



**HAL**  
open science

# Etude des ondes de densité de charge par diffraction cohérente des rayons X

Edouard Pinsolle

► **To cite this version:**

Edouard Pinsolle. Etude des ondes de densité de charge par diffraction cohérente des rayons X. Autre [cond-mat.other]. Université Paris Sud - Paris XI, 2012. Français. NNT : 2012PA112283 . tel-00789152

**HAL Id: tel-00789152**

**<https://theses.hal.science/tel-00789152v1>**

Submitted on 16 Feb 2013

**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.



Ecole doctorale de physique de la région parisienne ED107

## Thèse de Doctorat

*préparée aux :*

Laboratoire de Physique du Solide - UMR8502 Université Paris Sud 91405  
Orsay.  
Synchrotron SOLEIL - L'Orme des Merisiers, Saint-Aubin, 91192  
Gif-sur-Yvette

**Edouard PINSOLLE**

Pour obtenir le grade de Docteur de l'Université Paris Sud.

*Spécialité : Physique.*

## Etude des Ondes de Densité de Charge par Diffraction Cohérente des Rayons X

---

*Soutenu le 19 Novembre 2012 devant le jury composé de :*

- Pascale FOURY-LEYLEKIAN (Présidente)
  - José-Emilio LORENZO-DIAZ (Rapporteur)
  - Anders MADSEN (Rapporteur)
  - Pierre MONCEAU (Examineur)
  - Alberto ROSSO (Examineur)
  - Sylvain RAVY (Invité)
  - David LE BOLLOC'H (Directeur de thèse)
-



# Remerciements

Je tiens à commencer par remercier mon jury pour avoir accepté de lire et de commenter mon manuscrit. Ainsi, merci à Emilio Lorenzo, Anders Madsen, Pascale Foury-Leylekian, Pierre Monceau, Alberto Rosso et Sylvain Ravy pour avoir assisté à ma soutenance et avoir permis des discussions très intéressantes. Merci plus particulièrement à Emilio Lorenzo et Anders Madsen qui ont eu la gentillesse d'écrire un rapport sur cette thèse.

Evidement ce travail aurait été voué à l'échec sans David. Son encadrement au quotidien et sa connaissance très large des phénomènes physiques fut un grand atout pour le thésard que j'étais. Merci également à Sylvain et Vincent qui ont été présent lors de la majorité de mes expériences en synchrotron. Merci sincèrement à Julien qui m'a initié au transport, ce qui fut une vraie bouffée d'oxygène quand le reste de ma thèse ne marchait pas comme prévu. Il est évident qu'un travail de recherche ne se fait pas seul, mais si l'on pense aisément aux collaborateurs scientifiques on oublie souvent les équipes techniques et administratives qui sont pourtant au coeur de cette réussite. Je voudrais donc remercier tous le secrétariat du LPS qui, malgré mon manque de ponctualité et d'efforts en termes de formalités administratives, m'as toujours aidé à finaliser mes dossiers avec le sourire. Merci également aux services électronique et mécanique qui m'ont permis, non seulement de réaliser mes échantillons et portes échantillons, mais également de les améliorer.

Et bien sûr je ne peux oublier mes amis et ma famille. Tout d'abord mes parents qui m'ont poussé à faire des études et sans qui je ne serais pas là. Puis Clément qui m'a dit un jour : "va pas en fac à Pau viens en prépa à Bordeaux", ce qui a, je pense, sauvé mes études. Merci également à Mary qui a réussi à me supporter pendant la fin de cette thèse et qui m'a même aidé pour certaines simulations et pour la relecture de mon manuscrit. Merci à tous les thésards du laboratoire avec qui j'ai pu avoir la chance d'interagir. Plus particulièrement à Yoan dont les discussions à la cafèt mon été d'un grand secours et qui a eu le courage de relire ma thèse. C'est aussi grâce (ou à cause) de lui que je commence petit à petit à m'intéresser à l'avenir de notre planète et de notre société. Je finirai en m'excusant auprès de Vincent

et Mathieu de ne pas avoir pu être présent quand le besoin s'en est fait sentir.  
Ce travail leur est dédié ainsi qu'à l'ensemble de mes amis d'enfance.





# Table des matières

<b>1</b>	<b>Diffraction cohérente</b>	<b>5</b>
1.1	Introduction . . . . .	6
1.2	Diffraction d'une fente dans la gamme des rayons X . . . . .	6
1.2.1	Principe de Huygens-Fresnel . . . . .	6
1.2.2	Obtention d'une figure de diffraction sur la ligne Cristal de Soleil . . . . .	10
1.3	Cohérence . . . . .	13
1.3.1	Cohérence temporelle . . . . .	15
1.3.2	Cohérence spatiale . . . . .	16
1.3.3	Cohérence sur Cristal . . . . .	17
1.3.4	Diffraction d'un faisceau gaussien partiellement cohérent	19
1.3.5	De Fresnel à Fraunhofer . . . . .	25
<b>2</b>	<b>Utilisation de la cohérence pour l'étude des défauts cristal- lins</b>	<b>31</b>
2.1	Introduction . . . . .	32
2.2	Observation d'un défaut. . . . .	32
2.2.1	Diffraction classique . . . . .	32
2.2.2	Diffraction cohérente . . . . .	33
2.3	Les dislocations . . . . .	34
2.3.1	Description géométrique . . . . .	34
2.3.2	Description en terme de phase . . . . .	38
2.3.3	Observation avec un faisceau cohérent . . . . .	39
2.4	Boucle de dislocation dans le Silicium. . . . .	41
2.4.1	Présentation de l'échantillon. . . . .	41
2.4.2	Les dislocations en topographie. . . . .	41
2.4.3	Utilisation de la cohérence. . . . .	43
<b>3</b>	<b>Onde de Densité de Charge sous courant</b>	<b>49</b>
3.1	Introduction . . . . .	50
3.2	La transition de Peierls . . . . .	50

3.2.1	Instabilité du gaz d'électron . . . . .	50
3.2.2	Interaction électron phonon . . . . .	54
3.2.3	Propriétés de transport . . . . .	58
3.3	$NbSe_3$ sous courant . . . . .	62
3.3.1	Description du composé $NbSe_3$ . . . . .	62
3.3.2	Procédure expérimentale. . . . .	64
3.3.3	Diffraction cohérente d'une ODC sous champ électrique	67
3.3.4	Interprétation . . . . .	73
3.3.5	Conclusion . . . . .	76
3.4	Le Bronze Bleu sous courant. . . . .	78
3.4.1	Introduction . . . . .	78
3.4.2	Description du composé $K_{0.3}MoO_3$ . . . . .	79
3.4.3	Mesures de transport . . . . .	82
3.4.4	Discussion . . . . .	88
<b>4</b>	<b>Coexistence d'états électronique</b>	<b>91</b>
4.1	Introduction . . . . .	92
4.2	Le Chrome : coexistence d'ondes de densité de charge et de spin	93
4.2.1	Les Ondes de densité de spin . . . . .	93
4.2.2	Diffraction magnétique . . . . .	94
4.2.3	Description du composé . . . . .	95
4.2.4	Coexistence ODC et ODS . . . . .	99
4.3	$NbSe_2$ : coexistence ODC et supraconductivité . . . . .	105
4.3.1	La supraconductivité . . . . .	105
4.3.2	Description du composé . . . . .	107
4.3.3	Résultats expérimentaux . . . . .	110





