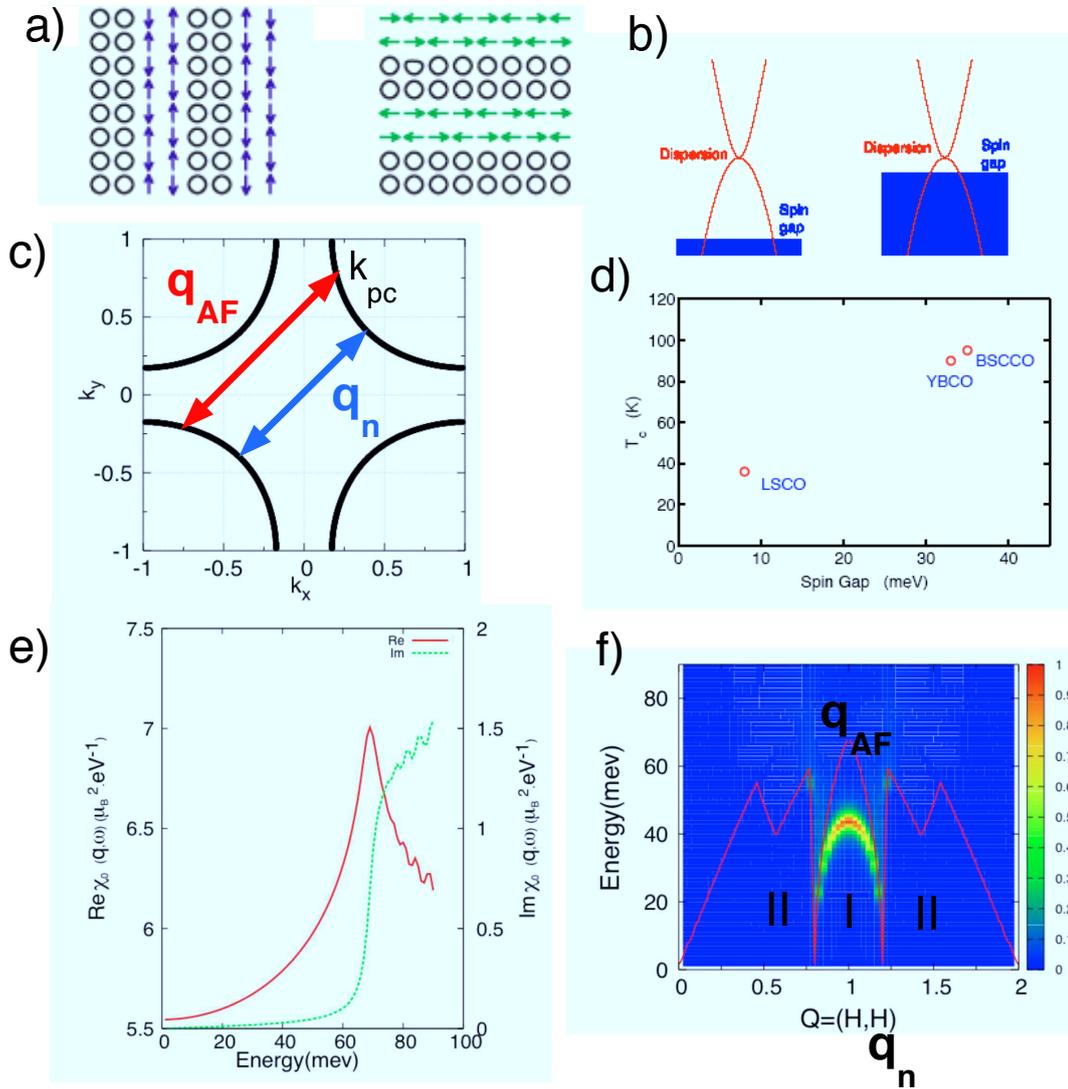


FIG. 1.10: Interprétation de la dynamique de spins dans les cuprates : a) schémas de l'ordre de charge et de spin proposé dans les cuprates pour rendre compte de la dynamique de spins. b) schémas de la dispersion des excitations magnétiques en forme de X dans les cuprates. Pour les composés supraconducteurs, l'entrée dans la phase supraconductrice se caractérise par l'ouverture d'un gap de spin, le poids spectral de basse énergie étant alors redistribué au-dessus de l'énergie du gap. Le lien entre  $T_c$  et  $E_g$  est également représenté. c) Surface de Fermi typique des cuprates supraconducteurs d'après Eremin. d) Les parties réel et imaginaire de la susceptibilité magnétique sans interaction sont représentées pour le vecteur d'onde  $q_{AF}$  en fonction de l'énergie pour un gap  $d$ -wave d'amplitude  $\Delta_0=42\text{meV}$  pour la surface de Fermi représentée en c). e) Carte en couleur de la susceptibilité magnétique après RPA le long de la direction de l'espace réciproque  $(1,1)$  de  $0\text{meV}$  à  $90\text{meV}$ . La ligne rouge correspond à la bordure du continuum donné par électron trou défini par  $\hbar\omega_c(\mathbf{q}) = \min(E_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} + E_{\mathbf{k}})$

difficile à mesurer par DIN. Cependant, dans le cas des SHTCs, l'ouverture du gap supraconducteur dans le continuum électron-trou et la présence d'interactions magnétiques peut donner lieu à un état lié de spin  $S=1$  se développant au-dessous de la bordure de continuum [84, 87, 123, 124, 125, 126, 127, 128]. Son énergie caractéristique est donnée par la condition de pôle :  $1 - \frac{2I(\mathbf{q})}{(g\mu_B)^2} Re\chi_0(\mathbf{q}, \omega) = 0$  dans la gamme d'énergie :  $[0, \omega_c(\mathbf{q})]$ . Ce type de mode collectif n'existe qu'au-dessous du continuum et se décompose en des excitations de type électron-trou quand il entre dans le continuum. La dispersion de ce mode est principalement contrôlée par  $I(\mathbf{q})$  et  $\omega_c(\mathbf{q})$ .  $\omega_c(\mathbf{q})$  est imposé par la topologie de la surface de Fermi et la symétrie du gap supraconducteur. Dans le cas des SHTCs où le gap supraconducteur est de symétrie  $d$ -wave, la maximum de  $\omega_c(\mathbf{q})$  est pour le vecteur d'onde  $\mathbf{q}=(\pi, \pi)$ . Pour ce vecteur d'onde :  $\omega_c(\mathbf{q}_{AF})=2\Delta(\mathbf{k}_{pc})$ , où  $\mathbf{k}_{pc}$  correspond au vecteur d'onde de la surface de Fermi connecté par le vecteur d'onde AF (ces vecteurs d'onde sont souvent appelés "points chauds" de la surface de Fermi). Pour ces vecteurs d'onde, la gap supraconducteur est proche de sa valeur maximale, ainsi  $\omega_c(\mathbf{q}_{AF})$  est légèrement plus faible que  $2\Delta_m$ . En s'écartant du vecteur d'onde AF,  $\omega_c(\mathbf{q})$  diminue et tombe à zéro le long de la direction (110) pour le vecteur d'onde  $\mathbf{q}_n$  qui connecte les points nodaux de la surface de Fermi. Ainsi, autour du vecteur d'onde AF, le continuum a une forme de dôme (zone 1). Au-delà du vecteur d'onde  $\mathbf{q}_n$ , le continuum réapparaît à plus haute énergie (zone 2). La forme du continuum dans la zone 1 impose une dispersion des excitations magnétiques alors que dans la zone 2 les excitations magnétiques peuvent disperser vers le haut. Il faut noter aussi que dans la zone 1, le mode collectif peut être vu comme une combinaison linéaire directe d'excitation électron-trou alors que dans le cas de la zone 2, l'excitation est faite de combinaison linéaire d'excitation umklapp. Dans ce type d'approche, il est évident que le pic de résonance magnétique est une spécificité de la phase supraconductrice. De plus, le confinement de ces excitations de spins au-dessous du continuum électron-trou permet de comprendre l'existence de deux branches d'excitation magnétique, l'une dispersant vers le bas et l'autre dispersant vers le haut. Ces branches sont séparées par des bandes silencieuses qui correspondent à l'empreinte du continuum sur la dispersion au vecteur d'onde  $\mathbf{q}_n$  [127].

Dans ce type d'approche, l'intensité du pic de résonance est quantifiable. En effet, pour l'énergie de la résonance  $\Omega_r$ , la partie imaginaire de la susceptibilité dynamique associée au mode collectif est donnée par :

$$Im\chi(\mathbf{q}, \omega) = \frac{\pi}{\frac{2I(\mathbf{q})}{(g\mu_B)^2}} \frac{dRe\chi_0(\mathbf{q}, \omega - \Omega_r(\mathbf{q}))}{d\omega} \delta(\omega - \Omega_r(\mathbf{q}))$$

À  $\omega_c(\mathbf{q})$ ,  $Im\chi_0(\mathbf{q}, \omega)$  a la forme d'une marche d'escalier et  $Re\chi_0(\mathbf{q}, \omega)$  donné par la relation de Kramers-Kroning, diverge logarithmiquement à la bordure du continuum :  $Re\chi_0(\mathbf{q}, \omega) \approx Re\chi_0(\mathbf{q}, 0) - \beta \ln\left(\frac{\omega_c(\mathbf{q}) - \omega}{\omega_c(\mathbf{q})}\right)$ . La conséquence est que le poids spectral de l'état lié de spin  $S=1$  est proportionnel à [129] :  $\frac{\omega_c(\mathbf{q}) - \Omega_r}{\omega_c(\mathbf{q})}$ . En effet, la partie imaginaire de la susceptibilité magnétique devient :

$$Im\chi(\mathbf{q}, \omega) = \frac{\pi}{\frac{2I(\mathbf{q})}{(g\mu_B)^2}} \frac{1}{\beta} \frac{\omega_c(\mathbf{q}) - \omega}{\omega_c(\mathbf{q})} \delta(\omega - \Omega_r(\mathbf{q}))$$

Ainsi, plus le mode est proche du continuum, plus le mode sera d'intensité faible. On comprend ainsi pourquoi, dans le cas du composé biplan  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ , le mode optique qui se trouve systématiquement à plus haute énergie que le mode acoustique est moins intense que le mode acoustique. Dans les composés bi-couches, on peut en fait tirer profit de l'existence de deux résonance. Pour ces systèmes,  $I(\mathbf{q})=I_{//}(\mathbf{q}) \pm I_{\perp}$ , où  $I_{//}(\mathbf{q})$  est l'interaction planaire et où  $I_{\perp}$  correspond à l'interaction entre les plans. Au vecteur d'onde AF, on a  $I_{//}(\mathbf{q}) \gg I_{\perp}$ , on supposera que l'interaction est la même pour le mode acoustique et le mode optique. De plus, on considérera en première approximation que la structure de bande n'est pas dégénérée, la bordure du continuum est la même pour le mode acoustique et la mode optique. Dans ces conditions, on voit que le rapport des poids spectraux entre les modes acoustique et optique, noté  $R = \frac{W_r^{ac}}{W_r^{op}}$  est égal à :  $\frac{\omega_c(\mathbf{q}_{AF}) - E_r^{ac}}{\omega_c(\mathbf{q}_{AF}) - E_r^{op}}$ .

## 1 Introduction

Concrètement, cela signifie que la bordure du continuum au vecteur d'onde AF peut être déduite de la mesure du mode acoustique et du mode optique :

$$\omega_c(\mathbf{q}_{\mathbf{AF}}) = \frac{E_r^{op}R - E_r^{ac}}{R - 1} \quad (1.17)$$

Ce type d'approche est très intéressant pour décrire l'évolution en dopage de la position des modes acoustique et optique discutée dans la partie précédente. En effet, lorsque  $R$  est grand,  $\omega_c(\mathbf{q}_{\mathbf{AF}})$  et  $E_r^{op}$  sont proches l'un de l'autre. C'est la raison pour laquelle  $E_r^{op}$  a une évolution en dopage très similaire à celle du gap[107]. Etant donné que les mesures d'ARPES dans le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  sont encore peu nombreuses, les comparaisons entre les mesures de DIN et d'ARPES ne peuvent être que qualitatives. Néanmoins, pour les quatre dopages pour lesquels  $\omega_c(\mathbf{q}_{\mathbf{AF}})$ ,  $E_r^{op}$  et  $E_r^{ac}$  ont été déterminés, on a montré que les poids spectraux des modes optique et acoustique sont proportionnels à la distance entre la bordure du continuum et les modes optique et acoustique (respectivement), en accord avec l'approche itinérante.

Bien que l'approche itinérante semble un cadre théorique satisfaisant pour comprendre les excitations magnétiques de la phase supraconductrice, il convient de remarquer que cette approche ne permet pas de comprendre les excitations magnétiques dans la phase normale. En particulier, il est impossible dans ce type d'approche d'obtenir du signal de forte intensité au-dessus de deux fois le gap supraconducteur. Cela signifie qu'au-dessus de 60meV typiquement, on attend un signal de l'ordre de quelque dizaine de  $\mu_B^2.eV^{-1}$  bien inférieur à celui observé dans la phase sous dopé. Au-delà même de cette difficulté, il est clair que même le signal de basse énergie dans la phase normale est difficile à comprendre. Si il n'y a plus de gap, il n'y a plus de raison d'avoir un pic de résonance. Ceci pose alors la question de la description et de la nature de la phase de pseudogap. En effet, le spectre de fluctuation AF dans la phase sous dopé correspond soit à une réponse spécifique associé à la phase de pseudogap ou soit à une persistance du caractère localisé de la dynamique de spin. Dans ce dernier cas, l'évolution du poids spectral avec le dopage traduirait une augmentation du caractère itinérant au détriment du caractère localisé. Les deux réponses étant systématiquement présentes. Quoi qu'il en soit, il faut introduire de nouveaux ingrédients à l'approche itinérante pour rendre compte de la dynamique de spin dans la phase sous dopé.

### Anomalie dans la dispersion électronique : rôle des fluctuations AF

Dans la mesure où il existe des indications de la présence de fortes fluctuations AF dans les phases supraconductrice et normale, il est naturel de s'interroger sur l'effet de ces corrélations magnétiques sur la dispersion électronique, en particulier dans la phase supraconductrice où la notion de quasiparticules est établie. Nous proposons donc dans cette partie une brève revue des anomalies observées par l'ARPES et de voir en quoi elles peuvent être comprises par un couplage entre les fluctuations de spin AF et les quasiparticules.

**Anomalie dans la dispersion électronique** Des informations importantes à propos de l'interaction entre les quasiparticules et des excitations collectives peuvent être obtenues grâce à l'étude de la dispersion des quasiparticules [34]. Dans une approche dans laquelle le spectre d'excitation électronique est décrit comme des quasiparticules habillées, les anomalies observées dans la dispersion des quasiparticules sont dues à des effets dans la self énergie qui apparaissent quand les quasiparticules sont couplées à des excitations donnant lieu à des processus de diffusion inélastique. Deux types d'informations complémentaires sont obtenues grâce à l'étude des courbes de distribution en énergie notées EDC ( $\mathbf{k}$  fixé) et grâce à l'étude des courbes de distribution de moment, notées MDC ( $E$  étant alors fixé).

On reporte sur la Fig.1.11.I.a) les coupes en énergie pour différents points de la zone de Brillouin près de la Surface de Fermi (SF) du composé Bi-2212 d'après [130] pour deux températures  $T=140\text{K}$  ( $>T_c=85\text{K}$ ) et

$T=40\text{K}$  ( $<T_c$ ). La coupe du haut correspond à un point de la SF près du point d'anti-noeud (M). La coupe du bas correspond au spectre près du point nodal. Les spectres intermédiaires sont les coupes qui se situent entre les deux.

Près du point M, le spectre présente une structure en forme de pic creux bosse (plus connu sous son nom anglais "peak dip pump") qui n'est présent que dans la phase supraconductrice. On reporte sur la Fig.1.11I.b) la dispersion des coupes MCS, mesurée expérimentalement. L'analyse de la dispersion dans les coupes MDC indique une forte modification de la dispersion entre la phase supraconductrice et le phase normale [131]. Près du niveau de Fermi, on observe un changement très net de la pente de la dispersion. De 60meV à 80meV, la dispersion a une forme en S, à plus haute énergie, la dispersion retrouve la dispersion de la phase normale. Un tel effet n'est pas observé près des points nodaux.

Dans la direction nodale, la dispersion est linéaire dans la zone de basse énergie avec des pentes différentes qui définissent deux vitesses différentes. Ces deux régions sont donc séparées par une rupture dans la pente de la dispersion (cet effet est appelé "kink" en anglais). On reporte sur la Fig.1.11I.c) les mesures le long de la direction nodale pour trois familles de cuprates supraconducteurs et pour différents dopages. Cette rupture dans la pente de la dispersion est observée dans plusieurs matériaux et diminue avec le dopage[34].

**Origine des anomalies dans la dispersion électronique** L'origine des anomalies dans la dispersion électronique est très débattue. Généralement, l'interprétation des anomalies de la dispersion électronique repose sur l'existence d'un couplage entre les électrons et un mode bosonique. Le débat repose sur l'origine de ce boson : magnétique ou phononique. La description de ce boson est importante car elle permet de comprendre quelles sont les excitations de basse énergie du système. Néanmoins, il est important de noter que même si l'on parvient à donner une description de ce boson, il n'est pas évident que la compréhension de la supraconductivité en découle. Nous proposons ici de voir en quoi les fluctuations AF discutées dans la partie ci-dessus peuvent permettre de comprendre les anomalies de la dispersion électronique.

Dans la phase supraconductrice, le spectre au point (M) est caractérisé par une structure de type pic creux bosse. Au-dessus de  $T_c$ , le spectre est caractérisé par une fonction spectrale large en énergie, l'élargissement augmentant avec le sous dopage. Une façon de décrire cette structure est d'invoquer l'interaction des électrons avec un mode bosonique (fin en énergie). La finesse du mode implique un fort effet de self énergie à une énergie égale à l'énergie du mode bosonique plus l'énergie de la quasiparticule, donnant lieu à un creux. Le fait que cette structure affecte essentiellement les points (M) implique que le moment du mode est proche de  $(\pi,\pi)$ [87]. Partant de cette idée, la distance en énergie entre le pic de quasiparticules et le creux observé dans le spectre EDC donne l'énergie du mode bosonique, notée  $\Omega$  [87]. Sur la Fig.1.11 2b), Campuzano et al. [132] reportent la valeur de  $\Omega$  déduite de leur mesure d'ARPES en fonction du dopage, ainsi que l'énergie de la résonance mesurée au vecteur d'onde  $(\pi,\pi)$  par DIN. L'accord entre les deux échelles d'énergies est très bon. Ce lien a d'ailleurs été confirmé par deux autres faits expérimentaux. L'amélioration dans les mesures d'ARPES a permis de résoudre la séparation des bandes liantes (noté B de l'anglais "bonding") et des bandes anti-liantes (noté A de l'anglais anti-liante) dans le composé Bi-2212 [133]. Cette séparation est la conséquence d'un terme de saut entre les deux plans  $\text{CuO}_2$  du bi-plan qui lève la dégénérescence des bandes. La structure pic-creux-bosse est principalement observé pour la bande B [133]. Près des points chauds, la densité d'état est plus grande dans la bande A que dans la bande B, ainsi pour obtenir une anomalie plus grande dans la bande B, il faut que le processus de diffusion couple la bande A et la bande B. C'est effectivement ce que réalise le mode acoustique qui correspond à un processus interbande [134]. Le mode optique correspond quand à lui un processus intrabande (AA, BB). Cette spécificité explique pourquoi la structure pic creux bosse est principalement observée dans la bande B : elle résulte de la diffusion de quasiparticules de la bande A par le mode magnétique le plus intense à savoir le mode acoustique[135, 87]. Aussi, il est connu que la substitution du cuivre par d'autres métaux de transition tel que le zinc (Zn) ou le nickel (Ni) réduit  $T_c$ .

L'étude par DIN de composé YBaCuO substitué au Zn ou Ni montre que le mode acoustique s'élargit et que son intensité diminue, l'énergie caractéristique du pic de résonance diminue aussi [136, 101]. Des récentes mesures d'APRES faites sur du Bi-2212 substitué au Zn et au Ni indique un élargissement de la structure creux-bosse comme on l'attendrait dans le cas d'un mode bosonique d'origine magnétique [137].

Ainsi l'ensemble de ces faits invite à conclure sur l'origine commune entre le mode bosonique responsable de la modification du spectre des quasiparticules de basse énergie et du pic de résonance magnétique acoustique. Il est également important de noter que le couplage entre les spectre de quasiparticule et le pic de résonance magnétique a également été suggéré par d'autre sonde que l'ARPES. On peut citer à titre d'exemple les mesures de conductivité tunnel de Zasadzinski et al. [138] ainsi que les mesures de conductivité optique de Hwang et al. [139]. L'étude des MDC aux points nodaux permet de remonter à  $\Sigma'$ . Il existe différentes approximations pour remonter à cette partie réelle. On reporte le résultat de Johnson et al. [140] sur la Fig.1.11 a). Sur cette figure, on peut voir la partie réelle de la self énergie ( $\Sigma'(\omega)$ ) dans les phase normale et supraconductrice et la différence entre les deux pour trois échantillons de Bi-2212 de dopages différents. La dépendance en énergie de  $\Sigma'$  se présentent sous la forme d'un spectre très large sur lequel apparaît un pic en passant dans l'état supraconducteur. La dépendance en température de  $\Sigma'(\omega)$  à l'énergie du pic reproduit remarquablement la dépendance en température de la partie imaginaire de la susceptibilité magnétique mesurée à l'énergie du pic de résonance magnétique. Les anomalies observé dans le spectre de charge suggère fortement que les quasiparticules interagissent avec le pic de résonance magnétique, ce qui révéle l'existence d'un couplage entre les degrés de liberté du spin et de la charge. Cependant, le pic de résonance magnétique ne peut vraisemblablement pas expliquer la totalité des anomalies électroniques et il est nécessaire de lui associer un spectre large de fluctuations (qui s'étend typiquement jusqu'à plusieurs centaines de meV). Tant l'origine que le rôle de ce large spectre n'est pas encore clairement identifié.

### 1.3 Problématique de la thèse

Cette courte présentation des SHTCs a permis de mettre en évidence certains faits. La phase supraconductrice des SHTCs peut se décrire comme un état formé de paires de Cooper de symétrie  $d$  singulet de spin. Aussi bien que l'on arrive à décrire l'état supraconducteur des SHTCs, il n'y a à ce jour aucun consensus quand au moteur de l'instabilité supraconductrice dans ces composés. Comme nous l'avons vue contrairement aux cas de la théorie BCS, la phase normales des SHTCs présentent de forte déviations à un métal standard. Ainsi, il est clair que la physique des SHTCs nécessite d'aller au delà de la théorie BCS (on rappelle d'ailleurs que les faibles longueurs de cohérence des SHTCs dans la phase supraconductrice suggèrent qu'une approche en champ moyen ne peut pas fonctionner).

Durant notre courte revue, nous avons abordé quelques approches théoriques proposées pour décrire cette supraconductivité non conventionnelles ainsi que les anomalies de la phase normale. Une partie de ces modèles focalisent sur les corrélations AF [86, 84, 93]. En effet, il est clair que la proximité de la phase AF et supraconductrice invite à s'intéresser à l'évolution des corrélations AF dans la phase métallique du diagramme de phase des STHCs. Depuis plus de quinze ans, la technique de DIN s'est intéressée à l'étude des fluctuations de spin AF. Cette thèse se situe dans la continuité de ces travaux. Deux approches très différentes sont généralement proposées pour décrire ces excitations AF : l'une part de la phase isolante, l'autre de la phase métallique. Dans une approche itinérante, on a discuté le fait que le pic de résonance magnétique (spécificité de la phase supraconductrice) est vu comme une exciton de spin  $S=1$ . Dans ce type d'approche, cette excitation se comprend comme le résultat de l'ouverture d'un gap supraconducteur, de fortes corrélations magnétiques et des propriétés topologiques particulières de la SF. Il est important de noter que la description de ces excitations magnétiques peut avoir des conséquences importantes. En particulier dans une approche de type couplage fort, c'est la même interaction  $J$  qui est responsable de l'appariement supraconducteur et des

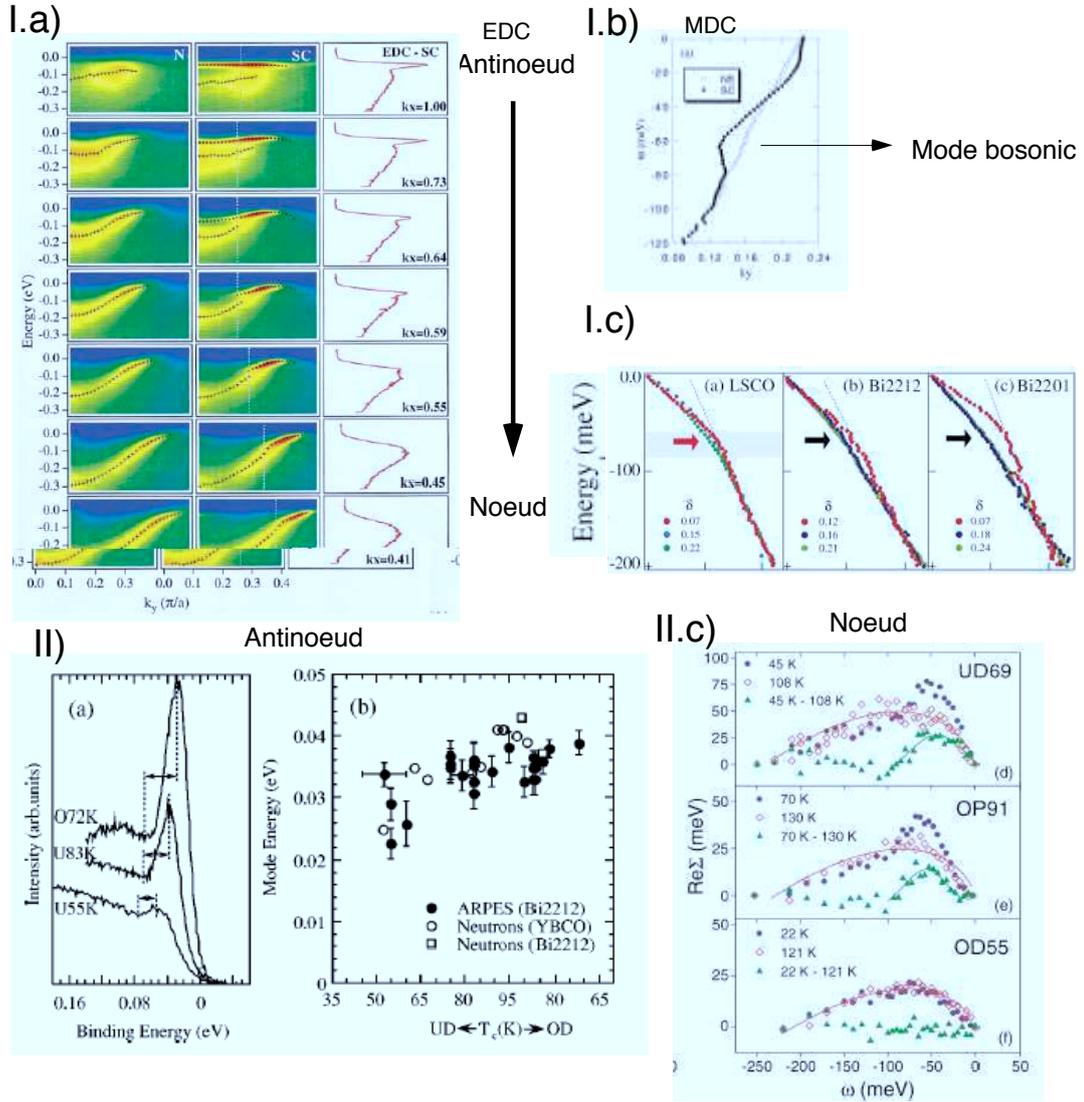


FIG. 1.11: I) a) D'après [130] : Intensité ARPES mesurée dans la phase normale ( $T=140K$ ) et dans l'état supraconducteur ( $T=40K$ ) pour un échantillon de Bi-2212 de  $T_c=89K$  le long de  $k_y$  pour différentes valeurs de  $k_x$ . Le panneau le plus haut correspond à un point se trouvant près du point nodal et le panneau le plus bas correspond à un point se trouvant près du point anti-nodal (AN). b) Dispersion MDC dans l'état supraconducteur et la phase normale pour un échantillon de dopage optimal de Bi-2212 de  $T_c=90K$   $k_y$  (en unité de  $\pi/a$ ) et pour  $k_x=0.59\pi/a$ . c) Dispersion MDC pour différents dopages et différents cuprates. II) D'après [132] : Spectres d'ARPES pour le composé Bi-2212 au vecteur d'onde  $(\pi, 0)$  pour différents dopages, les flèches indiquent comment  $\Omega$  est déterminé à partir de ce spectre. À droite, comparaison entre la dépendance en dopage du mode  $\Omega$  déduite des mesures d'ARPES et de la position en énergie du pic de résonance magnétique. b) D'après [140], partie réelle de la self énergie en fonction de l'énergie dans les phase supraconductrice, normale ainsi que la différence des deux pour trois échantillons : un sous-dopé ( $T_c=69K$ , un de dopage optimal ( $T_c=91K$ ) et un surdopé ( $T_c=55K$ ).

excitations de spins. Ainsi la modélisation des excitations de spins AF de basse énergie permettent en principe de remonter aux interactions entre quasiparticules. Jusqu'à maintenant l'étude par diffusion inélastique des neutrons (DIN) dans les supraconducteurs à haute température critique s'est essentiellement portée sur deux familles de composés ayant des spectres assez différent : la famille monocouche  $\text{La}_{2-x}(\text{Ba},\text{Sr})_x\text{CuO}_4$  et la famille bicouche  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ . Dans ces conditions, il est clair que l'investigation d'autres systèmes devient fondamentale pour déterminer le point commun entre toutes ces fluctuations magnétiques au-delà des spécificités de chacun des systèmes. Cette question est d'autant plus importante que chaque technique expérimentale possède son système de référence. Dans le cas des mesures de spectroscopie de charge (ARPES et STM par exemple), le système de référence est le composé Bi-2212 qui jusqu'à maintenant n'a été que peu étudié par DIN. Réciproquement, l'étude des excitations de chagres dans les composés  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  et  $\text{La}_{2-x}(\text{Ba},\text{Sr})_x\text{CuO}_4$  ne sont que ponctuel. Afin de réaliser des comparaisons quantitatives, il est maintenant indispensable de travailler sur le même système de référence. Cette thèse s'est donc intéressé à **l'étude des des excitations magnétiques dans la phase supraconductrice et normale du composé Bi-2212 par DIN**. Nous reportons l'ensemble de nos résultats concernant cette étude dans le Chapitre 3.

La comparaison entre les mesures d'ARPES et de DIN suggère un fort couplage spin fermions qui pourrait être l'équivalent du couplage électron phonon dans les supraconducteurs conventionnelles. En particulier, ce couplage serait responsable des anomalies de basse énergie dans la dispersion des quasiparticules (changement de pente dans la dispersion électronique aux points nodaux et structure pic-creux-bosse au point antinodal). Néanmoins le spectre de fluctuation AF tels qu'il mesuré par DIN ne permet pas de comprendre toutes les anomalies du spectre électronique. En effet, les mesures d'ARPES indiquent également la présence d'un continuum qui s'étend jusqu'à de hautes énergies (plusieurs centaines de meV). Il n'y a ce jour pas de consensus sur l'origine de continuum[87]. Ce continuum pourrait être lié par exemple aux fluctuations magnétiques du continuum électron-trou (difficilement mesurable par DIN). Ce continuum pourrait aussi être liés à l'existence d'un point critique quantique. Dans ce cas là, le continuum correspondrait aux fluctuations d'un ordre en compétition avec la supraconductivité. Tel est l'idée par exemple développé par C.Varma [43]. Dans ce type d'approche, les anomalies de la phase normale des SHTCs sont alors liés à l'existence d'un tel ordre. Différents types d'ordre ont été proposé pour décrire la phase de pseudogap. Certaines de ces approches postulent l'existence d'un ordre magnétique à longue distance non conventionnel formé de boucles de courant parcourant le plan  $\text{CuO}_2$ . Durant cette thèse, nous nous sommes intéressé à **l'étude de différents candidats postulés pour décrire la phase de pseudogap par diffusion de neutron polarisé**. En effet, comme nous le verrons dans le Chapitre 4, ce type d'ordre non conventionnel peut être testé par la diffusion de neutrons polarisés. Nous reportons ensuite les résultats de nos mesures dans le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$  dans le Chapitre 5 et dans le composé  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  dans le Chapitre 6. Enfin dans un dernier Chapitre, nous proposons une discussion et une analyse critique des résultats obtenus.

## 2 Aspects expérimentaux

Durant cette thèse, nous nous sommes intéressés à l'étude des supraconducteurs à haute température critique (SHTCs) par diffusion de neutrons. En plus d'une problématique, toute expérience de diffusion de neutrons nécessite au moins deux éléments :

- un spectromètre bien adapté à la physique recherchée
- un échantillon de volume suffisant

Dans ce deuxième chapitre, nous proposons de nous intéresser à ces deux aspects. On présentera tout d'abord le principe de la diffusion de neutrons ainsi que les différentes spécificités des spectromètres utilisés lors de nos expériences. On présentera ensuite les différentes familles d'échantillons utilisées lors de nos expériences. Avant de rentrer dans le vif du sujet, nous présenterons les raisons pour lesquelles le neutron est une sonde bien adaptée à notre problématique et à la matière condensée de façon générale.

### 2.1 Pourquoi le neutron est il une bonne sonde de la matière ?

Les neutrons sont des particules présentes dans tous les noyaux atomiques (excepté l'hydrogène ordinaire). Le neutron ne possède pas de charge et a une masse très proche de celle du proton. Un neutron libre, c'est-à-dire qui n'est pas incorporé à un noyau, est instable avec un demi-temps de vie d'environ douze minutes. Il se désintègre alors en un proton, un électron et un anti neutrino.

L'intérêt du neutron est double. Tout d'abord le neutron est une onde de matière. L'interférométrie neutronique a été ainsi employée pour démontrer de nombreuses propriétés fondamentales de la mécanique quantique [141]. On pourra pour plus de détails se référer à l'ouvrage de H.Rauch [142]. A cet égard, l'étude des neutrons est complémentaire de l'optique quantique.

Ensuite, le neutron peut être utilisé pour sonder les propriétés de la matière grâce à ses propriétés fondamentales. En effet, la longueur d'onde et l'énergie des neutrons peuvent être adaptées aux tailles et aux énergies caractéristiques de la matière condensée.

**Une longueur d'onde de l'ordre de l'Angström** Pour un neutron à  $T=300\text{K}$ , la longueur d'onde est typiquement  $1.8\text{\AA}$ . Elle est du même ordre de grandeur que la distance inter-atomique. Il est donc possible d'étudier la structure atomique de composés grâce à la figure d'interférence obtenue par le passage d'un faisceau de neutrons dans un système diffusant. La diffusion de neutrons est complémentaire à celle de la diffusion de photons X. En effet, comme on le verra dans la partie suivante, le potentiel d'interaction nucléaire neutron-matière est très différent de celui de l'interaction photon-matière. Ainsi par exemple, les composés de faible numéro atomique qui sont difficiles à voir en rayon X sont plus faciles à identifier par les neutrons.

**Une énergie de l'ordre de la  $10\text{meV}$**  Pour un neutron de  $T=300\text{K}$ , l'énergie du neutron est typiquement  $25.8\text{meV}$ . Elle est donc du même ordre de grandeur que les excitations de basse énergie telles que les phonons et les magnons. Pour les systèmes où l'état fondamental n'est pas compris, l'étude du spectre de fluctuations de basse énergie est fondamentale car elle permet de remonter à la forme ainsi qu'aux énergies caractéristiques des interactions présentes dans le système. Les lois de conservation (sur l'impulsion et l'énergie) permettent

## 2 Aspects expérimentaux

de remonter aux relations de dispersion  $\omega(\mathbf{k})$ . En effet, les quantités totales d'énergie et de moment du neutron et du système diffusant sont conservées et s'écrivent en général :

$$\hbar\omega = E_i - E_f = \frac{\hbar^2}{2m_n}(k_i^2 - k_f^2) \quad (2.1)$$

$$\hbar\mathbf{Q} = \hbar\mathbf{q} + \hbar\boldsymbol{\tau} = \hbar(\mathbf{k}_i - \mathbf{k}_f) \quad (2.2)$$

où  $m_n$  correspond à la masse du neutron,  $\hbar\omega$  représente l'énergie de transfert du neutron vers le système :  $E_f(E_i)$  correspond à l'énergie finale (initiale) du système diffusant.  $\hbar\mathbf{Q}$  représente le transfert d'impulsion du neutron vers le système :  $\hbar\mathbf{k}_i$  et  $\hbar\mathbf{k}_f$  correspondent respectivement aux impulsions initiale et finale du neutron.  $\boldsymbol{\tau}$  représente un vecteur du réseau réciproque. Actuellement, la diffusion de neutrons reste la sonde la plus efficace et la plus utilisée pour déterminer le spectre des phonons et des excitations magnétiques.

**Une sonde en volume** La neutron est une particule non chargée, elle peut donc pénétrer en profondeur le matériau : la diffusion de neutrons est une sonde en volume.

Qualitativement, nous venons de voir que la diffusion de neutrons permet de sonder la matière. En fait, tout processus de diffusion d'un neutron est exprimé en terme d'une quantité fondamentale : la section efficace différentielle, notée  $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega}$ . Cette quantité représente le nombre de neutrons diffusés par seconde dans l'angle solide  $d\Omega$  qui a transféré au système diffusant une énergie comprise en  $\hbar\omega$  et  $\hbar(\omega + d\omega)$  normalisé par le flux incident, et par  $d\Omega$  et  $d\omega$ . Afin de discuter quantitativement l'interaction neutron-matière, nous proposons de décrire la section efficace différentielle des neutrons.

## 2.2 Section efficace de la diffusion de neutrons

Suivant les ouvrages de référence[143, 144, 145], la section efficace différentielle peut s'écrire d'après la règle d'or de Fermi comme :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega}(\mathbf{Q}, \omega) = \frac{k_f}{k_i} \left( \frac{m_n}{2\pi\hbar^2} \right) \sum_{\lambda_i} p_{\lambda_i} \sum_{\lambda_f} |\langle \mathbf{k}_f, \lambda_f | V | \lambda_i, \mathbf{k}_f \rangle|^2 \delta(\hbar\omega + E_i - E_f) \quad (2.3)$$

où  $k_i$  et  $k_f$  sont les vecteurs d'ondes initial et final du neutron,  $\lambda_i$  et  $\lambda_f$  représentent l'état initial et final du système diffusant d'énergies respectives  $E_i$  et  $E_f$ . La section efficace différentielle correspond à la somme pondérée de toutes les transitions du système neutron-échantillon de l'état :  $|\lambda_i, \mathbf{k}_i\rangle$  vers l'état  $|\lambda_f, \mathbf{k}_f\rangle$ . Cette transition conserve bien évidemment l'énergie. La probabilité que le système diffusant soit dans l'état  $\lambda_i$  est donnée par  $p_i$  qui dépend de la température.  $V$  correspond au potentiel d'interaction entre la matière et le neutron. Le neutron interagit avec la matière via les quatre interactions fondamentales : les interactions électromagnétique, forte, faible et gravitationnelle. En termes de section efficace, les interactions dominantes sont les interactions nucléaires (forte et faible) et électromagnétique. Pour chacune d'elle, nous proposons de dériver la section efficace dans les cas particuliers que nous discuterons au cours de cette thèse.

### 2.2.1 Interaction nucléaire

Lorsqu'un faisceau de neutrons passe à travers la matière, l'intensité du faisceau diminue car les neutrons sont absorbés ou diffusés par la matière. Pour des neutrons rapides, il existe de nombreux processus d'absorption. Pour les neutrons froids, l'absorption vient principalement de la capture d'un neutron. En ce qui concerne la diffusion nucléaire, le potentiel de diffusion est modélisé par un pseudo potentiel de Fermi de la forme[143, 145] :

$$V(\mathbf{r}) = \left(\frac{2\pi\hbar^2}{m_n}\right)^2 \sum_j b_N(j) \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j) \quad (2.4)$$

où la somme est effectuée sur tous les atomes de l'échantillon en position  $\mathbf{R}_j$  de longueur de diffusion nucléaire  $b_N(j)$ . Dans l'approximation de Born, la section efficace de diffusion nucléaire s'écrit comme :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = \frac{k_f}{k_i} \left(\frac{1}{2\pi\hbar}\right) \sum_{j,j'} b_N(j) b_N(j') \int_{-\infty}^{\infty} \langle \exp(i\mathbf{Q}(\mathbf{R}_j(t) - \mathbf{R}_{j'}(0))) \exp(-i\omega t) dt \rangle \quad (2.5)$$

L'Eq.2.5 correspond à l'équation de base pour dériver tous les processus de diffusion (élastique et inélastique) pour la diffusion nucléaire. La longueur de diffusion d'un site à un autre peut varier à cause de la présence de différents isotopes et du spin nucléaire  $\mathbf{I}$ . La moyenne  $\langle \rangle$  correspond à une moyenne statistique sur les états initiaux. Du fait de la distribution statistique des longueurs de diffusion sur chaque site diffusant, cette section efficace se décomposera en deux termes : un terme de diffusion nucléaire cohérente et un terme de diffusion nucléaire incohérente.

Dans le cas où le système diffusant est un cristal avec plus d'un atome par maille, la position de chaque site diffusant est donnée par :  $\mathbf{R}_{\mathbf{l},\mathbf{d}} = \mathbf{l} + \mathbf{d} + \mathbf{u}_{\mathbf{l},\mathbf{d}}$  où  $\mathbf{l}$  est un vecteur du réseau de Bravais,  $\mathbf{l} + \mathbf{d}$  correspond à la position d'équilibre du  $d^{ieme}$  atome de la maille élémentaire et  $\mathbf{u}_{\mathbf{l},\mathbf{d}}$  est le déplacement du  $d^{ieme}$  noyau par rapport à sa position d'équilibre. La section efficace cohérente élastique s'écrit comme :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega}(\mathbf{Q}) = N \frac{(2\pi)^3}{v_0} \sum_{\tau} \delta(\mathbf{Q} - \tau) |F_N(\mathbf{Q})|^2 \quad (2.6)$$

où  $N$  correspond au nombre d'atomes dans l'échantillon,  $v_0$  correspond au volume de la maille élémentaire et

$$F_N(\mathbf{Q}) = \sum_d b_N(d) \exp(i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{d}) \exp(-\mathbf{W}_d) \quad (2.7)$$

$F_N(\mathbf{Q})$  est le facteur de structure nucléaire de la cellule élémentaire. Le facteur  $W_d$  est le facteur Debye-Weller. Pour un pic de Bragg donné pour une structure orthorombique, on a :

$$W_d = \frac{1}{2} [\langle u_d^2 \rangle_{11} Q_a^2 + \langle u_d^2 \rangle_{22} Q_b^2 + \langle u_d^2 \rangle_{33} Q_c^2] \quad (2.8)$$

avec  $\langle u_d^2 \rangle_{11}$  ( $\langle u_d^2 \rangle_{22}$ ,  $\langle u_d^2 \rangle_{33}$ ) qui représente le déplacement moyen au carré du  $d^{ieme}$  atome de la maille élémentaire le long de l'axe  $\mathbf{a}^*$  (respectivement le long de  $\mathbf{b}^*$ ,  $\mathbf{c}^*$ )

### 2.2.2 Interaction électromagnétique

Le neutron possède un moment dipolaire  $\mu_{\mathbf{n}} = -\gamma\mu_N\sigma$  avec  $\mu_N = \frac{e\hbar}{2m_n}$ ,  $\sigma$  le spin du neutron (1/2) et  $\gamma$  le facteur gyromagnétique du neutron qui vaut 1.93. Ce moment magnétique peut se coupler avec tous les champs magnétiques présents dans le matériau  $\mathbf{B}(\mathbf{r})$ . Le terme d'interaction  $V$  s'écrit alors :

$$V(\mathbf{r}) = -\mu_{\mathbf{n}} \cdot \mathbf{B}(\mathbf{r}) \quad (2.9)$$

Pour un faisceau de neutrons non polarisés, il est possible de réécrire la section efficace comme :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = \frac{k_f}{k_i} \left(\frac{m_n}{2\pi\hbar^2} \gamma\mu_N\right)^2 \int_{-\infty}^{\infty} \langle \mathbf{B}(\mathbf{Q}, 0) \mathbf{B}(-\mathbf{Q}, t) \rangle \exp(-i\omega t) dt \quad (2.10)$$

La section de diffusion magnétique est donc une mesure directe de la transformée de Fourier de la fonction de corrélation du champ magnétique. Historiquement, la section efficace de diffusion magnétique est exprimée

## 2 Aspects expérimentaux

en fonction de la distribution de moment plutôt qu'en fonction de la distribution de champ magnétique. Le lien entre la transformée de Fourier de la distribution de champ magnétique,  $\mathbf{B}(\mathbf{Q})$ , et la transformée de Fourier de la distribution de moment,  $\mathbf{M}(\mathbf{Q})$  (le moment est alors exprimé en  $\mu_B$ ), est donné par :

$$\mathbf{B}(\mathbf{Q}, \mathbf{t}) = \mu_0 \tilde{\mathbf{Q}} \times \mathbf{M}(\mathbf{Q}, \mathbf{t}) \times \tilde{\mathbf{Q}} \quad (2.11)$$

où  $\tilde{\mathbf{Q}} = \frac{\mathbf{Q}}{Q}$ <sup>1</sup>

Dans le cas où le champ magnétique est créé par le spin des électrons non appariés se trouvant sur un réseau de Bravais, la section efficace de diffusion magnétique s'écrit comme[144, 145] :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega}(\mathbf{Q}, \omega) = (\gamma r_0)^2 \frac{k_f}{k_i} |f(\mathbf{Q})|^2 \exp(-W(\mathbf{Q})) \sum_{\alpha, \beta} \left( \delta_{\alpha, \beta} - \frac{Q^\alpha Q^\beta}{Q^2} \right) S^{\alpha\beta}(\mathbf{Q}, \omega) \quad (2.12)$$

où

$$S^{\alpha\beta}(\mathbf{Q}, \omega) = \frac{1}{2\pi\hbar} \sum_{i,j} \exp(-i\mathbf{Q} \cdot (\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j)) \int dt \langle S_i^\alpha(0) S_i^\beta(t) \rangle \exp(-i\omega t) \quad (2.13)$$

où  $\alpha, \beta$  correspondent aux composantes x, y et z du vecteur d'onde  $\mathbf{Q}$ .  $r_0$  correspond au rayon classique de l'électron.  $f(\mathbf{Q})$  correspond au facteur de forme magnétique. Le facteur de forme correspond à la transformée de Fourier de la distribution de courant responsable du champ magnétique. Dans une approche où le magnétisme est créé par une distribution de spin, ce facteur correspond en fait à la transformée de Fourier de la probabilité de présence du spin de l'électron. Dans le cas de la dynamique de spin des supraconducteurs à haute température critique, le facteur de forme évolue comme celui des orbitales  $3d_{x^2-y^2}$  du cuivre  $\text{Cu}^{2+}$ .

Le facteur  $(\delta_{\alpha, \beta} - \frac{Q^\alpha Q^\beta}{Q^2})$  est une conséquence directe de l'Eq.2.11, il est appelé facteur d'orientation ou encore facteur géométrique. D'après l'Eq.2.11, la diffusion de neutrons n'est sensible qu'aux composantes de  $\mathbf{M}(\mathbf{Q})$  perpendiculaires au vecteur de diffusion  $\mathbf{Q}$ , notées  $\mathbf{M}_\perp$ . On reporte sur la Fig.2.1.a) la relation géométrique entre  $\mathbf{M}$  et  $\mathbf{M}_\perp$  ainsi que le repère  $(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z})$  qui est choisi de façon à ce que la direction  $\mathbf{x}$  soit le long de la direction  $\mathbf{Q}$ , que la direction  $\mathbf{y}$  soit perpendiculaire à  $\mathbf{Q}$  et dans le plan de diffusion et que la direction  $\mathbf{z}$  soit perpendiculaire au plan de diffusion.

Dans la limite élastique (où  $|\mathbf{k}_i| = |\mathbf{k}_f|$ ), la section efficace magnétique peut s'écrire de façon très analogue à la section efficace de diffusion élastique nucléaire :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega}(\mathbf{Q}) = N \frac{(2\pi)^3}{v_0} \sum_{\tau} \delta(\mathbf{Q} - \tau) |F_m(\mathbf{Q})|^2 \quad (2.14)$$

où

$$F_m(\mathbf{Q}) = \gamma r_0 \sum_d f_d(\mathbf{Q}) \exp(i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{d}) \sigma \cdot \mathbf{M}_\perp(\mathbf{d}) \exp(-\mathbf{W}_d) \quad (2.15)$$

où  $f_d(\mathbf{Q})$  représentent le facteur de forme et  $\mathbf{M}_\perp(\mathbf{d}) = \mathbf{b}_f \tilde{\mathbf{Q}} \times \mathbf{M}_d \times \tilde{\mathbf{Q}}$  où  $\mathbf{M}_d$  est le spin du d<sup>me</sup> atome. On peut ainsi définir une longueur de diffusion magnétique pour chaque atome d,  $b_m(d)$ , analogue à la longueur de diffusion nucléaire :  $b_m(d) = \gamma r_0 f_d(\mathbf{Q}) \sigma \cdot \mathbf{M}_\perp(\mathbf{d})$ . La longueur de diffusion totale, notée b, s'écrit ainsi de façon générale :

$$b(d) = b_N(d) + \gamma r_0 f_d(\mathbf{Q}) \sigma \cdot \mathbf{M}_\perp(\mathbf{d}) \quad (2.16)$$

<sup>1</sup>pour démontrer cette relation, il faut partir du potentiel vecteur :  $\mathbf{B}(\mathbf{r}) = \text{curl} \mathbf{A}(\mathbf{r})$  avec  $\mathbf{A}(\mathbf{r}) = \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{\mathbf{m} \times \mathbf{r}}{r^2}$ . La transformée de Fourier du terme  $\frac{\mathbf{m} \times \mathbf{r}}{r^2}$  est donnée par  $4\pi \exp(i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_1) (\tilde{\mathbf{Q}} \times \mathbf{m}_1 \times \tilde{\mathbf{Q}})$

### 2.2.3 Spécificité de l'interaction électromagnétique : les processus Spin Flip

Le calcul de la section efficace de diffusion élastique pour l'interaction magnétique peut finalement se mettre sous une forme très proche de celui de la section efficace de diffusion élastique pour l'interaction nucléaire. Cependant, il existe entre ces deux interactions une différence fondamentale : l'interaction magnétique peut induire un renversement du spin du neutron alors que l'interaction nucléaire conserve le spin du neutron (en l'absence d'un ordre de moment magnétique nucléaire). D'après l'Eq.2.9, le champ magnétique présent dans le matériau se couple au spin du neutron et donc aux trois matrices de Pauli ( $\sigma_{\hat{x}}, \sigma_{\hat{y}}, \sigma_{\hat{z}}$ ). La direction  $\hat{z}$  est définie par la polarisation du neutron, notée  $\mathbf{P}$  (c'est-à-dire l'axe sur lequel le spin du neutron est projeté), les directions  $\hat{x}$  et  $\hat{y}$  sont alors imposées pour former une base orthogonale. Ainsi on peut différencier deux types de processus de diffusion possibles : ceux qui conservent le spin du neutron ou *processus Non Spin Flip* (noté *NSF*) et ceux qui renversent le spin du neutron ou *processus Spin Flip* (noté *SF*). On reporte sur la Fig.2.1.b) les différentes composantes de  $\mathbf{M}_{\perp}$  projetées dans la base ( $\hat{x}, \hat{y}, \hat{z}$ ) pour une polarisation  $\mathbf{P}$  prise dans le plan de diffusion. Dans chacun des canaux, on retrouve respectivement les deux types de contributions précédentes :

- dans le canal NSF : la section efficace de diffusion nucléaire et la section efficace de diffusion magnétique associée aux composantes du moment perpendiculaires à  $\mathbf{Q}$  et parallèles à  $\mathbf{P}$ , notées  $\mathbf{M}_{\perp, \hat{z}}$
- dans le canal SF : la section efficace magnétique associée aux composantes du moment perpendiculaires à  $\mathbf{Q}$  et perpendiculaires à  $\mathbf{P}$ , notées respectivement  $\mathbf{M}_{\perp, \hat{x}}$  et  $\mathbf{M}_{\perp, \hat{y}}$

Dans le cas où la polarisation  $\mathbf{P}$  est parallèle à  $\mathbf{Q}$ ,  $\mathbf{M}_{\perp, \hat{z}}=0$  (c'est-à-dire la composante du moment perpendiculaire à  $\mathbf{Q}$  et parallèle à  $\mathbf{P}$ ). Ce cas de figure est présenté sur la Fig.2.1.c). Ainsi, tous les processus NSF sont d'origine purement nucléaire et tous les processus SF sont d'origine magnétique. Ce cas de figure est particulièrement important puisque les diffusions nucléaire et magnétique sont dans deux canaux distincts. De plus, il est important de noter que lorsque l'on change la polarisation, on change les composantes du moment qui vont diffuser dans le canal SF (et donc NSF). Cela signifie qu'en principe, l'étude du canal SF pour trois directions de polarisation orthogonales les unes aux autres permet de remonter à l'orientation des moments dans la cellule élémentaire. Les neutrons polarisés sont donc un outil de choix pour résoudre des structures magnétiques.

Par souci de simplicité, la section efficace de diffusion dans le cas des neutrons polarisés ne sera pas discutée plus longuement. Il est important de noter que dans notre approche simplifiée, nous avons uniquement envisagé le cas où la polarisation du neutron est la même avant et après échantillon, il s'agit de l'analyse longitudinale de la polarisation. Dans le cas d'arrangements de spin complexes, il apparaît de nouveaux termes dans la section efficace et dans l'expression de l'état de la polarisation finale, ces termes sont omis dans le cas de structures ferromagnétique et anti-ferromagnétique. Ces nouveaux termes peuvent donner lieu à des effets de polarisation du faisceau non triviaux. On pourra se référer par exemple à [146, 147] pour un traitement complet des équations de la diffusion de neutrons polarisés.

### 2.2.4 Lien entre susceptibilité et fonction de réponse

La section efficace différentielle magnétique écrite sous la forme de distribution de moment montre que celle-ci est directement proportionnelle à la transformée de Fourier dans l'espace et le temps de la fonction de corrélation spin-spin. La section efficace de diffusion magnétique est donc une mesure directe de la fonction de corrélation de type spin-spin. D'après le théorème de fluctuation dissipation, la fonction de corrélation est directement liée à la partie imaginaire de la susceptibilité [143, 145] :

$$S^{\alpha\beta}(\mathbf{Q}, \omega) = \frac{1 + n(\omega, T)}{\pi} \frac{\chi''_{\alpha\beta}(\mathbf{Q}, \omega)}{(g\mu_B)^2} \quad (2.17)$$

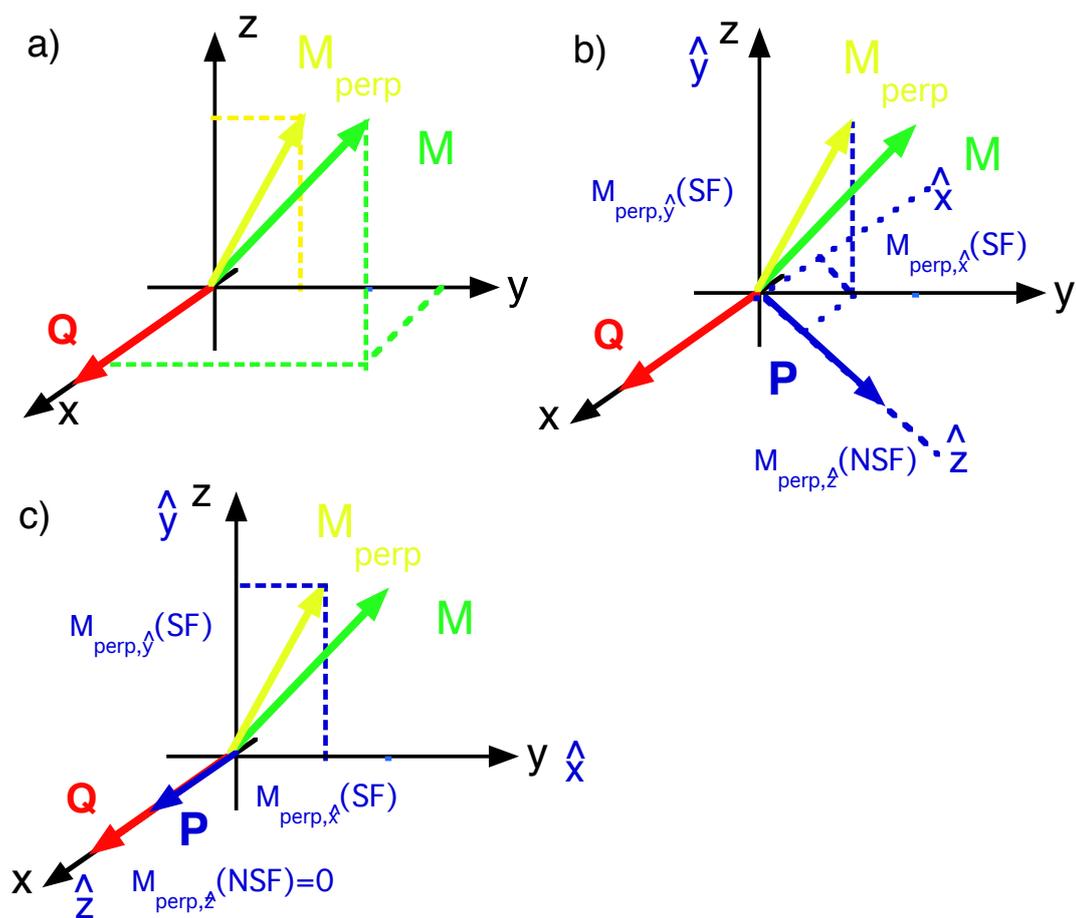


FIG. 2.1: a) Projection du moment  $M$  dans le plan perpendiculaire au vecteur de diffusion  $Q$ . Le repère  $(x,y,z)$  est tel que la direction  $x$  est parallèle à  $Q$  et  $y$  est perpendiculaire à  $Q$  et appartient au plan de diffusion et  $z$  est perpendiculaire au plan de diffusion b) Projection de  $M_{\perp}$  dans le repère  $(\hat{x}, \hat{y}, \hat{z})$  défini par la polarisation du neutron  $P$  c) même chose que b) pour la polarisation  $P // Q$

## 2.3 Réalisation pratique d'une expérience de diffusion de neutrons

où  $\chi''_{\alpha\beta}(\mathbf{Q}, \omega)$  est exprimée en  $\mu_B^2 \cdot eV^{-1}$  et  $1 + n(\omega, T) = \frac{1}{1 - \exp(-\frac{\hbar\omega}{k_B T})}$  est le facteur de balance détaillé qui traduit l'équilibre thermique entre le système diffusant et le thermostat à température  $T$ . *La section efficace est donc une mesure du spectre d'excitations magnétiques en énergie et en  $\mathbf{Q}$ . Elle permet donc d'avoir accès aux excitations propres de basse énergie du système diffusant.*

## 2.3 Réalisation pratique d'une expérience de diffusion de neutrons

Après la présentation des équations de la section efficace de diffusion de neutrons, intéressons nous à la réalisation pratique d'une expérience de diffusion de neutrons sur un spectromètre trois axes. Nous porterons une attention particulière aux éléments nécessaires à la réalisation d'une expérience de diffusion de neutrons polarisés.

### 2.3.1 Les différentes sources

Nos évoquons ici les différents types de sources de neutrons. Il existe actuellement deux types de sources : les sources à spallation et les sources utilisant un réacteur nucléaire. Historiquement, les premières études de diffusion de neutrons ont été réalisées sur des réacteurs nucléaires. Dans ce type d'installation, les neutrons sont produits par la fission de l'élément radioactif  $U^{235}$  avec une réaction en chaîne auto-alimentée. Au niveau de coeur, des ouvertures permettent de prélever une fraction des neutrons sans que la réaction en chaîne ne s'arrête. Il s'agit du mode de production des neutrons au réacteur Orphée (LLB/Saclay), à l'Institut Laue Langevin (Grenoble) et au nouveau réacteur FRM-II (Munich). Dans le cas des sources à spallation, les neutrons sont produits par un faisceau de protons envoyé sur une cible de métal lourd. Les neutrons ne sont pas produits en continu mais sous forme de pulse. De nombreuses sources à spallation existent, par exemple ISIS en Angleterre, SINQ au PSI (qui possède la spécificité d'être une source en continu) et la source nationale américaine SNS. Ces deux types d'installation produisent des neutrons de très grande énergie qui sont ensuite ralentis et répartis dans différents types de sources en fonction de la gamme d'énergie des neutrons :

- Les neutrons sont dits froids quand leur énergie est inférieure à 20meV. C'est le cas des spectromètres 4F1/4F2 du LLB, du spectromètre IN14/IN12 (CEA-CRG) de l'ILL, du spectromètre RITA-II de SINQ et du spectromètre PANDA de FRM2.
- Les neutrons sont dits thermiques lorsque leur énergie est comprise entre 10meV à 130meV. C'est le cas des spectromètres 1T/2T du LLB, IN8/IN22 (CEA-CRG) de l'ILL et PUMA de FRM2.
- Les neutrons sont dits chauds lorsque leur énergie est comprise entre 60 et 500meV. C'est le cas du spectromètre IN1 de l'ILL.

Durant cette thèse, les expériences ont été réalisées dans les différents centres européens : l'Institut Laue Langevin (puissance du réacteur  $P=54MW$ ) à Grenoble, le Laboratoire Léon Brillouin (réacteur Orphée de puissance  $P=14MW$ ), le nouveau réacteur FRM-II à Munich (puissance de 20MW) et le SINQ au PSI (Villigen).

### 2.3.2 Principe de fonctionnement d'un trois axes

L'étude de la fonction de diffusion  $S(\mathbf{Q}, \omega)$  par diffusion de neutrons nécessite de contrôler les variables  $\mathbf{Q}$  et  $\omega$ . L'outil de choix pour la mesure de  $S(\mathbf{Q}, \omega)$  est le spectromètre trois axes qui permet de mesurer le nombre de neutrons diffusés en fonction du transfert de moment  $\hbar\mathbf{Q}$  et du transfert d'énergie  $\hbar\omega$ . Une vue schématique d'un spectromètre trois axes est reportée sur la Fig.2.2. Le faisceau de neutrons issu du

réacteur est polychromatique avec un spectre de forme maxwellien. Le faisceau de neutrons est rendu monochromatique, de vecteur d'onde  $\mathbf{k}_i$ , par l'utilisation d'un cristal monochromateur en condition de Bragg (le monochromateur), c'est le premier axe du spectromètre. Les neutrons sont ensuite diffusés sur  $4\pi$  stéradian par l'échantillon qui correspond au deuxième axe du spectromètre. Les neutrons diffusés sont ensuite sélectionnés par l'analyseur positionné en réflexion de Bragg pour le vecteur d'onde  $\mathbf{k}_f$ . L'analyseur correspond au troisième axe du spectromètre. Pour que le montage soit opérationnel, il est indispensable de mettre en coïncidence l'orientation des axes cristallographiques de l'échantillon et le plan de diffusion imposé par  $(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f)$ . Cette étape fondamentale est l'alignement. Ainsi, on fait coïncider le vecteur d'onde  $\mathbf{k}_i - \mathbf{k}_f$  perdu par le neutron à un vecteur d'onde du réseau réciproque de l'échantillon  $\mathbf{Q}$ . Une fois l'alignement réalisé, il est possible d'avoir accès à n'importe quel point  $(\mathbf{Q}, \omega)$  où  $\mathbf{Q}$  est contenu dans le plan de diffusion (tant que les conditions cinématiques sont satisfaites, voir Eq.2.2).

La détection des neutrons est assurée par un gaz absorbant d'  $^3\text{He}$ . Les neutrons incidents sont absorbés par le gaz qui s'ionise, les électrons sont alors accélérés par une différence de potentiel (de l'ordre de 2 à 4kV), le courant créé est amplifié via un phénomène d'avalanche électronique.

Généralement, les monochromateurs et les analyseurs sont constitués d'un montage d'une dizaine de monocristaux identiques de taille typique de 3.5 par 2cm. Différents types de monocristaux sont utilisés, on peut citer par exemple le cuivre, la graphite pyrolitique (noté PG), le silicium et le germanium. Ces matériaux ont été choisis pour plusieurs raisons, en particulier leur bonne réflectivité neutronique (qui assure le maximum de neutrons sur l'échantillon). Il est aussi possible de les synthétiser en volume important. L'ensemble du montage peut être courbé horizontalement et/ou verticalement afin de focaliser le faisceau de neutrons.

### 2.3.3 Les neutrons polarisés sur un spectromètre trois axes

On a décrit le principe de fonctionnement d'un spectromètre trois axes dans la section précédente. Nous présentons maintenant les éléments nécessaires au contrôle de la polarisation des neutrons sur un spectromètre trois axes. Cette innovation a été réalisée par R.M.Moon et al. [146]. Expérimentalement, l'analyse de la polarisation consiste à répondre aux deux questions suivantes :

Comment polariser en spin un faisceau de neutrons ?

Comment contrôler la direction de polarisation des neutrons ?

#### Polarisation d'un faisceau de neutrons

Il existe trois façons de polariser en spin un faisceau de neutrons : utiliser un alliage d'Heusler, un bender ou un filtre à  $\text{He}^3$  polarisé. Nous présenterons uniquement les deux premières techniques (c'est-à-dire celles utilisées lors de nos expériences). Le principe de base de ces deux montages est le même (représenté sur la Fig.2.3.a)) et consiste à faire interagir le neutron avec une structure ferromagnétique saturée par un champ magnétique  $\mathbf{B}_{\text{ext}}$  et de moment  $\mathbf{M}$  (orthogonal au vecteur de diffusion  $\mathbf{Q}$ ). Ce champ magnétique impose la polarisation des neutrons incidents. Les neutrons incidents sont polarisés  $|+\rangle$  ou polarisés  $|-\rangle$ . Comme  $\mathbf{B}_{\text{ext}}$  est parallèle à  $\mathbf{P}$  et à  $\mathbf{M}$ , on en déduit que  $\mathbf{M}_{\perp, z} = \mathbf{M}$  et  $\mathbf{M}_{\perp, x} = \mathbf{M}_{\perp, y} = 0$ . Les neutrons interagissent alors avec la structure ferromagnétique. D'après l'Eq.2.16, les neutrons de spin  $|+\rangle$  sont diffusés par un potentiel :  $\langle + | b_N + \gamma r_0 f_d(\mathbf{Q}) \sigma \cdot \mathbf{M}_{\perp} | + \rangle$  et les neutrons polarisés  $|-\rangle$  sont diffusés par un potentiel :  $\langle - | b_N - \gamma r_0 f_d(\mathbf{Q}) \sigma \cdot \mathbf{M}_{\perp} | - \rangle$ . Tout l'art de la polarisation en spin d'un faisceau consiste à choisir un matériau pour lequel :  $b_N = \gamma r_0 f_d(\mathbf{Q}) \sigma \cdot \mathbf{M}_{\perp}$  (ou  $b_N = -\gamma r_0 f_d(\mathbf{Q}) \sigma \cdot \mathbf{M}_{\perp}$ ) ainsi seuls les neutrons polarisés  $|+\rangle$  (ou  $|-\rangle$ ) sont diffusés.

L'alliage de Heusler est un alliage ferromagnétique de formule  $\text{Cu}_2\text{MnAl}$ . Il est possible de l'utiliser pour sélectionner à la fois la direction de spin du neutron et son vecteur d'onde ( $\mathbf{k}_i$ ). On représente sur la Fig.2.3.b) un monochromateur double focalisant de Heusler produit par l'ILL. La raie de Bragg utilisée est la raie

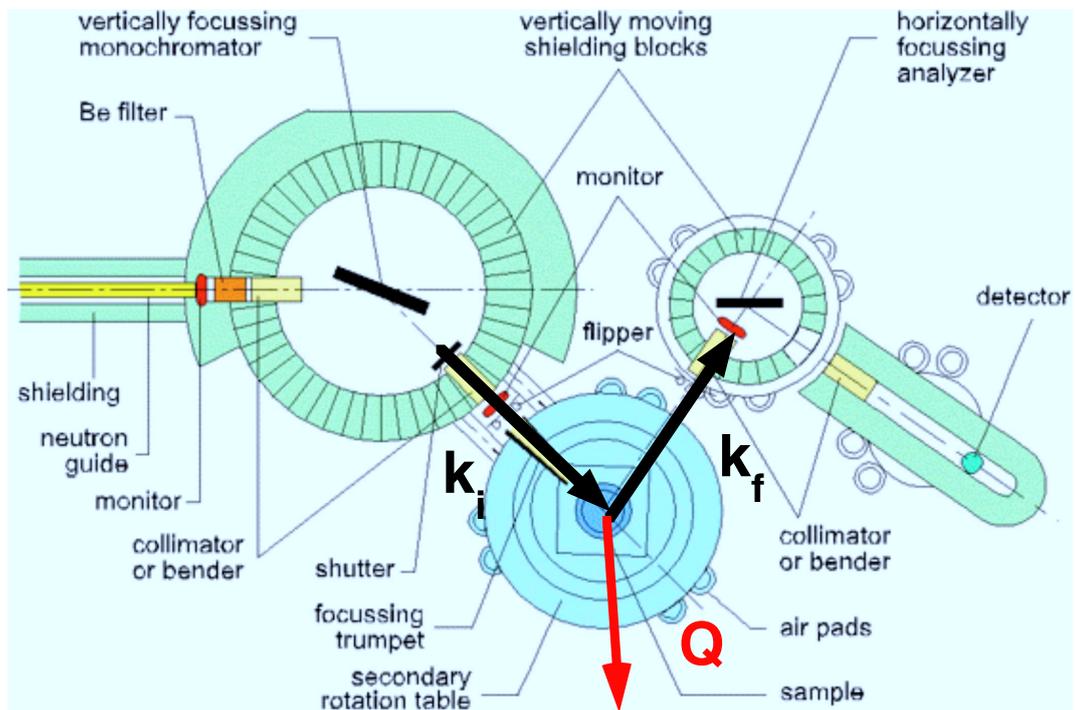
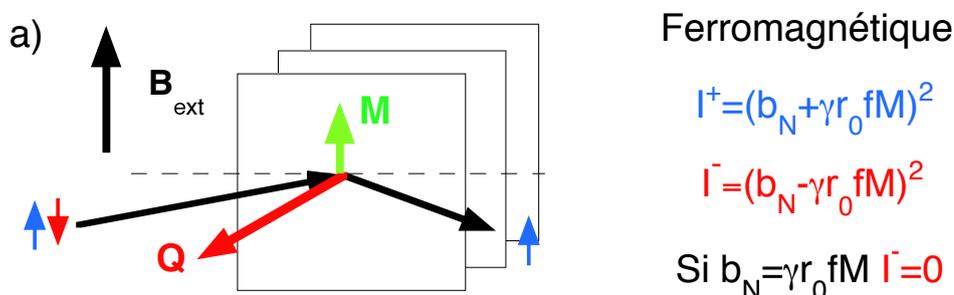


FIG. 2.2: Schéma du spectromètre trois axes TASP en configuration neutrons polarisés. La longueur d'onde du faisceau incident ( $k_i$ ) est sélectionnée par un monochromateur à partir d'un faisceau "blanc" délivré par la source à spallation. L'analyseur sélectionne l'énergie des neutrons diffusés ( $k_f$ ) par l'échantillon.

## 2 Aspects expérimentaux

(111). Les cristaux d'Heusler peuvent être utilisés comme monochromateurs et comme analyseurs. Le couple Heusler/Heusler est actuellement celui le plus utilisé sur les spectromètres trois axes thermiques (c'est effectivement le cas sur IN20, IN22 et 2T), en particulier lorsque l'on réalise une étude de diffusion inélastique de neutrons polarisés. En effet, la qualité de la polarisation est en principe indépendante de la longueur d'onde.

Une autre façon de polariser le faisceau est d'utiliser un bender. Contrairement au cas du Heusler où la sélection en vecteur d'onde et en spin se fait au même moment, la sélection en vecteur d'onde et en spin est réalisée en deux étapes. On sélectionne tout d'abord le vecteur d'onde grâce à un monochromateur non polarisé (par exemple un monochromateur graphite pyrolytique) puis on place un bender après le monochromateur. Un bender est constitué de plusieurs dizaines de lames de TiGd sur lesquelles est évaporé un alliage de FeCo saturé par un aimant permanent. Dans le cas d'un bender, la transmission dépend de la longueur d'onde. Au-dessus de  $k_i = 2.662 \text{ \AA}^{-1}$ , la transmission devient mauvaise. Ce type de montage est donc plutôt utilisé sur des sources froides.



b) Cristal Heusler:  $\mathbf{Q} = (1, 1, 1)$



c) Bender

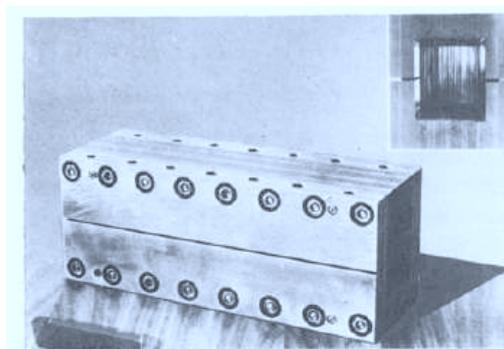


FIG. 2.3: Polarisation d'un faisceau de neutrons : a) Principe de la polarisation en spin d'un faisceau de neutron : un faisceau de neutrons non polarisés (c'est-à-dire où la moitié des neutrons sont dans l'état de spin  $|+\rangle$  et l'autre moitié dans l'état  $|-\rangle$ ) interagit avec une structure ferromagnétique pour laquelle  $b_N = \gamma r_0 f_a(\mathbf{Q})M$  (où  $b_N = -\gamma r_0 f_a(\mathbf{Q})M$ ). Seuls les neutrons polarisés  $|+\rangle$  (ou  $|-\rangle$ ) sont diffusés b) Monochromateur double focalisant de Heusler constitué de 65 monocristaux de Heusler produits par l'ILL. c) Vue d'un bender formé de plusieurs dizaines de supermiroirs de CoFe/TiGd

### Champ de guidage et flipper

On vient de décrire deux façons de polariser un faisceau de neutrons. Aussi, il est important que le neutron conserve sa polarisation entre les différents éléments polarisants. Pour cela, il faut introduire sur l'intégralité du chemin parcouru par les neutrons des champs de guidage de quelques dizaines de Gauss. En effet, en présence d'un champ magnétique (noté  $\mathbf{H}$ ), la polarisation du neutron va précesser de manière à ce que  $\mathbf{H} \cdot \mathbf{P} = \text{constante}$  à la fréquence de Larmor  $\omega_L$ . Ainsi, si  $\mathbf{P} // \mathbf{H}$ , la polarisation du neutron restera la même. La présence de champ magnétique parasite fera précesser le spin du neutron dans d'autres directions que celle souhaitée et le faisceau se dépolarisera. Expérimentalement, la présence d'endroits où le champ de guidage est hétérogène peut entraîner une forte variation de la polarisation. En fait, il est possible de faire tourner la polarisation du neutron en appliquant un champ magnétique variant dans l'espace. Il faut pour cela que la rotation spatiale du champ de guidage (notée  $\omega_H$ ) soit très petite devant la fréquence de Larmor. Ainsi, la polarisation du neutron tourne de façon *adiabatique* avec le champ  $\mathbf{H}$ , le faisceau n'est alors pas dépolarisé.

Lors d'une expérience, on s'intéresse en général à la fois aux processus NSF et SF, il faut pour cela avoir la possibilité de réaliser facilement un renversement de la polarisation. Dans la mesure où, pour le cristal de Heusler et pour le bender, la polarisation du neutron est imposée par un champ permanent (qu'il est impossible de changer lors de l'expérience), il faut disposer d'un moyen de changer le sens de la polarisation sur le parcours du neutron afin de pouvoir mesurer facilement les processus NSF et SF.

Deux systèmes sont utilisés pour réaliser une inversion de la polarisation : le flipper de Mezei et le Cryo-Flipper.

Le flipper le plus simple à mettre en oeuvre est le flipper de Mezei. Il est constitué de deux bobines créant deux champs magnétiques  $\mathbf{B}_1$  et  $\mathbf{B}_2$  représentés sur la Fig.2.4. Dans cet élément, les neutrons polarisés  $|+\rangle$  (par exemple) et guidés dans un champ vertical rencontrent soudainement un champ horizontal  $\mathbf{B}_2$ . La transition n'est pas adiabatique et le spin des neutrons se met à tourner autour du champ horizontal avec une période de larmor  $T$  (égale à  $\frac{2\pi}{\omega_L}$ ). Si, à la sortie de l'élément, le spin des neutrons a précessé d'un demi-tour, ils continuent leur chemin polarisé en bas. Le renversement est exactement réalisé si la vitesse des neutrons est telle que ceux-ci restent dans le champ horizontal pendant un temps  $T/2$ . Le champ magnétique  $\mathbf{B}_2$  dépend fortement de la longueur d'onde du neutron (plus le neutron va vite moins il passe de temps dans le flipper de Mezei et donc plus le champ magnétique doit être fort). Le champ  $\mathbf{B}_1$  quant à lui dépend peu de la longueur d'onde. Il assure simplement la continuité du champ de guidage.

Le cryoflipper est le second type de flipper. Il est constitué d'un écran de Niobium supraconducteur (de largeur quelques mm) séparant deux zones de champs magnétiques opposés. En amont de la plaque, le champ de guidage, noté  $\mathbf{B}$ , est parallèle à la polarisation du neutron  $\mathbf{P}$ . Le neutron traverse alors la zone de champ nul créée par l'écran de Nb. En aval de la plaque, le champ magnétique est dirigé le long de  $-\mathbf{B}$ , le neutron quant à lui n'a pas changé de polarisation (en effet on se trouve dans la limite où les variations spatiales du champ sont bien plus grandes que la fréquence de Larmor spatiale, c'est-à-dire dans la limite de non adiabaticité). La polarisation  $\mathbf{P}$  se trouve ainsi anti parallèle au champ de guidage. Contrairement au cas du flipper de Mezei où la polarisation du neutron tourne, la polarisation ne tourne pas ici mais le champ de guidage est inversé. L'avantage du Cryoflipper est qu'il est indépendant de la longueur d'onde.

### Analyse de polarisation

Nous avons présenté les éléments nécessaires à la mesure des processus NSF et SF pour une polarisation donnée. Il est en fait très intéressant de connaître ces mêmes processus pour différentes polarisations du neutron au niveau de l'échantillon.

Le système que nous avons le plus utilisé est celui des bobines de Helmholtz. Grâce à un système de trois bobines horizontales et d'une bobine verticale dans lesquelles les courants peuvent être ajustés (courants de

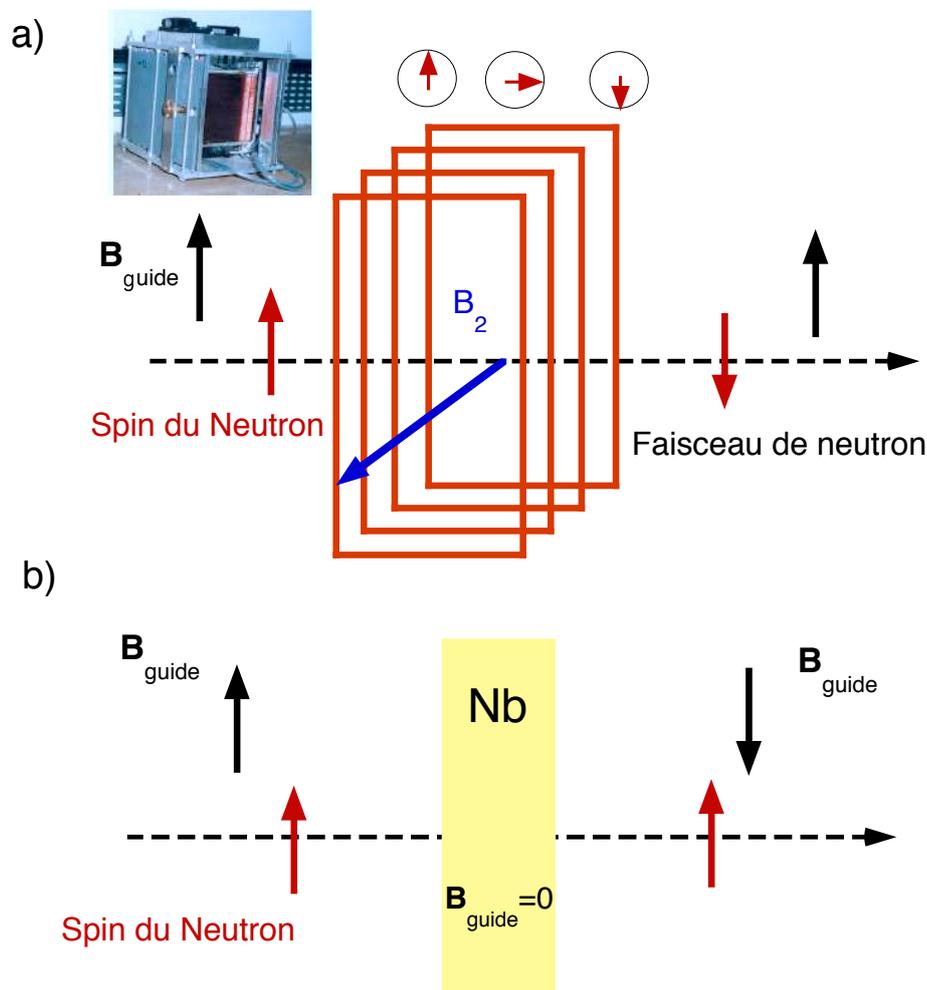


FIG. 2.4: a) Schéma de principe d'un flipper de Mezei : un neutron incident polarisé vers le haut par un champ de guide extérieur traverse les deux bobines du flipper de Mezei. Le courant dans la bobine qui pointe perpendiculairement à l'axe du faisceau et perpendiculairement à la polarisation du neutron bobine est adapté de manière à ce que la polarisation du neutron tourne de  $\pi$  entre l'entrée du flipper et la sortie du flipper. En haut à gauche, une photo d'un flipper de Mezei (d'après C.Boulier [147] est présentée b) Schéma de principe d'un cryoflipper : un neutron polarisé parallèlement au champ de guide traverse un feuille de Nb supraconductrice de champ nul. En aval de l'écran de Nb, le champ de guide est inversé sans que la polarisation du neutron ne change (la variation du champ de guide est trop rapide pour que la polarisation du neutron ne change). La polarisation du neutron se trouve anti parallèle au champ de guide.

l'ordre de l'ampère), il est possible de créer un champ magnétique dans n'importe quelle direction. Ainsi, grâce à ce système, il est possible d'amener de façon adiabatique la polarisation du faisceau incident parallèle à n'importe quelle direction voulue. L'échantillon est placé au centre des bobines. Avec ce type de système, les polarisations des neutrons incident et réfléchi sont les mêmes.

Le deuxième système utilisé lors de cette thèse est le montage CRYOPAD [148, 147]. La principale différence entre les montages bobine de Helmholtz et CRYOPAD réside dans la polarisation des neutrons au niveau de l'échantillon. A la différence des bobines de Helmholtz, l'échantillon se trouve dans une zone de champ quasiment nul (de l'ordre de 2mG) isolée magnétiquement par des écrans Meissner. De cette manière, il est possible de découpler la polarisation du neutron incident et celle du neutron diffusé. L'intérêt de ce type de montage est double : tout d'abord il permet de remonter aux termes croisés de la polarisation présents dans certaines structures complexes de spin [149] (on peut ainsi résoudre des structures magnétiques non-triviales présentant par exemple de la chiralité). Ensuite, il permet de réaliser des mesures de neutrons polarisés sans champ. Ceci est particulièrement intéressant lorsque l'on s'intéresse à l'étude des supraconducteurs pour  $T < T_c$ .