# Introduction

Souvent, dans le monde de la recherche, des sujets dits "chauds" émergent au milieu de toutes les recherches scientifiques effectuées. Ces sujets sont souvent importants, soit par les applications technologiques auxquels ils peuvent mener tels que les supraconducteurs à haute température critique, soit pour leurs impacts importants sur le monde de la physique comme la recherche (ou découverte maintenant) du boson de Higgs. L'importance de tel ou tel sujet évolue au cours du temps et certains sujets qui étaient autrefois très étudiés perdent de leur attractivité. C'est par exemple le cas des systèmes à Onde de Densité de Charge qui ont été très étudiés dans les années 80. Toutefois, l'émergence de nouvelles techniques expérimentales ou la présence de certaines propriétés physique là où on ne les attend pas, peut parfois remettre au goût du jour ces vieux sujets. C'est le cas pour les systèmes à onde de densité. En effet la présence d'onde de densité de spin proche de la phase supraconductrice dans certains matériaux à haute température critique soulève la question de la coexistence de différentes phases. De plus, l'avènement de mesure en temps résolue comme les expériences de pompe sonde nous permet d'accéder à de nouvelles informations sur la dynamique des ondes de densité de charge par exemple. Suivant cette même logique, nous avons été amenés à étudier, grâce à une nouvelle technique expérimentale qu'est la diffraction cohérente des rayons X, des composés à ODC pourtant largement étudiés dans le passé. De plus, l'étude de la coexistence de ces phases ODC avec d'autres phases électroniques peut nous permettre d'obtenir des renseignements qui peuvent être utiles pour l'étude de sujets dirons-nous plus "chauds" comme la supraconductivité à haute température critique. Tous les sujets de recherche ont leurs importances et permettent de faire progresser notre vision de plus en plus vaste mais toujours restreinte de la physique. Cette thèse se divise en 4 chapitres.

Le premier chapitre présente la diffraction cohérente des rayons X qui sera la méthode expérimentale la plus utilisée dans les chapitres suivant. Nous montrerons qu'il est possible de créer un faisceau de rayons X cohérent à partir d'une source incohérente et nous apprendrons à caractériser ce type de fais-

ceau. Nous pousserons un peu plus loin cette étude en considérant cette fois une source partiellement cohérente afin d'essayer de reproduire fidèlement des images de diffraction par une fente. Les premières images de diffraction cohérente des rayons X datent de 1991. Cette technique est donc relativement récente. Sa grande sensibilité aux défauts de phase en fait un outil de choix dans l'étude des défauts cristallins. Nous avons donc étudié d'anciennes problématiques grâce à cette technique récente qui permet d'avoir de nouvelles informations sur des sujets déjà longuement étudiés par de multiples méthodes expérimentales mais très peu par la diffraction cohérente.

Avant d'étudier l'influence des défauts sur le comportement des ondes de densité de charge, nous avons travaillé, dans le deuxième chapitre, sur l'étude d'une boucle de dislocation isolée dans le Silicium. Ceci nous a permis de mieux comprendre l'influence d'une dislocation sur un cliché de diffraction cohérente des rayons X ce qui est primordial pour interpréter les expériences du chapitre 3 sur les dislocations dans les ondes de densité de charge. Ainsi, nous commencerons par présenter les caractéristiques d'une dislocation et plus généralement comment sont vus les défauts en diffraction classique. Ensuite, nous montrerons, grâce à l'étude de cette dislocation par diffraction cohérente des rayons X, la sensibilité importante de tels faisceaux aux défauts de phase, ce qui en fait un outil puissant dans l'étude de tels objets. Nous essaierons de faire ressortir les avantages ainsi que les inconvénients par rapport à d'autres techniques utilisées pour sonder les défauts cristallins telles que la microscopie électronique ou la topographie X. Cela nous permettra de montrer la complémentarité apportée par la diffraction cohérente des rayons X.

Conscient de l'intérêt de la diffraction cohérente des rayons X, nous utiliserons cette technique dans le troisième chapitre pour étudier d'anciennes problématiques que sont les Ondes de Densité de Charge (ODC). Ce type de matériaux a été longuement étudié que ce soit théoriquement ou expérimentalement. Mais, comme souvent, les premières études négligent la présence de défauts. Or, la théorie prédit que la mise en mouvement d'une ODC par l'application d'un courant est gouvernée par la création de défauts de phase (plus précisément de dislocations). Nous débuterons ce chapitre par une présentation de la théorie de la transition de Peierls donnant naissance à une ODC. Ensuite, nous présenterons une expérience menée sur le composé  $NbSe_3$  qui a pour but de sonder les différents régimes de glissement d'une ODC par diffraction cohérente des rayons X. Nous finirons par la présentation d'un projet encore en cours sur le composé à ODC  $K_{0.3}MoO_3$ , qui a pour but de corréler des expériences de diffraction des rayons X à des expériences de transport.

Enfin, le dernier chapitre prolonge notre étude des ODC en sondant leur

coexistence avec d'autres phases. Dans la première partie, nous nous intéresserons au chrome dans lequel coexistent une ODC et une Onde de Densité de Spin (ODS). A une certaine température, l'ODS subit une transition de "spin flip" qui devrait avoir un effet sur l'ODC. Les expériences faites jusqu'à aujourd'hui n'ont décelé aucun changement sur l'ODC au passage de cette transition. Nous verrons que l'utilisation d'un faisceau cohérent et micrométrique, plus sensible aux défauts, nous apporte de nouveaux renseignements. Dans une deuxième partie, nous étudieront la coexistence entre ODC et supraconductivité dans le composé  $NbSe_2$ . Aucun lien entre l'établissement de la supraconductivité et l'ODC n'a pour l'instant été mis en évidence. Nous verrons que les expériences que nous avons mises en œuvres ouvrent des pistes dans l'étude de cette coexistence. En annexe nous discuterons d'une tentative d'observation d'un réseau de vortex en diffraction X. Ces objets ont des propriétés de glissement similaires à celles des ODC. Ainsi, leurs observations grâce aux rayons X cohérents nous permettraient d'étudier leur mise en mouvement comme nous l'avons fait dans le chapitre 3 pour les ODC et ainsi comparer leurs propriétés.



# Chapitre 1

## Diffraction cohérente

### Contents

---

<b>1.1</b>	<b>Introduction</b> . . . . .	<b>6</b>
<b>1.2</b>	<b>Diffraction d'une fente dans la gamme des rayons X</b> . . . . .	<b>6</b>
1.2.1	Principe de Huygens-Fresnel . . . . .	6
1.2.2	Obtention d'une figure de diffraction sur la ligne Cristal de Soleil . . . . .	10
<b>1.3</b>	<b>Cohérence</b> . . . . .	<b>13</b>
1.3.1	Cohérence temporelle . . . . .	15
1.3.2	Cohérence spatiale . . . . .	16
1.3.3	Cohérence sur Cristal . . . . .	17
1.3.4	Diffraction d'un faisceau gaussien partiellement cohérent	19
1.3.5	De Fresnel à Fraunhofer . . . . .	25

---

## 1.1 Introduction

La diffraction cohérente des rayons X s'est énormément développée durant les dix dernières années, à tel point que le nombre de lignes de lumière consacrée à cette thématique ne cesse d'augmenter. Comment expliquer cet engouement pour cette technique expérimentale? Qu'apporte-t-elle de plus par rapport aux innombrables sondes qui existent déjà?

Toute expérience de diffraction cohérente des rayons X commence par la caractérisation de notre faisceau grâce à la mesure des longueurs de cohérence. En effet, nous verrons que pour décrire correctement nos expériences, nous aurons besoin d'étudier des faisceaux partiellement cohérents. Nous montrons donc dans ce chapitre que la mesure détaillée de la diffraction par une fente permet de caractériser la cohérence des faisceaux de rayons X dans les synchrotrons de troisième génération.

Je commencerai ce chapitre par des rappels d'optique ondulatoire puisque c'est dans le cadre de cette théorie que nous travaillerons et je l'appliquerai à la diffraction par une fente d'un faisceau entièrement cohérent. L'impossibilité de reproduire nos données expérimentales avec ce genre de faisceaux m'amènera à définir des longueurs de cohérence pour pouvoir travailler avec des faisceaux partiellement cohérents. Finalement, nous verrons que nos données expérimentales sont bien reproduites dans l'approximation des faisceaux gaussiens (Gaussian Shell model). Une fois notre faisceau de rayons X correctement caractérisé, je conclurai en passant en revue les différentes applications ainsi que les différentes sources qui permettent l'obtention d'un tel rayonnement.

## 1.2 Diffraction d'une fente dans la gamme des rayons X

### 1.2.1 Principe de Huygens-Fresnel

L'étude ondulatoire de la propagation de la lumière date du *XIX<sup>ème</sup>* siècle. Je reprends ici succinctement quelques notions utiles pour décrire la diffraction par une fente en prenant soin de montrer les limites de cette théorie.

Nous négligerons dans tout ce qui suit l'aspect vectoriel des ondes électromagnétiques (approximation scalaire) ce qui ne permet pas de traiter des effets liés à la polarisation du champ électromagnétique. On peut ainsi décrire une onde lumineuse par un champ scalaire que l'on appellera vibration lumi-

neuse. Pour une onde monochromatique, la vibration lumineuse après propagation d'un point  $O$  à un point  $M$  peut s'écrire en notation complexe :

$$s(M, t) = \alpha A(O) \exp i\left(\omega t - \frac{2\pi}{\lambda} OM + \phi\right) \quad (1.1)$$

où  $OM = \|\overrightarrow{OM}\|$ ,  $\alpha$  est l'atténuation,  $A(O)$  l'amplitude initiale de la vibration et  $\frac{2\pi}{\lambda} OM + \phi$  le déphasage subit par l'onde lors de sa propagation entre  $O$  et  $M$ . La phase à l'origine  $\phi$  sera prise nulle par la suite. Afin de simplifier les calculs, on définit également l'amplitude complexe d'une onde lumineuse telle que :

$$s(M, t) = A(x, y, z) \exp(i\omega t) \quad (1.2)$$

Dans le cas particulier d'une onde sphérique qui nous sera très utile, la conservation de l'énergie sur les fronts d'onde donne une atténuation en  $\frac{1}{r}$  ce qui donne une amplitude complexe en un point  $M(x, y, z)$  :

$$A(x, y, z, t) = \frac{A(O)}{OM} \exp\left(-\frac{2i\pi}{\lambda} OM\right) \quad (1.3)$$

Le théorème de superposition des ondes électromagnétiques nous enseigne que la superposition  $s(M, t)$  de deux ondes lumineuses  $s_1(M, t)$  et  $s_2(M, t)$  en un point  $M$  n'est autre que la somme des deux vibrations.  $s(M, t) = s_1(M, t) + s_2(M, t)$ . La pulsation de ces ondes lumineuses étant trop rapide, la plupart des détecteurs utilisés sont sensibles à l'intensité moyennée dans le temps de cette vibration lumineuse qui est défini comme suit :

$$I(M) = \langle \|s(M, t)\|^2 \rangle_t \quad (1.4)$$

Nous pouvons maintenant étudier le principe de Huygens-Fresnel de la diffraction par un diaphragme qui fut suggéré par Huygens et traité mathématiquement par Fresnel. Pour modéliser ce phénomène, Fresnel proposa une méthode qui se décompose en deux étapes.

Première étape : l'objet diffractant appelé diaphragme est supposé infiniment fin et placé en  $z = 0$ . Il faut donc calculer l'amplitude en sortie du diaphragme notée  $A_e(X, Y, 0^+)$  connaissant l'amplitude incidente notée  $A_i(X, Y, 0^-)$ . En notant  $t_\Delta(x, y)$  le facteur de transmission du diaphragme on obtient la relation :

$$A_e(X, Y, 0^+) = t_\Delta(X, Y) \cdot A_i(X, Y, 0^-) \quad (1.5)$$

Deuxième étape : on suppose que les ondes lumineuses se déplacent de proche en proche en réémettant des ondes sphériques. Ce principe a été

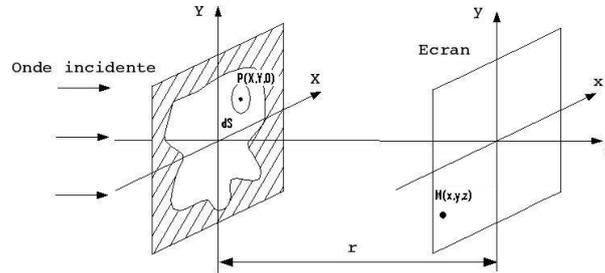


FIGURE 1.1 – Principe de Huygens-Fresnel

énoncé par Huygens au *XVII<sup>ème</sup>* siècle.

On considère donc le plan de sortie du diaphragme comme un ensemble d'éléments de surface  $dS$  centrés en  $P(X, Y, 0^+)$  émettant chacun une ondelette sphérique ayant pour amplitude au point  $M(x, y, z)$  :

$$CA_e(P) \frac{\exp(-ikPM)}{PM} dS \quad (1.6)$$

Comme nous l'avons vu précédemment, la vibration lumineuse résultante en  $M$  est la somme de toutes les vibrations lumineuses. Il suffit donc de sommer sur toute la surface  $\Omega$  du diaphragme. La constante de normalisation  $C$  qui peut être déterminée de différentes manières non développée ici, vaut  $\frac{i}{\lambda}$ . L'amplitude en  $M$  s'écrit alors :

$$A(x, y, z) = \frac{i}{\lambda} \int_{\Omega} A_e(P) \frac{\exp(-ikPM)}{PM} dS \quad (1.7)$$

avec

$$PM = \sqrt{(x - X)^2 + (y - Y)^2 + z^2} \quad (1.8)$$

On regroupe maintenant ces deux étapes en faisant une autre approximation que l'on appelle approximation parabolique. Celle-ci consiste à approximer la norme  $PM$  au dénominateur au premier ordre en  $\frac{x-X}{z}$  et  $\frac{y-Y}{z}$  (fonction lentement variable) et au deuxième ordre dans la fonction exponentielle qui elle varie rapidement (cette approximation est en fait déjà sous entendue dans la formule de Huygens-Fresnel, voir plus bas). Nous obtenons ainsi la forme finale de la formule de Fresnel pour le calcul de l'amplitude diffractée par un diaphragme :

$$A(x, y, z) = \frac{i}{\lambda} \int_{\Omega} \frac{A_i(X, Y, 0)t_{\Delta}(X, Y)}{z} \exp \left[ -ik \left( z + \frac{(x - X)^2 + (y - Y)^2}{2z} \right) \right] dS \quad (1.9)$$

Il est à noter que le principe de Huygens-Fresnel n'est en fait pas exact. Pour obtenir la formule exacte de la diffraction par un diaphragme, il faut résoudre l'équation de propagation des ondes données par les équations de Maxwell entre le diaphragme et le point  $M(x,y,z)$  en prenant comme condition aux limites l'amplitude  $A_e$ . A partir de cette formule, on peut retrouver la formule de Huygens-Fresnel en faisant quelques approximations. La première est de se placer dans le domaine où  $z \gg \lambda$ , ce qui est presque toujours le cas surtout en diffraction X ( $\lambda \simeq 1\text{Å}$ ). La deuxième approximation est plus importante. En effet, elle consiste à supposer  $z \gg (x - X)$  et  $z \gg (y - Y)$ . Cela revient à regarder le centre de la figure de diffraction. Cette approximation est appelée approximation paraxiale. On supposera par la suite que cette condition est vérifiée.