### Présentation du spectromètre 4F1 en configuration neutrons polarisés

A titre de conclusion et pour résumer cette partie sur les neutrons polarisés, nous présentons le montage complet du spectromètre 4F1 du réacteur Orphée en configuration neutrons polarisés utilisé lors de nos expériences. On reporte sur la Fig.2.5 une photo ainsi qu'un schéma de principe du spectromètre 4F1.

Le spectromètre 4F1 (Orphée) est équipé d'un double monochromateur pyloritique graphite. La polarisation en spin du faisceau de neutrons incidents est obtenue par un bender. Après le bender, les neutrons sont dans l'état de spin  $|-\rangle$  (la polarisation est verticale). Ceci impose la polarisation des neutrons incidents. La polarisation des neutrons diffusés est analysée par un cristal de Heusler constitué de 8 lames qui ne diffuse que les neutrons dans l'état de spin  $|+\rangle$ . Tout au long du chemin entre le bender et le Heusler, un champ de guide d'environ 1mT est présent pour maintenir la polarisation verticale des neutrons. Entre le bender et l'échantillon, un flipper permet de faire flipper le spin du neutron. Ainsi, en fonction du courant dans le flipper de Mezei, on peut choisir les deux états de spins pour le neutron incident  $|-\rangle$  ou  $|+\rangle$ . Avec un tel montage, on peut donc mesurer deux types de sections efficaces : l'une avec une transition de spin  $|+\rangle$  vers  $|-\rangle$  (SF) quand le flipper est "off" et l'autre avec une transition de spin  $|-\rangle$  vers  $|-\rangle$  (NSF) quand le flipper est "on". Ainsi, l'un des intérêts de ce montage est que l'on mesure le canal SF lorsque le flipper de Mezei est inactif, on est donc insensible à des parasites électroniques qui pourraient perturber le flipper lors de comptages longs (ce qui est plus souvent le cas pour le canal SF que pour le canal NSF). Au niveau de l'échantillon, le champ de guide peut être tourné dans n'importe quelle direction grâce aux bobines de Helmholtz. Le spectromètre 4F1 est situé sur une source froide, on travaille donc en général avec un faisceau incident d'énergie inférieure ou égale  $E_i = 14.7 \text{ meV}$  (c'est-à-dire un  $k_i = 2.662 \text{ \AA}^{-1}$ ). Les échantillons sont attachés à une tête froide d'un displax qui permet d'aller de 15K à 300K.

En principe, la séparation entre les canaux SF et NSF devrait être parfaite. Cependant, en raison des imperfections des éléments polarisants, il existe toujours une fuite de polarisation du canal SF (respectivement NSF) dans le canal NSF (respectivement SF). Cette fuite de polarisation est caractérisée par la valeur du rapport de flipping, noté R. Le rapport de flipping est égal à  $R = I_{NSF} / I_{SF}$ . Sur un pic de Bragg nucléaire avec une polarisation des neutrons  $\mathbf{P} // \mathbf{Q}$ , si l'on avait une polarisation parfaite alors  $I_{SF} = 0$ , le rapport de flipping devrait alors être infini. La qualité de la polarisation du montage expérimental est donc caractérisée par la valeur de R. Plus R est grand, plus la qualité de polarisation est grande. Dans le cas du montage 4F1, on travaille typiquement avec un rapport de flipping de 40. Ce rapport peut même monter à 60 ou 80 lorsque l'on ne conserve que la lame centrale du Heusler sur des échantillons de très bonnes mosaïcités.

Enfin, il est important de noter que bien que les neutrons polarisés permettent de faire la différence entre un

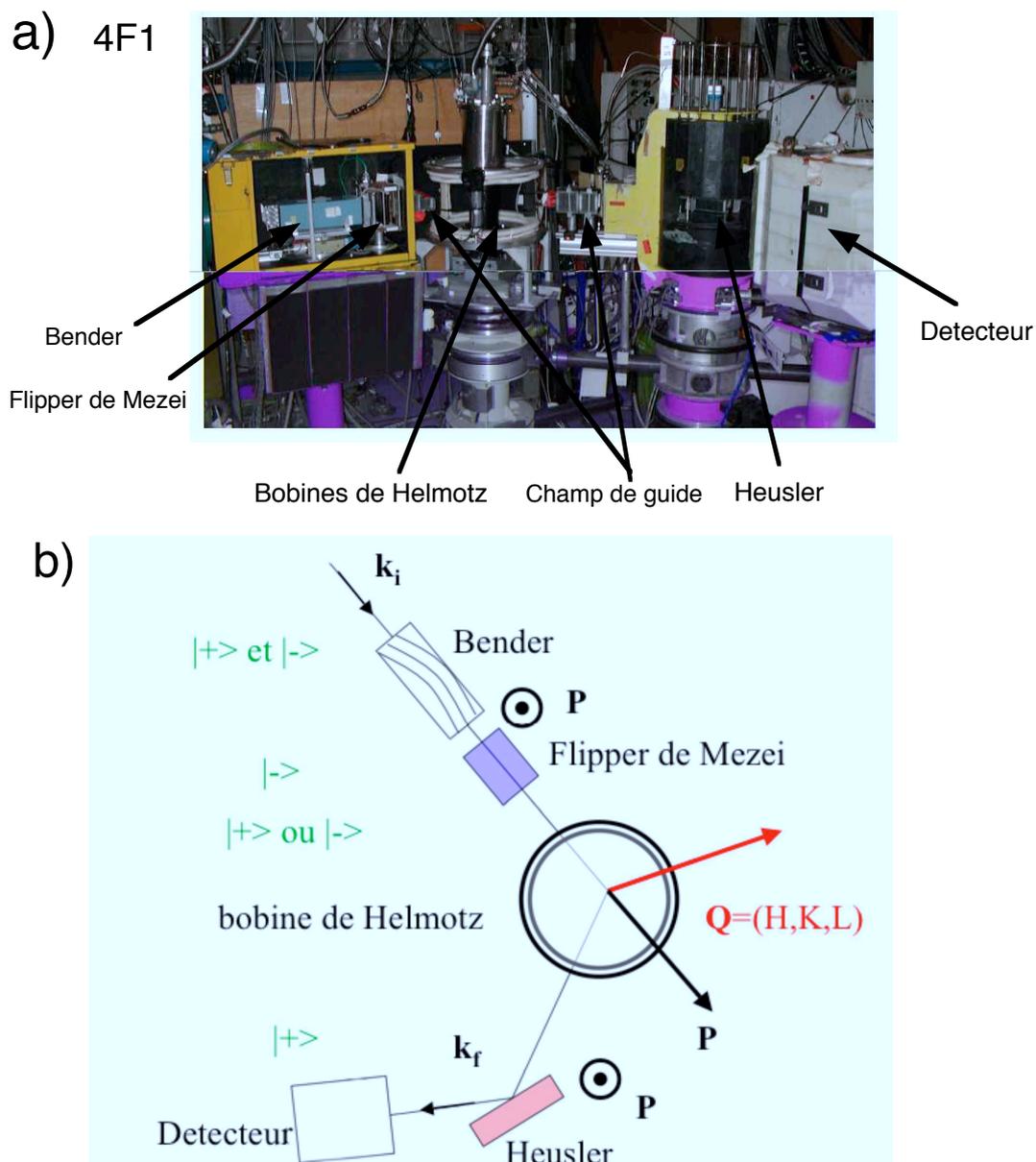


FIG. 2.5: Montage de neutrons polarisés sur 4F1 : a) la polarisation sur  $k_i$  est réalisée par un bender (en bleu) suivi d'un flipper de Mezei. La polarisation au niveau de l'échantillon est contrôlée par des bobines de Helmotz. L'analyse de polarisation est réalisée par un cristal de Heusler. b) Même chose que sur a), on reporte en plus l'état de polarisation du neutron ( $|+\rangle$  et  $|-\rangle$ ) par rapport à la polarisation P des neutrons

signal magnétique et un signal nucléaire, la mise en place expérimentale des neutrons polarisés s'accompagne d'une réduction non négligeable du flux de neutrons. En principe, on ne devrait perdre qu'un facteur deux entre le montage en neutrons polarisés (où l'on peut mesurer  $I^{+-} + I^{++}$ ) et non polarisés (où l'on mesure  $I^{+-} + I^{++} + I^{-+} + I^{--}$ ). Cependant, en raison de la faible réflectivité des lames, on perd typiquement un facteur variant de 25 à 40 sur le flux entre le montage Graphite-Graphite et le montage Heusler-Heusler. Ainsi, à cause du temps de comptage très long, toutes les expériences réalisées en neutrons non polarisés ne peuvent pas être réalisées avec des neutrons polarisés.

## 2.4 Présentation des échantillons

Les derniers éléments nécessaires à toute expérience de diffusion de neutrons sont les échantillons. Nous proposons dans cette partie une présentation des différentes familles étudiées. Durant cette thèse nous nous sommes intéressés à l'étude de trois SHTCs :  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$  (Bi-2212),  $\text{YBa}_2\text{CuO}_{6+x}$  et  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ . On reporte sur la Fig.2.6 la structure cristallographique de chacun des ces trois composés. Dans une première approximation, tous ces composés peuvent se décrire de la même façon. Ils ont en commun la présence de plans  $\text{CuO}_2$  séparés par des réservoirs de charge (spécifiques à chacune des familles considérés). Comme on peut le voir sur les Fig.2.6.a),b) et c), chaque atome de cuivre du plan  $\text{CuO}_2$  se situe au centre de la base d'une pyramide  $\text{CuO}_5$  regroupant les quatre atomes d'oxygène planaires ainsi que un atome d'oxygène dits apicaux appartenant aux plans réservoirs. Toujours en première approximation, ces trois composés peuvent être décrits comme des structures presque tétraogonales ( les plans  $\text{CuO}_2$  sont alors décrit comme des plans carrés). Nous reportons dans le Tab. 2.1 les paramètres cristallins (en notation tétraogonale), la  $T_c^{max}$  et le nombre de plan  $\text{CuO}_2$  par maille élémentaire pour chacune des familles étudiées. Pour chacune d'elles, nous proposons dans cette partie une présentation détaillée des spécificités structurales et une présentation des échantillons étudiés lors de nos mesures.

Composé	$T_c^{max}$	a (Å)	b (Å)	c (Å)	n
$\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ (Bi-2212)	93K	3.82	3.82	30.9	2
$\text{YBa}_2\text{CuO}_{6+x}$	93K	3.82	3.89	11.7	2
$\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$	37K	3.79	3.82	13.16	1

TAB. 2.1: **Présentation de trois familles de composés étudiées pendant cette thèse : on reporte la  $T_c^{max}$ , les paramètres cristallins (en notation tétraogonale) a, b et c ainsi que le nombre de plans par maille élémentaire.**

### 2.4.1 Présentation de la famille Bi-2212

#### Structure cristallographique de Bi-2212

La supraconductivité dans le composé Bi-2212 a été découverte par H.Maeda et al. en 1988 [47]. Ce système présente deux spécificités par rapport aux autres cuprates : une structure incommensurable modulée, qui implique principalement un déplacement cohérent des oxygènes dans les plans BiO, et une dépendance de  $H_{c2}$  en fonction de la direction du champ appliqué, correspondant à un supraconducteur 2D [150]. La structure cristalline moyenne de Bi-2212 est relativement bien définie. Le système est quasiment tétraogonal. Schématiquement, on peut décrire le système par le motif suivant : deux plans  $\text{CuO}_2$  séparés par un atome de calcium, c'est le biplan  $\text{CuO}_2$ . De part et d'autre de ce biplan se trouvent les plans BiO. Les atomes de Sr se trouvent à peu près au niveau des oxygènes apicaux. Ce motif respecte alors une symétrie  $I4/m\bar{m}$ . On

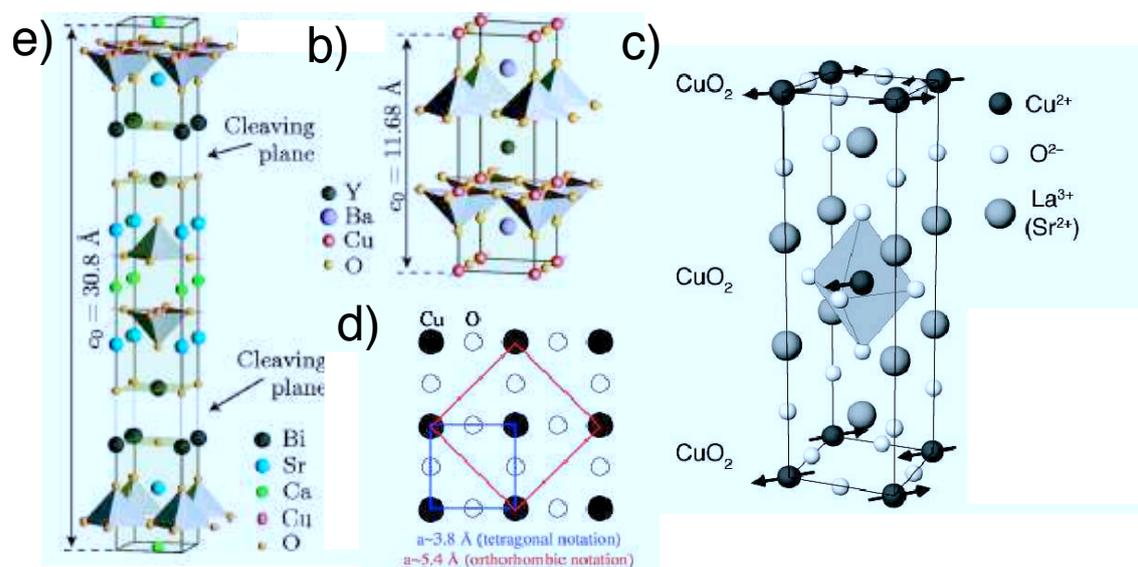


FIG. 2.6: Structure cristallographique des trois SHTCs étudiés durant cette thèse : a)  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$  b)  $\text{YBa}_2\text{CuO}_{6+x}$  et c)  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  (les flèches correspondent à l'ordre AF des spins du cuivre dans le cas non dopé ( $x=0$ )). Sur ces trois figures, on a mis en évidence l'octaèdre  $\text{CuO}_6$ . d) Différentes descriptions du plan  $\text{CuO}_2$  : la cellule élémentaire en notation orthorhombique est représentée en rouge, la cellule élémentaire en notation tétragonale est représentée en bleu (en notation orthorhombique, la cellule élémentaire est deux fois plus grande et tournée à  $45^\circ$  de la cellule élémentaire en notation tétragonale)

reporte sur la Fig.2.6.a) un schéma de la structure cristallographique. La description précise de la structure ne fait pas consensus. La principale difficulté réside dans la description des plans BiO qui présentent une structure incommensurable. En particulier lorsque  $x > 0$ , le positionnement des oxygènes dans les plans BiO n'est pas clair. Expérimentalement, la situation est compliquée par le très mauvais contraste entre les atomes de bismuth (atome lourd  $Z=83$ ) et les atomes d'oxygène (atomes légers  $Z=8$ ) en diffraction X. Il est donc difficile de déterminer le positionnement des oxygènes par diffraction des rayons X. En principe, ce type de difficulté peut être résolu par la diffraction de neutrons (meilleur contraste entre les atomes de bismuth et les atomes d'oxygène). Pendant longtemps, la qualité des échantillons (défaut d'empilement, dislocation, etc...) n'était pas suffisante pour d'envisager une étude par neutrons.

Rapidement après la découverte de ce composé, Yamamoto et al. [151] ont proposé une modulation incommensurable avec un vecteur de propagation  $\mathbf{Q}_S = 0.21\mathbf{b}^*_{\text{ortho}} + \mathbf{c}^*$  en notation orthorhombique ( $\mathbf{b}^*_{\text{ortho}} = \mathbf{a}^*_{\text{tetra}} + \mathbf{b}^*_{\text{tetra}}$ ). Cette description a été remise en cause. En effet, dans cette hypothèse, on s'attendrait à avoir des pics de surstructure de part et d'autre des tâches de Bragg en  $\tau \pm \mathbf{Q}_S$  ((0,2.21,1) et (0,1.79,1)) par exemple) avec des intensités équivalentes. Or différentes mesures ([152],[153]) ont montré un ordre de grandeur entre l'intensité de ces deux pics de surstructure. Afin de résoudre ce problème, Walker et al. [154] ont proposé une autre description. Le composé Bi-2212 est vu comme deux sous-réseaux A et B s'interpénétrant. Le réseau A décrit tous les atomes sauf les atomes d'oxygène se trouvant dans le plan BiO, il a une maille orthorhombique de paramètres (a,b,c). Le réseau B décrit les atomes d'oxygène avec une maille orthorhombique de paramètres (a,b',c) avec  $b' = 0.452b$ , ce qui donne dans l'espace réciproque :  $\mathbf{b}'^* = 2.21\mathbf{b}^*$ . Les tâches de Bragg sont alors indexées par quatre indices de Miller : (h,k,l,m) respectivement associés à ( $\mathbf{a}^*, \mathbf{b}^*, \mathbf{c}^*, \mathbf{b}'^*$ ). Le réseau A contribuera aux points (h,k,l,0) et le réseau B aux points (0,0,l,m). Les deux sous-réseaux sont en fait couplés et vont donc induire une modulation de l'un sur l'autre. Pour le réseau A, la modulation sera imposée par  $\mathbf{b}'^*$ . Pour le réseau B, la modulation sera imposée par b. Ainsi en (0,2.21,1), on a les raies du réseau B, et en (0,1.79,1) les raies dues à la modulation du réseau A par le réseau B : l'intensité est donc plus faible en (0,1.79,1) qu'en (0,2.21,1). Bien que cette approche soit satisfaisante, elle n'exclut pas l'hypothèse d'une modulation incommensurable avec des oxygènes distribués de façon discontinue dans le plan BiO. Grâce au formalisme 4D pour les cristaux aperiodiques, l'équivalence des deux structures en présence de désordre a été démontrée [155, 156].

Quelle que soit la nature exacte de la structure cristallographique, l'étude structurale révèle deux difficultés inhérentes aux cuprates à base de Bi. La première difficulté réside dans le désordre et l'hétérogénéité du dopage dans ces composés. En effet, quelle que soit la description choisie, il faut introduire du désordre pour décrire la structure [156]. La deuxième difficulté, plus gênante pour la DIN, est liée à la structure phononique. En effet, l'impossibilité de décrire de façon exacte la structure cristalline signifie que le spectre phononique sera difficile à déterminer tant expérimentalement que théoriquement. Concrètement, il sera donc difficile d'obtenir un phonon de référence permettant une calibration en unités absolues des excitations magnétiques. L'analyse des données sera aussi plus compliquée car la différence entre les signaux magnétique et nucléaire pourra difficilement être anticipée.

### Présentation de nos échantillons de Bi-2212

Trois échantillons de Bi-2212 de dopages différents ont été étudiés : un échantillon près du dopage optimal de  $T_c = 87\text{K}$  (légèrement surdopé), un échantillon surdopé de  $T_c = 70\text{K}$  et un échantillon au dopage optimal de  $T_c = 91\text{K}$ .

Dans le premier cas (Fig.2.7a)), l'échantillon est constitué d'un large cristal de masse 2g. L'étude structurale a révélé l'existence d'une cristallite dont l'axe c est tourné d'environ  $12^\circ$  par rapport à celui du cristal principal et dont le volume représente environ 15% du volume total. On évalue donc la masse réelle de notre échantillon à 1.7g. Cette cristallite est en fait problématique car son spectre d'excitations magnétiques se

## 2 Aspects expérimentaux

superposera à celui de la partie principale. Ainsi, dans chacune des expériences, nous avons pris soin d'orienter l'échantillon de manière à ce que la contamination potentielle par la cristallite affecte une gamme de  $\mathbf{q}$  éloignée du vecteur d'onde AF.

Dans le deuxième cas (Fig.2.7b)), l'échantillon est un pseudo cristal constitué d'une vingtaine de monocristaux co-alignés sur trois plaques d'aluminium par diffraction Laüe et par diffraction de neutrons par L.Capogna. La masse totale est de 300mg. Ces échantillons ont été préparés au Max Planck Institut de Stuttgart dans le groupe de B.Keimer. La synthèse a été réalisée par la méthode de la zone flottante. Les échantillons dopés de façon optimale ont été ensuite recuits sous oxygène pour être amenés dans la zone surdopée. Ensuite, les échantillons ont été sélectionnés en fonction de leur  $T_c$  (par mesure de SQUID). Puis chaque échantillon a été aligné par Laüe et enfin aligné par diffusion de neutrons. Cette dernière mesure a permis d'éliminer la moitié des échantillons qui présentaient une mauvaise cristallinité de volume [157].

Dans le troisième cas (Fig.2.7c)), l'échantillon est aussi un pseudo cristal constitué de neuf monocristaux co-alignés sur trois plaques d'aluminium. La masse totale de l'échantillon est de 19g. Ces échantillons ont été synthétisés par G.Gu du Brookhaven National Laboratory (BNL) à la demande de J.Tranquada qui m'a invité à participer à ses expériences de diffusion de neutrons en collaboration avec L.P Regnault (CEA). Les échantillons ont été alignés par M.Huecker (BNL) par Laüe. L'alignement a ensuite été vérifié par diffusion de neutrons sur le diffractomètre D23 (CRG/CEA).

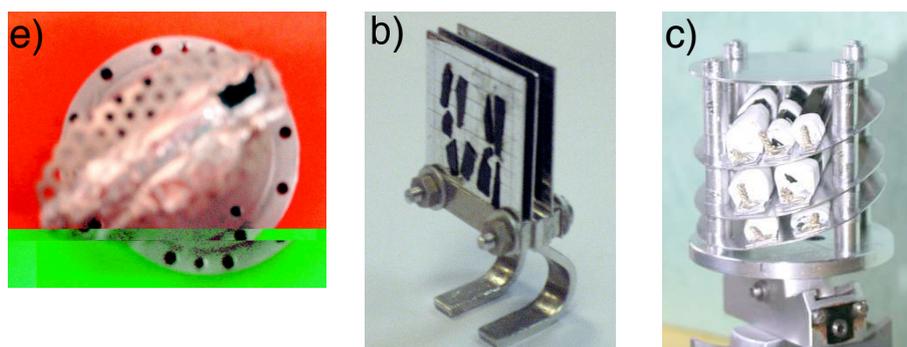


FIG. 2.7: Photo des trois échantillons Bi-2212 étudiés au cours de cette thèse : a)  $T_c=87\text{K}$  surdopé, b)  $T_c=70\text{K}$  surdopé, c)  $T_c=91\text{K}$  dopage optimal

### 2.4.2 Présentation de la famille $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$

#### Structure cristallographique $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$

La situation dans la famille du composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  est beaucoup plus simple que pour la famille Bi-2212. La famille de composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  est orthorhombique. La différence entre les axes a et b est de l'ordre de quelques centièmes de  $\text{\AA}$ , cette famille peut en fait être considérée comme tétragonale. La maille élémentaire représentée sur la Fig.2.6.b) est une alternance de plans  $\text{CuO}/\text{BaO}/\text{CuO}_2/\text{Y}/\text{CuO}_2/\text{BaO}/\text{CuO}$ . Les plans  $\text{CuO}$  sont formés de chaînes  $\text{Cu-O-Cu}$ . Le site accueillant l'oxygène peut être occupé ou libre en fonction du traitement chimique subit par l'échantillon. L'ajout des oxygènes dans les chaînes crée une lacune sur les orbitales de l'oxygène des plans  $\text{CuO}_2$ . A dopage nul, c'est-à-dire quand tous les sites des oxygènes des chaînes  $\text{CuO}$  sont vides, le composé a pour stoechiométrie  $\text{YBa}_2\text{CuO}_6$ . A dopage maximal, tous les sites des oxygènes des chaînes  $\text{CuO}$  sont occupés, le composé a pour stoechiométrie  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  (le composé est alors supraconducteur de  $T_c=92\text{K}$ ). Le dopage en oxygène ne permet donc pas d'atteindre le régime surdopé. Ceci

peut être réalisé par la substitution de l'ion  $Y^{3+}$  par l'ion  $Ca^{2+}$  [116]. L'ion  $Y^{3+}$  étant à mi-distance entre les deux plan  $CuO_2$ , la substitution par l'ion  $Ca^{2+}$  entraîne une augmentation du nombre de trous dans les plans  $CuO_2$  de  $y/2$ .

### Présentation des échantillons $YBa_2Cu_3O_{6+x}$

Notre étude a porté sur la famille de composés  $Y_{1-y}Ca_yBa_2Cu_3O_{6+x}$ . Pour  $y=0$  et  $1 < x < 0.5$ , on se trouve dans la partie sous-dopée et pour  $y > 0$  et  $x=1$  on se trouve dans la partie surdopée. Tous les échantillons étudiés sont reportés dans le Tab.2.2. Pour chaque échantillon, on a indiqué la référence dans laquelle les échantillons ont été décrits ainsi que leur  $T_c$ . Durant cette thèse, nous avons utilisé des échantillons synthétisés de différentes façons.

Les échantillons (A), (B) et (D) ont été synthétisés par la méthode MTG (de l'anglais Melt Textured Growth) ou l'un de ses dérivés. Dans cette méthode, l'échantillon est synthétisé à partir d'une phase  $Y_2BaCuO_5$  (souvent appelée "phase verte"). Ce type de technique permet de réaliser des échantillons monocristallins de plusieurs  $cm^3$ . A cause de leur large volume, ces échantillons nécessitent un temps d'oxygénation très long. Typiquement pour amener l'échantillon (D) du dopage 7 au dopage 6.75, celui-ci a été placé pendant deux semaines sous pression d'oxygène  $P = 1 atm$  à une température de  $T=660^\circ C$ .

La deuxième méthode est la méthode TSSG (de l'anglais Top-Seeded Solution Growth), utilisée en particulier par B.Liang et C.T Lin au Max Planck Institut de Stugart [158] pour synthétiser les échantillons (C) et (E). Le mélange initial est composé de  $Y_2O_3$ ,  $BaCO_3$ ,  $CaCO_3$  et de  $CuO$ . Il n'y a donc pas de phase verte dans les échantillons synthétisés par cette méthode. Pour plus d'information concernant la synthèse de ces échantillons, on pourra se référer à [158]. Les échantillons synthétisés ont une taille typique de  $5 * 5 * 3 mm^3$ . Afin d'augmenter le volume de l'échantillon, les différents échantillons sont co-alignés par Laïe sur des plaques d'aluminium. Les échantillons sont collés ou vissés sur ces plaques d'aluminium. On pourra trouver une illustration de ce type de montage dans [102] .

Durant cette thèse, nous nous sommes également intéressés à l'étude d'échantillons démaclés. En effet, durant l'oxygénation sans l'application de contrainte extérieure, le matériau minimise son énergie par l'inversion régulière des axes a et b. Cette alternance de domaines orthorhombiques forme un réseau de plans de macles de direction  $(1,1,0)(-1,1,0)$ . Récemment, il a été réalisé dans le groupe de B.Keimer la synthèse d'échantillons démaclés afin de caractériser l'anisotropie du spectre de fluctuations AF [159]. Le démaclage est assuré en appliquant sur l'échantillon une pression uni-axiale, perpendiculaire à l'axe c à une température et une pression en  $O_2$  qui dépend du dopage que l'on veut atteindre. L'échantillon (D) a subi ce traitement, il est démaclé à plus de 90%.

label	x	$T_{c,onset}$ (K)	$T_{mag}$ (K)	Références
A	$O_{6.5}(t)$	ud 54	$300 \pm 10$	[160]
B	$O_{6.6}(t)$	ud 61	$250 \pm 20$	[161]
C	$O_{6.6}(d)$	ud 64	$220 \pm 20$	[159]
D	$O_{6.75}(t)$	ud 78	$170 \pm 30$	-
E	$Ca(15\%) - O_{7-\delta}(t)$	ov 75	$\simeq 0$	[162]

TAB. 2.2: Liste des échantillons utilisés dans notre expérience de neutrons polarisés. Les expériences ont été réalisées pour la famille de composés  $(Y,Ca)Ba_2Cu_3O_{6+x}$  sur cinq échantillons de la phase sous-dopée à la phase surdopée du diagramme de phase des cuprates. (t) et (d) indiquent que les échantillons sont respectivement maclés et démaclés.

### 2.4.3 Présentation de la famille $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

#### Structure cristallographique

$\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  est du point de vue structural le plus simple des oxydes de cuivre supraconducteurs. Il s'agit d'un matériau constitué d'un empilement de plans  $\text{CuO}_2$  et  $\text{La/SrO}$ . On reporte sa structure cristallographique sur la Fig.2.6.c). Le réseau de Bravais contient un seul plan  $\text{CuO}_2$  et deux plans  $\text{La/SrO}$ . Le dopage s'effectue par un mécanisme de substitution : en remplaçant un ion lanthane  $\text{La}^{3+}$  par un ion strontium  $\text{Sr}^{2+}$ , on parvient à transférer un électron (au plus) des orbitales p du plan  $\text{CuO}_2$  vers les plans réservoirs. Pour assurer l'équilibre des charges, des lacunes électroniques sont créées dans le plan  $\text{CuO}_2$ . L'électron reste vraisemblablement localisé dans les plans réservoirs.

#### Les instabilités structurales

La structure de  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ , et plus généralement celle des composés  $\text{La}_{2-x-y}\text{R}_y\text{M}_x\text{CuO}_4$  où R est une terre rare substituée sur le site du La, est intimement liée aux distortions des octaèdres  $\text{CuO}_6$ . On distingue plusieurs phases structurales que l'on peut décrire par un paramètre d'ordre à deux dimensions, défini par la donnée des angles de rotation des octaèdres autour des directions Cu-O.

A haute température, la structure est tétragonale, on parle alors de la phase HTT (de l'anglais High Temperature Tetragonal) de groupe d'espace  $I4/mmm$  et dans laquelle l'axe principal des octaèdres est parallèle à l'axe c. A plus basse température apparaissent des structures de symétrie plus basse correspondant à différentes rotations des octaèdres autour de différentes directions cristallographiques.

Dans la première phase structurale dite LTO (Low Temperature Ortorombic) de groupe d'espace Bmab, les octaèdres tournent conjointement autour des directions (1,0,0) et (0,1,0) : il en résulte un mouvement de rotation globale (de l'ordre de  $2.5^\circ$ ) autour de la direction (1,1,0) et (1,-1,0). La structure devient orthorhombique.

La seconde phase structurale dite LTT (Low Temperature Tétrgonal) de groupe d'espace  $P4_2/ncm$  peut être considérée comme la superposition des deux domaines associés à la structure LTO : les octaèdres basculent autour des direction (1,0,0) d'un angle qui reste de l'ordre de  $2.5^\circ$ . D'une couche à l'autre, les axes de rotation se déduisent les uns des autres par une rotation de  $90^\circ$ , ce qui redonne la symétrie tétragonale.

Il existe une seconde phase orthorhombique (Pccn), caractérisée par un axe de rotation qui se situe en position intermédiaire par rapport à celle observée dans les phases LTO et LTT

Dans le cas particulier de la famille  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ , c'est la phase LTO qui s'établit à basse température. On reporte sur la Fig.2.8.a) (d'après [163]) le diagramme de phase de ce composé. La transition entre les phases HTT et LTO est une transition du second ordre. La température de transition, notée  $T_o$ , décroît avec le dopage et disparaît pour un dopage  $x=0.22$ . La transition dans la phase LTO s'accompagne par l'apparition de nouveau pic de Bragg nucléaire. Cette transition structurale est facilement observable par diffusion de neutrons.

Dans le cas particulier de la famille  $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$ <sup>2</sup>, la situation est légèrement différente. En plus de la phase LTO, il existe une transition du premier ordre vers la phase LTT à plus basse température que  $T_o$  (cette température est de l'ordre de 60K) et pour un dopage x autour de 1/8 [164]. Il se trouve que pour la même concentration, la supraconductivité est détruite [164]. Les expériences de diffraction d'électrons et de diffusion de neutrons montrent que la supraconductivité est remplacée par un état fondamental d'onde de densité de charge, ou autrement dit un ordre de type stripe[92, 119]. Bien qu'il serait naturel de penser que la

<sup>2</sup>mais aussi  $\text{La}_{2-x}\text{Nd}_x\text{CuO}_4$

transition structurale LTO-LTT joue un rôle essentiel dans la compétition entre ces deux états fondamentaux, de nombreuses expériences invitent à conclure que la suppression de  $T_c$  serait plutôt liée à une instabilité électronique[165].

Dans le cas de la famille  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ , il n'existe pas de dopage pour lequel  $T_c$  tombe à zéro. De plus, la phase LTT n'a jamais été observée[166]. Cependant, autour d'un dopage de  $x=0.115$ ,  $T_c$  présente un minimum [167]. Les mesures de diffusion de neutrons indiquent l'existence d'ordres de type stripe pour des dopages inférieurs à 0.12 à basse température. A titre d'illustration, on reporte sur la Fig.2.8.b) l'évolution de l'intensité mesurée par diffusion élastique de neutrons en  $\mathbf{Q}=(0.5, 0.5 - \delta)$  avec  $\delta=0.12$  en fonction de la température pour un échantillon de  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$   $x=0.1$ .

### Notation

Dans notre étude, on utilisera les notations tétraogonales. Dans la phase HTT, le centrage de la maille implique la règle de sélection suivante pour les pics de Bragg nucléaires :  $(h,k,l)$  avec  $h + k + l = 2n$  avec  $n$  entier. L'entrée dans la phase orthorhombique se traduit par de nouveaux pics de Bragg typiquement en position  $(\frac{h}{2}, \frac{h}{2}, l)$  (en notation tétraogonale).

### Présentation des échantillons de $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

Toutes nos mesures concernant la famille  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  ont été réalisées sur des échantillons de dopage  $x=0.1$  produits par le groupe de Momono de l'université de Hokkaido (Japon). Ces échantillons sont synthétisés par la méthode TSFZ (de l'anglais "Traveling Solvant Floating Zone") [168]. On reporte sur la Fig.2.8.c) la photo de l'un des deux échantillons utilisés lors de nos expériences. Sur la Fig.2.8.d) et e), on reporte la mesure de susceptibilité de l'échantillon présenté en Fig.2.8.c), on en déduit que  $T_c=28\text{K}$ . Des mesures de neutrons réalisées par R.Gilardi [163] ont établi que la transition structurale HTT-LTO a lieu pour  $T_0=280\text{K}$ . Ces mesures ont aussi mis en évidence l'existence d'un ordre de type stripe à très basse température (voir Fig.2.8.b))

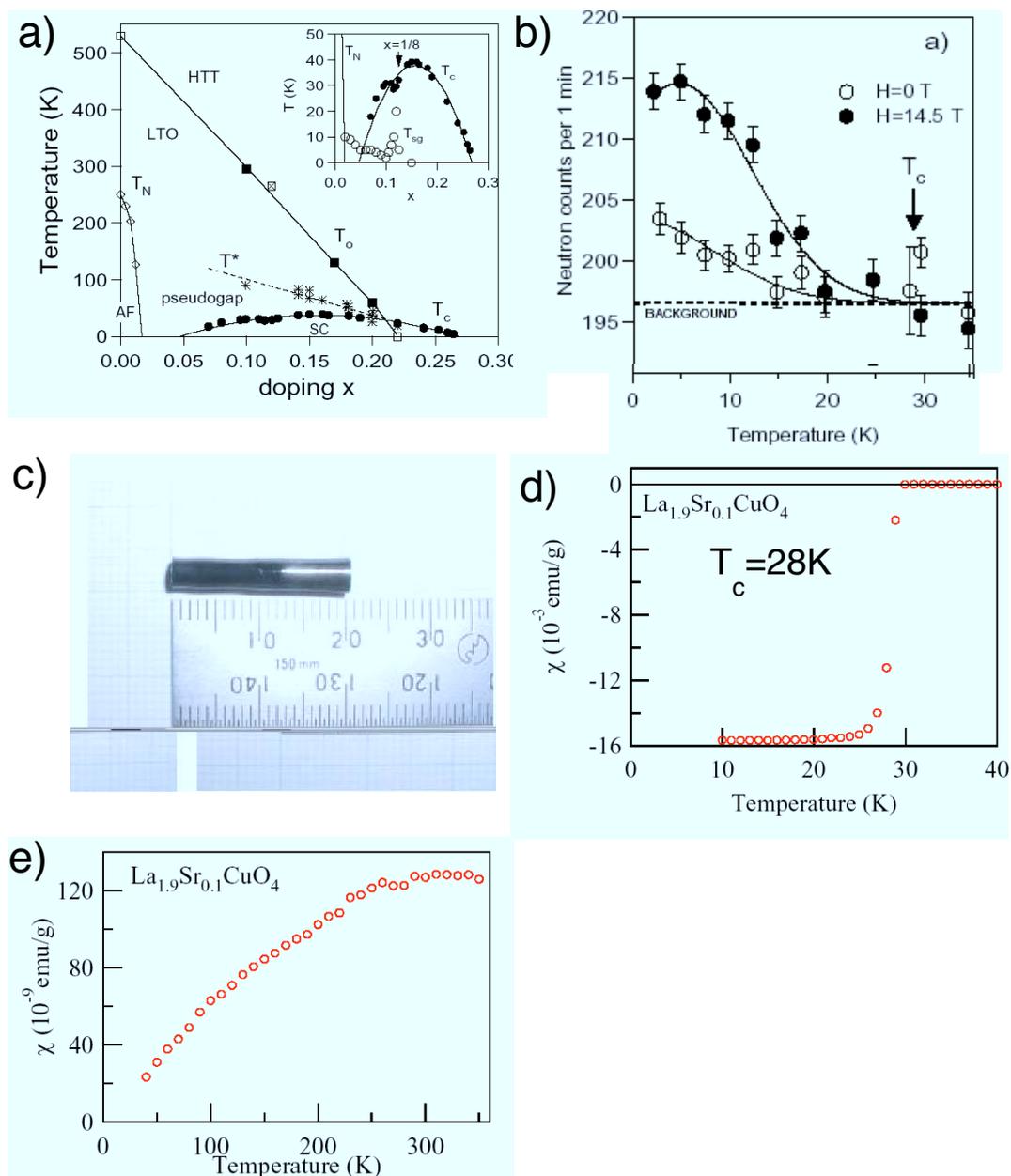


FIG. 2.8: a) Photo d'un échantillon de  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  avec  $x=0.1$ . b) Intensité mesuré par diffusion de neutrons au vecteur d'onde incommensurable  $\mathbf{Q} = (\pi(1+\delta), \pi)$  en fonction de la température dans l'échantillon  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$   $x=0.1$  étudié lors de cette thèse d'après R.Gilardi [163] c) et d) Evolution de la susceptibilité mesurée par Squid par Monomo et al. [168]

# 3 Etude des fluctuations de spins dans les composés supraconducteurs à haute température critique $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$

## Introduction

Jusqu'à présent l'étude par diffusion inélastique de neutrons (DIN) dans les supraconducteurs à haute température critique a essentiellement porté sur deux familles de composés : la famille du composé monocouche  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  et la famille du composé bicouche  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ . Comme nous l'avons déjà vu, les réponses dans ces deux systèmes sont assez différentes. Une partie du débat sur la description microscopique des supraconducteurs à haute température critique s'est concentrée sur la comparaison des spectres d'excitation magnétique dans ces deux composés. En effet, le même Hamiltonien décrit la supraconductivité et les excitations de spin dans ces composés. Dans ces conditions, il est clair que l'étude d'autres systèmes devient fondamentale pour déterminer le point commun entre toutes ces fluctuations magnétiques au-delà des spécificités de chacun des systèmes.

La question du comportement canonique est d'autant plus critique que chaque méthode expérimentale possède son système de prédilection. Dans le cas particulier de la DIN, la nécessité de disposer d'échantillons de volume suffisant (de l'ordre de la centaine de  $\text{mm}^3$ ) a limité pendant longtemps le champ d'investigation de cette méthode sur le système Bi-2212 (composé bicouche). Dans le cas des techniques de surface, le système Bi-2212 s'est révélé le système le plus étudié en raison de la présence d'un plan clivage naturel au niveau des plans BiO. Il est facile d'obtenir des surfaces de très bonne qualité en clivant le composé sous vide. Ainsi le lien entre les techniques de spectroscopie de charge (STM, ARPES par exemple) et la DIN n'a pu être que qualitatif car toutes les mesures de spectroscopie ont été réalisées sur des systèmes différents. Il est donc important d'étudier le système de référence de la STM et de l'ARPES (Bi-2212) pour essayer d'établir un lien quantitatif entre toutes les spectroscopies et tester les modèles théoriques en présence.

L'enjeu de l'étude des excitations de spin dans le composé Bi-2212 est d'établir le comportement universel des excitations magnétiques et de faire un lien avec les excitations de charge telles qu'elles sont mesurées par STM ou ARPES. Dans ce chapitre, je présente tout d'abord le système Bi-2212 et ses spécificités, puis l'ensemble des mesures réalisées par DIN et je propose enfin une description des données expérimentales et une discussion.

## 3.1 Présentation du système Bi-2212

On présente ici les éléments de la phénoménologie connus pour le composé Bi-2212 qui seront réutilisés dans la dernière partie.

### 3.1.1 Résultats de spectroscopie de charge sur le composé Bi 2212

Depuis un peu plus d'une vingtaine d'années, la physique des surfaces connaît un énorme développement. La physique des supraconducteurs à haute température critique a un fort caractère bidimensionnel et n'a donc pas échappé à cette tendance. Deux techniques en particulier se sont révélées importantes : les mesures de microscopie tunnel (ou mesures de STM : Scanning Tunneling Microscope) et les mesures de photo-émission résolue en angle (ou mesures d'ARPES : Angle Resolved Photoelectron spectroscopy). Je présente ici une brève revue des éléments expérimentaux obtenus dans la phase supraconductrice par STM et ARPES du composé Bi-2212. Ces éléments seront repris lors de la discussion dans la dernière partie de ce chapitre.

**Mesures d'ARPES dans Bi-2212** Comme on l'a vu dans le chapitre d'introduction, il existe dans la phase normale pour ce composé un consensus général en faveur d'une surface de Fermi (SF) de type trou, centrée autour du point  $(\pi, \pi)$  pour les échantillons sous-dopés comme pour les échantillons surdopés [67]. Ici on s'intéresse uniquement aux mesures de ARPES dans la phase supraconductrice du composé Bi-2212. .

L'étude des spectres de photo-émission permet de remonter à la dispersion des quasiparticules de l'état supraconducteur. Dans une approche de type liquide de Fermi, le spectre de quasiparticules se décompose en une structure de bande d'électrons sans interaction et des interactions représentées par la self énergie des quasiparticules,  $\Sigma(\omega)$ . Une telle approche a été développée dans la phase supraconductrice du composé Bi-2212, en particulier par le groupe de S.Borisenko. Cette approche a permis de démontrer que la structure de bande telle qu'elle est calculée par LDA [169] correspond à la structure de bande des électrons sans interaction déduite des spectres de photo-émission. Dans le cas particulier du composé Bi-2212 (deux plans  $\text{CuO}_2$  par maille élémentaire), l'existence d'une séparation de la surface de Fermi (SF) en deux bandes liante et antiliante a été prédite [169]. En fonction du couplage des électrons entre les plans  $\text{CuO}_2$ , on aura deux bandes, l'une liante (bonding référencée b) et l'autre antiliante (antibonding référencée a) :  $\epsilon_k^b = \epsilon_k - t_\perp$  et  $\epsilon_k^a = \epsilon_k + t_\perp$  où  $\epsilon_k$  représente la dispersion des électrons dans un plans  $\text{CuO}_2$  et où  $t_\perp$  représente le terme de saut d'un plan à un autre. Dans le cas du composé Bi-2212, ce terme prend le long de SF la forme suivante :  $t_\perp(k) = 1/4t(\cos(k_x) + \cos(k_y))^2$ . Expérimentalement ce dédoublement a été reporté par [67]. Nous reportons sur la Fig.3.1 a) la largeur de la SF en fonction de la position sur la SF (d'après [67]). La largeur de la surface de Fermi en  $\mathbf{k}$  présente un minimum au point nodal et un maximum au point antinodal. Toujours selon les mêmes auteurs [67], l'amplitude du dédoublement est quasiment constante avec le dopage. A titre d'exemple, on reporte le dédoublement de la SF déduite des mesures de Kordyuk et al. sur la Fig.3.1 b).

L'étude des spectres de photo-émission permet également de donner l'évolution du gap supraconducteur le long de la surface de Fermi [170]. Le gap supraconducteur mesuré par photo-émission l'est en unités absolues : c'est la distance entre le positionnement du pic de quasiparticule et le niveau de Fermi. Le gap supraconducteur peut être paramétré par un gap de symétrie  $d$  dans le cas du composé Bi-2212 :  $\Delta(\mathbf{k}) = \Delta_0(B \cos(2\phi) + (1 - B) \cos(6\phi))$ . B varie de 0.88 (UD 75K) à 1 (OD 87K). On reporte sur la Fig.3.1 c) l'évolution du gap mesuré par ARPES le long de la surface de Fermi pour différents dopages.

**Mesures de STM dans Bi-2212 :** La microscopie par effet tunnel est une mesure locale de la densité d'états, c'est une sonde complémentaire de l'ARPES. Pour une position donnée de la pointe du microscope et en faisant varier la tension, on sonde la densité d'état sur une large gamme d'énergie, typiquement de -300meV à 300meV[60]. On reporte sur la Fig.3.2.a) en points ronds, un spectre typique de STM dans la phase supraconductrice du composé Bi-2212. A basse énergie, le spectre montre une forme en V typique d'un gap de symétrie  $d$ . A plus haute énergie, le spectre est caractérisé par un pic suivi d'un creux. Le spectre ne montre pas de singularité de Van-Hove. Si l'on considère la SF telle qu'elle est mesurée par ARPES ainsi qu'un gap de symétrie  $d$ , le spectre obtenu décrit bien le spectre à basse énergie mais ne parvient pas à expliquer la structure pic-creux observée dans les spectres expérimentaux [172] (voir Fig.3.2.a). Tout comme

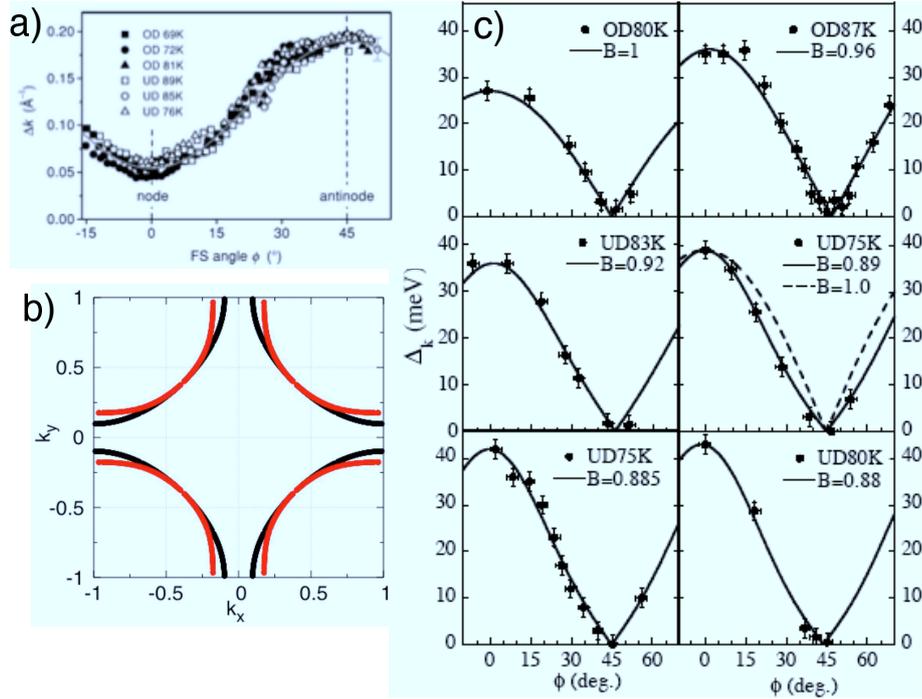


FIG. 3.1: a) Evolution de la largeur de la surface de Fermi en  $k$  le long de la surface de Fermi pour différents échantillons d'après [67] ( $\phi=0$  correspond au point nodal et  $\phi=45^\circ$  correspond au point anti nodal) b) Surface de Fermi déduite des mesures de Korduyk et al. [171]. Les points rouges et noirs correspondent respectivement à la bande liante et anti-liante. c) Evolution du gap mesuré par ARPES le long de la surface de Fermi pour des échantillons de Bi-2212 de la phase sous dopée  $T_c=75\text{K}$  à la phase surdopée de  $T_c=80\text{K}$  d'après [170]

pour les anomalies observées par ARPES, il a été proposé que cette structure non prédite dans le cas d'un gap de symétrie  $d$  soit liée aux interactions entre les quasiparticules [172, 138].

En plus de la nature non-triviale du spectre obtenu par STM, l'existence de fortes hétérogénéités dans la distribution spatiale du gap supraconducteur a été révélée (Fig.3.2.b)). La position du gap supraconducteur est donnée par la position du pic de cohérence dans le spectre de STM. Si l'on déplace la pointe du STM sur une autre partie de la surface, on constate une différence dans la position de ces pics de cohérence (les domaines où les gaps sont constants ont typiquement une taille de 20 Å). La question de la valeur du gap supraconducteur se pose alors. En accumulant les spectres sur une large surface, typiquement 400 par 400 Å, on obtient une distribution de gap dont la valeur moyenne correspond en fait à la valeur mesurée par ARPES [173]. La taille du faisceau en ARPES est de quelques  $\mu\text{m}$ , la résolution en énergie est de l'ordre de 10meV. L'ARPES moyenne cet effet de distribution de gap, mettant ainsi en accord les mesures des gaps par STM et ARPES.

La nature locale de la sonde STM permet de réaliser des cartes de la conductivité  $g(\mathbf{r}, V)$  pour une tension donnée. En prenant la transformée de Fourier de  $g(\mathbf{r}, E)$  ( $E=-eV$ ), ce type d'étude permet de visualiser les modulations dans la densité d'états. En effet, par la mesure de  $g(\mathbf{r}, E)$ , on est capable ensuite de calculer la transformée de Fourier  $g(\mathbf{q}, V)$ . Celle-ci présente des pics pour certains vecteurs d'onde  $\mathbf{q}$  particuliers. L'étude en énergie a permis de mettre en évidence la dispersion de ces vecteurs d'onde  $\mathbf{q}$  en fonction de l'énergie. Cette modulation pourrait être liée aux interférences entre les quasiparticules supraconductrices. Pour un supraconducteur de symétrie  $d$  et pour une énergie  $E$ , les vecteurs d'onde  $\mathbf{q}$  pour lesquels on peut s'attendre à une modulation de la densité d'état sont ceux qui vont connecter deux points de la SF où la densité d'état est forte (points rouges sur Fig.3.2c)). En fonction de l'énergie, les points rouges vont se déplacer, les vecteurs d'onde  $\mathbf{q}$  vont donc disperser. Il a été démontré que cette dispersion est contrôlée par le gap supraconducteur et la topologie de la SF Fig.3.2.d) [174, 175]. Un candidat possible pour le moteur de ces interférences est bien entendu le désordre intrinsèque au système Bi-2212 discuté dans le chapitre 3 [175]. Ces études démontrent que tout comme dans le cas de l'ARPES, il existe des quasiparticules dans l'état supraconducteur de Bi-2212. Ces quasiparticules sont en fait révélées dans les mesures de STM par la présence de désordre [174, 175]. Finalement, il est intéressant de voir qu'un cadre théorique de type "fermiologique" s'applique relativement bien ( et de façon surprenante ) à l'interprétation des mesures de STM et d'ARPES dans la phase supraconductrice.

### 3.1.2 Résultats de DIN sur le composé Bi 2212

Bien que ce système soit difficile à faire croître en quantité suffisante pour qu'une étude en diffusion inélastique soit envisageable, cet effort a été réalisé sous l'impulsion de B.Keimer. Avant le début de cette thèse, deux études portant sur la DIN sur le composé Bi-2212 dans l'état supraconducteur ont été réalisées : [99] et [177]. La première étude [99] porte sur un échantillon de volume  $60\text{mm}^3$  de  $T_c=91\text{K}$ . Cette étude démontre l'existence d'un pic de résonance au vecteur  $\mathbf{Q}=(\pi,\pi)$  à une énergie  $E_r=43\text{meV}$  dans la phase supraconductrice. Ce résultat a permis d'établir d'une part l'universalité du pic de résonance dans les supraconducteurs à haute température critique et d'autre part de mettre en avant la spécificité de la réponse observée par DIN dans la famille  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ . Bien que l'excitation mesurée dans le composé Bi-2212 soit comparable (en position en énergie et  $\mathbf{Q}$ ) à celle mesurée dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ , le pic de résonance dans le composé Bi-2212 se caractérise par une largeur en énergie et en  $\mathbf{Q}$  plus grande que dans le cas de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ . A l'époque cet élargissement avait été interprété de façon qualitative en invoquant la présence de désordre dans le système Bi-2212. La deuxième étude [177] porte sur un échantillon surdopé de  $T_c=83\text{K}$  et de volume de  $240\text{mm}^3$ . Cette étude démontre l'existence d'un pic magnétique dans la phase supraconductrice à une énergie  $E_r=38\text{meV}$ . On reporte sur la Fig.3.3.a) la coupe en énergie au vecteur d'onde  $\mathbf{Q}=(\pi,\pi)$  pour les deux échantillons étudiés. Ainsi il a été démontré que la loi  $E_r/k_B T_c=5.4$  est en fait vraie aussi pour les

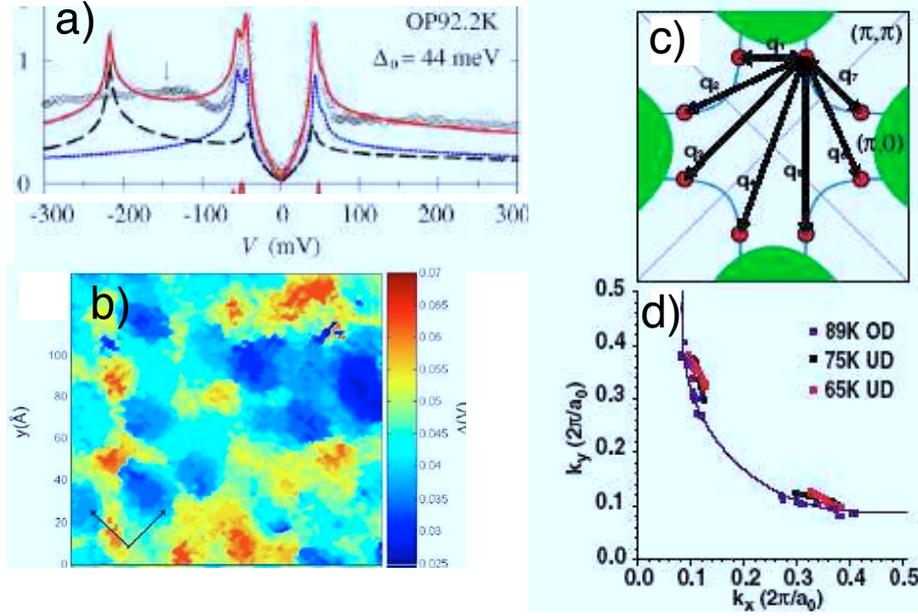


FIG. 3.2: a) Spectre de STM dans une approche BCS avec un paramètre d'ordre de symétrie  $d$ . Les contributions des bandes liante et antiliante sont montrées séparément. La somme en ligne rouge doit être comparée aux données expérimentales représentées en points. b) Distribution de gap mesurée sur une carte de 140 par 140 Å d'après [176]. Les flèches représentent la direction de la liaison Cu-O. c) et d) Représentation schématique de la surface de Fermi de Bi-2212 et des huit vecteurs de diffusion qui connectent les points de la SF de forte densité d'état pour une énergie  $E$ . Dispersion des vecteurs de modulation de la densité d'état mesurée pour trois échantillons de dopages différents.

composés à base de Bi, cf Fig.3.3 b). Tout comme dans le cas du composé au dopage optimal, le pic de résonance dans cet échantillon présente une largeur en énergie et Q plus grande que celle de la résolution expérimentale. L'étude présentée ici s'inscrit dans la continuité de ces deux études.

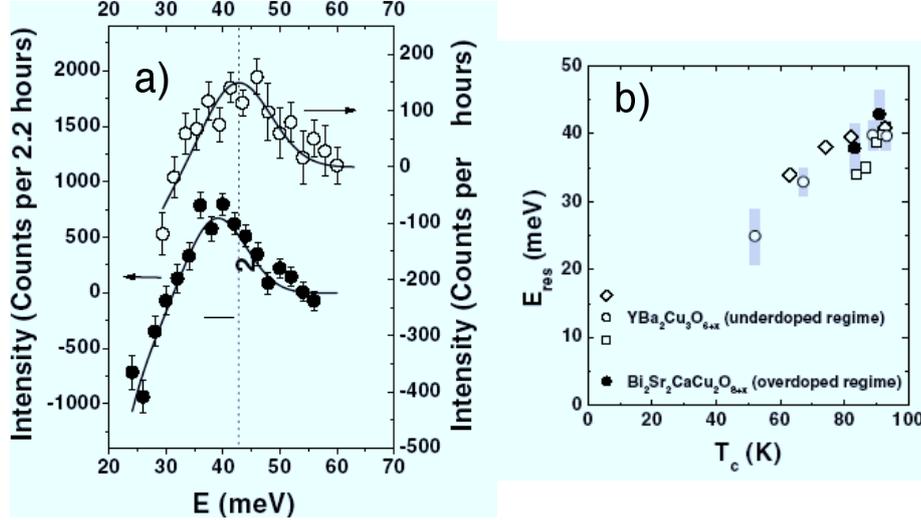


FIG. 3.3: a) Points pleins : différence entre l'intensité neutron à  $T=5\text{K}$  et  $T=90\text{K}$  à  $Q=(0.5,0.5,-13.2)$  pour Bi-2212  $T_c=83\text{K}$ . Points ouverts : même chose pour  $T_c=91\text{K}$  d'après [99]. La ligne noire représente la résolution en énergie. b) Energie de la résonance mesurée pour des échantillons sous-dopés et surdopés de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  et de Bi-2212 en fonction de  $T_c$ .

### 3.1.3 Résumé des caractéristiques de l'état supraconducteur du systèmes Bi-2212

$T_c$ (K)	$n_h$	$\Delta_0$	$\mu$
87K	0.187	35.2	-0.95
70K	0.214	21	-1.03

TAB. 3.1: Tableau récapitulant les données expérimentales déduites de l'ARPES et la STM.  $n_h$  correspond au nombre de trous déduit de la loi de Tallon [178].  $\Delta_0$  correspond à l'amplitude du gap déduite des mesures d'ARPES, STM.

- Désordre : Les études structurales tendent vers une même conclusion : le système Bi-2212 est fortement désordonné, il est difficile de donner une description précise de sa structure cristallographique
- Pic de quasiparticules : Les mesures de photo-émission 3.1.1 ont démontré l'existence de pic de quasiparticules bien définis dans l'état supraconducteur du composé Bi-2212 (au moins jusqu'à 80meV). Ces quasiparticules se caractérisent par une dispersion  $\epsilon_{\vec{k}}$ . D'après les mesures de [171], on prendra comme dispersion de la SF pour les échantillons de  $T_c=87\text{K}$  et  $T_c=70\text{K}$  :

$$\epsilon_{\vec{k}} = -2t(\cos(k_x) + \cos(k_y)) + 4t'(\cos(k_x)\cos(k_y)) - 2t''(\cos(2k_x) + \cos(2k_y)) \pm t_p/4((\cos(k_x) - \cos(k_y))^2 - \mu$$

avec  $t=390$ ,  $t'=78$  et  $t''=39$ ,  $t_p=82$  et  $\mu$  dépendent du dopage (voir Tab.3.1).

- Nature du gap : La symétrie du gap est  $d$ -wave. Spatialement, le gap est distribué de façon hétérogène. On reporte dans Tab. 3.1 l'amplitude du gap déduite des mesures de ARPES et STM pour les échantillons surdopés de  $T_c=87\text{K}$  et  $70\text{K}$ .

## 3.2 Mesure des excitations magnétiques dans le composé Bi-2212

Durant cette étude, on s'est intéressé à deux problèmes :

- Dans le composé bi-couche  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ , l'étude des excitations magnétiques a démontré l'existence de deux modes modulés, l'un en sinus et l'autre en cosinus, se trouvant à deux énergies distinctes. En fonction du dopage, la position des deux modes change : elle diminue à mesure que l'on dope le système, la position relative des deux modes diminue elle aussi. Nous nous sommes intéressés dans un premier temps à **l'étude en dopage des excitations magnétiques au vecteur d'onde planaire  $\mathbf{Q}_{AF}=(\pi, \pi)$  dans la phase supraconductrice de Bi-2212**
- L'étude des excitations magnétiques dans le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$  a permis d'établir que cette excitation se caractérise aussi par une dispersion autour du vecteur d'onde  $\mathbf{Q}_{AF}$  et de l'énergie de la résonance. Cette dispersion est en forme de sablier. Différentes interprétations sont actuellement proposées pour décrire cette dispersion. Nous nous sommes intéressés à **l'étude de la dispersion des excitations magnétiques du mode acoustique dans la phase supraconductrice du composé  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$**

### 3.2.1 Extraction du signal magnétique

La difficulté de l'expérience vient tout d'abord du faible rapport signal sur bruit : entre un pour dix et un pour vingt en fonction du dopage et du plan de diffusion. Il faut noter que ce rapport est plutôt de l'ordre d'un pour cinq à un pour dix dans le cas de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ [116]. D'autre part, le signal se superpose à un spectre phononique présent sur une large gamme d'énergie. La situation dans le cas du composé Bi-2212 est d'autant plus difficile que ce spectre n'est pas connu. Il est donc indispensable de trouver un critère afin d'extraire le signal du bruit de fond. Pour cela, on a appliqué la même méthode que dans le cas du composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ [179]. Dans cette partie, on s'intéresse à l'augmentation de la réponse magnétique à travers  $T_c$ . Pour extraire l'augmentation de la réponse magnétique à travers  $T_c$ , nous réalisons la différence entre les mêmes coupes à deux températures différentes :  $T_1=10\text{K}$  ( $T \ll T_c$ ) et  $T_2=100\text{K}$  ( $T > T_c$ ). Cette procédure induit dans la différence des coupes en énergie un bruit de fond négatif à basse énergie en raison de l'augmentation du bruit de fond nucléaire avec la température. La majeure partie de ce bruit de fond négatif vient de la différence de population thermique de phonons imposée par le facteur de balance détaillée. Dans la gamme d'énergie dans laquelle nous travaillons, de 25 à 60meV, le bruit de fond nucléaire décroît continûment. Le bruit de fond négatif peut être approximé par :  $(a+b\omega)(1/(1-\exp(\frac{\hbar\omega}{k_B T_1})) - 1/(1-\exp(\frac{\hbar\omega}{k_B T_2})))$ .

### 3.2.2 Etude des excitations magnétiques à $(\pi, \pi)$ dans le composé bi-couche :

#### $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$

Pour cette étude, on cherche un signal d'intensité faible entre 25meV et 60meV. Tout comme dans les études sur  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ , nous sommes dans les conditions de flux maximum sur un spectromètre trois axes thermique :

- Monochromateur : PG 002
- Analyseur : PG 002  $k_f$  fixé à  $4.1\text{\AA}^{-1}$

Ces études ont été réalisées sur les trois spectromètres trois axes thermiques disposant du plus de flux, à savoir le spectromètre 2T du réacteur Orphée (Saclay), le spectromètre IN8 de l'Institut Laue Langevin (Grenoble) et le spectromètre PUMA de FRMII (Munich). Les mesures de DIN ont été tout d'abord réalisées au réacteur Orphée sur le spectromètre 3 axes 2T, puis sur le spectromètre trois axes IN8 qui possède un flux entre trois et quatre fois supérieur à celui de 2T (le rapport de flux entre IN8 et 2T est légèrement inférieur au rapport de puissance). À ce jour, IN8 est le spectromètre trois axes possédant le flux le plus important au monde. Lors de la mesure sur PUMA, le flux n'était pas optimisé et était alors comparable à celui de 2T. Dans chaque cas, on compacte le spectromètre au maximum pour diminuer les distances monochromateur échantillon et échantillon analyseur. On travaille avec un filtre PG sur  $k_f$ . Dans le cas particulier d'IN8, ces distances sont particulièrement importantes, mais on ne peut pas les diminuer à cause de la taille de la table échantillon. Lors de nos mesures sur IN8, des fenêtres en cadmium ont été montées avant et après l'échantillon afin de couper tous les neutrons parasites. Pour l'étude des excitations magnétiques à  $(\pi, \pi)$ , le plan de diffusion choisi est : (110)/(001) afin d'avoir accès aux points  $Q=(0.5, 0.5, L)$ . Dans ces conditions, la gamme de 25meV à 60meV est accessible à  $k_f=4.1\text{\AA}^{-1}$ . Pour aller à plus haute énergie, il faut alors changer  $k_f$  (par exemple en passant à  $k_f=5.5\text{\AA}^{-1}$ ), le filtre PG est alors inutile. L'ensemble de cette étude représente trois à quatre semaines de temps faisceau tous les spectromètres confondu pour trois échantillons.

**Cas du composé  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$   $T_c=87\text{K}$**  Nous avons réalisé des coupes en énergie de 25meV à 60meV en  $Q=(0.5, 0.5, 14)$  et  $Q=(0.5, 0.5, 18)$ . Les valeurs  $L=14$  et  $L=18$  sont les valeurs pour lesquelles la modulation de la bicouche est maximale pour le mode acoustique et le mode optique respectivement. Ces coupes ont été réalisées pour deux températures :  $T=5\text{K}$  et  $T=100\text{K}$  ( $>T_c$ ).

Nous reportons respectivement sur les Fig.3.4 a) et b) les intensités mesurées à haute et basse températures pour les canaux acoustique et optique. Nous reportons ensuite respectivement sur les Fig.3.4 c) et d) la différence entre basse et haute températures pour les canaux acoustique et optique. Dans le canal acoustique, la différence est ajustée par une gaussienne centrée à 42meV avec une largeur de 10meV. L'étude en température réalisée sur PUMA en  $Q=(-0.5, -0.5, 14)$  à 42meV montre que le signal mesuré diminue à mesure que la température augmente. Le signal disparaît autour de  $T=T_c$ . L'intensité mesurée au point  $Q=(0.25, 0.25, 14)$  à 40meV reste à peu près constante sur la gamme de température étudiée. Dans le canal optique, la différence en température présente deux maxima. La largeur en énergie du premier pic est plus petite que la résolution en énergie. Ce pic est lié à la présence d'un maximum dans le bruit de fond qui se déplace très légèrement en température. Le deuxième maximum est ajusté par une gaussienne centrée à 55meV avec une largeur de 18meV. Sur la Fig.3.4.d), l'évolution du bruit de fond du canal optique est prise identique à celle du canal acoustique. L'ajustement n'est pas très bon. Néanmoins, l'énergie du mode optique se trouve dans une région où quelle que soit la façon dont on ajuste le bruit de fond de basse énergie, la forme de bruit de fond de haute énergie est toujours la même. L'ajustement du bruit de fond dans ce cas là n'a donc pas d'effet sur les caractéristiques du mode optique.

**Cas du composé  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$   $T_c=70\text{K}$**  Pour cet échantillon, une procédure équivalente a été suivie. D'après ce qui était connu dans le cas du composé  $\text{Y}_{1-x}\text{Ca}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  [116, 180] le mode optique était attendu à plus basse énergie, l'étude a donc été réalisée en  $L=9.6$ . Dans ce cas, le facteur de forme est légèrement supérieur que dans le cas  $L=18$ . On reporte l'ensemble des résultats sur la Fig.3.5. Aux vecteurs d'onde  $(0.5, 0.5, -13.2)$  et  $(0.5, 0.5, -9.6)$ , les différences entre haute et basse températures (reportées sur les Fig.3.5.b) et d)) présentent un maximum pour une énergie de 34meV avec une largeur de 7meV et un maximum pour une énergie de 35meV avec une largeur de 13.5meV, respectivement. L'évolution de l'intensité magnétique dans une autre zone de Brillouin a aussi été étudiée. Pour cela, la même coupe a été réalisée, mais cette fois-ci au point  $(1.5, 1.5, L)$  pour  $L=-13.2$  et  $L=-9.6$ . La différence ne présente pas vraiment de

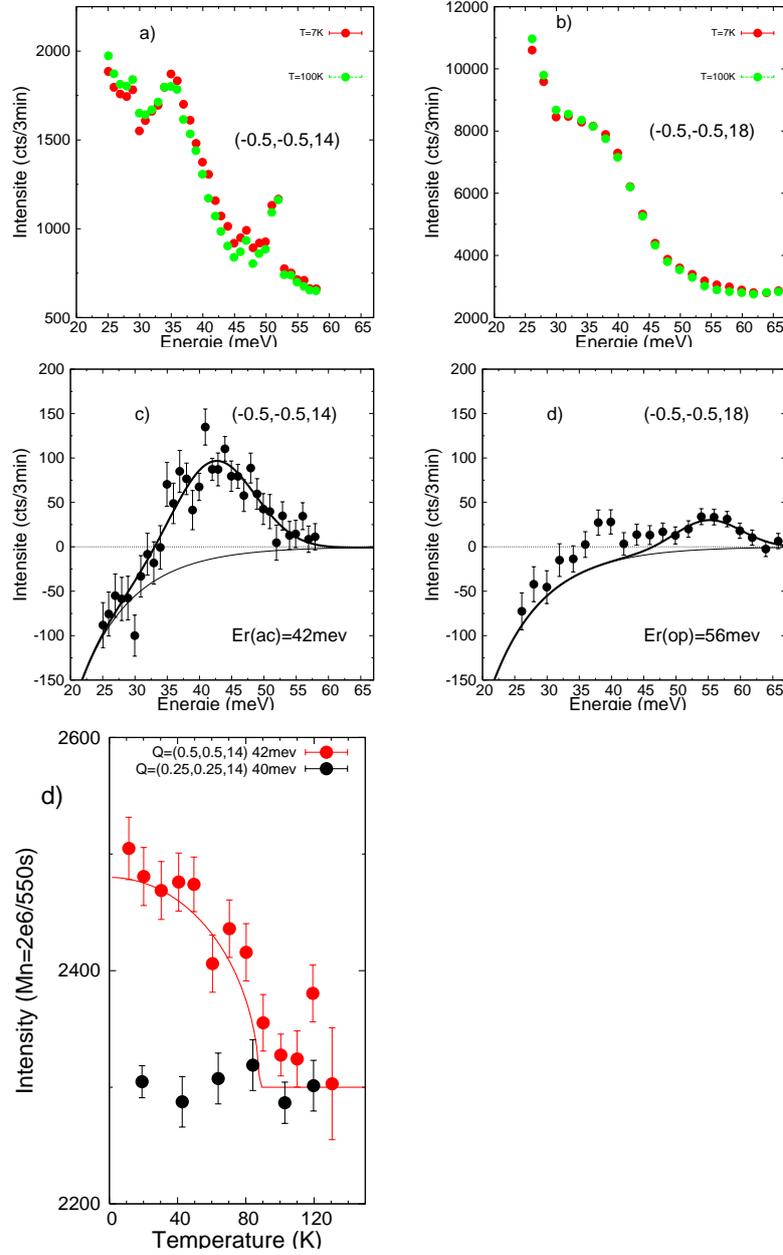


FIG. 3.4: Bi-2212  $T_c=87\text{K}$  (légèrement surdopé) a) et b) Coupe en énergie pour les deux vecteurs  $Q=(-0.5,-0.5,14)$  et  $(-0.5,-0.5,18)$  pour deux températures  $T=7\text{K}$  en rouge et  $T=100\text{K}$  ( $>T_c$ ) en vert. c) et d) Différence entre  $T=5\text{K}$  et  $T=100\text{K}$  pour les coupes en énergie à  $Q=(-0.5,-0.5,14)$  et  $(-0.5,-0.5,18)$ . On ajuste la différence par une gaussienne. d) Dépendance en température du point  $Q=(-0.5,-0.5,14)$  à  $42\text{meV}$  (en rouge) et  $Q=(0.25,0.25,14)$  à  $40\text{meV}$  (en noir)

maximum. On peut néanmoins voir que l'ajustement gaussien utilisé en  $(0.5,0.5,L)$  et corrigé du facteur de forme du cuivre (reporté en ligne verte sur les Fig.3.5.b) et d)) décrit l'évolution en énergie aux vecteurs d'ondes  $(1.5,1.5,L)$  avec  $L=13.2$  et  $L=9.6$ . On en conclut que le signal décroît à grand  $Q$  et que cette décroissance est compatible avec le facteur de forme du cuivre. Tout comme dans l'échantillon de  $T_c=87K$ , on a étudié la dépendance en température des modes acoustique et optique. Dans les deux canaux, le signal diminue à mesure que la température décroît jusqu'à devenir constante autour de  $T_c=70K$ .

**Résumé des résultats expérimentaux** L'ensemble des mesures au vecteur d'onde  $(\pi, \pi)$  a permis de mettre en évidence l'existence de deux excitations magnétiques compatibles avec une modulation en  $\sin^2$  et  $\cos^2$ , analogues des modes acoustique et optique (respectivement) de la phase AF. L'ensemble des mesures permettent donc de conclure que :

- Les deux modes ne sont présents que dans la phase supraconductrice et diminuent avec  $Q$ . Les modes sont donc bien d'origine magnétique.
- Les deux modes se rapprochent à mesure que l'on surdope le système
- Le mode acoustique devient moins large à mesure que l'on surdope
- Le mode optique est toujours plus large que la résolution

Nous reportons l'ensemble des données expérimentales utiles pour la suite dans le Tab.3.2

$T_c$	$E_r(ac)$	$\delta E_r(ac)$	$I_r(ac)$	$E_r(op)$	$\delta E_r(op)$	$I_r(op)$
87K	42.2	14.8	110 cts	55	12	33 cts
70K	34	7.1	220 cts	35	13.5	95cts

TAB. 3.2: Récapitulatif de la position et de la largeur des modes acoustique et optique pour les deux échantillons étudiés.

### 3.2.3 Etude de la dispersion des excitations magnétiques du mode acoustique

Nous présentons ici une description détaillée de l'étude du spectre magnétique du mode acoustique dans l'état supraconducteur du composé Bi-2212. Afin d'étudier la forme de la dispersion dans le plan  $(H,K)$ , l'échantillon a été monté dans trois plans de diffusion :  $(H,H,0)/(0,0,L)$ ,  $(H,0,0)/(0,1.5,L)$ ,  $(K/3,K,0)/(0,0,L)$ . En fonction du plan de diffusion considéré, on choisit la valeur de  $L$  qui maximise le facteur de forme magnétique, on travaille ainsi à  $L=13.7$  ou à  $L=4.7$ . L'étude a été réalisée principalement sur l'échantillon de Bi-2212 de  $T_c=87K$ . Deux types de coupes ont été réalisées : des coupes en  $Q$  à énergie constante et des coupes en énergie à  $Q$  constant. Généralement, les coupes en énergie ont été réalisées sur le spectromètre 2T, les coupes à énergie constante sur le spectromètre IN8. Nous proposons ici de présenter uniquement les différences entre basse et haute températures pour chacun des plans de diffusion étudiés. A titre indicatif, l'étude a duré en moyenne une semaine pour chaque plan de diffusion et pour chaque spectromètre. L'ensemble de cette étude représente donc entre quatre à cinq semaines de temps faisceau, tous spectromètres confondus.

**plan de diffusion  $(110)/(001)$**  La première étude a été réalisée dans le plan de diffusion  $(110)/(001)$ . Nous reportons l'ensemble des résultats concernant ce plan de diffusion sur la Fig.3.6. Loin du vecteur d'onde AF en  $Q=(0.275,0.275,14.1)$ , la coupe en énergie peut être ajustée par la forme proposée dans la partie 3.2.1 (voir Fig.3.6.a)) . Cet ajustement fixe l'évolution du bruit de fond pour toutes les autres coupes en énergie. La coupe en énergie à  $Q=(0.5,0.5,14.1)$  présente un maximum à 42meV en accord avec les résultats de la partie 3.2.2. Entre ces deux positions le signal diminue à mesure que l'on se rapproche de  $Q=(0.275,0.275,14.1)$ .

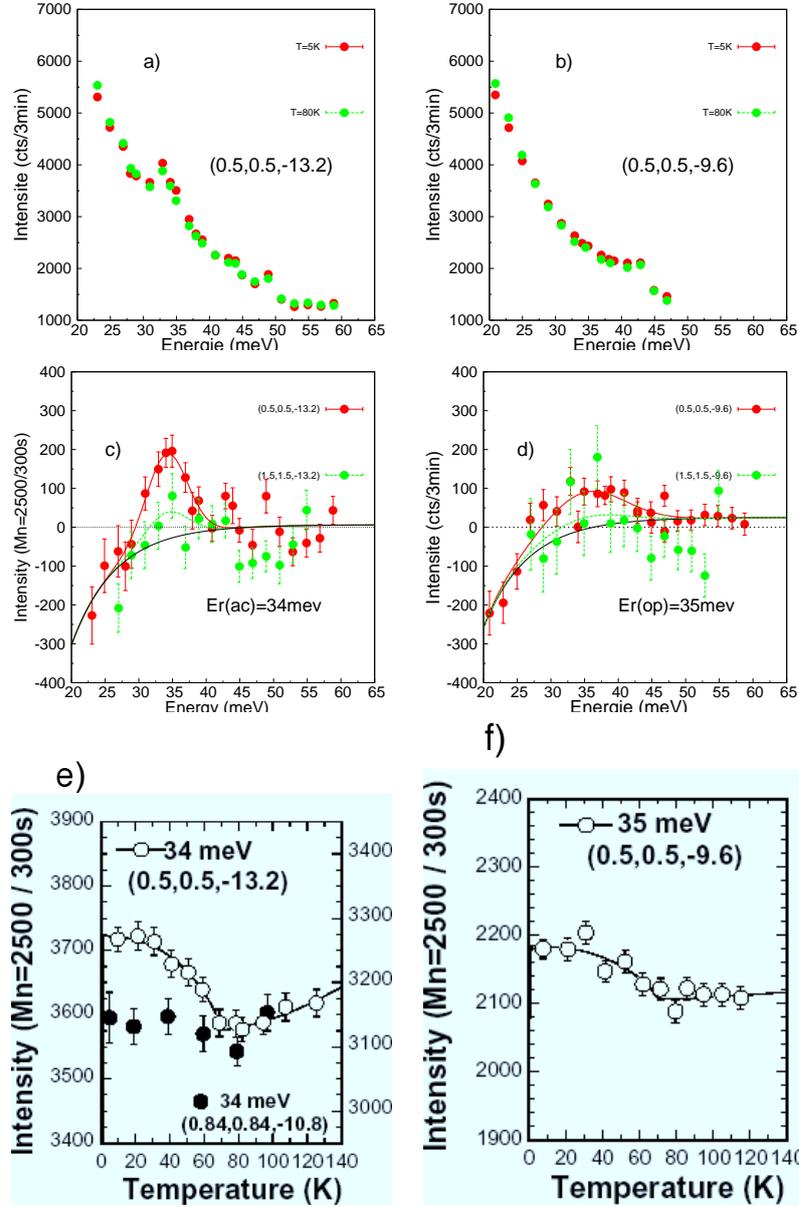


FIG. 3.5: Bi-2212  $T_c=70K$  (surdopé) : a) et b) Coupes en énergie pour les deux vecteurs  $Q=(0.5,0.5,13.2)$  et  $(0.5,0.5,9.6)$  pour deux températures  $T=7K$  en rouge et  $T=80K$  ( $>T_c$ ) en vert. c) et d) Différences entre  $T=5K$  et  $T=100K$  pour les coupes en énergie à  $Q=(0.5,0.5,L)$  (en rouge) et  $(1.5,1.5,L)$  (en vert) pour  $L=-13.2$  (c) et  $L=-9.6$  (d). On ajuste la différence des coupes en  $L=-13.2$  par une gaussienne (en rouge dans (c) et (d)), en vert on représente la même gaussienne dont l'intensité tient compte de la diminution du facteur de forme magnétique en  $(1.5,1.5,L)$ .

Pour les deux vecteurs d'onde  $\mathbf{Q}=(0.425,0.425,14.1)$  et  $\mathbf{Q}=(0.35,0.35,14.1)$  la différence peut être ajustée par deux pics. Pour tous les  $\mathbf{Q}$ , le signal disparaît à basse énergie autour d'une énergie de 32meV définissant ainsi le gap de spin. L'ensemble de ces résultats est confirmé par la Fig.3.6.b), où l'on reporte la différence entre haute et basse températures de l'intensité le long de la direction (H,H,14) pour des énergies allant de 38 meV à 46 meV. Pour chacune de ces coupes, on ajuste la différence par une ou deux gaussiennes plus un bruit de fond en pente. La coupe à 42meV montre un signal de forme gaussienne centré au vecteur d'onde AF sur un bruit légèrement linéaire. Au-dessus et au-dessous de  $E_r$ , le signal magnétique s'élargit. A 40meV, on peut ajuster le signal par deux pics en positions incommensurables. L'élargissement du signal est également observable à haute énergie, en particulier à 46meV pour laquelle l'ajustement gaussien donne une largeur deux fois plus grande que celle mesurée à 42meV. On reporte sur la Fig.3.6 a) l'intensité (points carrés) et le bruit de fond (points croix) déterminés le long des coupes en  $\mathbf{Q}$  de Fig.3.6 b). Les deux expériences réalisées sur deux spectromètres différents concordent.

**plan de diffusion (130)/(001)** La seconde étude a été réalisée dans le plan de diffusion (130)/(001). Nous reportons la différence des coupes en énergie à  $\mathbf{Q}$  fixé sur la Fig.3.7.a) et la différence des coupes le long de la direction  $\mathbf{Q}=(K,H/3,4.7)$  sur la Fig.3.7. b). Tout comme dans le plan de diffusion (110)/(001), la coupe en énergie la plus loin de  $\mathbf{Q}_{AF}$ , à savoir  $\mathbf{Q}=(0.6,1.8,4.7)$ , est bien décrite par l'évolution du bruit de fond décrit en 3.2.1. Cette coupe en énergie fixera donc l'évolution du bruit de fond de toutes les autres coupes en énergie.

A  $\mathbf{Q}=(0.5,1.5,4.7)$ , on peut, en plus du bruit de fond, ajuster un signal de forme gaussienne maximum autour de 42meV et de largeur 10meV. La coupe en  $\mathbf{Q}$  à 42meV montre que le signal est centré au vecteur d'onde AF. A 40meV, un signal comparable est mesuré. La coupe à 38meV indique par contre une diminution et un élargissement du signal. Cette coupe peut être ajustée par deux pics en positions incommensurables par rapport au vecteur d'onde AF. Au-dessous de cette énergie, toute mesure devient difficile. Il existe deux raisons à cela. Tout d'abord, le bruit de fond nucléaire augmente à mesure que l'énergie diminue. Ceci est particulièrement visible sur la Fig.3.4.a) où l'on passe d'un bruit de fond nucléaire de l'ordre de 4000 cts pour 30meV à 1500cts pour 42meV, ce qui signifie qu'à temps de comptage égal, les barres d'erreur seront presque deux fois plus grandes. Ensuite, le signal diminue en intensité à mesure que l'on s'éloigne de la résonance. D'après les mesures dans le plan (110)/(001), le signal doit en principe disparaître au-dessous de 32meV, ce qui est bien le cas d'après les coupes en énergie reportées sur la Fig.3.7.a).