### Régime de Fraunhofer

La formule 1.9 est une formule générale de la diffraction par un diaphragme qui permet d'obtenir la figure de diffraction en tout point de l'espace. Malheureusement, la solution de cette intégrale n'est pas analytique. Il devient donc intéressant de distinguer le cas particulier où l'on regarde la figure de diffraction à une distance du diaphragme que l'on peut considérer comme infini. Ce domaine de diffraction est appelé domaine de Fraunhofer. Reprenons l'équation de Fresnel 1.9 en regardant le cas à une dimension pour alléger l'écriture et développons le terme dans l'exponentiel. Il s'en suit :

$$A(x, z) = \frac{i \exp\left(-ik\left(z + \frac{x^2}{2z}\right)\right)}{\lambda z} \int_{\Omega} A_i(X, 0) t_{\Delta}(X) \exp\left(-ik \frac{X^2}{2z}\right) \exp\left(ik \frac{xX}{z}\right) dX \quad (1.10)$$

On se considère être dans le régime de Fraunhofer lorsque le terme  $\exp\left(-ik \frac{X^2}{2z}\right)$  tend vers 1 quelle que soit la valeur de  $X$  qui parcourt tout le domaine d'intégration du diaphragme donc *a fortiori* pour sa valeur absolue maximale  $|X|_{max}$ . On obtient ainsi la condition :

$$z \gg \frac{\pi X_{max}^2}{\lambda} \quad (1.11)$$

La formule de Fresnel devient donc :

$$A(x, z) = \frac{i \exp\left(-ik\left(z + \frac{x^2}{2z}\right)\right)}{\lambda z} \int_{\Omega} A_i(X, 0) t_{\Delta}(X) \exp\left(ik \frac{xX}{z}\right) dX \quad (1.12)$$

Dans le domaine de Fraunhofer, la figure de diffraction est directement la transformée de Fourier du diaphragme. Nous verrons que dans le cas d'objet diffractant de forme simple, cette transformée de Fourier peut être analytique, ce qui simplifie beaucoup l'étude de la diffraction de tels objets.

### 1.2.2 Obtention d'une figure de diffraction sur la ligne Cristal de Soleil

Dans cette partie, la comparaison entre expérience et théorie sera faite en prenant les caractéristiques de la ligne Cristal de Soleil mais il faut garder à l'esprit que les expériences de diffraction de rayons X présentées dans cette thèse ont été effectuées sur différentes lignes de Soleil ou de l'ESRF (Cristal, ID01, ID20...). Nous allons donc étudier la diffraction d'une onde plane dans la gamme des rayons X par un jeu de deux fentes formant un trou carré. Puisque nous éclairons le diaphragme avec une onde plane, l'amplitude incidente vaut :

$$A_i(X, Y, 0) = A(0) = \text{constante}$$

De plus le diaphragme étant un trou carré, l'amplitude émergente vaut donc  $A_e = A(0)$  si on se place dans le trou et  $A_e = 0$  autour.

Supposons que nous nous plaçons dans le domaine de Fraunhofer, ce qui correspond à un détecteur placé à l'infini. En généralisant à 2 dimensions, la formule 1.12 devient :

$$A(x, y, z) = \frac{i \exp \left[ -ik \left( z + \frac{x^2 + y^2}{2z} \right) \right]}{\lambda z} \int_{-\frac{a}{2}}^{\frac{a}{2}} A(0) \exp \left( ik \frac{xX + yY}{z} \right) dX \quad (1.13)$$

Le facteur de phase devant l'intégrale n'a pas d'intérêt, il se simplifiera avec son complexe conjugué lors du calcul de l'intensité. Il suffit donc d'intégrer pour obtenir le produit de deux sinus cardinaux :

$$A(x, y, z) \propto \frac{A(O) a^2}{\lambda z} \frac{1}{4} \text{sinc} \left( \pi \frac{ax}{\lambda z} \right) \text{sinc} \left( \pi \frac{ay}{\lambda z} \right) \quad (1.14)$$

Pour obtenir l'intensité ainsi diffractée dans le plan de Fraunhofer, il suffit de prendre le module au carré de l'amplitude :

$$I(x, y, z) = \left( \frac{A(O) a^2}{\lambda z} \frac{1}{4} \right)^2 \text{sinc}^2 \left( \pi \frac{ax}{\lambda z} \right) \text{sinc}^2 \left( \pi \frac{ay}{\lambda z} \right) \quad (1.15)$$

On peut facilement effectuer une simulation de la figure de diffraction dans le plan de Fraunhofer (voir figure 1.2 et 1.3).

L'écartement entre deux maxima successifs du sinus cardinal vaut alors  $d = \frac{\lambda z}{a}$ . Afin de pouvoir distinguer expérimentalement les différents maxima, cette distance doit être supérieure à la taille de quelques pixels de la caméra CCD utilisée.

Sur la ligne Cristal de Soleil, la caméra utilisée possède des pixels de  $13 \times 13 \mu\text{m}^2$ . On place cette caméra à environ  $2 \text{ m}$  des fentes diffractantes ce qui correspond à la distance la plus grande que l'on peut atteindre sur le bras soutenant le détecteur. Dans la plupart des expériences de cohérence, on se place à une énergie d'environ  $8 \text{ keV}$  (nous verrons pourquoi dans la partie cohérence) ce qui correspond à une longueur d'onde de  $1.55 \text{ \AA}$ .

En fermant les fentes à  $100 \times 100 \mu\text{m}$ , comme c'est le cas pour une expérience de diffraction classique, on obtient une distance inter-franges  $d = 3.1 \mu\text{m}$  ce qui est inférieur à la taille d'un pixel. Il est donc nécessaire de fermer beaucoup plus les fentes pour résoudre ces franges. En fermant à  $1 \times 1 \mu\text{m}$ , on gagne un facteur 100 sur l'écartement  $d$ , ce qui correspond alors à 27 pixels sur la caméra et permet de distinguer correctement les maxima successifs de la figure de diffraction (voir figure 1.2).

Nous avons supposé que nous étions dans le régime de Fraunhofer. Pour le confirmer, il faut vérifier la condition  $z \gg D = \frac{\pi(\frac{a}{2})^2}{\lambda}$  qui signifie que

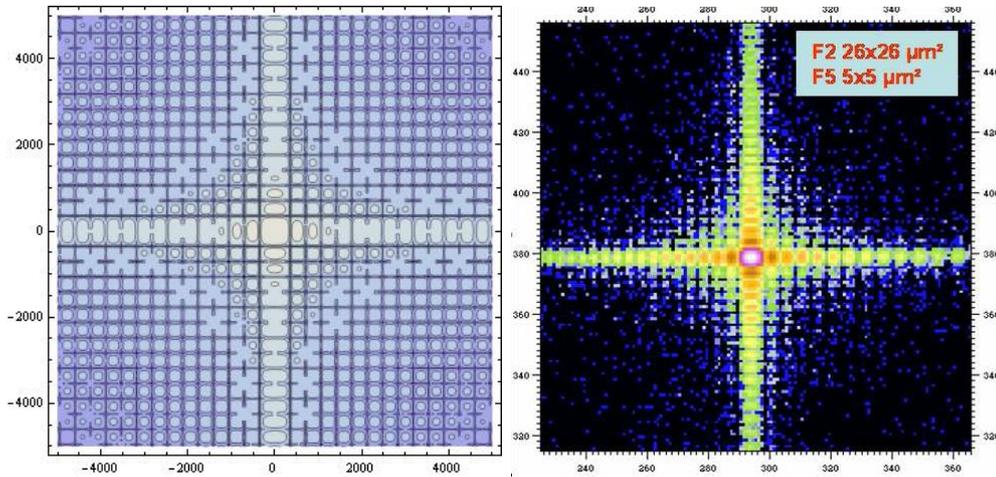


FIGURE 1.2 – A gauche simulation de la diffraction de Fraunhofer dans le plan  $z = 2 \text{ m}$  par une fente de taille  $a = 10 \mu\text{m}$ . A droite, la croix de diffraction obtenue sur la ligne Cristal de Soleil [1]. Taille de pixel  $13 \mu\text{m} \times 13 \mu\text{m}$  et  $\lambda = 1.55 \text{ \AA}$

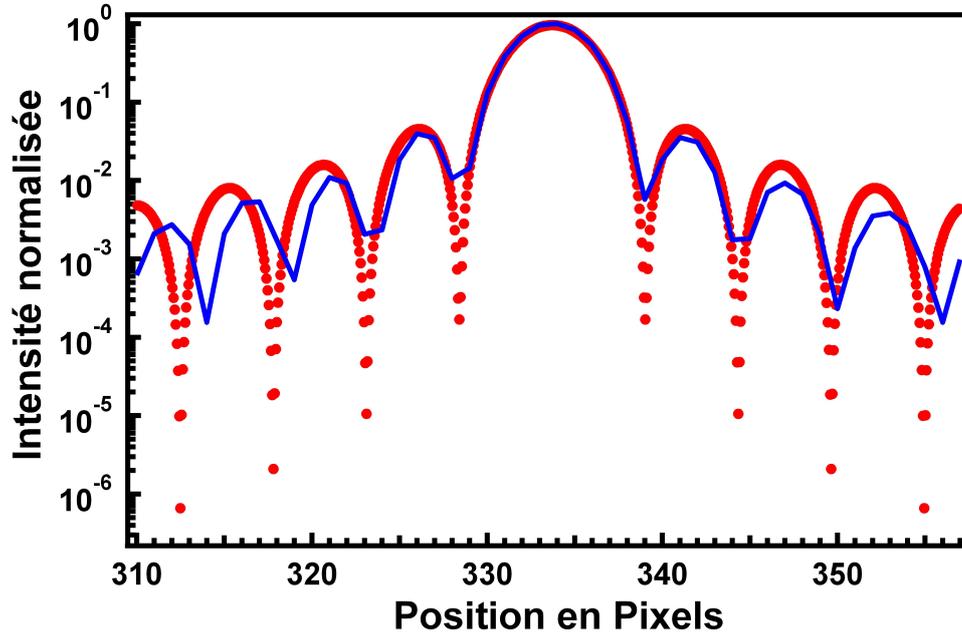


FIGURE 1.3 – Simulation d'une coupe suivant  $x$  de la diffraction de Fraunhofer dans le plan  $z = 3 \text{ m}$  par une fente de taille  $a = 5 \mu\text{m}$  en rouge superposé à l'expérience en bleu.

nous sommes suffisamment loin pour se considérer à l'infini. Dans les conditions expérimentales précédentes (fentes fermées à  $1 \times 1 \mu\text{m}$ ), on doit avoir  $z \gg D = 5 \cdot 10^{-3} \text{ m}$  or  $z = 2 \text{ m}$ . Ceci correspond à trois ordres de grandeur au dessus de  $D$ .

Sur la figure 1.2, on constate que la forme générale de l'intensité diffractée est en bon accord avec la théorie. La figure 1.3 est une coupe de la figure à deux dimensions, elle permet de comparer en détail la simulation à l'expérience. Dans un premier temps, la distance entre les différents maxima est bien reproduite par la théorie pour les premier maxima mais cette distance varie ce qui ne devrait pas être le cas. De plus les minima de la figure expérimentale ne s'annulent pas, réduisant ainsi le contraste de frange comparé à la théorie. Pour caractériser ce contraste, on regarde la visibilité qui est définie par :

$$V = \frac{I_{max} - I_{min}}{I_{max} + I_{min}} \quad (1.16)$$

où le maximum et le minimum sont pris sur des franges successives. En théorie, la visibilité attendue vaut exactement 1 car  $I_{min} = 0$ . Or, on voit expérimentalement que ce n'est pas le cas, les minima ne valant pas exactement 0. Ce brouillage des franges est lié à la fois à l'extension spatiale de notre

source et à sa monochromaticité imparfaite qui ne sont pas pris en compte dans la théorie discutée plus haut. Ces deux caractéristiques sont liées à la cohérence de notre source qui est sa capacité à donner lieu à des franges d'interférences lors d'une expérience de diffraction ou d'interférométrie.

## 1.3 Cohérence

Une source réelle est loin d'être ponctuelle et deux points d'une source étendue ne sont en générale pas corrélés, ce qui nuit au phénomène d'interférence. De plus, les sources lumineuses ne sont jamais strictement monochromatiques même si le processus d'émission définit parfaitement la longueur d'onde des trains d'ondes émis. Le temps d'émission n'est pas infini ce qui donne lieu à des déphasages entre les trains d'ondes successifs. La largeur spectrale de notre source en est finalement affectée et on obtient une source dite quasi-monochromatique [2].

Pour introduire de manière simple les notions de cohérences temporelle et spatiale, il est préférable d'étudier un système d'interférence entre seulement deux ondes sphériques. Pour cela examinons l'expérience très connue des trous d'Young éclairés par une source étendue et quasi-monochromatique (voir figure 1.4). Cette onde a une certaine distribution spectrale centrée sur une longueur d'onde  $\lambda_0$  et de largeur à mi-hauteur  $\Delta\lambda$  ainsi qu'une certaine taille  $b$ .