L'élargissement observé à basse énergie se retrouve aussi à haute énergie ( $E > E_r$ ). Jusqu'à 50meV, l'intensité du signal de haute énergie ne semble pas diminuer et reste comparable à celle de la résonance. En revanche, à 54meV, un signal en double pic est observé avec une intensité qui a nettement diminué. De façon remarquable à 58meV, le signal semble devenir commensurable. Il faut noter que ces deux dernières coupes ont été réalisées non pas en  $L=4.7$  mais en  $L=14.1$  ( le facteur de forme y alors 20% plus faible). Ainsi, l'élargissement du signal observé de part et d'autre de la résonance est cohérent avec les coupes en énergie à coté du point AF. Pour ces vecteurs d'onde, le signal magnétique est présent sur une large gamme d'énergie mais présente un creux pour l'énergie de la résonance. Ainsi la combinaison des coupes en énergie et des coupes à énergie constante est cohérente avec l'existence d'un signal magnétique dispersant autour du vecteur d'onde AF.

**plan de diffusion (100)/(015)** Enfin notre dernière étude a été réalisée dans le plan de diffusion (100)/(015). Cette expérience dans le composé Bi-2212 est la même que celle réalisée par V.Hinkov et al. dans la famille d'échantillons  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  démaclés [110]. L'échantillon a ainsi été aligné de manière à avoir accès aux deux plans de diffusion (100/015) et (010/105) dans la même expérience. Ainsi, il est possible de mesurer la dynamique de spin le long de  $a^*$  et de  $b^*$  au cours de la même expérience. Malheureusement, en raison

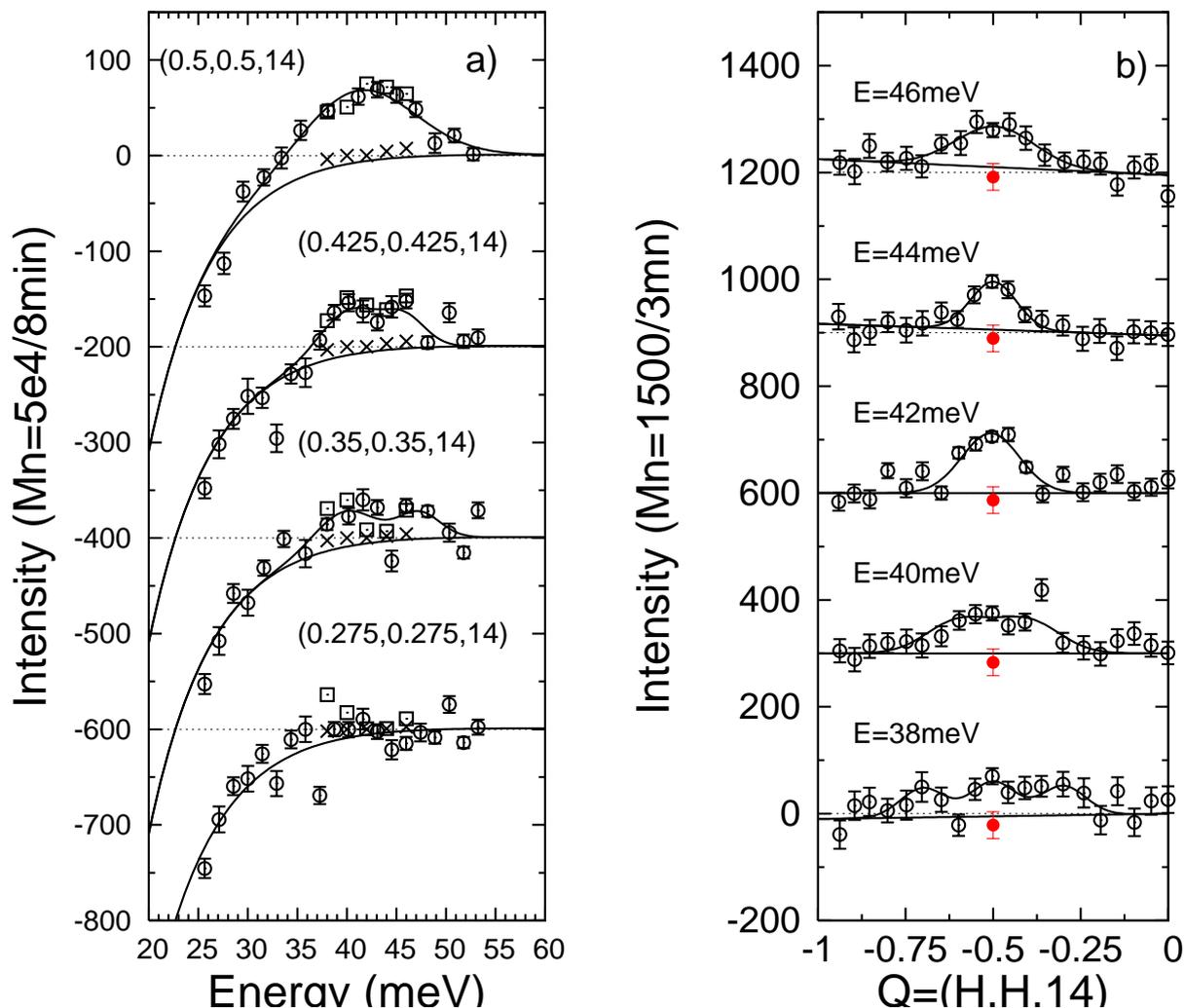


FIG. 3.6: Bi-2212  $T_c=87\text{K}$  (légèrement surdopé) : a) Différences entre les coupes en énergie à  $T=10\text{K}$  et  $T=100\text{K}$  pour  $Q=(0.5,0.5,14.1)$ ,  $(0.425,0.425,14.1)$ ,  $(0.35,0.35,14.1)$  et  $(0.275,0.275,14.1)$ . La ligne noire correspond à un ajustement gaussien sur un bruit de fond déterminé par l'évolution de la différence en  $Q=(0.275,0.275,14.1)$ . Les points carrés et croix correspondent au signal mesuré le long des coupes à énergie constante (b). b) Différences entre les coupes le long de la direction  $(H,H,14)$  à  $T=10\text{K}$  et  $T=100\text{K}$  pour des énergies  $E=38,40,42,44$  et  $46\text{meV}$ . La ligne noire correspond à un ajustement gaussien sur un bruit de fond pris linéaire ou constant. Les points rouges correspondent au bruit de fond déduit des coupes en énergie (a)

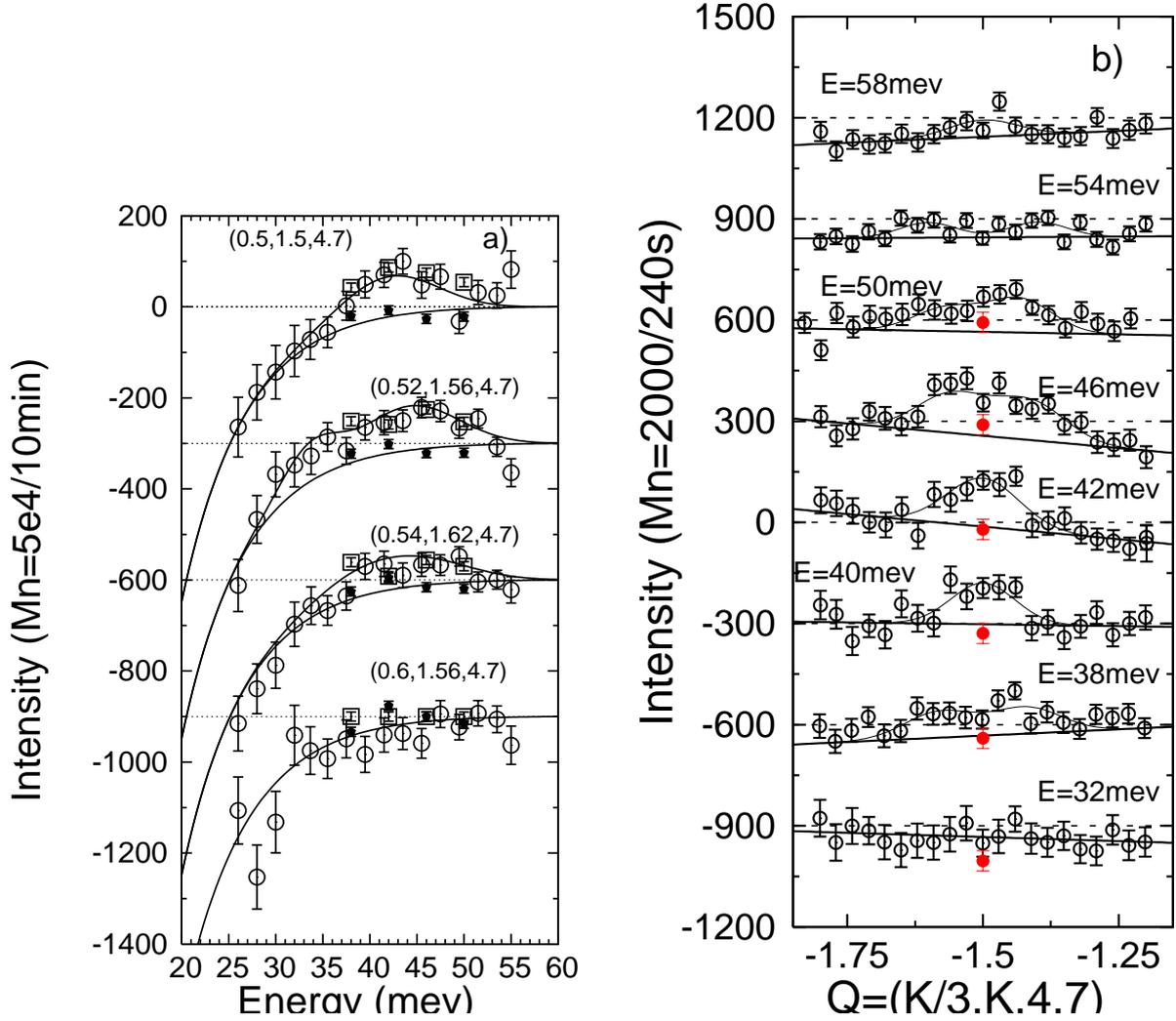


FIG. 3.7: Bi-2212  $T_c=87\text{K}$  (légèrement surdopé) : a) Différences entre les coupes en énergie à  $T=10\text{K}$  et  $T=100\text{K}$  pour  $Q=(0.5,1.5,4.7)$ ,  $(0.52,1.56,4.7)$ ,  $(0.54,1.62,4.7)$  et  $(0.6,1.8,4.7)$ . La ligne noire correspond à un ajustement gaussien sur un bruit de fond déterminé par l'évolution de la différence en  $Q=(0.6,1.8,4.7)$ . Les points carrés et ronds pleins correspondent au signal et au bruit de fond déterminés grâce aux coupes à énergie constante (a). b) Différences entre les coupes le long de la direction  $(K/3, K, 0)$  à  $T=10\text{K}$  et  $T=100\text{K}$  pour des énergies  $E=32,38,40,42,44,46,50,54$  et  $58\text{meV}$ . La ligne noire correspond à un ajustement gaussien sur un bruit de fond pris linéaire ou constant. Les points rouges correspondent au bruit de fond déduit des coupes en énergie (b)

de problèmes techniques, notre étude de la dynamique de spin n'a pu être réalisée que dans la direction  $(1.5, K, 4.7)$ . Nous reportons sur la Fig.3.8.a) en points noirs ouverts la différence entre  $T=2K$  et  $T=100K$  des coupes en énergie à 42, 40 et 38meV. Les points rouges correspondent à la valeur du bruit de fond déduit de la coupe en énergie. Dans le cas particulier de cette expérience, on remarquera que ce bruit de fond est négatif. A 42meV, la différence présente un maximum légèrement excentré du vecteur d'onde AF. A 40meV, la différence est plus large et moins intense qu'à 42meV. A 38meV, la statistique ne permet pas vraiment de conclure. Cette étude difficile suggère l'existence d'un élargissement à basse énergie compatible avec les deux autres mesures.

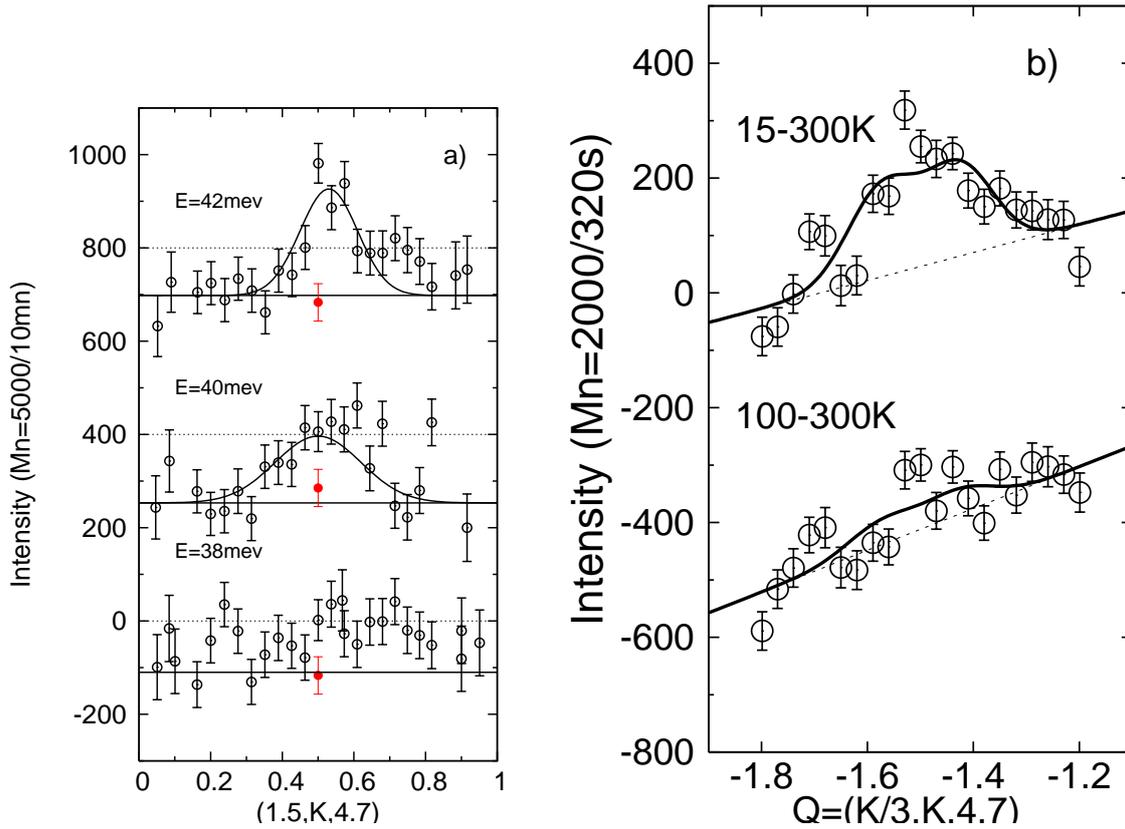


FIG. 3.8: Bi-2212  $T_c=87K$  (légèrement surdopé) : a) Différences des coupes le long de la direction  $(1.5, K, 4.7)$  entre  $T=10K$  et  $T=100K$  pour trois énergies : 38, 40 et 42meV b) Différences en température d'une coupe à 46meV le long de la direction  $(K/3, K, 4.7)$  pour un échantillon de  $T_c=87K$ .

**Nature du signal dans la phase normale :** Dans la mesure où nous procédons par différence entre  $T \ll T_c$  et  $T > T_c$ , notre étude ne s'est concentrée que sur le changement du spectre des fluctuations de spin à travers  $T_c$ . A ce stade, nous n'avons donc pas abordé le problème de la nature du spectre d'excitations magnétiques de la phase normale. Nous proposons d'aborder ce problème dans cette partie.

Tout d'abord, il est important de noter que, d'après l'étude de la phase normale dans la famille Y123 [181], le signal dans la phase normale pour un échantillon légèrement surdopé de  $T_c=87K$  est très étalé en énergie,

ce qui rend sa détection par DIN difficile. Aussi, la mise en évidence d'un signal dans la phase normale est plus difficile que dans la phase supraconductrice. En effet, il faut dans le cas de la phase normale faire une différence entre 100K (ou 10K) et 300K. Dans cette gamme de température, le spectre phononique change énormément, le bruit de fond change donc aussi. Dans la mesure où l'on cherche un signal qui représente moins de 1/15 du bruit de fond, on comprend dès lors que l'extraction du signal soit difficile.

Afin de minimiser ce problème, nous avons essayé d'évaluer l'existence d'un signal dans la phase normale du composé Bi-2212 de  $T_c=87\text{K}$  légèrement surdopé pour une énergie où les phonons sont les moins présents. Pour une énergie de 46meV, la coupe le long de la direction (130) nous a semblé la moins contaminée par les phonons. Pour cette énergie, nous avons réalisé des coupes le long de la direction (130) pour différentes températures :  $T=1.5, 100, 200$  et  $300\text{K}$ . Nous reportons sur la Fig.3.8.b) la différence entre 15K et 300K ainsi que la différence entre 100K et 300K. Les différences ont été ajustées par un bruit de fond en pente et deux pics en positions incommensurables. Le rapport d'intensité entre la différence à 15-300K et 100-300K vaut 3.7. Ceci signifie que pour une énergie de 46meV, il y a quatre fois moins de signal au-dessus de  $T_c$  qu'au-dessous. Comme le signal magnétique est difficile à identifier dans la phase normale, notre étude a été réalisée à 46meV uniquement. En fait, la seule façon de s'affranchir complètement de l'évolution en température du bruit de fond serait d'utiliser les neutrons polarisés. Cependant, en raison de la taille de l'échantillon et du rapport signal sur bruit, ceci n'est pas envisageable sur cet échantillon.

### 3.2.4 Etude des excitations magnétiques par diffusion de neutrons polarisés

L'étude en neutrons polarisés de la dynamique de spin dans les composés Bi-2212 est devenue récemment envisageable grâce à l'effort de crystallogénèse réalisé par G.Gu au BNL sous l'impulsion de J.Tranquada. Durant ma dernière année de thèse, j'ai pu participer à ce projet.

L'échantillon utilisé a été présenté dans le chapitre 2, on pourra en particulier se référer à la Fig.2.7.c) pour une illustration du montage. L'étude de cet échantillon a d'abord été initiée sur le spectromètre à temps de vol MAPS à ISIS. Les expériences auxquelles j'ai participé avaient pour but de compléter cette série initiale de mesures. En particulier, l'un des objectifs était de déterminer la nature magnétique (ou non) du signal mesuré au-dessous de l'énergie de la résonance sur MAPS. En effet, bien que les mesures aient été réalisées à petit Q, une contribution phononique n'était pas à exclure. Etant donnée la masse de l'échantillon disponible, une étude en neutrons polarisés était aussi envisageable. Nous avons donc principalement étudié la nature du signal observé au-dessous de la résonance pendant deux semaines sur le spectromètre IN22 en configuration CRYOPAD. Les mesures ont été réalisées à  $k_f=3.84\text{\AA}^{-1}$ . L'échantillon a été monté dans le plan (100)/(038) afin de pouvoir mesurer le long de la direction  $a^*$ .

Nous reportons sur la Fig.3.9 l'intensité dans le canal spin flip (SF) le long de la direction (H,1.5,4) pour  $T=2\text{K}$  (Fig.3.9.a)) et  $T=100\text{K}$  (Fig.3.9.b)) pour la polarisation (H//Q) pour des énergies allant de  $E=18\text{meV}$  à  $48\text{meV}$ . Quelle que soit l'énergie lorsque la coupe présente un pic, celui-ci est centré au vecteur d'onde AF. Afin de confirmer la nature magnétique ou non des pics, nous avons réalisé une analyse complète de polarisation au vecteur d'onde AF pour toutes les énergies étudiées. Nous reportons en points noirs ouverts l'intensité magnétique et le bruit de fond déduits de l'analyse complète de polarisation. A basse température et pour  $E=34$  et  $40\text{meV}$ , l'analyse complète de polarisation a été étendue à d'autres vecteurs d'onde.

L'analyse complète de polarisation permet de mettre en évidence l'existence de deux types de contributions dans les coupes en Q. La première contribution est non magnétique. Celle-ci est particulièrement visible à  $26\text{meV}$  quelle que soit la température. Le point de bruit de fond et le point d'intensité magnétique se superposent, ce qui suggère que le pic observé dans le canal SF est d'origine non magnétique. La Fig.3.9.b) suggère qu'il existe une contamination pour chaque énergie. Ainsi à  $48\text{meV}$ , on observe en plus d'une structure centrée autour du vecteur d'onde AF un pic centré en  $H=1$ . A mesure que l'énergie diminue, ce pic se déplace vers les petites valeurs de H pour atteindre  $\mathbf{Q}_{\text{AF}}$  à  $26\text{meV}$ . Cette contamination est probablement due à la

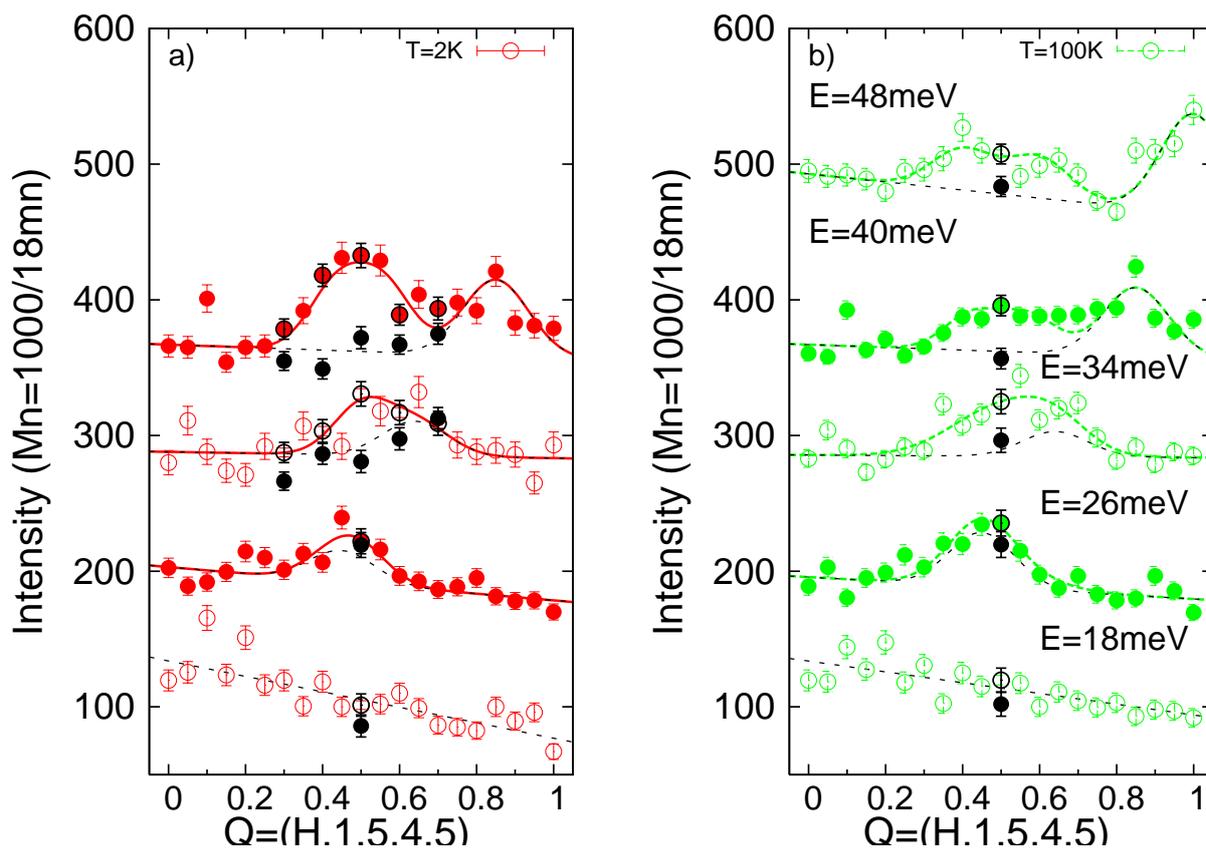


FIG. 3.9: Bi-2212  $T_c=91\text{K}$  (dopage optimale) : a) En rouge : intensité spin-flip pour  $H//Q$  et  $T=2\text{K}$  le long de la direction  $(H,1.5,4.5)$  pour des énergies allant de  $E=18\text{meV}$  (en bas) à  $E=40\text{meV}$  (en haut). En noir, on reporte le résultat de l'analyse de polarisation : les point ouverts correspondent à l'intensité magnétique déduite et les points fermés correspondent aux points de bruit fond. b) En vert : même chose qu'en a) pour  $T=100\text{K}$  et pour  $E=18\text{meV}$  (en bas) et  $E=48\text{meV}$  (en haut)

raie (111) de l'aluminium.

L'analyse de polarisation permet également de mettre en évidence une deuxième contribution, cette fois-ci d'origine magnétique. A 40meV, cette contribution est centrée au vecteur d'onde AF. Son intensité diminue pour  $T=100\text{K}$  mais ne semble pas disparaître complètement au-dessus de  $T_c$ . Au-dessous de 40meV, l'analyse de polarisation indique la présence d'un signal plus faible qui semble peu dépendant de la température. L'amplitude du signal diminue à mesure que l'énergie diminue. Par faute de temps, seule la coupe en  $\mathbf{Q}$  à  $E=48\text{meV}$  pour  $T=100\text{K}$  a été réalisée. L'étude à haute température suggère la présence d'un signal incommensurable au-dessus de la résonance.

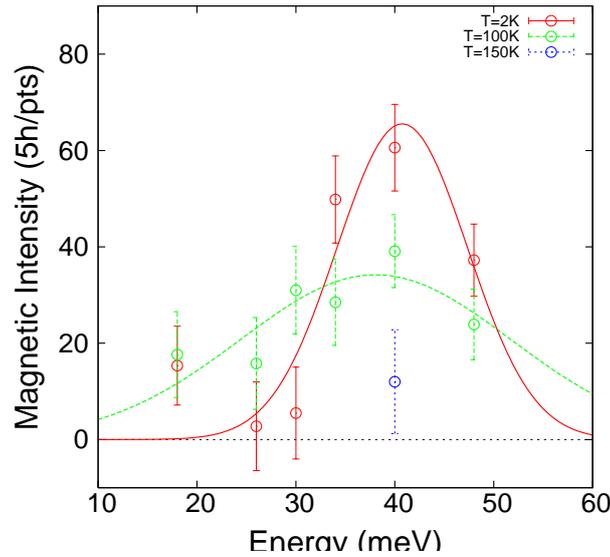


FIG. 3.10: **Bi-2212  $T_c=91\text{K}$  (dopage optimale) : Intensité magnétique déduite de l'analyse complète de polarisation au vecteur d'onde  $\mathbf{Q}=(0.5,1.5,4.5)$  en fonction de l'énergie pour  $T=2\text{K}$  (points rouges),  $T=100\text{K}$  (points verts) et  $T=150\text{K}$  (points bleus). A  $T=2\text{K}$  et  $T=100\text{K}$ , les intensités sont ajustées par des gaussiennes.**

De façon complémentaire à la Fig.3.9, nous reportons sur la Fig.3.10 l'intensité magnétique déduite de l'analyse de polarisation à  $\mathbf{Q}_{\text{AF}}$  en fonction de l'énergie pour  $T=2\text{K}$  et  $T=100\text{K}$ . Cette figure permet de mieux apprécier l'évolution en température du spectre magnétique. A basse température, le spectre se caractérise par un pic gaussien centré à une énergie de 40meV de largeur 16meV. Au-dessus de  $T_c$ , cette étude suggère la présence d'un signal magnétique centré à l'énergie de la résonance et de largeur 30meV (étant donnée cette largeur, une étude systématique en énergie devra confirmer cette mesure). Il est intéressant de noter qu'à  $T=150\text{K}$ , le signal semble avoir diminué à 40meV.

Plusieurs conclusions peuvent être tirées de cette série de mesure. Tout d'abord, ces mesures confirment la nature magnétique et la largeur du pic de résonance dans le composé Bi-2212 discutés dans la partie 3.2.2. Ensuite, cette série de mesure ré-ouvre le problème de la nature du signal magnétique dans la phase normale des SHTCs au dopage optimal. En effet, cette mesure indique la présence d'un signal magnétique dont le poids spectral est au moins de l'ordre de grandeur de celui de la résonance pour un échantillon de dopage optimal. Alors que notre mesure dans un échantillon légèrement surdopé de  $T_c=87\text{K}$  montre un faible signal dans la phase normale. Le poids des fluctuations magnétique semble donc diminuer fortement en allant vers le régime surdopé en accord avec notre discussion dans le cas de la famille de composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$

1.2.4. Aussi, d'un point de vue technique, cette mesure démontre qu'il est possible d'étudier dans un temps raisonnable le spectre magnétique de la phase normale des SHTCs par diffusion inélastique de neutrons polarisés.

### 3.3 Discussion du spectre d'excitation magnétique dans l'état supraconducteur du composé Bi-2212 de $T_c=87K$

L'ensemble de nos mesures indique la présence d'un signal magnétique de part et d'autre de l'énergie de la résonance. Au-dessous de l'énergie de la résonance, nos mesures indiquent un élargissement du signal et une diminution d'intensité à mesure que l'on s'éloigne de l'énergie de la résonance. On perd le signal typiquement autour de 6meV au-dessous de  $E_r$ . Contrairement au cas du composé  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ , nous n'avons pas mis en évidence de signal incommensurable net à basse énergie [108]. Néanmoins, l'élargissement observé est compatible avec l'existence d'une dispersion. L'absence de structure incommensurable pourrait être liée à la largeur des pics en positions incommensurables qui cacherait la structure incommensurable.

Au-dessus de l'énergie de la résonance, nous avons identifié l'existence d'un signal net jusqu'à une énergie de 54meV (dans la cas du composé de  $E_r=42meV$ ). A cette énergie, le meilleur ajustement est réalisé pour une structure incommensurable. Quels que soient le plan de diffusion et l'échantillon considérés, le signal au-dessus de  $E_r$  est toujours plus large que la coupe à l'énergie de la résonance. Ainsi, le signal devient incommensurable à assez haute énergie, typiquement 6meV au-dessus de l'énergie de la résonance.

L'ensemble de nos mesure montre l'existence d'une dispersion des excitations magnétiques dans la phase supraconductrice du composé Bi-2212 de part et d'autre de  $E_r$ . Cette dispersion peut en première approximation être décrite de la même façon que celle observée dans le cas du composé  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ , à savoir en forme de sablier [108, 103, 109].

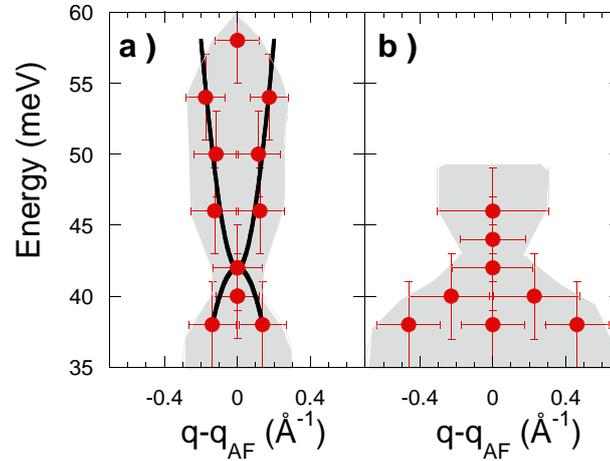


FIG. 3.11: Bi-2212  $T_c=87K$  (légèrement surdopé) : Dispersion des excitations magnétiques : a) le long de la direction (110), b) le long de la direction (130). Le trait noir correspond à un guide à l'oeil d'équation :  $E = \sqrt{E_r^2 + \alpha_{\pm}(q - q_{AF})^2}$ .

Afin de préciser le spectre des excitations magnétiques dans la phase supraconductrice, nous reportons sur la Fig.3.11 la position en énergie et en  $\mathbf{q}$  des pics mesurés dans les deux plans de diffusions les plus étudiés. Sur chacune des deux figures, nous reportons en trait noir un guide à l'oeil d'équation  $E = \sqrt{E_r^2 + \alpha_{\pm}(q - q_{AF})^2}$ .

Pour chacun des plans de diffusion, nous reportons les valeurs de  $\alpha_+$  et  $\alpha_-$  ( ces paramètres contrôlent la dispersion vers les hautes et basses énergies respectivement) dans le Tab.3.3. A titre de comparaison, nous avons également reporté ces mêmes valeurs pour l'échantillon  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$  ( $T_c=89\text{K}$ )[116] .

Echantillon	Plan de diffusion	$\alpha_+$ (meV.Å)	$\alpha_-$ (meV.Å)
Bi-2212 ( $T_c=87\text{K}$ )	(110/001)	200	-70
Bi-2212 ( $T_c=87\text{K}$ )	(130/001)	200	-130
$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$ ( $T_c=89\text{K}$ )[116]	(110/001)	145	-125

TAB. 3.3: **Bi-2212  $T_c=87\text{K}$  (légèrement surdopé) : Dispersion des excitations magnétiques dans la phase supraconductrice pour différents échantillons et différents plans de diffusion. La dispersion est ajustée par l'équation :  $E = \sqrt{E_r^2 + \alpha_{\pm}(q - q_{AF})^2}$**

**Anisotropie du signal** La comparaison des différentes dispersions permet de mettre en évidence trois faits. Tout d'abord, dans le cas du composé Bi-2212, les dispersions vers les basses énergies dans les plans de diffusion (130)/(001) et (110)/(001) ne sont pas identiques, la dispersion vers les basses énergies est donc anisotrope. L'existence d'une anisotropie dans la dispersion de basse énergie est également mise en évidence lorsque l'on reporte les coupes réalisées à 40meV dans les trois plans de diffusion étudiés en fonction de la distance au vecteur d'onde AF en unités absolues ( $\text{Å}^{-1}$ ), voir Fig.3.12. En accord avec le Tab.3.3 et la Fig.3.11, le signal est nettement plus large le long de la direction (110) que dans les autres directions (010) et (130) où les largeurs sont équivalentes. Comme on l'a vu dans la partie 2.4.1, Bi-2212 est un système composite formé de plans  $\text{CuO}_2$  et  $\text{BiO}_2$  dont les paramètres de réseau ne sont pas dans un rapport entier. A cause de cette propriété, les plans  $\text{BiO}_2$  sont modulés le long de l'axe  $c^*$  et le long de la diagonale (110) qui en notation orthorhombique devient  $b_{ortho}^*$ . On ne peut donc pas exclure le fait que les plans  $\text{BiO}_2$  induisent une distorsion sur les propriétés électroniques et magnétiques le long de la direction (110). Il est intéressant de rappeler que dans le système  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ , la réponse magnétique présente également une anisotropie, cette fois-ci le long de la direction des chaînes, c'est-à-dire le long de (010) [110]. Les chaînes jouent le rôle de réservoir de charges dans ce composé, comme les plans BiO dans Bi-2212.

La dispersion vers les hautes énergies est isotrope car  $\alpha_+(130) \approx \alpha_+(110)$ .

Enfin, la comparaison avec le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$  dans le plan de diffusion (110) indique que la dispersion vers les basses énergies est identique à celle du composé Bi-2212 mais dans la direction (130). Du point de vue du spectre magnétique, ces deux directions sont équivalentes. Ceci n'est pas surprenant car ces deux directions sont à  $45^\circ$  de la direction de perturbation liée au réservoir de charge (chaînes Cu-O dans le cas de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  et plans  $\text{BiO}_2$  dans le cas Bi-2212). Cette comparaison suggère donc que l'anisotropie observée dans les spectres d'excitation magnétique est liée aux spécificités de chacun des composés et non à une spécificité de la supraconductivité.

Quelle que soit l'origine de cette anisotropie, cette remarque permet de proposer une solution à un ancien débat. Les travaux initiaux de Fong et al. dans un échantillon de dopage optimal Bi-2212 [99] ont montré que le poids spectral intégré du pic de résonance magnétique était similaire dans les échantillons de Bi-2212 et Y123 à dopages optimaux ( $\sim 2\mu_B^2/f.u.$ ). Cependant, ces travaux ont aussi montré que la susceptibilité locale de spin est quatre fois plus large dans Bi-2212 que dans Y123. Cette différence vient du calcul de la susceptibilité de spin locale qui part du principe que la distribution de la réponse magnétique est isotrope. Notre mesure montre que la distribution de la réponse magnétique n'est pas isotrope. Ceci souligne une surestimation de la susceptibilité locale de spin déduite des mesures neutron.

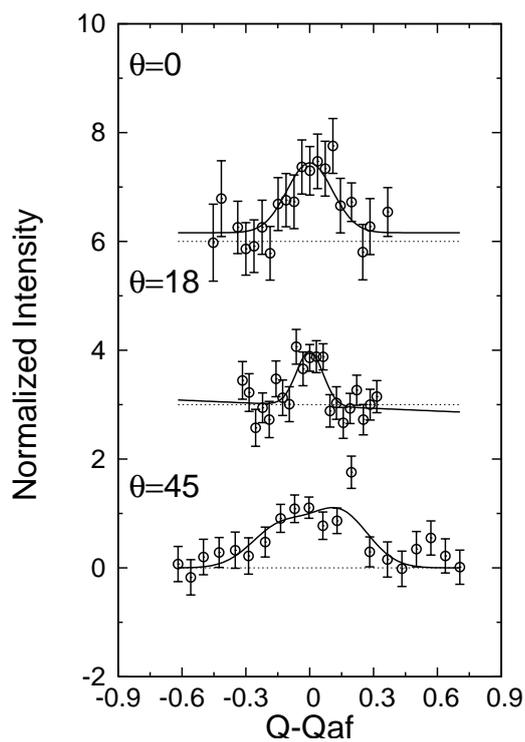


FIG. 3.12: Bi-2212  $T_c=87K$  (légèrement surdopé : Différences des coupes réalisées à énergie constante à 10K et 100K. Toutes les coupes ont été réalisées à 40K autour du vecteur d'onde AF le long de trois directions (100) ( $\theta=0$ ), (130) ( $\theta=18$ ) et (110) ( $\theta=45$ ).  $\theta$  correspond à l'angle entre la direction de la coupe et la direction (100) (voir Fig.3.13.e)).

**Position du signal magnétique par rapport au continuum électron-trou** Afin de mettre en évidence la relation qu'il pourrait exister entre les excitations de spin mesurées, la phase supraconductrice et le continuum électron-trou, nous avons calculé la bordure de continuum électron-trou pour l'excitation acoustique dans les deux directions principales (130) et (110), voir Fig.3.13 b) et c). Dans le cas où  $t_{\perp}$  serait non nul, la bordure du continuum du mode acoustique est donnée par :

$$w_c^{ac}(\vec{q}) = \min(E_k^a + E_{k+\vec{q}}^b)$$

Nous reportons sur la Fig.3.13.d) et e) une carte en couleur de l'augmentation de l'intensité magnétique à travers  $T_c$  déduite des ajustement des Fig.3.6.b) et Fig.3.7.b) , on y superpose aussi la bordure du continuum. Suivant [103], on définit deux régions au-dessous du continuum. La zone I désigne l'espace des phases localisé sous le continuum en forme de dôme autour du vecteur d'onde AF. La zone II correspond au reste de l'espace des phases se trouvant sous le continuum électron-trou.

De façon remarquable, le signal magnétique semble épouser la forme du continuum le long des deux directions. Dès que le signal se rapproche du continuum, le signal disparaît. Le long de la direction (130), la réponse magnétique dans l'état supraconducteur apparaît confinée dans la zone I. Il faut remarquer aussi que dans la gamme d'énergie où le signal a été mesuré (35 à 55meV), la zone II se trouve loin en Q et est très restreinte en taille. Le long de la direction (110), la situation est plus compliquée. D'une part, la zone II devient non négligeable dans la gamme d'énergie 35-48meV, et d'autre part la zone I est réduite, à tel point que la largeur en Q de la zone I devient comparable à celle de la résolution, ce qui rend difficile a priori la mise en évidence d'un signal incommensurable dans cette zone. En plus d'un signal dans la zone I, on observe aussi un signal dans la zone II. A cause de la convolution avec la résolution expérimentale et la faiblesse du signal à 38meV, il est difficile de déterminer précisément le nombre exact et la position précise des pics magnétiques.

Une autre représentation possible est une carte du continuum à 40meV autour du vecteur d'onde AF avec superposition des points expérimentaux. Sur la Fig.3.13.f), nous reportons la dépendance en Q du continuum. La zone I centrée autour du vecteur d'onde AF a une forme en diamant, alors que la zone II se découpe en huit régions (quatre le long des diagonales, deux le long de  $a^*$  et deux le long de  $b^*$ ). Les points rouges représentent l'extension spatiale du signal magnétique dans chacune des directions étudiées. Les données sont symétrisées pour tenir compte de la symétrie quatre des plans  $CuO_2$ <sup>1</sup>.

Cette comparaison est particulièrement intéressante car elle permet de mettre en avant le fait que le signal magnétique est concentré dans la zone I tout comme cela était le cas dans les composés Y123. Un signal magnétique supplémentaire est aussi observé dans la zone II. De façon remarquable, un tel signal a aussi été observé dans la famille Y123 [103] et a été interprété théoriquement dans le cadre du modèle d'excitons de spin [127]. Dans le cas de Y123, il a été montré que le continuum donne lieu à des lignes verticales dites *silent bands* où le mode résonant rencontre le continuum. Le mode résonant est alors suramorti. De même, on peut retrouver cette empreinte du continuum dans la coupe à 38meV le long de la direction (110), où l'on observe un minimum aux vecteurs d'onde  $\mathbf{q} \simeq (-0.4, -0.4)$  et  $\mathbf{q} \simeq (-0.6, -0.6)$ . Ce minimum pourrait être relié à la présence des *silent bands*.

### 3.4 Interprétation des excitations magnétiques dans le cadre d'une approche itinérante

La discussion précédente a montré que le signal magnétique dispersif autour du vecteur d'onde AF se trouve au-dessous du continuum de Stoner. Cependant, nous n'avons pas discuté l'origine de ces excitations

<sup>1</sup>on ignore alors une éventuelle anisotropie le long de  $b^*$  due au plan BiO

### 3.4 Interprétation des excitations magnétiques dans le cadre d'une approche itinérante

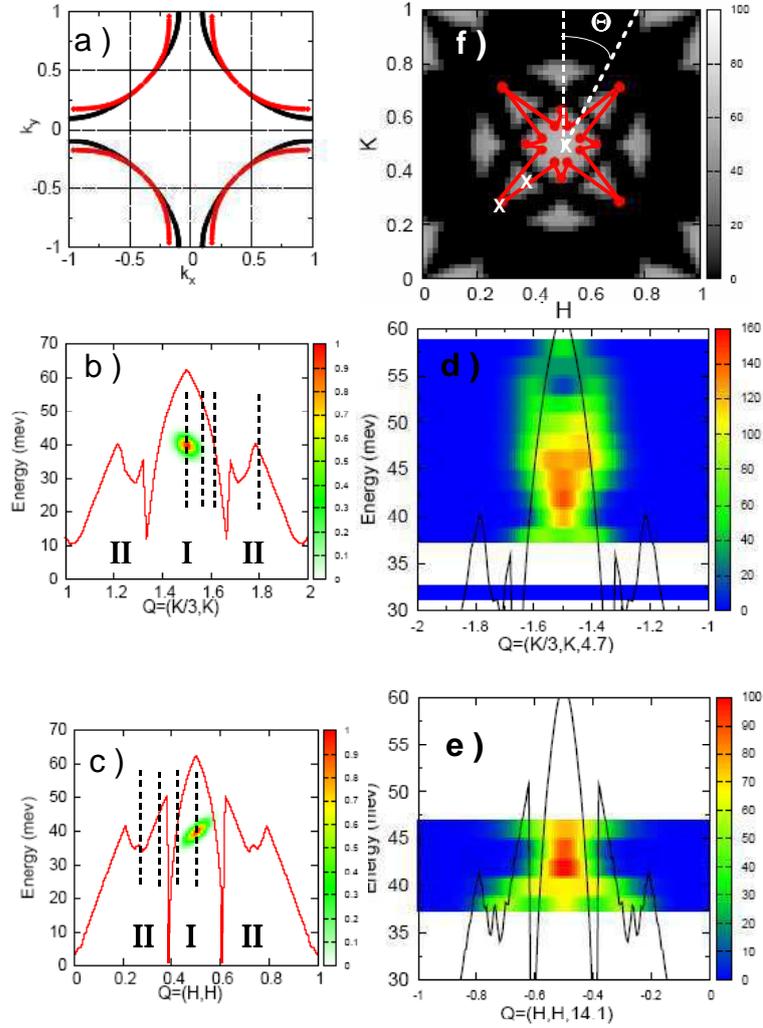


FIG. 3.13: a) Surface de Fermi déduite des mesures d'ARPES [171] pour échantillon légèrement surdopé de  $T_c=87\text{K}$  (la ligne rouge correspond à la bande liante et la noire à la bande anti-liante). b) et c) Bordure du continuum dans l'état supraconducteur déduit des mesures d'ARPES le long de la direction (130) et (110). On superpose en plus l'ellipsoïde de résolution à  $40\text{meV}$ . d)-e) Carte en couleur représentant la distribution du signal magnétique déduit de Fig.3.6.b) et Fig.3.7.b). En ligne noire, on superpose la bordure du continuum. f) En noir, on représente l'expansion du continuum à  $40\text{meV}$ . Les points rouges indiquent l'extension du signal magnétique déduit de la Fig.3.12. Les points blancs représentent les points de l'espace réciproque dont l'intensité a été étudiée en fonction de la température.

magnétiques. Comme nous l'avons vu dans la partie 3.1.1, les mesures d'ARPES et de STM suggèrent la présence de quasiparticules dans la phase supraconductrice du composé Bi-2212. Il est naturel de s'interroger sur le spectre magnétique associé à ce spectre de quasiparticules. On propose donc ici une description des modes résonants et de leur dispersion dans le cadre d'une approche itinérante du magnétisme [87, 128, 127]. Contrairement à la partie précédente, nous essaierons de décrire l'origine physique des ces excitations magnétiques et leurs caractéristiques présentées dans les parties ??.

### 3.4.1 Excitations au vecteur d'onde $\mathbf{q}=(\pi, \pi)$

Dans une approche itinérante, les modes acoustique et optique sont associés à un mode collectif triplet de spin se propageant avec un vecteur d'onde  $\mathbf{q}=(\pi, \pi)$ . Nous rappelons brièvement les éléments nécessaires à la formation de tels modes (une description plus complète se trouve dans le chapitre d'introduction de la partie 1.2.4) :

- l'existence de quasiparticules caractérisées par une dispersion  $\epsilon_{\mathbf{k}}$
- un gap non trivial de type d-wave :  $\Delta_{\mathbf{k}} = \frac{\Delta_0}{2}(\cos(k_x) - \cos(k_y))$
- une interaction  $g(\mathbf{q})(U \text{ ou } J(\mathbf{q}))$  entre les quasiparticules de manière à satisfaire la condition de pôle.

Dans le cas d'un système bicouche, la susceptibilité RPA est donnée par :

$$\chi_{e,o}(\mathbf{q}, \omega) = \frac{\chi_{e,o}^0(\mathbf{q}, \omega)}{1 + (g(\mathbf{q}))\chi_{e,o}^0(\mathbf{q}, \omega)} \quad (3.1)$$

où  $\chi_{e,o}^0$  représente la susceptibilité sans interaction du mode acoustique et du mode optique. Pour le mode acoustique,  $\chi_e^0 = \chi_{aa}^0 + \chi_{bb}^0$  représente les excitations à deux particules entre les bandes liante (b) et antiliante (a). Pour le mode optique,  $\chi_o^0 = \chi_{ab}^0 + \chi_{ba}^0$  représente les excitations à deux particules entre les bandes (a) et (b). Les conditions de pôles sont données par :  $1 - (g(\mathbf{q}))\text{Re}\chi_{e,o}^0(\mathbf{q}, \omega) = 0$ . On reporte sur les Fig.3.14.a) et b) le calcul de la susceptibilité après RPA pour les deux valeurs de gap du Tab.3.1) pour  $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ . Pour chacun des gaps, on ajuste la valeur de l'interaction  $g(\mathbf{q})$  aux positions des modes acoustique et optique telles qu'elles ont été mesurées expérimentalement. Pour l'échantillon surdopé  $T_c=87\text{K}$ , on trouve pour le mode acoustique ( $E_r(\text{ac})=42\text{meV}$ )  $g_{ac}(\mathbf{q})=1076\text{meV}$  et pour le mode optique ( $E_r(\text{op})=55\text{meV}$ ),  $g_{op}(\mathbf{q})=1120\text{meV}$ . Dans le cas de l'échantillon surdopé  $T_c=70\text{K}$ , le calcul numérique est un peu plus compliqué car la position de la résonance est très proche de la position de la divergence, le calcul devient donc très sensible à l'amortissement et à la discrétisation en énergie choisis. On choisit un amortissement petit de  $0.2\text{meV}$ . Pour l'échantillon surdopé  $T_c=70\text{K}$ , on trouve pour le mode acoustique ( $E_r(\text{ac})=34\text{meV}$ )  $g_{ac}(\mathbf{q})=1042\text{meV}$  et pour le mode optique ( $E_r(\text{op})=35\text{meV}$ ),  $g_{op}(\mathbf{q})=1133\text{meV}$ . Deux enseignements peuvent être tirés de cette modélisation : (i) Pour les deux échantillons, il est nécessaire d'utiliser une interaction différente dans les deux canaux pour rendre compte de la position en énergie des modes acoustique et optique. La différence entre  $\chi_o^0$  et  $\chi_e^0$  ne peut pas à elle seule rendre compte de la position des modes acoustique et optique. D'après notre modélisation, on trouve que :  $g_{ac/op} = g_0 \pm g_{\perp}$  avec  $g_{ac}=1059\pm 17$  et  $g_{op}=1127\pm 7$ , on en déduit que  $g_0=1093\text{meV}$  et  $g_{\perp}=34\text{meV}$ , c'est-à-dire :  $\frac{g_{\perp}}{g_0} \approx 0.03$ . Ce rapport est en accord avec le rapport entre l'interaction d'échange dans le plan, noté  $J_{//}$ , et entre l'interaction d'échange entre les plans  $\text{CuO}_2$  de la phase AF isolante du composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ , noté  $J_{\perp}$ . D'après [40, 41], on a un rapport  $\frac{J_{//}}{4J_{\perp}} \approx 0.025$ . (ii) Grâce à notre modélisation, on peut en principe prévoir non seulement la position en énergie des modes résonants mais aussi leur intensité. D'après notre modélisation, le poids spectral est donné par l'intensité du pic multipliée par la largeur de la lorentzienne. Dans le cas du mode acoustique de l'échantillon  $T_c=87\text{K}$ , on trouve :  $W_r=6\mu_B^2$ . Cette valeur est en fait trois fois plus grande que la valeur déduite de la mise en absolu des données dans la famille de composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  [107](notre modélisation donnerait les mêmes chiffres pour cette famille et pour la famille Bi-2212).

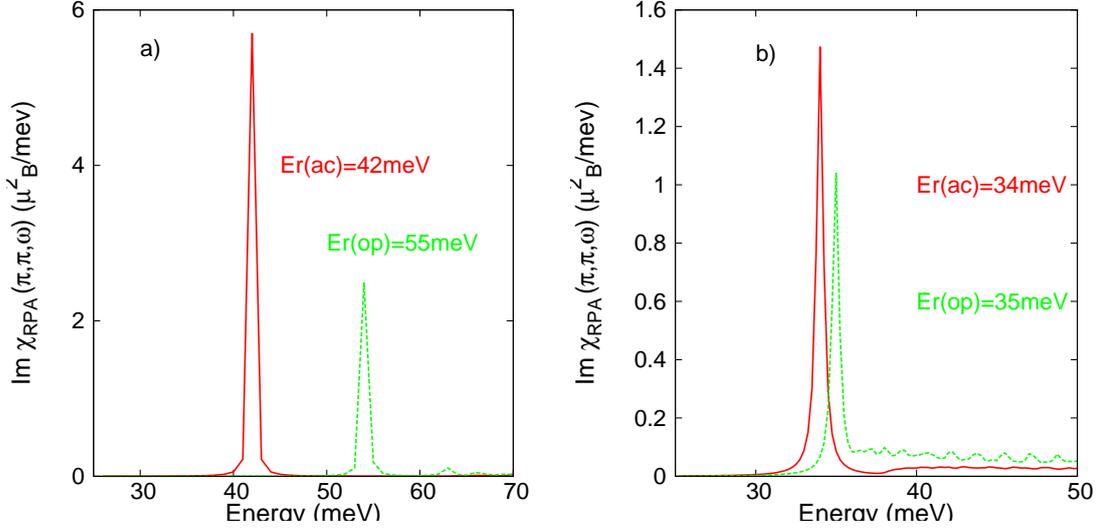


FIG. 3.14: Calcul de la susceptibilité après RPA avec la surface de Fermi et la gap indiqués dans le Tab. 3.1 pour un amortissement  $\delta=0.2\text{meV}$  : a) En rouge et vert, ajustement de l'interaction pour avoir des maxima aux positions des modes acoustique et optique mesurés dans l'échantillon surdopé  $T_c=87\text{K}$ , b) Même chose pour l'échantillon surdopé  $T_c=70\text{K}$

Ainsi, tout comme dans le cas du composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ [107], l'approche itinérante permet de rendre compte de l'évolution en dopage des positions des modes acoustique et optique dans le composé Bi-2212. Cependant elle ne rend pas compte de l'intensité des poids spectraux mesurés. Il manque ainsi dans notre modélisation un paramètre pour décrire l'intensité des modes résonants. Après avoir discuté la position des excitations magnétiques au vecteur d'onde  $\mathbf{q}=(\pi, \pi)$ , intéressons nous à la largeur des excitations magnétiques.

**Largeur du mode acoustique** Dans notre modélisation, la largeur en énergie est imposée par l'amortissement pris lors du calcul, c'est-à-dire  $2\text{meV}$  pour l'échantillon de  $T_c=87\text{K}$  et  $0.2\text{meV}$  pour l'échantillon de  $T_c=70\text{K}$ . Expérimentalement, la largeur du mode acoustique pour l'échantillon surdopé  $T_c=87\text{K}$  est de l'ordre de  $15\text{meV}$  (voir Tab.3.2). Il faut donc introduire dans notre modélisation de nouveaux paramètres pour rendre compte de cette largeur. Tout d'abord, il faut tenir compte de la résolution expérimentale. La largeur du signal étant plus grande que la résolution expérimentale (entre 5 et 6meV), elle ne peut pas à elle seule expliquer la largeur du signal. L'étude du composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$  nous montre que la résonance ne se réduit pas à un pic delta mais à une dispersion autour du vecteur d'onde AF. Ainsi, cette largeur pourrait être due à l'intégration de la dispersion par l'ellipsoïde de résolution. Cependant, deux arguments vont à l'encontre de cette première idée. Tout d'abord, la comparaison de cet échantillon avec l'échantillon Bi-2212 surdopé  $T_c=70\text{K}$  montre que l'élargissement du mode acoustique est bien moins marqué. Or, d'après l'étude  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ , on sait que la dispersion du mode acoustique change peu avec le dopage. Ensuite, une telle largeur n'a jamais été observée dans la famille de composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$  pur (c'est à dire sans impureté) malgré l'existence d'une dispersion. *Cette largeur doit donc être expliquée par une propriété particulière du système Bi-2212.*

Comme nous l'avons vu dans la partie 3.1.1, les mesures de STM indiquent que le gap est distribué spatialement de façon hétérogène. Ces hétérogénéités sont d'autant plus fortes que l'échantillon est surdopé.

Author	$T_c$	$\Delta_0$	$\sigma$
McElroy et al. [173]	89K(OD)	33	14
"	79K(UD)	43	18
"	75K(UD)	48	20
Kapitulnik et al. Cong (2004)	86K (?)	45.4	15
J.Lee et al., [182]	?	23.2	7.6
"	?	32.4	15
"	?	42.4	22.4
"	?	50.9	19.26

TAB. 3.4: Valeur du gap moyen et écart type de la distribution du gap supraconducteur déterminés par STM pour des échantillons Bi-2212 d'après [173, 182]

Pour un dopage donné, il est possible de mesurer la distribution spatiale de ces gaps et d'en déduire un gap moyen et l'écart type associé à cette distribution (voir Tab.3.4) [183, 173, 182]. Dans la mesure où dans l'approche RPA, la position de la résonance est liée à l'amplitude du gap, l'effet d'une distribution de gap est alors évidente. Dans chaque zone où le gap, noté  $\Delta$ , est constant, l'approche RPA prédit un pic de résonance à une certaine position  $E_r(\Delta)$ . D'une zone à une autre, la position de la résonance changera suivant l'amplitude du gap. Ainsi, la distribution spatiale de gap entraîne nécessairement une distribution spatiale de résonance dans l'approche RPA. La DIN est une sonde de volume, on sonde donc de façon équivalente toutes les zones de l'échantillon et donc toutes les résonances présentes dans le système. On comprend ainsi qualitativement l'origine de la largeur du mode acoustique.

De façon plus précise, on peut calculer pour chaque gap la position et l'intensité de la résonance. Pour chaque gap, l'interaction est prise identique. Elle est fixée de manière à ce que l'on trouve l'énergie de la résonance à 42meV pour le gap moyen de la distribution de gap, noté  $\Delta_m$ . La dépendance de l'intensité et de la position de la résonance en fonction du gap peut être approximé par :  $I_r(\Delta) = a_I\Delta + b_I$  et  $E_r(\Delta) = a_e\Delta + b_e$  avec  $a_I=0.01$ ,  $b_I=0.21$  et  $a_e=0.87$  et  $b_e=11.23$ .

En présence d'une distribution de gap, l'intensité de la résonance totale est donc la convolution d'un pic résonnant de forme gaussienne centré à une énergie  $E_r(\Delta)$  avec une largeur  $\sigma_r$  imposée par la résolution du spectromètre ( $\sigma_r=5\text{meV}$ ) et d'intensité  $I_r(\Delta)$  avec la distribution spatiale de gap centrée en  $\Delta_m$  de largeur  $\sigma$  :

$$I(E) = \int d\Delta I_r(\Delta) \exp(-4\ln(2)(E - E_r(\Delta))^2/\sigma_r^2) \exp(-4\ln(2)(\Delta - \Delta_m)^2/\sigma^2)$$

La nature gaussienne de la distribution permet un calcul algébrique :

$$I(E) = I_r(E) \exp(-4\ln(2)(E - E_m^2/\sigma_m^2) \quad (3.2)$$

avec  $I_r(E) = (\frac{a_I}{\sigma_r^2/a_e + \sigma^2}(\sigma^2(E - b_e) + \sigma_r^2/a_e\Delta) + b_I)$ ,  $E_m = b_e + a_e\Delta$  et  $\sigma_m^2 = \sigma^2 + \sigma_r^2/a_e$ . Ainsi, en présence d'une distribution spatiale de gap, on attend deux effets sur le pic de résonance dans une approche RPA :

- un élargissement du mode fixé par la distribution spatiale de gap
- une légère déformation du spectre en énergie au vecteur d'onde  $(\pi, \pi)$ . L'évolution de l'intensité de la résonance en fonction de l'énergie n'est plus purement gaussienne, mais gaussienne multipliée par une fonction linéaire en énergie.

Partant de l'Eq. 3.4.1, on peut ajuster l'intensité du mode acoustique en fonction de l'énergie mesurée par DIN. On reporte sur la Fig.3.15 l'ajustement réalisé pour les deux échantillons surdopés  $T_c=87\text{K}$  et  $T_c=70\text{K}$ . Dans les deux cas, l'ajustement est très satisfaisant. Bien que notre étude expérimentale se soit limitée à

### 3.4 Interprétation des excitations magnétiques dans le cadre d'une approche itinérante

deux échantillons, on peut appliquer le même principe aux études précédentes du composé Bi-2212 [99, 177]. Pour tous les échantillons de Bi-2212 étudiés à ce jour, on reporte dans le Tab.3.5 l'énergie de la résonance, la largeur du pic résonant et la largeur du pic résonant déconvoluée de la résolution expérimentale.

Refs.	$T_c$ (K)	$E_r$ (meV)	$\sigma_r$ (meV)	$\sigma$ (meV)
Fong <i>et al</i> [99]	91	43	$13 \pm 2$	$12 \pm 2$
Fauqué <i>et al.</i>	87	42	$13 \pm 2$	$11 \pm 2$
He <i>et al</i> [177]	83	38	$12 \pm 2$	$10 \pm 2$
Capogna <i>et al</i> [157]	70	34	$8 \pm 1$	$5 \pm 1$

TAB. 3.5: **Energie caractéristique et largeur à mi-hauteur des excitations magnétiques mesurées jusqu'à présent  $\sigma$  représente la largeur intrinsèque du pic de résonance après déconvolution de la résolution en énergie  $\sigma_\omega \simeq 6$  meV.**

La largeur déconvoluée du pic de résonance magnétique peut alors être comparée à la distribution spatiale de gap telle qu'elle est mesurée par STM. Sur la Fig.3.15.c), nous reportons l'évolution de la largeur de la distribution de gap en fonction du dopage d'après les mesures de STM (voir Tab.3.4) et la distribution de gap déduite de la largeur du pic de résonance déconvoluée de la résolution expérimentale (reportée sur le Tab.3.5). De façon remarquable, ces valeurs sont très proches et suivent la même évolution en fonction du dopage. Cette comparaison invite donc à conclure qu'en présence d'une distribution spatiale de gap réaliste, l'approche RPA permet de rendre compte de la largeur du mode acoustique. Il est important de noter que la largeur du mode acoustique dans la famille de composé  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  n'est pas aussi grande. Dans le cadre de cette approche, on en déduit que ces hétérogénéités ne sont pas aussi prononcées que dans  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ , en particulier dans la phase de sous-dopée où la largeur du mode acoustique est toujours proche de la résolution expérimentale (au tour de 5meV). **L'hétérogénéité spatiale du gap n'est donc pas dans ce cadre une propriété universelle des supraconducteurs à haute température critique.** Néanmoins, il est intéressant de remarquer que ces hétérogénéités permettent de confirmer le lien étroit entre le gap et le pic de résonance acoustique.

**Largeur du mode optique** Après avoir interprété la largeur du mode acoustique, intéressons-nous à la largeur du mode optique. La discussion précédente reste valide dans le cas du mode optique. Cependant, contrairement au cas du mode acoustique, l'ensemble de nos mesures indique que le mode optique est toujours large (autour de 12meV) quel que soit le dopage. Ainsi d'autres paramètres doivent être ajoutés à la modélisation précédente. En particulier, la situation est plus compliquée dans le cas du mode optique en raison de la proximité de l'excitation magnétique et du continuum électron-trou. Quel que soit le dopage, le mode optique se trouve à plus haute énergie que le mode acoustique, il sera donc toujours plus près de la bordure du continuum. La situation est aggravée par le fait que la bordure du continuum n'est pas la même pour les modes acoustique et optique. En effet, le mode acoustique correspond à un processus interbande alors que le mode optique correspond à un processus intrabande. Dans le cas où  $t_\perp$  est non nul, la bordure du continuum sera donc différente dans les deux canaux. Pour le mode acoustique, la bordure du continuum, notée  $w_c^{ac}(\vec{q})$ , est donnée par l'Eq.3.4.1. Pour le mode optique, la bordure du continuum, notée  $w_c^{op}(\vec{q})$ , est donnée par l'Eq.3.4.1. Pour les deux échantillons étudiés, on reporte les positions des modes acoustique et optique dans le Tab.3.6.

$$w_c^{ac}(\vec{q}) = \min((E_{\vec{k}}^a + E_{\vec{k}-\vec{q}}^b) \quad (3.3)$$

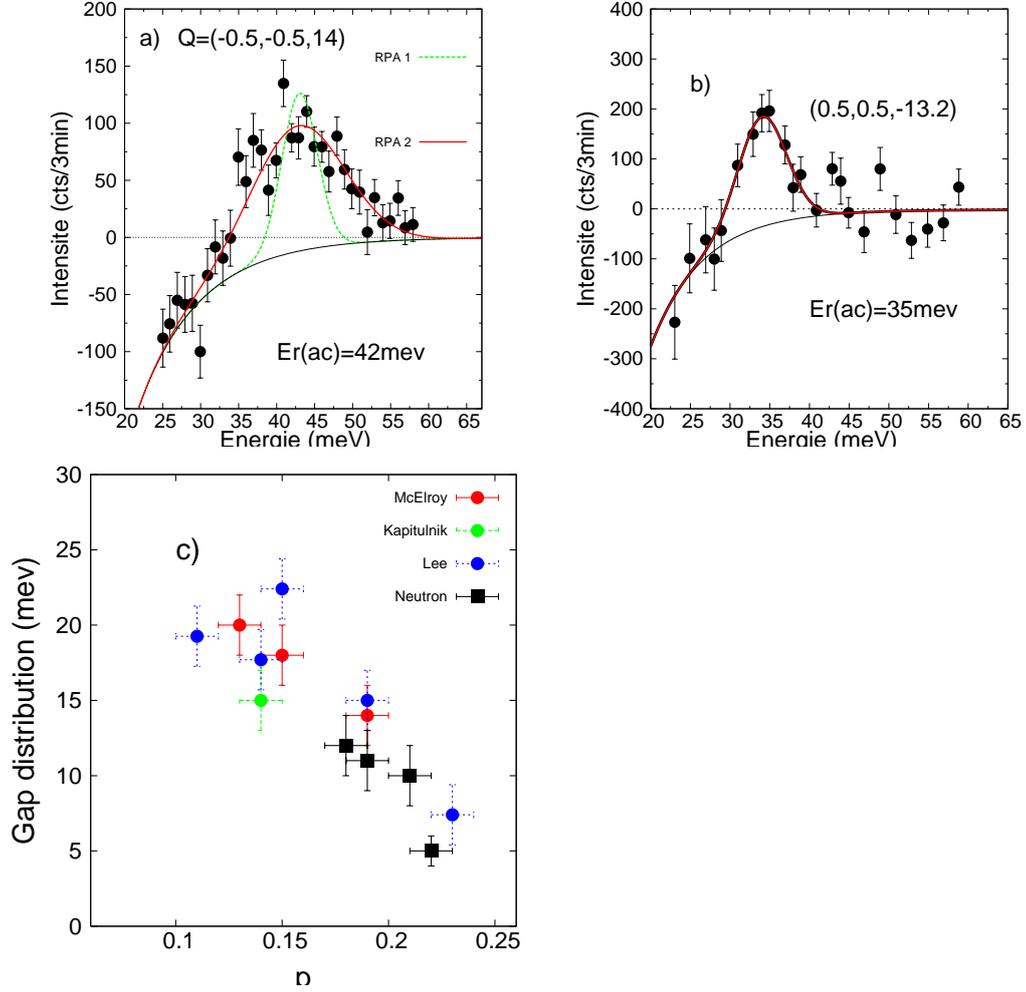


FIG. 3.15: a) et b) Résonance magnétique pour Bi-2212  $T_c=87\text{K}$  et  $70\text{K}$  mesurée à  $Q=(-0.5,-0.5,14)$  et  $Q=(0.5,0.5,-13.2)$ . Les lignes pleines correspondent à la susceptibilité magnétique déduite par RPA convoluée avec la fonction de résolution : en vert on représente le cas d'un gap de symétrie  $d$  (RPA 1) et en rouge on représente le cas d'une distribution de gap de symétrie  $d$  (RPA 2) c) Largeur à mi-hauteur de la distribution de gap mesurée par STM [183, 173, 182] et largeur du pic de résonance magnétique déconvoluée de la résolution expérimentale, mesurée par DIN[99, 177, 157].

$$w_c^{op}(\vec{q}) = \min((E_{\vec{k}}^a + E_{\vec{k}+\vec{q}}^a), (E_{\vec{k}}^b + E_{\vec{k}+\vec{q}}^b)) \quad (3.4)$$

D'après le Tab.3.6, la bordure du continuum optique est toujours plus basse que celle du mode acoustique. La différence dans le cas d'un  $t_{\perp}=87meV$  est relativement faible, de l'ordre de 2 à 3 meV en fonction du gap considéré. Le fait que la bordure du continuum optique soit d'énergie plus grande que celle du mode acoustique suggère que le couplage entre le continuum électron-trou et le mode optique est plus marqué qu'avec le mode acoustique. Ceci est aussi suggéré par l'étude de la famille d'échantillon  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ , où l'on observe que le mode optique est systématiquement plus large que le mode acoustique [107, 116]. On peut ainsi comprendre qualitativement l'origine de la largeur du mode optique. Cependant, il n'existe à ce jour aucune modélisation précise concernant un couplage entre le mode optique et le continuum électron-trou.

**Détermination de la bordure du continuum** Intéressons nous maintenant à l'évolution de la bordure du continuum électron-trou telle que nous pouvons la déduire de nos mesures de DIN. Comme nous l'avons vu dans le cas de  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ , on peut déduire de ces mesures la position moyenne du continuum électron-trou à partir des poids spectraux dans les canaux acoustique et optique. D'après l'Eq.1.17, la bordure de continuum est dans ce cas donnée par :  $\omega_c^m = \frac{W_{ac}E_r^{op} - W_{op}E_r^{ac}}{W_{ac} - W_{op}}$ . On déduit  $\frac{W_{ac}}{W_{op}} = \frac{I_{ac}/f(Q_{ac})\Delta E_r^{ac}}{I_{op}/f(Q_{op})\Delta E_r^{op}}$ ,  $E_r^{ac}$  et  $E_r^{op}$  du Tab.3.2. Pour les deux échantillons dans lesquels les modes acoustique et optique ont été mesurés, on reporte dans le Tab.3.6 la valeur du gap déduite des mesures d'ARPES et de STM et les valeurs respectives de  $w_c^{ac}$  et  $w_c^{op}$  déduites des Eq.3.4.1 et Eq.3.4.1 ainsi que les valeurs de  $\frac{W_{ac}}{W_{op}}$  et  $\omega_c^m$  déduites des mesures de DIN. L'accord entre les valeurs des bordures de continuum déduites des mesures de spectroscopie de charge et de nos mesures de DIN est tout à fait bon. Il suggère une nouvelle fois un lien étroit entre l'amplitude du gap et la position des excitations magnétiques. Ces mesures sont ainsi en accord avec les résultats pour le composé  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  [107, 116].

$T_c$	$\Delta_0$	$w_c^{ac}$	$w_c^{op}$	$\frac{W_{ac}}{W_{op}}$	$\omega_c^m$
87K	35.2	62.8	59.7	3.3	61±2
70K	21	38.2	36.3	1.5	37 ±2

TAB. 3.6: Comparaison de la bordure du continuum déduite des mesures d'ARPES et des mesures de DIN. ( $w_c^{ac}$ ) et ( $w_c^{op}$ ) correspondent respectivement à la bordure du continuum calculée à partir de la surface de Fermi et du gap  $\Delta_0$ .  $\omega_c^m$  correspond à la bordure du continuum (moyenne entre modes acoustique et optique) déduite de la mesure du poids spectral des modes acoustique et optique  $W_{ac}, W_{op}$

### 3.4.2 Etude de la dispersion des excitations magnétiques dans le cadre d'une approche itinérante du magnétisme

Après avoir proposé une interprétation de nos données au vecteur d'onde AF, nous proposons dans cette partie d'étendre notre interprétation au spectre complet des excitations magnétiques du mode acoustique décrit dans la partie 3.2.3. On s'intéressera en particulier à l'effet d'une distribution spatiale de gap sur la dispersion des excitations magnétiques dans une approche itinérante du magnétisme .

### Modélisation du spectre magnétique

Comme nous l'avons discuté dans la partie 3.4.1, lorsque l'on s'intéresse au vecteur d'onde  $\mathbf{q}=(\pi,\pi)$  le choix de l'interaction est imposé par la position en énergie de la résonance. L'interaction est prise égale à  $g(\mathbf{q}_{\mathbf{AF}})=1/\text{Re } \chi(\pi, \pi, \Omega_r)_o$ . Si l'on s'intéresse à la dispersion des excitations magnétiques autour de  $\mathbf{q}=(\pi,\pi)$ , il faut également tenir compte de la dépendance en  $\mathbf{q}$  de cette interaction. La dépendance en  $\mathbf{q}$  de l'interaction contrôle la dispersion de l'excitation, elle est donc imposée par la mesure. Dans le cas de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ , l'interaction la plus adaptée est de la forme :  $g(\mathbf{q})=U(1+0.1(\cos q_x+\cos q_y))$  [127]. Nous reportons sur la Fig.3.16.a) et b) le calcul de la susceptibilité RPA dans les deux directions principalement étudiées pour l'échantillon de  $T_c=87\text{K}$ , à savoir (130) et (110). L'interaction prise est imposée par la position de la résonance et la forme de la dispersion mesurées. Les paramètres qui décrivent le mieux la forme de cette dispersion sont les mêmes que ceux de [127] :  $g(\mathbf{q})=U(1+0.1(\cos q_x+\cos q_y))$  avec  $U=1071\text{meV}$ . Dans ce cas, la dispersion est assez plate. La dispersion a une forme de H avec la présence d'un signal intense autour de la résonance qui ne disperse pas trop et la présence de lignes raides peu intenses de part et d'autre de la résonance dans le continuum électron-trou. A titre de comparaison, on reporte nos résultats expérimentaux sur la Fig.3.16.c) et d).

Dans les deux directions, notre modélisation ne permet pas d'expliquer la présence de signal de part et d'autre de  $E_r$ . Dans le cas de la direction (130), la modélisation indique la présence d'un signal jusqu'à  $48\text{meV}$  alors qu'expérimentalement, on observe du signal jusqu'à  $54\text{meV}$ . Dans le cas de la direction (110), la modélisation ne rend pas bien compte de la dispersion vers les basses énergies. En particulier, nos mesures à  $38$  et  $40\text{meV}$  indiquent du signal dans la zone II alors que la modélisation ne donne aucun signal dans cette zone. Il faut donc introduire d'autres paramètres dans notre modélisation.

Tout comme dans la partie précédente, nous proposons de décrire la dispersion des excitations magnétiques dans une approche itinérante en présence d'une distribution spatiale de gap telle qu'elle est mesurée par STM. Ainsi, on calcule  $\chi^0(\mathbf{q}, \omega, \Delta)_o$  pour différentes valeurs de gap. Pour chaque gap, l'interaction choisie est toujours la même : celle pour laquelle la résonance se trouve à  $42\text{meV}$  pour le gap moyen de  $35.2$ . A titre indicatif, pour un gap et une direction dans l'espace réciproque, il faut compter 2.5 heures pour un quadrillage de la zone de Brillouin de 250 par 250 points. L'étude a été réalisée pour des gaps de  $20.2$  à  $50.2\text{meV}$  par pas de  $1\text{meV}$ . On prend ensuite la moyenne de toutes ces susceptibilités, pondérée par la distribution spatiale de gap centrée en  $\Delta_m = 35.2\text{meV}$  et de largeur  $\sigma=15\text{meV}$  :

$$\chi_o(\mathbf{q}, \omega) = \frac{\sigma}{2\sqrt{\pi \ln(2)}} \int d\Delta \chi_o^{RPA}(\mathbf{q}, \omega, \Delta) \exp(-4 \ln(2) \frac{(\Delta - \Delta_m)^2}{\sigma^2}) \quad (3.5)$$

Le calcul a été réalisé dans les deux directions (130) et (110), le calcul est reporté sur la Fig.3.16 d) et e). La distribution de gap élargit le spectre d'excitation magnétique. Elle permet de rendre compte de la présence d'un signal sur une large gamme en énergie, ce qui est en accord avec nos mesures (voir Fig.3.16 c) et d)). Cependant, notre calcul ne rend pas compte des détails du spectre expérimental. En particulier pour la direction (130), on observe dans le spectre expérimental une forme en sablier dont le calcul ne rend pas compte. Aussi dans la direction (110), l'élargissement observé à basse énergie n'est pas retrouvé par le calcul.

### Analyse critique de la modélisation-Discussion

La comparaison entre les Fig.3.16.c) et d) et 3.16.e) et f) indique que notre modélisation surestime l'effet de la distribution de gap pour les vecteurs d'ondes  $\mathbf{q} \neq (\pi,\pi)$ . Nous proposons dans cette partie deux pistes possibles pour améliorer notre modélisation ainsi qu'une discussion concernant le lien entre nos modélisation et les mesures d'ARPES.

### 3.4 Interprétation des excitations magnétiques dans le cadre d'une approche itinérante

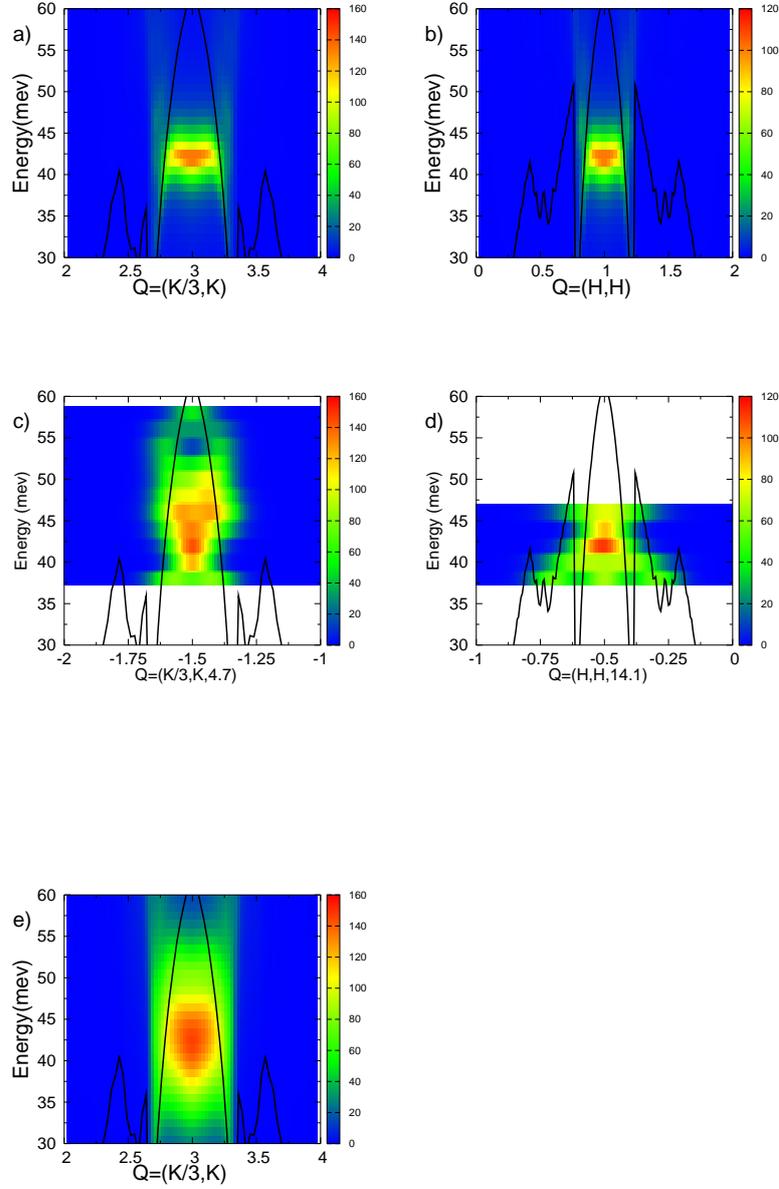


FIG. 3.16: a) et b) Susceptibilité RPA du mode acoustique calculée à partir de la Surface de Fermi donnée par Kordyuk et al. [171] pour un gap supraconducteur de 35.2meV dans les trois directions étudiées : (130),(100). L'interaction choisie de manière à ce que le mode résonant soit à une énergie de 42meV. c) et d) Carte en couleur du spectre magnétique de la phase supraconductrice du composé Bi-2212 dans les deux directions principales étudiées (130),(100). Ces cartes sont déduites des ajustements réalisés sur les Fig.3.7.b) et Fig.3.6.b) et f) même chose que a) et b) en introduisant une distribution de gap (voir Eq.4.5)

**Hétérogénéités et effet d'impuretés** Dans notre approche, nous avons réduit l'effet des hétérogénéités sur la susceptibilité magnétique à l'effet d'une distribution spatiale de gap. En fait, la situation est certainement beaucoup plus compliquée. En effet, la distribution spatiale de gap observée par STM n'est qu'un aspect de la présence dans le composé Bi-2212 d'un désordre électronique à l'échelle nanométrique. L'origine et l'effet de ce désordre électronique sur les propriétés électroniques du système sont encore débattus. Récemment, des mesures de RMN ont apporté de nouvelles informations concernant cette problématique. L'étude de la raie de l' $^{17}\text{O}$  dans le composé Bi-2212 indique un élargissement de la raie à mesure que la température diminue, l'évolution de la largeur de raie est de type Curie. Cet effet persiste dans la phase supraconductrice et suggère la formation d'une distribution de champ magnétique créé par un moment local dans les plans  $\text{CuO}_2$ [184]. Il est intéressant de noter qu'un tel effet a été observé dans le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  en présence d'une substitution de l'atome de Cu par Ni ou Zn dans les plans  $\text{CuO}_2$ [185, 186, 187]. L'étude du spectre d'excitation magnétique du composé Bi-2212 nécessite donc de tenir compte dans le calcul de la susceptibilité de la présence d'un potentiel de diffusion lié à la présence d'impuretés. L'une des conséquences de la présence d'impuretés est la perte de l'invariance de translation. L'interaction Coulombienne peut alors mélanger les différentes composantes de la susceptibilité magnétique. La susceptibilité magnétique n'est alors plus donnée par l'Eq.3.1 mais par une équation beaucoup plus compliquée qui tient compte de la spécificité de l'impureté considérée. Bulut [188] a proposé que les impuretés de Zn dans le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  couplent la susceptibilité magnétique en  $\mathbf{q}=(0,0)$  et en  $\mathbf{q}=(\pi,\pi)$ . Ainsi, notre modélisation correspond à une approximation très simplifiée de l'effet des hétérogénéités nanométriques dans le composé Bi-2212. Il faudrait en fait connaître la forme du potentiel microscopique responsable des ces hétérogénéités puis inclure ce potentiel dans un modèle de Hubbard dans une approche de type couplage faible par exemple. D'un point de vue expérimental, il serait intéressant de reprendre l'étude du spectre d'excitation magnétique par DIN dans le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  en présence d'une substitution de Cu par Ni ou Zn dans les plans  $\text{CuO}_2$ .

**Au-delà de la RPA** Il convient de remarquer que comme dans le cas du composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ , notre étude met en évidence l'existence d'un signal de part et d'autre de l'énergie de la résonance dans la zone I. Dans une approche RPA, la forme de la dispersion dans la zone I impose l'existence de deux pôles pour un Q fixé. En partant d'une interaction de la forme  $J_0+J_1(\cos k_x + \cos k_y)$ , il est impossible d'avoir deux solutions[127]. Il y a donc deux alternatives : soit l'effet d'un potentiel d'impureté est responsable de ce dédoublement du signal dans la zone I dans les composés  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  et Bi-2212, soit le calcul même de la susceptibilité dans l'approche RPA doit être remis en cause. Dans le premier cas, la différence des dispersions serait liée à la différence des potentiels perturbateurs. Dans le cas de ce composé, l'existence d'impuretés n'a pas été mise en évidence, néanmoins la présence des chaînes CuO pourrait par exemple influencer sur le plan  $\text{CuO}_2$  comme un potentiel perturbateur. Il serait ainsi intéressant de modéliser précisément l'effet des chaînes CuO sur la dynamique de spin des plans  $\text{CuO}_2$ . Dans le cas où le calcul de la susceptibilité dans l'approche RPA doit être remis en cause, il faudrait envisager, par exemple, une forme d'interaction non triviale permettant de rendre compte de la forme en X. La difficulté est alors de trouver un sens physique à l'interaction entre quasiparticules. Des corrections non triviales à la RPA liées aux fortes corrélations [189] ont été proposées. Celles-ci induisent une modulation non triviale de l'interaction entre quasiparticules. D'autres pistes peuvent aussi être envisagées. En particulier, il faut remarquer que notre approche est une approximation de l'effet des interactions. En effet, dans notre modélisation on utilise une structure de bande sans interaction pour calculer  $\chi_o^0(\mathbf{Q}, \omega)$ . En fait,  $\chi_o(\mathbf{Q}, \omega)$  va modifier la self énergie, qui elle-même va modifier  $\epsilon_k$ , qui va modifier  $\chi_o(\mathbf{q}, \omega)$ . Il faudrait donc en toute rigueur utiliser une approche auto cohérente de type FLEX [45, 46]. Jusqu'à présent, ce type d'approche n'était pas quantitativement envisageable, grâce à nos mesures elle le devient. Pour finir cette partie, il est intéressant de noter qu'au moment où nous réalisons cette étude, la communauté d'ARPES a proposé deux modélisations du spectre magnétique à partir des résultats de photo-

émission [190, 191]. Dans ces deux approches, les auteurs partent des mesures d'ARPES pour paramétriser la fonction de Green à une particule. Celle-ci est ensuite utilisée pour calculer la composante itinérante de la susceptibilité de spin dynamique en unités absolues en incluant les interactions. Ces deux études rendent bien compte de l'existence des excitations acoustique et optique. Cependant, la forme de la dispersion des excitations magnétiques est assez différente de celle que nous obtenons lors de notre modélisation. Il serait intéressant de comprendre quels sont les paramètres responsables de ces différences entre cette approche et la notre.