Les deux trous placés en  $O_1$  et  $O_2$  sont considérés comme ponctuels. Ils réémettent donc chacun une seule onde sphérique de même vibration lumineuse  $s_i(M, t)$ . Attention, dans cette partie la vibration lumineuse n'est plus monochromatique, mais elle peut s'écrire comme la somme d'un ensemble de vibrations lumineuses monochromatiques. Pour avoir l'intensité en un point M de l'écran, on reprend la forme de l'intensité calculée dans la première partie :

$$I = \langle \|s(M, t)\|^2 \rangle_t = \langle (s_1(M, t) + s_2(M, t))(s_1(M, t) + s_2(M, t))^* \rangle_t \quad (1.17)$$

Si les deux ondes  $s_1(M, t)$  et  $s_2(M, t)$  ont comme origine  $O_1$  (respectivement  $O_2$ ) et subissent une atténuation  $\alpha_1$  (respectivement  $\alpha_2$ ) de leur amplitude, en définissant  $I_i = \langle s_i(M, t)s_i(M, t)^* \rangle_t$ , on obtient la forme suivante pour l'intensité :

$$I = I_1(M) + I_2(M) + 2R_e[\alpha_1\alpha_2^* \langle s_1(O_1, t - \frac{O_1M}{c_0})s_2^*(O_2, t - \frac{O_2M}{c_0}) \rangle_t] \quad (1.18)$$

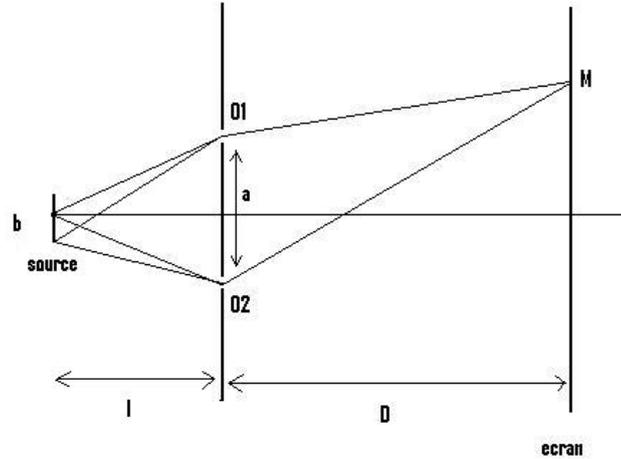


FIGURE 1.4 – Schéma de l'expérience des trous d'Young en source étendue

où  $c_0$  est la vitesse de la lumière dans le vide. Le dernier terme est appelé terme d'interférence. Ce terme rend compte des corrélations entre l'onde passant par  $O_1$  et celle passant par  $O_2$ .

La partie temporelle des corrélations ne dépendant que de la différence de temps de parcours des deux ondes. On peut changer l'origine des temps et poser  $\tau = \frac{O_2M - O_1M}{c_0}$ . Le dernier terme peut ainsi s'écrire :

$$\langle s(O_1, t) s^*(O_2, t - \tau) \rangle \quad (1.19)$$

Ce terme correspond à la corrélation des deux ondes sphériques. On notera ainsi le degré de cohérence complexe [2] :

$$\gamma(O_1, O_2; \tau) = \frac{\langle s(O_1, t) s^*(O_2, t - \tau) \rangle}{\sqrt{\langle s(O_1, t) s^*(O_1, t) \rangle} \sqrt{\langle s(O_2, t) s^*(O_2, t) \rangle}} \quad (1.20)$$

$$= \|\gamma(O_1, O_2; \tau)\| \exp(i\phi(\tau)) \quad (1.21)$$

Ce degré de cohérence dépend à la fois des corrélations spatiales de la source entre les points  $O_1$  et  $O_2$  mais aussi des corrélations temporelles de notre source pendant un intervalle de temps  $\tau$ . Dans la suite nous allons étudier séparément ces deux types de corrélation.

### 1.3.1 Cohérence temporelle

Reprenons le degré de cohérence complexe défini précédemment mais en supposant que notre source est spatialement entièrement cohérente ce qui est le cas d'une onde plane. On obtient ainsi un degré de cohérence ne dépendant que de la différence de temps  $\tau$  entre les ondes passant par  $O_1$  et celles passant par  $O_2$ . On se retrouve ainsi avec un degré de cohérence :

$$\gamma(\tau) = \frac{\langle s(t)s^*(t-\tau) \rangle}{\langle s(t)s^*(t) \rangle} \quad (1.22)$$

qui rend compte seulement des corrélations temporelles de notre source. On peut montrer que le degré de cohérence temporelle n'est autre que la transformée de Fourier inverse de la distribution spectrale, notée  $J(\nu)$ , de notre source  $\gamma(\tau) = \overline{TF} J(\nu)(\tau)$ . Le produit de la largeur à mi-hauteur  $\Delta\tau$  du degré de cohérence par la largeur à mi-hauteur  $\Delta\nu$  de la distribution spectrale est proche de 1 ( $\Delta\tau\Delta\nu \simeq 1$ ).

Finalement dans l'expérience des trous d'Young, la distribution d'intensité en fonction du déphasage ( $\tau$ ) vaut :

$$I(\tau) = I_1 + I_2 + 2\sqrt{I_1 I_2} \|\gamma(\tau)\| \cos(\phi(\tau)) \quad (1.23)$$

$I(\tau)$  oscille donc comme  $\cos(\phi(\tau))$  entre les valeurs des enveloppes inférieures et supérieures :

$$\begin{aligned} I_{min} &= I_1 + I_2 - 2\sqrt{I_1 I_2} \|\gamma(\tau)\| \\ I_{max} &= I_1 + I_2 + 2\sqrt{I_1 I_2} \|\gamma(\tau)\| \end{aligned} \quad (1.24)$$

La visibilité des franges d'interférences lorsque  $I_1 = I_2$  vaut :

$$V = \frac{I_{max} - I_{min}}{I_{max} + I_{min}} = \|\gamma(\tau)\| \quad (1.25)$$

On définit alors le temps de cohérence  $\tau_c$  par :

$$V = \|\gamma(\tau_c)\| = \frac{1}{2} \quad (1.26)$$

Ceci correspond à  $\tau_c = \frac{\Delta\tau}{2}$ . Ce qui nous permet finalement de définir une longueur de cohérence temporelle (ou longitudinale) :

$$\xi_L = c \frac{\Delta\tau}{2} = \frac{c}{2\Delta\nu} \quad (1.27)$$

En remarquant que  $\lambda = \frac{c}{\nu}$  et que  $\Delta\lambda \ll \lambda$  on peut exprimer la longueur de cohérence par :

$$\xi_L = \frac{\lambda^2}{2\Delta\lambda} \quad (1.28)$$

En pratique, pour savoir si notre faisceau de rayons X est suffisamment cohérent, il faut comparer cette longueur de cohérence temporelle à la longueur de pénétration du faisceau incident dans l'échantillon.

### 1.3.2 Cohérence spatiale

Reprenons l'expérience des trous d'Young ( $a$  étant la distance entre les deux trous) mais cette fois les deux trous sont éclairés par une onde monochromatique de longueur d'onde  $\lambda$  possédant une certaine extension spatiale  $b$  située à une distance  $l \gg a$  du plan contenant les trous. On suppose que la source peut être décomposée en un ensemble de sources ponctuelles incohérentes entre elles. L'intensité totale sur l'écran, positionné à une distance  $D$  considérée comme grande devant  $a$ , est donc la somme des intensités créées par chaque point de la source (voir schéma 1.4). Un calcul d'interférence montre que l'intensité totale vaut :

$$I = \int_{-\frac{b}{2}}^{\frac{b}{2}} 2\frac{I_0}{b} \left(1 + \cos\left(\frac{2\pi ax}{\lambda D} + \frac{2\pi aX}{\lambda l}\right)\right) dX \quad (1.29)$$

Soit en effectuant l'intégrale :

$$I = 2I_0 \left(1 + \operatorname{sinc}\left(\frac{\pi ab}{\lambda l}\right) \cos\left(\frac{2\pi ax}{\lambda D}\right)\right) \quad (1.30)$$