**Lien ARPES-DIN** La motivation principale de cette étude était de faire converger l'ensemble des mesures spectroscopiques vers la même famille de SHTCs : le système Bi-2212. Nous avons ainsi proposé de faire un lien entre les mesures de DIN et les mesures d'ARPES. Nous proposons dans cette partie de revenir sur le lien entre les mesures d'ARPES et les mesures de neutrons. Plusieurs commentaires peuvent être faits.

Notre modélisation suggère que la largeur du mode acoustique est reliée aux hétérogénéités (ou défauts) du système Bi-2212. Il est important de noter qu'un tel élargissement en énergie est absent dans la famille de composés  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ . Ce fait montre que les hétérogénéités électroniques ne sont pas une propriété générique des cuprates. La meilleure homogénéité dans le cas des composés  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  a d'ailleurs été établie par l'étude de la largeur de la résonance magnétique nucléaire de  $^{89}\text{Y}$  [192]. Lors de notre modélisation, partant des mesures d'ARPES, nous avons essayé de tenir compte de ces hétérogénéités pour décrire nos mesures de DIN. Réciproquement, il convient de s'interroger sur l'effet de ces hétérogénéités électroniques sur les spectres d'ARPES des composés Bi-2212. La largeur du faisceau utilisé lors des expériences d'ARPES est de l'ordre du  $\mu\text{m}$ , c'est-à-dire bien plus grande que la taille des hétérogénéités reportées par STM. En fait, la présence d'une distribution de gap dans le cas d'un spectre d'ARPES est tout à fait similaire à son effet sur le pic de résonance magnétique dans une approche de type excitonique. Dans le cas où la largeur de la distribution de gap est plus grande que la résolution expérimentale (ce qui est le cas dans la phase sous-dopée), on attend un pic de quasiparticule de largeur en énergie celle de la distribution de gap. Expérimentalement, il a été noté très tôt par Ding et al. [193] que la largeur en énergie des pics de quasiparticules n'était pas limitée par la résolution expérimentale dans l'état supraconducteur du composé Bi-2212. Cependant, aucune expérience d'ARPES n'a à ce jour essayé de faire un lien entre cette largeur et la distribution de gap mesurée par STM. Il serait ainsi intéressant d'étudier la largeur des pics de quasiparticules en énergie à travers tout le diagramme de phase de Bi-2212 la largeur des pics des quasiparticules dans l'état supraconducteur du composé Bi-2212 afin de confirmer ou d'infirmer cette idée.

Ensuite, la modélisation de nos mesures de DIN à partir des mesures d'ARPES nous a permis de déduire un rapport entre l'interaction au vecteur d'onde AF  $g(\mathbf{q}_{\text{AF}})$  et  $t$  de l'ordre 2.7. Cette valeur est en fait indépendante de la valeur de  $t$ , elle est vraie pour  $t$  compris typiquement entre 200meV et 400meV [127]. Expérimentalement, la surface de Fermi est déterminée à  $t$  près. On peut en fait multiplier toute la dispersion par  $\alpha$  sans changer la forme de la surface de Fermi. Contrairement à la mesure du gap supraconducteur, les paramètres de bande ne sont pas mesurés en absolu. Il existe en fait deux approches pour déduire  $t$ . Dans la limite supérieure où  $t \approx 395\text{meV}$  [194], les paramètres de structure de bande sont déduits après la déconvolution des interactions. La modélisation de la dispersion électronique se fait essentiellement le long des points nodaux et non sur toute la surface de Fermi. La valeur de  $t$  est alors proche de la valeur prédite par les calculs LDA. Dans le modèle de Hubbard, l'interaction effective est alors égale à  $U = g(\mathbf{q}_{\text{AF}}) = 1070\text{meV}$ , on se trouve alors dans la limite couplage faible où  $U \ll W$  où  $W$  correspond à la largeur de bande (de l'ordre de  $8t$ ). Un autre point de départ est de considérer toute la dispersion et d'ajuster les paramètres de bande, comme dans [195]. Dans ce cas, la valeur de  $t$  est imposée par la vitesse de Fermi des électrons telle qu'elle est mesurée directement. On se trouve alors dans la limite basse où  $t$  est égal à 200meV. Dans ce type d'approche,  $t$  est plus petit que la valeur prédite par LDA car renormalisé par les interactions. On trouve

alors  $g(\mathbf{q}_{\text{AF}})=540\text{meV}$ . Dans ce cas, cette valeur est proche de  $4J$  comme cela est attendu dans un modèle  $t-t'-J$  [196] avec  $J=135\text{meV}$ .

Au-delà de ces considérations, quelle que soit la valeur de  $t$ , on se trouve dans un régime où  $g(\mathbf{q}_{\text{AF}}) < W$ . Dans le modèle de Hubbard, on se trouve donc la limite couplage faible. Aussi, Vilk et Tremblay [45, 46] ont montré que même à proximité du couplage intermédiaire où  $U \approx W$ , la susceptibilité de spin peut encore prendre une forme de type RPA avec une interaction écrantée bien plus faible que  $U$ , donnant ainsi des résultats assez similaires à l'approche couplage faible du modèle de Hubbard. Il est également important de noter que la forme de la susceptibilité utilisée ne se réduit pas à une approche itinérante dans la limite couplage faible. La forme de la susceptibilité utilisée est en fait commune à beaucoup d'approches théoriques : modèle  $t-t'-J$ [196], modèle de Hubbard dans la limite couplage faible et intermédiaire [45, 46]. Schrieffer et al. ont également montré que la forme RPA reproduit le super-échange  $J$  et la dispersion des ondes de spins dans le matériau non dopé [197, 198]. Toutefois, tout au long de notre modélisation, nous supposons implicitement que les fermions sont chargés et que le gap observé par STM et ARPES est le gap supraconducteur. Parmi les modèles qui proposent une interprétation du pic de résonance magnétique comme un état lié électron-trou, le modèle RVB [199] utilise une approximation de type boson esclave et considère des fermions sans charge (des spinons). Le gap reporté par STM et ARPES correspond alors au gap associé à l'énergie de formation de paires de spinons. Ainsi, cette séparation entre degré de liberté de charge et de spin entraîne que le lien entre ARPES, STM et DIN est beaucoup plus subtil que dans notre modélisation.

L'un des intérêts de notre modélisation est de fixer des contraintes quantitatives à un certain nombre de modèles théoriques. Parmi ces contraintes, on retiendra principalement les trois points suivants :

- (i) le rapport entre l'interaction  $g(\mathbf{q}_{\text{AF}})$  et  $W$  :  $\frac{g(\mathbf{q}_{\text{AF}})}{W}=0.34$
- (ii) il existe dans les composés bi-plans une interaction  $g_{\perp}$  en plus de l'interaction dans le plan  $\text{CuO}_2$ , notée  $g_{\perp}$ , avec un rapport  $\frac{g_{\perp}}{g_{//}} \approx 0.1$
- (iii)  $g_{//}(\mathbf{q})$  est faiblement dépendant de  $\mathbf{q}$

Deux remarques peuvent être faites concernant ces conclusions. Tout d'abord, l'existence d'un couplage magnétique entre les plans  $\text{CuO}_2$  dans l'état supraconducteur invite à s'interroger sur l'effet de ce couplage sur la nature même de la supraconductivité. En effet, dans une approche où les fluctuations magnétiques sont le moteur de l'appariement supraconducteur, il n'y a pas une mais deux équations de gap. A priori, on s'attendrait à observer deux types de gap différents dans les bandes liante et antiliante. Comme le rapport  $\frac{g_{\perp}}{g_{//}} \approx 0.1$  est assez faible, la différence entre ses deux gaps sera faible (symétrie, amplitude du gap). Il serait intéressant de disposer de mesures précises du gap supraconducteur dans les bandes liante et antiliante. Aussi, nous avons trouvé que l'interaction est très faiblement dépendante de  $\mathbf{q}$ . En fait, dans le cas où l'interaction n'est pas du tout dépendante de  $\mathbf{q}$ , d'après le calcul le système est instable et transite vers une onde de densité de spin. Dans la limite opposée où l'interaction est purement de la forme  $g(\mathbf{q})=J_0(\cos q_x + \cos q_y)$ , on observe un pic de résonance qui disperse d'abord vers le haut puis vers le bas quand le mode se rapproche du continuum électronique délimitant les zones I et II (voir Fig.3.13). La dispersion est alors en forme de "M". Bien que la situation soit compliquée par les hétérogénéités électroniques, la forme de la dispersion n'est pas en "M". En fait, [197] a montré que la dispersion des excitations magnétiques est extrêmement sensible à la forme de la paramétrisation des paramètres de bande. Ainsi, en fonction de la structure de bande utilisée, on peut facilement passer d'une interaction faiblement dépendante de  $\mathbf{q}$  à une interaction fortement dépendante de  $\mathbf{q}$ .

**Approche alternative** Jusqu'à présent nous avons uniquement décrit les excitations magnétiques par une approche itinérante. D'autres approches partant d'une approche localisée ont aussi été proposées[119]. On pourrait en particulier essayer d'appliquer le modèle de stripe. La question de l'effet de la supraconductivité

dans les différents modèles de stripes n'a pas encore été traitée [200, 120, 121]. D'un point de vue empirique, il a été proposé que lorsque le gap de spin est proche du point selle (saddle point), la majeure partie du transfert de poids spectral au-dessous de  $T_c$  se fait au niveau du point selle [118] : il apparaît alors un pic au vecteur d'onde AF au niveau du point selle. Cependant, l'ensemble de nos mesures indique un lien étroit entre la position du continuum et la position des excitations magnétiques. Ainsi, même dans une approche de type stripe, il doit exister un continuum gapé délimitant le spectre d'excitations magnétiques.

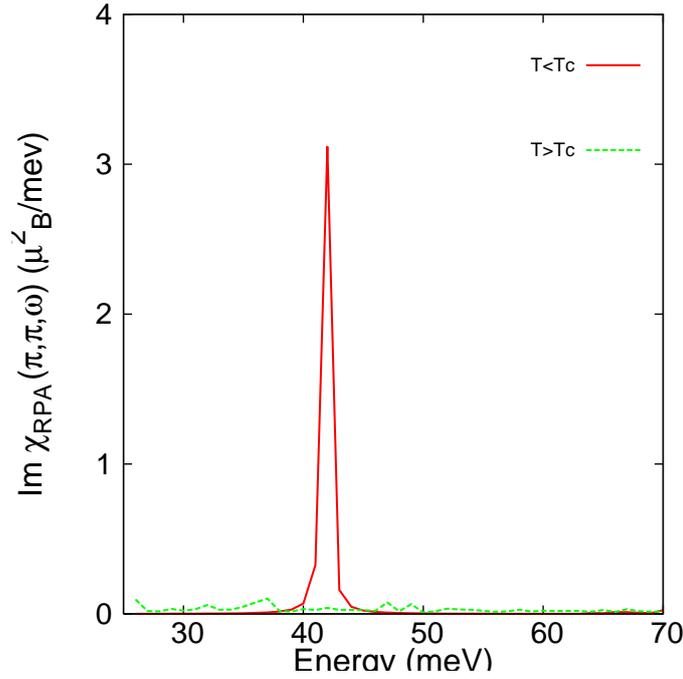


FIG. 3.17: Calcul de la susceptibilité magnétique après RPA au vecteur d'onde  $(\pi, \pi)$  avec la surface de Fermi et le gap indiqués dans le Tab. 3.1 pour un amortissement  $\delta=0.2$  pour  $T < T_c$  (ligne rouge) pour un gap  $\Delta_0=35.2\text{meV}$  et pour  $T \geq T_c$  en rouge où  $\Delta_0=0\text{meV}$

### 3.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés à l'étude de la dynamique de spin dans les composés Bi-2212. Le faible rapport signal sur bruit et la faible masse des échantillons monocristallins a limité pendant de nombreuses années l'étude du composé Bi-2212 par DIN. Notre étude est la première étude complète du spectre d'excitation magnétique dans le composé Bi-2212. Cette famille de composés a été largement étudiée par les techniques d'ARPES et de STM. Il s'agit donc de la famille idéale pour tenter de faire un lien entre les excitations de charge et de spin.

Au vecteur d'onde AF, notre étude a révélé l'existence de deux excitations magnétiques, l'une modulée le long de l'axe  $c$  en  $\sin^2$  (mode acoustique) et l'autre en  $\cos^2$  (mode optique). Ces deux modes ne sont présents que dans la phase supraconductrice et diminuent à grand  $Q$ , ce qui montre leur nature magnétique de ces deux excitations. Notre étude en dopage a montré que ces deux modes se rapprochent avec le dopage. Dans une approche de type spin-exciton, il est possible de relier la position des deux modes résonants et

de la bordure du continuum électron-trou. La DIN est donc une mesure indirecte du gap supraconducteur. Les mesures de gap déduites des mesures de DIN et d'ARPES ou de STM sont en bon accord pour les deux échantillons étudiés. Cette étude confirme donc que, comme dans le cas du composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ , la position des modes résonants est liée à l'amplitude du gap supraconducteur.

Nous avons mis en évidence le fait que la largeur en énergie du mode acoustique est toujours plus grande que la résolution expérimentale. A mesure que l'on surdope, la largeur du mode acoustique devient de moins en moins large. En fait, l'évolution de largeur en énergie du pic de résonance acoustique suit exactement la même évolution que la largeur de la distribution de gap telle qu'elle est mesurée par STM. Dans une approche de type spin-exciton, cet effet se comprend tout naturellement. En effet, la distribution spatiale de gap entraîne une distribution spatiale de résonance. Il est intéressant de noter que c'est en fait la présence d'hétérogénéités nanométriques qui permet de confirmer le lien profond entre le gap et la position des excitations magnétiques.

Nous nous sommes intéressés à la dispersion des excitations magnétiques autour du vecteur d'onde AF. Notre étude a mis en évidence l'existence d'un signal magnétique de part et d'autre de l'énergie de la résonance. Au-dessous de  $E_r$ , notre étude indique un élargissement du signal qui n'est pas isotrope en fonction de  $\mathbf{q}$ , sans pour autant indiquer la présence d'un signal incommensurable. Au-dessus de  $E_r$ , nous avons également observé un signal plus large que pour  $E_r$  avec la présence d'incommensurabilités, typiquement 6meV au-dessus de  $E_r$ . L'ensemble de notre étude montre que la dispersion, bien que moins bien définie que dans le cas du composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ , est en accord avec la forme en sablier reportée dans ce composé. Afin de discuter la nature du spectre d'excitation magnétique, nous avons étendu notre interprétation itinérante à l'ensemble du spectre. Bien que l'approche RPA soit cohérente qualitativement, elle ne parvient pas à décrire toutes les spécificités de nos mesures. Notre interprétation est en fait limitée car dans l'état actuel des choses, il n'existe pas de description très précise de l'impureté responsable des hétérogénéités nanométriques observées par STM et de son effet sur le calcul de la susceptibilité.

Finalement, quoiqu'il en soit de la nature de la dispersion, l'étude des excitations magnétiques et leur description dans une approche RPA permettent de quantifier le rapport entre l'interaction et la largeur de bande. Nous avons vu que  $U/D=0.34$ , ce qui est peut être le point le plus important à retenir pour une description théorique des supraconducteurs à haute température critique.

# 4 Phase de pseudogap et ordre en compétition

## Introduction

Rapidement après la découverte des supraconducteurs à haute température critique, l'une des questions de fond a concerné la symétrie du paramètre d'ordre supraconducteur. En effet, les grandes valeurs de  $T_c$  peuvent être la signature d'un gap supraconducteur de symétrie non conventionnelle, ce qu'ont confirmé les mesures de Tsuei et al. [201, 202] en établissant la symétrie  $d$  du gap supraconducteur dans ces composés. Bien que cette information soit fondamentale, elle ne suffit pas à établir une description microscopique de ces composés. En effet, dès 1995 [75], il a été souligné que d'un point de vue théorique, il existait plusieurs façons de générer un gap supraconducteur de symétrie  $d$ . On peut citer par exemple la théorie des fluctuations de spins antiferromagnétiques (AF)[203], la théorie RVB [204, 90] ou encore les théories fondées sur le couplage électron-phonon en présence d'interaction Coulombienne [78]. A ce stade, il faut donc imposer d'autres contraintes expérimentales pour tester ces différentes théories. Une première série de contraintes est imposée par les spécificités de la phase supraconductrice. On peut citer par exemple les excitations électroniques observées par diffusion Raman dans le canal  $B_{1g}$  et  $B_{2g}$  [205] ou encore la spécificité du spectre des fluctuations de spin dans l'état supraconducteur de ces composés. De ce point de vue, le pic de résonance discuté dans le chapitre III joue un rôle fondamental. Une deuxième série de contraintes provient de l'état normal ou phase de pseudogap qui présente des anomalies par rapport à un liquide de Fermi standard dans le cas des supraconducteurs à haute température critique. Ce chapitre s'intéresse à l'étude de cette phase.

On peut séparer en deux catégories les modèles qui tentent de décrire la phase de pseudogap [27, 29] : dans une première catégorie, la phase de pseudogap est vue comme un précurseur de la phase supraconductrice de symétrie  $d$  avec des paires préformées au-dessous de  $T^*$  et qui acquièrent leur cohérence de phase au-dessous de  $T_c$ . Dans une seconde catégorie, la phase de pseudogap est associée à un ordre caché ou à une phase désordonnée en compétition avec la phase supraconductrice qui se caractérise par l'ouverture d'un gap au niveau de Fermi dans le spectre d'excitation de charge aux points  $(\pi, 0)$  et  $(0, \pi)$ . Dans de tels cas, le diagramme de phase est gouverné par un point critique quantique (noté QCP) au-dessous duquel l'hypothétique paramètre d'ordre est non nul. Différents types d'ordre ont été proposés : ondes de densité de charges ou de spins [206, 207, 208, 209] ou encore des ordres originaux formés de boucles de courant dans les plans  $\text{CuO}_2$  [95, 210, 43]. Nous proposons ici dans une première partie une présentation de ces derniers types de paramètres d'ordre. Comme nous le verrons dans une deuxième partie, ce type d'ordre non conventionnel peut être sondé par diffusion de neutrons polarisés. Nous nous sommes particulièrement intéressés au cas de la phase  $CC - \theta_{II}$ .

## 4.1 Ordre magnétique et phase de pseudogap

Il a été proposé que les anomalies de la phase sous-dopée des supraconducteurs à haute température critique correspondent à un nouvel ordre à longue portée. Différents paramètres d'ordre originaux ont été proposés pour décrire cette phase. On s'intéressera dans cette partie à trois ordres en particulier : les phases de flux

ou phase DDW (de l'anglais d-density wave)<sup>1</sup>, et les deux phases CC (pour Courant Circulant)  $CC-\theta_I$  et  $CC-\theta_{II}$  proposées par C.Varma. Ces différentes phases ont été discutées dans la partie 1.2.4. Nous rappelons ici les principales caractéristiques de ces différents paramètres d'ordre.

Le modèle DDW [95] est un modèle à une bande qui postule l'existence d'une onde de densité de charge de symétrie d pour la phase de pseudogap. La phase DDW brise les symétries de renversement de temps, de rotation et de translation mais est invariante par la combinaison de deux de ces trois symétries. La phase ordonnée se caractérise par des courants circulant à travers le plan  $\text{CuO}_2$  (voir Fig.4.1 a)) avec la même symétrie que l'ordre AF. Ce type d'ordre peut donc être décrit comme un ordre antiferromagnétique (AF) orbitalaire de vecteur de propagation  $\mathbf{Q} = \mathbf{Q}_{AF}$ .

L'approche de C.Varma est différente. En effet, celui-ci part d'un modèle à trois bandes et cherche les solutions dans une approche de champ moyen qui ne brise pas la symétrie de translation. Deux solutions brisent l'invariance par renversement du temps : la phase  $CC-\theta_I$  (voir Fig.4.1 b)) et la phase  $CC-\theta_{II}$  (voir Fig.4.1 c) et d)). Tout comme dans le cas de la phase DDW, ces deux phases se caractérisent par l'existence de boucles de courant dans le plan  $\text{CuO}_2$ . La phase  $CC-\theta_I$  se caractérise par quatre boucles de courant par maille élémentaire et la phase  $CC-\theta_{II}$  par deux boucles de courant par maille élémentaire. Les phases CC se caractérisent donc par l'existence d'un motif de type AF dans la maille. Cet ordre peut donc être décrit comme un ordre AF orbitalaire de vecteur de propagation  $\mathbf{Q} = \mathbf{0}$ .

Toutes ces phases brisent la symétrie de renversement du temps. Ainsi, pour chacune de ces phases, il existe au moins deux domaines qui correspondent aux deux sens de parcours du courant (sens horaire et anti-horaire).

Bien que ce type d'ordre soit intéressant car très original, il n'y a jusqu'à présent que peu de faits expérimentaux indiquant son existence. Nous proposons dans cette partie de voir en quoi ces types d'ordre peuvent être sondés par diffusion de neutrons. Nous verrons ensuite quels sont les faits expérimentaux pour chacune de ces trois phases.

#### 4.1.1 Signature neutronique des phases de courant

Ces phases de courant peuvent être en principe testées par diffusion de neutrons. En effet, comme on l'a vu dans la partie 2.2.2, le spin du neutron,  $\mu_{\mathbf{N}}$ , peut se coupler avec le champ magnétique  $\mathbf{B}$  (créé par ces courants circulants) grâce à l'interaction magnétique :  $-\mu_{\mathbf{N}} \cdot \mathbf{B}$ . Ce couplage donnera lieu à une diffusion pour laquelle la section efficace magnétique du neutron peut alors s'écrire en fonction du champ  $\mathbf{B}$

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right) = |F_M(\mathbf{q})|^2 \delta(\mathbf{q} - \tau - \mathbf{Q})$$

$$|F_M(\mathbf{q})|^2 = \frac{r_0^2}{4} |\langle \pm | \sigma \cdot \mathbf{B}(\mathbf{q}) | \pm, \mp \rangle|^2 \quad (4.1)$$

où  $\sigma$  sont les matrices de Pauli décrivant le spin du neutron qui peut être dans l'état :  $|+ \rangle$  ou  $|- \rangle$ ,  $r_0 = 0.54 \cdot 10^{-12}$  cm,  $\tau$  correspond à un vecteur du réseau de Bravais et  $\mathbf{Q}$  au vecteur de propagation associé à l'ordre considéré :  $\mathbf{Q} = \mathbf{Q}_{AF}$  pour la phase de flux et la phase DDW et  $\mathbf{Q} = \mathbf{0}$  pour les phases CC.  $\mathbf{B}(\mathbf{q})$  est proportionnel à la transformée de Fourier de la distribution de champ magnétique  $\mathbf{B}(\mathbf{r})$  créé par le motif de boucles de courant (une seule boucle dans le cas de DDW et de la phase de flux, quatre boucles dans la phase  $CC-\theta_I$  et deux boucles dans le cas de la phase  $CC-\theta_{II,a}$  et  $CC-\theta_{II,b}$ ).

Ces phases de courant sont des types d'ordre qui n'ont été jusqu'à maintenant jamais envisagés. Généralement, dans les ouvrages de référence traitant de la diffusion neutronique, la taille caractéristique de la boucle de

<sup>1</sup> bien que ces deux phases aient des origines théoriques différentes, elles proposent un même paramètre d'ordre, on les traitera donc de façon équivalente

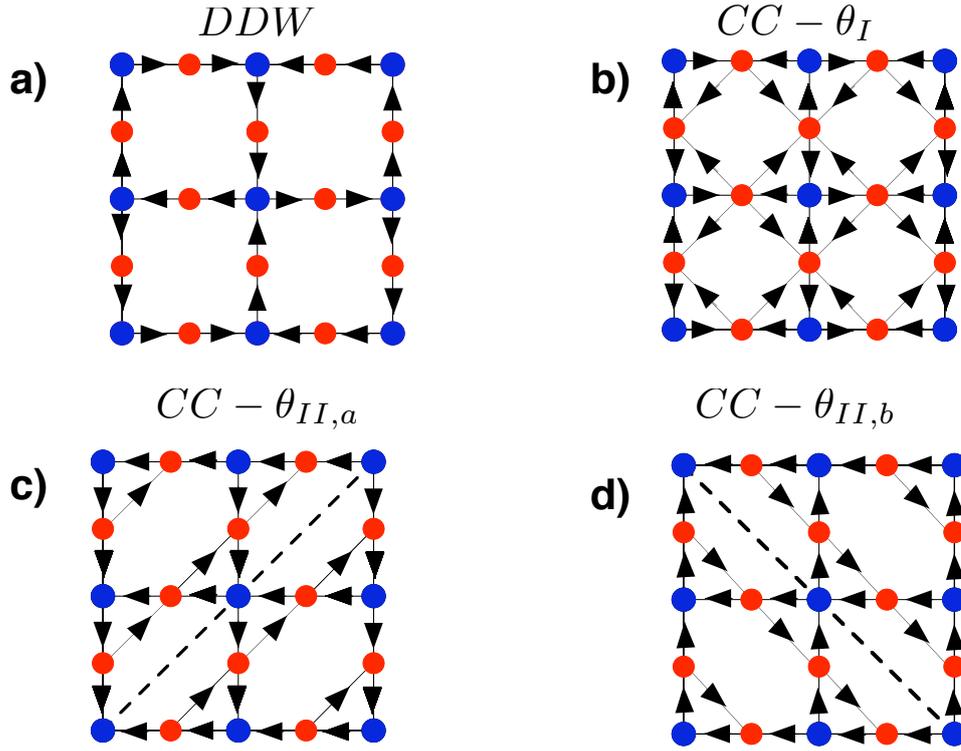


FIG. 4.1: Différents types d'ordre magnétique proposés pour décrire la phase de pseudogap des supraconducteurs à haute température critique : a) phase de flux ou phase  $DDW$  (cette phase brise les symétries de translation et de renversement de temps), b) phase  $CC-\theta_I$  c) et d) les deux domaines de la phase  $CC-\theta_{II}$  (notés  $CC - \theta_{II,a}$ ,  $CC - \theta_{II,b}$ ). Les phases  $CC$  brisent seulement la symétrie de renversement du temps

#### 4 Phase de pseudogap et ordre en compétition

courant responsable du champ magnétique est plus petite que la longueur d'onde du neutron, l'approximation dipolaire est alors justifiée. Il est alors plus simple de traiter le problème en termes de distribution de moment. Dans le cas d'une distribution de moment, on suppose que le neutron interagit avec un moment  $\mathbf{M} = \mathbf{M}_S + \mathbf{M}_L$  qui est simplement la somme des moments de spin et du moment orbital atomique, respectivement notés  $M_S$  et  $M_L$ . La distribution de champ est alors donnée par :

$$\mathbf{B}(\mathbf{q}) = \sum_j \exp(-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_j)(\hat{\mathbf{q}} \wedge \mathbf{M}_j \wedge \hat{\mathbf{q}}) \quad (4.2)$$

où  $\hat{\mathbf{q}} = \mathbf{q}/q$ . Cette expression définit complètement le facteur de structure magnétique pour des moments  $M_j$  dans la cellule élémentaire. Dans le cas particulier des phases de courant, cette expression est un peu trompeuse car elle suppose que les facteurs de forme magnétiques pour les moments de spin et pour le moment orbital atomique sont les mêmes. Ici, le moment orbital est localisé entre les différents atomes de cuivre et d'oxygène et n'aura donc pas la même facteur de forme que la composante de spin. Il convient donc de s'interroger sur le facteur de structure magnétique associé à ces phases de courant. Pour cela, il est en fait plus simple de partir de la distribution de courant. En effet, le champ magnétique  $\mathbf{B}(\mathbf{q})$  s'exprime simplement en fonction de la transformée de Fourier de la distribution de courant suivant  $\mathbf{j}(\mathbf{q})$ [211] :

$$\mathbf{B}(\mathbf{q}) = -i \frac{\hat{\mathbf{q}} \wedge \mathbf{j}(\mathbf{q})}{q} \quad (4.3)$$

Dans l'Annexe A.1,A.2,A.3 on présente le détail des calculs de  $\mathbf{j}(\mathbf{q})$  pour les différentes phases considérées DDW,  $CC - \theta_I$  et  $CC - \theta_{II}$  pour un plan  $\text{CuO}_2$ . Dans ce modèle, les fils de courant sont supposés infiniment fins. Il s'agit évidemment d'une approximation, il faudrait en principe introduire une épaisseur caractéristique  $\delta$  (où  $\delta$  serait de l'ordre de la taille des orbitales  $d$  et  $p$ ). Cette correction induit un facteur de forme supplémentaire  $g(q)$  (toujours avec  $g(0)=1$ ). Le calcul est réalisé pour un plan  $\text{CuO}_2$ . Pour un composé bi-plan (c'est-à-dire deux plans  $\text{CuO}_2$  par maille élémentaire), comme pour le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ , un terme  $\beta(L)$  doit être ajouté dans le facteur de structure magnétique en fonction du couplage des boucles de courant entre les plans  $\text{CuO}_2$ . Le couplage peut se faire en phase ou en opposition de phase, alors :  $\beta(L) = \exp(i\pi Ld/c) \pm \exp(-i\pi Ld/c)$  ( $d=3.3 \text{ \AA}$  correspond à la distance entre les deux plans  $\text{CuO}_2$  de la maille élémentaire). Ainsi dans le cas d'un composé bi-plan tel que  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ , le champ  $\mathbf{B}(\mathbf{q})$  peut se mettre sous la forme :

$$\mathbf{B}(\mathbf{q}) = -i \frac{g(q)\beta(L)}{q} \hat{\mathbf{q}} \wedge \mathbf{j}(\mathbf{q}) \quad (4.4)$$

$\mathbf{j}(\mathbf{q})$  est définie pour chacune des phase dans les appendix A.1.

On peut aller un peu plus loin en tenant compte de la conservation de la charge qui impose :  $\mathbf{q}\cdot\mathbf{j}(\mathbf{q}) = 0$ . On introduit la base :  $(\hat{\mathbf{q}}, \hat{\mathbf{q}}_\perp, \hat{\mathbf{z}})$  où  $\hat{\mathbf{q}}_\perp$  est le vecteur unitaire perpendiculaire à  $\hat{\mathbf{q}}$  et appartenant aux plans de diffusion et  $\hat{\mathbf{z}}$  le vecteur unitaire perpendiculaire au plan de diffusion. La distribution de courant peut alors se réécrire sous la forme :

$$\mathbf{j}(\mathbf{q}) = j_\perp \hat{\mathbf{q}}_\perp + j_z \hat{\mathbf{z}} \quad (4.5)$$

Partant de l'Eq.4.5, le champ magnétique se réécrit alors :

$$\mathbf{B}(\mathbf{q}) = i \frac{g(q)\beta(L)}{q} [J_z \hat{\mathbf{q}}_\perp - J_\perp \hat{\mathbf{z}}] \quad (4.6)$$

Pour des neutrons non polarisés, la section de diffusion magnétique associée aux phases de courant s'écrit alors :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{r_0^2}{4} g(q)^2 \beta(L)^2 \frac{|\langle J_z(\mathbf{q}) \rangle|^2 + |\langle J_\perp(\mathbf{q}) \rangle|^2}{q^2} \delta(\mathbf{q} - \tau - \mathbf{Q}) \quad (4.7)$$

Partant de l'Eq.4.4, il est possible de calculer pour chacun des domaines le facteur de structure magnétique. On reporte le résultat du calcul pour les quatre domaines sur la Fig.4.2. Grâce à ce calcul, nous connaissons maintenant l'intensité magnétique dans tout l'espace réciproque associé à chacune de ces phases. Nous proposons maintenant de discuter les résultats reportés sur la Fig.4.2 pour chacune des phases considérées.

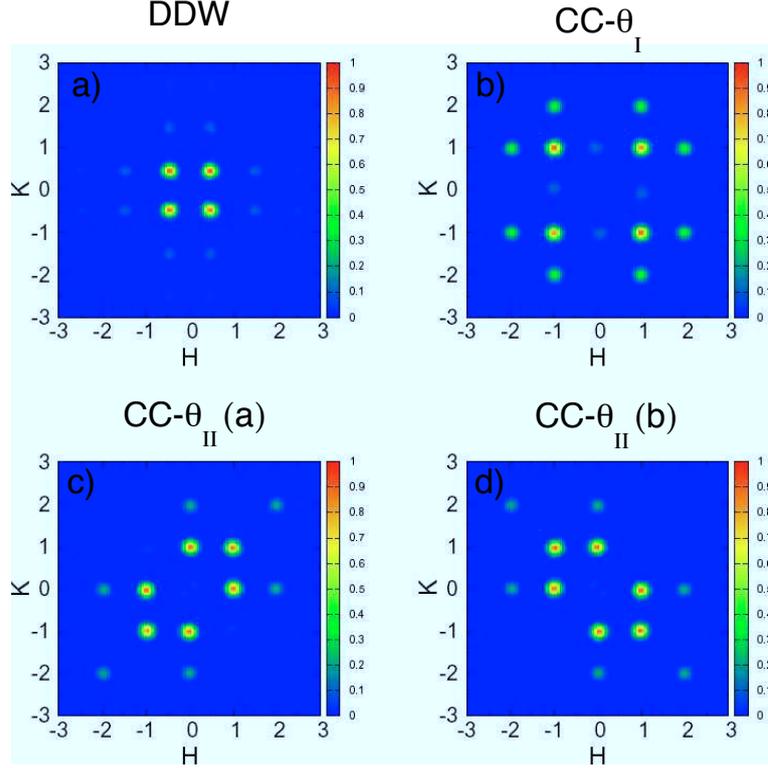


FIG. 4.2: Carte de l'intensité magnétique dans le plan réciproque (H,K) associée aux différentes phases représentées sur la Fig.4.1 : a) phase *DDW*, b) phase *CC-θ<sub>I</sub>* c) et d) les deux domaines de la phase *CC-θ<sub>II</sub>* (notés *CC-θ<sub>II,a</sub>*, *CC-θ<sub>II,b</sub>*).

#### 4.1.2 Cas de la phase *DDW*

Nous reportons sur la Fig. 4.2.a) la distribution de l'intensité magnétique dans le plan (H,K) de l'espace réciproque associée à la phase *DDW* (reportée en 4.1 .a)). L'ordre *DDW* est un ordre orbitalaire AF de vecteur de propagation  $\mathbf{Q} = \mathbf{Q}_{AF}$ , il se caractérise donc par des pics magnétiques de surstructure en position (H/2,K/2). Bien qu'il y ait une contribution magnétique en position (H/2,K/2), celle-ci est très différente de celle observée dans le cas de l'AF de spin du composé à dopage nul.

En effet, la phase *DDW* se distingue du cas de l'ordre AF de spin au moins de deux manières. Tout d'abord, dans le cas de *DDW*, les moments associés aux boucles de courant pointent perpendiculairement au plan  $\text{CuO}_2$  alors que dans le cas de l'AF de spin les moments sont orientés dans le plan (le long de  $a^*$  ou  $b^*$ ), c'est-à-dire à  $90^\circ$  de la direction  $c^*$ . Ensuite, le facteur de forme du signal est très différent. Cet

#### 4 Phase de pseudogap et ordre en compétition

argument a été développé par S.Chakraverty [212, 213] et dans [214]. Dans le cas de l'AF orbitalaire, la taille caractéristique de la boucle de courant est de l'ordre de la distance O-Cu ( $a=3.85\text{\AA}$ ) alors que dans le cas de l'AF de spin la taille caractéristique de l'orbite atomique est de l'ordre de  $a_0=0.5\text{\AA}$ . La conséquence directe de cette différence de taille caractéristique est que dans l'espace réciproque l'intensité magnétique associée à la phase DDW décroît beaucoup plus vite que pour un ordre AF de spin équivalent. Pour illustrer cette différence, on représente sur la Fig.4.3.a) l'évolution de l'intensité magnétique normalisée pour un ordre AF orbitalaire de vecteur de propagation  $\mathbf{Q}_{AF}$  et pour un ordre de spin AF équivalent (chaque boucle de courant est remplacée par un spin au centre de la maille avec comme facteur de forme celui  $\text{Cu}^{2+}$ , le sens du courant impose la direction du moment). Le rapport d'intensité pour la phase DDW entre les raies  $(0.5,0.5,0)$  et  $(1.5,1.5,0)$  est de 80 alors que dans le cas de la distribution de spin équivalente le rapport est de 3.

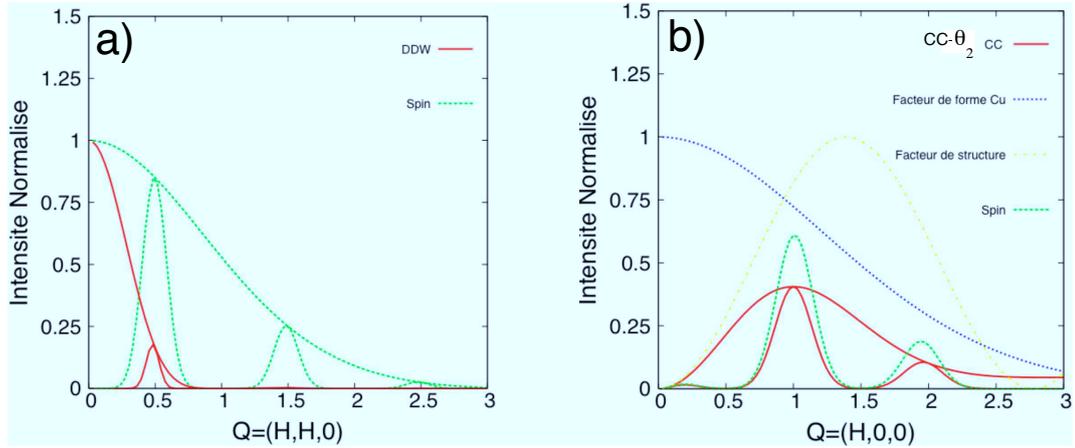


FIG. 4.3: a) Evolution de l'intensité magnétique le long de la direction  $(1,1,0)$  pour la phase DDW et pour le modèle de spin équivalent (le facteur de forme est pris égal à celui du cuivre  $\text{Cu}^{2+}$ ). b) Evolution de l'intensité magnétique le long de la direction  $(1,0,0)$  pour la phase  $\text{CC-}\theta_{II}$  et pour le modèle de spin équivalent (le facteur de forme est pris égal à celui du cuivre  $\text{Cu}^{2+}$ ).

D'un point de vue expérimental, plusieurs études reportent l'observation d'un ordre AF dans le régime sous-dopé du supraconducteur  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  [160, 215]. Généralement, la température de Néel observée (proche de la température ambiante) est plus grande que  $T_c$  et le moment associé à l'ordre AF est compris entre  $0.05$  et  $0.02 \mu_B$ . Une analyse de polarisation longitudinale révèle que les moments sont principalement alignés dans le plan  $\text{CuO}_2$ , comme dans le cas du composé non dopé. Cependant, ce type d'ordre n'a pas été reporté pour un échantillon de dopage équivalent [216] (selon [216] il n'existe pas de moments à moins de  $0.003 \mu_B$ ). Ainsi, il semble que l'ordre AF observé dans [215, 160] ne soit pas une propriété générique du régime sous-dopé. Néanmoins, Mook et al. [217] ont reporté l'existence d'un ordre AF présentant les deux caractéristiques de la phase DDW. Cependant, le moment déduit est de l'ordre de  $0.0025 \mu_B$ , c'est-à-dire la limite de détection expérimentale en neutrons non polarisés, reportée par Stocks. Cette étude en neutrons polarisés n'a porté que sur un échantillon et sur quelques pics de Bragg. Cette étude ne permet pas à elle seule de conclure de façon définitive sur l'évolution du signal avec  $Q$ . De plus, il est aussi important de noter que si une brisure de symétrie de translation existait, les mesures d'ARPES devraient indiquer un dédoublement de la zone de Brillouin. Finalement, en raison du manque de reproductibilité des mesures de diffusion neutrons ainsi que de l'absence de brisure de symétrie de translation, il n'y a pas à ce jour de preuve

que la phase  $DDW$  décrit la phase de pseudogap.

### 4.1.3 Cas de la phase $CC - \theta_I$

Contrairement au cas de la phase  $DDW$ , les phases  $CC$  ne brisent pas la symétrie de translation (le vecteur de propagation est  $\mathbf{Q} = \mathbf{0}$ ), il n'y a donc aucun nouveau pic de Bragg. Comme on peut le voir sur la Fig.4.2 b), c) et d) où l'on reporte l'intensité magnétique dans le plan  $(H,K)$  de l'espace réciproque, la contribution magnétique associée aux phases  $CC$  se superpose aux pics de Bragg nucléaires. Dans le cas de la phase  $CC - \theta_I$ , on a deux domaines qui correspondent aux deux sens de parcours du courant (sens horaire et anti-horaire). L'existence de ces deux domaines implique qu'il n'existe aucun terme d'interférence entre les termes de diffusion nucléaire et magnétique. La section efficace de diffusion magnétique est donc proportionnelle à  $\mathbf{B}^2$ . Il n'est pas possible de séparer ces deux domaines par diffusion de neutrons. On représente l'un des deux domaines sur la Fig.4.1.b). Le motif de la phase  $CC - \theta_I$  brise une symétrie miroir. Le plan miroir brisé est noté  $\hat{m}$  et est défini par  $\hat{x}=0$  et  $\hat{y}=0$ . On retrouve ces miroirs brisés dans la Fig.4.2.b).

A partir des équations de l'Annexe A.1, il est clair que la distribution de courant est nulle pour  $H=0$  ou  $K=0$ . L'intensité magnétique sera donc nulle le long de ces deux directions. L'intensité magnétique est en revanche non nulle et maximale le long de la direction  $H = \pm K$ . Pour un moment typique de  $0.1\mu_B$  par boucle de courant, l'intensité magnétique attendue est de l'ordre de  $10^{-4}$  fois plus faible que l'intensité nucléaire. La mise en évidence expérimentale de telles phases est donc très délicate. Une façon de ramener ce rapport dans des proportions expérimentalement mesurables est d'utiliser les neutrons polarisés.

En particulier, une expérience en neutrons polarisés a été réalisée par S.H Lee et al.[218] afin de tester la phase  $CC - \theta_I$ . L'étude a été réalisée sur deux échantillons sous-dopés de  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  pour  $x=0.075$  ( $T_c=10\text{K}$ ) et  $x=0.1$  et un échantillon sous-dopé de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  ( $T_c=52\text{K}$ ). Le maximum d'intensité magnétique dans le cas particulier de la phase  $CC - \theta_I$  est atteint pour  $(H,K)=(1,1)$ . L'expérience a donc été réalisée dans le plan de diffusion  $(H,H,L)$ . On reporte sur la Fig.4.4.a) l'évolution de la largeur du pic de Bragg pour un échantillon de  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  en fonction de la température pour deux polarisations des neutrons (HF : horizontal field, c'est-à-dire  $\mathbf{P} // \hat{\mathbf{Q}}$  et VF : vertical field c'est-à-dire  $\mathbf{P} // \hat{\mathbf{z}}$ ). Comme on peut le voir, la mesure est compliquée par la transition cristallographique tétragonale orthorhombique qui va affecter la largeur du pic de Bragg nucléaire. Néanmoins, le rapport de flipping en fonction de la température, reporté en Fig.4.4 b), est constant. Les auteurs concluent qu'il n'y a aucun signal pour la formation de boucles de courant de symétrie  $CC - \theta_I$  à une précision de  $0.1\mu_B$ . Dans le cas de l'échantillon  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ , la conclusion est la même mais avec une précision de  $0.01\mu_B$ . Il est important de noter que dans leur modélisation, ceux-ci ont supposé que le système était mono domaine. Ainsi, l'intensité magnétique est proportionnelle à  $M$  (où  $M$  est le moment magnétique associé à une boucle de courant) et non à  $M^2$  comme dans le cas où l'on tient compte des deux domaines. Cependant, rien ne justifie cette hypothèse. Ainsi dans l'hypothèse de deux domaines équivalents, on déduirait de leur mesure une borne supérieure du moment de l'ordre de  $0.1\mu_B$ , c'est-à-dire de l'ordre de grandeur du moment prédit par la théorie [43]. En d'autres termes, cette mesure ne peut pas être considérée comme suffisante pour exclure la phase  $CC - \theta_I$ .

### 4.1.4 Cas de la phase $CC - \theta_{II}$

Dans le cas de la phase  $CC - \theta_{II}$ , il y a deux types de symétries miroir brisées, et donc quatre domaines. Pour chacune de ces symétries brisées, il existe deux domaines correspondant au sens de rotation du courant. Comme dans le cas des autres phases, ceci entraîne qu'il n'y pas de terme d'interférence entre la diffusion nucléaire et magnétique, l'intensité magnétique est donc proportionnelle à  $\mathbf{B}^2$ . Dans notre description, on ne tiendra donc pas compte du sens particulier du courant. Pour la phase  $CC - \theta_{II}$ , les deux miroirs brisés sont  $\hat{x} = \hat{y}$  et  $\hat{x} = -\hat{y}$ . On représente les deux domaines associés à ces deux plans miroirs, notés  $\mathcal{D}_a$  et  $\mathcal{D}_b$ , sur la

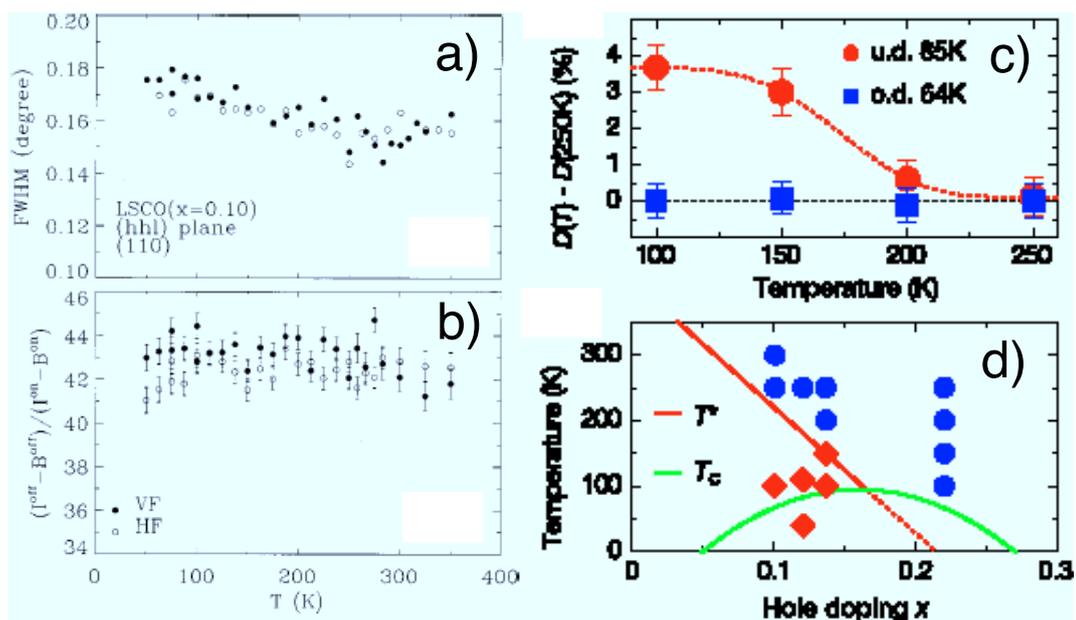


FIG. 4.4: a) Largeur de la raie (1,1,0) en fonction de la température mesurée par S.H. Lee et al. [218] b) Rapport de flipping en fonction de la température mesuré sur la raie (1,1,0) pour les deux polarisations  $P//\hat{q}$  (HF) et  $P//\hat{z}$  (VF). c) Évolution en température du terme dichroïque  $D$  ( $D = \frac{I_R - I_L}{I_R + I_L}$  où  $I_R$  et  $I_L$  correspondent respectivement à l'intensité de la lumière polarisée gauche et droite) pour un échantillon sous-dopé (en rouge) et pour un échantillon surdopé (en bleu) d'après [219]. d) Diagramme de phase déduit des mesures de dichroïsme. Les points bleus correspondent au cas où aucun effet n'a été observé et les points rouges correspondent au cas où un effet dichroïque a été observé.

Fig.4.1.c) et d). Bien entendu, les différents plans miroirs brisés pour les phases  $CC - \theta_{II,a}$  et  $CC - \theta_{II,b}$  se retrouvent dans l'espace réciproque de chacune de ces phases. On reporte sur la Fig.4.2.c) et d) l'intensité magnétique associée à chacun des deux domaines de la phase  $\mathcal{D}_a$  et  $\mathcal{D}_b$ . Les différents plans miroirs brisés, perdus pour les phases  $CC - \theta_{II,a}$  et  $CC - \theta_{II,b}$ , se retrouvent dans l'espace réciproque de chacune de ces phases. Les deux domaines étant équiprobables, l'intensité magnétique diffusée sera la somme de l'intensité diffusée par chacun des deux domaines :  $\mathcal{D}_a$  et  $\mathcal{D}_b$

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{total} = \frac{1}{2} \left[ \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\mathcal{D}_a} + \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\mathcal{D}_b} \right] \quad (4.8)$$

Le facteur de structure magnétique total est reporté sur la Fig.4.6.b). Quelle que soit la façon de décrire les moments magnétiques, les pics magnétiques caractéristiques des deux phases CC proposées par Simon et al.[210] sont à  $45^\circ$  les uns des autres dans l'espace réciproque : pour la phase  $CC-\theta_I$ , le maximum d'intensité est attendu sur les raies  $(1,1,L)$ , **pour la phase phase  $CC-\theta_{II}$  le maximum d'intensité est attendu sur les raies  $(1,0,L)$ (= $0,1,L$ )**. Les études précédentes en diffraction de neutrons polarisés ce sont concentrées sur les pics de Bragg  $(1,1,L)$ . De plus, il faut noter que le moment net par cellule élémentaire  $\text{CuO}_2$  est nul, il n'y a donc **aucune intensité en  $(0,0,L)$**  (comme on peut le voir sur la Fig.4.2), ce qui est fondamentalement différent du cas du ferromagnétisme. Dans le cas du ferromagnétisme, on attend une contribution magnétique équivalente quel que soit le pic de Bragg  $(H,K)$  considéré.

### Équivalence distribution de courant - distribution de moment

Jusqu'à présent, on a décrit le facteur de structure magnétique en partant de la distribution de courant associée à chacune des phases. Il existe une stricte équivalence entre la description en termes de distribution de courant et celle en termes de distribution de moments. Il est en effet possible de définir une distribution de moment associée à chacune des distributions de courant que nous venons de discuter. Nous proposons ici une telle description dans le cas de la phase  $CC-\theta_{II}$ . Cette description sera utile pour comparer la section efficace de diffusion magnétique de la phase  $CC-\theta_{II}$  et celle d'une distribution de spins donnée.

D'après les équations de Maxwell, on a :  $\nabla \times \mathbf{M} = \mathbf{J}$ . Partant de la distribution de courant associée à la phase  $CC - \theta_{II}$ , on reporte dans l'Annexe A.4 la distribution de moment déduite. Comme on le représente sur la Fig.4.5, la distribution de courant de la phase  $CC - \theta_{II}$  pour le domaine  $\mathcal{D}_a$  est équivalente à une distribution de moment avec un moment  $\mathbf{M}$  en  $(x_0, x_0)$  (où  $x_0$  correspond au centre de la boucle de courant) et un moment  $-\mathbf{M}$  en  $(-x_0, -x_0)$ . La situation est similaire pour le domaine  $\mathcal{D}_b$ , excepté que les moments sont positionnés respectivement en  $(x_0, -x_0)$  et  $(-x_0, x_0)$ . La distribution de moment calculée dans l'Annexe A.4 permet de déterminer où se situe le moment dans une image de moment ponctuel. La moyenne de  $x$  sur la distribution de moment permet d'obtenir que  $x_0=0.18$  en unité de  $a$ . Ce résultat est en accord avec la position du centre de masse du triangle.

On associe un facteur de forme  $f(q)$  ( $f(0)=1$ ) à chaque moment  $\mathbf{M}$  qui, dans le cas d'une distribution de spin, correspond à la transformée de Fourier de l'orbitale magnétique atomique. Ici  $f(q)$  est pris comme un facteur de forme *ad hoc*. On suppose que le facteur de forme associé au moment en  $(x_0, x_0)$  ( $(x_0, -x_0)$ ) et le facteur de forme associé au moment  $(-x_0, -x_0)$  ( $(-x_0, x_0)$ ) pour le domaine  $\mathcal{D}_a$  (respectivement  $\mathcal{D}_b$ ) sont les mêmes. Cette proposition est fautive dans le cas de la phase  $CC - \theta_{II}$ , les facteurs de formes sont en fait complexes conjugués. Cependant cette proposition est vraie dans le cas d'une distribution de spin. Ainsi le champ magnétique associé à une telle distribution de spins s'écrit :

$$\mathbf{B}(\mathbf{q}) = 4 f(q) \beta(L) \sin(2\pi x_0 H) \sin(2\pi x_0 K) (\hat{\mathbf{q}} \wedge \mathbf{M} \wedge \hat{\mathbf{q}}) \quad (4.9)$$

Le signe  $\pm$  correspond aux deux domaines  $\mathcal{D}_a$  et  $\mathcal{D}_b$  respectivement. Partant de l'Eq.4.9, on représente sur la Fig.4.3.b) l'évolution de l'intensité magnétique normalisée pour l'ordre de spin précédemment discuté

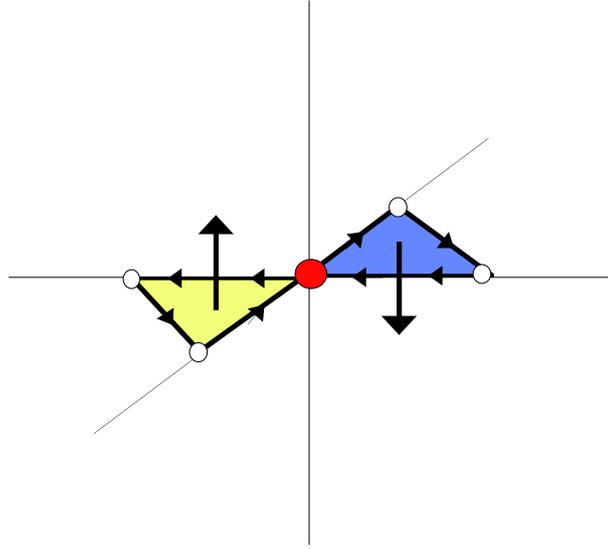


FIG. 4.5: Schéma indiquant la distribution de spin équivalente à la distribution de courant de la phase  $CC - \theta_{II,a}$ . Chaque boucle de courant est substituée par un spin au centre du triangle, la direction du moment est alors fixée par le sens de parcours du courant (horaire ou anti-horaire)

(en points verts), avec pour facteur de forme celui du  $\text{Cu}^{2+}$  représenté en points bleus et comme facteur de structure  $\sin(2\pi x_0 H) \sin(2\pi x_0 K)$  représenté en points jaunes. On reporte également sur cette figure l'intensité magnétique normalisée pour la phase  $CC-\theta_{II}$  (en ligne rouge). Tout comme dans le cas de la phase DDW, l'intensité magnétique décroît plus rapidement quand  $\mathbf{q}$  augmente dans le cas de la phase  $CC-\theta_{II}$  que dans le cas d'un modèle de spin. Cet effet est néanmoins beaucoup moins marqué que dans le cas de la phase DDW. En effet, le rapport d'intensité pour la phase  $CC-\theta_{II}$  entre les raies  $(1,0,0)$  et  $(2,0,0)$  est de 4.2 alors que le rapport est de 3.5 dans le cas de distribution de spin équivalente.

Une autre façon de se rendre compte de la faible différence entre ces deux rapports est de représenter, comme sur la Fig.4.6, l'évolution de l'intensité magnétique dans le plan  $(H,K)$  pour la distribution de spin précédemment discutée (Fig.4.6 a)) et pour la phase  $CC - \theta_{II}$  (Fig.4.6 b)). Pour chaque distribution, on a pris en compte l'effet des domaines en appliquant l'Eq.4.8. Dans les deux cas, l'intensité magnétique est non nulle en  $(H,0)$ ,  $(H,\pm H)$  et  $(0,K)$ . La comparaison de ces deux figures montre la très grande similarité dans l'évolution en  $\mathbf{q}$  des intensités magnétiques malgré des origines différentes. On peut néanmoins constater une différence : le long de la direction  $(H,2H,L)$  il n'y a aucune intensité magnétique sur la Fig.4.6.b) (phase  $CC - \theta_{II}$ ) alors que ce n'est pas le cas sur la Fig.4.6.a) (distribution de spin). En fait, à cause de la forme particulière de la distribution de courant, la diffusion magnétique de neutrons sera non nulle uniquement le long des trois directions suivantes :  $\mathbf{q} = (0, K, L), (H, 0, L), (H, \pm H, L)$ . Cette propriété n'est liée qu'à la forme particulière de la distribution de courant : elle pourra donc être utilisée comme critère caractéristique de la phase  $CC-\theta_{II}$ .

Finalement, cette discussion permet de mettre en évidence deux faits. Tout d'abord, contrairement à une distribution de moments localisés, la séparation entre facteur de forme et facteur de structure n'est pas très évidente pour les phases  $CC$ . Néanmoins, notre modélisation montre que les évolutions de l'intensité magnétique dans le plan  $(H,K)$  de la phase  $CC - \theta_{II}$  et de sa distribution de spin équivalente sont assez

proches. Cette modélisation est intéressante car elle permet de discuter de façon plus simple ce type d'ordre et de mettre en évidence les différences avec d'autres distributions de spins.

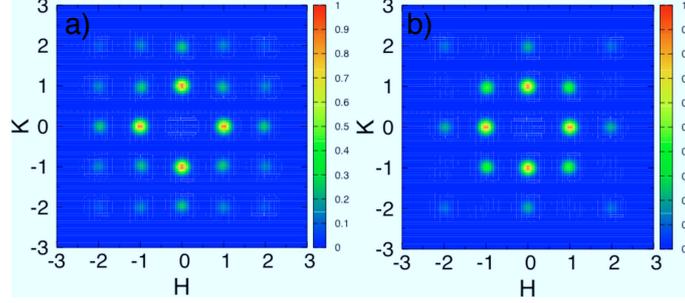


FIG. 4.6: Carte de l'intensité magnétique dans le plan de l'espace réciproque  $(H,K)$  pour a) la distribution de spin compatible avec la phase  $CC - \theta_{II}$ , b) pour la phase  $CC - \theta_{II}$ . Dans les deux cas, on a tenu compte des deux domaines suivant Eq.4.8

#### Signature expérimentale associée à la phase $CC - \theta_{II}$

Les phases CC brisent la symétrie de renversement de temps. Comme on la vu, cette brisure de symétrie s'accompagne de la brisure de symétrie de certains miroirs. Dans le cas de la phase  $CC - \theta_I$ , le miroir brisé est le miroir  $\hat{m}$  défini par  $x=0$  et  $y=0$  (c'est-à-dire le miroir le long de la liaison Cu-O) et dans le cas de la phase  $CC - \theta_{II}$ , le miroir brisé est le miroir  $\hat{m}$  défini par  $x = y$  ou  $x = -y$  (c'est-à-dire le long de la diagonale de la direction Cu-O). Afin de tester l'hypothèse de la violation de renversement du temps dans la phase de pseudogap, une nouvelle technique expérimentale a été proposée : la photo-émission résolue en angle en lumière polarisée circulairement [219]. En effet, sous certaines conditions, il est possible d'interpréter la différence d'intensité entre la lumière polarisée gauche et droite comme l'existence d'une brisure de symétrie miroir. Considérons le cas suivant : soit  $\hat{p}$  un vecteur du miroir plan,  $\hat{n}$  la direction de polarisation du photon incident appartenant au plan miroir, et  $\mathbf{k}$  le moment de l'électron qui se propage dans le réseau. Alors,  $D = \frac{I_R - I_L}{I_R + I_L} = 0$  si  $\mathbf{k}$  est colinéaire à  $\hat{p}$  ( $I_R$  et  $I_L$  correspondent respectivement à l'intensité de la lumière polarisée gauche et droite). Supposons maintenant qu'au-dessous d'une certaine température, les symétries de renversement de temps et la symétrie miroir  $\hat{m}$  soient brisées. Dans ce cas, il a été montré [220] qu'il y aura une différence entre  $I_R$  et  $I_L$  (toujours pour  $\mathbf{k}$  appartenant à  $\hat{m}$ ). Cet effet est proportionnel au paramètre d'ordre associé à la transition de phase.

Ainsi, par la mesure de  $D$  à travers tout le diagramme de phase, il est possible en principe de révéler la brisure de renversement de temps. Cette expérience a été réalisée par A.Kaminsky et al. [219] sur des couches minces de  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  pour des échantillons sous-dopés de  $T_c=78,85\text{K}$  et pour un échantillon surdopé de  $T_c=64\text{K}$ . Nous reportons sur la Fig.4.4 c) la dépendance en température du signal dichroïque mesuré en  $(\pi,0)$  pour un échantillon sous-dopé ( $T_c=85\text{K}$ ) en rouge et pour un échantillon surdopé ( $T_c=64\text{K}$ ) en bleu. Alors que l'échantillon surdopé ne présente aucun signal dichroïque à toute température, l'échantillon sous-dopé présente un signal dichroïque qui augmente à partir de  $T=200\text{K}$  à mesure que la température diminue. On reporte également sur la Fig.4.4 d) le diagramme de phase du composé  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  indiquant la présence (points diamants rouges) et l'absence de signal dichroïque (points ronds bleus). D'après la Fig. 4.4 d), il existe un signal dichroïque dans la phase sous-dopée du supraconducteur  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ , ce signal apparaît seulement dans la phase sous-dopée, les températures de transition déduites de ces mesures sont compatibles avec les températures de la phase de pseudogap. Toutes les mesures reportées dans [219] ont été

réalisées au point  $M=(0,\pi)$  ou  $(\pi,0)$ , le miroir brisé est donc celui associé à la phase  $CC - \theta_{II}$ .

Ces résultats n'ont pas été confirmés par l'équipe de S.Borisenko [221]. En effet, celle-ci attribue le signal dichroïque à la superstructure électronique des plans BiO que nous avons discutée dans la partie 2.4.1. Dans leur échantillon de  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  dopé au Pb (afin de réduire l'effet de la superstructure), cette équipe ne trouve aucun signal dichroïque au point  $(\pi,0)$ . Jusqu'à présent, aucune autre équipe de photo-émission ne s'est intéressée à ce problème. La mise en évidence d'une brisure de l'invariance de renversement du temps par ARPES reste donc controversée. Une autre méthode pour mettre en évidence la phase  $CC - \theta_{II}$  serait d'étudier la signature magnétique spécifique de cette phase. **Nous nous sommes ainsi intéressés à l'étude de la phase  $CC - \theta_{II}$  par diffusion de neutrons polarisés.**

## 4.2 Conditions expérimentales pour le test de la phase $CC - \theta_{II}$

Le but de l'expérience est d'essayer de mettre en évidence l'existence d'une contribution magnétique se superposant aux pics de Bragg nucléaires. Toute la difficulté de cette expérience réside dans le rapport entre l'intensité magnétique et l'intensité nucléaire. Typiquement pour un moment magnétique de  $0.1 \mu_B$  associé à la phase  $CC - \theta_{II}$ , l'intensité nucléaire sera entre  $10^3$  à  $10^4$  fois plus intense (en fonction du pic de Bragg considéré). Dans ces conditions, il n'est pas possible de mettre en évidence la composante magnétique.

Il est néanmoins possible d'augmenter le rapport signal (l'intensité magnétique) sur bruit (l'intensité nucléaire) grâce aux *neutrons polarisés*. Comme nous l'avons vu dans le chapitre II, si l'expérimentateur est capable de faire la différence entre les processus SF et NSF pour différentes polarisations  $\mathbf{P}$  des neutrons, il devient en principe possible de faire la différence entre les diffusions d'origine nucléaire et d'origine magnétique. Dans cette partie, nous proposons de dériver les sections efficaces de diffusion pour les canaux SF et NSF pour différentes polarisations des neutrons ainsi que la façon d'extraire le signal magnétique des canaux SF et NSF.

### 4.2.1 Section efficace dans les canaux SF et NSF

Partant de l'Eq4.1, on propose ici de dériver la section efficace de diffusion dans les canaux SF et NSF en présence d'un champ magnétique  $\mathbf{B}(\mathbf{r})$  dans le solide. Quelle que soit l'origine de la diffusion magnétique, le vecteur  $\mathbf{B}(\mathbf{q})$  est perpendiculaire à  $\mathbf{q}$ . On récrit ainsi  $\mathbf{B}(\mathbf{q})$  comme :

$$\mathbf{B}(\mathbf{q}) = B_{\perp} \hat{\mathbf{q}}_{\perp} + B_z \hat{\mathbf{z}} \quad (4.10)$$

En fonction des polarisations des neutrons incident et diffusé, le champ magnétique contribuera plus ou moins à l'un des deux canaux. En effet, l'intensité des neutrons diffusés dans le canal SF correspond toujours à la composante transverse à la direction de polarisation des neutrons. La composante du champ parallèle à la polarisation a quant à elle une contribution dans le canal NSF. Partant de l'Eq. 4.1, on donne ici la contribution du champ magnétique dans le canal SF pour les polarisations orthogonales :  $\mathbf{P} // \hat{\mathbf{q}}, \mathbf{P} // \hat{\mathbf{z}}$  et  $\mathbf{P} // \hat{\mathbf{q}}_{\perp}$

$$\langle \pm | \sigma \cdot \mathbf{B}(\mathbf{q}) | \mp \rangle = B_{\perp} + iB_z \text{ d'où } I_{SF} \propto |B_{\perp} + iB_z|^2 \text{ pour } \mathbf{P} // \hat{\mathbf{q}}.$$

$$\langle \pm | \sigma \cdot \mathbf{B}(\mathbf{q}) | \mp \rangle = iB_{\perp} \text{ d'où } I_{SF} \propto |B_{\perp}|^2 \text{ pour } \mathbf{P} // \hat{\mathbf{z}}.$$

$$\langle \pm | \sigma \cdot \mathbf{B}(\mathbf{q}) | \mp \rangle = B_z \text{ d'où } I_{SF} \propto |B_z|^2 \text{ pour } \mathbf{P} // \hat{\mathbf{q}}_{\perp}.$$

Suivant ces trois relations, l'intensité magnétique observée dans le canal SF, notée  $I_{mag} \equiv |F_M|^2$ , suit une règle de somme pour chacune des trois polarisations :

$$I_{\mathbf{P} // \hat{\mathbf{q}}} = I_{\mathbf{P} // \hat{\mathbf{z}}} + I_{\mathbf{P} // \hat{\mathbf{q}}_{\perp}} \quad (4.11)$$

Quelle que soit l'origine du champ magnétique (spin ou orbitalaire) cette règle de sélection est vérifiée. Il faut noter qu'en présence de chiralité, l'Eq.4.11 n'est plus vraie[147].

Dans le canal NSF où l'état de spin est conservé le long de l'axe de quantification, on mesure en plus de la diffusion nucléaire, la composante du champ magnétique parallèle à la polarisation du neutron[?]. L'intensité dans le canal NSF s'écrit donc :

$$|F_N(\mathbf{q}) + \frac{r_0}{2} \langle \pm | \sigma \cdot \mathbf{B}(\mathbf{q}) | \pm \rangle|^2 = |F_N(\mathbf{q}) \pm \frac{r_0}{2} B_{//P}(\mathbf{q})|^2 \quad (4.12)$$

où  $F_N$  représente le facteur de structure nucléaire présenté dans la partie 2.2.1 On rappelle que dans le cas où la polarisation  $\mathbf{P} // \hat{\mathbf{q}}$  alors  $B_{//P}=0$ . Toute l'intensité magnétique se trouve alors dans le canal SF. Lorsque la polarisation des neutrons n'est pas parallèle à  $\hat{\mathbf{q}}$ , on pourrait s'attendre à une interférence entre le terme magnétique et le terme nucléaire. Cependant, cet effet est annulé par l'existence de domaines liés au sens d'orientation des boucles de courant. La section efficace dans le canal NSF s'écrit donc :

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{NSF} = (|F_N(\mathbf{q})|^2 + \frac{r_0^2}{4} |B_{//P}(\mathbf{q})|^2) \delta(\mathbf{q} - \tau) \quad (4.13)$$

Il est clair que le terme magnétique de l'Eq.4.13 est négligeable comparé au terme nucléaire (de l'ordre de  $10^{-3}$  fois plus faible pour un moment de  $0.1\mu_B$ ). L'intensité dans le canal NSF est donc seulement représentative de la diffusion nucléaire.

#### 4.2.2 Détermination du signal magnétique

Comme on l'a vu dans la partie 2.3.3, la séparation entre les canaux SF et NSF devrait être parfaite. Cependant, en raison des imperfections des éléments polarisants, il existe toujours une fuite de polarisation du canal SF (respectivement NSF) dans le canal NSF (respectivement SF). Cette fuite de polarisation est caractérisée par la valeur du rapport de flipping, noté  $R = I_{NSF} / I_{SF}$ . Ainsi pour une valeur donnée de  $R$ , les intensités SF et NSF s'écrivent comme :

$$\begin{aligned} I_{NSF} &= \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{NSF} + \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{SF} / R \simeq \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{NSF} \\ I_{SF} &= \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{SF} + \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{NSF} / R \end{aligned} \quad (4.14)$$

Dans notre cas de figure, on a vu que  $\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{NSF} \gg \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{SF}$ , l'intensité dans le canal NSF se simplifie. En supposant l'existence d'un processus SF caractérisé par un facteur de structure magnétique  $F_M$ , alors  $\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{SF} \simeq |F_M|^2$ . L'intensité magnétique normalisée  $I_{norm}(T) \equiv 1/R(T)$  déduite du canal SF s'écrit donc :

$$I_{norm} = \frac{I_{SF}}{I_{NSF}} \simeq \frac{1}{R(T_0)} + \frac{|F_M|^2}{|F_N|^2} \quad (4.15)$$

Selon ce qui vient d'être présenté,  $R(T_0)$  correspond au rapport de flipping mesuré sur un pic de Bragg au-dessus de la température de mise en ordre.  $R(T_0)$  est pris à haute température où le magnétisme est supposé inexistant.

### 4.3 Conclusion

Différents paramètres d'ordre ont été proposés pour décrire la phase de pseudogap des supraconducteurs à haute température critique. En particulier, certaines approches postulent l'existence de boucles de courant à l'intérieur des plans  $\text{CuO}_2$  [95, 210, 43]. Ces types d'ordres représentent de nouveaux états électroniques de la matière. De façon remarquable, ce type d'ordre peut être sondé par la diffusion de neutrons. En effet, le

#### 4 Phase de pseudogap et ordre en compétition

champ magnétique créé par les boucles de courant peut se coupler au spin du neutron. Dans ce chapitre, nous avons dérivé la section efficace de diffusion magnétique associée à trois de ces paramètres d'ordre : DDW, CC- $\theta_I$  et CC- $\theta_{II}$ . La distribution de l'intensité magnétique dans l'espace réciproque est principalement contrôlée par deux paramètres : la taille et la symétrie ponctuelle de la boucle de courant. Ainsi, la distribution de l'intensité associée à chacun de ces ordres originaux est assez différente de la distribution d'un ordre de spin équivalent (en particulier dans le cas de la phase DDW). Pour chacune de ces phases, différentes expériences ont été réalisées. A ce jour, il n'existe pas d'expérience établissant l'existence de l'une de ces phases. Ces dans ces conditions que nous sommes intéressés à la phase CC- $\theta_{II}$  proposée par C.Varma, qui n'avait jusqu'à présent jamais été testée par diffusion de neutrons. Nous reportons dans les deux prochains chapitres l'étude par diffusion de neutrons polarisés de la phase de pseudogap des composés  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  et  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ .

# 5 Étude de la phase de pseudogap du composé $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ par diffraction de neutrons polarisés (DNP)

Dans cette partie, nous reportons nos résultats sur l'étude de la phase de pseudogap du composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  par diffraction de neutrons polarisés (DNP). Avant de présenter nos résultats, nous précisons dans une première partie les conditions expérimentales choisies pour essayer de mettre en évidence l'existence d'un ordre magnétique de type  $CC - \theta_{II}$ . Nous finirons cette partie par une discussion de nos résultats.

## 5.1 Ordre magnétique dans la phase de pseudogap du composé $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ : hypothèse de travail

D'après la partie 4.1.4, on attend un maximum d'intensité magnétique sur le pic de Bragg planaire (0,1) (ou (1,0)) pour la phase  $CC - \theta_{II}$ . Il est important de noter que notre modélisation est partie de l'hypothèse d'un ordre à *longue portée*. Bien que la phase  $CC - \theta_{II}$  soit spécifique au plan  $\text{CuO}_2$ , la structure magnétique recherchée est à priori tridimensionnelle, il faut ainsi préciser la valeur de L (c'est-à-dire préciser la corrélation le long de l'axe c) pour laquelle la mesure doit être effectuée.

### 5.1.1 Sur quel pic de Bragg faire la mesure ?

Dans le cas du spectromètre 4F1, le rapport de flipping typique est de l'ordre de 40 à 50 en fonction de l'échantillon considéré, c'est-à-dire que même en configuration neutrons polarisés, la majeure partie de l'intensité du canal SF vient de la fuite de polarisation du canal NSF. Ainsi, afin d'augmenter notre chance de mettre en évidence une contribution magnétique, nous devons connaître le pic de Bragg nucléaire le plus faible où l'on attend un signal magnétique pour la phase  $CC - \theta_{II}$ . Le facteur de structure magnétique est maximal le long de la direction (0,1,L) ( $\equiv (1,0,L)$ ) dans le cas des échantillons maclés. La valeur la plus adéquate en L est contrôlée par  $\beta(L)q$  (c'est-à-dire la fonction de L qui caractérise le couplage dans le bi-plan de la phase  $CC - \theta_{II}$ ). En fonction du couplage entre les bi-plans  $\text{CuO}_2$ , le facteur de structure magnétique sera maximal en L=0 ou L=2. Dans les deux cas, il y aura une contribution magnétique en L=1. Ensuite, l'étude de l'intensité nucléaire le long de la direction (0,1,L) pour l'échantillon A ( $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  voir Tab.2.2), reportée sur la Fig.5.1, montre que le pic de Bragg nucléaire pour L=1 est assez faible. La valeur L=1 est donc la valeur qui présente le meilleur compromis entre un signal magnétique non nul (quel que soit le couplage dans le bi-plan) et un pic de Bragg nucléaire aussi faible que possible. De plus, il est important de noter que dans le cas des échantillons démaclés, l'intensité est plus faible en (0,1,1) qu'en (1,0,1) en raison de la contribution des chaînes  $\text{CuO}$ , alors qu'aucune différence n'est attendue du point de vue de la structure magnétique. Ainsi, l'étude de la raie (0,1,1) pour un échantillon démaclé est la plus favorable.

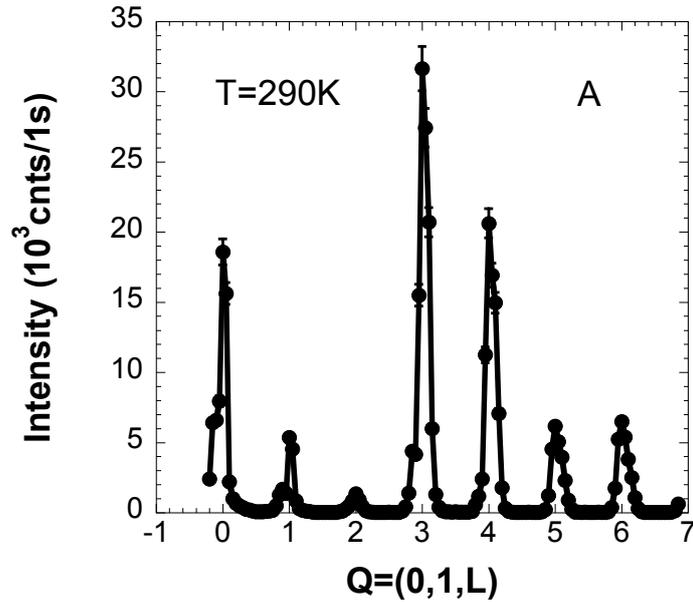


FIG. 5.1: Intensité dans le canal Non Spin Flip le long de la direction  $(0,1,L)$  à  $T=290K$  pour l'échantillon A (voir Tab.2.2)

#### Comment procéder pour l'acquisition des données ?

Dans le cas particulier de la raie  $(0,1,1)$ , le rapport entre l'intensité magnétique et l'intensité nucléaire est de l'ordre de  $1/500$  à  $1/1000$ . Ainsi, si l'on travaille avec un rapport de flipping de 50, le rapport entre le signal magnétique et la fuite de polarisation dans le canal spin flip est de l'ordre de 10%. Même avec un bon rapport de flipping de l'ordre de 50, l'intensité dans le canal SF est principalement dominée par la fuite de polarisation du canal NSF, c'est-à-dire par l'intensité nucléaire. Ici, la première difficulté vient de la stabilité du rapport de flipping en fonction de la température. En effet, on cherche à mettre en évidence une variation du rapport de flipping de l'ordre de 2 sur une large gamme de température. Il est donc indispensable d'avoir une barre d'erreur relativement faible. Cela nécessite donc un long temps d'acquisition pour chaque température. Ensuite, même avec un rapport de flipping (FR) de l'ordre de 50, l'intensité SF est dominée par la fuite l'intensité du pic de Bragg. Il est donc fondamental de contrôler les fluctuations de ce bruit de fond à plus de 10%. Nous présentons ici les conditions dans lesquelles ces fluctuations sont les plus réduites :

1. les mouvements du spectromètre sont minimisés (idéalement le spectromètre ne bouge pas)
2. aucun diaphragme n'est utilisé, ni avant, ni après l'échantillon
3. on travaille avec une résolution large en  $Q$  pour l'étude d'un pic de Bragg (pas de collimation,  $k_i=2.662\text{\AA}^{-1}$ ) afin d'intégrer au maximum les variations thermiques des paramètres du réseau
4. l'évolution du canal NSF doit être homogène sur toute la gamme de température. Le canal NSF doit suivre l'évolution linéaire du facteur Debye-Waller

L'acquisition des données est faite en continu en fonction de la température. Pour chaque température, on se place sur le maximum de la raie  $(0,1,1)$ , on mesure ensuite les intensités SF et NSF. Afin d'avoir une statistique équivalente, on compte le canal SF vingt fois plus longtemps que le canal NSF.

### 5.1.2 Présentations des échantillons

Dans le but de tester la phase  $CC - \theta_{II}$ , nous avons étudié des échantillons de différents dopages et origines. Cette étude a été réalisée sur la famille de composés  $Y_{1-y}Ca_yBa_2Cu_3O_{6+x}$  pour un dopage allant de  $y=0$  à  $x=0.5$  (phase sous dopé) à  $y=0.15$  et  $x=1$  (phase surdopé). Tous les échantillons étudiés sont énumérés dans le Tab.2.2.

## 5.2 Résultats

Les conditions expérimentales étant précisées, nous présentons dans cette partie nos principaux résultats concernant l'étude de la phase  $CC - \theta_{II}$  comme candidat éventuel pour la phase de pseudogap du composé  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ . Nous reportons dans la première partie les résultats de l'étude de la raie (0,1,1) par diffraction de neutrons polarisés dans le composé  $(Y,Ca)Ba_2Cu_3O_{6+x}$  pour la polarisation  $\mathbf{P} // \mathbf{Q}$ . Nous reportons dans une deuxième partie le résultat de l'analyse complète de polarisation longitudinale. Nous reportons ensuite l'étude sur d'autres pics de Bragg.

### 5.2.1 Cas de la polarisation $\mathbf{P} // \mathbf{Q}$ pour $\mathbf{Q}=(011)$

Nous avons commencé par l'étude des pics de Bragg qui présentent la meilleure configuration, c'est-à-dire la pic de Bragg où l'intensité magnétique est maximale et l'intensité nucléaire est minimale. Ces deux conditions sont satisfaites pour la raie (011) de l'échantillon sous-dopé (C) avec une polarisation  $\mathbf{P} // \mathbf{Q}$  où tout le signal magnétique est dans le canal spin flip. Les dépendances en température du canal SF et NSF mesurées en (011) sont reportées sur la Fig.5.2. Les intensités dans les deux canaux ont été ajustées à la même valeur à 300K par la valeur du rapport de flipping. On suppose donc qu'il n'y a aucun signal magnétique au-dessus de 300K. De la température ambiante (300K) à 10K, l'intensité NSF augmente de façon très continue à mesure que l'on refroidit. Jusqu'à 220K, le canal SF présente la même évolution, au-dessous de 220K l'intensité SF s'écarte de l'évolution quasi linéaire du canal NSF, indiquant ainsi l'apparition d'une contribution supplémentaire dans le canal SF. Dans la Fig.5.2, on reporte les mêmes résultats pour les échantillons maclés (B) et (D). Dans les deux cas, la même évolution des canaux SF et NSF est observée : au-dessous d'une certaine température notée  $T_{mag}$ , une contribution supplémentaire apparaît dans le canal SF. Avant de discuter la nature de cette contribution supplémentaire dans le canal SF, nous discuterons l'évolution en température du canal NSF.

#### Le facteur Debye-Weller

On a vu dans le chapitre 2 que l'intensité NSF est contrôlée par le facteur de structure nucléaire lorsque  $\mathbf{P} // \mathbf{Q}$ . Ainsi l'évolution en température du canal NSF est contrôlée par l'évolution en température du pic de Bragg nucléaire. De façon plus précise, on a :  $I_{NSF} = |F_N(\mathbf{Q})|^2 F_N = \sum_d b_d \exp(-W_d(\mathbf{Q})) \exp(-i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{d})$  où  $b_d$  est la longueur de diffusion de l'atome situé à la position  $\mathbf{d}$  et  $W_d$  est le facteur Debye-Weller. Pour un pic de Bragg donné  $\mathbf{Q}=(H,K,L)$ , on a

$$W_d = \frac{1}{2} [\langle u_d^2 \rangle_{11} Q_a^2 + \langle u_d^2 \rangle_{22} Q_b^2 + \langle u_d^2 \rangle_{33} Q_c^2] \quad (5.1)$$

avec  $\langle u_d^2 \rangle_{11}$  ( $\langle u_d^2 \rangle_{22}$ ,  $\langle u_d^2 \rangle_{33}$ ) qui représentent le déplacement moyen au carré du  $d$  ième atome de la maille élémentaire le long de l'axe  $a^*$  (respectivement le long de  $b^*$ ,  $c^*$ ). Dans le cas du composé  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ , on a :  $Q_b = 2\pi/b=1.63 \text{ \AA}^{-1}$  and  $Q_c = 2\pi/c=0.53 \text{ \AA}^{-1}$

Pour chaque atome, la dépendance en température  $U_{ii} = \langle u_d^2 \rangle_{ii}$  a été mesurée dans  $YBa_2Cu_3O_{6.5}$  par des mesures de diffraction de neutrons sur monocristal [222]. Ces mesures ont été réalisées pour différentes

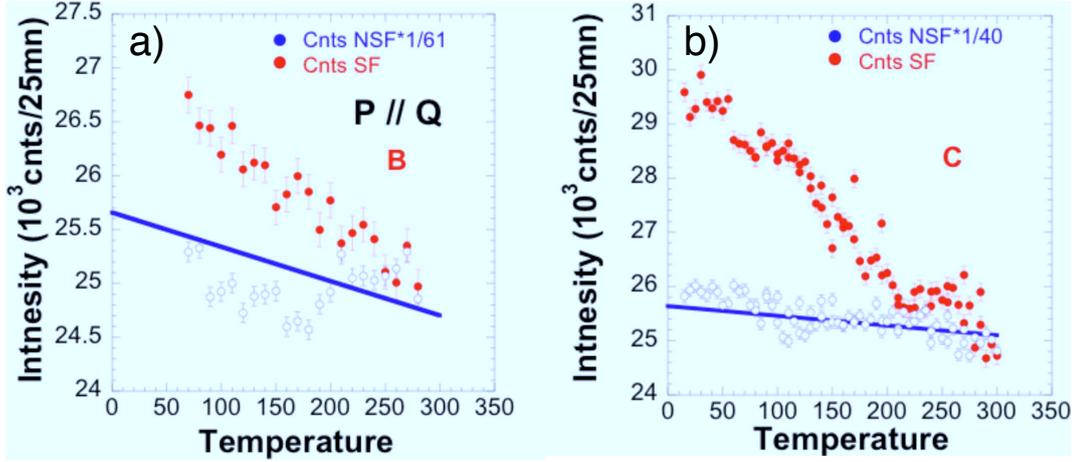


FIG. 5.2: a) Evolution en température de l'intensité SF (points rouges) et de l'intensité NSF (points bleus ouverts) pour l'échantillon B pour une polarisations du neutron P//Q. La ligne bleue correspond à l'évolution de l'intensité NSF attendue par l'effet Debye-Weller. b) même chose que en a) pour l'échantillon C

températures mais la dépendance en température peut facilement être extrapolée par une dépendance linéaire, comme cela est représenté dans l'Appendice.A.5. Une fois la dépendance en température des  $U_{ii,d}$  connue, on peut utiliser l'Eq.5.2.1 pour remonter à  $W_d$  puis à l'évolution en température de la raie étudiée. On reporte en trait bleu sur la Fig.5.2 la dépendance en température du facteur Debye Weller pour les échantillons maclés et démaclés (voir l'appendice A.5 pour la différence). Dans tous les cas, la comparaison entre la mesure et le calcul est assez bonne. En particulier, ceci montre que l'on maîtrise l'évolution en température du canal NSF à la statistique près. Néanmoins, l'accord est moins bon dans le cas de l'échantillons maclé B. Dans ce cas, l'intensité calculée augmente plus vite que la mesure lorsque l'on refroidit. Ici, il faut remarquer que l'effet du facteur Debye Weller est plus large que dans le cas des échantillons démaclés car le déplacement moyen des atomes d'oxygène des chaînes Cu-O est particulièrement grand par rapport aux autres atomes [222]. De fait, l'organisation des atomes d'oxygène dans les chaînes aura un effet significatif sur  $W_d$ . On peut donc suspecter que la surestimation du facteur Debye-Weller pour les échantillons maclés est liée à une mauvaise prise en compte des chaînes. Quoiqu'il en soit, l'intensité SF augmente toujours plus rapidement que celle prédite par le facteur Debye Weller. Cette étude pourrait en principe être généralisée à l'ensemble des échantillons, il faudrait pour cela connaître précisément l'évolution en température de  $U_{ii} = \langle u_d^2 \rangle_{ii}$  et l'organisation des oxygènes dans les chaînes CuO pour chacun de ces dopages.

### Bragg (011) P//Q

Nous avons prouvé que l'intensité NSF suit à peu près le comportement attendu et nous nous intéressons maintenant au comportement anormal du canal SF. Ce comportement n'apparaît qu'à basse température et, dans le canal SF, cette contribution est d'origine magnétique. Comme on l'a vu dans la partie 4.2.2, il est possible d'extraire un signal magnétique  $I_{mag}$  du canal SF à partir de l'Eq.4.15.

$$I_{mag} = |F_M|^2 = |F_N|^2 \left[ I_{norm} - \frac{1}{R(T_0)} \right] \quad (5.2)$$

$R(T_0)$  est une constante définie par la valeur moyenne des rapports de flipping autour de la température ambiante  $T_0=290\pm 10\text{K}$  pour les échantillons B-E. Pour l'échantillon A, on doit définir une température  $T_0$  plus haute car l'évolution thermique de  $I_{norm}$  indique encore un changement jusqu'à la température ambiante.  $I_{mag}$  est proportionnelle à l'intensité du pic de Bragg, on peut donc la mettre en unités absolues (mbarns) dans la mesure où l'on connaît le facteur de structure nucléaire. Afin de comparer tous les échantillons entre eux, il faut normaliser les intensités mesurées à un pic de Bragg commun. Les pics de Bragg (011) ou (101) (qui sont équivalents dans le cas des échantillons maclés) ne peuvent pas être utilisés pour différentes raisons. Tout d'abord, l'intensité nucléaire de ces pics de Bragg dépend fortement de la concentration en oxygène. Ensuite, il est difficile de comparer des échantillons maclés et démaclés car les deux types d'échantillons ont des facteurs de structure différents. Ainsi, on utilise la raie de Bragg (004) qui possède un facteur de structure nucléaire indépendant du dopage et du maclage. Le calcul du facteur de structure donne :  $|F_N|_{(004)}^2 = 7 \text{ barns}$ [223]. On réécrit alors le facteur de structure nucléaire de l'Eq. 5.2 comme :  $|F_N|_{(01L)}^2 = 7I_{NSF}(01L)/I_{NSF}(004)$ . Nous utilisons cette formule pour normaliser tous les échantillons.

On reporte sur la Fig.5.3.a) l'intensité magnétique pour  $\mathbf{P} // \mathbf{Q}$  déduite de l' Eq. 5.2 pour les échantillons A à E. On observe seulement une contribution magnétique sur le pic de Bragg (011) pour les échantillons sous-dopés. L'amplitude de l'effet diminue à mesure que le dopage augmente. Le signal a disparu dans la phase surdopée pour l'échantillon (E) où  $I_{norm}$  est constante avec la température dans les barres d'erreurs : c'est le comportement attendu pour un système non-magnétique. Le fait que l'on observe une diminution de l'intensité avec le dopage et aucun signal dans l'échantillon surdopé qui présente la même structure cristallographique que les échantillons sous-dopés suggère que l'effet observé est une spécificité de la phase sous-dopée.

### Evolution en température du rapport de flipping

La principale difficulté expérimentale est l'instabilité du rapport de flipping en fonction de la température en absence de magnétisme. La stabilité du rapport de flipping est essentielle pour s'assurer que les lignes de bases des Fig.5.3 sont constantes avec une bonne précision. Le principal problème vient du fait que l'image de l'échantillon se déplace légèrement sur l'analyseur de Heusler quand la température change en raison de la variation thermique des paramètres cristallins. A cause des hétérogénéités de la polarisation sur l'analyseur de Heusler, le rapport de flipping pourrait changer. Afin de minimiser cet effet, nous travaillons à  $k_f=2.662\text{\AA}^{-1}$ , c'est-à-dire une mauvaise résolution en  $\mathbf{q}$  pour de la diffraction. Néanmoins, on peut se demander si l'évolution en température des paramètres cristallins peut produire l'effet observé.

Afin de répondre à cette question, nous avons étudié l'évolution des paramètres cristallins en fonction de la température de  $T=10\text{K}$  à  $T=300\text{K}$ . A chaque température, on a déterminé les paramètres cristallins. Cette variation est reportée sur la Fig.5.4.a) et ajustée par une dépendance linéaire en température. Entre 10K et 300K, les variations relatives des axes b et c sont égales :  $\frac{\Delta b}{b} = \frac{\Delta c}{c} = 0.5\%$ . On ne discutera dans un premier temps que l'axe c. Cette variation relative de paramètre est équivalente dans l'espace réciproque à un déplacement de l'image de :  $\Delta L = 0.05\%$  pour  $L=1$ .

Intéressons nous maintenant à la variation du rapport de flipping le long de la direction (0,1,L). Comme on peut le voir sur la Fig.5.4.b), il y a de fortes variations en fonction de L. Autour de  $L=1$ , la variation maximale déduite est :  $\frac{\Delta FR}{\Delta L} = \frac{52.5-40}{0.05} = 250$ . Ainsi, la variation du rapport de flipping associée au changement de paramètres le long de l'axe c est de :  $250 * 0.0005 = 0.12$ . Dans la mesure où la variation relative de l'axe c est la même que celle de b, on suppose que la variation du rapport de flipping associé au changement de paramètre le long de l'axe b est du même ordre de grandeur : 0.12. A priori, ces deux effets ne vont pas dans le même sens. On en déduit donc que la variation en température des paramètres cristallins peut induire au *maximum* une variation du rapport de flipping de l'ordre de 0.3. A titre d'exemple dans le cas de l'échantillon (B), cette variation représente 10% de la variation du rapport de flipping que nous observons, elle est en fait

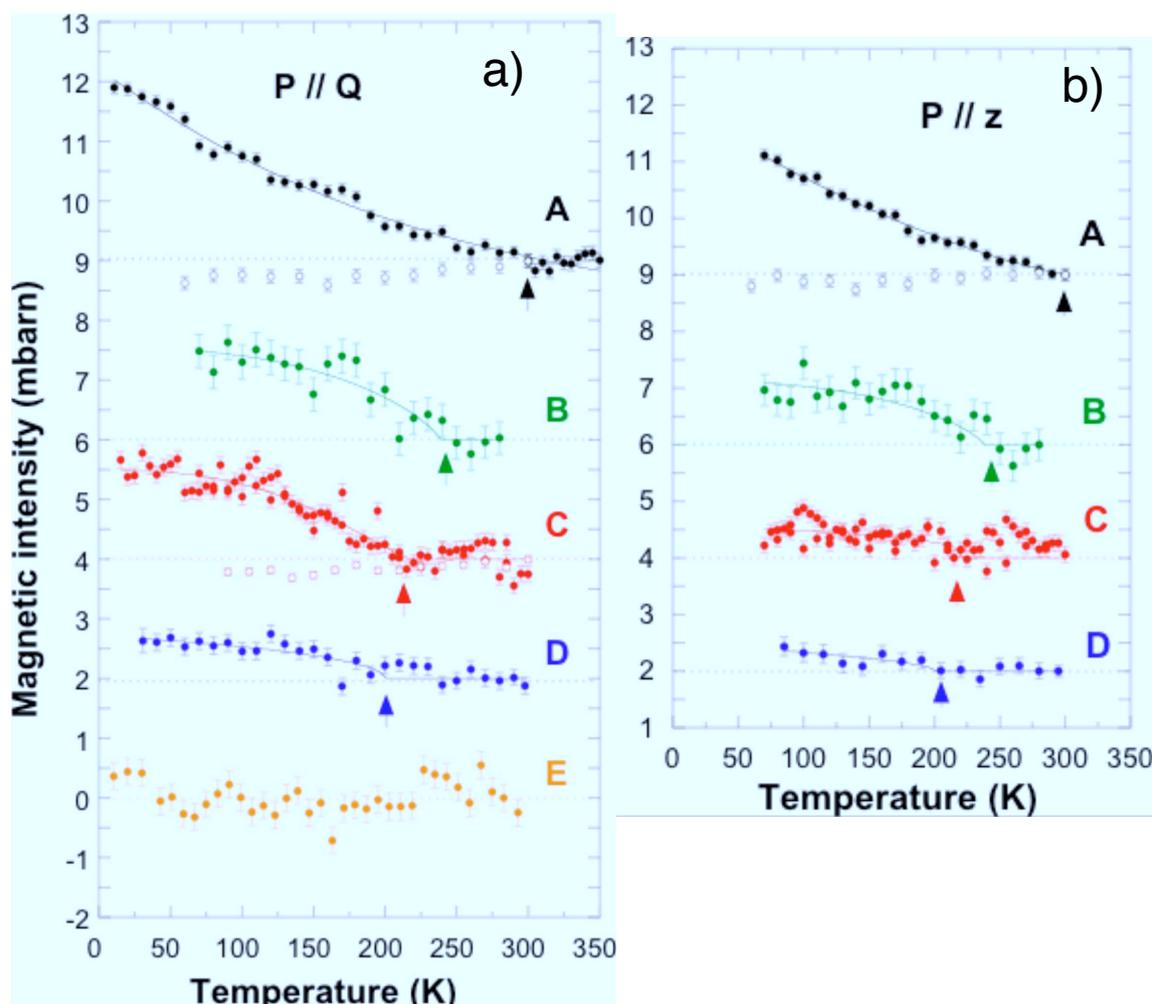


FIG. 5.3: a) Dépendance en température de l'intensité magnétique normalisée,  $I_{mag}$ , mesurée sur la raie (0,1,1) pour la polarisation P//Q pour les quatre échantillons sous-dopés (A,B,C,D) et pour l'échantillon surdopé E (points pleins).  $I_{mag}$  est définie dans l'Eq.5.2.  $I_{mag}$  est exprimée en mbarns grâce à la calibration de la raie (0,0,4) ( $I_{004}=7$  barns) qui ne dépend pas du dopage. La ligne correspond à l'ajustement réalisé avec la fonction :  $I_{mag}(T) = (1 - (\frac{T}{T_{mag}})^\alpha)^\beta$  pour  $T < T_{mag}$ . L'intensité magnétique est aussi présentée pour la raie (0,0,2) pour les échantillons (A) et (C) (points ouverts). b) Dépendance en température de l'intensité magnétique normalisée,  $I_{mag}$ , mesurée sur la raie (0,1,1) pour la polarisation P//z pour les quatre échantillons sous-dopés (A,B,C,D). L'ajustement réalisé est le même qu'en a). L'intensité magnétique est aussi présentée pour la raie (0,0,2) pour l'échantillon (A) (points ouverts).

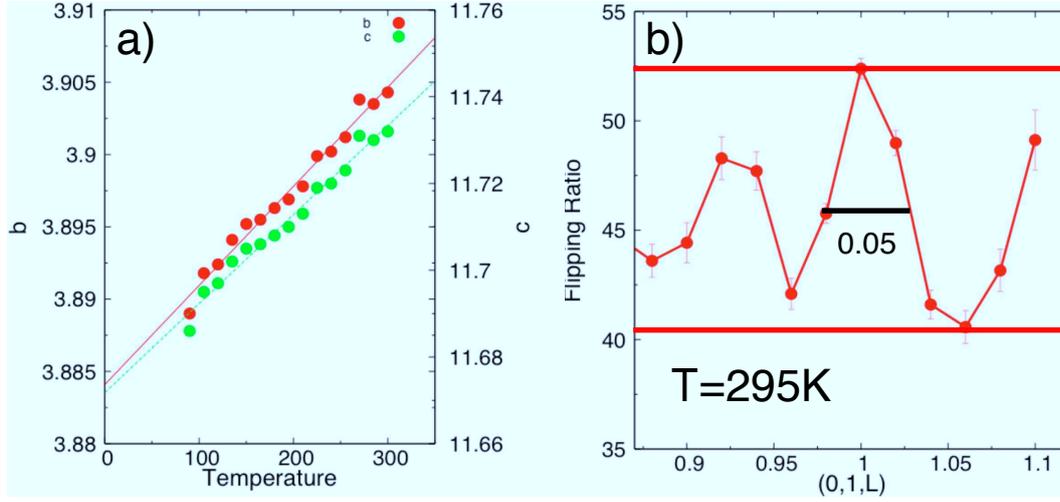


FIG. 5.4: a) Evolution du paramètre cristallin  $c$  en fonction de la température à  $k_i=2.662\text{\AA}^{-1}$   
 b) Evolution du rapport de flipping le long de la direction  $(0, 1, L)$  à  $T=295\text{K}$  pour l'échantillon A.

du même ordre de grandeur que notre barre d'erreur statistique.

Ceci signifie que la ligne de base de  $I_{norm}$  possède en fait une faible variation en fonction de la température :  $1/R(T) = \frac{1}{R(T_0)+\delta T} = \frac{1}{R(T_0)}(1 - \delta T)$  avec  $1/R(T_0) \simeq 1/40 = 0.025$  et  $\delta = \pm 0.013$ . Le signe de  $\delta$  est contrôlé par la valeur de la pente du rapport de flipping prise en  $L=1$ . Comme on peut le voir sur la 5.4.b), le maximum du rapport de flipping ne correspond pas toujours au maximum d'intensité du pic de Bragg en  $L=1$ . On conclut ainsi que l'effet en température de la variation des paramètres cristallins est faible par rapport à l'effet observé, elle ne peut pas à elle seule expliquer la variation du rapport de flipping observée.

### 5.2.2 Analyse complète de la polarisation

Pour confirmer la nature magnétique du signal observé dans le canal SF, on étudie la dépendance du signal avec la polarisation du neutron. Pour cela, nous avons réalisé des mesures supplémentaires le long des directions complémentaires à la direction  $\mathbf{P} // \mathbf{Q}$ , à savoir  $\mathbf{P} // \mathbf{z}$  (direction verticale) et  $\mathbf{P} // \mathbf{q}_\perp$  (direction orthogonale à  $\mathbf{Q}$  et appartenant au plan de diffusion).

En l'absence de chiralité, les intensités pour les différentes polarisations doivent suivre la règle de somme des polarisations Eq.4.11. Pour chacune de ces polarisations, nous avons réalisé un suivi en température pour l'échantillon (B) sur la raie (011).

Nous reportons sur la Fig.5.5 l'intensité magnétique déduite des mesures pour les trois polarisations. Pour chacun des trois canaux, on ajuste l'intensité magnétique déduite de nos mesures par une équation de la forme :  $I_{mag}(1 - (\frac{T}{T_{mag}})^\alpha)^\beta + I_{bg}$ . On reporte sur la Fig.5.5.a) et b) deux types d'ajustement qu'il est possible de réaliser. On reporte dans le Tab.5.1 les paramètres d'ajustement de la Fig.5.5.a) et b).

Dans le premier cas, on impose  $I_{bg}=0$  et les mêmes paramètres  $\alpha$  et  $\beta$  pour chacune des polarisations. On déduit alors pour chacune des polarisations une intensité magnétique avec :  $I_{mag}(\mathbf{P} // \mathbf{Q}) > \mathbf{I}_{mag}(\mathbf{P} // \mathbf{z}) > \mathbf{I}_{mag}(\mathbf{P} \perp \mathbf{Q})$ . Dans le deuxième cas, on impose seulement les mêmes paramètres  $\alpha$  et  $\beta$  pour chacune des polarisations. Dans le cas de la polarisation  $\mathbf{P} // \mathbf{z}$ ,  $I_{bg} < 0$  ce qui revient à modifier uniquement  $1/R(T_0)$  dans l'Eq.5.2. On déduit alors pour chacune des polarisations une intensité magnétique avec :  $I_{mag}(\mathbf{P} // \mathbf{Q}) \approx \mathbf{I}_{mag}(\mathbf{P} // \mathbf{z})$  et  $I_{mag}(\mathbf{P} \perp \mathbf{Q})=0$ . Quel que soit l'ajustement réalisé (cf. Tab.5.1), la règle de somme des

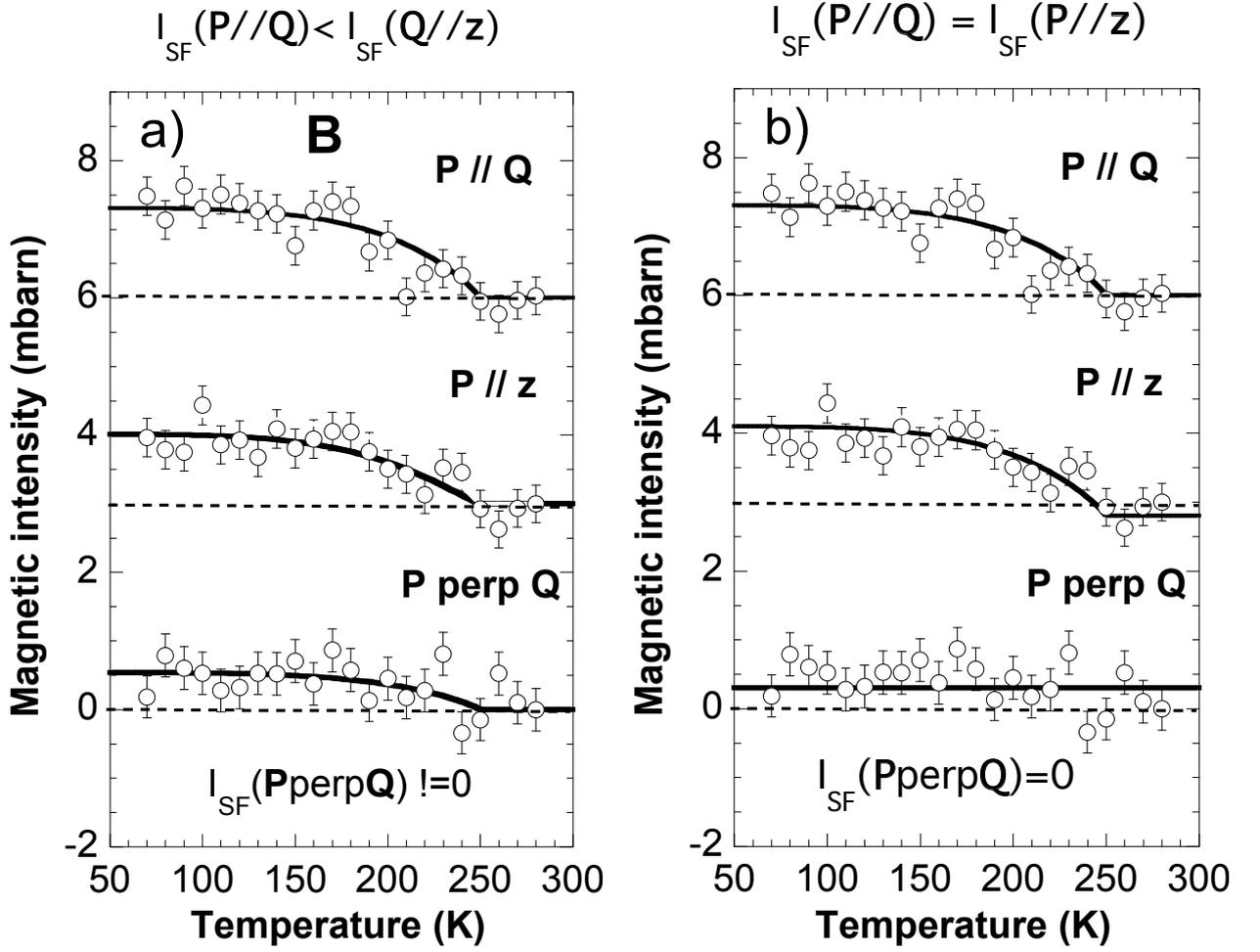


FIG. 5.5: Dépendance en température de l'intensité magnétique mesurée sur le pic de Bragg (0,1,1) de l'échantillon (B) pour trois polarisations différentes des neutrons : P//Q , P//z et P//q $_{\perp}$ . La ligne noire correspond à l'ajustement de chacun des canaux par la fonction :  $I_{mag}(T) = (1 - (\frac{T}{T_{mag}})^{\alpha})^{\beta}$ , les paramètres  $\alpha, \beta$  et  $T_{mag}$  sont les mêmes pour les trois canaux. La ligne rouge correspond au cas où le moment serait purement le long de l'axe c.

Ajustement	$I_{mag}(P//Q)(I_{bg})$ (mbarns)	$I_{mag}(P//z)$ (mbarns)	$I_{mag}(P \perp Q)$ (mbarns)	$T_{mag}$	$\alpha$	$\beta$
1	$1.31 \pm 0.07$ (0)	$1.01 \pm 0.07$ (0)	$0.53 \pm 0.09$ (0)	250	4.7	0.9
2	$1.31 \pm 0.07$ (0)	$1.3 \pm 0.07$ (-0.25)	0 (0.3)	250	4.7	0.9

TAB. 5.1: Paramètres d'ajustement utilisés pour les Fig.5.5.a) et b) : pour chacun des ajustements ont reporté l'intensité déduite pour chacune des polarisations, ainsi que  $T_{mag}$ ,  $\alpha$  et  $\beta$ .

polarisations (Eq.4.11) est satisfaite dans la barre d'erreur, démontrant ainsi l'origine magnétique du signal. Ce double ajustement met également en avant le fait que la description précise de l'ordre magnétique est assez sensible à la détermination du terme  $R(T_0)$  dans l'Eq.5.2, ou autrement dit à la position du bruit de fond pour chacune des polarisations sur la Fig.5.5.a) et b).

Afin de mieux comprendre la nature de cet ordre, nous avons aussi étudié la polarisation  $\mathbf{P} // \mathbf{z}$  pour les autres échantillons. Les intensités magnétiques déduites pour les échantillons (A),(C) et (D) sont reportées sur la Fig.5.3.b). Dans le cas des échantillons maclés (A) et (D), on se trouve plutôt dans la cas de figure où  $I_{mag}(\mathbf{P} // \mathbf{Q}) \approx \mathbf{I}_{mag}(\mathbf{P} // \mathbf{z})$  (c'est-à-dire Fig.5.5.b)) alors que pour l'échantillon démaclé (C), on se trouve dans le cas  $I_{mag}(\mathbf{P} // \mathbf{Q}) > \mathbf{I}_{mag}(\mathbf{P} // \mathbf{z})$  (c'est-à-dire Fig.5.5.a)). Dans tous les cas, l'intensité observée est plus faible ou égale à celle observée pour la polarisation  $\mathbf{P} // \mathbf{Q}$ , en accord avec Eq.4.11. De plus, la  $T_{mag}$  déduite est en accord avec la polarisation  $\mathbf{P} // \mathbf{Q}$ . Nous proposons de continuer cette discussion dans le cadre de la phase  $CC - \theta_{II}$ .

### Le cas de la phase $CC - \theta_{II}$

Dans le cas particulier du pic de Bragg (011), on a :  $\mathbf{Q}_\perp = (0, -1, 1)$  et  $\mathbf{z} = (1, 0, 0)$ . Le facteur de structure magnétique pour la phase  $CC - \theta_{II}$  pour les trois polarisations considérées est donné dans Tab.5.3. Dans l'équation Eq. A.4, il vient que  $J_y = 0$ , ainsi  $\mathbf{J}(q)$  n'a de composante que le long de  $\mathbf{e}_x \equiv \hat{\mathbf{z}}$  donc  $\mathbf{J}(\mathbf{Q})$  est le long de  $\mathbf{Q}_\perp$ , c'est-à-dire  $B_z = 0$ . Ceci est en fait équivalent à dire que le moment orbital est purement le long de l'axe  $c^*$ . Ainsi, aucune différence n'est attendue entre les intensités magnétiques des polarisations  $\mathbf{P} // \mathbf{z}$  et  $\mathbf{P} // \mathbf{Q}$ . C'est le cas sur la Fig.5.5.b).

L'intensité observée dans le canal  $\mathbf{P} // \mathbf{z}$  permet de conclure deux choses. Tout d'abord, l'intensité n'est pas nulle. Ceci signifie qu'il existe une composante du moment qui est perpendiculaire au plan  $\text{CuO}_2$ , ce que l'on attend dans la phase  $CC - \theta_{II}$ . Ceci n'a rien d'évident car l'ordre AF de spin  $S=1/2$  observé à plus faible dopage possède des moments orientés dans le plan  $\text{CuO}_2$ .

De plus, on voit que l'ajustement des intensités pour les différentes polarisations est important pour aborder l'origine de l'ordre magnétique responsable du signal magnétique. Dans l'état actuel des choses, nous proposons deux descriptions des données. Dans une première description, l'ensemble de nos mesures dans les échantillons (A), (B) et (D) est compatible avec  $I_{mag}(\mathbf{P} // \mathbf{Q}) \approx I_{mag}(\mathbf{P} // \mathbf{z})$  et  $I_{mag}(\mathbf{P} \perp \mathbf{Q}) = 0$ . C'est ce que on attendrait dans le cas de la phase  $CC - \theta_{II}$ . Cependant, cette description ne peut pas s'appliquer à l'échantillon (C) (démaclé).

Dans une deuxième description, l'ensemble de nos mesures dans les échantillons (A),(B), (C) et (D) est compatible avec  $I_{mag}(\mathbf{P} // \mathbf{Q}) > I_{mag}(\mathbf{P} // \mathbf{z}) > I_{mag}(\mathbf{P} \perp \mathbf{Q})$ . Dans ce cas, il y a moins d'intensité pour la polarisation  $\mathbf{P} // \mathbf{z}$  que pour  $\mathbf{P} // \mathbf{Q}$ . D'après la Fig.5.3, il semble que le rapport d'intensité entre ces deux polarisations change d'un échantillon à l'autre. Pour l'échantillon (A) et dans une moindre mesure pour les échantillons (B) et (D), il y a une faible différence. Pour l'échantillon C, cette différence semble être plus grande que pour les autres échantillons. Ici, il faut noter que l'apparente contradiction entre les résultats n'est pas nécessairement intrinsèque mais serait reliée aux difficultés expérimentales. En effet dans notre analyse, on suppose que la ligne de base de l'intensité magnétique est constante. Il se peut néanmoins qu'il existe une faible variation avec la température, cette variation peut être différente d'un canal à un autre.

Il y a alors deux possibilités : soit l'on considère l'échantillon (C) comme un cas particulier, le reste de nos résultats semble alors compatible avec la phase  $CC - \theta_{II}$ , soit tous nos résultats sont décrits de la même façon en considérant que :  $I_{mag}(\mathbf{P} // \mathbf{Q}) > I_{mag}(\mathbf{P} // \mathbf{z}) > I_{mag}(\mathbf{P} \perp \mathbf{Q})$ . Dans la mesure où il n'y a priori pas de raison de différencier l'échantillon (C) dans la théorie de C.Varma, nous considérerons que la deuxième description est la plus adaptée à nos mesures.

Polarisation	$I_{NSF}$	$I_{SF}$
$\mathbf{P} // \hat{\mathbf{q}}$	$ F_N ^2$	$\frac{r_0^2}{4}  B_\perp ^2$
$\mathbf{P} // \hat{\mathbf{z}}$	$ F_N ^2$	$\frac{r_0^2}{4}  B_\perp ^2$
$\mathbf{P} // \hat{\mathbf{q}}_\perp$	$ F_N ^2 + \frac{r_0^2}{4}  B_\perp ^2$	0

TAB. 5.2: Intensité neutron attendue dans le cas de la phase  $CC - \theta_{II}$  pour les trois polarisations du neutron :  $\mathbf{P} // \hat{\mathbf{q}}$ ,  $\mathbf{P} // \hat{\mathbf{z}}$  et  $\mathbf{P} // \hat{\mathbf{q}}_\perp$  dans les canaux NSF et SF dans le plan de diffusion (0KL).  $B_\perp$  est donné par l'Eq. ??.

Polarisation	$I_{NSF}$	$I_{SF}$ (démaclé)	$I_{SF}$ (maclé)
$\mathbf{P} // \mathbf{Q}$	$ F_N ^2$	$\frac{r_0^2}{4} \alpha^2 (M_a^2 + \kappa_b^2 M_c^2 + \kappa_c^2 M_b^2)$	$\frac{r_0^2}{4} \alpha^2 [(1 + \kappa_c^2) M_{//}^2 + \kappa_b^2 M_c^2]$
$\mathbf{P} // \mathbf{z}$	$ F_N ^2 + \frac{r_0^2}{4} \alpha^2 M_a^2$	$\frac{r_0^2}{4} \alpha^2 (\kappa_b^2 M_c^2 + \kappa_c^2 M_b^2)$	$\frac{r_0^2}{4} \alpha^2 [\kappa_c^2 M_{//}^2 + \kappa_b^2 M_c^2]$
$\mathbf{P} // \mathbf{Q}_\perp$	$ F_N ^2 + \frac{r_0^2}{4} \alpha^2 (\kappa_b^2 M_c^2 + \kappa_c^2 M_b^2)$	$\frac{r_0^2}{4} \alpha^2 M_a^2$	$\frac{r_0^2}{4} \alpha^2 M_{//}^2$

TAB. 5.3: Intensités NSF et SF (pour un échantillon démaclé et maclé) mesurées pour chacune des polarisations étudiées ( $\mathbf{P} // \mathbf{Q}$ ,  $\mathbf{P} // \mathbf{z}$  et  $\mathbf{P} // \mathbf{Q}_\perp$ ) dans le cas d'une structure magnétique colinéaire  $\mathbf{M} = (M_a, M_b, M_c)$  pour un échantillon démaclé. On introduit trois paramètres :  $\kappa_b = \frac{K}{\sqrt{K^2 + (aL/c)^2}}$ ,  $\kappa_c = \frac{L}{\sqrt{(c/aK)^2 + K^2}}$  et  $M_{//}^2 = (M_a^2 + M_b^2)/2$  pour les échantillons maclés.

### Orientation des moments

Afin d'être un peu plus précis quant à l'existence d'une contribution planaire, nous proposons ici une modélisation en termes de moment de l'ordre magnétique mesuré. Ceci nous permettra de déterminer la direction des moments et de quantifier le rapport entre la composante planaire et la composante le long de l'axe  $c^*$ . Pour la modélisation, on considère une distribution quelconque de moments colinéaires. L'Eq.4.4 peut être réécrite en partant de :  $\mathbf{B}(\mathbf{Q}) = \alpha(\mathbf{Q} \wedge \mathbf{M} \wedge \mathbf{Q})$  où  $\alpha$  contient le facteur de structure. Partant d'un moment  $\mathbf{M} = (\pm M_a, \pm M_b, M_c)$ , on reporte dans le Tab.5.3 les intensités SF et NSF pour les trois polarisations étudiées dans le plan de diffusion (0,K,L) pour un échantillon démaclé. Dans le cas des échantillons maclés, l'intensité SF (respectivement NSF) est donnée par la moyenne entre les intensités SF (NSF) dans les deux plans de diffusion : (H,0,L) et (0,K,L). L'intensité SF en (H,0,L) est simplement obtenue en échangeant K et H et en échangeant  $M_a$  et  $M_b$  dans les relations du Tab.5.3. Rappelons que  $\kappa_a = \frac{H}{\sqrt{H^2 + (aL/c)^2}} \simeq \kappa_b^1$ , les intensités SF dans les échantillons maclés sont données dans 5.4 où  $M_{//}^2 = (M_a^2 + M_b^2)/2$  est la moyenne des composantes planaires, on donne l'intensité SF dans le cas des échantillons maclés pour les trois polarisations étudiées dans Tab.5.2. Suivant notre étude dans l'échantillon démaclé pour  $\mathbf{P} // \mathbf{Q}$ , il n'y a pas de différence entre les intensités magnétiques en (101) et (011). Ceci permet de conclure que :  $M_a \simeq M_b \equiv M_{//}$ . On introduit l'angle  $\theta$  entre l'axe  $c$  et le moment  $\mathbf{M}$  (voir Fig.5.6),  $\theta$  est donné par  $\tan(\theta) = \sqrt{2} \frac{M_{//}}{M_c}$ . Dans les échantillons démaclés, on suppose de plus que  $M_a = M_b$ .

Partant de Tab.5.2, Tab.5.3 et des mesures reportées sur les figures Fig.5.3, et Fig.5.5, on peut calculer pour chaque échantillon la direction du moment. On reporte ainsi dans Tab.5.4 la valeur de  $\theta$  et de son erreur  $\Delta\theta$  pour chacun des échantillons d'après la mesure sur la raie (011). L'erreur est déterminée d'après les barres d'erreur statistiques plus la variation de la ligne de base avec la température d'environ 10%. Comme on l'a

<sup>1</sup>  $\kappa_b^2 = \frac{9}{10}, \kappa_c^2 = \frac{1}{10}$  pour (0,1,1)

Sample	A	B	C	D
$M_{//}$	$0.5 \pm 0.5$	$0.6 \pm 0.5$	$0.9 \pm 0.2$	$0.5 \pm 0.5$
$M_c$	$1.4 \pm 0.6$	$1.03 \pm 0.5$	$0.7 \pm 0.2$	$0.7 \pm 0.5$
$\theta$	24	41	61.5	44.2
$\Delta\theta$	33	35	15	48

TAB. 5.4: Composante planaire du moment magnétique  $M_{//}$ , composante parallèle à l'axe c ( $M = \sqrt{2M_{//}^2 + M_c^2} = 1$ ) en unités arbitraires et  $\theta$  l'angle entre l'axe c et M pour chacun des échantillons étudiés

écrit [224],  $\theta$  est compris dans l'intervalle  $45^\circ \pm 20^\circ$  pour tous les échantillons.

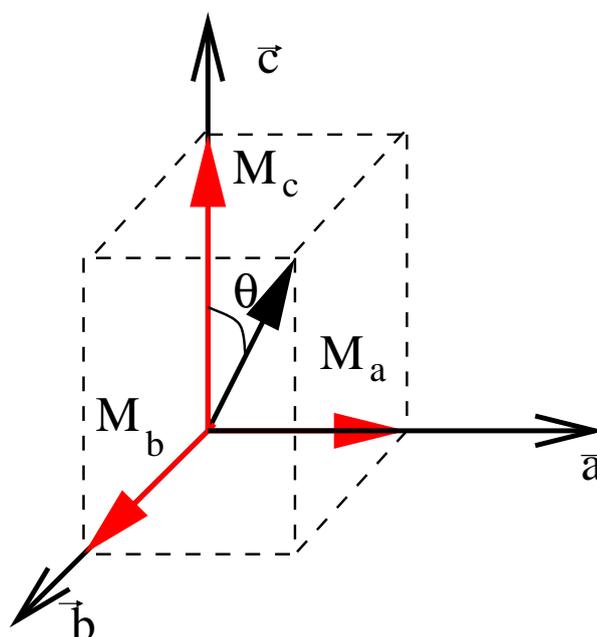


FIG. 5.6: Schéma représentant l'orientation du moment M. L'angle  $\theta$  correspond à l'angle entre le moment M et l'axe cristallographique c. Dans le cas de la phase  $CC - \theta_{II}$ , on attend  $\theta = 0^\circ$

### 5.2.3 Autres pics de Bragg

Après avoir étudié la raie de Bragg (011), nous avons étudié d'autres pics de Bragg. Le rapport entre le signal magnétique et le signal nucléaire étant très faible, l'étude ne peut se faire que sur des pics de Bragg nucléaires faibles.

#### Couplage dans le biplan : étude des raies (01L)

Il est facile d'étudier les raies (0,1,L) dans le plan de diffusion (0,K,L). L'intérêt de l'étude de ces raies est double : elle permet tout d'abord de voir si le signal magnétique est aussi présent sur d'autres raies. Cette

étude révèle aussi la modulation de l'ordre magnétique le long de l'axe  $c$ , qui doit en principe permettre de remonter aux paramètres  $\beta(L)$  du facteur de structure. Ainsi dans le but de remonter à  $\beta(L)$ , nous avons entrepris l'étude des raies  $(0,1,L)$  pour  $L=0$ ,  $L=1$  et  $L=2$ . Nous reportons le résultat de nos mesures dans l'échantillon (A) pour la polarisation  $\mathbf{P} // \mathbf{Q}$  sur la Fig.5.7. La mesure a été réalisée sur l'échantillon A car cet échantillon présente le signal magnétique en  $(011)$  le plus intense. Nous reportons sur la Fig. 5.7 a), b) et c) l'intensité magnétique déduite d'après l'Eq.5.2 sur les trois pics de Bragg étudiés. On représente ensuite sur la Fig. 5.7 e) l'intensité magnétique déduite à  $T=75K$  en fonction de  $L$ . Cette intensité varie énormément en fonction de la raie de Bragg étudiée puisqu'elle passe de 6 mbarns en  $L=0$  à environ 0.2 mbarns en  $L=2$ . Cette modulation est intéressante car elle prouve que le signal mesuré ne vient pas des chaînes. En effet dans ce cas, il n'y aurait aucune modulation de l'intensité le long de  $L$ , l'intensité serait donc constante quelle que soit la valeur de  $L$  (ligne en pointillés sur la Fig.5.7 d)). Au contraire, une modulation de la forme  $\beta(L) = 2 \cos(\pi z L)$  décrit bien les données. Ceci correspond à un arrangement des moments de type ferromagnétique dans le bi-plan. Nous reportons sur la Fig.5.7.e) l'arrangement déduit de nos mesures dans le cas de figure de la phase  $CC - \theta_{II}$ .

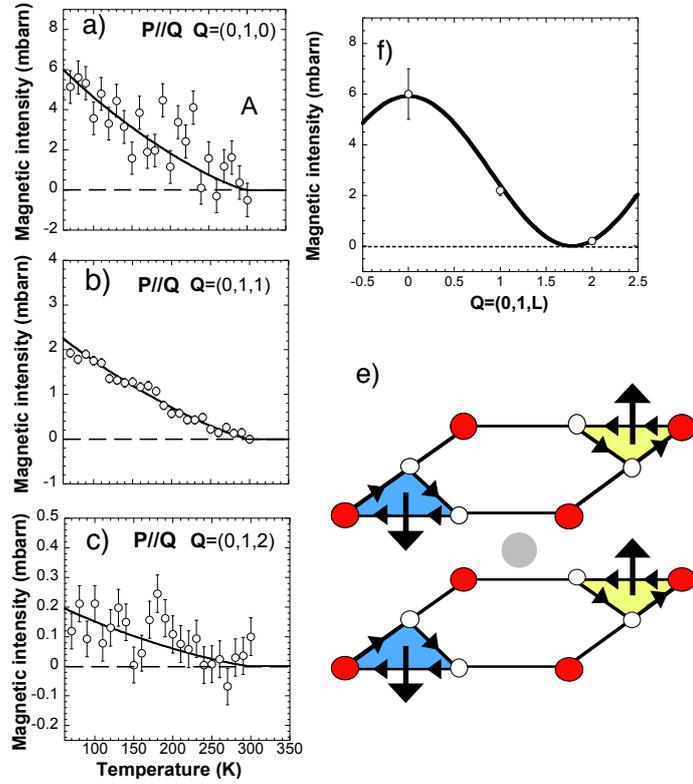


FIG. 5.7: Etude de la modulation le long de l'axe  $c$  de l'ordre magnétique. Dépendance en température de l'intensité magnétique mesurée sur les raies  $(0,1,L)$ ,  $L=0$  a),  $L=1$  b) et  $L=2$  c). d) Intensité magnétique à  $T=75K$  le long de la direction  $(0,1,L)$ . L'ajustement est réalisé par une fonction de la forme  $\cos(\pi z L)$ , compatible avec un arrangement de type ferromagnétique dans le biplan. e) Schéma de l'arrangement de l'ordre magnétique dans le biplan  $CuO_2$  dans le cas de la phase  $CC - \theta_{II}$  déduit de nos mesures.

### Cas des pics de Bragg $H=K=0$ : étude de la raie (0,0,2)

Nous nous sommes ensuite intéressés aux pics de Bragg de la forme  $H=K=0$ . Ces pics de Bragg sont particulièrement intéressants car, comme on la vu, il ne devrait y avoir en principe aucun signal magnétique dans le cas de la phase  $CC - \theta_{II}$ . Encore une fois, la valeur de  $L$  est imposée par la valeur du pic de Bragg nucléaire la plus faible en  $L=2$ . On reporte sur la Fig.5.3.a) et b) l'intensité magnétique normalisée en fonction de la température pour les deux échantillons A et C pour les deux polarisations  $\mathbf{P} // \mathbf{Q}$  et  $\mathbf{P} // \mathbf{z}$ . Dans la barre d'erreur, aucun signal magnétique ne peut être déduit de ces suivis en température. La faible dépendance en température observée est compatible avec l'évolution du rapport de flipping avec la température en l'absence de magnétisme comme nous l'avons expliqué dans la partie 5.2.1. Cette mesure est importante car elle démontre que l'effet observé dépend de  $\mathbf{Q}$ . En particulier, en présence d'une impureté ou d'une phase ferromagnétique dans l'échantillon, on s'attendrait à observer une dépolarisation du faisceau sur tous les pics de Bragg. Cette mesure élimine la possibilité que la composante planaire soit de type ferromagnétique. Cependant, on ne peut exclure un moment ferromagnétique purement le long de l'axe  $c^*$ .

En conclusion, bien que le signal magnétique mesuré apparaisse sur un pic de Bragg nucléaire et que le couplage dans le biplan soit de type ferromagnétique, le signal mesuré ne peut pas se réduire à une structure ferromagnétique simple car aucun signal n'a été mesuré sur le pic de Bragg (0,0,2).

#### 5.2.4 Evolution de la contribution magnétique au-dessous de $T_c$

Notre étude a été principalement réalisée dans l'état normal, c'est-à-dire au-dessus de 70K. Nous nous sommes en fait particulièrement concentrés sur la gamme de température dans laquelle la phase de pseudogap est présente, typiquement entre 100K et 300K. Dans la mesure où il est techniquement possible d'aller jusqu'à 10K, nous avons aussi réalisé quelques mesures dans l'état supraconducteur.

Comme on peut le voir sur la Fig. 5.3, il n'y a pas de changement à travers  $T_c$  pour les échantillons (A) et (C). Dans une approche où la phase de pseudogap est vue comme un ordre en compétition avec la supraconductivité, on aurait attendu une diminution de l'intensité SF à travers  $T_c$  (c'est-à-dire une augmentation du rapport de flipping). Cependant, la situation n'est pas aussi simple. Comme on la vu dans le Chap.2, il y a toujours un champ magnétique de l'ordre de 10G sur l'échantillon lorsque la polarisation est contrôlée grâce aux bobines de Helmutz. Ainsi lorsque l'on refroidit à travers  $T_c$  sous champ, il peut y avoir des lignes de flux de champ magnétique piégées entre les différents grains de l'échantillon. Ces lignes de flux peuvent dépolariser le faisceau. Lors de notre mesure, l'échantillon n'a pas été tourné, ce qui limite l'effet de dépolarisation, mais il ici est difficile d'éliminer toute possibilité d'erreur. Ainsi, on ne peut pas exclure que ces lignes de champs magnétique dépolarisent le faisceau, augmentant ainsi la diffusion dans le canal SF (et diminuant le rapport de flipping). Cet effet pourrait compenser la diminution de l'intensité dans le canal SF associée à l'entrée dans la phase supraconductrice.

Une façon de résoudre ce problème est de réaliser l'analyse de polarisation sans champ magnétique sur l'échantillon, ce qui est seulement possible avec CRYOPAD[148]. Ainsi, afin d'étudier l'évolution du rapport de flipping à travers  $T_c$ , nous avons réalisé une expérience sur l'échantillon (B) sur le spectromètre IN22 en configuration CRYOPAD à une longueur d'onde  $k_f = 2.662 \text{ \AA}$ . L'échantillon est aligné dans le plan (100)/(001). Nous discutons dans un premier temps les résultats obtenus pour  $T > T_c$  puis pour  $T < T_c$ .

La principale difficulté de nos mesure réside dans le fait que l'intensité magnétique est 1200 fois plus faible que l'intensité nucléaire (pour l'échantillon (B)). Ainsi, même en utilisant un faisceau de neutrons polarisés, on observe dans le canal SF une contribution non magnétique liée à la fuite de polarisation du canal NSF vers le canal SF, cette contribution est égale à  $I_{NSF}/R$ . Avec un  $R$  de 60 (comme sur 4F1 pour l'échantillon (B)), le signal magnétique représente 5% de cette fuite de polarisation, on observe alors une variation du rapport de flipping de 3. Sur IN22, le rapport de flipping typique mesuré sur la raie (101) est 17,

on s'attend donc à une variation du rapport de flipping de 0.3 entre haute et basse température sur la raie (011). Tout comme dans l'étude reportée dans la partie 5.2.2, nous avons réalisé une étude en température du rapport de flipping pour les trois polarisations longitudinales. Bien que le contrôle de la polarisation des neutrons incident et réfléchi soit beaucoup plus précis qu'avec des bobines de Helmutz, les valeurs du rapport de flipping le long des trois directions longitudinales (notées  $P_{xx}$ , qui correspond à  $\mathbf{P} // \mathbf{Q}$ ,  $P_{yy}$ , qui correspond à  $\mathbf{P} \perp \mathbf{Q}$  et  $P_{zz}$ , qui correspond à  $\mathbf{P} // \mathbf{z}$ ) ne sont pas égales (à la précision de notre mesure). En d'autres termes, la fuite de polarisation est différente pour chacune des polarisations <sup>2</sup>. Ainsi, même avec le meilleur instrument de neutrons polarisés disponible, il n'est pas possible de comparer directement les intensités SF pour les trois polarisations pour une température donnée. Comme dans le cas de l'expérience sur 4F1, nous avons donc réalisé des suivis en température pour différentes polarisations afin de déterminer l'amplitude de l'intensité magnétique pour chacune des polarisations. On reporte sur la Fig.5.8 l'intensité magnétique déduite des suivis en température de la raie de Bragg (011) pour les trois polarisations  $P_{xx}$ ,  $P_{yy}$  et  $P_{zz}$  mesurées sur IN22. A titre de comparaison, on reporte également le résultat des mesures de la même expérience sur le spectromètre 4F1. A temps de comptage égal, l'intensité magnétique trouvée sur IN22 est quatre fois supérieure à celle mesurée sur 4F1. Il s'agit exactement du même rapport entre les intensités du pic de Bragg nucléaire (011) mesurées sur IN22 et sur 4F1. De plus, comme dans le cas des mesures sur 4F1, il semble que l'intensité magnétique soit compatible avec la règle de somme magnétique Eq.4.11. Une meilleure statistique serait en fait nécessaire pour vraiment la confirmer.

Intéressons nous maintenant à l'évolution du signal magnétique pour  $T < T_c$ . Par construction, la chambre échantillon n'est soumise à aucun champ, on peut donc étudier l'évolution de l'intensité magnétique à travers  $T_c$  sans craindre un effet de dépolarisation lié au piégeage de lignes de champ. Comme on peut le voir sur la Fig.5.8.a) en points rouges, l'intensité magnétique semble diminuer pour  $T < T_c$  pour la polarisation  $P_{xx}$ . Pour confirmer cette évolution, nous avons réalisé une seconde étude de 100K à 2K par pas de 5K avec une bonne statistique (deux heures par point) pour les deux polarisations  $P_{xx}$  et  $P_{zz}$ . Nous reportons les résultats sur la Fig.5.8.a) et c). Contrairement à la première étude, il semble qu'il n'y ait pas de changement de l'intensité magnétique à la précision de la mesure. L'effet observé sur la Fig.5.8.a) pour  $T < T_c$  est probablement dû à un effet statistique. A la précision de la mesure (contrôlée par la valeur du rapport de flipping), cette étude permet de montrer que l'intensité magnétique ne change pas à moins de 30% pour les polarisations  $P_{xx}$ ,  $P_{zz}$ .

Lors de cette étude nous nous sommes également intéressés à d'autres pics de Bragg. Nous avons aussi étudié les raies (002) et (202) pour la polarisation  $P_{xx}$  (c'est-à-dire  $\mathbf{P} // \mathbf{Q}$  : tout le magnétisme est dans le canal SF). Dans les deux cas, aucun signal magnétique n'a été reporté. Pour la raie (002), cette mesure confirme notre premier résultat discuté dans la partie 5.2.3. La raie (202) quant à elle ne présente pas de signal en accord avec la modulation en forme de cosinus.

### 5.2.5 Longueur de corrélation

Un autre point essentiel concerne les longueurs de corrélation de l'ordre magnétique observé. Il faut pour cela déterminer la dépendance en  $Q$  de l'intensité magnétique qui se trouve au même endroit que le pic de Bragg nucléaire. Cette expérience est très difficile car le bruit de fond d'origine nucléaire varie énormément lorsque l'on se déplace en  $Q$ . La seule façon de déterminer le magnétisme est encore une fois de faire la différence entre la mesure au-dessus de  $T_c$  (75K) et la mesure à la température ambiante pour la polarisation  $\mathbf{P} // \mathbf{Q}$ . Il est particulièrement difficile de contrôler la variation du rapport de flipping pour tous les vecteurs d'onde étudiés. De ce point de vue, cette mesure est plus délicate que celles présentées jusqu'à maintenant. Nous avons étudié l'échantillon (A), qui présente le rapport de flipping le plus homogène en fonction de  $Q$ . Nous avons réalisé une coupe le long des directions (0,1,L) au-dessus et très au-dessous de  $T_{mag}$ . Nous avons

<sup>2</sup>en termes de polarisation, notée  $P$ , ce qui signifie que l'incertitude sur  $\Delta P = 2P_{xx} - (P_{yy} + P_{zz})$  est de l'ordre de  $5.10^{-3}$  alors que notre mesure requiert une précision de l'ordre de  $2.10^{-3}$

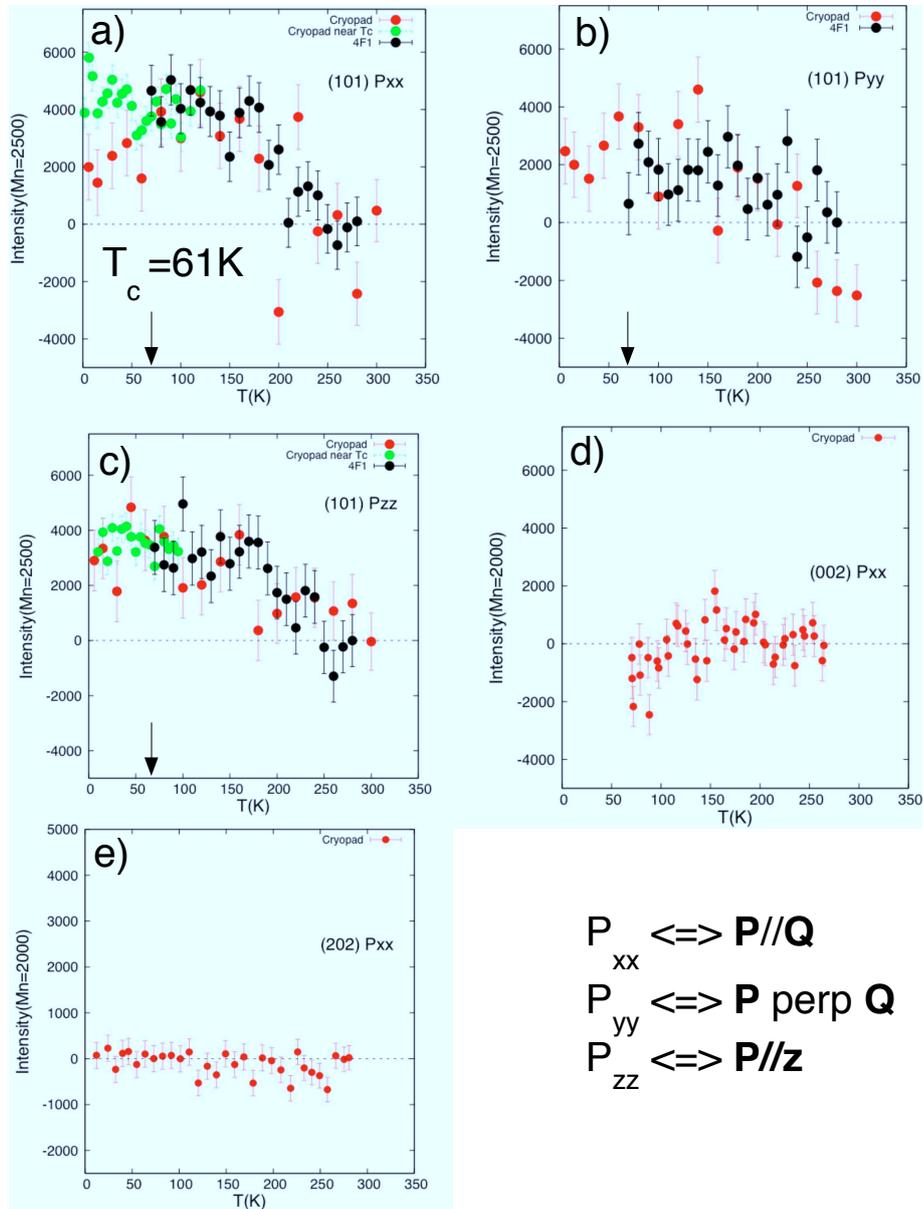


FIG. 5.8: Intensité magnétique déduite sur la raie (101) mesurée sur IN22 en configuration CRYOPAD pour différentes polarisations : a)  $P_{xx}$  ( $P//Q$ ), b)  $P_{yy}$  ( $P//Q_{\perp}$ ) et c)  $P_{zz}$  ( $P//z$ ). d) Intensité magnétique mesurée sur la raie (0,0,2) pour la polarisation  $P_{xx}$  ( $P//Q$ ). e) Intensité magnétique mesurée sur la raie (2,0,2) pour la polarisation  $P_{xx}$

## 5 Étude de la phase de pseudogap du composé $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ par diffraction de neutrons polarisés (DNP)

reporté la différence  $\frac{I_{NSF}(75K)}{I_{NSF}(275K)}$  normalisée en mbarns par la raie (0,0,4) dans [224]. Dans les deux cas, le pic a la largeur de la résolution. L'ordre est donc un ordre à longue portée (à la précision de la mesure). Notre étude ne dit rien sur l'évolution de ces longueurs de corrélation avec la température dans. D'autres expériences sont donc nécessaires pour résoudre ce problème. La résolution en Q dans la direction des coupes est égale à  $\Delta_Q \simeq 0.035$  r.l.u.  $\equiv 0.017\text{\AA}^{-1}$ . On peut ainsi estimer une borne inférieure sur la longueur de corrélation notée  $\xi_c$ ,  $\xi_c = 2/\Delta_q \approx 50\text{\AA}$  le long de l'axe c.

### 5.2.6 Bilan des mesures expérimentales

Pour conclure, nous proposons ici un résumé des résultats expérimentaux présentés dans cette partie.

**Étude des raies (0,1,L)** L'étude des intensités NSF et SF sur la raie (0,1,1) à travers tout le diagramme de phase du composé  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  a permis de mettre en évidence l'existence d'une contribution magnétique présente seulement dans la phase sous-dopée. Une analyse complète de la polarisation confirme la nature magnétique du signal. L'étude des raies (0,1,L) a permis de montrer que cet ordre magnétique est une propriété intrinsèque au bi-plan. L'évolution de l'intensité magnétique le long de la direction (0,1,L) indique que les moments sont parallèles dans le biplan. La section efficace de diffusion associée à ce phénomène est de l'ordre de  $\sim 1-2$  mbarns, c'est-à-dire  $\sim 10^{-4}$  fois plus faible que les pics de Bragg les plus intenses. Ceci explique pourquoi cet ordre magnétique n'a pas été reporté avec des mesures neutrons non polarisés. A basse température, cet ordre est un ordre tridimensionnel à longue portée.

**Orientation des moments** L'ordre magnétique se caractérise par des moments qui ne sont pas purement le long de l'axe c (l'ensemble des mesures en polarisation est plutôt compatible avec l'existence d'une contribution planaire qu'un moment purement le long de l'axe c). L'étude systématique réalisée montre que l'angle d'inclinaison n'est pas la même d'un échantillon à un autre. On peut néanmoins déduire un angle moyen pour tous les échantillons :  $\theta = 45^\circ \pm 20^\circ$  ( $\theta$  correspond à l'angle entre le moment et l'axe c).

**Étude des raies (0,0,2)** Aucune intensité magnétique n'a été mesurée sur la raie (0,0,2). Dans la mesure où le moment présente une composante planaire. Cette mesure exclut donc l'existence d'une composante ferromagnétique.

**$T < T_c$**  Nos mesures sur Cryopad permettent de conclure que l'intensité magnétique ne change pas à moins de 30% au-dessous de  $T_c$ .

## 5.3 Discussion

Notre étude en température et en dopage permet de comparer nos mesures avec les mesures caractéristiques de la phase de pseudogap. Nous proposons dans cette partie une comparaison avec les mesures de résistivité et de RMN. On présente ensuite différents modèles microscopiques qui peuvent rendre compte du magnétisme observé. Enfin, nous proposons une discussion critique des résultats de diffraction neutronique par rapport à d'autres techniques couramment utilisées pour sonder le magnétisme : la RMN et la  $\mu - SR$ .

### 5.3.1 Evolution avec le dopage de l'ordre magnétique

Pour chaque échantillon étudié, on peut déduire de l'évolution de l'intensité magnétique (reportée sur la Fig.5.3) une température où l'ordre magnétique apparaît, notée  $T_{mag}$ . Comme on peut le constater sur la Fig. 5.3,  $T_{mag}$  décroît avec le dopage.

Nous proposons dans cette partie une comparaison quantitative entre la température magnétique,  $T_{mag}$ , déduite de nos mesures et la température  $T^*$  déduite des mesures de résistivité [66] et de RMN [61] dans le cas du composé  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ .

La phase de pseudogap se caractérise, entre autre, par un changement dans l'évolution en température de la résistivité. En effet, à haute température dans la phase sous-dopée, la résistivité est linéaire en fonction de la température. A mesure que la température diminue, la résistivité s'écarte de cette dépendance linéaire en température. La température à laquelle cette déviation apparaît dépend du dopage. Cet écart à la linéarité est considéré comme la signature de l'entrée dans la phase de pseudogap. Sur la Fig.5.9 a), on représente le diagramme de phase du composé  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ . Les différentes phases sont représentées ainsi qu'une carte en couleur représentant l'entrée dans la phase de pseudogap d'après les mesures de résistivité. La carte en couleur représente donc l'écart à la linéarité  $\delta R(T) = 1 - [\rho_{ab}(T) - \rho_{ab}(0)]/(\alpha T)$ . A haute température, la résistivité est linéaire  $\delta R(T)=0$  (représentée en bleu). L'entrée dans la phase de pseudogap se caractérise par  $\delta R(T) \neq 0$ . Plus l'écart est important, plus la couleur tend vers le rouge sur la carte. De plus, on reporte nos mesures de  $T_{mag}$  en points blancs. D'après la Fig.5.9 a),  $T_{mag}$  correspond à la température d'entrée dans la phase de pseudogap déduite des mesures de résistivité dans le composé  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  par [66].

Une autre caractéristique de la phase de pseudogap a été mise en évidence par les mesures de H.Alloul et al. [61]. L'étude du Knight shift à travers tout le diagramme de phase du composé  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  indique une diminution du poids spectral au niveau de Fermi dans la phase sous-dopée (cf partie 1.2.3 pour une discussion plus détaillée). Pour des échantillons sous-dopés et à haute température, la susceptibilité de spin est à peu près constante, tout comme dans le cas d'une susceptibilité de Pauli pour un métal. A mesure que l'on refroidit, on observe une diminution du Knight shift. Tout comme dans le cas de l'écart à la linéarité de la résistivité, la température à laquelle l'effet apparaît diminue avec le dopage, cet effet est absent pour le composé  $YBa_2Cu_3O_7$ . Sur la Fig.5.9.b), on reporte une carte en couleur représentant l'entrée dans la phase de pseudogap d'après les mesures de  $\Delta K_s$  par H.Alloul et al. [61]. La carte en couleur représente donc l'écart à la susceptibilité de Pauli  $\delta K_s = A \tan(\gamma(y - T^*))$ . A haute température, on est dans le régime où  $\delta K_s=0$ , représenté en bleu (la susceptibilité est constante). L'entrée dans la phase de pseudogap se caractérise par  $\delta K_s \neq 0$ . Tout comme sur la Fig.5.9.a), plus l'écart est important plus la couleur tend vers le rouge sur la carte. De plus, on reporte nos mesures de  $T_{mag}$  en points noirs. D'après la Fig.5.9 b), l'ensemble des  $T_{mag}$  se trouve dans un bandeau compris entre 0.2 et 0.4. Comme dans le cas de la résistivité,  $T_{mag}$  correspond à la température d'entrée dans la phase de pseudogap déduite par les mesures de RMN dans le composé  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ . Cependant, il faut ici reconnaître que l'accord n'est pas aussi bon que pour les mesures de résistivité.

Intéressons nous maintenant à l'évolution en dopage de l'intensité magnétique déduite à basse température. Du fait des incertitudes expérimentales dans la phase supraconductrice, on discutera uniquement la valeur de l'intensité magnétique au-dessus de  $T_c$ , c'est-à-dire à  $T=75K$ . On reporte sur la Fig.5.9.c) l'amplitude du moment à basse température en fonction du dopage. L'amplitude du moment diminue à mesure que l'on dope le système dans les quatre échantillons étudiés. A cause des larges barres d'erreur sur la détermination des moments, une estimation quantitative du dopage pour lequel l'ordre magnétique disparaît est impossible. Néanmoins, on peut estimer que ce dopage est compris entre  $n_h=0.16$  et  $n_h=0.2$ .

D'après ces deux comparaisons,  $T_{mag}$  correspond assez bien à la température  $T^*$  de  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  déduite des mesures de résistivité [66] et des mesures de Knight shift reportées dans [61]. Il semble donc que l'on observe un ordre magnétique dans la gamme de dopage et de température où la phase de pseudogap commence à apparaître pour d'autres sondes expérimentales. En d'autre termes,  $T_{mag}$  correspond à  $T^*$ . Ce fait suggère **l'existence d'un ordre magnétique dans la phase de pseudogap du composé  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$** . Ceci est confirmé par l'évolution en dopage de l'intensité magnétique. En effet, à mesure que  $T_{mag}$  diminue, l'intensité magnétique diminue aussi. D'après les Fig.5.9.a) et b), on peut remarquer que cette diminution se

fait de façon quasi linéaire. L'ensemble de ces observations est en accord avec la description dans laquelle le phase de pseudogap est contrôlée par un Point Critique Quantique (QCP : Quantum Critical Point) autour d'un dopage de  $n_c = n_{opt} + 0.03 = 0.19$  [225, 226].

### 5.3.2 Source de l'ordre magnétique

Notre travail avait pour objectif de tester la phase  $CC-\theta_{II}$  comme candidat possible pour la description de la phase de pseudogap des supraconducteurs à haute température critique. Bien que notre étude indique l'existence d'un ordre magnétique dont la symétrie est compatible avec celle de la phase  $CC-\theta_{II}$ , d'autres types d'ordre magnétique sont compatibles avec nos mesures. Nous proposons dans ce paragraphe une discussion de différents modèles magnétiques compatibles avec nos mesures. Pour chacun des modèles discutés, on essaiera de donner une valeur du moment magnétique déduit.

#### Cas de la phase $CC-\theta_{II}$

Notre étude reporte un signal magnétique sur la raie (011) : dans le contexte des phases CC, ceci élimine la phase  $CC-\theta_I$  pour laquelle aucune intensité n'est attendue (voir Fig.4.2.b)). Cette conclusion est donc en accord avec (i) le test réalisé par S.H.Lee et al. en diffraction de neutron polarisé et (ii) le résultat de dichroïsme au point M, qui ne sont compatibles qu'avec la phase  $CC-\theta_{II}$ . La phase  $CC-\theta_{II}$  possède la bonne symétrie pour expliquer l'existence d'une contribution magnétique sur la raie (0,1,1). Dans ce modèle, le moment magnétique est orthogonal au plan  $CuO_2$ . Nos calculs concernant le facteur de structure magnétique de la phase  $CC-\theta_{II}$ , reporté dans la partie 4.1.4, permettent d'évaluer l'intensité du courant, notée I, parcourant les boucles de la phase  $CC-\theta_{II}$ , ou autrement dit le moment associé à la boucle de courant (noté  $\Phi$  dans l'appendice. A.3). Pour une intensité magnétique variant de 2mbarns à 0.5mbarns (en fonction de l'échantillon considéré), nous trouvons que  $\Phi$  varie de 0.2 à  $0.1\mu_B$ , ce qui correspond à des intensités I variant de 200 à  $100\mu A$ . Ces valeurs sont en accord avec la théorie proposée par C.Varma [43].

D'après notre analyse de polarisation, une composante le long de l'axe c est observée comme attendu. Cependant, comme on peut le voir dans le Tab.5.4, les moments ne sont pas uniquement parallèles à  $\mathbf{c}$  : il existe une composante planaire. Il convient donc de s'interroger sur l'origine de cette composante planaire dans le cadre de la théorie de C.Varma.

Un premier argument pour expliquer l'existence d'une composante planaire est lié à la structure cristallographique des plans  $CuO_2$  dans le composé  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ . Comme on l'a vu dans le Chap.2, les plans  $CuO_2$  sont en forme de "gaufres". Les atomes d'oxygène ne sont pas à la même côte que les atomes de cuivre : la liaison Cu-O fait un angle de  $\alpha = 7^\circ$  par rapport à l'horizontale, on parle de "buckling" des plans  $CuO_2$ . La conséquence directe de ce buckling est que la distribution de courant possède une légère composante le long de l'axe  $\mathbf{c}$ . Cette composante induit alors une composante planaire pour le moment. On reporte dans l'Appendice.A.8 le calcul de la distribution de courant en présence de buckling. En fait, la composante planaire s'annule lorsque l'on tient compte du biplan  $CuO_2$ . Il n'y a donc aucun effet du buckling sur l'orientation des moments.

Le deuxième argument pour expliquer l'existence d'une composante planaire concerne les degrés de liberté de spin. Dans l'approche de C.Varma, il n'est question que d'ordre orbitalaire, et il convient donc de s'interroger sur le degré de liberté de spin. En particulier, V.Aji et al. [227] a proposé que l'ordre à longue portée des boucles de courant s'accompagne d'un ordre de spin orienté dans les plans du au couplage spin-orbite. La symétrie de l'ordre magnétique de spin est compatible avec la symétrie de la structure cristallographique de  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  et de la phase  $CC-\theta_{II}$ . Nous reportons sur la Fig.5.10.c) un schéma de l'ordre de spin qui accompagne la phase  $CC-\theta_{II}$ . L'amplitude du moment de spin est estimée à  $0.01\mu_B$  sur le site de l'oxygène et à  $0.02\mu_B$  sur le site du cuivre. L'orientation des spins est imposée par la valeur relative des interactions

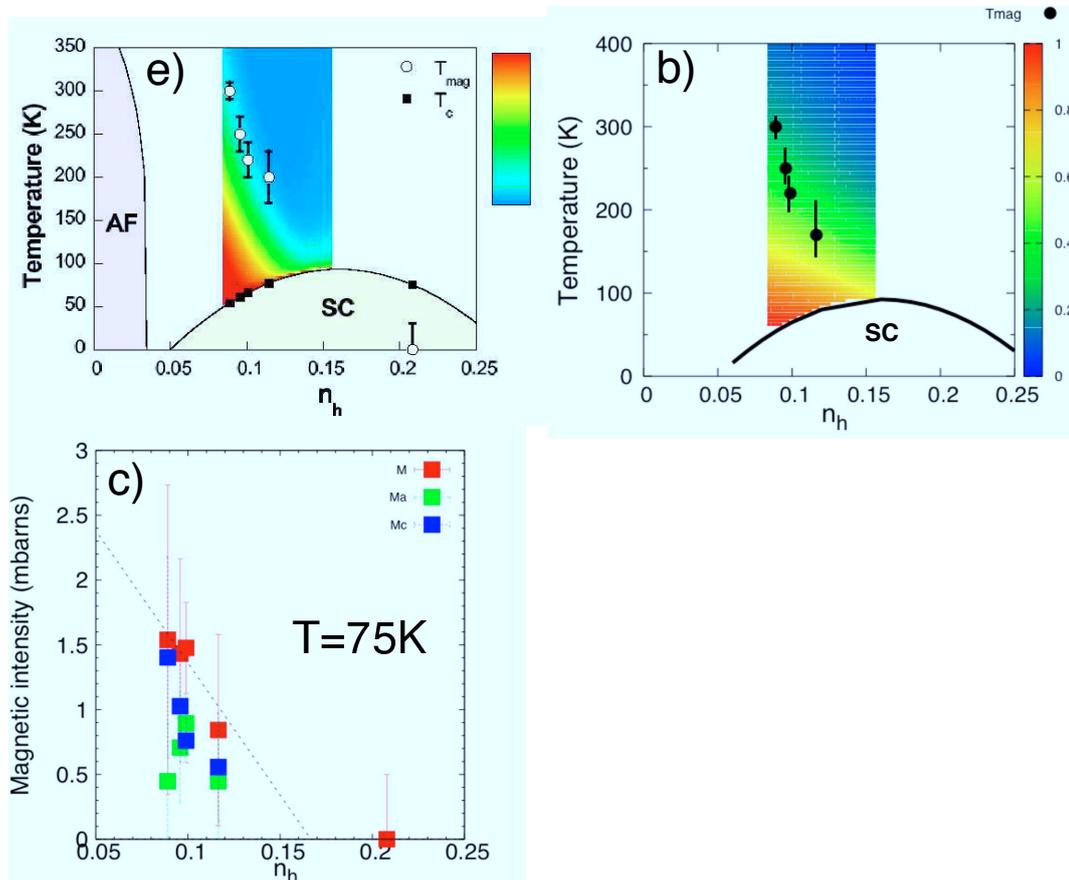


FIG. 5.9: Comparaison phénoménologique de l'évolution en dopage de l'ordre magnétique discuté dans ce chapitre et de la phase de pseudogap : a) Diagramme de phase des cuprates supraconducteurs en fonction du nombre de trous  $n_h$  déduit de la relation phénoménologique entre  $T_c$  et  $n_h$  [225]. Les points blancs représentent  $T_{mag}$  (voir Tab.2.2). La carte en couleur représente l'écart à la linéarité de la résistivité  $\delta R(T)$ . Lorsque  $\delta R(T)=0$ , la résistivité est linéaire (en bleu), à mesure que l'on entre dans la phase de pseudogap  $\delta R(T) \neq 0$  (couleur de plus en plus rouge). c) Même chose que a) pour les mesures de Knight shift notées  $\Delta K_s$ . La carte en couleur représente l'écart de  $\Delta K_s$  à une valeur constante de référence prise à haute température. A haute température,  $\Delta K_s=0$  (couleur bleue). A mesure que  $T$  diminue,  $\Delta K_s$  diminue et s'écarte de la valeur de référence à haute température  $\Delta K_s \neq 0$  (couleur de plus en plus rouge). c) Evolution de l'amplitude du moment  $M$  (points rouges), de ses composantes planaire (points verts) et transverse (points bleus) en fonction du dopage d'après le Tab.5.4.

d'échange. Il faut noter que cette idée a également été développée dans le cas de la phase DDW [228]. En effet, par des considérations de symétrie, il a été proposé que la phase DDW dans la phase sous-dopée de  $La_{2-x}Ba_xCuO_4$  induise une composante ferromagnétique le long de la direction (1,0,0) dans la phase LTT. Nous reviendrons sur cette proposition dans la partie 5.3.3.

### Moment de spin sur les atomes d'oxygène

Bien que notre résultat soit en partie compatible avec la phase  $CC-\theta_{II}$ , nous ne pouvons pas affirmer que l'ordre magnétique mesuré correspond à la phase  $CC-\theta_{II}$ . Jusqu'à présent nous avons uniquement considéré un modèle à base de courants circulants. Il est en fait possible d'imaginer des ordres de spin préservant la symétrie de translation et qui sont compatibles avec les mesures présentées dans ce chapitre. Il est important de noter que le type d'ordre que nous allons discuter n'a jamais été proposé d'un point de vue théorique.

L'observation de moments qui ne pointent pas dans une direction privilégiée favorise un modèle de spin dans lequel les spins ne sont pas confinés dans une direction privilégiée. Ce cas de figure requiert l'absence de forte anisotropie dans le couplage entre spins. Cependant pour le cas du composé non dopé, il existe une anisotropie planaire du super échange magnétique qui favorise un moment dans le plan. Il faut noter que ce que l'on observe est très différent de l'AF, et il n'existe peut-être pas de lien entre ces deux phénomènes. Quoiqu'il en soit, un modèle de spin convenable est représenté sur la Fig.5.10.b). Celui-ci correspond à un modèle de spins colinéaires localisés sur les atomes d'oxygène des plans  $CuO_2$ . Ce type de structure est noté *SpinO*. Ce modèle peut également être décrit comme formé de chaînes ferromagnétiques (le long des directions  $a^*$  et  $b^*$ ) couplées antiferromagnétiquement. Comme dans le cas de la phase  $CC-\theta_{II}$ , il n'y a aucun moment dans le carré  $CuO_2$ . Il existe d'autres décorations possibles, mais celle-ci présente l'avantage de donner une contribution maximale sur la raie (010) ou (100). On reporte le facteur de structure magnétique de cette structure dans l'Appendice.A.6. On déduit de nos mesures un moment sur chaque atome d'oxygène de l'ordre de  $M_O \simeq 0.06\mu_B$ .

Dans l'état actuel des choses, différents ordres magnétiques peuvent décrire nos résultats. Néanmoins, seule la phase  $CC - \theta_{II}$  a été proposée dans le cadre d'un modèle théorique défini [43]. En fait, seule une étude précise du facteur de forme de l'ordre magnétique permettrait d'identifier l'objet responsable de la diffusion (boucle de courant ou spin localisé sur une orbite). Cependant, cette étude est très difficile à réaliser car peu de pics de Bragg peuvent être étudiés en pratique. Il faut en effet que l'intensité nucléaire du pic de Bragg soit le plus petit possible et que l'intensité magnétique soit la plus grande possible.

### 5.3.3 Cohérence vis-à-vis des autres sondes du magnétisme

Dans la mesure où nous reportons l'existence d'un ordre magnétique dans la phase de pseudogap du composé  $YBa_2Cu_3O_{6+\delta}$ , il est fondamental de discuter les observations des autres sondes du magnétisme que sont la RMN et la  $\mu$ SR. On s'intéresse ici essentiellement à la comparaison entre la diffusion de neutrons et la  $\mu$ SR dans le cas particulier du composé  $YBa_2Cu_3O_{6+\delta}$  pour deux dopages et pour la phase  $CC - \theta_{II}$

#### Cas de la RMN

Les mesures de RMN n'indiquent aucun moment sur le site du cuivre ou sur le site d'oxygène. La très bonne résolution des spectromètres RMN permet de fixer comme borne inférieure un moment de  $10^{-3}\mu_B$  sur le site de cuivre et de  $10^{-4}\mu_B$  sur le site d'oxygène [229].

Ces deux bornes inférieures permettent déjà d'émettre des doutes sur la validité de la phase *SpinO*. En effet, bien qu'elle soit compatible avec nos mesures, la valeur du moment que nous déduisons de nos mesures

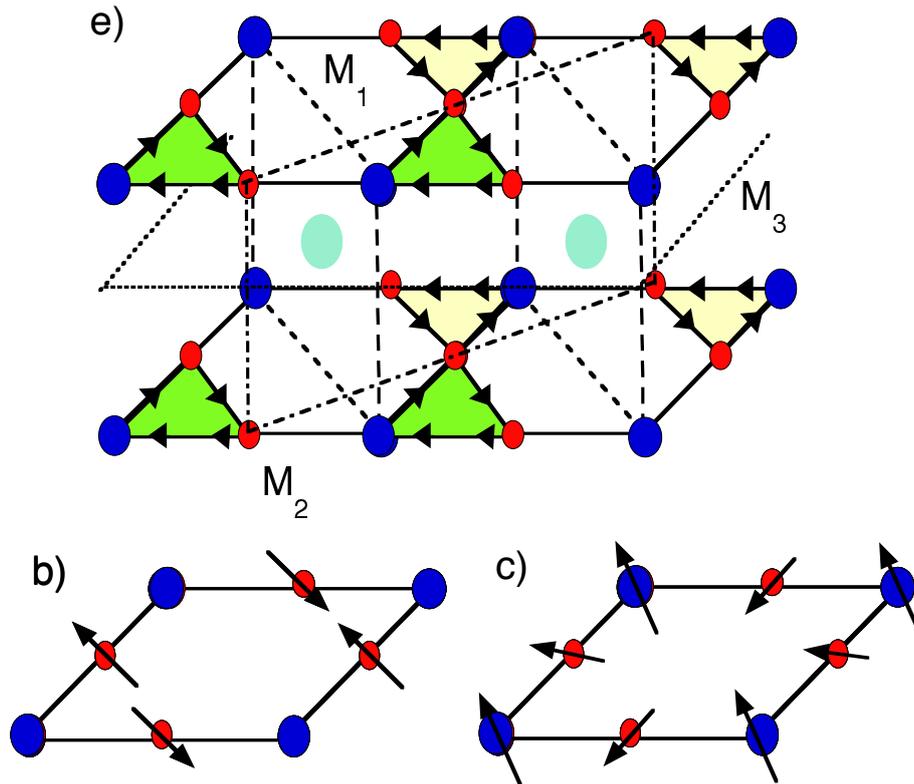


FIG. 5.10: a) Schéma du biplan  $\text{CuO}_2$  du composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  en présence de la phase  $CC-\theta_{II}$ , en bleu les atomes de cuivre, en rouge les atomes de d'oxygène et en vert l'atome d'yttrium. ( $M_1$ ), ( $M_2$ ) et ( $M_3$ ) sont trois plans de symétrie de la distribution de courant de la phase  $CC-\theta_{II}$ . b) Modèle de spin dans le plan  $\text{CuO}_2$  alternatif à la phase  $CC-\theta_{II}$  ayant la symétrie compatible avec nos mesures. c) Ordre de spin induit par le couplage spin-orbite accompagnant la phase  $CC-\theta_{II}$  d'après [227].

est environ 100 fois plus grande que le seuil de détection de la RMN. Dans ces conditions, la phase *SpinO* n'est pas un candidat compatible avec les autres sondes du magnétisme.

Pour la phase  $CC - \theta_{II}$ , les sites d'O et de Cu étudiés se trouvent en position de haute symétrie. Les champs créés par les boucles de courant s'annulent pour ces deux sites. Nous reportons sur la Fig.5.10 a) les différents plans de symétrie de la distribution de courant de la phase  $CC - \theta_{II}$ . Dans le cas du site de Cu, le plan ( $M_1$ ) est un plan de symétrie pour la distribution de courant, il s'agit donc d'un plan d'anti-symétrie pour le champ magnétique. Le champ magnétique est donc nul car le site de cuivre appartient à ( $M_1$ ). Le cas du site d'oxygène est similaire : le plan ( $M_1$ ) est remplacé par le plan ( $M_2$ ). Pour le site d'Y, le plan de symétrie est cette fois-ci le plan ( $M_3$ ). Il n'y a donc à priori aucune objection au fait que la RMN ne reporte aucun signal dans le cas de la phase  $CC - \theta_{II}$ . Cependant, nos mesures indiquent que les moments ne sont pas purement le long de l'axe  $\mathbf{c}$ , impliquant une composante supplémentaire au modèle proposé par C.Varma. Comme on l'a discuté dans la partie ci-dessus, il a été proposé que le couplage spin-orbite induise un ordre de spin dans le plan [227]. Cet ordre de spin implique l'existence de moments sur les sites de l'O et du Cu, respectivement  $0.01\mu_B$  et  $0.02\mu_B$ . Etant donnée la sensibilité des mesures RMN, de tels moments devraient être observés. Dans l'état actuel des choses, l'hypothèse du couplage spin-orbite n'est pas compatible avec les mesures de RMN.

Etant donnée la précisions des mesures de RMN, il est difficile de justifier une composante planaire d'origine spin. Cette conclusion invite donc à deux commentaires.

Tout d'abord, il est important de rappeler la discussion que nous avons eu dans la partie 5.2.2. Pour un échantillon donné, nous avons vu qu'il existe plusieurs types d'ajustement possibles, qui entraînent des valeurs de  $\theta$  différentes (la règle de somme est toujours satisfaite, quel que soit l'ajustement réalisé). En particulier pour l'échantillon (B), nous avons vu qu'il est possible d'ajuster les données pour avoir  $\theta=0$ . Cette description n'est pas correcte pour l'échantillon démaclé (C). Ainsi il serait intéressant de reprendre l'étude de la raie (101) pour l'échantillon (C) en réalisant une analyse complète de polarisation. Cependant, nous avons récemment réalisé une étude sur un échantillon maclé de  $YBa_2Cu_3O_{6.6}$  (de dopage équivalent à (B) et (C)) en collaboration avec H.Mook. Pour cet échantillon, nous avons réalisé une analyse complète de polarisation sur la raie (101). Cette analyse confirme que  $\theta \neq 0$ , en accord avec notre conclusion de la partie 5.2.2.