Le terme en cosinus constitue le terme classique d'interférence qui est multiplié ici par un terme en sinus cardinal lié à l'extension de la source et qui est responsable du brouillage des franges d'interférences. Les franges sont brouillées quand le sinus cardinal s'annule, on définit ainsi l'angle de cohérence  $\theta$  :

$$\frac{\pi ab}{\lambda l} = \pi \Leftrightarrow \frac{\lambda}{b} = \frac{a}{l} = \theta \quad (1.31)$$

En pratique, lorsque l'on a une source de dimension  $b$  et de longueur d'onde  $\lambda$  on place des fentes à une distance  $D$  de la source et on ferme ces fentes avec un écartement  $a \simeq \frac{\lambda D}{b}$ . Il est donc intéressant d'avoir une distance  $D$  la plus grande possible afin d'avoir un faisceau cohérent le plus large possible. On appelle "longueur de cohérence transverse" la longueur :

$$\xi_T = \frac{\lambda D}{b} \quad (1.32)$$

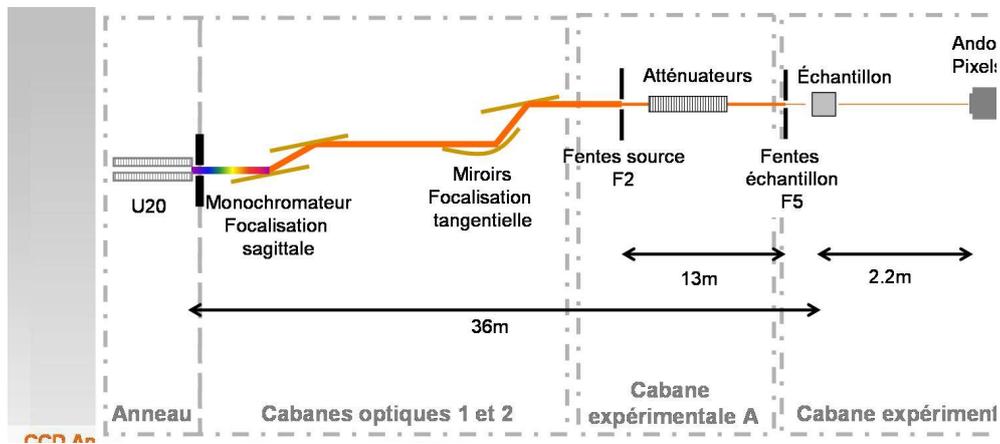


FIGURE 1.5 – Schéma de la ligne Cristal de Soleil

Pour connaître le taux de cohérence de notre faisceau après les fentes, on définit le degré de cohérence par :

$$\beta = \xi_T/a \quad (1.33)$$

Ce degré de cohérence nous renseigne sur la visibilité des franges d'interférences. Plus ce degré de cohérence est faible plus la visibilité des franges sera réduite. En pratique nous ne travaillerons pas toujours avec des degrés de cohérence de 100% pour des raisons de compromis entre visibilité des franges et intensité total du faisceau. Ce degré de cohérence vaut 1 dans le cas d'un faisceau entièrement cohérent avec lequel la visibilité des franges d'interférences vaudra également 1.

### 1.3.3 Cohérence sur Cristal

Nous allons maintenant évaluer les longueurs de cohérence longitudinale et transverse de la ligne Cristal de Soleil. Pour cela un descriptif de la ligne s'impose. Nous allons présenter dans l'ordre les différents systèmes optiques par lesquels passe le faisceau (voir fig 1.5) :

Le faisceau de rayons X de Cristal est obtenu en faisant passer les électrons de l'anneau de stockage dans un ondulateur U20. Un ondulateur est constitué d'un ensemble d'aimants qui créent un champ magnétique permettant de faire osciller le paquet d'électrons de l'anneau de stockage. En oscillant, les électrons vont émettre un rayonnement dont le spectre en énergie possède différentes harmoniques. L'avantage de ce rayonnement est de concentrer l'intensité sur certaines harmoniques, contrairement au rayonnement blanc émit

dans les synchrotrons de première génération dont l'intensité était répartie continument sur une gamme importante de longueur d'onde. L'autre avantage d'un onduleur est de pouvoir régler la position en énergie de la première harmonique en agissant sur la valeur du champ magnétique créé par les aimants.

A la suite de l'onduleur, on place un double monochromateur de silicium (111). En réglant l'angle du monochromateur avec le faisceau sortant de l'onduleur on sélectionne une longueur d'onde bien précise avec une largeur  $\Delta\lambda$ .

Ces deux premiers éléments de la ligne Cristal permettent de définir la longueur de cohérence temporelle de notre rayonnement. Nous rappelons que cette longueur est défini par :

$$\xi_L = \frac{\lambda^2}{2\Delta\lambda} \quad (1.34)$$

Pour avoir une longueur de cohérence suffisamment grande, il faut régler le monochromateur et l'onduleur afin de sélectionner l'énergie la plus faible ( $\lambda$  grand). Le monochromateur doit aussi être le plus parfait possible pour minimiser  $\Delta\lambda$ . Dans les expériences de cohérence sur Cristal, nous nous plaçons généralement à une énergie de  $8keV$  (correspondant à une longueur d'onde  $\lambda = 1.55 \text{ \AA}$ ) pour avoir à la fois une bonne cohérence longitudinale et l'intensité la plus importante possible. Pour le monochromateur utilisé le rapport  $\frac{\Delta\lambda}{\lambda}$  est de l'ordre de  $10^{-4}$ . Ceci nous donne une cohérence longitudinale de :

$$\xi_L \simeq 0.8\mu m \quad (1.35)$$

Cependant, le monochromateur ne permet pas de filtrer parfaitement les harmoniques. En effet lorsque l'on règle la réflexion (111) du Silicium sur la première harmonique de l'onduleur, nous obtenons également la réflexion (333) de la troisième harmonique de l'onduleur sur le silicium. Pour sélectionner une seule de ces réflexions nous plaçons des miroirs à la suite du monochromateur, qui permettent également de focaliser le faisceau.

L'inconvénient des miroirs ce sont les aberrations optiques qui nuisent à la cohérence du faisceau. Pour y remédier nous plaçons, juste derrière, un premier jeu de fentes, dites fentes "source", qui permet de sélectionner une partie "propre" du faisceau. Ces fentes servent de source primaire que l'on considère comme spatialement incohérente. Nous pouvons ainsi définir un angle de cohérence spatiale dépendant de l'ouverture  $a_1$  des fentes source :

$$\theta = \frac{\lambda}{a_1} \quad (1.36)$$

Finalement on place un autre jeu de fentes, appelées fentes échantillon, qui, comme leur nom l'indique, sont placées le plus proche possible de l'échan-

tillon afin d'augmenter au maximum la longueur de cohérence transverse. On note  $D$  la distance entre les deux jeux de fentes. La longueur de cohérence transverse vaut donc :

$$\xi_T = \frac{\lambda D}{a_1} \quad (1.37)$$

Sur la ligne Cristal, la distance  $D$  vaut  $13 \text{ m}$  et l'ouverture des premières fentes vaut en moyenne  $100 \text{ }\mu\text{m}$ . Pour sélectionner une partie entièrement cohérente du faisceau, il faut donc fermer les fentes échantillon à :

$$a_2 < \xi_T = 23\mu\text{m} \quad (1.38)$$

Le faisceau de rayons X ainsi créé sur la ligne Cristal peut être utilisé pour faire des expériences de diffraction cohérente. Celle-ci permettent, par exemple, d'observer les défauts topologiques d'un échantillon, comme nous le verrons dans la dernière partie.