D'autre part, tous les modèles que nous avons discuté jusqu'à maintenant proposent que la composante planaire soit de type spin. Cependant, il est tout a fait concevable qu'elle soit elle aussi de type boucle de courant. La théorie de C.Varma décrit la physique d'un plan  $CuO_2$ , et le composé  $YBa_2Cu_3O_{6+\delta}$  est un composé bi-plan. La distance entre les deux plans  $CuO_2$  ( $3.3\text{\AA}$ ) est du même ordre de grandeur que la distance Cu-Cu dans le plan ( $3.8\text{\AA}$ ). Il est ainsi naturel de s'interroger sur l'effet du bi-plan sur la phase  $CC - \theta_{II}$ . L'une des conséquences du bi-plan est l'existence d'un terme de saut, noté  $t_{\perp}$ , entre les plans  $CuO_2$  d'un même bi-plan. Des études récentes sur le composé Y-1248 suggèrent que ce terme est non négligeable (de deux à trois fois plus grand que dans le cas de Bi-2212). Il est à priori possible que ce terme crée des boucles de courant entre les plans  $CuO_2$ , et donc un moment ayant une composante planaire.

### Cas de la $\mu SR$

Intéressons nous maintenant au cas de la  $\mu SR$ . Tout comme dans le cas de la RMN, il n'y a à ce jour aucune signature reportée en  $\mu SR$  dans le cas du composé  $YBa_2Cu_3O_{6+\delta}$  compatible avec le type d'ordre que nous avons discuté. Tout comme la RMN, la  $\mu SR$  sonde le magnétisme de façon locale mais en des sites bien particuliers de la maille. Ces sites étant différents de ceux mesurés par la RMN, ces deux techniques sont complémentaires.

**Approche développée** La  $\mu$ SR est sensible aux champs locaux vus par le muon. Ainsi, la connaissance de la position préférentielle du muon dans la maille du composé et celle de la distribution des spins ou de boucles de courant permet de remonter au champ magnétique sondé par le muon pour le comparer à la mesure. On a tout d'abord modélisé le cas d'un échantillon  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$  afin de vérifier la validité de l'approche, puis le cas d'un échantillon de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$ .

**Cas de l'échantillon  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$**  Dans le cas d'un échantillon  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ , la diffusion de neutrons révèle un ordre AF dans et entre les deux plans  $\text{CuO}_2$  de la maille élémentaire [41]. Les moments sont le long de la direction (100) ou (010) avec une amplitude  $M=0.5\mu_B$  et  $T_N=410\text{K}$ . La  $\mu$ SR révèle l'existence d'un champ magnétique statique ayant une évolution en dopage assez proche de celle observée par les neutrons. Le champ magnétique mesuré est de l'ordre de  $30mT$  avec  $T_N$  autour de  $450\text{K}$  [230, 231]. Essayons de voir si le champ magnétique créé par les  $0.5\mu_B$  vus par diffusion de neutrons correspond à celui mesuré par la  $\mu$ SR. Qualitativement, on a  $B \sim \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{\vec{M}}{r^3}$  avec  $M \sim 5 \cdot 10^{-24}$  et  $\frac{1}{r^3} \sim 3.5 \cdot 10^{-32}$  ( $x=1, y=0, z=2.9$  en  $\text{\AA}$ ), ce qui donne finalement  $B \sim 18mT$ . Ceci est relativement proche de la valeur mesurée.

En fait, le champ résultant au point  $\vec{r}_\mu = (x, y, z)$  du muon se calcule par la somme des champs créés par chacun des spins au point  $\vec{r}_\tau = (ua, va, wc)$ , où  $a, b$  et  $c$  correspondent aux axes cristallographiques et  $u, v$  et  $w$  sont des entiers :

$$\mathbf{B}(\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}) = \sum_{\tau} \mathbf{B}_S(\vec{r}_\tau - \vec{r}_\mu) \quad (5.3)$$

avec  $\mathbf{B}_S(\mathbf{r}) = \frac{\mu_0}{4\pi} \left( \frac{\mathbf{r}(\mathbf{r} \cdot \mathbf{M})}{r^5} - \frac{\mathbf{M}}{r^3} \right)$  Lors du calcul numérique, on place le spin le plus proche du muon au centre d'une sphère de rayon  $50\text{\AA}$ , on somme ensuite le champ créé par chacun de ces spins suivant la formule 5.3. Les résultats pour chacun des sites possibles du muon sont reportés dans le Tab. A.4 de l'Annexe A.8. L'accord est assez bon. Appliquons maintenant la même méthode au cas de la phase  $\text{CC-}\theta_{II}$ .

**Cas de l'échantillon  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$**  Suivant la même approche que dans le paragraphe ci-dessus, on peut calculer le champ statique créé par la distribution de courant de la phase  $\text{CC-}\theta_{II}$ , d'abord de façon qualitative puis de façon exacte.

Dans le cas de la phase  $\text{CC-}\theta_{II}$ , le champ magnétique est la somme des champs magnétiques créés par chacune des deux boucles de courant centrées respectivement à  $(x_0, x_0)$  et  $(-x_0, -x_0)$  d'un atome de cuivre ( $x_0 \sim 0.33\text{\AA}$ ) et de courants opposés. Le champs magnétique créé s'écrit  $B \sim \frac{\mu_0}{4\pi} \left( \frac{\vec{M}}{r_1^3} - \frac{\vec{M}}{r_2^3} \right)$  avec  $M \sim 1.10^{-24}$  et  $r_1$  et  $r_2$  les distances entre le muon et les deux boucles de courant. Avec ces valeurs, on trouve un champ  $B \sim 6G$  au site Balmer (2) (c'est-à-dire à  $1\text{\AA}$  au-dessous de l'oxygène apical). Il est finalement intéressant de voir que bien que les moments entre la phase isolante AF et l'ordre magnétique reporté soient du même ordre de grandeur, le champ magnétique résultant au site de muon est assez différent. La principale raison est la proximité des deux boucles de courant de moments opposés.

On peut déterminer numériquement le champ vu par le muon au niveau des sites préférentiels grâce à l'Eq.5.3 adaptée à la nouvelle distribution de courant (voir Annexe A.8). Le calcul du champ magnétique au site du muon Balmer (2) pour la phase  $\text{CC-}\theta_{II}$  pour un courant de  $I=50\mu A$  ( $\Phi$  est alors équivalent à  $0.05\mu_B$ ) donne un champ de  $20mGauss$ . Sachant que la limite de détection est autour de  $1mGauss$  en  $\mu$ SR, les muons devraient en principe être sensibles à cette phase. Essayons de discuter ce désaccord. Dans notre approche, nous n'avons pas tenu compte du fait que le muon porte une charge. Le muon est chargé positivement, et, lorsque le muon pénètre dans la cellule élémentaire, celui-ci doit induire une modification locale de la distribution de courant due à l'écrantage de cette charge positive par les électrons. Cette redistribution devrait induire une réduction du champ magnétique au site du muon. Il est intéressant de noter qu'encore une fois, ceci a été remarqué dans le cas des phases de flux [214]. Cette réduction n'est pas négligeable, elle est dans les cas des phases de flux d'un facteur 7. Afin de traiter correctement ce problème dans le cas

Name site	x	y	z	$B_{bc}$ (G)
Lin(1)	0.1	1.52	-3.2	10
Lin(2)	0.06	0.9	-3.19	8
Balmer(1)	0.0	1	-2.94	11
Lin(3)	0.93	1.5	-4.2	4.5
Balmer(2)	1.03	0.04	-2.6	20

TAB. 5.5: Valeur du champ magnétique créé par la phase  $CC-\theta_{II}$  aux différents sites que le muon explore d'après [232]. Les positions du muon sont exprimées en Å et par rapport à l'atome de cuivre pris comme centre du réseau, les champs sont exprimés en Gauss.

de la phase  $CC - \theta_{II}$ , il serait intéressant de calculer la redistribution de charge induite par le muon pour connaître précisément la valeur du champ magnétique sondé par le muon.

## 5.4 Conclusion

L'ensemble de nos mesures sur la famille de composé  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  permet de conclure à l'existence d'une contribution magnétique compatible avec la symétrie de la phase  $CC - \theta_{II}$ . Cette contribution magnétique change avec le dopage. A mesure que l'on dope le système, cette contribution tend à diminuer et disparaît pour l'échantillon surdopé, il s'agit donc d'une spécificité de la phase sous-dopée. L'ensemble de ces résultats suggère aussi que les moments ne sont pas purement le long de l'axe  $c$ .

La comparaison avec les mesures caractéristiques de la phase de pseudogap démontre que la température à laquelle l'ordre magnétique s'établit est en accord avec les mesures de  $T^*$ . De plus, l'évolution en fonction du dopage de l'intensité magnétique indique que cet ordre magnétique disparaît pour un nombre de porteurs compatible avec le dopage critique  $n_h^c=0.19$ , dopage qui est considéré comme le dopage pour lequel la phase de pseudogap disparaît [225, 226]. Notre étude suggère donc **l'existence d'un ordre magnétique dans la phase de pseudogap du composé  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  et l'existence d'un QCP.**

D'un point de vue microscopique, la nature de l'ordre magnétique reste encore inconnue. Différents candidats ont été évoqués. L'ordre magnétique observé ne brise pas la symétrie de translation et est différent du cas du ferromagnétisme. Ainsi, dans l'espace réel, il doit exister une décoration de la cellule élémentaire avec au minimum deux moments magnétiques par plaquette  $CuO_2$ , limitant ainsi considérablement le nombre de modèles capables de décrire les résultats. En particulier, tous les modèles ne considérant qu'un spin sur le site de cuivre sont nécessairement exclus. De ce point de vue, un Hamiltonien à trois bandes est donc le bon point de départ pour décrire la phase de pseudogap du composé  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ <sup>3</sup>. Bien que ce résultat soit très important, de nombreuses questions restent en suspens. En particulier, la comparaison avec les autres sondes du magnétisme reste à approfondir. De plus, il reste à comprendre quel est le lien entre les fluctuations de spin observées autour du vecteur d'onde  $Q=(\pi, \pi)$  et l'ordre magnétique présenté dans ce chapitre. Enfin, dans la mesure où il existe une certaine universalité dans le diagramme de phase des supraconducteurs à haute température critique, il convient de s'interroger sur l'existence d'un tel ordre dans les autres cuprates, et en particulier dans  $La_{2-x}Sr_xCuO_4$  et  $HgBa_2CuO_{4+\delta}$  qui sont deux familles de composés accessibles pour la DNP.

<sup>3</sup>il faut noter que dans le cas de la théorie de C.Varma, bien que le point de départ soit un modèle à trois bandes celui-ci se réduit après champ moyen à un modèle à une bande

# 6 Etude de la phase de pseudogap du composé $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ par diffraction de neutrons polarisés (DNP)

## Introduction

Dans la chapitre 5, nous avons reporté l'existence d'un ordre magnétique dans la phase de pseudogap du supraconducteur à haute température critique bicouche  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ . Dans la mesure où cet ordre original a lieu dans les plans  $\text{CuO}_2$ , il doit être une propriété universelle de tous les cuprates supraconducteurs à haute température critique. Motivés par ce résultat, nous avons entrepris l'étude de la phase de pseudogap du composé monocouche  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  par diffusion de neutrons. Bien qu'une certaine universalité dans la description de la physique de ces cuprates supraconducteurs doit exister, chaque système possède sa spécificité. Cette famille est différente des autres cuprates supraconducteurs par trois points au moins :

- la valeur de  $T_c^{max}$  dans la famille de composé  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  est plus faible que celle de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  (on passe de 90K à 40K)
- la dynamique de spin autour du vecteur d'onde  $\mathbf{Q}_{AF}$  est très différente
- $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  et  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  présentent des structures cristallographiques différentes

Pour ces raisons, la famille de composés  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  est souvent présentée comme un cas particulier des supraconducteurs à haute température critique. On peut à ce titre citer T. Timusk [28] qui conclut sa revue traitant de la phase de pseudogap par : ”*Special mention must be made of the  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  compound. Although many measurements are indicative of a pseudogap, even in the strongly overdoped region, there are several contradictory observations.*”

Néanmoins, au delà de toutes ces différences, il doit y avoir d'une façon ou d'une autre une physique commune à ces différentes familles de supraconducteurs. Nous proposons ici une présentation de notre étude dans la phase de pseudogap du supraconducteur à haute température critique  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ . Comme nous le verrons dans la première partie, différentes hypothèses peuvent être formulées quant à l'arrangement de l'ordre magnétique dans le cas du composé  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ . Pour chacune des possibilités proposées, nous rapporterons dans une seconde partie les mesures réalisées. Dans une dernière partie, nous proposons une étude originale du spectre des fluctuations du composé  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  autour de  $\mathbf{q} = 0$ .

## 6.1 Ordre magnétique dans la phase de pseudogap du $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ : les différentes hypothèses

L'ordre magnétique observé dans le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  est un ordre à longue portée. Il est une spécificité du bi-plan  $\text{CuO}_2$  avec en particulier une dépendance en L compatible avec un arrangement de type ferromagnétique dans le bi-plan. Dans la mesure où l'empilement des plans  $\text{CuO}_2$  est différent dans le composé  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ , il convient de s'interroger sur les différentes organisations possibles d'un ordre magnétique dans la phase de pseudogap du composé  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ . Nous proposons ici d'envisager différents

cas de figure : le cas où l'ordre magnétique est à longue portée et le cas où l'ordre est à courte portée.

### 6.1.1 Cas où l'ordre est à longue portée

Dans le cas où l'ordre magnétique est à longue portée, tout comme dans le cas du composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ , le maximum d'intensité dans le plan réciproque (H,K) est attendu en (1,0). Du fait du centrage de la maille, trois cas de figure peuvent être attendus concernant la modulation de l'ordre magnétique le long de l'axe c. On illustre chacune des configurations sur la Fig.6.1 dans le cas particulier de la phase  $\text{CC-}\theta_{II}$ .

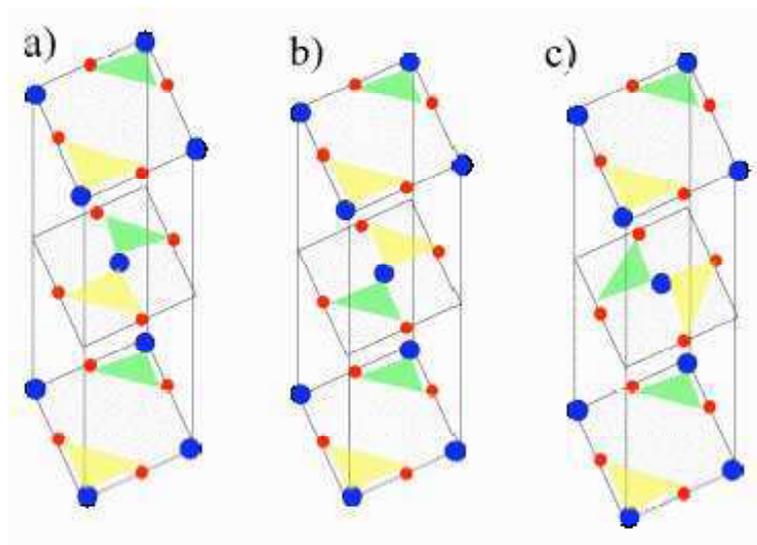


FIG. 6.1: Cellule élémentaire du composé  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  : différentes organisations des boucles de courant de la phase  $\text{CC-}\theta_{II}$  dans le cas d'un ordre à longue portée . Les boucles tournant dans le sens horaire et anti-horaire sont montrées respectivement en vert et jaune. Pour plus de simplicité, on ne montre sur la figure que les atomes de cuivre (en bleu) et d'oxygène (en rouge)

**Cas de figure 1)** : La structure magnétique brise la symétrie de translation le long de l'axe c. Il y aura donc une contribution magnétique sur les raies (1,0,L) avec L pair.

**Cas de figure 2)** La structure magnétique ne brise pas la symétrie de translation le long de l'axe c. Il y aura donc une contribution magnétique sur les raies (1,0,L) avec L impair

**Cas de figure 3)** La structure magnétique n'est pas colinéaire d'un plan à un autre. Il y aura donc une contribution magnétique sur les raies (1,0,L) avec L pair

Pour tester ces trois cas de figures, nous avons travaillé dans le plan de diffusion standard (H,0,L) afin d'avoir accès aux positions (1,0,L). Dans les cas de figure a) et c), l'intensité magnétique est en principe superposée à aucune intensité magnétique. Dans le cas de figure b), l'intensité magnétique est superposée à une contribution nucléaire, la situation est donc très similaire à celle de l'expérience réalisée dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ .

### 6.1.2 Cas où l'ordre est à courte portée

En raison du fait que les anomalies de pseudogap sont moins nettes et que les valeurs de  $T_c$  sont plus basses que celles des autres supraconducteurs à haute température critique, la phase de pseudogap, si elle existe, peut présenter des spécificités par rapport au composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ . Pour ces raisons, nous avons également envisagé le cas d'un ordre à courte distance. Tout comme dans le cas d'un ordre à longue portée, différentes configurations sont envisageables.

**Cas de figure 1) :** L'ordre est à longue portée dans le plan (H,K), mais n'est pas corrélé le long de l'axe c. Il y aura une contribution magnétique en (1,0,L) pour toutes les valeurs de L.

**Cas de figure 2) :** L'ordre magnétique est à courte portée dans le plan  $\text{CuO}_2$ . Dans ce cas, il est raisonnable de penser que l'ordre devrait être faiblement (voir pas du tout) corrélé le long de l'axe c.

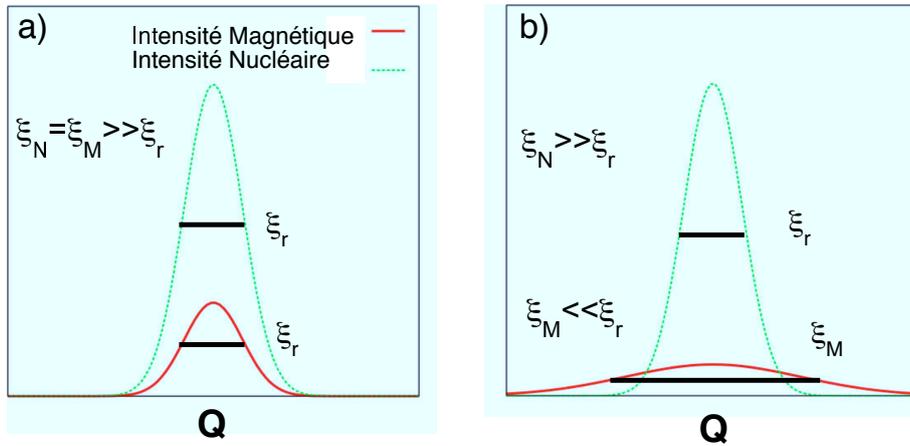


FIG. 6.2: Illustration de la différence entre un ordre magnétique à longue et courte portée : dans la cas de figure a), les longueurs de corrélation de l'ordre magnétique et de l'ordre nucléaire, notées respectivement  $\xi_M$  et  $\xi_N$ , sont plus grandes que la longueur caractéristique de la résolution expérimentale, notée  $\xi_r$ , donnée par l'inverse de la résolution en  $Q$ . L'ordre magnétique est alors à longue portée et se superpose à l'intensité nucléaire (cas de l'hypothèse n°1). Dans le cas de figure b), seul  $\xi_N$  est supérieur à  $\xi_r$ , l'ordre magnétique est alors à courte portée. Il existe alors des zones en  $Q$  où l'intensité magnétique et l'intensité nucléaire ne se recouvrent pas.

D'un point de vue expérimental, l'existence d'un ordre à courte portée pose des difficultés différentes de celles liées à un ordre à longue distance (ces difficultés ont été abordées dans le chapitre précédent). Nous reportons sur la Fig.6.2.a) et b) un schéma expliquant la différence entre ces deux cas de figures. Dans le cas d'un ordre à longue portée (c.f. Fig.6.2.a)), les pics de Bragg magnétique et nucléaire ont la même largeur en  $Q$ , celle de la résolution expérimentale. Le signal magnétique se superpose alors exactement au pic de Bragg nucléaire. Dans le cas d'un ordre magnétique faiblement corrélé en  $Q$ , le signal magnétique est plus large que le signal nucléaire (c.f. Fig.6.2.b)). A moment magnétique égal pour les cas longue portée et courte portée, l'intensité magnétique est plus faible là où l'intensité nucléaire est maximale, ce qui ne facilite pas a priori sa détection. Cependant, la différence de largeur en  $Q$  entraîne l'existence du signal magnétique là où il n'y a aucune contribution nucléaire. Ainsi dans le cas courte portée, on cherche à mettre en évidence un signal magnétique très peu intense (encore plus faible que celui dans le cas d'un ordre à longue portée) sur

un bruit de fond plus faible que dans le cas d'un ordre à longue portée. La mise en évidence d'un tel ordre dépend non seulement de l'amplitude du moment mais aussi des longueurs de corrélation (si elles sont trop faibles l'intensité magnétique risque alors d'être beaucoup trop diffuse pour être mesurée).

## 6.2 Recherche d'un ordre magnétique : test des différentes hypothèses

Nous avons réalisé différentes expériences afin de prouver ou non la validité de chacune des hypothèses discutées dans la partie précédente. Nous nous sommes d'abord intéressés au cas d'un ordre à longue portée puis à celui d'un ordre à courte portée. Nous reportons dans cette partie les principaux résultats de ces différentes études. Pour chacune de ces hypothèses, nous présentons notre démarche ainsi que les difficultés rencontrées et les solutions mises en oeuvre. Afin d'aller à l'essentiel, nous présentons à chaque fois le résultat le plus probant.

### 6.2.1 Test d'un ordre à longue portée respectant la symétrie du réseau le long de l'axe c : hypothèse n°2

Dans le cas de l'hypothèse n°2, la situation est exactement la même que pour le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ . L'intensité magnétique se superpose à l'intensité du pic de Bragg nucléaire (101). Dans le cas du composé  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ , l'intensité du pic de Bragg nucléaire (101) calculée à partir de la structure cristallographique déduite de [166] est égale à 40mbarns. La valeur expérimentale est en fait différente de celle donnée par le calcul en raison de la diffusion multiple. En comparant les intensités mesurée et calculée de plusieurs pics de Bragg nucléaires, nous avons estimé que l'intensité de la raie (1,0,1) est 200mbarns. Cette valeur est plus faible que dans le cas du composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ . Pour un échantillon maclé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ , elle est de l'ordre de 1.5barns (on rappelle que cette valeur varie fortement avec le dopage). En tenant compte de la modulation en L dans le cas du composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ , on s'attend à ce que le rapport des rapports signal sur bruit à moment égal entre les composés  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  et  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  soit égal à  $\frac{1.5 \cos(\pi z)}{0.2} \approx 3$  (où  $z=0.28$  correspond à la distance réduite entre les deux plans  $\text{CuO}_2$  du composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ ). Le rapport signal sur bruit est donc trois fois meilleur dans le cas du composé  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  que dans le cas du composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ . Il est important de noter qu'il faut prendre ces chiffres avec précaution. Ils sont déduits d'une mise en absolu des pics de Bragg nucléaires et tiennent compte de façon approximative d'effets tels que l'extinction (importante sur les raies de Bragg intenses) ou la diffusion multiple (importante dans le cas de gros échantillons tels que ceux que nous utilisons et sur des pics de Bragg nucléaires peu intenses). Ces effets peuvent modifier les résultats. La situation expérimentale semble donc assez favorable dans le cas de  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ . La situation est en fait compliquée par la présence de la transition structurale HTT vers LTO autour de  $T_o=280\text{K}$  pour  $x=0.1$  d'après [233]. L'étude de Lee et al.[218] avait mis en évidence un changement de largeur des pics de Bragg (H,H,L) avec la température pour  $T < T_o$  (voir Fig.4.4).

Afin de tester l'hypothèse d'un ordre à longue distance qui respecte la symétrie du réseau, nous avons étudié les intensités SF et NSF du pic de Bragg (1,0,1) en fonction de la température pour une polarisation des neutrons  $\mathbf{P} // \mathbf{Q}$ . Comme dans le cas des expériences sur le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ , nous travaillons avec une longueur d'onde  $\mathbf{k}_i=2.662\text{\AA}^{-1}$ . A titre indicatif, cette étude représente une semaine d'expérience. Nous reportons deux évolutions en température des intensités NSF et SF mesurées sur 4F1 sur la Fig.6.3.a) et c). Dans les deux cas, on normalise les intensités NSF et SF à  $T=300\text{K}$ . Ces deux suivis en température ont été réalisés dans des conditions différentes : dans le cas de la Fig.6.3.a) toutes les lames de l'analyseur sont utilisées, alors que dans le cas de la Fig.6.3.c) seule la lame centrale est utilisée. La diminution de la taille de l'analyseur a entraîné une diminution d'un facteur deux de l'intensité des comptages. Pour ces deux

suivis en température, on a ajusté la position de l'échantillon et du spectromètre pour rester sur le maximum d'intensité du pic de Bragg. Dans la barre d'erreur, les intensités SF et NSF normalisées à haute température suivent la même évolution en température. On observe une légère diminution de l'intensité dans les deux canaux autour de la température de transition structurale  $T_D$ . Cet effet est présent dans la Fig.6.3.a) et la Fig.6.3.c), il est indépendant de la configuration utilisée. Cet effet n'a aucune conséquence sur l'évolution du rapport de flipping, qui est constant avec la température comme on peut le voir sur la Fig.6.3.b). Par ailleurs, nous reportons sur la Fig.6.3.d) l'évolution en température de la largeur de la coupe en rotation de l'échantillon. Contrairement à ce qui a été observé par Lee et al.[218], nous n'observons aucun changement de cette largeur en température. Il semble donc que la transition structurale affecte plus les pics de Bragg dans le plan de diffusion (H,H,L) que dans le plan de diffusion (H,0,L). Ainsi, l'évolution en température du rapport de flipping dans notre étude semble insensible à la transition structurale et peut donc être étudiée directement, c'est-à-dire sans aucune correction.

Dans le cas d'un échantillon maclé de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$  et pour un rapport de flipping  $R = 60$ , on observe une variation  $\Delta R$  entre basse et haute températures de  $\Delta R=3$ . Dans le cas de  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  où le rapport signal sur bruit s'améliore d'un facteur trois, la variation de  $R$  attendue pour un moment équivalent est de l'ordre de  $\Delta R=9$ . D'après la Fig.6.3.b), on ne peut pas exclure une variation de  $R$  de l'ordre de  $\Delta R \approx 1$ . Dans ces conditions, il n'y a donc pas d'effet compatible avec un ordre à longue distance respectant la symétrie du réseau. Partant des Fig.6.3.a) et c), on peut préciser la valeur du moment magnétique qui pourrait être présent. Comme on l'a vu dans la partie 5.3.2, les valeurs des moments dépendent de la structure magnétique considérée. Cependant, les ordres de grandeur sont toujours les mêmes (entre  $0.05\mu_B$  et  $0.2\mu_B$ ). Ici, on propose de donner la valeur du moment dans le cas de la phase  $\text{CC-}\theta_{II}$ . L'intensité magnétique déduite des mesures Fig.6.3.a) et c) vaut  $I_{mag}=0\pm 200$  cts en 30mn. La mesure du canal NSF permet de mettre en unités absolues :  $I_{NSF}=700000\text{cts}(30\text{mn})=200\text{mbarns}$ , on en déduit que  $I_{mag}=0\pm 0.06\text{mbarns}$ . On reporte dans le Tab.A.3 le facteur de structure magnétique utilisé. La valeur du moment déduite est  $M = 0\pm 0.02\mu_B$  dans le cas de l'hypothèse n°2.

**Ainsi, il n'y a aucun signal magnétique (à la précision de  $0.02 \mu_B$ ) dans le composé  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  pour  $x=0.1$  compatible avec l'hypothèse d'un ordre à longue distance respectant la symétrie du réseau.**

## 6.2.2 Test de l'hypothèse n°1 et n°3 pour un ordre à longue portée

Dans le cas de l'hypothèse n°1 et n°3, l'étude est en principe facile. En effet, la contribution magnétique est alors attendue sur les raies de Bragg nucléaires éteintes du type :  $h+l=2n+1$  où  $n$  est entier. Ainsi la mise en évidence du signal magnétique n'est donc pas a priori superposé avec une contribution nucléaire. Pour cette raison, nous avons commencé nos mesures sur des spectromètres en configuration non polarisée, à savoir le diffractomètre 3T et les spectromètres 1T et 2T. A titre indicatif, cette étude représente deux à trois semaines d'expérience.

Notre étude s'est essentiellement concentrée sur les raies (100), (102) et de façon plus ponctuelle sur les raies (104), (106), (108), (201), (203) et (205). Bien qu'aucun pic de Bragg nucléaire ne soit attendu, il peut exister pour ces vecteurs d'onde particuliers des contaminations nucléaires. Deux types de processus peuvent donner lieu à une contamination nucléaire sur une raie interdite. La première contamination vient de la présence d'ordres multiples dans le faisceau de neutrons incidents. Le monochromateur sélectionne l'énergie incidente des neutrons suivant la loi de Bragg  $2d_m \sin \theta_m = n\lambda_i = n\frac{2\pi}{k_i}$  où  $d_m$  représente la distance interréticulaire du monochromateur,  $\theta_m$  l'angle entre le faisceau de neutrons et la surface du monochromateur,  $\lambda_i$  la longueur des neutrons réfléchis par le monochromateur et  $n$  un entier. Le faisceau incident n'est donc pas purement monochromatique puisqu'il contient des neutrons de vecteur d'onde :  $k_i, \frac{k_i}{2}, \frac{k_i}{3}$ , etc. Cette remarque est également vraie pour l'analyseur. Si pour le vecteur d'onde  $k_i$  on se trouve au vecteur d'onde

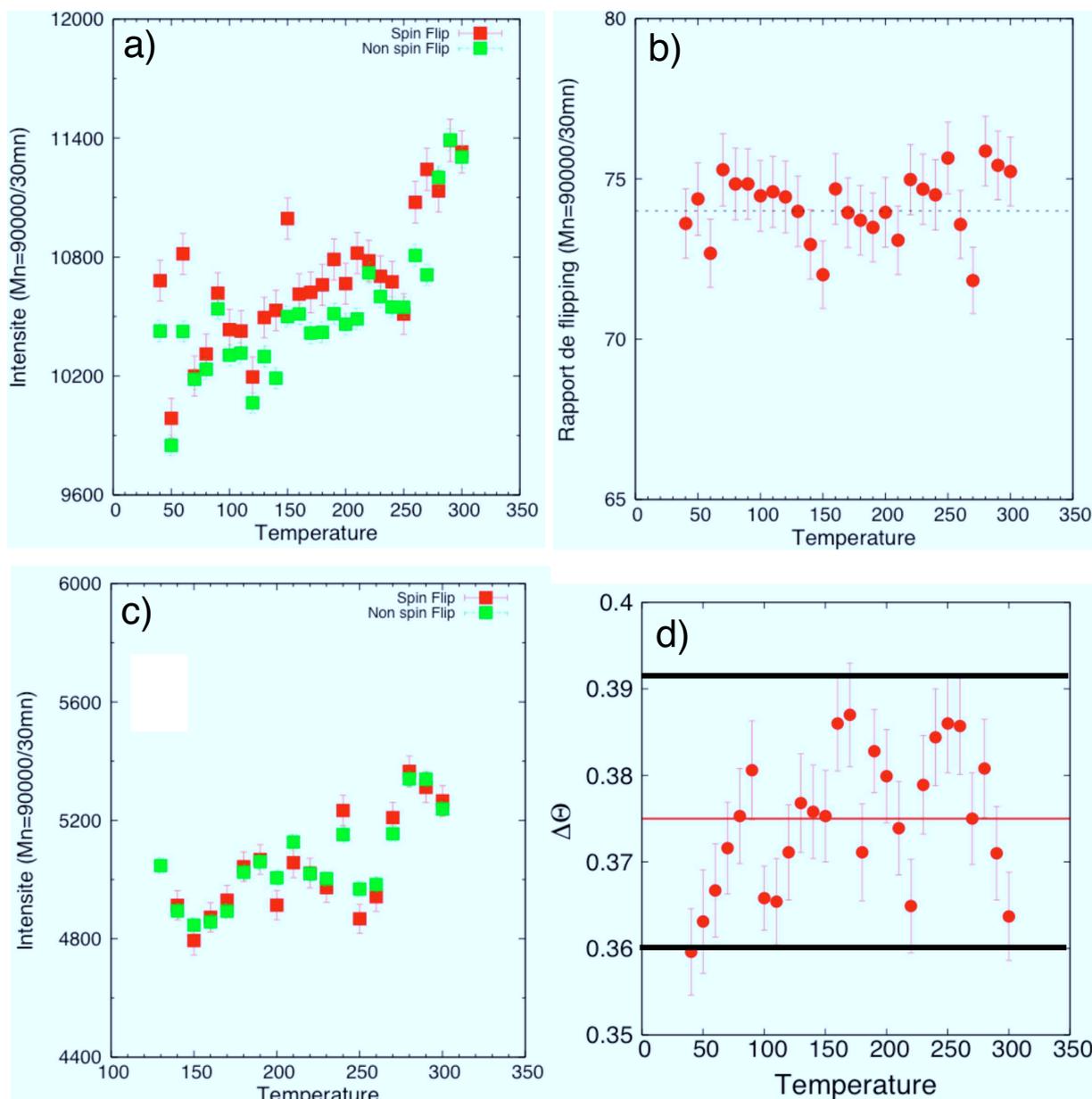


FIG. 6.3: Etude du cas où l'ordre est à longue portée et respecte la symétrie de translation : a) Etude en température de l'intensité SF (points rouges) et NSF (points verts) sur la raie (101) pour P//Q sur le spectromètre 4F1 pour  $k_i=2.662\text{\AA}^{-1}$ . b) Rapport de flipping en fonction de la température déduit des mesures reportées en a). c) Même chose que a) avec les quatre lames extérieures de l'analyseur de Heusler cachées. d) Evolution de la largeur de la coupe en rotation de l'échantillon en fonction de la température. Contrairement à la Fig.4.4, nous n'observons aucun changement en fonction de la température.

$\mathbf{Q}=\mathbf{k}_i - \mathbf{k}_f$ , alors il peut y avoir pour ce même  $\mathbf{Q}$  une contamination de la raie (2,0,0) par l'ordre multiple  $n=2$ . En effet, on a  $(1,0,0)=\frac{1}{2}(2,0,0)=\frac{1}{2}(\mathbf{k}'_i - \mathbf{k}'_f)$  où  $\mathbf{k}'_{i,f} = 2\mathbf{k}_{i,f}$ . Ces effets peuvent être éliminés par l'utilisation de filtre. Dans la mesure où l'intensité des pics de Bragg est relativement indépendante de la température, cet effet ne changera pas en température. Expérimentalement, nous avons observé l'existence d'une contribution en (1,0,0) et (1,0,2) très sensible au filtrage utilisé. Pour tester la qualité de filtrage, nous nous sommes placés à  $T=300\text{K}$  (au-dessus de la transition structurale) et nous avons placé autant de filtres que nécessaires pour faire disparaître le pic observé. Nous avons réussi à éliminer cette contribution dans le cas de la raie (102) mais pas dans le cas de la raie (100). La raie (102) présente l'avantage d'avoir une contamination en  $\lambda$  sur 2 plus faible que la raie 100 car l'intensité de la raie (204) est environ 25 fois plus faible que la raie (200). Notre étude s'est donc principalement concentrée sur la raie (102).

Le second type de processus qui peut donner lieu à une contamination nucléaire est la diffusion multiple. Dans le chapitre 2, nous avons dérivé les sections efficaces de diffusion des neutrons dans l'approximation cinématique. Dans cette approximation, on néglige la possibilité de diffusion multiple, c'est-à-dire que l'on suppose que le neutron interagit une seule fois avec la matière. Dans le cas d'une diffusion multiple de type Bragg, le neutron interagit une première fois avec la matière avec un vecteur de diffusion  $\mathbf{Q}=(h,k,l)$  et une seconde fois avec un vecteur de diffusion  $\mathbf{Q}'=(h',k',l')$ . Finalement, tout se passe comme si le neutron avait interagi une fois mais avec un vecteur de diffusion  $\mathbf{Q}''=(h+h',k+k',l+l')$ . Ce type de processus est a priori peu probable mais doit être envisagé lorsque l'on travaille sur de gros échantillons et que l'on s'intéresse à des signaux faibles (donc de longs temps d'acquisition) comme c'est le cas ici. Dans le cas de la phase tétragonale, aucun processus de diffusion multiple ne peut donner de signal sur les raies (h,0,l) avec  $h+l=2n+1$ . En effet, seules les raies (h,k,l) avec  $h+k+l=2n$  sont allumées, ainsi toute combinaison linéaire de vecteurs du réseau réciproque satisfera toujours la condition  $h+k+l=2n$ . Au-dessous de  $T_o$  par contre, la situation est différente. Les raies  $(\frac{h}{2}, \frac{k}{2}, l)$  (en notation tétragonale) sont allumées, on peut donc s'attendre à l'existence d'une contribution nucléaire pour les raies (h,0,l) avec  $h+l=2n+1$  par diffusion multiple (par exemple  $(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, 2)$  et  $(\frac{1}{2}, -\frac{1}{2}, 2)$  donnent une contribution en (1,0,2)). Contrairement à la première contamination, l'intensité de cette contamination changera en fonction de la température et ne peut donc pas être éliminée par différence en température. Elle est proportionnelle au paramètre d'ordre de la transition structurale.

La seule façon de minimiser cette contribution est de trouver la longueur d'onde pour laquelle cette diffusion est la plus petite. En changeant la longueur d'onde, on change le diamètre de la sphère d'Ewald et on fait ainsi varier le nombre de processus donnant lieu à de la diffusion multiple. A titre d'illustration, on reporte sur la Fig.6.4.a) l'évolution de l'intensité de la raie (1,0,2) (en points rouges) et d'un point de bruit de fond ( $\mathbf{Q}=(0.9,0,2)$  en points verts) en fonction de  $k_f$  à  $T=40\text{K}$ . L'intensité du point de bruit de fond diminue de façon continue avec  $k_f$  sans présenter de pic <sup>1</sup>. Par contre, l'intensité du pic de Bragg (1,0,2) montre deux pics de forte intensité pour  $k_f = 2.52\text{\AA}^{-1}$  et  $k_f = 2.63\text{\AA}^{-1}$  et rejoint à plus grand  $k_f$  l'évolution du point de bruit de fond. Un grossissement autour de  $k_f$  compris entre 2.68 et 2.72 montre qu'un petit signal persiste toujours en (1,0,2) à basse température.

La forte dépendance de l'intensité mesurée en (1,0,2) en fonction de la longueur d'onde suggère qu'une partie du signal est liée à de la diffusion multiple. Cet effet est minimisé autour de  $k_f = 2.69\text{\AA}^{-1}$ . Toute la question est donc maintenant de savoir comment évolue ce signal en température et quelle est sa nature, magnétique ou nucléaire.

### Etude en neutrons non polarisés

D'après la Fig.6.4.a), la contamination liée à la diffusion multiple est minimale autour de  $k_i = 2.69\text{\AA}^{-1}$  sur le spectromètre 2T. Nous avons ensuite étudié l'évolution de ce signal dans l'espace réciproque et en

<sup>1</sup>la légère pente est liée à la transmission du filtre PG

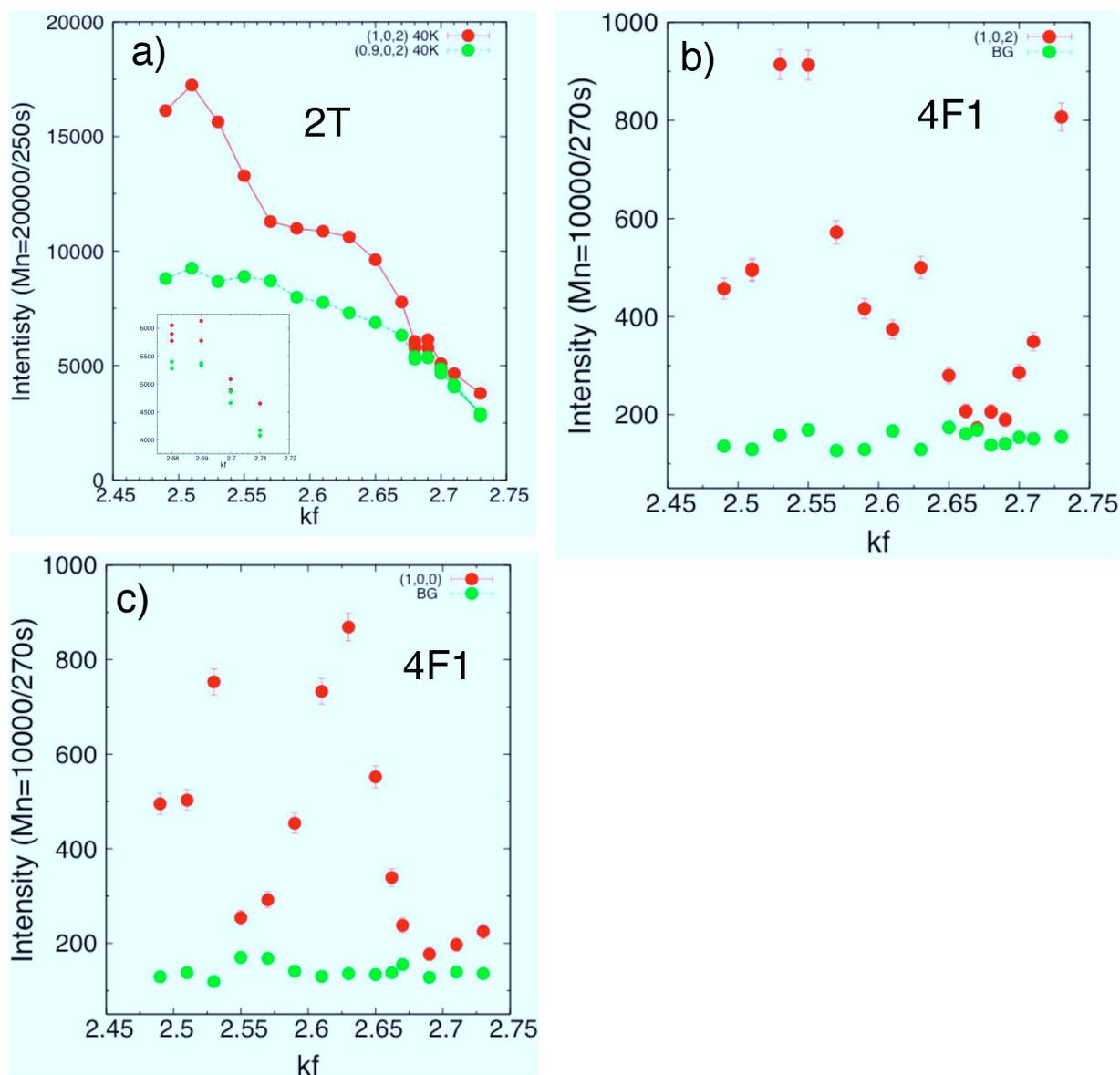


FIG. 6.4: Illustration de la diffusion multiple : a) Etude en température de la raie nucléaire interdite (1,0,2) (en points rouges) en fonction de  $k_f$  sur le spectromètre thermique 2T, on reporte également en points verts la même évolution pour un point de bruit de fond  $Q=(0.9,0,2)$ . L'encadré est un agrandissement autour des valeurs de  $k_f$  comprises entre  $]2.68, 2.72[$ . b) Même chose qu'en a) sur le spectromètre 4F1. c) Même chose qu'en b) autour de la valeur  $Q=(1,0,0)$  (et respectivement  $Q=(0.9,0,0)$  pour le point de bruit de fond en vert)

température. Nous reportons sur la Fig.6.5.a) (respectivement b)) la coupe le long de la direction (1,0,L) pour L proche de 2 (et (H,0,2) autour de H=1) pour des températures T allant de T=15K à 270K. Les coupes à basse température présentent un pic centré en L=2 ( et H=1) de largeur  $\Delta L=0.09\text{r.l.u.}=0.044\text{\AA}^{-1}$ , c'est-à-dire des longueurs de corrélation le long de l'axe c de l'ordre de 22 Å (et  $\Delta H=0.03\text{r.l.u.}=0.049\text{\AA}^{-1}$ , c'est-à-dire des longueurs de corrélation de l'ordre de 20Å dans le plan). Il est important de noter que ces largeurs sont plus grandes que la résolution expérimentale  $\Delta_r L=0.04\text{ r.l.u}$  et  $\Delta_r H=0.02\text{ r.l.u}$ . Le signal est en fait deux fois plus large que la largeur expérimentale. Les deux coupes à haute température ne présentent plus de pics, le signal a donc disparu autour d'une température T=245K. Afin de préciser la température à laquelle cet effet apparaît, nous avons réalisé un suivi en température sur la raie (1,0,2) et sur un point de bruit de fond. Nous reportons le résultat de cette étude sur la Fig.6.5.c). Dans la barre d'erreur, le suivi en température suggère que le signal sur la raie (1,0,2) (points rouges sur la Fig.6.5.c)) apparaît autour de T=250K, c'est-à-dire une température inférieure à  $T_o$ . A titre indicatif nous proposons ici de donner la valeur du moment déduite de cette étude si nous supposons que ce signal est bien d'origine magnétique. L'intensité magnétique déduite serait alors égale à :  $I_{mag}=0.3\text{mbarns}^2$ . Le facteur de structure magnétique dans le plan est le même que celui de la partie précédente, il suffit justifier de modifier la modulation le long de l'axe c. On déduit ainsi un moment  $M = 0 \pm 0.03\mu_B$  dans le cas où l'on suppose que ce signal est d'origine magnétique.

Ainsi, l'ensemble de ces résultats suggère l'existence d'un signal de largeur deux fois plus large que la résolution expérimentale et apparaissant en  $Q=(1,0,2)$  à partir de 250K. Ces résultats sont a priori compatibles avec le signal recherché. Cependant, nous n'avons pas la preuve que ce signal est d'origine magnétique. En particulier, nous ne pouvons pas exclure que la diffusion multiple soit responsable du pic observé. Seuls les neutrons polarisés peuvent nous permettre de résoudre ce problème. Dans ce but, nous avons réalisé une étude en neutrons polarisés sur le spectromètre 4F1.

### Etude en neutrons polarisés

Comme dans le cas de la mesure en neutrons non polarisés, nous avons ajusté la longueur des neutrons pour minimiser l'effet de la diffusion multiple. Nous reportons sur la Fig.6.4.b) et c) l'évolution de l'intensité mesurée à basse température en fonction de  $k_i$  autour des pics de Bragg nucléaires (1,0,2) et (1,0,0). Les évolutions sont qualitativement assez proches : on retrouve des maxima autour de  $k_f = 2.52\text{\AA}^{-1}$  et  $k_f = 2.63\text{\AA}^{-1}$ . Cependant, l'amplitude de l'effet est quantitativement différente. Dans les deux cas, on observe un minimum autour de  $k_f = 2.69\text{\AA}^{-1}$ . Cette valeur semble donc être indépendante du spectromètre considéré.

Les conditions expérimentales étant présentées, intéressons nous maintenant au principal résultat de cette étude (reporté sur la Fig. 6.6). Nous avons réalisé des coupes à basse température le long de la direction (1,0,L) autour de L=2 pour trois polarisations des neutrons  $\mathbf{P} // \mathbf{Q}$  (Fig. 6.6.a)),  $\mathbf{P} // \mathbf{z}$  (Fig. 6.6.c)) et  $\mathbf{P} \perp \mathbf{Q}$  (Fig. 6.6.d)) et pour L=0 pour une seule polarisation  $\mathbf{P} // \mathbf{Q}$  (Fig. 6.6.b)). Pour chacune des ces coupes, on reporte les intensités SF (points rouges) et NSF (points verts). Dans les quatre cas, l'intensité NSF présente un maximum de largeur  $\Delta L=0.09\text{r.l.u}$  qui est absent du canal SF. La mise en unités absolues du pic observé dans le canal NSF donne que  $I_{pic} \approx 0.1\text{mbarns}$ . L'intensité et la largeur de ce pic sont du même ordre de grandeur que ceux observés dans le cas de nos expériences de neutrons non polarisés. Ce pic est associé à un processus NSF quelle que soit la polarisation du neutron. Le pic discuté dans la partie précédente n'est donc pas de nature magnétique. A partir de la discussion de la partie précédente nous déduisons que ce pic est lié à la diffusion multiple et à la transition structurale.

Néanmoins, tout comme dans la partie 6.2.2, nous pouvons déduire des barres d'erreur de l'intensité SF la valeur du moment maximum présent dans le système pour le cas d'un ordre à longue distance qui brise

<sup>2</sup>comme dans la partie précédente la mise en unités absolues a été réalisée grâce à l'intensité de la raie (1,0,1), on a tenu compte de la différence des largeurs en Q des signaux

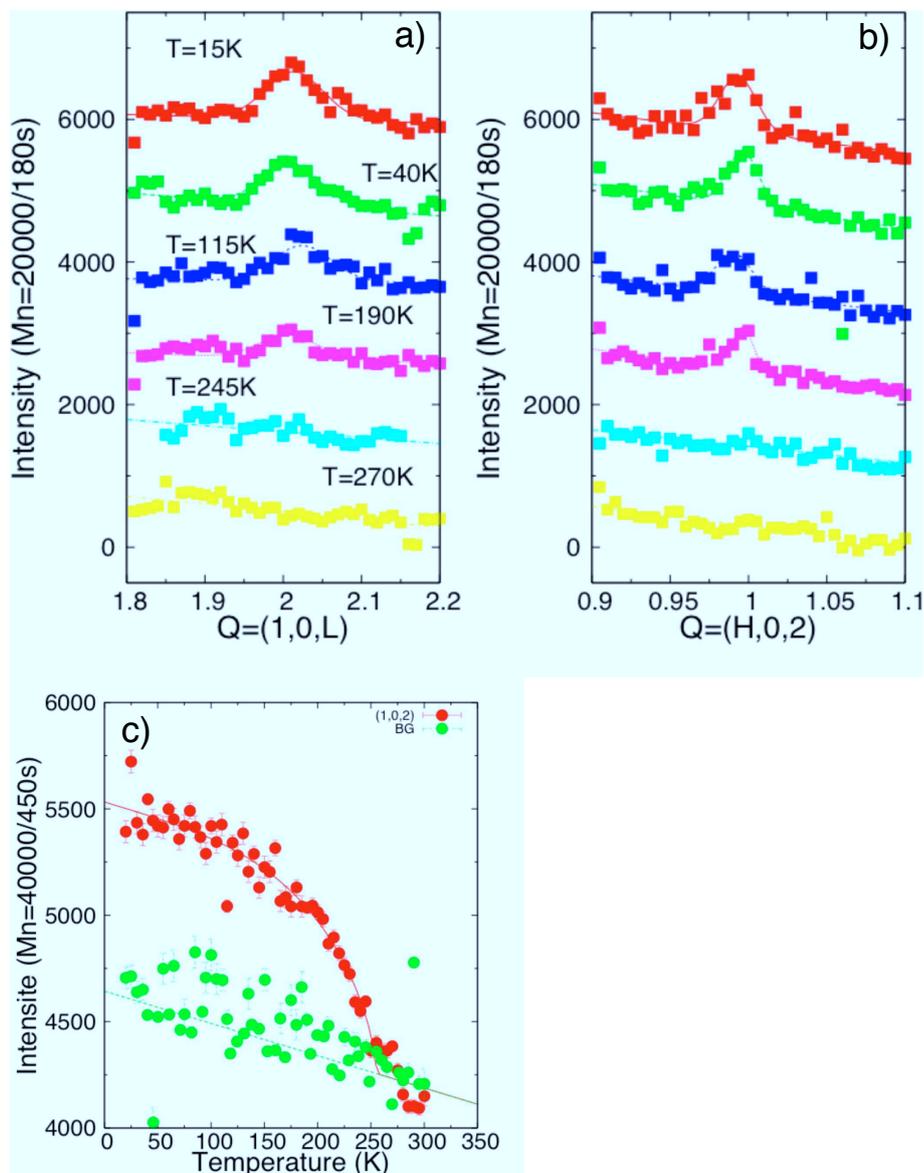


FIG. 6.5: Etude du cas où l'ordre est à longue portée et ne respecte pas la symétrie de translation le long de l'axe  $c$  (en neutrons non polarisés sur 2T pour  $k_i=2.69\text{\AA}^{-1}$ ) : a) Intensité mesurée le long de la direction  $(1,0,L)$  autour de la valeur  $L=2$  pour différentes températures allant de  $T=15\text{K}$  (points rouges) à  $T=270\text{K}$  (points jaunes) sur le spectromètre 2T. b) Même chose le long de la direction  $(H,0,2)$  autour de la valeur  $H=1$ . c) Etude en température de l'intensité mesurée pour  $Q=(1,0,2)$  (en points rouges) et  $Q=(0.9,0,2)$  (en points verts)

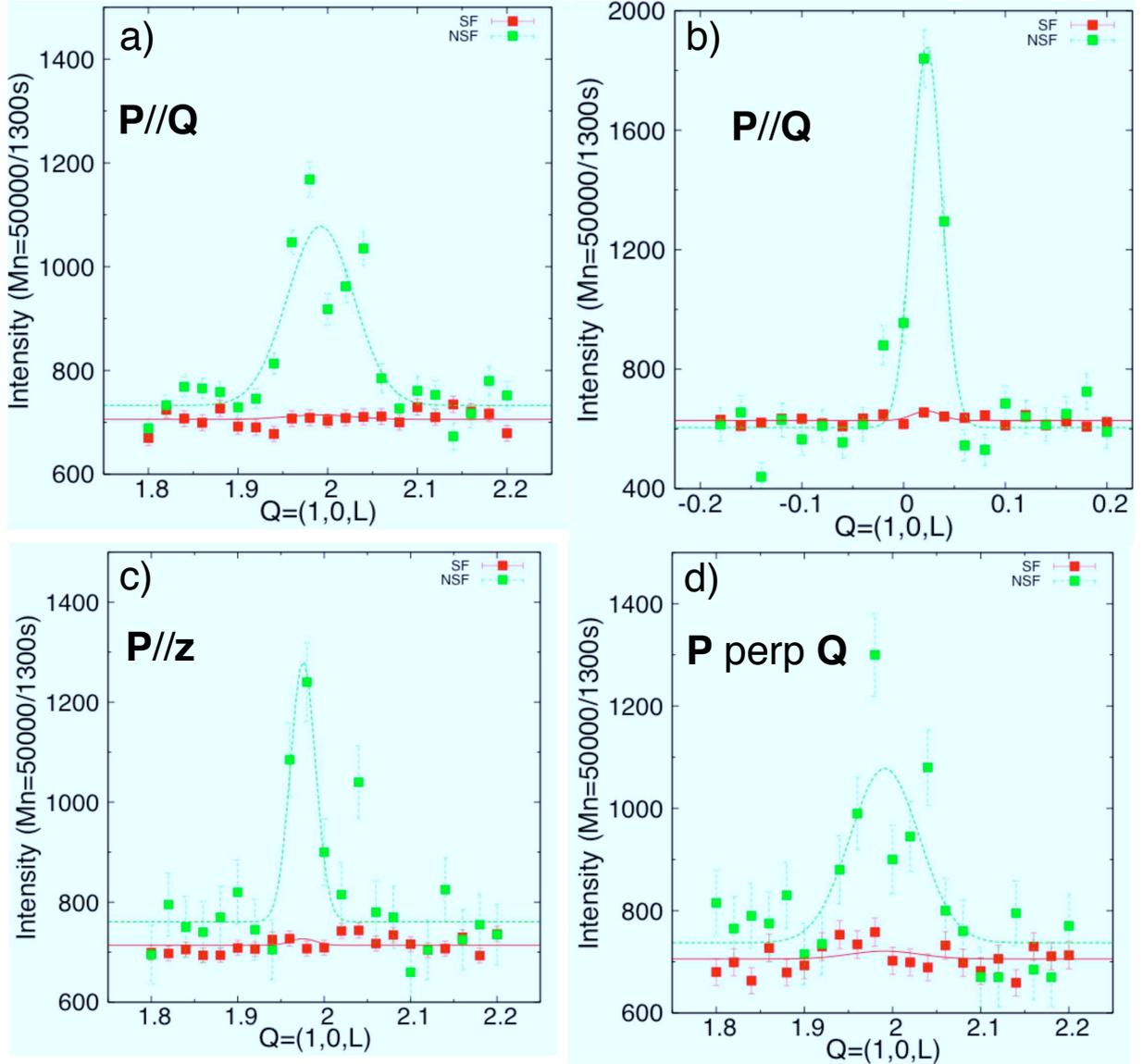


FIG. 6.6: Etude du cas où l'ordre est à longue portée et ne respecte pas la symétrie de translation le long de l'axe  $c$  (en neutrons polarisé sur 4F1 pour  $k_i=2.69\text{\AA}^{-1}$ ) a) Intensités SF (points rouges) et NSF (points verts) mesurées le long de la direction  $(1,0,L)$  pour  $L=2$  et  $P//Q$ . b) Même chose qu'en a) pour  $L=0$  c) Même chose qu'en a) pour  $P//z$ . d) Même chose qu'en a) pour  $P \perp Q$

la symétrie de translation le long de l'axe  $c$  et pour la phase  $CC - \theta_{II}$ . L'intensité magnétique déduite des mesures reportées sur la Fig.6.6.a) est égale à  $I_{mag}=0\pm 15$  cts en 30mn. La mesure de la raie  $(1,0,1)$  permet de mettre en unités absolues :  $I(1,0,1)_{NSF}=650000\text{cts}=200\text{mbarns}$ , on en déduit que  $I_{mag}=0\pm 0.01\text{mbarns}$ . On reporte dans le Tab.A.3 le facteur de structure magnétique utilisé et la valeur du moment déduite  $M = 0 \pm 0.01\mu_B$  dans le cas de l'hypothèse n°1. Dans le cas de l'hypothèse n°3, la situation est un peu plus compliquée car il faut connaître précisément la modulation de l'ordre le long de l'axe  $c$ . Contrairement à l'hypothèse n°1 où  $g(L)=1$ , dans le cas de l'hypothèse n°3,  $g(L)<1$ , la valeur du moment déduit sera plus grand que dans le cas de l'hypothèse n°1. Typiquement, le moment déduit dans le cas de l'hypothèse trois est de l'ordre de  $0.01-0.02\mu_B$ .

**Ainsi, il n'y a aucun signal magnétique (à la précision de l'ordre de 0.01 à 0.02  $\mu_B$  en fonction de la corrélation le long de l'axe  $c$ ) dans le composé  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  pour  $x=0.1$  compatible avec l'hypothèse d'un ordre à longue distance ne respectant pas la symétrie du réseau.** Dans l'état actuel de nos données, il n'y a aucune preuve de l'existence d'un ordre à longue distance compatible avec la phase  $CC-\theta_{II}$ . Nous nous intéressons maintenant à la seconde hypothèse : celle de l'ordre est à courte portée.

### 6.2.3 Test de l'hypothèse n°1 et n°2 pour une ordre à courte portée

Comme nous l'avons discuté dans la partie 6.1.2, la situation expérimentale dans le cas d'un ordre à courte portée est différente de celle d'un ordre à longue distance. Pour un ordre à courte portée, il existera un signal magnétique là où il n'y a pas de pic de Bragg nucléaire. Dans le cas de l'hypothèse n°1, quelle que soit la valeur de  $L$  on attend un pic le long de la direction  $a^*$  centré en  $H=1$  dont la largeur est imposé par la résolution expérimentale. Dans le cas de l'hypothèse n°2, on attend un pic plus large que la résolution expérimentale, centré en  $H=1$  pour une valeur  $L$  proche de 1 (on suppose alors une faible corrélation qui respecte la symétrie du réseau). Afin de tester à la fois les hypothèses 1 et 2, nous avons réalisé des coupes le long de la direction  $(H,0,0)$  pour des valeurs de  $L$  non entières et proches de  $L=1$ . Dans le cas de l'hypothèse n°2, l'idée est de travailler à proximité du pic de Bragg nucléaire (l'intensité magnétique  $y$  est maximale) mais assez loin du pic de Bragg nucléaire (pour avoir bruit de fond minimum). Pour ces raisons, nous avons choisi de travailler en neutrons polarisés pour un vecteur d'onde  $k_i=1.55\text{\AA}^{-1}$  (c'est-à-dire avec une bonne résolution en  $\mathbf{Q}$  pour venir le plus proche possible du pic de Bragg nucléaire). Nous reportons ici les résultats de nos mesures sur les deux spectromètres 4F1 et IN14. A titre indicatif, cette étude représente quatre à cinq semaines d'expérience tout spectromètre confondu.

#### Etude sur 4F1

Dans le cas du spectromètre 4F1, on travaille avec un rapport de flipping entre 40 et 50. La valeur de  $L$  à laquelle nous avons réalisé nos mesures est imposée par la largeur du pic de Bragg nucléaire. Aucune contribution nucléaire n'est observée en  $(1,0,L)$  pour  $L \leq 0.9$ .

On reporte l'intensité SF le long de la direction  $(H,0,0.9)$  pour  $\mathbf{P} // \mathbf{Q}$  sur la Fig.6.7.a) à  $T=40\text{K}$  (en points rouges fermés) et sur la Fig.6.8.b) à  $T=40\text{K}$  (en points rouges fermés) et  $T=250\text{K}$  (en points rouges ouverts). A basse température, la coupe peut être ajustée par un pic centré en  $H=1$  de largeur  $\Delta H=0.16\text{r.l.u.}$  Ce pic a disparu dans la coupe SF à  $T=250\text{K}$  (voir Fig.6.8.b)). On reporte également sur la Fig.6.7.b) l'étude du canal NSF à basse température sur trois points. Cette coupe ne montre pas de structure particulière qui pourrait expliquer le signal dans le canal SF.

En plus de la polarisation  $\mathbf{P} // \mathbf{Q}$ , nous avons étudié deux autres polarisations mais seulement sur trois points  $(0.84,0,0.9), (1,0,0.9)$ . Ce choix est du aux longs temps d'acquisition nécessaire (de l'ordre de plusieurs heures par point pour une polarisation et une température) qui limite considérablement le champ

d'investigation. Dans le cas du point  $\mathbf{Q}=(0.84,0,0.9)$ , l'intensité SF est plus grande dans le cas  $\mathbf{P} \perp \mathbf{Q}$  (et  $\mathbf{P} // \mathbf{z}$ ) que dans le cas  $\mathbf{P} // \mathbf{Q}$ , ce qui ne suggère aucun signal magnétique. Par contre en  $\mathbf{Q}=(1,0,0.9)$ , l'on observe  $I_{SF}(\mathbf{P} // \mathbf{Q}) > I_{SF}(\mathbf{P} // \mathbf{z}) > I_{SF}(\mathbf{P} \perp \mathbf{Q})$  en accord avec l'existence d'un signal magnétique. Plus exactement, l'analyse complète de polarisation donne sur ces deux points :  $I_{mag}(0.84,0,0.9) = -7 \pm 9 \text{cts}$  et  $I_{mag}(1,0,0.9) = 12 \pm 7 \text{cts}$ . En  $\mathbf{Q}=(0.84,0,0.9)$ , la valeur négative démontre qu'il n'y a aucun signal magnétique. En  $\mathbf{Q}=(1,0,0.9)$ , l'analyse complète de polarisation est compatible avec un signal magnétique d'intensité 12cts. Une meilleure statistique serait en fait nécessaire pour établir ce fait de façon définitive. Néanmoins ceci est difficilement réalisable dans les conditions actuelles.

Nous sommes ensuite intéressés à l'évolution en température de l'intensité SF pour la polarisation  $\mathbf{P} // \mathbf{Q}$ . Nous reportons les résultats de ces suivis en température en  $\mathbf{Q}=(1,0,0.9)$  (en points rouges) sur la Fig.6.7.d) et  $\mathbf{Q}=(1.1,0,1)$  (en points rouges) et  $\mathbf{Q}=(0.8,0,0.9)$  (en points verts) sur la Fig.6.7.c). En  $\mathbf{Q}=(1,0,0.9)$ , l'intensité diminue à mesure que T diminue jusqu'à  $T=210\text{K}$  où l'intensité demeure constante. D'après la Fig.6.7.d), on déduit une intensité à basse température de  $10 \pm 3 \text{cts}$  en accord avec l'analyse de polarisation discutée précédemment. Le suivi en température en  $\mathbf{Q}=(1.1,0,1)$  confirme cette tendance puisque l'on observe, à mesure que T augmente, une augmentation de l'intensité autour de 210K jusqu'à 50K puis une chute de l'intensité. L'étude au point  $\mathbf{Q}=(0.8,0,0.9)$  montre que l'intensité y est constante avec la température. Partant de cette hypothèse, on peut déduire une intensité du signal de 16cts à 50K en  $\mathbf{Q}=(1.1,0,1)$ . Cette étude en température est particulièrement intéressante puisqu'elle permet de montrer que : (i) le signal n'apparaît que pour certaines valeurs particulières de H, celles autour de  $H=1$  ; (ii) le signal apparaît autour d'une température comprise entre 180K et 240K (typiquement au tour de 210K) , qui est inférieure à la température de transition structurale et (iii) il y a plus d'intensité en  $\mathbf{Q}=(1.1,0,1)$  qu'en  $\mathbf{Q}=(1,0,0.9)$ , ce qui suggère qu'il y a soit plus d'intensité en  $L=1$  qu'en  $L=0.9$  (il y aurait ainsi une modulation en L), soit qu'il y a plus d'intensité en  $H=1.1$  qu'en  $H=1$  ( le signal dans le plan aurait alors une tendance à l'incommensurabilité). Au vue de la statistique, il est en fait difficile de conclure.

#### Etude sur le spectromètre IN14

Afin de préciser la dépendance en  $\mathbf{Q}$  du signal observé dans le canal SF, nous avons prolongé notre étude en essayant d'améliorer les conditions expérimentales. Pour se faire, nous avons travaillé sur le spectromètre IN14 dans les mêmes configurations que sur le spectromètre 4F1, à savoir avec un montage de neutrons polarisés de type bobine de Helmholtz pour un vecteur d'onde incident  $k_i = 1.55 \text{Å}^{-1}$ . Dans ces conditions, le spectromètre IN14 possède un flux deux à trois fois supérieur à celui de 4F1<sup>3</sup> avec rapport de flipping  $R=23$ . Nous avons aussi augmenté le volume échantillon en co-alignant deux échantillons : la masse échantillon a été ainsi augmentée d'un facteur 1.5. On espère gagner ainsi un facteur trois à cinq sur le intensité du pic magnétique à temps de comptage égal. Dans le cas de ce montage, aucune contribution nucléaire n'est observée en  $(1,0,L)$  pour  $L \leq 0.88$ . Nous avons donc réalisé nos coupes en H pour  $L=0.85$ . On reporte sur la Fig.6.8.a) l'évolution de l'intensité SF pour la polarisation  $\mathbf{P} // \mathbf{Q}$  à  $T=60\text{K}$  (en points rouges fermés) et  $T=250\text{K}$  (en points rouge ouverts). A  $T=250\text{K}$ , l'intensité le long de la direction  $(H,0,0.86)$  est quasi linéaire. A  $T=60\text{K}$ , l'intensité le long de la direction  $(H,0,0.86)$  a la même tendance plus une structure assez large centrée autour de la valeur  $H=1$ . Ceci est bien mis en évidence lorsque l'on reporte, comme sur la Fig.6.8.c), la différence des intensités SF entre  $T=60\text{K}$  et  $T=250\text{K}$ . Cette différence peut être ajustée de deux façons : soit par un bruit de fond linéaire plus un pic gaussien centré en  $H=1$  de largeur à mi-hauteur  $\Delta H = 0.3 \text{r.l.u}$  (c'est cet ajustement qui est proposé sur la Fig.6.8.c) en ligne rouge), soit par un bruit de fond linéaire plus deux pics gaussiens centrés en  $H=1 \pm \delta$  où  $\delta=0.1$  et de largeur à mi-hauteur  $\Delta H = 0.15$ . Quoi qu'il en soit de la description précise de ce pic, cette expérience confirme le résultat de l'expérience réalisée sur 4F1, à savoir

<sup>3</sup>cette valeur est déduite par la mesure de l'incohérent d'un échantillon de Vanadium d'1g sur les deux spectromètres dans les conditions expérimentales utilisées durant nos expériences

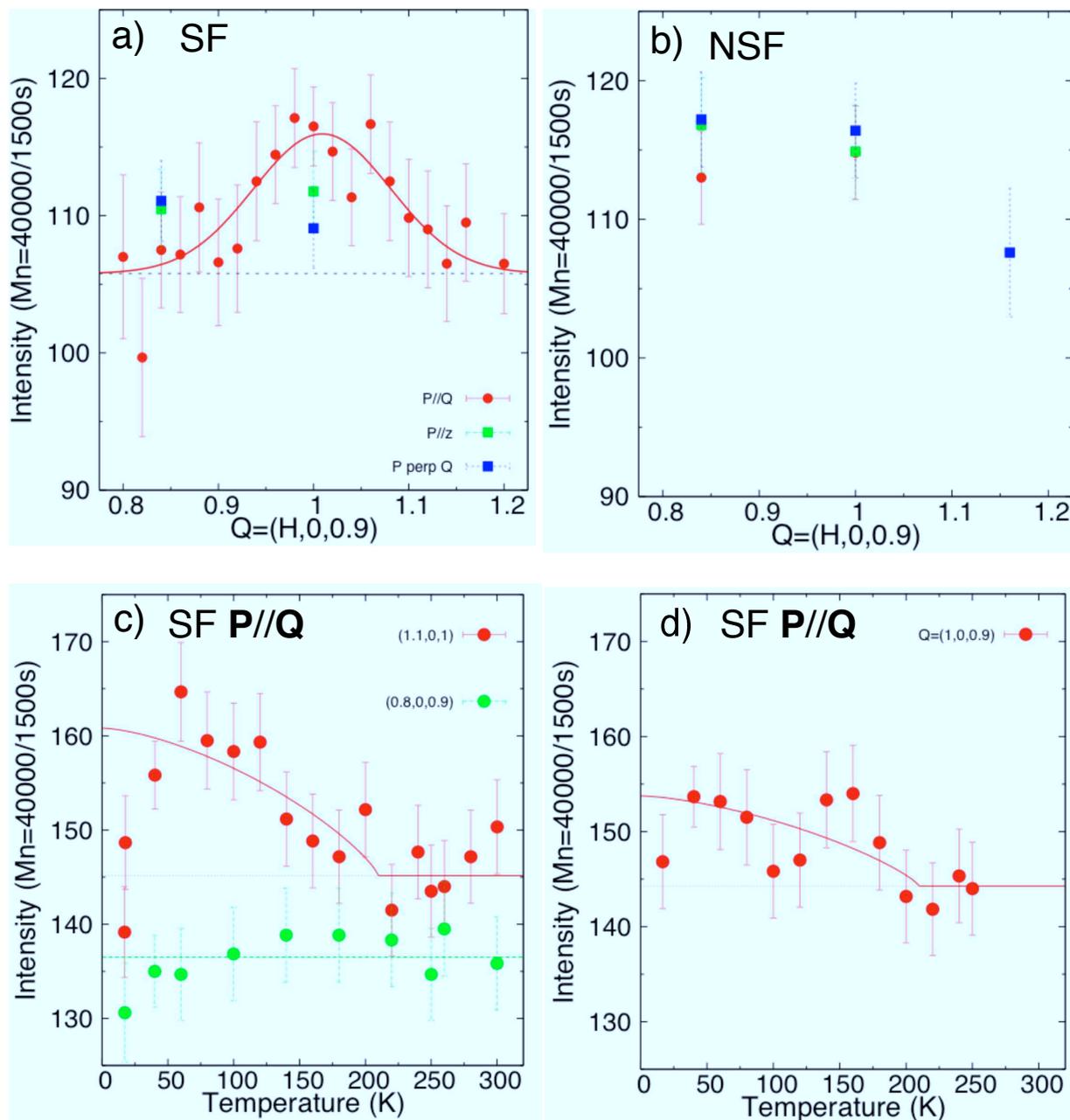


FIG. 6.7: Etude du cas où l'ordre est faiblement corrélé (en neutrons polarisés sur le spectromètre 4F1 et  $k_i=1.55\text{\AA}^{-1}$ ) : a) Intensité SF le long de la direction  $(H,0,9)$  autour de  $H=1$  à  $T=40\text{K}$  pour P//Q (points rouges), P//z (points verts) et  $P \perp Q$  (points bleus). b) Même chose qu'en a) dans le canal NSF. c) Etude en température de l'intensité SF pour P//Q en  $Q=(1.1,0,1)$  (en points rouges) et  $Q=(0.8,0,0.9)$  (en points verts). d) Même chose qu'en d) pour  $Q=(1,0,0.9)$ .

l'apparition d'un signal SF assez large autour de la valeur  $H=1$  à basse température. Néanmoins, plusieurs commentaires sont nécessaires.

A titre de comparaison, on reporte l'évolution de l'intensité NSF entre les basse et haute températures divisée par la valeur du rapport de flipping en points verts sur la Fig. 6.8.c). Cette différence permet de comprendre l'origine de l'évolution du bruit de fond linéaire dans la différence des intensités SF : elle semble être due à la variation en température de la fuite de polarisation du canal NSF dans le canal SF. De plus, il convient de remarquer qu'à temps de comptage égal, l'intensité du pic dans le canal SF mesurée sur le spectromètre IN14 est quatre fois supérieure à celle mesurée sur le spectromètre 4F1. Ceci est en accord avec nos estimations de la masse échantillon et du rapport des flux entre ces deux spectromètres. Cependant, le rapport signal sur bruit n'est pas le même, il est dans le cas de 4F1 de l'ordre de 10% et de l'ordre de 5% dans le cas de IN14. Autrement dit, à temps de comptage égal, le bruit de fond est dix fois plus intense sur le spectromètre IN14 que sur 4F1 alors que le signal n'est que quatre fois plus intense. Deux explications peuvent être proposées : soit le rapport signal sur bruit est particulièrement mauvais sur IN14, soit le rapport signal sur bruit a changé entre les deux expériences. Dans la mesure où nous avons changé le montage entre ces deux expériences, la seconde explication est la plus vraisemblable.

Il est important de noter que quel que soit l'ajustement utilisé pour l'expérience sur IN14, le signal est environ deux fois plus large que sur 4F1. Afin de comparer les résultats de ces deux études, on reporte sur les Fig.6.8.a) et Fig.6.8.b) les résultats bruts des coupes le long de la direction  $(H,0,0.9)$  à haute et basse températures pour les deux expériences. En fait, l'expérience sur le spectromètre IN14 invite à reconsidérer l'ajustement réalisé sur la Fig.6.7.a). En effet contrairement à ce que nous avons supposé, il semble que la ligne de bruit de fond déduite de la mesure à  $T=250K$  ne soit pas constante avec  $Q$  mais linéaire. Ceci est confirmé par la Fig.6.8.b) où l'on a reporté la coupe  $Q$  à  $T=250K$  mesurée sur 4F1. Nous proposons ainsi un nouvel ajustement de la mesure de 4F1 à  $T=40K$  sur la Fig.6.8.b). Sur celle-ci, on prend un bruit de fond en pente imposé par la mesure à  $T=250K$ . On déduit alors une largeur à mi-hauteur  $\Delta H = 0.21$ . Cette largeur est encore inférieure à celle observée sur IN14 mais elle montre que ces deux mesures ne sont pas incompatibles. En toute rigueur, il faudrait reprendre la mesure sur 4F1 sur une gamme de  $Q$  plus large et à  $T=60K$  (et non à  $T=40K$  comme dans notre mesure sur 4F1).

## Discussion

L'ensemble de ces deux mesures suggère donc l'existence d'une contribution magnétique qui apparaît autour de 210K autour du vecteur d'onde  $Q=(1,0,1)$ . Dans l'état actuel de nos données, différents types d'ajustements peuvent être réalisés. Un premier ajustement est de type commensurable avec une largeur dans le plan  $(H,K)$  comprise entre 0.2 et 0.3 r.l.u, c'est-à-dire avec des longueurs de corrélation variant entre 4 et  $6\text{\AA}$  (c'est-à-dire d'1 à 2 mailles). Le second ajustement est de type incommensurable avec une largeur dans le plan comprise entre 0.1 et 0.15 r.l.u, c'est-à-dire avec des longueurs de corrélation comprises entre  $6\text{\AA}$  et  $12\text{\AA}$ . Durant notre étude, nous nous sommes essentiellement concentrés sur les coupes le long de  $a$ , nous ne pouvons donc pas donner la longueur de corrélation de l'axe  $c$  de façon précise. Cependant, en utilisant les suivis en température, nous pouvons estimer de façon grossière  $\Delta L$ . A  $L$  fixé, on peut supposer en première approximation que :  $I(1.1,0,1) \approx I(1,0,1)$ . On déduit ainsi d'après la Fig.6.7.c) et d) que :  $\frac{I(1.1,0,1)}{I(1,0,0.9)} \approx \frac{I(1,0,1)}{I(1,0,0.9)} = \exp(4 \ln 2 \frac{0.01}{\Delta L}) = 1.7$ . On déduit alors que  $\Delta L = 0.23 \text{r.l.u}$ , c'est-à-dire des longueurs de corrélation le long de l'axe  $c$ , noté  $\xi_c$ , de l'ordre de  $\xi_c \approx \frac{2}{\Delta L} = 15\text{\AA}$ .

On possède ainsi tous les paramètres pour la mise en absolue. Pour les mesures sur 4F1 et sur IN14, l'intensité de ce pic donne  $I_{mag}=1.5 \text{mbarns}$ . D'après notre modélisation, il semble qu'il existe une faible corrélation le long de l'axe  $c$  avec un maximum en  $L=1$ . On suppose alors que le facteur de structure magnétique est le même que dans le cas d'un ordre à longue portée respectant la symétrie du réseau. Dans ces conditions, on trouve pour la phase  $CC-\theta_{II}$  un moment de  $0.1\mu_B$ .

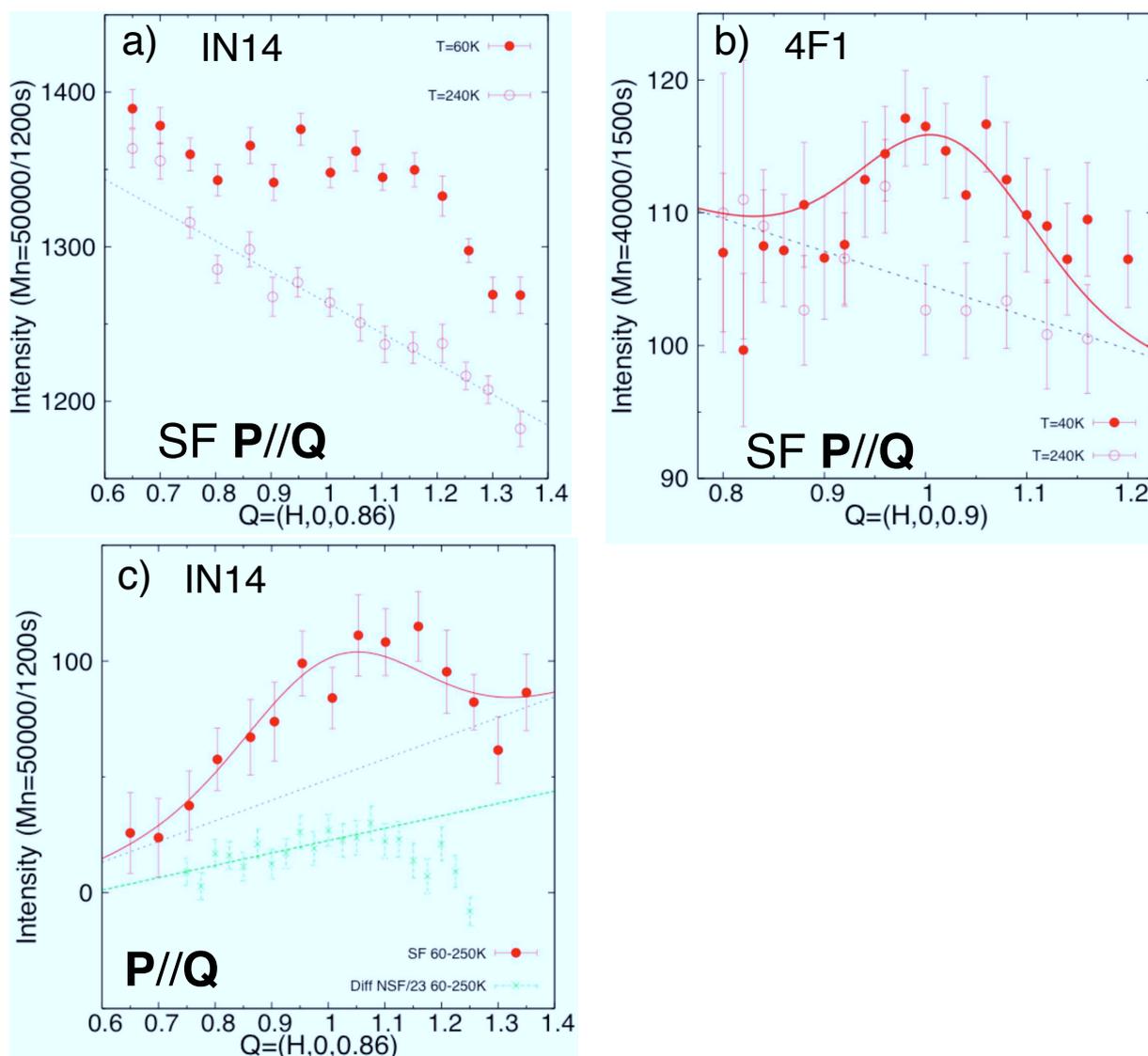


FIG. 6.8: Etude du cas où l'ordre est faiblement corrélé (en neutrons polarisés pour  $k_i=1.55\text{\AA}^{-1}$ ) : a) Intensité SF le long de la direction  $(\text{H},0,9)$  autour de  $\text{H}=1$  pour P//Q à  $T=60\text{K}$  (points rouges fermés) et  $T=250\text{K}$  (points rouges ouverts) sur le spectromètre froid IN14. b) Même chose qu'en a) sur le spectromètre froid 4F1 pour  $T=40\text{K}$  et  $T=250\text{K}$ . c) Différence entre les intensités SF (en points rouges fermés) et NSF (en points verts) mesurées le long de la direction  $(\text{H},0,9)$  autour de  $\text{H}=1$  pour P//Q à  $T=60\text{K}$  et  $T=250\text{K}$ . Dans le cas du canal NSF, la différence a été divisée par le rapport de flipping  $R$  où  $R=23$  sur le spectromètre IN14 pour P//Q.

## 6.2.4 Conclusion

Notre étude a permis d'éliminer un certain nombre d'hypothèses concernant l'existence d'un ordre magnétique dans la phase de pseudogap du composé  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ . En particulier, quelle que soit la modulation le long de l'axe  $\mathbf{Q}$ , aucun ordre magnétique à longue distance de symétrie compatible avec la phase  $\text{CC-}\theta_{II}$  et de moment plus grand que  $0.02\mu_B$  n'a été mis en évidence dans la phase de pseudogap du composé  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  pour  $x=0.1$ .

Cependant, l'étude du cas de figure où l'ordre est à courte portée a mis en évidence l'existence d'un signal dans le canal SF qui apparaît autour de 210K. Dans le plan les longueurs de corrélation sont de l'ordre de quelques mailles. Le long de l'axe  $\mathbf{c}$ , l'ordre est également à courte portée avec une longueur de corrélation de l'ordre d'une maille. Cette ordre à courte portée semble respecter la structure nucléaire centré. Notre analyse de polarisation suggère que ce signal est bien d'origine magnétique. Néanmoins, la statistique de ce résultat doit être améliorée pour confirmer ceci de façon définitive.

A titre de conclusion, nous proposons de discuter et d'essayer de mettre en perspective ce résultat. Dans le cas du composé  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ , le spectre d'excitation magnétique dans la phase normale est caractérisé par la présence de fortes fluctuations de basse énergie aux vecteurs d'onde  $\mathbf{Q} = (\pi(1 \pm \delta), \pi)$  et  $\mathbf{Q} = (\pi, \pi(1 \pm \delta))$ . Celles-ci peuvent même devenir statiques à basse température dans la phase sous-dopée. En particulier dans cet échantillon, R.Gilardi a reporté l'existence d'un ordre statique à très basse température à ces vecteurs incommensurables au-dessous de 20K [163]. Ainsi, on peut s'attendre à ce que ces fortes fluctuations influent sur l'ordre magnétique que l'on a précédemment décrit. En particulier, la diminution de l'intensité observée au-dessous de 30K sur la Fig.6.7.c) et d) pourrait correspondre à la conséquence de la mise en ordre proche du vecteur d'onde AF. On aurait ainsi une compétition entre plusieurs types d'ordres : la supraconductivité, l'ordre AF incommensurable et enfin la phase que nous venons de décrire (de symétrie compatible avec la phase  $\text{CC-}\theta_{II}$ ), chacun de ces ordres influençant l'autre. On propose ainsi un scénario en accord avec nos mesures neutrons : la réponse au vecteur d'onde AF est créée par une forte modulation de charge et de spin de type stripe. Entre ces lignes s'organise une autre phase de type  $\text{CC-}\theta_{II}$  de vecteur de propagation incommensurable. Ceci expliquerait la nature incommensurable et la largeurs du signal observé. Bien entendu, d'autres études sont nécessaires pour valider ce type d'image.

## 6.3 Spectre de fluctuation dans la phase de pseudogap du composé $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

Nos mesures indiquent l'existence d'un ordre magnétique présentant un caractère bi-dimensionnel, et il est naturel de supposer que cela sera également le cas pour le spectre de fluctuation associé à cet ordre. Nous nous sommes ainsi intéressés à l'étude du spectre de fluctuation du composé  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  pour  $x=0.1$  autour de  $\mathbf{q}=0$ . Il est important de noter que ce type d'étude n'a jamais été réalisée par diffusion de neutrons dans les cuprates supraconducteurs. Un outil de choix pour sonder le spectre de fluctuation d'un système présentant un fort caractère bi-dimensionnel est un spectromètre deux axes : nous le verrons dans une première partie. Nous présenterons ensuite les résultats préliminaires de notre étude. On proposera enfin une discussion du spectre observé.

### 6.3.1 Principe de la mesure

Dans le cas où le spectre de fluctuation est bi-dimensionnel, il est possible d'utiliser un spectromètre deux axes (c'est-à-dire sans analyse de l'énergie des neutrons diffusés) pour étudier ce spectre. On reporte un schéma illustrant le principe de la mesure sur la Fig.6.9.a). La configuration du spectromètre est choisie de

manière à ce que la direction du neutron diffusé soit perpendiculaire aux plans  $\text{CuO}_2$ . Si un spectromètre deux axes est utilisé, tous les neutrons diffusés sont détectés, quelle que soit leur énergie. L'idée de cette mesure est donc de réaliser une intégration du spectre magnétique en énergie le long d'une direction pour laquelle le spectre ne change pas. Historiquement, ce type de mesure a été utilisée par R.J. Birgeneau et al.[234] pour étudier le spectre de fluctuation magnétique bi-dimensionnel du composé  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  autour du vecteur d'onde planaire  $(\pi, \pi)$ . Plus récemment, ce type de montage a été également utilisé par E. Motoyama et al. [235] dans l'étude des composés dopés en électrons  $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}$ .

Dans le cas de notre étude, nous nous intéressons au spectre de fluctuation magnétique autour du vecteur d'onde planaire  $\mathbf{Q}_p=(-1,0)$ , la direction d'intégration choisie est la direction  $(0,0,L)$  comme dans le cas des mesures de R.J. Birgeneau et al.[234]. Pour réaliser cette intégration, il faut amener la direction de l'espace réciproque  $(0,0,L)$  parallèle à la direction de  $\mathbf{k}_f$ . On illustre cette géométrie particulière sur la Fig.6.9.a). Pour un transfert d'énergie nul ( $k_f=k_i=2.662\text{\AA}^{-1}$ ), il existe une seule valeur de L telle que  $\mathbf{k}_f // (0,0,L)$ , on a alors  $L=1.2$  (voir Fig.6.9.b)). Comme il n'y a pas d'analyse en énergie, tous les neutrons réfléchis le long de cette directions sont détectés. On détecte ainsi des neutrons avec un vecteur d'onde  $k'_f$  avec  $\mathbf{k}'_f // (0,0,L)$  et  $k'_f \neq k_i$ . Pour chaque  $\mathbf{k}'_f$ , on sonde alors un point de l'espace  $(\mathbf{Q}', \omega)$  où  $\mathbf{Q}' = \mathbf{k}'_f - \mathbf{k}_i$  avec un transfert d'énergie  $\hbar\omega = \frac{\hbar^2}{2m_n}(k'^2_f - k_i^2)$ . Comme on peut le voir sur la Fig.6.9.a), les différents  $\mathbf{Q}'$  se trouvent sur la droite de l'espace réciproque  $(1,0,L)$ . Si le spectre est considéré comme quasiment indépendant de L, cela revient donc à intégrer le spectre de fluctuation autour de  $\mathbf{Q}_p=(1,0)$ .

Les bornes de cette intégration sont imposées par les énergies maximale et minimale que le neutron transfère au système diffusant. Le neutron peut céder au maximum toute son énergie, c'est-à-dire  $E_i = \frac{\hbar^2 k_i^2}{2m}$ . Dans ce cas,  $E_f=0$ ,  $\hbar\omega = E_i$  et  $\mathbf{Q}=(1,0,4.8)$  (voir Fig.6.9.b)). L'énergie minimale du neutron est imposée par l'énergie que le neutron peut recevoir. Cette énergie est infinie, d'où  $E_f- > \infty$ . Connaissant maintenant les bornes d'intégration, on peut exprimer la section efficace de diffusion mesurée. D'après l'Eq.2.12 et 2.17, il vient que :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} \approx \int_{-\infty}^{E_i} |f(\mathbf{Q})|^2 \frac{\pi}{1 - \exp(-\frac{\hbar\omega}{k_B T})} \chi''(\mathbf{Q}, \omega) d\omega \quad (6.1)$$

Il convient de remarquer que deux raisons font que la borne d'intégration inférieure est en fait différente de  $E_f- > \infty$ . Tout d'abord, dans le cas où  $E_f- > \infty$ , on a  $|\mathbf{Q}|- > \infty$  et  $|f(\mathbf{Q})|- > 0$ . Ensuite, le facteur de balance détaillé tend également vers 0 dès que  $-\hbar\omega \gg k_B T$ . Ainsi la borne inférieure de l'intégration est plutôt de l'ordre de  $E_f = \delta k_B T$  avec  $\delta \approx 3$ [234]. Dans le cas où  $\delta = 1$ , L est égal à -3.4 (voir Fig.6.9.b)).

Ainsi, lorsque la direction  $(0,0,L)$  est parallèle à  $\mathbf{k}_f$  pour  $\mathbf{Q}=(1,0,L)$  et  $T=300\text{K}$ , on intègre le spectre d'énergie sur une gamme d'énergie variant de 14.7meV à -70meV. Expérimentalement, plusieurs configurations ont été testées (en particulier sur la collimation après échantillon). Nous concluons que la meilleure configuration est obtenue avec 60' de collimation devant détecteur.

### 6.3.2 Résultat des mesures

Toutes nos mesures ont été réalisées sur le spectromètre 3T pour des neutrons incidents  $k_i=2.662\text{\AA}^{-1}$ . Nous avons réalisé différents types de mesures. Nous reportons ici seulement quelques uns des résultats préliminaires.

Nous avons tout d'abord réalisé des coupes en H de -1.4 à -0.7. Pour chaque valeur de H, on ajuste la valeur de L pour que  $\mathbf{k}_f$  soit parallèle à  $(0,0,L)$  pour le processus de transfert d'énergie nulle (c'est-à-dire  $k_i=k_f$ ). A titre d'illustration, on reporte l'évolution dans l'espace réciproque des trois points planaires  $\mathbf{Q}_p=(-0.7,0)$ ,  $(-1,0)$  et  $(-1.3,0)$  pour lesquels la condition d'intégration est satisfaite sur la Fig.6.9.b). On reporte l'évolution de l'intensité mesurée le long de cette coupe en H sur la Fig. 6.10.a) pour  $T=260\text{K}$  (en points rouges) et

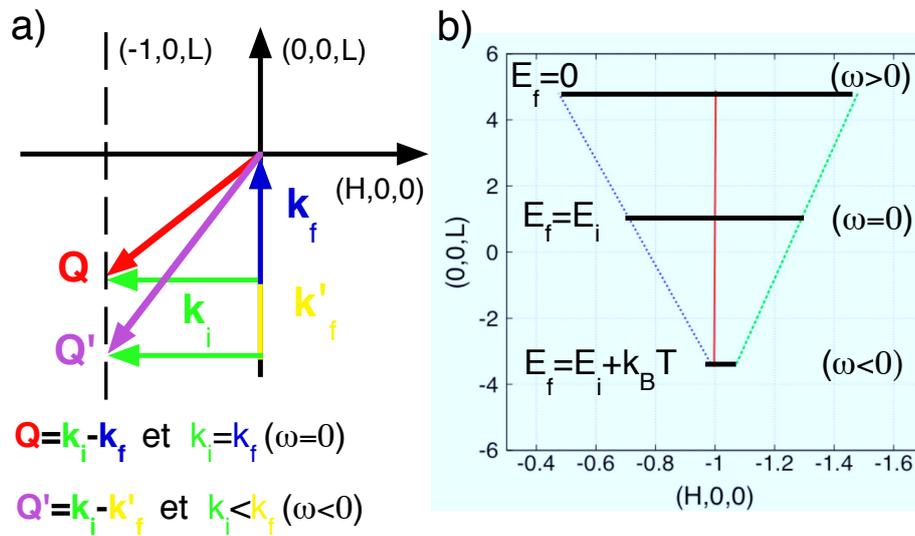


FIG. 6.9: Principe de mesure d'un spectre de fluctuation bi-dimensionnelle sur un spectromètre 2 axes : a) Plan de l'espace réciproque  $(H,0,0)/(0,0,L)$  sur lequel on superpose le diagramme de diffusion pour réaliser l'intégration du spectre de fluctuation en énergie le long de la direction  $(1,0,L)$ . L'intégration en énergie se fait entre  $E_f = E_i = 14.7 \text{ meV}$  et  $E_f = -\delta k_B T$ . b) On reporte le lien entre le transfert d'énergie et la position du point de l'espace réciproque (noté  $Q'$ ) pour les trois points planaires  $Q_p = (-0.7, 0)$ ,  $(-1, 0)$  et  $(-1.3, 0)$  pour lesquels la condition d'intégration est réalisée.

$T=60\text{K}$  (en points verts). Aux deux températures, les coupes ont des formes assez similaires. Entre  $H=-1.4$  à  $H=-1.1$ , l'intensité est à peu près constante. On observe par contre une augmentation très nette de l'intensité pour  $H>-1.1$ . Afin de mettre en évidence un changement en température dans cette coupe, on reporte sur la Fig.6.10.b) la différence des coupes en  $H$  entre  $T=260\text{K}$  et  $T=60\text{K}$  (en points rouges). Cette différence présente un pic en  $H=-1$  de largeur  $0.2$  r.l.u. Pour avoir une idée de l'évolution du bruit de fond le long de cette coupe, nous avons réalisé la même différence pour l'échantillon tourné de  $10^\circ$ . Dans ces conditions, la procédure d'intégration n'a plus lieu le long d'une direction privilégiée du spectre. Cette différence ne présente pas de pic mais une évolution linéaire en  $Q$  assez similaire à celle du bruit de fond déduit de l'ajustement (en ligne rouge sur la Fig.6.10.b)). Cette mesure montre ainsi que ce pic est bien spécifique à la condition d'intégration. Il est intéressant de noter que la largeur du pic déduite de ces mesures est très proche de la largeur du pic statique reportée dans la partie 6.2.3.

Aussi nous avons réalisé une coupe en  $L$  pour  $H=-1$ . Cette mesure est un peu compliquée car l'on échappe à une contamination par les pics de Bragg uniquement pour certaines valeurs de  $L$ . La différence entre les intensités à  $260\text{K}$  et à  $60\text{K}$  indique un pic centré autour de  $L=1.4$  de largeur  $\Delta L \approx 1$ . L'existence d'un pic pour cette valeur particulière de  $L$  est en bon accord avec notre coupe en  $H$  et notre procédure d'intégration.

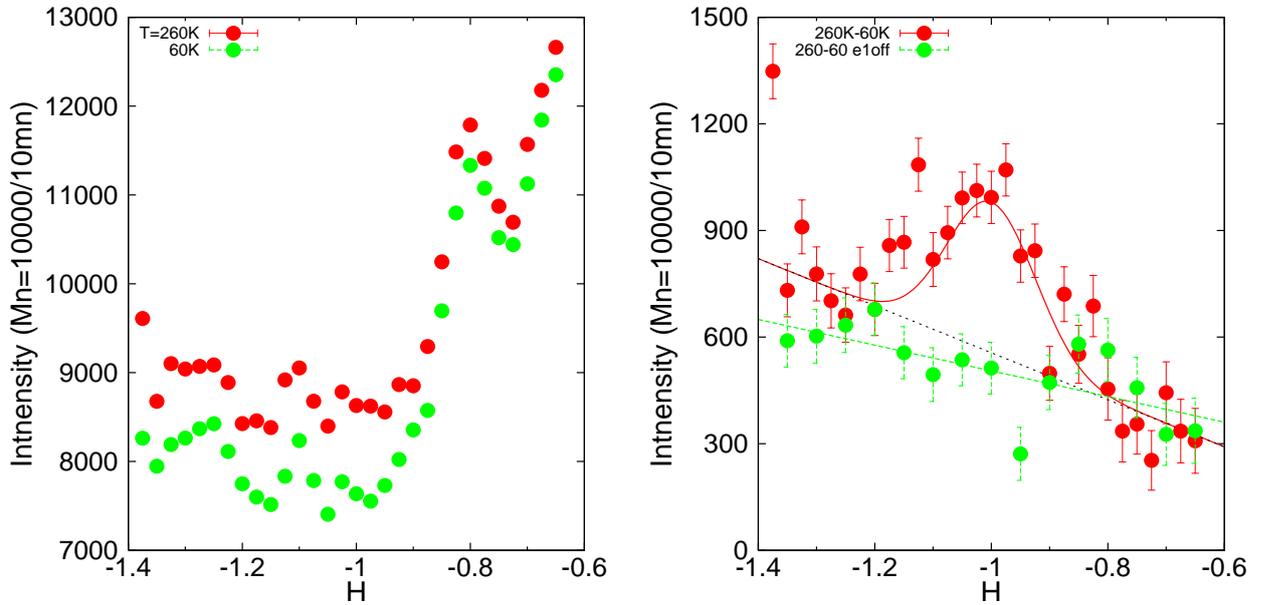


FIG. 6.10: Etude sur 3T1 du composé  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  a) Coupe le long de la direction  $(H,0,L)$  autour de  $H=-1$  pour  $T=260\text{K}$  (points rouges) et  $T=60\text{K}$  (points verts). Pour chacune des ces valeurs, on ajuste la valeur de  $L$  pour que  $k_f$  soit parallèle à la direction  $(0,0,L)$ . b) Différence entre  $T=260\text{K}$  et  $60\text{K}$  le long de la direction  $(H,0)$  en mode intégration. Les points rouges correspondent à la différence entre les données présentées en a). En points verts : même chose pour l'échantillon désaligné (de  $10^\circ$ ),  $|Q|$  reste constant mais la direction de  $Q$  a changé. On représente en ligne rouge l'ajustement gaussien des points rouges. On déduit de l'ajustement que l'intensité du pic est de 430cts (en 588s) avec une largeur  $\Delta H=0.2$  r.l.u. Il est intéressant de noter que la largeur du pic est très proche de la largeur du pic statique reportée dans la partie 6.2.3.

### 6.3.3 Discussion

Le principal résultat de cette expérience est la diminution du spectre d'excitation autour du vecteur d'onde  $\mathbf{q} = 0$  à mesure que la température diminue. D'après cette mesure, cet effet est localisé en  $\mathbf{q}$  avec une largeur  $\Delta H = 0.2$  r.l.u. On propose dans cette partie une discussion de ce résultat bien qu'une étude plus complète soit nécessaire pour conclure.

**Spectre magnétique ou phononique** Tout d'abord, il est important de noter que notre étude n'a pas été réalisée par diffusion de neutrons polarisés. Ainsi, nous n'avons pas la preuve que ce que nous observons soit bien lié à un changement dans le spectre de fluctuations magnétiques. Notre observation peut être soit liée à une modification du spectre magnétique, soit à une modification du spectre phononique. En effet, une hypothèse plausible est que notre observation soit liée à la différence de population thermique de phonons imposée par le facteur de balance détaillée. Seuls les neutrons polarisés ou d'autres mesures complémentaires pourraient nous permettre de répondre à cette question. Une étude est donc prévue sur le spectromètre 3T en configuration neutrons polarisés. Dans la suite de cette discussion, nous envisageons le cas où ce spectre est de nature magnétique.

**Un effet de surface de Fermi ?** Dans la mesure où la phase de pseudogap se caractérise par une diminution du poids spectral au niveau des points  $(\pi, 0)$  et  $(0, \pi)$  de la surface de Fermi, une première idée est d'associer l'effet observé à une conséquence de la formation des arcs de Fermi. Dans une image simpliste, la susceptibilité est donnée par Lindhard, la diminution du poids spectral autour des points rouges (voir Fig.6.11) va entraîner une diminution de la susceptibilité. La forme de la susceptibilité à haute température est représentée schématiquement en noir. Dans cet approche, on s'attendrait à un signal dont la largeur le long de la direction  $(H, 0)$  est contrôlée par la distance entre deux points antinodaux de la surface de Fermi (autrement dit la distance entre deux points rouges proches voisins sur la Fig.6.11). Dans le cas du composé Bi-2212, cette valeur est de l'ordre de  $\Delta H = 0.2$ . Cette valeur est très proche de la largeur déduite de nos mesures.

Une façon de tester cette idée est de comparer les différentes mesures de susceptibilité en unités absolues. Notre mesure est réalisée en  $Q_p = (-1, 0)$ , alors que les mesures de Squid sont réalisées en  $Q_p = (0, 0)$ . Dans une approche de type surface de Fermi, l'invariance par translation impose que la variation de la susceptibilité soit du même ordre de grandeur.

On a reporté sur la Fig.2.8 la mesure de susceptibilité par Squid sur le deuxième échantillon utilisé lors de nos mesures de neutrons. Entre  $T = 300K$  et  $T = 60K$ , on observe une diminution de la susceptibilité de l'ordre de  $\Delta\chi(\mathbf{Q} = (0, 0), \omega = 0) = 1.10^{-7} \text{emu} \approx 1\mu_B^2 . eV^{-1}$ . De même, on peut essayer d'évaluer la variation de la susceptibilité magnétique observée lors de notre mesure. Comme d'habitude, la mise en unités absolues est réalisée grâce à la mesure de la raie  $(-1, 0, 1)$ . On prend comme facteur de structure magnétique celui utilisé dans la partie 6.2.3. On trouve alors une intensité magnétique  $I_{mag}$  est égale à quelques 10 mbarns. On convertit alors cette valeur en  $\mu_B^2 . eV^{-1}$ , en supposant que le spectre est *indépendant de l'énergie*. La variation de la susceptibilité est alors égale à :  $\Delta\chi(\mathbf{Q} = (-1, 0), \omega = 0) \approx$  quelques  $10\mu_B^2 . eV^{-1}$ <sup>4</sup>. Cette valeur est plus grande que celle observée par les mesures de Squid. Dans une approche de type surface de Fermi, cela ne se comprend pas très bien, on s'attendrait à la même variation (au facteur de forme près).

Une façon de comprendre ce résultat serait d'imaginer un objet qui respecte la symétrie de translation mais qui possède une structure particulière dans la plaquette  $CuO_2$ , tel que les boucles de courant de la

<sup>4</sup>Avec la collimation de  $60^\circ$ , on a sur le pic de Bragg nucléaire  $(-1, 0, 1)$  un pic gaussien d'intensité 7000cts (en 1s) avec une largeur  $\Delta H = 0.18$  et  $\Delta L = 0.18$ . Le signal intégré peut être ajusté par une gaussienne d'intensité 430cts (588s) et de largeur  $\Delta H = 0.18$  et  $\Delta L \approx 1$  en 588s. On ramène en  $\mu_B^2 . eV^{-1}$  en divisant  $I_{mag}$ , exprimée en  $\mu_B^2$ , puis en divisant par la gamme d'énergie sur laquelle on intègre, à savoir approximativement de l'ordre de 80meV

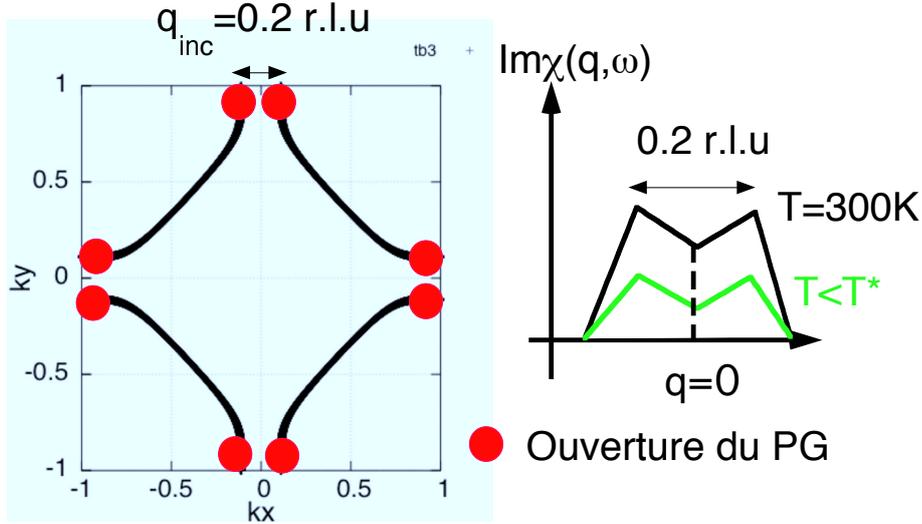


FIG. 6.11: Discussion : Surface de Fermi typique des SHTCs d'après [236], les points rouges représentent les points de la surface de Fermi sensibles à l'ouverture du pseudogap. On reporte sur la droite une évolution schématique de la partie imaginaire de  $\chi(q, \omega)$  autour de  $q = 0$ . La largeur en  $q$  est imposée par la topologie de la surface de Fermi. Dans le cas de [236], on trouve que  $\Delta H \approx 0.2$ .

phase  $\text{CC-}\theta_{II}$ . La forme de cet objet imposerait la dépendance en  $\mathbf{Q}$  du signal et serait liée à la transformée de Fourier de la distribution de courant de la phase  $\text{CC-}\theta_{II}$ . Ainsi, la diminution de l'intensité serait liée à l'ouverture du gap mais l'amplitude serait contrôlée par la forme de l'objet. Bien entendu cela n'est pas une théorie, seulement un scénario compatible avec nos mesures.

## Conclusion

Dans la première partie de cette étude, nous sommes intéressé à la recherche d'un ordre magnétique compatible avec la symétrie de la phase  $\text{CC-}\theta_{II}$  dans la phase de pseudogap du composé  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  pour  $x=0.1$ . Nous nous sommes tout d'abord intéressé au cas d'un ordre à longue portée. L'ensemble de nos résultats nous permet de conclure qu'aucun ordre magnétique à longue portée de symétrie compatible avec la phase  $\text{CC-}\theta_{II}$  n'est présent dans la phase de pseudogap du composé  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  pour  $x=0.1$  avec un moment plus grand que  $0.02\mu_B$ . Nous nous sommes intéressés ensuite au cas d'un ordre à courte portée. L'ensemble de nos résultats est compatible avec l'existence d'un signal magnétique de courte portée. Ce signal apparaît autour d'une température  $T_{\text{mag}}=210\text{K}$  (en accord avec la température de pseudogap déduite par mesure de résistivité dans ces composés [237]) près du point  $\mathbf{Q}=(1,0,1)$  avec un moment  $M \approx 0.1\mu_B$ . Bien que l'ordre de grandeur du moment soit finalement le même que dans le cas de la famille  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ , la nature courte portée de cet ordre rend sa mise en évidence particulièrement difficile. Cependant, dans les deux cas, le signal reporté mesuré l'est autour du même vecteur d'onde planaire  $(\text{H},\text{K})=(1,0)$ .

Finalement, la situation expérimentale pour le composé  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  est tout aussi difficile (voire plus difficile) que pour le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ . Dans l'état actuel des choses, notre étude regroupe un certain nombre de résultats en accord avec un ordre magnétique. Cependant, d'autres expériences sont nécessaires pour confirmer ces résultats. La mise en évidence d'un tel signal est bien entendu particulièrement importante

### 6.3 Spectre de fluctuation dans la phase de pseudogap du composé $La_{2-x}Sr_xCuO_4$

pour généraliser les résultats observés dans la famille  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ . Notre étude suggère aussi qu'il existe peut-être un lien entre la nature de la dynamique de spin autour du vecteur d'onde AF et le type de phase que nous avons discuté. A cet égard, la famille de composés  $La_{2-x}Sr_xCuO_4$  apparaîtrait alors plus intéressante et plus riche que celle de composés  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  pour comprendre le lien entre ces deux phases.

Dans la seconde partie de cette étude, nous avons présenté nos résultats préliminaires sur l'étude du spectre de fluctuations magnétiques en  $\mathbf{q}=0$ . Celui-ci n'a pour l'instant pas été étudié par diffusion de neutrons polarisés. Cette étude originale a mis en évidence une diminution du spectre de fluctuation autour de  $\mathbf{q}=0$ . Nous avons proposé une modeste discussion. Une façon de décrire cet effet est de l'associer à l'ouverture d'un gap dans le spectre d'excitation électronique. Cette étude est très intéressante car si le signal est bien de nature magnétique, celle-ci serait la première mise en évidence d'un changement dans le spectre de fluctuation à  $\mathbf{q}=0$ , alors que toutes les études de diffusion de neutrons depuis la découverte des SHTCs se sont intéressées au vecteur d'onde  $\mathbf{q}=(\pi,\pi)$ . Il faut noter que ce type d'étude peut a priori se généraliser aux autres cuprates supraconducteurs, et en particulier à  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  (au problème de la bi-couche près).

6 Etude de la phase de pseudogap du composé  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  par diffraction de neutrons polarisés (DNP)

# 7 Conclusion et Discussion

## 7.1 Bilan des résultats expérimentaux

Durant cette thèse nous nous sommes intéressés à deux aspects du diagramme de phase des SHTCs par diffusion de neutrons.

**(i) Etude des fluctuations AF du composé Bi-2212 au dopage optimal et en surdopage** Bien que la famille de composé Bi-2212 ait été largement étudiée par les techniques de surface telles que l'ARPES et la STM, l'étude des fluctuations de spin par diffusion de neutrons n'avait, jusqu'à présent, pas pu être réalisée sur cette famille. Il existe deux raisons majeures pour cela : la première concerne la difficulté de croissance de ces échantillons et la deuxième est le très faible rapport entre le signal magnétique et le bruit de fond phononique dans ces composés. Notre étude est donc la première du genre. Nous nous sommes intéressés à l'étude des excitations magnétiques au vecteur d'onde AF et à la dispersion des excitations magnétiques autour du vecteur d'onde AF.

Au vecteur d'onde AF dans la phase supraconductrice du composé Bi-2212, le spectre des excitations magnétiques a révélé l'existence de deux excitations de modulations différentes le long de l'axe  $\mathbf{c}$  : le mode acoustique et le mode optique. Ces deux excitations se trouvent à deux énergies distinctes, notées respectivement  $E_r^{ac}$  et  $E_r^{op}$ . Dans une approche itinérante, ces deux modes sont vus comme des modes collectifs associés au continuum d'excitation électron-trou. Leurs positions en énergie permettent de déduire la position en énergie de la bordure du continuum au vecteur AF, notée  $\omega_c$ .  $\omega_c$  est légèrement inférieure à  $2\Delta_0$ . Ainsi, la mesure de la position en énergie des modes acoustique et optique peut être une manière de remonter de façon indirecte à l'amplitude du gap. Afin d'illustrer notre propos, nous reportons sur la Fig.7.1.a) et b) l'évolution en dopage de  $E_r^{ac}$ ,  $E_r^{op}$ ,  $\omega_c$  (déduits des mesures de DIN) et  $2\Delta_0$  (déduit des mesures de spectroscopie électronique) pour la famille de composés  $Y_{1-y}Ca_yBa_2CuO_{6+x}$  d'après [107] et pour la famille de composés Bi-2212 d'après [157]. A mesure que l'on dope, on observe que la position en énergie de ces excitations diminue, tout comme l'amplitude gap. On remarque d'ailleurs un bon accord entre  $\omega_c$  et  $2\Delta_0$  pour la famille  $Y_{1-y}Ca_yBa_2CuO_{6+x}$  et pour la famille Bi-2212. En fait, tout l'intérêt de notre étude réside dans le fait que jusqu'à présent le lien entre les spectroscopies de charge et de spin n'étaient pas réalisées sur la même famille de composés. Notre étude a démontré en fait un très bon accord entre la valeur de  $\omega_c$  déduite des mesures neutrons et celle déduite des mesures d'ARPES. Notre étude confirme donc nos résultats obtenus dans la famille  $Y_{1-y}Ca_yBa_2CuO_{6+x}$  [107] qui suggéraient un lien étroit entre la position en énergie des excitations magnétiques et l'amplitude du gap.

Ensuite, notre étude dans le composé Bi-2212 a mis en évidence l'existence d'une largeur intrinsèque au mode acoustique. De façon remarquable, l'évolution en dopage de cette largeur correspond à l'évolution en dopage de la largeur de la distribution de gap déduite des mesures de STM [238]. Dans une approche itinérante, ce fait se comprend naturellement comme une nouvelle conséquence de l'existence d'un lien étroit entre le gap et la position en énergie des excitations magnétiques. Il est important de noter que dans la mesure où le composé  $Y_{1-y}Ca_yBa_2CuO_{6+x}$  ne présente pas de largeur intrinsèque (tout du moins au niveau du dopage optimal et dans la phase légèrement surdopée), l'existence de variations spatiales à l'échelle nanométrique n'est pas, selon notre étude et l'interprétation de nos données, une spécificité de tous les cuprates mais

seulement de la famille Bi-2212.

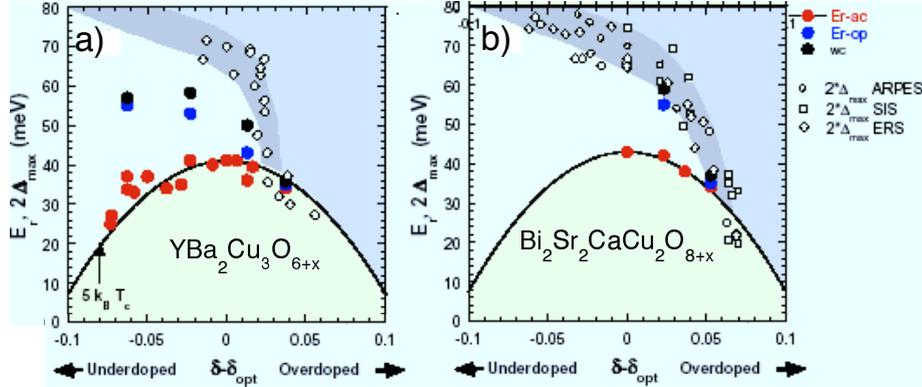


FIG. 7.1: a) et b) Evolution en dopage des énergies caractéristiques du mode acoustique (points rouges) et optique (points bleus) pour la famille de composés  $Y_{1-y}Ca_yBa_2CuO_{6+x}$  et pour la famille de composés Bi-2212. Ces deux excitations se trouvent au-dessous de  $2\Delta_0$ . L'amplitude du gap  $\Delta_0$  est mesurée par différentes sondes telles que l'ARPES, la STM et la diffusion Raman. Le dopage en trous est obtenu grâce à la relation phénoménologique  $T_c(\delta)(1-82.6(\delta - \delta_{op})^2)$  où  $\delta_{op}$  est généralement estimé égal à 0.16. La position en énergie des modes acoustique et optique permet de déduire  $\omega_c$  qui correspond à l'énergie minium d'une excitation électron-trou avec renversement de spin au vecteur d'onde  $(\pi, \pi)$ . Il est prévu que  $\omega_c$  soit légèrement plus faible que  $2\Delta_0$ .

Nous nous sommes également intéressés à l'étude détaillée de spectre de fluctuations autour du vecteur AF et de l'énergie de la résonance acoustique. Notre étude a mis en évidence l'existence d'un signal magnétique de part et d'autre de l'énergie de la résonance. Le spectre d'excitation expérimentalement mesuré se trouve au-dessous du continuum électron-trou déduit des mesures d'ARPES. Le spectre déduit de nos mesures est compatible avec la forme en sablier ou encore la forme en X reportée dans la famille de composés  $YBa_2CuO_7$  pour un dopage compatible [109, 103]. Nous avons proposé une extension de notre modélisation au vecteur d'onde AF à l'ensemble des vecteurs d'ondes. La forme globale du spectre d'excitation magnétique peut être assez bien décrite qualitativement par le modèle spin-exciton en présence d'une distribution de gap. Cependant, le spectre modélisé est plus large en  $\mathbf{Q}$  que le spectre mesuré. En fait, nous avons réduit l'effet des hétérogénéités sur la susceptibilité magnétique à l'effet d'une distribution spatiale de gap. En fait, la situation est certainement beaucoup plus compliquée. En effet, la distribution spatiale de gap observée par STM n'est qu'un aspect de la présence dans le composé Bi-2212 d'un désordre électronique à l'échelle nanométrique. Il faudrait en fait connaître la forme du potentiel microscopique responsable des ces hétérogénéités puis inclure ce potentiel dans un modèle de Hubbard dans une approche de type couplage faible par exemple.

Ensuite, nous nous sommes intéressés à l'étude détaillée de la forme des excitations magnétiques dans le plan (H,K). Notre étude a révélé l'existence d'une anisotropie dans la dispersion des excitations magnétiques le long des diagonales (1,1,0) [238]. Cette direction correspond à la direction de la modulation incommensurable des oxygènes des plans réservoirs de charge BiO. Il est intéressant de noter que l'existence d'anisotropie a également été observée dans le spectre magnétique du composé  $YBa_2CuO_7$  mais le long des directions  $\mathbf{b}^*[110]$ , à savoir la directions des chaînes CuO qui jouent le rôle de reservoirs de charge dans ce composé.

En conclusion, cette étude confirme les résultats obtenus dans la famille  $Y_{1-x}Ca_xBa_2CuO_7$  [109, 103, 116]. Ainsi, les observations faites dans ces deux composés soulignent l'importance du continuum électron-trou

comme un élément important dans la description de la dynamique de spin dans les supraconducteurs de large  $T_c$ . Dans le cas du composé Bi-2212, la dynamique de spin semble particulièrement liée à l'existence de variations spatiales à l'échelle nanométrique du gap. Bien que l'existence d'un tel désordre puisse être utilisée pour révéler de nouvelles informations sur la physique des SHTCs, cet effet n'est pas générique à l'ensemble des cuprates, en accord avec les résultats de STM [60]. Cette étude suggère donc que dans le but de comprendre le spectre d'excitations magnétiques et ses conséquences sur le spectre de charge dans la famille de composés Bi-2212, il ne faut pas sous-estimer l'impact de l'effet du désordre hors des plans  $\text{CuO}_2$  sur les plans  $\text{CuO}_2$ . En particulier, il semble que les réservoirs de charge influent nettement sur la dynamique de spin des plans  $\text{CuO}_2$ , quelle que soit la famille de cuprates considérée.

**(ii) Nature de la phase de pseudogap** Comme nous l'avons vu dans l'introduction, l'une des différences entre les supraconducteurs conventionnels et les SHTCs est le fait que la phase normale dans le cas des SHTCs comporte de nombreuses anomalies par rapport à un métal standard. Ainsi, la compréhension de la phase normale, et plus particulièrement la compréhension de la phase de pseudogap, apparaît comme un pré-requis important pour comprendre l'origine de la supraconductivité dans ces composés.

Dans certaines approches [95, 43], le pseudogap est associé à un ordre magnétique non conventionnel formé de boucles de courant circulant à l'intérieur du plan  $\text{CuO}_2$ . La différence réside alors dans le nombre de boucles par maille élémentaire : une boucle de courant dans le cas de la phase DDW, quatre et deux respectivement dans les phases  $\text{CC-}\theta_I$  et  $\text{CC-}\theta_{II}$  proposées par C.Varma [43]. Comme nous l'avons discuté dans le chapitre.4, ce type d'ordre peut être révélé par la diffusion de neutrons. Motivés par ces différentes approches théoriques, nous avons entrepris l'étude de la phase de pseudogap par diffusion de neutrons. Jusqu'à présent, toutes les études qui se sont intéressées à la phase DDW et  $\text{CC-}\theta_I$  ont été infructueuses. Il n'existe pas à ce jour d'élément expérimental en faveur de l'une de ces deux phases. Dans cette thèse, nous nous sommes concentrés sur la phase  $\text{CC-}\theta_{II}$ , qui jusqu'à maintenant n'avait jamais été étudiée.

Par construction, les phases CC ne brisent pas la symétrie de translation. Ainsi, la contribution magnétique associée aux phases CC se superposera aux pics de Bragg nucléaires. Typiquement, le rapport entre les intensités magnétique et nucléaire est de l'ordre de 1 pour  $10^3$  à  $10^4$ . Toute la difficulté de ces expériences est de réussir à mettre en évidence cette faible contribution magnétique. Pour cela, l'utilisation des neutrons polarisés est fondamentale. En effet, grâce à l'aptitude de ce montage à séparer les processus non spin flip et spin flip, on peut ramener le rapport entre signal magnétique et signal nucléaire à des niveaux expérimentalement acceptables.

Aussi, dans le but de tester la phase  $\text{CC-}\theta_{II}$  comme candidat possible de la phase de pseudogap, nous avons réalisé une étude systématique des différents pics de Bragg à travers tout le diagramme de phase du composé  $\text{Y}_{1-y}\text{Ca}_y\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+x}$  par diffraction de neutrons polarisés [224]. Cette étude a révélé l'existence d'une contribution magnétique sur le pic de Bragg (1,0,1) dans la phase de pseudogap du composé  $\text{Y}_{1-y}\text{Ca}_y\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+x}$  et aucun signal quel que soit le dopage sur le pic de Bragg (0,0,2) et (2,0,1). Ce résultat est en accord avec la symétrie de la phase  $\text{CC-}\theta_{II}$ . Les différentes études en polarisation permettent de déduire l'orientation des moments déduits de nos mesures. Contrairement à ce que l'on attendrait dans le cas de la phase  $\text{CC-}\theta_{II}$ , les moments ne sont pas purement le long de l'axe  $\mathbf{c}$  mais font un angle d'environ  $45 \pm 25^\circ$  par rapport à  $\mathbf{c}$ . Dans l'état actuel des choses, différentes structures magnétiques sont compatibles avec nos mesures mais aucune ne rend compte de l'ensemble de nos observations [224].

Dans la mesure où cet ordre original a lieu dans les plans  $\text{CuO}_2$ , il doit être une propriété universelle de tous les cuprates supraconducteurs à haute température critique. Motivés par nos résultats dans la famille de composés  $\text{Y}_{1-y}\text{Ca}_y\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+x}$ , nous avons entrepris l'étude de la phase de pseudogap du composé monocouche  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  par neutrons polarisés. Bien que les deux familles de composés  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  et  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  aient en commun les plans  $\text{CuO}_2$ , leurs structures cristallographiques sont différentes.

L'ordre magnétique recherché dans le composé  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  devrait avoir dans le plan la même symétrie que dans le cas de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  (contribution sur les raies (H,K) avec H et K entier), mais pourrait avoir une corrélation différente le long de l'axe c. Nous avons reporté dans le chapitre 6 l'ensemble de nos mesures dans la famille  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ . Expérimentalement, le signal magnétique ne se trouve pas seulement superposé à un pic de Bragg nucléaire mais sur une large gamme en  $\mathbf{Q}$ . Contrairement au cas de la famille  $\text{Y}_{1-x}\text{Ca}_x\text{Ba}_2\text{CuO}_7$ , il semble que l'ordre ne soit pas à longue portée (à la précision de nos mesures) mais à courte portée et faiblement corrélé le long de l'axe c. Bien que la situation expérimentale soit différente, la mise en évidence d'un signal magnétique reste difficile. Néanmoins, nos mesures indiquent l'existence d'une contribution dans le canal SF. L'analyse de polarisation réalisée est compatible avec un signal magnétique. Néanmoins, étant donnée la statistique du résultat, d'autres expériences doivent être réalisées.

En conclusion, l'ensemble de nos mesures met en évidence l'existence d'une contribution magnétique autour du vecteur d'onde planaire  $\mathbf{Q}_p=(1,0)$  dans la phase sous-dopée des SHTCs. En fonction de la famille de composés, la longueur de corrélation associée à cet ordre magnétique est plus ou moins grande. La comparaison entre les mesures caractéristiques de  $T^*$  et la température à laquelle l'ordre magnétique apparaît montre l'existence d'un ordre magnétique dans la phase de pseudogap des SHTCs et l'existence d'un QCP dans le diagramme de phase des SHTCs. Dans l'état actuel des choses, plusieurs types d'ordres pourraient décrire nos mesures. Le point commun de tous ces ordres est le fait qu'il faut imaginer une décoration de la cellule élémentaire  $\text{CuO}_2$  respectant la symétrie de translation. D'un point de vue théorique, cela nécessite de dépasser le modèle à une bande et de tenir compte des orbitales de l'oxygène dans l'Hamiltonien de départ pour décrire la physique des cuprates.

## 7.2 Discussion

Cette thèse s'est intéressée à deux aspects importants du diagramme de phase des SHTCs : les fluctuations AF et la nature de la phase de pseudogap. Jusqu'à présent, nous avons traité les deux problèmes de façon indépendante. Cependant, dans la mesure où il n'existe dans le système qu'un seul type d'électron, ces deux problèmes doivent être liés. En effet, comme on l'a vu dans l'introduction, il existe dans la phase de pseudogap des corrélations antiferromagnétiques non négligeables. Pour le moment, nous ne disposons pas d'une théorie complète qui décrive à la fois la dynamique de spin autour du vecteur d'onde AF et l'ordre magnétique observé (ordre AF de vecteur de propagation nul  $\mathbf{q}=0$ ). Néanmoins, nous proposons dans cette partie une discussion pour faire le lien entre ces deux aspects du diagramme de phase des SHTCs.

### 7.2.1 Un ou deux gaps ?

Notre étude concernant la phase de pseudogap invite à décrire le diagramme de phase comme suit : la phase de pseudogap est vue comme une phase magnétiquement ordonnée en compétition avec la supraconductivité. Ce diagramme de phase est contrôlé par la présence d'un point critique quantique. Dans ce type d'approche, la phase de pseudogap s'accompagne généralement de l'ouverture d'un gap au niveau de Fermi. Il n'y a ainsi pas un gap mais deux gaps dans le diagramme de phase des SHTCs. Récemment, la problématique du gap (ou des gaps) des SHTCs est réapparue grâce à de nouveaux éléments expérimentaux.

En particulier, une étude récente de M. Le Tacon et al. [205] de spectroscopie Raman sur le composé  $\text{HgBa}_2\text{CuO}_{8+\delta}$  a mis en évidence l'existence de deux échelles d'énergie dans la dynamique des quasiparticules de la phase supraconductrice. La première est associée aux points nodaux (symétrie  $B_{2g}$ ) de la SF et suit l'évolution en dopage de la température critique. La seconde est associée aux points anti-nodaux (symétrie  $B_{1g}$ ) et n'est présente que dans la phase sous-dopée, elle augmente à mesure que l'on sous-dope. On reporte sur la Fig.7.2.a) l'évolution en dopage de la position en énergie des deux pics  $B_{1g}$  et  $B_{2g}$ . Bien que ces

mesures indiquent la présence de deux énergies caractéristiques avec des évolutions en dopage différentes, cela ne signifie pas nécessairement qu'il existe deux gaps (l'évolution du pic  $B_{1g}$  peut se comprendre comme l'apparition d'un gap à l'antinoeud mais aussi par comme la diminution du poids spectral des quasiparticules aux antinoeuds).

L'existence de deux dynamiques de quasiparticules dans la phase sous-dopée des SHTCs a également été récemment suggérée par des mesures d'ARPES de l'équipe de Z.X. Shen. En effet, leur mesure d'ARPES dans la phase très sous-dopée de Bi-2212 suggère la présence de deux gaps. On reporte sur la Fig.7.2.b) l'évolution en dopage des deux gaps extraits des mesures d'ARPES de [239]. Un premier gap est associé à la région antinodale où aucun pic de cohérence n'est observé (cette région est considérée depuis 20 ans comme le "gap" dans la phase sous-dopée), un deuxième gap est associé à la région nodale où des pics de cohérence sont effectivement observés. Ce deuxième gap semble suivre l'évolution de  $T_c$ . Cette étude suggère ainsi que l'évolution singulière du gap en fonction de  $T_c$  (discutée dans l'introduction) n'est que la conséquence d'une inaptitude expérimentale à différencier ces deux gaps. Bien entendu, ce résultat reste à confirmer. Enfin, on peut citer les mesures récentes de STM du groupe de Hudson qui suggèrent également la présence de deux gaps [240].

Au-delà de l'importance fondamentale qu'elle représente pour la description de la physique des SHTCs, cette problématique a des conséquences importantes sur la façon de décrire la dynamique de spin. En effet, dans l'approche itinérante utilisée dans ce manuscrit pour décrire la dynamique de spin dans la phase supraconductrice du composé Bi-2212, la forme du gap le long de la surface de Fermi, l'amplitude du gap et la nature du fondamental (nécessaire à l'écriture des facteurs de cohérence) sont des paramètres importants pour contrôler la position et la forme des excitations du continuum. Aussi, s'il existe non pas un gap mais deux gaps, il est naturel de se poser la question de l'effet de l'existence de tels gaps sur la dynamique de spin.

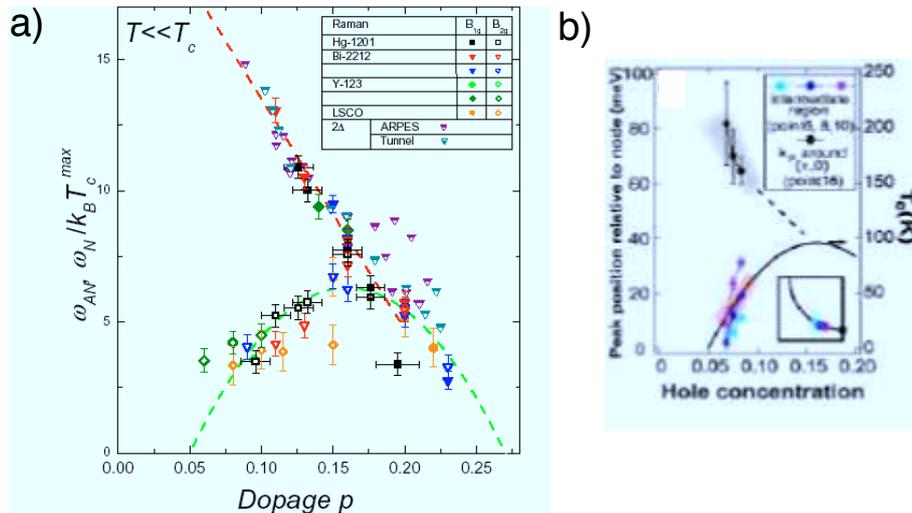


FIG. 7.2: a) Energies des pics  $B_{1g}$  et  $B_{2g}$  en fonction du dopage dans différentes familles de cuprates ( $\text{HgBa}_2\text{CuO}_{8+\delta}$ , Bi-2212 et  $\text{Y}_{1-x}\text{Ca}_x\text{Ba}_2\text{CuO}_7$ ). L'amplitude du gap mesurée par ARPES et STM est également reportée. Toutes les échelles d'énergies ont été normalisées à la  $T_c$  de l'échantillon optimalement dopé, pour une famille de cuprates donnée. b) Evolution de l'amplitude des deux gaps déduite des mesures d'ARPES [239]

### 7.2.2 Dynamique de spin associée à la phase $CC - \theta_{II}$

Le résultat (ii) reporté dans ce manuscrit invite à considérer la phase  $CC - \theta_{II}$  comme candidat possible pour décrire la phase de pseudogap. Dans cette partie, nous proposons d'étudier le spectre d'excitation magnétique associé à la phase  $CC - \theta_{II}$ . Comme on l'a vu dans le chapitre 1, la phase  $CC - \theta_{II}$  s'accompagne d'une instabilité de la surface de Fermi. Une fois que l'ordre est établi, la relation de dispersion des quasiparticules s'écrit :

$$E_{\mathbf{k}} = e_{\mathbf{k}} + \text{signe}(e_{\mathbf{k}})D(\mathbf{k})/(1 + (e_{\mathbf{k}}/e_c)^2)$$

où  $e_{\mathbf{k}}$  correspond à la relation de dispersion des quasiparticules pour  $T > T^*$  et  $D(\mathbf{k}) = \frac{D_0}{2}(\cos k_x - \cos k_y)^2$  et  $e_c$  est un  $O(D_0)$  [43]. L'amplitude du gap  $D_0$  est imposée par  $T^*$ . Le spectre d'excitation est de type électron-trou et va seulement être modifié par l'apparition d'un gap au niveau de Fermi, la susceptibilité s'écrit alors :

$$\chi(\mathbf{q}, \omega)_0^{\theta_{II}} = \sum_{\mathbf{k}} \frac{f(E_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}) - f(E_{\mathbf{k}})}{\omega - E_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} + E_{\mathbf{k}} + i\delta} \quad (7.1)$$

On reporte sur la Fig.7.3.a) le gap  $D(\mathbf{k})$  ainsi que la surface de Fermi utilisée pour le calcul de la  $\chi(\mathbf{q}, \omega)_0^{\theta_{II}}$  reporté sur la Fig.7.3.c) et d). Suivant [43], la valeur de  $e_c$  doit être plus grande que celle de  $D_0$ . Cependant dans ce cas, comme on peut le voir sur la Fig.7.3.c) et d),  $Re\chi(\mathbf{q}, \omega)_0^{\theta_{II}}$  est toujours inférieur au cas sans gap. Ainsi, l'interaction nécessaire pour créer une excitation à une énergie  $E$  dans la phase de pseudogap est suffisante pour que le système soit ordonné AF dans la phase normale.

Dans la mesure où la phase  $CC - \theta_{II}$  ne crée pas de singularité dans la  $Re\chi_0^{\theta_{II}}(\mathbf{q}, \omega)$ , la seule possibilité d'avoir un pic dans  $Re\chi_0^{\theta_{II}}(\mathbf{q}, \omega)$  sans avoir une phase normale magnétiquement ordonnée est d'augmenter la densité d'état. Ainsi, l'ouverture du pseudogap entraîne une redistribution de la densité d'état qui présente un maximum typiquement autour de l'énergie du gap. Ceci peut être recréé de façon artificielle en diminuant la valeur de  $e_c$ . En effet, comme on peut le voir sur la Fig.7.3.b), plus  $e_c$  diminue plus la densité d'état à l'énergie du gap augmente autour de l'énergie du gap. La partie  $Re\chi_0^{\theta_{II}}(\mathbf{q}, \omega)$  présente alors un maximum. Tout comme dans le cas de la phase supraconductrice, on introduit les interactions via un traitement RPA de la susceptibilité. L'interaction est ajustée pour avoir un critère de Stoner dynamique satisfait autour d'une énergie de 40mev. Dans ce cas,  $Im\chi_{RPA}^{\theta_{II}}(\mathbf{q}, \omega)$  présente une légère dispersion au tour du maximum d'intensité se trouvant à une énergie de 40meV et de  $\mathbf{Q}=(\pi, \pi)$ . On reporte  $Im\chi_{RPA}^{\theta_{II}}(\mathbf{q}, \omega)$  sur la Fig.7.3.e) pour  $\mathbf{q}=(\pi, \pi)$  et sur la Fig.7.3.f) pour  $\mathbf{q}=(H, H)$  de 0 à 90meV. Tout comme dans le cas du modèle spin-exciton, cette dispersion est contrôlée par l'amplitude du gap, la topologie de la surface de Fermi et par la redistribution des états autour de l'énergie du gap.

Il est clair qu'étant données les hypothèses, notre modèle est extrêmement spéculatif. Cette partie n'a bien entendu pas pour but d'établir que la dynamique de spin mesurée au vecteur d'onde AF dans la phase normale est décrite par le modèle simpliste précédemment discuté. Nous montrons simplement que sous certaines conditions qu'il reste à justifier, il est possible de créer une réponse magnétique au vecteur d'onde AF dans le cas de la phase  $CC - \theta_{II}$ .

### 7.2.3 Dynamique de spin dans la phase supraconductrice

Après la dynamique de spin dans la phase  $CC - \theta_{II}$ , intéressons nous à la nature de la dynamique de spin dans la phase supraconductrice pour un échantillon sous-dopé. Dans la mesure où le signal que nous observons dans nos mesures de diffraction de neutrons polarisés persiste dans la phase supraconductrice, il est intéressant de remarquer que même dans l'état supraconducteur, la dynamique de spin peut être affectée par la phase de pseudogap. En effet, dans l'approche spin-exciton, la position en énergie des pics de résonance (modes acoustique et optique) est contrôlée essentiellement par l'amplitude du gap au niveau des points

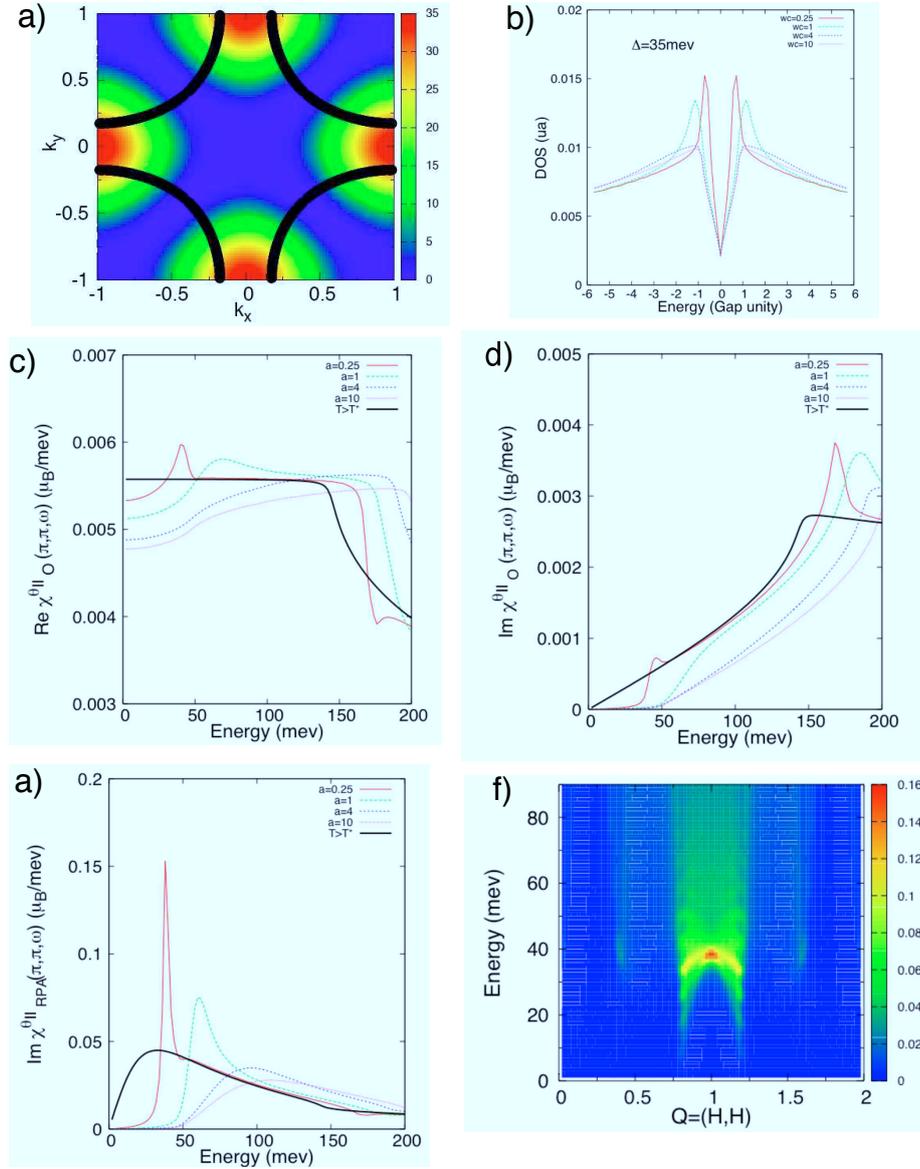


FIG. 7.3: a) Surface de Fermi ( $t=250\text{meV}$ ) et distribution de l'amplitude du gap associées à la phase  $CC - \theta_{II}$  à travers la zone de Brillouin b) Densité d'états associée à la phase  $CC - \theta_{II}$  pour un gap d'amplitude de 35 meV pour différentes valeurs de  $e_c$  (exprimé en unité du gap)  $e_c=0.25$  (rouge), 1 (vert), 4 (bleu) et 10 (rose) c) et d)  $\text{Re} \chi_0^{\theta_{II}}(\mathbf{q}, \omega)$  et  $\text{Im} \chi_0^{\theta_{II}}(\mathbf{q}, \omega)$  pour  $\mathbf{q}=(\pi, \pi)$  de 0 meV à 200 meV pour différentes valeurs de  $e_c=0.25$  (rouge), 1 (vert), 4 (bleu) et 10 (rose) pour la surface de Fermi et le gap représentés en a). f)  $\text{Im} \chi_{RPA}^{\theta_{II}}(\mathbf{q}, \omega)$  pour  $\mathbf{q}=(\pi, \pi)$ , l'interaction prise est  $g(\pi, \pi)=670\text{meV}$  e)  $\text{Im} \chi_{RPA}^{\theta_{II}}(\mathbf{q}, \omega)$  le long de la direction pour le cas le plus favorable, à savoir  $e_c=0.25$ , l'interaction  $g(\mathbf{q})$  est de la forme  $g_0(1 - 0.1(\cos q_x + \cos q_y))$  où  $g_0=558$  (le rapport  $g/t=2.7$  en accord avec nos modélisations du chapitre 3

chauds. De façon grossière, les points chauds se trouvent entre le point nodal et le point antinodal (c.f Fig.). Ainsi, dans une image à deux gaps, en fonction de l'amplitude du gap associé à la phase de pseudogap (notée  $\Delta_{PG}$ ) et du gap supraconducteur (noté  $\Delta_{SC}$ ), le gap aux points chauds sera contrôlé par l'un ou l'autre. Dans la phase sous-dopée, on s'attend à ce que  $\Delta_{PG} > \Delta_{SC}$ , la position des excitations magnétiques est alors contrôlée par  $\Delta_{PG}$ . Par contre dans la phase surdopée  $\Delta_{SC} > \Delta_{PG}$ , la position des excitations magnétiques est contrôlée par  $\Delta_{SC}$ . Dans cette image, il est important de noter que même si les excitations magnétiques sont contrôlées par  $\Delta_{PG}$  (qui subsiste au-dessus de  $T_c$ ), les pics de résonance magnétique ne sont présents que dans la phase supraconductrice. En effet, il faut tenir compte des facteurs de cohérence qui disparaissent dès que  $T > T_c$  pour comprendre les pics de résonance magnétique dans l'approche spin-exciton. Ensuite pour  $T > T_c$ , lorsque les arcs de Fermi apparaissent, il est possible que les processus de collision viennent amortir les excitations magnétiques dans la phase de pseudogap.

Expérimentalement, le changement dans la nature du gap au niveau des points chauds peut être mis en évidence par l'étude systématique de la position en énergie des modes acoustique et optique à travers tout le diagramme de phase. Nous reportons l'étude systématique à travers tout le diagramme de phase du composé  $Y_{1-x}Ca_xBa_2CuO_7$  par diffusion Raman et diffusion inélastique de neutrons[107]. L'étude du gap mesuré par Raman ainsi que l'étude des excitations acoustique ( $E_r^a$ ) et optique ( $E_r^o$ ) indiquent clairement l'existence de deux régimes : pour  $\delta < \delta_c$  on a  $E_r^a \approx 5k_B T_c < E_r^o < 2\Delta_{max}$  et pour  $\delta > \delta_c$  on a  $E_r^a \approx 5k_B T_c \approx E_r^o \approx 2\Delta_{max}$ . Aussi le changement dans la hiérarchie des énergies électroniques ( $E_r^a, E_r^o, \Delta$ ) entre les phases  $\delta < \delta_c$  et  $\delta > \delta_c$  peut s'interpréter comme l'une des signatures du gap du pseudogap dans la phase supraconductrice de  $Y_{1-x}Ca_xBa_2CuO_7$  sous-dopé.

En conclusion, il est clair que la mise en évidence du fait que la phase de pseudogap est en compétition avec la supraconductivité ouvre de nombreuses perspectives, en particulier pour la description de la dynamique de spin dans la phase supraconductrice et dans la phase de pseudogap. Ce problème n'a jamais été traité, sauf dans le cas de la phase DDW[241]. Il serait donc intéressant que de nouveaux travaux théoriques se concentrent sur la phase  $CC - \theta_{II}$  et sur la compétition de cette phase avec la supraconductivité.

## 7.3 Quelques perspectives

Enfin, nous proposons d'évoquer quelques perspectives pour terminer ce chapitre.

### 7.3.1 Dynamique de spin dans la phase surdopée

Comme nous venons de le voir, le pseudogap peut affecter la dynamique de spin même dans l'état supraconducteur. Ceci est en fait un problème assez sérieux pour tester rigoureusement les approches itinérantes. En effet, jusqu'à présent, la plupart de ces approches ne tient pas compte de l'existence d'une telle phase. Aussi, afin de valider ou non la pertinence de l'approche itinérante pour décrire la dynamique de spin dans la phase supraconductrice, l'étude de la dynamique de spin dans la phase surdopée est nécessaire. En effet, dans ce cas de figure, on peut supposer que l'effet du pseudogap est quasiment nul. Le système peut donc être décrit comme un composé supraconducteur bi-plan de type  $d$ -wave en présence d'interactions. Nos études en cours se concentrent sur cet aspect dans le composé  $Y_{1-x}Ca_xBa_2CuO_7$  pour  $x=0.15$ . Ce travail se situe dans la continuité du travail de thèse de S.Pailhès[116].

### 7.3.2 Dynamique de spin dans la phase sous-dopée isolante

Contrairement à la phase surdopée, la phase sous-dopée isolante représente une autre limite qu'il est intéressant d'étudier. En effet, quel que soit le rôle des fluctuations AF dans l'appariement supraconducteur, il est intéressant de comprendre comment l'ordre AF disparaît dans un système bi-dimensionnel carré de spin

$S=1/2$ . Jusqu'à présent, l'étude des corrélations AF de basse énergie dans la phase très sous-dopée du composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  n'a jamais mis en évidence la présence de "stripes". Ainsi, la façon dont l'ordre AF disparaît reste encore un mystère dans le cas du composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ . Récemment, nous nous sommes intéressés à l'étude du spectre de fluctuations de basse énergie dans un échantillon démaclé de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.45}$  ( $T_c=38\text{K}$ ) en collaboration avec le groupe de B. Keimer du Max Planck Institut de Stuttgart. A basse température, nous avons mis en évidence l'existence d'un signal statique large en Q autour du vecteur d'onde AF présentant une forte anisotropie le long de  $a^*$ . L'étude du spectre d'excitation jusqu'à 15meV indique la présence de signal magnétique de largeur équivalente au signal élastique statique. Les études en température suggèrent que l'anisotropie diminue autour de 130K. Il est intéressant de noter que sur ce même échantillon, un étude en  $\mu\text{-SR}$  n'a révélé aucun signal magnétique. Ce spectre pourrait être expliqué par la présence dans la phase sous-dopée isolante de clusters antiferromagnétiquement ordonnés de taille caractéristique quelques dizaines d'Angstrom. A basse température, l'ordre AF devient anisotrope dans ces clusters. Un candidat possible pour expliquer cette anisotropie serait les chaînes  $\text{CuO}_2$ . Dans ces conditions, les chaînes joueraient le même rôle qu'un champ électrique sur un cristal liquide.

Cette étude est intéressante pour deux raisons. D'une part, elle prouve que la façon dont l'ordre AF disparaît est en fait assez spécifique de la famille de cuprates étudiée. D'autre part, elle indique un fort changement de la réponse magnétique en fonction du dopage. En effet, il semble que le système soit métallique pour les dopages inférieurs à  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  [53]. Ce dopage correspond au dopage pour lequel on passe d'un spectre d'excitation magnétique large sans résonance et sans vraiment de gap de spin à un spectre d'excitation caractérisé par un gap de spin (large) et un pic de résonance fin dans la phase supraconductrice 1.2.4.

### 7.3.3 Phase de pseudogap

De nombreuses études restent à réaliser dans la phase de pseudogap. Voici une liste non exhaustive des problèmes à résoudre. Pour chacun d'eux, nous proposons une ou plusieurs expériences permettant d'apporter des éléments de réponse.

**Universalité d'un ordre magnétique dans la phase de pseudogap** Dans ce manuscrit, nous reportons l'étude de la phase de pseudogap dans deux familles de cuprates supraconducteurs :  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  et  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ . La dynamique de spin autour du vecteur d'onde AF et la réponse associée à la phase de pseudogap sont différentes pour ces deux familles. Ceci est compréhensible dans la mesure où la famille  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  peut être considérée comme un cas particulier des SHTCs. Il serait intéressant d'étudier d'autres familles de SHTCs, en particulier toutes les familles possédant des  $T_c^{max}$  supérieures à 90K. Dans l'état actuel des choses, la famille des composés  $\text{HgBa}_2\text{CuO}_{8+\delta}$  [242] semble la meilleure candidate puisqu'il est actuellement possible d'obtenir des volumes d'échantillon suffisants pour réaliser une expérience de diffraction de neutrons polarisés. En collaboration avec le groupe de M. Greven de l'université de Stanford, nous avons réalisé différents tests qui sont dans l'ensemble assez encourageants.

Il serait aussi intéressant de réaliser le même type de mesures non pas sur un monocristal mais sur une poudre. En effet, on perdrait l'analyse de polarisation mais l'on observerait en principe une différence dans l'évolution en température des canaux SF et NSF. Ce type d'étude présenterait plusieurs avantages. Il serait possible de réaliser sur le même échantillon des mesures neutron et des mesures RMN et de  $\mu\text{-SR}$ . Aussi, l'utilisation de poudre permettrait d'avoir accès à une gamme d'échantillon inaccessible pour des monocristaux, par exemple Y-1248.

**Orientation des moments** L'analyse de polarisation dans le cas de  $\text{YBa}_2\text{CuO}_{6+x}$  suggère que les moments ne sont pas purement le long de l'axe c. Différentes propositions ont été discutées dans le chapitre 5. Néanmoins, d'un point de vue expérimental, il n'est pas évident de déterminer quels paramètres contrôlent

l'orientation des moments. Notre étude en dopage n'indique pas d'évolution continue de l'angle de tilt par rapport à l'axe  $\mathbf{c}$  en fonction du dopage. De ce fait, nous avons conclu que l'angle de tilt est le même quel que soit le dopage aux barres d'erreur près.

Une façon de répondre à ce problème passe par l'étude d'autres familles de composés, en particulier par l'étude de composés monoplans. En effet, le point de départ du modèle de la phase  $CC-\theta_{II}$ [43] est le plan  $\text{CuO}_2$ . Or le composé  $\text{YBa}_2\text{CuO}_{6+x}$  est un composé bi-plan  $\text{CuO}_2$ . Le bi-plan va donc naturellement créer une "perturbation" au cas idéalisé du plan  $\text{CuO}_2$ . Dans son approche C.Varma néglige ainsi l'existence d'un terme de saut, noté  $t_{\perp}$ , entre les plans  $\text{CuO}_2$  d'un même bi-plan. Des études récentes sur le composé Y-1248 suggèrent que ce terme est non négligeable (de deux à trois fois plus grand que dans le cas de Bi-2212). Il est a priori possible que ce terme crée des boucles de courant entre les plans  $\text{CuO}_2$ . De la même façon que dans le paragraphe précédent, l'étude dans le composé  $\text{HgBa}_2\text{CuO}_{8+\delta}$  serait instructive pour tester cette hypothèse.

**Lien entre phase de pseudogap et spectre de fluctuation AF** Dans la section précédente, on a discuté de l'effet de la phase de pseudogap sur la dynamique de spin autour du vecteur d'onde AF. Réciproquement, il convient de s'interroger sur l'effet de la dynamique de spin au vecteur d'onde AF sur l'ordre magnétique associé au pseudogap, en particulier dans la phase sous-dopée isolante. Dans ce cas, on a mis en évidence l'existence d'un ordre AF à courte portée (à l'échelle des neutrons). Dans ce type de système, il existe ainsi potentiellement deux types de phases en compétition : l'une associée aux corrélations AF et l'autre associée à l'ordre magnétique au vecteur d'onde  $\mathbf{q} = (\mathbf{0}, \mathbf{0})$ . La situation serait donc assez proche de celle du composé  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  pour  $x=0.1$ . Ainsi, il serait intéressant d'étudier comment survit l'ordre associé à la phase de pseudogap dans un échantillon de  $\text{YBa}_2\text{CuO}_{6.4}$ . Suivant nos mesures dans le composé  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ , on pourrait s'attendre à ce que cet ordre ne soit pas à longue portée mais à plus courte portée. Quoiqu'il en soit, cette expérience reste intéressante car elle pourrait permettre de comprendre l'effet des corrélations AF sur la phase magnétique du pseudogap.

# A Appendice

## A.1 Distribution de courant pour la phase *DDW*

Dans les trois appendices suivants nous reportons le calcul de la transformée de Fourier de la distribution de courant pour chacune des phases (*DDW*,  $CC - \theta_I$  et  $CC - \theta_{II}$ ) étudiées. On ne considère dans ces Appendix qu'un plan  $\text{CuO}_2$ . Pour chaque phase, on donnera la distribution de courant dans l'espace réel (notée  $\mathbf{j}_T(\mathbf{r})$ ) puis on donnera le résultat du calcul de la transformée de Fourier notée  $\mathbf{j}_T(\mathbf{q})$ . Le cas de la phase *DDW* est particulièrement intéressant car un peu plus simple que pour les phases  $CC - \theta$

**Distribution de courant dans l'espace réel** La distribution de courant  $\mathbf{j}_T(\mathbf{r})$  associée à la phase *DDW* est représentée sur la Fig.4.1.a). La distribution de courant pour une boucle, notée  $\mathbf{j}_T(\mathbf{r}) = \sum_i \mathbf{j}_i(\mathbf{r})$ , peut s'écrire dans les coordonnées cartésiennes du réseau Bravais (avec comme vecteur de base  $(\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y, \mathbf{e}_z)$ ) comme la somme de ces quatre termes :

- $\mathbf{j}_1(\mathbf{r}) = I\delta(x + a/2)\delta(z)\mathbf{e}_y$  for  $-a/2 < y < a/2$
- $\mathbf{j}_2(\mathbf{r}) = I\delta(y - a/2)\delta(z)\mathbf{e}_x$  for  $-a/2 < x < a/2$
- $\mathbf{j}_3(\mathbf{r}) = -I\delta(x - a/2)\delta(z)\mathbf{e}_y$  for  $-a/2 < y < a/2$
- $\mathbf{j}_4(\mathbf{r}) = -I\delta(y + a/2)\delta(z)\mathbf{e}_x$  for  $-a/2 < x < a/2$

**Distribution de courant dans l'espace réciproque** En prenant la transformée de Fourier de chacun des termes ci-dessus, on trouve finalement l'expression de la distribution de courant dans le plan réciproque  $(H, K)$ , notée  $\mathbf{j}_T(\mathbf{q})$  dans le cas de la phase *DDW*.

- $\mathbf{j}_y(\mathbf{q}) = -Ia \frac{\sin^2(\pi K)}{\pi K} \mathbf{e}_y$
- $\mathbf{j}_x(\mathbf{q}) = Ia \frac{\sin^2(\pi H)}{\pi H} \mathbf{e}_x$

## A.2 Distribution courant pour la phase $CC - \theta_I$

**Distribution de courant dans l'espace réel** La distribution de courant  $\mathbf{j}_T(\mathbf{r})$  associée à la phase  $CC - \theta_I$  est représentée sur la Fig. 4.1.b). La distribution de courant pour la phase  $CC - \theta_I$ , notée  $\mathbf{j}_T(\mathbf{r}) = \sum_i \mathbf{j}_i(\mathbf{r})$ , peut s'écrire dans les coordonnées cartésiennes du réseau Bravais (avec comme vecteur de base  $(\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y, \mathbf{e}_z)$ ) comme la somme de ces quatre termes :

$$\begin{aligned} - \mathbf{j}_1(\mathbf{r}) &= I \text{sign}(y) \delta(x) \delta(z) \mathbf{e}_y \text{ for } -a/2 < y < a/2 \\ - \mathbf{j}_2(\mathbf{r}) &= -I \text{sign}(x) \delta(y) \delta(z) \mathbf{e}_x \text{ for } -a/2 < x < a/2 \\ - \mathbf{j}_3(\mathbf{r}) &= -\pm I \delta(x+y \pm 0.5) \delta(z) \frac{(\mathbf{e}_y - \mathbf{e}_x)}{\sqrt{2}} \text{ for } -a/2 < (x-y) < a/2 \\ - \mathbf{j}_4(\mathbf{r}) &= \pm I \delta(x-y \pm 0.5) \delta(z) \frac{(\mathbf{e}_y + \mathbf{e}_x)}{\sqrt{2}} \text{ for } -a/2 < (x+y) < a/2 \end{aligned}$$

**Distribution de courants dans l'espace réciproque** En prenant la transformée de Fourier de chacun des termes  $\mathbf{j}_i(\mathbf{r})$ , on trouve finalement l'expression de la distribution de courant dans le plan réciproque  $(H, K)$ , notée  $\mathbf{j}_T(\mathbf{q})$  dans le cas de la phase  $CC - \theta_I$ .

$$\begin{aligned} \mathbf{j}_T(\mathbf{q}) &= 2iIa \frac{\sin^2(\pi K/2)}{\pi K/2} \mathbf{e}_y \\ &\quad - 2iIa \frac{\sin^2(\pi H/2)}{\pi H/2} \mathbf{e}_x \\ &+ iIa \left[ \sin(\pi(H-K)/2) \frac{\sin(\pi(H+K)/2)}{\pi(H+K)/2} - \right. \\ &\quad \left. \sin(\pi(H+K)/2) \frac{\sin(\pi(H-K)/2)}{\pi(H-K)/2} \right] \mathbf{e}_y \\ &+ iIa \left[ \sin(\pi(H-K)/2) \frac{\sin(\pi(H+K)/2)}{\pi(H+K)/2} + \right. \\ &\quad \left. \sin(\pi(H+K)/2) \frac{\sin(\pi(H-K)/2)}{\pi(H-K)/2} \right] \mathbf{e}_x \end{aligned} \tag{A.1}$$

Il est intéressant de noter que pour  $\mathbf{j}_T(\mathbf{q})=0$  pour  $H=0$  et  $K=0$ . L'expression A.1 se simplifie pour  $H=\pm K$ , en effet on a alors :

$$\mathbf{j}_T(\mathbf{q}) = 2iIa \frac{\sin^2(\pi H/2)}{\pi H/2} (\mathbf{e}_x \pm \mathbf{e}_y) \tag{A.2}$$

### A.3 Distribution de courant pour la phase CC – $\theta_{II}$

Pour cette phase, il y a deux domaines voir Fig. 4.1 c) et d). Pour chacun d'eux, leur distribution de courant est décrit en forme de "papillon", c'est à dire deux triangles parcouru par des courants circulant en sens inverse au tour des atomes de cuivre. Ces papillons sont orientés le long des diagonales pour chacun des deux domaines. Étudions maintenant, la facteur de forme d'un triangle formant la distribution en forme de papillon.

**Cas d'une distribution de courant triangulaire** Pour un triangle, la distribution de courant dans l'espace réel peut s'écrire comme la somme de ces trois termes :

$$\begin{aligned} - \mathbf{j}_1(\mathbf{r}) &= -I\delta(x)\delta(z)\mathbf{e}_y \text{ pour } 0 < y < a/2 \\ - \mathbf{j}_2(\mathbf{r}) &= I\delta(y)\delta(z)\mathbf{e}_x \text{ pour } 0 < x < a/2 \\ - \mathbf{j}_3(\mathbf{r}) &= I\delta(x+y+0.5a)\delta(z)(\mathbf{e}_y - \mathbf{e}_x)/\sqrt{2} \text{ pour } -a/2 < x-y < a/2 \end{aligned}$$

où  $I$  est l'intensité du courant traversant les fils.  $I = j_0\delta^2$  où  $j_0$  représente la densité de courant et  $\delta^2$  représente la surface du fil.  $a \simeq 3.85\text{\AA}$  correspond la distance cuivre cuivre.

Pour cette distribution élémentaire, on peut calculer la transformée de Fourier de la distribution de courant :  $\mathbf{j}_T(\mathbf{q}) = \int d\mathbf{r}' \exp(-i\mathbf{q}\mathbf{r}')\mathbf{j}_T(\mathbf{r}')$ . on trouve alors avec  $\mathbf{q} = (H, K, L)$

$$\begin{aligned} - \mathbf{j}_1 &= -\frac{Ia}{2} \exp(-i\frac{\pi K}{2}) \frac{\sin(\pi K/2)}{\pi K/2} \mathbf{e}_y \\ - \mathbf{j}_2 &= \frac{Ia}{2} \exp(-i\frac{\pi H}{2}) \frac{\sin(\pi H/2)}{\pi H/2} \mathbf{e}_x \\ - \mathbf{j}_3 &= \frac{Ia}{2} \exp(-i\frac{\pi(H+K)}{2}) \frac{\sin(\pi(H-K)/2)}{\pi(H-K)/2} (\mathbf{e}_y - \mathbf{e}_x) \end{aligned}$$

Partant de l'Eq. A.5, il est possible de définir un facteur de forme qui sera proportionnel à :  $\frac{|\langle \mathbf{j}_T(\mathbf{q}) \rangle|}{q}$ . Dans la limite  $q \rightarrow 0$ , on peut alors réécrire la somme  $\mathbf{j}_T(\mathbf{q})$  comme  $\mathbf{j}_T(\mathbf{q}) \simeq i\pi\frac{Ia}{4}(K\mathbf{e}_x - H\mathbf{e}_y)$ , c'est-à-dire dans la limite des petits  $q$ ,

$$\frac{|\langle \mathbf{j}_T(\mathbf{q}) \rangle|}{q} \Big|_{q \rightarrow 0} = \frac{Ia^2}{8} \equiv \Phi \quad (\text{A.3})$$

Ceci correspond au moment  $\Phi$  attendu pour une distribution de courant de type triangle isocèle rectangle de petit côté  $a$ .

**Domaine  $\mathcal{D}_a$**  La distribution de courant pour le domaine  $\mathcal{D}_a$  est représentée sur la Fig. 4.1.c). Elle peut être écrite comme :

$$\begin{aligned} - \mathbf{j}_1(\mathbf{r}) &= -I\delta(x)\delta(z)\mathbf{e}_y \text{ pour } -a/2 < y < a/2 \\ - \mathbf{j}_2(\mathbf{r}) &= I\delta(y)\delta(z)\mathbf{e}_x \text{ pour } -a/2 < x < a/2 \\ - \mathbf{j}_3(\mathbf{r}) &= I\delta(x+y \pm 0.5a)\delta(z)(\mathbf{e}_y - \mathbf{e}_x)/\sqrt{2} \text{ pour } -a/2 < x-y < a/2 \end{aligned}$$

La transformée de Fourier de la distribution de courant,  $\mathbf{j}_a(\mathbf{q})$ , à travers la cellule élémentaire "papillon" s'écrit alors :

$$\begin{aligned} - \mathbf{j}_1 &= -Ia \frac{\sin(\pi K)}{\pi K} \mathbf{e}_y \\ - \mathbf{j}_2 &= Ia \frac{\sin(\pi H)}{\pi H} \mathbf{e}_x \\ - \mathbf{j}_3 &= Ia \frac{\sin(\pi(H-K)/2)}{\pi(H-K)/2} \cos(\pi(H+K)/2)(\mathbf{e}_y - \mathbf{e}_x) \end{aligned}$$

**Domain  $\mathcal{D}_b$  :** Pour le domaine  $\mathcal{D}_b$ , la distribution de courant s'écrit comme  $\mathbf{j}_b(\mathbf{r}) = \sum_i \mathbf{j}_i(\mathbf{r})$ , avec

$$\begin{aligned} - \mathbf{j}_1(\mathbf{r}) &= -I\delta(x)\delta(z)\mathbf{e}_y \text{ pour } -a/2 < y < a/2 \\ - \mathbf{j}_2(\mathbf{r}) &= -I\delta(y)\delta(z)\mathbf{e}_x \text{ pour } -a/2 < x < a/2 \\ - \mathbf{j}_3(\mathbf{r}) &= I\delta(x+y \pm 0.5a)\delta(z)(\mathbf{e}_y + \mathbf{e}_x)/\sqrt{2} \text{ pour } -a/2 < x-y < a/2 \end{aligned}$$

La transformée de Fourier de la distribution de courant  $\mathbf{j}_b(\mathbf{q})$  s'écrit alors

$$- \mathbf{j}_1 = -Ia \frac{\sin(\pi K)}{\pi K} \mathbf{e}_y$$

## A Appendice

$$\begin{aligned}
 -\mathbf{j}_2 &= -Ia \frac{\sin(\pi H)}{\pi H} \mathbf{e}_x \\
 -\mathbf{j}_3 &= aI \frac{\sin(\pi(H+K)/2)}{\pi(H+K)/2} \cos(\pi(H-K)/2) (\mathbf{e}_y - \mathbf{e}_x)
 \end{aligned}$$

La distribution totale de courant pour un "papillon" pour chaque domaine s'écrit alors :

$$\begin{aligned}
 \mathbf{j}(\mathbf{q}) &= J_x \mathbf{e}_x + J_y \mathbf{e}_y & (A.4) \\
 J_x &= Ia [S(\pi H) - S(\pi(H \pm K)/2) \cos(\pi(H \mp K)/2)] \\
 J_y &= Ia [S(\pi(H \pm K)/2) \cos(\pi(H \mp K)/2) - S(\pi K)]
 \end{aligned}$$

où  $S(x) = \sin(x)/x$  et le signe + (-) correspond au domaine  $\mathcal{D}_a$ , ( $\mathcal{D}_b$ ) respectivement.

## A.4 Distribution de moment dans la phase $\theta_{II}$

Une autre façon de modéliser le problème est de décrire cette distribution de courant par une distribution de moment :  $\mathbf{j}(\mathbf{r}) = \nabla \times \mathbf{M}(\mathbf{r})$  où  $\mathbf{M}(\mathbf{r})$  est donné  $\mathbf{M}(\mathbf{r}) = M_x(x, y)\mathbf{e}_x + M_y(x, y)\mathbf{e}_y + M_z(x, y)\mathbf{e}_z$  pour un plan  $\text{CuO}_2$ . L'équation ci-dessus devient donc :

$$\frac{dM_z}{dy} = -\delta(y) + \delta(x + y + 0.5) + \delta(x + y - 0.5)$$

$$\frac{dM_z}{dx} = -\delta(x) + \delta(x + y + 0.5) + \delta(x + y - 0.5)$$

En remplaçant la distribution delta par une fonction lorentzienne de largeur  $\epsilon$ , on obtient l'expression suivante pour le moment associé à la phase  $\text{CC-}\theta_{II}$  :

$$\mathbf{M} = M_z \mathbf{e}_z = -1/\pi (\text{Arctan}(x/\epsilon) + \text{Arctan}(y/\epsilon) - \text{Arctan}(x + y - 0.5/\epsilon) - \text{Arctan}(x + y + 0.5/\epsilon))$$

On reporte sur la Fig.A.1 la distribution de moment le long de la direction  $x=y$  et  $x=-y$ . Sur la Fig.A.2, on reporte la distribution de moment associée à la distribution de courant du domaine  $D_a$  dans le plan  $(x, y)$ .

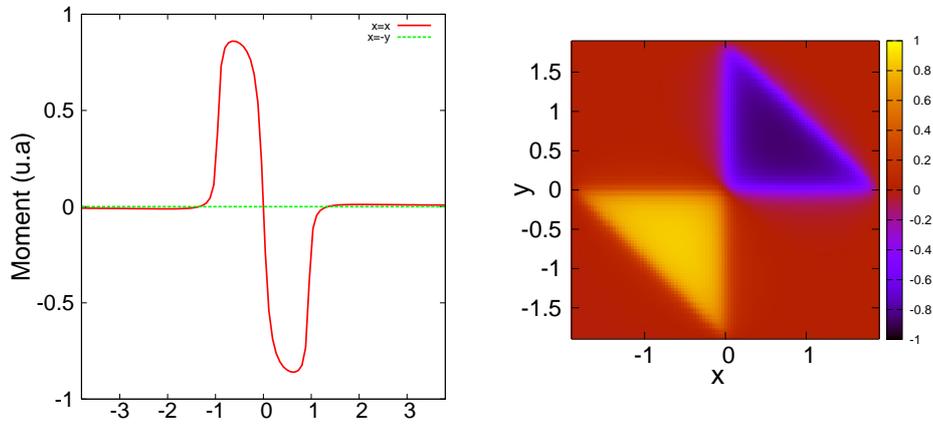


FIG. A.1: **A droite** : distribution du moments magnétiques le long de deux directions  $x=y$  et  $x=-y$ . Les abscisses sont en Å

FIG. A.2: **A gauche** : carte de distribution des moments dans le plan  $(x, y)$  dans le plan  $\text{CuO}_2$

Au lieu d'introduire une distribution de courant, on peut donc décrire le modèle comme une moment magnétique situé au centre du triangle O-Cu-O. Le moment est perpendiculaire aux plaquettes  $\text{CuO}_2$ . Le facteur de structure associé à cette distribution de moment pour la phase  $\text{CC-}\theta_I$  et la phase  $\text{CC-}\theta_{II}$  est reporté dans le Tab.A.1 :

phase $\theta_I$	phase $\theta_I(a)$	phase $\theta_I(b)$
$M \sin(2\pi h x_0) \sin(2\pi k x_0)$	$M i \sin(2\pi(\mathbf{h} - \mathbf{k})\mathbf{x}_0)$	$M i \sin(2\pi(\mathbf{h} + \mathbf{k})\mathbf{x}_0)$

TAB. A.1: **Facteur de structure pour les phases  $\text{CC-}\theta_I$  and  $\theta_{II}$  proposé par C.Varma. Chaque boucle de courant est équivalente à un moment  $\pm M$  en position  $(\pm x_0, \pm x_0)$  où  $x_0=0.18$  (en unité de a).**

## A.5 Facteur Debye-Weller

La dépendance en température des  $U_{ii} = \langle u_d^2 \rangle_{ii}$  a été mesurée par [222]. Tous les  $U_{d,ii}$  sont données pour quelques températures. Pour chaque atome, on a linéarisé la dépendance en température des  $U_{d,ii}$ . On représente la Fig.A.3, le déplacement moyen pour chaque atome en fonction de la température et pour les trois directions de l'espace réciproque.

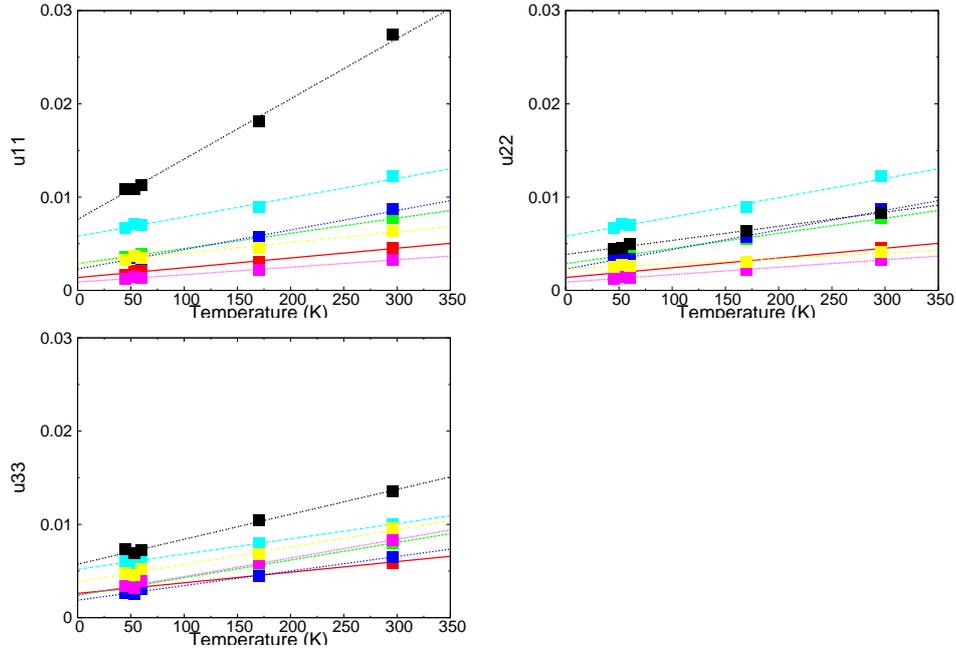


FIG. A.3: Déplacement moyen des atomes de la maille YBCO6.5 le long des trois directions ( $a^*, b^*, c^*$ ) en fonction de la température. Les lignes correspondent à l'ajustement linéaire réalisé pour chacun des atomes

On peut ensuite calculer aisément la dépendance en température du pic de Bragg nucléaire pour les échantillons démaclés (d) et les échantillons maclés (m).  $T_0=300\text{K}$ .

$$I_{NSF}^d(T) \propto |F_N(011)^2(T)|^2$$

$$I_{NSF}^m \propto \frac{|F_N(011)(T)|^2 + |F_N(101)(T)|^2}{|F_N(011)(T_0)|^2 + |F_N(101)(T_0)|^2}$$

## A.6 Conversion mbarns- $\mu_B$

Nous reportons sur la Fig.5.9 l'évolution en dopage de l'intensité magnétique déduite de nos mesures de diffraction de neutrons polarisés en valeur absolue (1 barns=  $10^{-28}\text{m}^2$ ). Ainsi, il est possible de donner une valeur de moment magnétique associé au signal magnétique observé. Cette valeur dépendra évidemment de la modélisation précise de l'ordre magnétique. Nous proposons dans cette appendice de donner la valeur de moment magnétique déduite de nos mesures pour différentes modélisations de l'ordre magnétique. Comme on l'a vu dans la partie 4.1.1, on peut réécrire la section efficace de diffusion de neutrons polarisés sous la forme :

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{SF} = \frac{r_0^2}{4} | \langle + | \sigma \cdot \mathbf{B}(\mathbf{q}) | - \rangle |^2 \delta(\mathbf{q} - \tau - \mathbf{Q}) \quad (\text{A.5})$$

où  $r_0=2.8 \cdot 10^{-15}\text{m}$ .  $\sigma$  correspond aux matrices de Pauli (le facteur  $\frac{1}{2}$  du spin du neutron est inclu dans le préfacteur  $\frac{r_0^2}{4}$ ),  $\mathbf{B}(\mathbf{q}) = -i \frac{\mathbf{q} \wedge \mathbf{j}(\mathbf{q})}{q^2}$  où  $j(\mathbf{Q})$  a été reporté dans les appendices A.1. Nous reportons dans le Tab.A.2 la valeur des moments magnétiques pour trois types de structures magnétiques compatibles avec nos données : la phase CC- $\theta_{II}$  (voir Fig.4.1 c) et d)), la structure de spin équivalente à la phase CC- $\theta_{II}$  et une distribution de spin où les moments sont localisés sur les sites d'oxygène (voir Fig.5.10.c)), notée *SpinO*. Pour chaque structure, on reporte en fait deux valeurs de moment, l'une correspond au cas où  $I_{SF}=2\text{mbarns}$  (intensité maximale mesurée) et l'autre au cas où  $I_{SF}=0.5\text{mbarns}$  (intensité minimale mesurée). Dans le cas où l'on a deux domaines équivalents, on les prend en compte suivant l'Eq.4.8.

Structure Magnétique	$\mathbf{B}(\mathbf{q})$	$\mathbf{M}$ (en $\mu_B$ )
CC- $\theta_{II}$	$4f_{CC-\theta_{II},moy} \cos(\pi zL)$	0.2-0.1
CC- $\theta_{II}$ (spin)	$4f_{Cu^{2+}}(\mathbf{q})1/2 \sin(\pi x_0(H+K)) + \sin(\pi x_0(H-K)) \cos(\pi zL)$	0.16-0.08
SpinO	$4f_{O^-}(\cos(\pi H) - \cos(\pi K)) \cos(\pi zL)$	0.08-0.04

TAB. A.2: **Pour chaque structure magnétique discutée, on reporte le facteur de structure magnétique pour la famille d'échantillon  $\text{YBa}_2\text{Cu}_2\text{O}_{6+x}$  ainsi que le moment déduit de nos mesures de diffraction de neutrons polarisés**

Structure Magnétique	$\mathbf{B}(\mathbf{q})$	$I_{mes}$ (mbarns)	$\mathbf{M}$ (en $\mu_B$ )
CC- $\theta_{II}$ (101)	$4f_{CC-\theta_{II},moy} \cos(\pi(h+k+l))$	0.06	$0 \pm 0.02$
CC- $\theta_{II}$ (102)	$4f_{CC-\theta_{II},moy} \sin(\pi(h+k+l))$	0.01	$0 \pm 0.01$

TAB. A.3: **Pour chaque type d'ordre considéré dans le cas de la famille  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ , on reporte le facteur de structure, l'intensité magnétique mis en absolue et la valeur du moment déduit**

## A.7 Buckling des plans $\text{CuO}_2$

Ici on considère le cas où les plans  $\text{CuO}_2$  ne sont pas parfaitement plans. En particulier dans le cas de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_2\text{O}_{6.6}$ , on parle de buckling, la liaison Cu-O-Cu est en forme de dents de scie comme représenté sur la figure suivante. Bien que cet effet soit faible (l'angle  $\alpha \approx 7^\circ$ ), on peut s'interroger sur la composante planaire induite par cette déformation. On propose ici de calculer la transformée de Fourier de la distribution de courant associée au plan en présence de buckling.

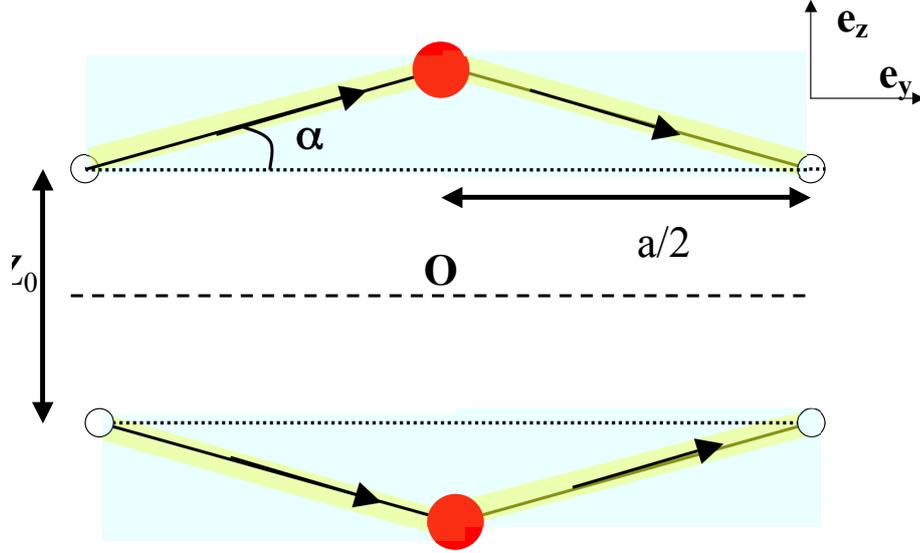


FIG. A.4: Structure des plans  $\text{CuO}_2$  dans le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_2\text{O}_{6.6}$ , les atomes d'oxygène sont représentés par des ronds blancs et les atomes de cuivre par des ronds rouges. L'angle  $\alpha$  entre la liaison Cu-O et la direction horizontale est de l'ordre de  $\alpha \approx 7^\circ$ .

Pour la phase CC-  $\theta_{II}(b)$ , la distribution de courant est donnée par  $\vec{j}_{Cb}(\vec{r}) = \sum_i \vec{j}_i(\vec{r})$ . En présence de buckling, un point (M) parcourant le biplan a pour équation :

- si  $M \in \text{plan (1)} : O\vec{M} = y\vec{e}_y + (z_0/2 + (a/2 - |y| \sin \alpha))\vec{e}_z$
- si  $M \in \text{plan (2)} : O\vec{M} = y\vec{e}_y - (z_0/2 + (a/2 - |y| \sin \alpha))\vec{e}_z$

Pour  $\vec{j}_1$ , la distribution de courant dans le plan (1) et (2) s'écrit alors comme :

- $\vec{j}_1^1(\vec{r}) = I\delta(x)\delta(z - (z_0/2 + (a/2 - |y| \sin \alpha))\vec{u}_1$  where  $\vec{u}_1 = \cos(\alpha)\vec{e}_y - \text{sign}(y) \sin(\alpha)\vec{e}_z$
- $\vec{j}_1^2(\vec{r}) = I\delta(x)\delta(z + (z_0/2 + (a/2 - |y| \sin \alpha))\vec{u}_2$  where  $\vec{u}_2 = \cos(\alpha)\vec{e}_y + \text{sign}(y) \sin(\alpha)\vec{e}_z$

Pour calculer la transformée de Fourier, on prend  $\vec{j}_{Cb}(\vec{q}) = \int d\vec{r}' \exp(-i\vec{q}\vec{r}')\vec{j}(\vec{r}')$ . A cause des valeurs absolues, on sépare à chaque fois l'intégrale en deux (de manière à intégrer sur l'intervalle où la variable d'intégration a le même signe). Pour plus de facilité, on pose :  $x_0 = \frac{\pi K}{2}$  et  $h(\alpha) = \frac{\pi L a \sin(\alpha)}{2c}$ .

- $\vec{j}_1^1(\vec{Q}) = I a \exp(\frac{2i\pi}{c} L(z_0 + a/4 \sin(\alpha))) (\cos(\alpha) (\frac{\sin(2x_0)}{2x_0} - h\sqrt{(2)} \frac{\sin(x_0)}{x_0} \cos(x_0 + \frac{\pi}{4})) \vec{e}_y - \sin(\alpha) (i \frac{\sin^2(x_0)}{x_0} - h\sqrt{(2)} \frac{\cos(x_0)}{x_0} \cos(x_0 + \frac{\pi}{4})) \vec{e}_z$
- $\vec{j}_1^2(\vec{Q}) = I a \exp(\frac{-2i\pi}{c} L(z_0 + a/4 \sin(\alpha))) (\cos(\alpha) (\frac{\sin(2x_0)}{2x_0} + h\sqrt{(2)} \frac{\sin(x_0)}{x_0} \cos(x_0 + \frac{\pi}{4})) \vec{e}_y + \sin(\alpha) (i \frac{\sin^2(x_0)}{x_0} + h\sqrt{(2)} \frac{\cos(x_0)}{x_0} \cos(x_0 + \frac{\pi}{4})) \vec{e}_z$

La combinaison donne finalement :

$$2Ia(\cos(\alpha)(\cos(\frac{2\pi}{c}L(z_0 + a/4 \sin(\alpha))) \frac{\sin(2x_0)}{2x_0} - \sin(\frac{2\pi}{c}L(z_0 + a/4 \sin(\alpha)))h\sqrt{(2)} \frac{\sin(x_0)}{x_0} \cos(x_0 + \frac{\pi}{4}))\vec{e}_y$$

$$+ \sin(\alpha) \left( \cos\left(\frac{2\pi}{c}L(z_0 + a/4 \sin(\alpha))\right) h \sqrt{2} \frac{\cos(x_0)}{x_0} \cos\left(x_0 + \frac{\pi}{4}\right) + \sin\left(\frac{2\pi}{c}L(z_0 + a/4 \sin(\alpha))\right) \frac{\sin^2(x_0)}{x_0} \right) \vec{e}_z \quad (\text{A.6})$$

Lorsque  $\alpha = 0$ , alors  $h = 0$ . On retrouve bien le résultat du plan sans buckling. La transformée de Fourier est réelle, le champ sera donc purement imaginaire. Le terme le plus grand en  $\vec{e}_z$  vaut  $\sin(\alpha) \sin\left(\frac{2i\pi}{c}L(z_0 + a/4 \sin(\alpha)) \frac{\sin^2(x_0)}{x_0}\right)$ . Il est indépendant de  $h$  et il est modulé en  $\sin$  le long de  $L$ . Sa valeur dépend du  $Q$  que l'on regarde :  $\frac{\sin^2(x_0)}{x_0}$  mais à priori il est de l'ordre de 1, l'effet sera donc petit. Le calcul de  $j_2$  est le même sauf qu'il faut changer  $I$  en  $-I$  et  $\vec{e}_y$  en  $\vec{e}_x$ . Ceci a pour conséquence d'annuler la composante le long de  $\vec{e}_z$ . Pour  $j_3$ , la situation est plus simple puisque l'on est toujours à la même altitude, on aura donc :  $\vec{j}_3(\vec{r}) = -I \delta(x+y \pm 0.5a) \delta(z \pm (z_0 + a/2 \sin(\alpha))) (\vec{e}_y - \vec{e}_x) / \sqrt{2}$  for  $-a/2 < x-y < a/2$ . La transformée de Fourier donne immédiatement :  $\vec{j}_3(h, k, l) = -4aI \frac{\sin(\pi(h-k)/2)}{\pi(h-k)} \cos(\pi(h+k)/2) \cos(2\pi l/c(z_0 + a/2 \sin(\alpha))) (\vec{e}_y - \vec{e}_x)$ . Il n'y a aucune composante le long de  $\vec{e}_z$ . Finalement, la distribution de courant dans le biplan ne possède aucune composante le long de  $\vec{e}_z$ . Le buckling n'induit aucune composante planaire.

## A.8 Comparaison avec les autres sondes du magnétisme : cas de la $\mu SR$

Name site	x	y	z	$B_{calc}(\text{mT})$
Lin(1)	0.1	1.52	-3.2	3.2
Lin(2)	0.06	0.9	-3.19	8
Balmer(1)	0.0	1	-2.94	10
Lin(3)	0.93	1.5	-4.2	2
Balmer(2)	1.03	0.04	-2.6	29

TAB. A.4: Valeur du champ vu par le muon pour les différents sites qu'il explore suivant [232]. Les positions du muon sont exprimées en angstroms et par rapport au centre à l'atome de cuivre pris comme centre du réseau.

**Calcul du champ B créé par une distribution de courant papillon** La distribution de courant associée à la phase  $\theta_2$  est représentée sur la Fig. ???. Nous nous reportons ici le calculer la distribution de champ créé en un point quelconque de l'espace (x,y,z) par cette distribution de courant.

$$\vec{B}(x, \vec{y}, z) = \mu_0 I \int_{\gamma} (P) \frac{d\vec{l} \wedge P\vec{M}}{PM^3} \quad (\text{A.7})$$

On décompose l'intégrale sur le parcours  $\Gamma$  :

$$\int_{\gamma(P)} = \int_A^{A'} + \int_{A'}^{B'} + \int_{B'}^B + \int_B^A$$

ce qui donne quatre termes :

$$\begin{aligned} \vec{B}_1 &= \int_{-\frac{a}{4}}^{\frac{a}{4}} \frac{(-z\vec{e}_y + y\vec{e}_z)du}{((x-u)^2 + y^2 + z^2)^{\frac{3}{2}}} \\ \vec{B}_2 &= \int_{-\frac{a}{4}}^{-\frac{a}{4}} \frac{(z(\vec{e}_x + \vec{e}_y) + (\frac{-a}{4} - x - y)\vec{e}_z)du}{((x - \frac{-a}{4} + u)^2 + (y - u)^2 + z^2)^{\frac{3}{2}}} \\ \vec{B}_3 &= \int_{-\frac{a}{4}}^{-\frac{a}{4}} \frac{(z\vec{e}_x - x\vec{e}_z)du}{((x)^2 + (y - u)^2 + z^2)^{\frac{3}{2}}} \\ \vec{B}_4 &= - \int_{-\frac{a}{4}}^{-\frac{a}{4}} \frac{(z(\vec{e}_x + \vec{e}_y) - (\frac{-a}{4} - x - y)\vec{e}_z)du}{((x + \frac{a}{4} - u)^2 + (y + u)^2 + z^2)^{\frac{3}{2}}} \end{aligned}$$

On calcule ensuite la somme des quatre champs en sommant numériquement chacune de ces intégrales.

# Bibliographie

- [1] J. G. Bednorz and K. A. Müller. Possible high- $T_c$  superconductivity in the  $\text{Ba}_{1-x}\text{La}_x\text{CuO}_4$  system. *Zeitschrift für Physik B Condensed Matter*, 64(2) :189–193, Mar 1986.
- [2] H.K. Onnes. *Leiden Comm.*, 1206 :1226, 1911.
- [3] J.R. Charles P. Poole. *Handbook in Superconductivity*. New York, Academic Press, 2000.
- [4] J. Bardeen, L. N. Cooper, and J. R. Schrieffer. Theory of superconductivity. *Phys. Rev.*, 108(5) :1175–1204, Dec 1957.
- [5] C. Bourbonnais and D. Jerome. The normal phase of quasi-one-dimensional organic superconductors, 1999.
- [6] P. Thalmeier, G. Zwicknagl, O. Stockert, G. Sparn, and F. Steglich. Superconductivity in heavy fermion compounds, 2004.
- [7] M. Kato, C. Michioka, T. Waki, Y. Itoh, K. Yoshimura, K. Ishida, H. Sakurai, E. Takayama-Muromachi, K. Takada, and T. Sasaki. Possible spin-triplet superconductivity in  $\text{Na}_x\text{CoO}_2\cdot y\text{H}_2\text{O}$  -  $^{59}\text{Co}$  nmr study. *CONDENS.MATTER*, 18 :669, 2006.
- [8] Thomas E. Weller, Mark Ellerby, Siddharth S. Saxena, Robert P. Smith, and Neal T. Skipper. Superconductivity in the intercalated graphite compounds  $\text{C}_6\text{Yb}$  and  $\text{C}_6\text{Ca}$ , 2005.
- [9] R.D. Parks. *Superconductivity*. Marcel Dekker, Inc, 1969.
- [10] M.Héritier. *Magnétisme et Supraconductivité*. DEA Physique des Solides, 2004.
- [11] Leon N. Cooper. Bound electron pairs in a degenerate fermi gas. *Phys. Rev.*, 104(4) :1189–1190, Nov 1956.
- [12] H. Fröhlich. Theory of the superconducting state. i. the ground state at the absolute zero of temperature. *Phys. Rev.*, 79(5) :845–856, Sep 1950.
- [13] James W. Garland. Isotope effect in superconductivity. *Phys. Rev. Lett.*, 11(3) :114–119, Aug 1963.
- [14] M. A. Biondi, A. T. Forrester, M. P. Garfunkel, and C. B. Satterthwaite. Experimental evidence for an energy gap in superconductors. *Rev. Mod. Phys.*, 30(4) :1109–1136, Oct 1958.
- [15] Kei Yosida. Paramagnetic susceptibility in superconductors. *Phys. Rev.*, 110(3) :769–770, May 1958.
- [16] L. C. Hebel and C. P. Slichter. Nuclear relaxation in superconducting aluminum. *Phys. Rev.*, 107(3) :901–902, Aug 1957.
- [17] L. C. Hebel and C. P. Slichter. Nuclear spin relaxation in normal and superconducting aluminum. *Phys. Rev.*, 113(6) :1504–1519, Mar 1959.
- [18] M. Fibich. Phonon effects on nuclear spin relaxation in superconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 14(14) :561–564, Apr 1965.
- [19] Stuart Bermon and D. M. Ginsberg. Electron tunneling into superconducting mercury films. *Phys. Rev.*, 135(2A) :A306–A316, Jul 1964.
- [20] D. K. Finnemore, D. E. Mapother, and R. W. Shaw. Critical field curve of superconducting mercury. *Phys. Rev.*, 118(1) :127–129, Apr 1960.

## Bibliographie

- [21] G.M Eliasherberg. *Soviet Physics*, 11, 1960.
- [22] W. L. McMillan. Transition temperature of strong-coupled superconductors. *Phys. Rev.*, 167(2) :331–344, Mar 1968.
- [23] P. W. Anderson and B. T. Matthias. Superconductivity. *Science*, 144 :373, 1964.
- [24] K.Alex Müller. Perovskite-type oxides – the new approach to high- $t_c$  superconductivity. *Nobel Lectures*, 58, Dec 1987.
- [25] M. K. Wu, J. R. Ashburn, C. J. Torng, P. H. Hor, R. L. Meng, L. Gao, Z. J. Huang, Y. Q. Wang, and C. W. Chu. Superconductivity at 93 k in a new mixed-phase y-ba-cu-o compound system at ambient pressure. *Phys. Rev. Lett.*, 58(9) :908–910, Mar 1987.
- [26] Patrick A. Lee, Naoto Nagaosa, and Xiao-Gang Wen. Doping a mott insulator : Physics of high-temperature superconductivity. *Reviews of Modern Physics*, 78(1) :17, 2006.
- [27] C.Kallin M.R. Norman, D.Pines. The pseudogap : friend or foe of high  $t_c$ . *Adv.Phys.*, 54(8) :715–733, Dec 2005.
- [28] Tom Timusk and Bryan Statt. The pseudogap in high-temperature superconductors : an experiemental survey. *Rep. Prog. Phys.*, 62(8) :61–122, Jan 1999.
- [29] M.R. Norman and C.Pépin. The electronic nature of high temperature cuprate supeconductors. *Rep. Prog. Phys.*, 66(8) :1547–1610, Sep 2003.
- [30] N. E. Hussey, M. Abdel-Jawad, A. Carrington, A. P. Mackenzie, and L. Balicas. A coherent three-dimensional fermi surface in a high-transition-temperature superconductor. *Nature*, 425 :814–817, 2003.
- [31] J. Bobroff. *Impureté et systèmes corrélés- Des chaînes aux cuprates supraconducteurs*. Habilitation à diriger des recherches, Université Paris XI, 2005.
- [32] M. Plate, J. D. F. Mottershead, I. S. Elfimov, D. C. Peets, Ruixing Liang, D. A. Bonn, W. N. Hardy, S. Chiuzbaian, M. Falub, M. Shi, L. Patthey, and A. Damascelli. Fermi surface and quasiparticle excitations of overdoped  $\text{tl}_{\text{sub 2}}\text{ba}_{\text{sub 2}}\text{cuo}_{\text{sub 6} + \delta}$ . *Physical Review Letters*, 95(7) :077001, 2005.
- [33] M. Abdel-Jawad, M. P. Kennett, L. Balicas, A. Carrington, A. P. Mackenzie, R. H. McKenzie, and N. E. Hussey. Anisotropic scattering and anomalous normal-state transport in a high-temperature superconductor. *Nature Physics*, 2 :821–825, 2006.
- [34] Andrea Damascelli, Zahid Hussain, and Zhi-Xun Shen. Angle-resolved photoemission studies of the cuprate superconductors. *Rev. Mod. Phys.*, 75(2) :473–541, Apr 2003.
- [35] Wagner S., Gleskova H.and Andersen O.K., Liechtenstein A.I., and Jepsen O.and Paulsen F. Lda energy bands, low-energy hamiltonians,  $t'$ ,  $t''$ ,  $j$ . *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 56(12) :1573–1591, Feb 1994.
- [36] L. F. Mattheiss. Electronic band properties and superconductivity in  $la_{2-y}x_y\text{cuo}_4$ . *Phys. Rev. Lett.*, 58(10) :1028–1030, Mar 1987.
- [37] Jaejun Yu, A. J. Freeman, and J. H. Xu. Electronically driven instabilities and superconductivity in the layered  $la_{2-x}ba_x\text{cuo}_4$  perovskites. *Phys. Rev. Lett.*, 58(10) :1035–1037, Mar 1987.
- [38] J. Zaanen, G. A. Sawatzky, and J. W. Allen. Band gaps and electronic structure of transition-metal compounds. *Phys. Rev. Lett.*, 55(4) :418–421, Jul 1985.
- [39] Shunji Sugai, Shin-ichi Shamoto, and Masatoshi Sato. Two-magnon raman scattering in  $(la_{1-x}sr_x)_2\text{cuo}_4$ . *Phys. Rev. B*, 38(10) :6436–6439, Oct 1988.

- [40] P. Bourges, H. Casalta, A. S. Ivanov, and D. Petitgrand. Superexchange coupling and spin susceptibility spectral weight in undoped monolayer cuprates. *Phys. Rev. Lett.*, 79(24) :4906–4909, Dec 1997.
- [41] J. Tranquada. Neutron scattering studies of antiferromagnetic correlations in cuprates. *Cond-matt*, 0512115, Nov 2005.
- [42] V. J. Emery. Theory of high- $t_c$  superconductivity in oxides. *Phys. Rev. Lett.*, 58(26) :2794–2797, Jun 1987.
- [43] C. M. Varma. Theory of the pseudogap state of the cuprates. *Phys. Rev. B*, 73(15) :155113, Apr 2006.
- [44] F. C. Zhang and T. M. Rice. Effective hamiltonian for the superconducting cu oxides. *Phys. Rev. B*, 37(7) :3759–3761, Mar 1988.
- [45] Y. M. Vilk and A. M. S. Tremblay. Non-perturbative many-body approach to the hubbard model and single-particle pseudogap. *J.PHYS.I FRANCE*, 7 :1309, 1997.
- [46] A. M. S. Tremblay, B. Kyung, and D. Senechal. Pseudogap and high-temperature superconductivity from weak to strong coupling. towards quantitative theory. *Low Temperature Physics*, 32 :424, 2006.
- [47] Hiroshi Maeda, Yoshiaki Tanaka, Masao Fukutomi, and Toshihisa Asano. A new high- $t_c$  oxide superconductor without a rare earth element. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 27 :L209, 1989.
- [48] Z. Z. Sheng and A. M. Hermann. Superconductivity in the rare-earth-free tl-ba-cu-o system above liquid-nitrogen temperature. *Nature*, 332 :55–58, 1988.
- [49] S. N. Putilin, E. V. Antipov, O. Chmaissem, and M. Marezio. Superconductivity at 94 k in  $hgba_2cuo_{4+x}$ . *Nature*, 362 :226–228, 1993.
- [50] 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, and S. Sutton†. Flux quantization in a high- $t_c$  superconductor. *Nature*, 326 :855, 1987.
- [51] D. Esteve et al. *Eur. Phys. Lett.*, 3 :1237, 1987.
- [52] T. M. Riseman, J. H. Brewer, K. H. Chow, W. N. Hardy, R. F. Kiefl, S. R. Kreitzman, R. Liang, W. A. MacFarlane, P. Mendels, G. D. Morris, J. Rammer, J. W. Schneider, C. Niedermayer, and S. L. Lee. Ginzburg-landau parameter in  $yba_2cu_3o_{6.95}$  below the irreversibility temperature as measured by  $\mu^+$ sr in high magnetic fields. *Phys. Rev. B*, 52(14) :10569–10580, Oct 1995.
- [53] Yoichi Ando and Kouji Segawa. Magnetoresistance of untwinned  $yba_2cu_3o_y$  single crystals in a wide range of doping : Anomalous hole-doping dependence of the coherence length. *Phys. Rev. Lett.*, 88(16) :167005, Apr 2002.
- [54] S. E. Barrett, D. J. Durand, C. H. Pennington, C. P. Slichter, T. A. Friedmann, J. P. Rice, and D. M. Ginsberg.  $^{63}cu$  knight shifts in the superconducting state of  $yba_2cu_3o_{7-\delta}$  ( $t_c=90$  k). *Phys. Rev. B*, 41(10) :6283–6296, Apr 1990.
- [55] W. N. Hardy, D. A. Bonn, D. C. Morgan, Ruixing Liang, and Kuan Zhang. Precision measurements of the temperature dependence of  $\lambda$  in  $yba_2cu_3o_{6.95}$  : Strong evidence for nodes in the gap function. *Phys. Rev. Lett.*, 70(25) :3999–4002, Jun 1993.
- [56] Mike Sutherland, D. G. Hawthorn, R. W. Hill, F. Ronning, S. Wakimoto, H. Zhang, C. Proust, Etienne Boaknin, C. Lupien, Louis Taillefer, Ruixing Liang, D. A. Bonn, W. N. Hardy, Robert Gagnon, N. E. Hussey, T. Kimura, M. Nohara, and H. Takagi. Thermal conductivity across the phase diagram of cuprates : Low-energy quasiparticles and doping dependence of the superconducting gap. *Phys. Rev. B*, 67(17) :174520, May 2003.
- [57] C. C. Tsuei and J. R. Kirtley. Pairing symmetry in cuprate superconductors. *Rev. Mod. Phys.*, 72(4) :969, Oct 2000.

## Bibliographie

- [58] J. C. Campuzano, H. Ding, M. R. Norman, M. Randeria, A. F. Bellman, T. Yokoya, T. Takahashi, H. Katayama-Yoshida, T. Mochiku, and K. Kadowaki. Direct observation of particle-hole mixing in the superconducting state by angle-resolved photoemission. *Phys. Rev. B*, 53(22) :R14737–R14740, Jun 1996.
- [59] H. Matsui, T. Sato, T. Takahashi, S.-C. Wang, H.-B. Yang, H. Ding, T. Fujii, T. Watanabe, and A. Matsuda. Bcs-like bogoliubov quasiparticles in high- $t_c$  superconductors observed by angle-resolved photoemission spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 90(21) :217002, May 2003.
- [60] Oystein Fischer, Martin Kugler, Ivan Maggio-Aprile, Christophe Berthod, and Christoph Renner. Scanning tunneling spectroscopy of high-temperature superconductors. *Reviews of Modern Physics*, 79(1) :353, 2007.
- [61] H. Alloul, T. Ohno, and P. Mendels.  $^{89}\text{Y}$  nmr evidence for a fermi-liquid behavior in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ . *Phys. Rev. Lett.*, 63(16) :1700–1703, Oct 1989.
- [62] Ch. Renner, B. Revaz, J.-Y. Genoud, K. Kadowaki, and Ø. Fischer. Pseudogap precursor of the superconducting gap in under- and overdoped  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ . *Phys. Rev. Lett.*, 80(1) :149–152, Jan 1998.
- [63] J. W. Loram, K. A. Mirza, J. R. Cooper, and W. Y. Liang. Electronic specific heat of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  from 1.8 to 300 k. *Phys. Rev. Lett.*, 71(11) :1740–1743, Sep 1993.
- [64] C. C. Homes, T. Timusk, R. Liang, D. A. Bonn, and W. N. Hardy. Optical conductivity of c axis oriented  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.70}$  : Evidence for a pseudogap. *Phys. Rev. Lett.*, 71(10) :1645–1648, Sep 1993.
- [65] M. Takigawa, A. P. Reyes, P. C. Hammel, J. D. Thompson, R. H. Heffner, Z. Fisk, and K. C. Ott. Cu and o nmr studies of the magnetic properties of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.63}$  ( $t_c=62$  k). *Phys. Rev. B*, 43(1) :247–257, Jan 1991.
- [66] T. Ito, K. Takenaka, and S. Uchida. Systematic deviation from t-linear behavior in the in-plane resistivity of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$  : Evidence for dominant spin scattering. *Phys. Rev. Lett.*, 70(25) :3995–3998, Jun 1993.
- [67] A. A. Kordyuk, S. V. Borisenko, M. S. Golden, S. Legner, K. A. Nenkov, M. Knupfer, J. Fink, H. Berger, L. Forró, and R. Follath. Doping dependence of the fermi surface in  $(\text{bi}, \text{pb})_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ . *Phys. Rev. B*, 66(1) :014502, Jun 2002.
- [68] Takeuchi T, Yokoya T, Shin S, Jinno K, Matsuura M, Kondo T, Ikuta H, and Mizutani U. Topology of the fermi surface and band structure near the fermi level in the ph-doped  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_{6+\delta}$  superconductor. *JOURNAL OF ELECTRON SPECTROSCOPY AND RELATED PHENOMENA*, 114(2) :629–634, March 2001.
- [69] J. Mesot, M. R. Norman, H. Ding, M. Randeria, J. C. Campuzano, A. Paramekanti, H. M. Fretwell, A. Kaminski, T. Takeuchi, T. Yokoya, T. Sato, T. Takahashi, T. Mochiku, and K. Kadowaki. Superconducting gap anisotropy and quasiparticle interactions : A doping dependent photoemission study. *Phys. Rev. Lett.*, 83(4) :840–843, Jul 1999.
- [70] A. V. Fedorov, T. Valla, P. D. Johnson, Q. Li, G. D. Gu, and N. Koshizuka. Temperature dependent photoemission studies of optimally doped  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ . *Phys. Rev. Lett.*, 82(10) :2179–2182, Mar 1999.
- [71] Nicolas Doiron-Leyraud, Cyril Proust, David LeBoeuf, Julien Levallois, Jean-Baptiste Bonnemaison, Ruixing Liang, D. A. Bonn, W. N. Hardy, and Louis Taillefer. Quantum oscillations and the fermi surface in an underdoped high- $t_c$  superconductor. *Nature*, 447 :565–568, May 2007.

- [72] H. Ding, T. Yokoya, J. C. Campuzano, T. Takahashi, M. Randeria, M. R. Norman, T. Mochiku, K. Kadowaki, and J. Giapintzakis. Spectroscopic evidence for a pseudogap in the normal state of underdoped high- $T_c$  superconductors. *Nature*, 382 :51–54, July 1996.
- [73] M. R. Norman, H. Ding, M. Randeria, T. Yokoya, J. C. Campuzano and, T. Takeuchi, T. Takahashi, T. Mochiku, K. Kadowaki, P. Guptasarma, and D. G. Hinks. Destruction of the fermi surface in underdoped high- $T_c$  superconductors. *Nature*, 392 :157–160, March 1998.
- [74] A. Kanigel, M. R. Norman, M. Randeria, U. Chatterjee, S. Souma and A. Kaminski, H. M. Fretwell, S. Rosenkranz, M. Shi, T. Sato, T. Takahashi, Z. Z. Li, H. Raffy, K. Kadowaki, D. Hinks, L. Ozyuzer, and J. C. Campuzano. Evolution of the pseudogap from fermi arcs to the nodal liquid. *Nature*, 2 :447–451, March 2006.
- [75] D.J. Scalapino. Distinguish high- $T_c$  theories. *J. Phys. Chem. Solids*, 56(12) :1669–1672, 1995.
- [76] Mathieu LeTacon. "Un gap peut en cacher un autre" Une exploration de la phase supraconductrice des cuprates par sonde Raman. Thèse de doctorat à l'université paris vii, Université Paris VII, 2006.
- [77] N. Bulut and D. J. Scalapino.  $d_{x^2-y^2}$  symmetry and the pairing mechanism. *Phys. Rev. B*, 54(21) :14971–14973, Dec 1996.
- [78] X. J. Zhou, T. Cuk, T. Devereaux, N. Nagaosa, and Z.-X. Shen. Angle-resolved photoemission spectroscopy on electronic structure and electron-phonon coupling in cuprate superconductors. *Cond-matt*, x(0604284) :x, Avril 2006.
- [79] Steven A. Kivelson and Eduardo Fradkin. How optimal inhomogeneity produces high temperature superconductivity, 2005.
- [80] G.-H. Gweon, S.Y. Zhou, T. Sasagawa and, H. Takagi, J. Graf, and D.-H. Lee and A. Lanzara. An unusual isotope effect in a high-transition-temperature superconductor. *Nature*, 430 :187–190, July 2004.
- [81] Jinho Lee, K. Fujita, K. McElroy, J. A. Slezak, M. Wang, Y. Aiura, H. Bando, M. Ishikado, T. Masui, J.-X. Zhu, A. V. Balatsky, H. Eisaki, S. Uchida, and J. C. Davis. Interplay of electron–lattice interactions and superconductivity in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ . *Nature*, 442 :546–550, August 2006.
- [82] Jungseok Hwang, Thomas Timusk, and Jules P. Carbotte. Scanning-tunnelling spectra of cuprates. *Nature*, 446 :E3–E4, March 2007.
- [83] D. Reznik, L. Pintschovius, M. Ito, S. Iikubo, M. Sato, H. Goka, M. Fujita, K. Yamada, G. D. Gu, and J. M. Tranquada. Electron–phonon coupling reflecting dynamic charge inhomogeneity in copper oxide superconductors. *Nature*, 440 :1170–1173, 2006.
- [84] Andrey V. Chubukov, David Pines, and Joerg Schmalian. A spin fluctuation model for d-wave superconductivity, 2002.
- [85] N. F. Berk and J. R. Schrieffer. Effect of ferromagnetic spin correlations on superconductivity. *Phys. Rev. Lett.*, 17(8) :433–435, Aug 1966.
- [86] N. Bulut.  $d_{x^2-y^2}$  superconductivity and the hubbard model. *Advances In Physics*, 51 :1587–1667(81), Number 7/November 01, 2002.
- [87] Matthias Eschrig. The effect of collective spin-1 excitations on electronic spectra in high- $T_c$  superconductors, 2005.
- [88] P. W. Anderson. The resonating valence bond state in  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  and superconductivity. *Science*, 235 :4573, 1987.
- [89] B. Edegger, V.N. Muthukumar, and C. Gros. Gutzwiller- $r_{\text{VB}}$  theory of high temperature superconductivity : Results from renormalised mean field theory and variational monte carlo calculations, 2007.

## Bibliographie

- [90] Gabriel Kotliar and Jialin Liu. Superexchange mechanism and d-wave superconductivity. *Phys. Rev. B*, 38(7) :5142–5145, Sep 1988.
- [91] N. Bergeal, J. Lesueur, M. Aprili, G. Faini, J. P. Contour, and B. Leridon. Direct test of pairing fluctuations in the pseudogap phase of underdoped cuprates, 2006.
- [92] J. M. Tranquada, B. J. Sternlieb, J. D. Axe, Y. Nakamura, and S. Uchida. Evidence for stripe correlations of spins and holes in copper oxide superconductors. *Nature*, 375 :561, 1995.
- [93] S. A. Kivelson, I. P. Bindloss, E. Fradkin, V. Oganesyan, J. M. Tranquada, A. Kapitulnik, and C. Howald. How to detect fluctuating stripes in the high-temperature superconductors. *Rev. Mod. Phys.*, 75(4) :1201–1241, Oct 2003.
- [94] S. A. Kivelson, E. Fradkin, and V. J. Emery. Electronic liquid crystal phases of a doped mott insulator. *Nature*, 393 :550, 1998.
- [95] Sudip Chakravarty, R. B. Laughlin, Dirk K. Morr, and Chetan Nayak. Hidden order in the cuprates. *Phys. Rev. B*, 63(9) :094503, Jan 2001.
- [96] J. Brad Marston and Ian Affleck. Large- $n$  limit of the hubbard-heisenberg model. *Phys. Rev. B*, 39(16) :11538–11558, Jun 1989.
- [97] Y. Sidis, S. Pailhes, B. Keimer, P. Bourges, C. Ulrich, and L. P. Regnault. Magnetic resonant excitations in high- $t_c$  superconductors. *PHYS.STAT.SOL. (B)*, 241 :1204, 2004.
- [98] J. Rossat-Mignod, L. P. Regnault, C. Vettier, P. Bourges, P. Bulet, J. Bossy, J. Y. Henry, and G. Laperot. Neutron scattering study of the  $yba_2cu_3o_{6+x}$  system. *Physica C : Superconductivity*, 185-189 :86–89, 1991.
- [99] H. F. Fong, P. Bourges, Y. Sidis, L. P. Regnault, A. Ivanov, G. D. Gu, N. Koshizuka, and B. Keimer. Neutron scattering from magnetic excitations in  $bi_2sr_2cacu_2o_{8+\delta}$ . *Nature*, 398 :588, 1999.
- [100] He H, Bourges P, Sidis Yand Ulrich C, Regnault LPand Pailhes S, Berzigiarova NS, Kolesnikov NN, and Keimer B. Magnetic resonant mode in the single-layer high-temperature superconductor  $tl_2ba_2cuo_6+\delta$ . *Science*, 295 :5557, 2002.
- [101] Y. Sidis, P. Bourges, H. F. Fong, B. Keimer, L. P. Regnault, J. Bossy, A. Ivanov, B. Hennion, P. Gautier-Picard, G. Collin, D. L. Millius, and I. A. Aksay. Quantum impurities and the neutron resonance peak in  $yba_2cu_3o_7$  : Ni versus zn. *Phys. Rev. Lett.*, 84(25) :5900–5903, Jun 2000.
- [102] S. Pailhès, Y. Sidis, P. Bourges, C. Ulrich, V. Hinkov, L. P. Regnault, A. Ivanov, B. Liang, C. T. Lin, C. Bernhard, and B. Keimer. Two resonant magnetic modes in an overdoped high  $t_c$  superconductor. *Phys. Rev. Lett.*, 91(23) :237002, Dec 2003.
- [103] S. Pailhes, Y. Sidis, P. Bourges, V. Hinkov, A. Ivanov, C. Ulrich, L. P. Regnault, and B. Keimer. Resonant magnetic excitations at high energy in superconducting  $yba_2cu_3o_{6.85}$ . *Physical Review Letters*, 93(16) :167001, 2004.
- [104] Hyungje Woo, Pengcheng Dai, S. M. Hayden, H. A. Mook, T. Dahm, D. J. Scalapino, T. G. Perring, and F. Dogan. Magnetic excitations and their energy change available to superconducting condensation in optimally doped  $yba_2cu_3o_{6.95}$ . *Nature Physics*, 2 :600, 2006.
- [105] J. M. Tranquada, G. Shirane, B. Keimer, S. Shamoto, and M. Sato. Neutron scattering study of magnetic excitations in  $yba_2cu_3o_{6+x}$ . *Phys. Rev. B*, 40(7) :4503–4516, Sep 1989.
- [106] J. M. Tranquada, P. M. Gehring, G. Shirane, S. Shamoto, and M. Sato. Neutron-scattering study of the dynamical spin susceptibility in  $yba_2cu_3o_{6.6}$ . *Phys. Rev. B*, 46(9) :5561–5575, Sep 1992.
- [107] S. Pailhes, C. Ulrich, B. Fauque, V. Hinkov, Y. Sidis, A. Ivanov, C. T. Lin, B. Keimer, and P. Bourges. Doping dependence of bilayer resonant spin excitations in  $(y,ca)ba_2cu_3o_{6+x}$ . *Physical Review Letters*, 96(25) :257001, 2006.

- [108] P. Bourges, Y. Sidis, H. F. Fong, L. P. Regnault, J. Bossy, A. Ivanov, and B. Keimer. The spin excitation spectrum in superconducting  $yba_2cu_3o_{6.85}$ . *Science*, 288 :1234, 2000.
- [109] D. Reznik, P. Bourges, L. Pintschovius, Y. Endoh, Y. Sidis, T. Masui, and S. Tajima. Dispersion of magnetic excitations in optimally doped superconducting  $yba_2cu_3o_{6.95}$ . *Physical Review Letters*, 93(20) :207003, 2004.
- [110] V. Hinkov, S. Pailhes, P. Bourges, Y. Sidis, A. Ivanov, A. Kulakov, C. T. Lin, D. P. Chen, C. Bernhard, and B. Keimer. Two-dimensional geometry of spin excitations in the high temperature superconductor  $yba_2cu_3o_{6+x}$ . *Nature*, 430 :650, 2004.
- [111] P. Bourges, H. F. Fong, L. P. Regnault, J. Bossy, C. Vettier, D. L. Milius, I. A. Aksay, and B. Keimer. High-energy spin excitations in  $yba_2cu_3o_{6.5}$ . *Phys. Rev. B*, 56(18) :R11439–R11442, Nov 1997.
- [112] C. Stock, W. J. L. Buyers, R. A. Cowley, P. S. Clegg, R. Coldea, C. D. Frost, R. Liang, D. Peets, D. Bonn, W. N. Hardy, and R. J. Birgeneau. From incommensurate to dispersive spin-fluctuations : The high-energy inelastic spectrum in superconducting  $yba_2cu_3o_{6.6}$ . *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, 71(2) :024522, 2005.
- [113] S. M. Hayden, H. A. Mook, Pengcheng Dai, T. G. Perring, and F. Doan. The structure of the high-energy spin excitations in a high-transition-temperature superconductor. *Nature*, 429 :531–534, 2004.
- [114] C. Stock, W. J. L. Buyers, Z. Yamani, C. L. Broholm, J.-H. Chung, Z. Tun, R. Liang, D. Bonn, W. N. Hardy, and R. J. Birgeneau. Central mode and spin confinement near the boundary of the superconducting phase in  $yba_2cu_3o_{6.35}$  ( $t_c = 18$  k). *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, 73(10) :100504, 2006.
- [115] P. Bourges. *Dynamique de spins dans les supraconducteurs à haute température critique*. Habilitation à diriger des recherches, Université Paris XI, 2003.
- [116] Stéphane Pailhès. *Etude des excitations magnétiques dans les supraconducteur à haute température critique  $Y_{1-x}Ca_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  par diffusion inélastique des neutrons*. Thèse de doctorat à l’université paris vi, Université Paris VI, 2004.
- [117] V. Hinkov, P. Bourges, S. Pailhes, Y. Sidis, A. Ivanov, C. T. Lin, D. P. Chen, and B. Keimer. In-plane anisotropy of spin excitations in the normal and superconducting states of underdoped  $yba_2cu_3o_{6+x}$ , 2006.
- [118] J. M. Tranquada. Stripes and superconductivity in cuprate superconductors. *PROC.SPIE*, 5932 :59320C, 2005.
- [119] J. M. Tranquada, H. Woo, T. G. Perring, H. Goka, G. D. Gu, G. Xu, M. Fujita, and K. Yamada. Quantum magnetic excitations from stripes in copper-oxide superconductors. *Nature*, 429 :534, 2004.
- [120] G. S. Uhrig, K. P. Schmidt, and M. Gruninger. Unifying magnons and triplons in stripe-ordered cuprate superconductors. *Physical Review Letters*, 93(26) :267003, 2004.
- [121] G. Seibold and J. Lorenzana. Magnetic fluctuations of stripes in the high temperature cuprate superconductors. *Physical Review Letters*, 94(10) :107006, 2005.
- [122] Matthias Vojta, Thomas Vojta, and Ribhu K. Kaul. Spin excitations in fluctuating stripe phases of doped cuprate superconductors. *Physical Review Letters*, 97(9) :097001, 2006.
- [123] F. Onufrieva and P. Pfeuty. Sc state in the underdoped high- $t_c$  cuprates as a quantum spin liquid. a microscopic theory, 1999.
- [124] Ar. Abanov and Andrey V. Chubukov. A relation between the resonance neutron peak and arpes data in cuprates. *Phys. Rev. Lett.*, 83(8) :1652–1655, Aug 1999.

- [125] M. R. Norman. Relation of neutron incommensurability to electronic structure in high-temperature superconductors. *Phys. Rev. B*, 61(21) :14751–14758, Jun 2000.
- [126] D. Manske, I. Eremin, and K. H. Bennemann. Analysis of the resonance peak and magnetic coherence seen in inelastic neutron scattering of cuprate superconductors : A consistent picture with tunneling and conductivity data. *Phys. Rev. B*, 63(5) :054517, Jan 2001.
- [127] I. Eremin, D. K. Morr, A. V. Chubukov, K. H. Bennemann, and M. R. Norman. Novel neutron resonance mode in  $d_{x^2+y^2}$ -wave superconductors. *Physical Review Letters*, 94(14) :147001, 2005.
- [128] A. P. Schnyder, A. Bill, C. Mudry, R. Gilardi, H. M. Ronnow, and J. Mesot. Influence of higher d-wave gap harmonics on the dynamical magnetic susceptibility of high-temperature superconductors. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, 70(21) :214511, 2004.
- [129] A. J. Millis and H. Monien. Bilayer coupling in the yttrium-barium family of high-temperature superconductors. *Phys. Rev. B*, 54(22) :16172–16178, Dec 1996.
- [130] A. Kaminski, M. Randeria, J. C. Campuzano, M. R. Norman, H. Fretwell, J. Mesot, T. Sato, T. Takahashi, and K. Kadowaki. Renormalization of spectral line shape and dispersion below  $t_c$  in  $bi_2sr_2cacu_2o_{8+\delta}$ . *Phys. Rev. Lett.*, 86(6) :1070–1073, Feb 2001.
- [131] M. R. Norman, M. Eschrig, A. Kaminski, and J. C. Campuzano. Momentum distribution curves in the superconducting state. *Phys. Rev. B*, 64(18) :184508, Oct 2001.
- [132] J. C. Campuzano, H. Ding, M. R. Norman, H. M. Fretwell, M. Randeria, A. Kaminski, J. Mesot, T. Takeuchi, T. Sato, T. Yokoya, T. Takahashi, T. Mochiku, K. Kadowaki, P. Guptasarma, D. G. Hinks, Z. Konstantinovic, Z. Z. Li, and H. Raffy. Electronic spectra and their relation to the  $(\pi, \pi)$  collective mode in high-  $t_c$  superconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 83(18) :3709–3712, Nov 1999.
- [133] S. V. Borisenko, A. A. Kordyuk, A. Koitzsch, J. Fink, J. Geck, V. Zabolotnyy, M. Knupfer, B. Büchner, H. Berger, M. Falub, M. Shi, J. Krempasky, and L. Patthey. Parity of the pairing bosons in a high-temperature pb- $bi_2sr_2cacu_2o_8$  bilayer superconductor by angle-resolved photoemission spectroscopy. *Physical Review Letters*, 96(6) :067001, 2006.
- [134] Ilya Eremin, Dirk K. Morr, Andrey V. Chubukov, and Karl Bennemann. Spin susceptibility in bilayered cuprates : Resonant magnetic excitations. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, 75(18) :184534, 2007.
- [135] M. Eschrig and M. R. Norman. Dispersion anomalies in bilayer cuprates and the odd symmetry of the magnetic resonance. *Phys. Rev. Lett.*, 89(27) :277005, Dec 2002.
- [136] Y. Sidis, P. Bourges, B. Hennion, L. P. Regnault, R. Villeneuve, G. Collin, and J. F. Marucco. Zinc-induced modification of the dynamical magnetic susceptibility in the superconducting state of  $yba_2cu_3o_{6+x}$  as revealed by inelastic neutron scattering. *Phys. Rev. B*, 53(10) :6811–6818, Mar 1996.
- [137] V. B. Zabolotnyy, S. V. Borisenko, A. A. Kordyuk, J. Fink, J. Geck, A. Koitzsch, M. Knupfer, B. Büchner, H. Berger, A. Erb, C. T. Lin, B. Keimer, and R. Follath. Effect of zn and ni impurities on the quasiparticle renormalization of superconducting bi-2212. *Physical Review Letters*, 96(3) :037003, 2006.
- [138] J. F. Zasadzinski, L. Ozyuzer, N. Miyakawa, K. E. Gray, D. G. Hinks, and C. Kendziora. Correlation of tunneling spectra in  $bi_2sr_2cacu_2o_{8+\delta}$  with the resonance spin excitation. *Phys. Rev. Lett.*, 87(6) :067005, Jul 2001.
- [139] J. Hwang, T. Timusk, and G. D. Gu. High-transition-temperature superconductivity in the absence of the magnetic-resonance mode. *Nature*, 427 :714, 2004.

- [140] P. D. Johnson, T. Valla, A. V. Fedorov, Z. Yusof, B. O. Wells, Q. Li, A. R. Moodenbaugh, G. D. Gu, N. Koshizuka, C. Kendziora, Sha Jian, and D. G. Hinks. Doping and temperature dependence of the mass enhancement observed in the cuprate  $bi_2sr_2cacu_2o_{8+\delta}$ . *Phys. Rev. Lett.*, 87(17) :177007, Oct 2001.
- [141] V.F.Searsr. *Neutron Optcis*. Oxford University Press, 1998.
- [142] H. Rauch and S.A. Werner. *Neutron Interferometry*. Clarendon Press, Oxford, 2000.
- [143] G.L. Squires. *Theory of neutron scattering from condensed matter, volume I*. Oxford Science Publications, 1984.
- [144] G.L. Squires. *Theory of neutron scattering from condensed matter, volume II*. Oxford Science Publications, 1984.
- [145] G.L. Squires. *Thermal Neutron Scattering*. Cambridge University Press, 1973.
- [146] R. M. Moon, T. Riste, and W. C. Koehler. Polarization analysis of thermal-neutron scattering. *Phys. Rev.*, 181(2) :920–931, May 1969.
- [147] Cyrille Boullier. *Diffusion inélastique et polarimétrie neutronique*. Thèse de doctorat à l’université josph fourier, Université Joseph Fourier, 2003.
- [148] L.P. Regnault, B. Geffray, P. Fouilloux, B. Longuet, F. Mantegazza, F. Tasset, E. LelièvreBerna, S. Pujol, E. Bourgeat-Lami, N. Kernavanois, M. Thomas, and Y. Gibert. Spherical neutron polarization analysis on the three-axis spectrometer in22. *Physica B.*, 350 :e811–814.
- [149] L-P. Regnault, C. Boullier, H.M. Rønnow, J.E. Lorenzo, and C. Marin. Inelastic neutron polarization analysis in low-dimensional systems.. *Physica B.*, 345 :111–118.
- [150] M. J. Naughton, R. C. Yu, P. K. Davies, J. E. Fischer, R. V. Chamberlin, Z. Z. Wang, T. W. Jing, N. P. Ong, and P. M. Chaikin. Orientational anisotropy of the upper critical field in single-crystal  $yba_2cu_3o_7$  and  $bi_{2.2}casr_{1.9}cu_2o_{8+x}$ . *Phys. Rev. B*, 38(13) :9280–9283, Nov 1988.
- [151] Akiji Yamamoto, Mitsuko Onoda, Eiji Takayama-Muromachi, Fujio Izumi, Toru Ishigaki, and Hajime Asano. Rietveld analysis of the modulated structure in the superconducting oxide  $bi_2(sr,ca)_3cu_2o_{8+x}$ . *Phys. Rev. B*, 42(7) :4228–4239, Sep 1990.
- [152] J. E. Fischer, P. A. Heiney, P. K. Davies, and D. Vaknin. X-ray, neutron, and electron diffraction study of the incommensurate structure in single crystals of  $bi_{2.2}sr_{1.9}cacu_2o_{8+x}$ . *Phys. Rev. B*, 39(4) :2752–2755, Feb 1989.
- [153] J. Etrillard, P. Bourges, and C. T. Lin. Incommensurate composite structure of the superconductor  $bi_2sr_2cacu_2o_{8+\delta}$ . *Phys. Rev. B*, 62(1) :150–153, Jul 2000.
- [154] M. B. Walker and Weiming Que. Structural model for the incommensurate bismuth high- $t_c$  superconductors. *Phys. Rev. B*, 45(14) :8085–8090, Apr 1992.
- [155] D. Grebille, H. Leligny, and O. Pérez. Comment on incommensurate composite structure of the superconductor  $bi_2sr_2cacu_2o_{8+\delta}$ . *Phys. Rev. B*, 64(10) :106501, Aug 2001.
- [156] J. M. Perez-Mato, J. Etrillard, J. M. Kiat, B. Liang, and C. T. Lin. Competition between composite and modulated configurations in  $bi_2sr_2cacu_2o_{8+\delta}$  and its relation to oxygen stoichiometry. *Phys. Rev. B*, 67(2) :024504, Jan 2003.
- [157] L. Capogna, B. Fauqué, Y. Sidis, C. Ulrich, P. Bourges, S. Pailhes, A. Ivanov, J. L. Tallon, B. Liang, C. T. Lin, A. I. Rykov, and B. Keimer. Odd and even magnetic resonant modes in highly overdoped  $bi_2sr_2cacu_2o_{8+\delta}$ . *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, 75(6) :060502, 2007.
- [158] C. T. Lin, B. Liang, and H. C. Chen. Top-seeded solution growth of ca-doped ybco single crystals. *Journal of Crystal Growth*, 237-239(1) :778–782, April 2002.

## Bibliographie

- [159] V. Hinkov, S. Pailhes, P. Bourges, Y. Sidis, A. Ivanov, A. Kulakov, C. T. Lin, D. P. Chen, C. Bernhard, and B. Keimer. Two-dimensional geometry of spin excitations in the high-transition-temperature superconductor  $yba_2cu_3o_{6+x}$ . *Nature*, 430 :650–654, 2004.
- [160] Y. Sidis, C. Ulrich, P. Bourges, C. Bernhard, C. Niedermayer, L. P. Regnault, N. H. Andersen, and B. Keimer. Antiferromagnetic ordering in superconducting  $yba_2cu_3o_{6.5}$ . *Phys. Rev. Lett.*, 86(18) :4100–4103, Apr 2001.
- [161] L. Pintschovius, W. Reichardt, M. Kläser, T. Wolf, and H. v. Löhneysen. Pronounced in-plane anisotropy of phonon anomalies in  $yba_2cu_3o_{6.6}$ . *Phys. Rev. Lett.*, 89(3) :037001, Jun 2002.
- [162] S. Pailhes, C. Ulrich, B. Fauque, V. Hinkov, Y. Sidis, A. Ivanov, C. T. Lin, B. Keimer, and P. Bourges. Doping dependence of bilayer resonant spin excitations in  $(y,ca)ba_2cu_3o_{6+x}$ . *Physical Review Letters*, 96(25) :257001, 2006.
- [163] Raffaele Gilardi. *Inelastic and small angle neutron scattering study of the  $La_{2-x}Sr_xCuO_4$  high- $T_c$  superconductor in a magnetic field*. Phd thesis, ETH, Zurich, 2004.
- [164] J. D. Axe, A. H. Moudden, D. Hohlwein, D. E. Cox, K. M. Mohanty, A. R. Moodenbaugh, and Youwen Xu. Structural phase transformations and superconductivity in  $la_{2-x}ba_xcuo_4$ . *Phys. Rev. Lett.*, 62(23) :2751–2754, Jun 1989.
- [165] Stéphane Pailhés. *Etude des excitations magnétiques dans les supraconducteur à haute température critique  $La_{2-x}Sr_xCuO_4$  par diffusion inélastique des neutrons*. Thèse de doctorat à l’université paris vi, Université de Paris VI, 2004.
- [166] P. G. Radaelli, D. G. Hinks, A. W. Mitchell, B. A. Hunter, J. L. Wagner, B. Dabrowski, K. G. Vandervoort, H. K. Viswanathan, and J. D. Jorgensen. Structural and superconducting properties of  $la_{2-x}sr_xcuo_4$  as a function of sr content. *Phys. Rev. B*, 49(6) :4163–4175, Feb 1994.
- [167] M. R. Norman, G. J. McMullan, D. L. Novikov, and A. J. Freeman. Effect of structure on the electronic density of states of doped lanthanum cuprate. *Phys. Rev. B*, 48(13) :9935–9937, Oct 1993.
- [168] Tohru Nakano, Naoki Momono, Migaku Oda, and Masayuki Ido. Correlation between the doping dependences of superconducting gap magnitude and pseudogap temperature  $t^*$  in high- $t_c$  cuprates. *Journal of the Physical Society of Japan*, 67(8) :2622–2625, Feb 1998.
- [169] O. K. Andersen, O. Jepsen, A. I. Liechtenstein, and I. I. Mazin. Plane dimpling and saddle-point bifurcation in the band structures of optimally doped high-temperature superconductors : A tight-binding model. *Phys. Rev. B*, 49(6) :4145–4157, Feb 1994.
- [170] J. Mesot, M. R. Norman, H. Ding, M. Randeria, J. C. Campuzano, A. Paramekanti, H. M. Fretwell, A. Kaminski, T. Takeuchi, T. Yokoya, T. Sato, T. Takahashi, T. Mochiku, and K. Kadowaki. Superconducting gap anisotropy and quasiparticle interactions : A doping dependent photoemission study. *Phys. Rev. Lett.*, 83(4) :840–843, Jul 1999.
- [171] Ayumi Fujita. Vortex dissipation and level dynamics for layered superconductors with impurities. *Phys. Rev. B*, 64(6) :064504, Jul 2001.
- [172] B. W. Hoogenboom, C. Berthod, M. Peter, Ø. Fischer, and A. A. Kordyuk. Modeling scanning tunneling spectra of  $bi_2sr_2cacu_2o_{8+\delta}$ . *Phys. Rev. B*, 67(22) :224502, Jun 2003.
- [173] K. McElroy, D.-H. Lee, J. E. Hoffman, K. M. Lang, J. Lee, E. W. Hudson, H. Eisaki, S. Uchida, and J. C. Davis. Coincidence of checkerboard charge order and antinodal state decoherence in strongly underdoped superconducting  $bi_2sr_2cacu_2o_{8+\delta}$ . *Physical Review Letters*, 94(19) :197005, 2005.
- [174] J. E. Hoffman, K. McElroy, D. H. Lee, K. M. Lang, H. Eisaki, S. Uchida, and J. C. Davis. Imaging quasiparticle interference in  $bi_2sr_2cacu_2o_{8+\delta}$ . *Science*, 297 :1148, 2002.

- [175] K. McElroy, R. W. Simmonds, J. E. Hoffman, D.-H. Lee, J. Orenstein, H. Eisaki, S. Uchida, and J. C. Davis. Relating atomic-scale electronic phenomena to wave-like quasiparticle states in superconducting  $bi_2sr_2cacu_2o_{8+\delta}$ . *Nature*, 422 :592–596, 2002.
- [176] A. Kapitulnik, A. Fang, C. Howald, and M. Greven. Stm studies of near-optimal doped  $bi_2sr_2cacu_2o_{8+\delta}$ , 2004.
- [177] H. He, Y. Sidis, P. Bourges, G. D. Gu, A. Ivanov, N. Koshizuka, B. Liang, C. T. Lin, L. P. Regnault, E. Schoenherr, and B. Keimer. Resonant spin excitation in an overdoped high temperature superconductor. *Phys. Rev. Lett.*, 86(8) :1610–1613, Feb 2001.
- [178] J. L. Tallon, J. W. Loram, J. R. Cooper, C. Panagopoulos, and C. Bernhard. Superfluid density in cuprate high- $t_c$  superconductors : a new paradigm. *Phys. Rev. B*, 68(18) :180501, Nov 2003.
- [179] P. Bourges, L. P. Regnault, Y. Sidis, and C. Vettier. Inelastic-neutron-scattering study of antiferromagnetic fluctuations in  $yba_2cu_3o_{6.97}$ . *Phys. Rev. B*, 53(2) :876–885, Jan 1996.
- [180] Benoît Fauqué. *Dynamique de spin dans le régime surdopé d'un supraconducteur à haute température critique. Etude par diffusion inélastique*. Stage de dea de physique des solides, Université de Paris VI, 2004.
- [181] Philippe Bourges. Spin dynamics in cuprates and its relation to superconductivity, 2000.
- [182] Jinho Lee, K. Fujita, K. McElroy, J. A. Slezak, M. Wang, Y. Aiura, H. Bando, M. Ishikado2, T. Masui, J.-X. Zhu, A. V. Balatsky, H. Eisaki, S. Uchida, , and J. C. Davis. Interplay of electron–lattice interactions and superconductivity in  $bi_2sr_2cacu_2o_{8+x}$ . *Nature*, 442 :546–550, 2006.
- [183] C. Howald, P. Fournier, and A. Kapitulnik. Inherent inhomogeneities in tunneling spectra of  $bi_2sr_2cacu_2o_{8-x}$  crystals in the superconducting state. *Phys. Rev. B*, 64(10) :100504, Aug 2001.
- [184] Bo Chen, Sutirtha Mukhopadhyay, W. P. Halperin, Prasenjit Guptasarma, and D. G. Hinks. Intrinsic impurity in the high temperature superconductor  $bi_2sr_2cacu_2o_{8+\delta}$ , 2007.
- [185] H. Alloul, P. Mendels, H. Casalta, J. F. Marucco, and J. Arabski. Correlations between magnetic and superconducting properties of zn-substituted  $yba_2cu_3o_{6+x}$ . *Phys. Rev. Lett.*, 67(22) :3140–3143, Nov 1991.
- [186] J. Bobroff, H. Alloul, Y. Yoshinari, A. Keren, P. Mendels, N. Blanchard, G. Collin, and J.-F. Marucco. Using ni substitution and  $^{17}o$  nmr to probe the susceptibility  $\chi'(q)$  in cuprates. *Phys. Rev. Lett.*, 79(11) :2117–2120, Sep 1997.
- [187] J. Bobroff, W. A. MacFarlane, H. Alloul, P. Mendels, N. Blanchard, G. Collin, and J.-F. Marucco. Spinless impurities in high-  $t_c$  cuprates : Kondo-like behavior. *Phys. Rev. Lett.*, 83(21) :4381–4384, Nov 1999.
- [188] N. Bulut. Effects of dilute zn impurities on the uniform magnetic susceptibility of  $yba_2cu_3o_{7-\delta}$ . *Phys. Rev. B*, 61(13) :9051–9054, Apr 2000.
- [189] T. Mayer, M. Eremin, I. Eremin, and P. F. Meier. Spin dynamics in htsc cuprates : The singlet–correlated band (or t-j-v) model and its applications, 2005.
- [190] U. Chatterjee, D. K. Morr, M. R. Norman, M. Randeria, A. Kanigel, M. Shi, E. Rossi, A. Kaminski, H. M. Fretwell, S. Rosenkranz, K. Kadowaki, and J. C. Campuzano. Dynamic spin-response function of the high-temperature  $bi_2sr_2cacu_2o_{8+\delta}$  superconductor from angle-resolved photoemission spectra. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, 75(17) :172504, 2007.
- [191] D. S. Inosov, S. V. Borisenko, I. Eremin, A. A. Kordyuk, V. B. Zabolotnyy, J. Geck, A. Koitzsch, J. Fink, M. Knupfer, B. Büchner, H. Berger, and R. Follath. Relation between the one-particle spectral function and dynamic spin susceptibility of superconducting  $bi_2sr_2cacu_2o_{8+\delta}$ . *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, 75(17) :172505, 2007.

## Bibliographie

- [192] J. Bobroff, H. Alloul, S. Ouazi, P. Mendels, A. Mahajan, N. Blanchard, G. Collin, V. Guillen, and J.-F. Marucco. Absence of static phase separation in the high  $t_c$  cuprate  $yba_2cu_3o_{6+y}$ . *Phys. Rev. Lett.*, 89(15) :157002, Sep 2002.
- [193] H. Ding, J. R. Engelbrecht, Z. Wang, J. C. Campuzano, S.-C. Wang, H.-B. Yang, R. Rogan, T. Takahashi, K. Kadowaki, and D. G. Hinks. Coherent quasiparticle weight and its connection to high-  $t_c$  superconductivity from angle-resolved photoemission. *Phys. Rev. Lett.*, 87(22) :227001, Nov 2001.
- [194] A. A. Kordyuk, S. V. Borisenko, A. Koitzsch, J. Fink, M. Knupfer, and H. Berger. Bare electron dispersion from experiment : Self-consistent self-energy analysis of photoemission data. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, 71(21) :214513, 2005.
- [195] J. Chang, S. Pailhes, M. Shi, M. Månsson, T. Claesson, O. Tjernberg, J. Voigt, V. Perez-Dieste, L. Patthey, N. Momono, M. Oda, M. Ido, A. Schnyder, C. Mudry, and J. Mesot. When low- and high-energy electronic responses meet in cuprate superconductors, 2006.
- [196] F. Onufrieva and P. Pfeuty. Spin dynamics of a two-dimensional metal in a superconducting state : Application to the high- $t_c$  cuprates. *Phys. Rev. B*, 65(5) :054515, Jan 2002.
- [197] M. R. Norman. Linear response theory and the universal nature of the magnetic excitation spectrum of the cuprates. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, 75(18) :184514, 2007.
- [198] J. R. Schrieffer, X. G. Wen, and S. C. Zhang. Dynamic spin fluctuations and the bag mechanism of high- $t_c$  superconductivity. *Phys. Rev. B*, 39(16) :11663–11679, Jun 1989.
- [199] Jan Brinckmann and Patrick A. Lee. Slave boson approach to neutron scattering in  $yba_2cu_3o_{6+y}$  superconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 82(14) :2915–2918, Apr 1999.
- [200] Matthias Vojta and Tobias Ulbricht. Magnetic excitations in a bond-centered stripe phase : Spin waves far from the semi-classical limit. *Physical Review Letters*, 93 :127002, 2004.
- [201] D. A. Wollman, D. J. Van Harlingen, W. C. Lee, D. M. Ginsberg, and A. J. Leggett. Experimental determination of the superconducting pairing state in ybco from the phase coherence of ybco-pb dc squids. *Phys. Rev. Lett.*, 71(13) :2134–2137, Sep 1993.
- [202] C. C. Tsuei, J. R. Kirtley, C. C. Chi, Lock See Yu-Jahnes, A. Gupta, T. Shaw, J. Z. Sun, and M. B. Ketchen. Pairing symmetry and flux quantization in a tricrystal superconducting ring of  $yba_2cu_3o_{7-\delta}$ . *Phys. Rev. Lett.*, 73(4) :593–596, Jul 1994.
- [203] D.Pines A.V. Cubukov and J.Schmalian. *The physics of superconductors*, volume 1. Springer, 2003.
- [204] R.Joynt C.Gos and T.M. Rice. Superconducting instability in the large-u limit of the two-dimensional hubbard model. *Zeitschrift für Physik B Condensed Matter*, 68(4) :425–432, 1987.
- [205] M. Le Tacon, A. Sacuto, A. Georges, G. Kotliar, Y. Gallais, D. Colson, and A. Forget. Two energy scales and two distinct quasiparticle dynamics in the superconducting state of underdoped cuprates. *Nature Physics*, 2 :537–543, 2006.
- [206] C. Castellani, C. Di Castro, and M. Grilli. Singular quasiparticle scattering in the proximity of charge instabilities. *Phys. Rev. Lett.*, 75(25) :4650–4653, Dec 1995.
- [207] Han-Dong Chen, Oskar Vafek, Ali Yazdani, and Shou-Cheng Zhang. Pair density wave in the pseudogap state of high temperature superconductors. *Physical Review Letters*, 93(18) :187002, 2004.
- [208] Didier Poilblanc. Stability of inhomogeneous superstructures from renormalized mean-field theory of the t-j model. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, 72(6) :060508, 2005.
- [209] F. Onufrieva and P. Pfeuty. Normal state pseudogap and  $(\pi, 0)$  feature in the underdoped high-  $t_c$  cuprates : A microscopic theory. *Phys. Rev. Lett.*, 82(15) :3136–3139, Apr 1999.

- [210] M. E. Simon and C. M. Varma. Detection and implications of a time-reversal breaking state in underdoped cuprates. *Phys. Rev. Lett.*, 89(24) :247003, Nov 2002.
- [211] John David Jackson. *Classical Electrodynamics Third Edition*. New York, Academic Press, 1973.
- [212] Sudip Chakravarty, Hae-Young Kee, and Chetan Nayak. Orbital magnetism in the cuprates. *cond-matt/*, 0112109, Dec 2001.
- [213] Sudip Chakravarty, Hae-Young Kee, and Chetan Nayak. Neutron scattering signature of d-density wave order in the cuprates. *cond-matt/*, 01101204, Oct 2001.
- [214] T. C. Hsu, J. B. Marston, and I. Affleck. Two observable features of the staggered-flux phase at nonzero doping. *Phys. Rev. B*, 43(4) :2866–2877, Feb 1991.
- [215] H. A. Mook, Pengcheng Dai, S. M. Hayden, A. Hiess, J. W. Lynn, S.-H. Lee, and F. Doğan. Magnetic order in  $yba_2cu_3o_{6+x}$  superconductors. *Phys. Rev. B*, 66(14) :144513, Oct 2002.
- [216] C. Stock, W. J. L. Buyers, Z. Tun, R. Liang, D. Peets, D. Bonn, W. N. Hardy, and L. Taillefer. Neutron scattering search for static magnetism in oxygen-ordered  $yba_2cu_3o_{6.5}$ . *Phys. Rev. B*, 66(2) :024505, Jun 2002.
- [217] H. A. Mook, Pengcheng Dai, S. M. Hayden, A. Hiess, S-H Lee, and F. Dogan. Polarized neutron measurement of magnetic order in  $yba_2cu_3o_{6.45}$ . *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, 69(13) :134509, 2004.
- [218] S.-H. Lee, C. F. Majkrzak, S. K. Sinha, C. Stassis, H. Kawano, G. H. Lander, P. J. Brown, H. F. Fong, S-W. Cheong, H. Matsushita, K. Yamada, and Y. Endoh. Search for orbital moments in underdoped cuprate metals. *Phys. Rev. B*, 60(14) :10405–10417, Oct 1999.
- [219] Kaminski et al. Spontaneous breaking of time reversal symmetry in the pseudogap state of a high- $t_c$  superconductor. *Nature*, 416 :610–613, April 2002.
- [220] C. M. Varma. Proposal for an experiment to test a theory of high-temperature superconductors. *Phys. Rev. B*, 61(6) :R3804–R3807, Feb 2000.
- [221] Borisenko et al. Spontaneous breaking of time reversal symmetry in the pseudogap state of a high- $t_c$  superconductor. *Nature*, 416 :610–613, April 2004.
- [222] P. Schweiss, W. Reichardt, M. Braden, G. Collin, G. Heger, H. Claus, and A. Erb. Static and dynamic displacements in  $rba_2cu_3o_{7-\delta}$  ( $r=y, ho$ ;  $\delta=0.05, 0.5$ ) : A neutron-diffraction study on single crystals. *Phys. Rev. B*, 49(2) :1387–1396, Jan 1994.
- [223] J. D. Jorgensen, B. W. Veal, A. P. Paulikas, L. J. Nowicki, G. W. Crabtree, H. Claus, and W. K. Kwok. Structural properties of oxygen-deficient  $yba_2cu_3o_{7-\delta}$ . *Phys. Rev. B*, 41(4) :1863–1877, Feb 1990.
- [224] B. Fauqué, Y. Sidis, V. Hinkov, S. Pailhès, C. T. Lin, X. Chaud, and P. Bourges. Magnetic order in the pseudogap phase of high- $t_c$  superconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 96(19) :197001, May 2006.
- [225] J.L.Tallon and J.W. Loram. The doping dependence of  $t^*$ - what is the real high- $t_c$  phase diagram. *Physica C*, 349 :53–68, Jan 2001.
- [226] J. W. Loram, K. A. Mirza, J. M. Wade, J. R. Cooper, and W. Y. Liang. The electronic specific heat of cuprate superconductors. *Physica C*, 235-240 :134–137, Dec 1994.
- [227] Vivek Aji and Chandra Varma. Spin order accompanying loop-current order in cuprates. *Cond-matt/*, 0605468, May 2006.
- [228] Congjun Wu, Jan Zaanen, and Shou-Cheng Zhang. Spin-orbit coupling-induced magnetic phase in the d-density-wave phase of  $la_{2-x}ba_xcuo_4$  superconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 95(24) :247007, Dec 2005.
- [229] H. Alloul. Communication privée.

## Bibliographie

- [230] J. H. Brewer, E. J. Ansaldo, J. F. Carolan, A. C. D. Chaklader, W. N. Hardy, D. R. Harshman, M. E. Hayden, M. Ishikawa, N. Kaplan, R. Keitel, J. Kempton, R. F. Kiefl, W. J. Kossler, S. R. Kreitzman, A. Kulpa, Y. Kuno, G. M. Luke, H. Miyatake, K. Nagamine, Y. Nakazawa, N. Nishida, K. Nishiyama, S. Ohkuma, T. M. Riseman, G. Roehmer, P. Schleger, and D. Shimada. Antiferromagnetism and superconductivity in oxygen-deficient  $yba_2cu_3o_{6+x}$ . *Phys. Rev. Lett.*, 60(11) :1073–1076, Mar 1988.
- [231] R. F. Kiefl, J. H. Brewer, J. Carolan, P. Dosanjh, W. N. Hardy, R. Kadono, J. R. Kempton, R. Krahn, P. Schleger, B. X. Yang, Hu Zhou, G. M. Luke, B. Sternlieb, Y. J. Uemura, W. J. Kossler, X. H. Yu, E. J. Ansaldo, H. Takagi, S. Uchida, and C. L. Seaman. Muon-spin-rotation study of magnetism in  $la_{1.85}sr_{0.15}cuo_4$  and  $yba_2cu_3o_{6+x}$  below 90 mk. *Phys. Rev. Lett.*, 63(19) :2136–2139, Nov 1989.
- [232] W. K. Dawson, K. Tibbs, S. P. Weathersby, C. Boekema, and K.-C. B. Chan. Candidate muon-probe sites in oxide superconductors. *J. Appl. Phys.*, 64(10) :5809–5811, Nov 1988.
- [233] R. Gilardi and al. Doping dependence of the tetragonal orthorhombic phase transition in the superconducting compound  $la_{2-x}sr_xcuo_4$ . *Applied Physics A*, 74 :S1624, 2002.
- [234] R. J. Birgeneau, D. R. Gabbe, H. P. Jenssen, M. A. Kastner, P. J. Picone, T. R. Thurston, G. Shirane, Y. Endoh, M. Sato, K. Yamada, Y. Hidaka, M. Oda, Y. Enomoto, M. Suzuki, and T. Murakami. Antiferromagnetic spin correlations in insulating, metallic, and superconducting  $la_{2-x}sr_xcuo_4$ . *Phys. Rev. B*, 38(10) :6614–6623, Oct 1988.
- [235] E. M. Motoyama, G. Yu, I. M. Vishik, O. P. Vajk, P. K. Mang, and M. Greven. Spin correlations in the electron-doped high-transition-temperature superconductor  $nd_{2-x}ce_xcuo_4$ . *Nature*, 445 :186–189, January 2007.
- [236] M. R. Norman. Magnetic collective mode dispersion in high-temperature superconductors. *Phys. Rev. B*, 63(9) :092509, Feb 2001.
- [237] Yoichi Ando, Seiki Komiya, Kouji Segawa, S. Ono, and Y. Kurita. Electronic phase diagram of high- $t_c$  cuprate superconductors from a mapping of the in-plane resistivity curvature. *Physical Review Letters*, 93(26) :267001, 2004.
- [238] B. Fauqué, Y. Sidis, L. Capogna, A. Ivanov, K. Hradil, C. Ulrich, A. I. Rykov, B. Keimer, and P. Bourges. Dispersion of the odd magnetic resonant mode in near-optimally doped  $bi_2sr_2cacu_2o_{8+\delta}$ . *soumis à Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, 2007.
- [239] Kiyohisa Tanaka, W. S. Lee, D. H. Lu, A. Fujimori, T. Fujii, Risdiana, I. Terasaki, D. J. Scalapino, T. P. Devereaux, Z. Hussain, and Z.-X. Shen. Distinct fermi-momentum-dependent energy gaps in deeply underdoped  $bi2212$ . *Science*, 314 :1910, 2007.
- [240] M. C. Boyer, W. D. Wise, Kamallesh Chatterjee, Ming Yi, Takeshi Kondo, T. Takeuchi, H. Ikuta, and E. W. Hudson. Imaging the two gaps of the high- $t_c$  superconductor  $pb-bi_2sr_2cuo_{6+x}$ , 2007.
- [241] J.-P. Ismer, I. Eremin, and Dirk K. Morr. Dynamical spin susceptibility and the resonance peak in the pseudogap region of the underdoped cuprate superconductors. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, 73(10) :104519, 2006.
- [242] X. Zhao, G. Yu, Y.-C. Cho, G. Chabot-Couture, N. Bariii, P. Bourges, N. Kaneko, Y. Li, L. Lu, E. M. Motoyama, O. P. Vajk, and M. Greven. Crystal growth and characterization of the model high-temperature superconductor  $hgba_2cuo_4 + \delta$ . *Advanced Materials*, 18 :3243–3247, 2006.