### 1.3.4 Diffraction d'un faisceau gaussien partiellement cohérent

#### Aspects théoriques

La description de la cohérence d'un faisceau de rayons X par les longueurs de cohérence définies précédemment est utilisée au début de chaque expérience de diffraction cohérente afin de savoir si notre faisceau est suffisamment cohérent pour sonder les défauts de phase présents dans les échantillons étudiés. Cependant, ce traitement de la cohérence spatiale n'est pas suffisant pour ajuster correctement les expériences de diffraction d'une fente. En effet, précédemment, nous avons considéré que la source étendue était totalement incohérente. En réalité, les différents point sources qui la composent ne sont pas tous incohérents entre eux. Il faut prendre en compte que des points sources proches sont corrélés entre eux et que cette corrélation se dégrade continument lorsque les points sources considérés s'éloignent. C'est ce que l'on appelle la cohérence partielle.

Reprenons le calcul de la diffraction par une fente. On montre que l'intensité à une dimension en un point  $X$  peut être exprimée en fonction des fonctions de corrélations comme suit [3] :

$$I(X) = \frac{1}{\lambda^2 z^2} \int_{-\frac{a}{2}}^{\frac{a}{2}} \int_{-\frac{a}{2}}^{\frac{a}{2}} \alpha_1 \alpha_2^* \langle s(x_1, t) s^*(x_2, t - \tau) \rangle dx_1 dx_2 \quad (1.39)$$

Il faut maintenant faire quelques hypothèses sur le profil du faisceau et le type de corrélations. Nous avons vu précédemment que la cohérence longitudinale est très bonne grâce à la bande passante fine des monochromateurs utilisés. On peut donc supposer que la différence de temps de propagation entre deux rayons  $\tau$  est faible devant le temps  $\tau_c$  qui est lié à la largeur spectrale de la source et ainsi prendre des corrélations temporelles parfaites. Les corrélations spatiales sont, quant à elles, prises gaussiennes de même que la distribution d'intensité. Ce type de modèle pour des faisceaux lumineux est appelé "Gaussian Shell Model" (GSM) [3]. Pour finir, nous supposons que la taille de la fente diffractante est petite devant la largeur de la distribution d'intensité, ce qui permet de supposer la fente éclairée de manière homogène. En se plaçant dans le régime de Fraunhofer, il s'en suit une intensité calculée en un point  $X$  de la forme (voir annexe 1) :

$$I(X) = \frac{1}{\lambda^2 D^2} \int_{-\frac{a}{2}}^{\frac{a}{2}} \int_{-\frac{a}{2}}^{\frac{a}{2}} \exp\left(-\frac{(x_1 - x_2)^2}{2\xi}\right) \exp\left(\frac{2i\pi}{\lambda D}(X(x_1 - x_2))\right) dx_1 dx_2 \quad (1.40)$$

L'exponentielle réelle donne les corrélations gaussiennes de la source et la grandeur  $\xi$  n'est autre que la longueur de cohérence transverse définie précédemment. L'exponentielle complexe rend compte du déphasage entre des rayons venant de  $X_1$  et de  $X_2$ . Si l'on fait tendre  $\xi$  vers l'infini, on retrouve un faisceau entièrement cohérent donnant les résultats de la première partie (formule 1.15).

Nous allons maintenant faire quelques simulations de la figure de diffraction par une fente en champ lointain dans le cas du GSM. Ceci nous permettra de valider une méthode systématique pour mesurer la longueur de cohérence d'un faisceau de rayons X grâce à une mesure de diffraction par une fente.

Lorsque l'on simule l'évolution de la figure de diffraction en fonction de la longueur de corrélation (voir figure 1.6), on observe que la visibilité des franges s'améliore avec l'augmentation de la longueur de cohérence. Expérimentalement, il est facile de mesurer la visibilité des franges d'interférences.

Il est donc intéressant de relier cette visibilité à la longueur de cohérence dans le cas du GSM. Ce lien est simple dans le cadre de l'expérience des trous d'Young ou l'on trouve une visibilité de la forme :

$$V = \exp\left[-\frac{a^2}{2\xi_T^2}\right] \quad (1.41)$$

Mais, contrairement au cas des trous d'Young, lors de la diffraction d'une fente, la visibilité varie suivant le maximum et le minimum choisi pour la

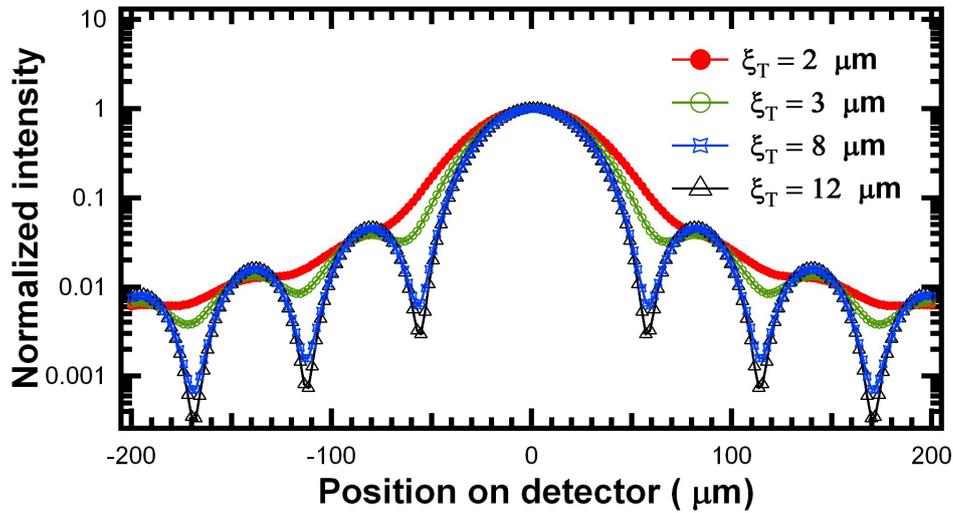


FIGURE 1.6 – Simulation de la diffraction d’une fente dans le régime de Fraunhofer et dans le cadre du GSM. La simulation a été répétée pour différentes valeurs de la longueur de corrélation au niveau de la fente [4].

mesurer, ce qui rend le problème bien plus compliqué. Dans le cas où les corrélations valent 1 (source entièrement cohérente), la figure de diffraction est un sinus cardinal (formule 1.15). On peut ainsi se ramener à un cas similaire à celui des trous d’Young en normalisant la figure de diffraction par son enveloppe en  $\frac{1}{\alpha x^2}$ . Afin de s’affranchir de l’effet du sinus cardinal et obtenir la visibilité en fonction de la longueur de corrélation, on normalise donc de façon systématique les figures de diffractions obtenues pour différentes longueurs de cohérences. On remarque dans l’encadré de la figure 1.7 qu’au centre de la figure de diffraction la normalisation ne donne pas un sinus carré lorsque la longueur de corrélation est trop faible. C’est un résultat attendu puisque la figure de diffraction est en fait une convolution entre une gaussienne et un sinus cardinal. Pour s’affranchir de l’effet de l’enveloppe en  $\frac{1}{\alpha x^2}$  il faudrait déconvoluer le sinus cardinal de la gaussienne avant de normaliser par l’enveloppe. Pour contourner ce problème nous allons mesurer la visibilité loin du centre où la normalisation donne bien un sinus carré. On voit ainsi sur la figure 1.7 que la visibilité suit parfaitement la loi attendue pour les trous d’Young. On en déduit que l’on peut extraire la longueur de corrélation d’un faisceau de rayons X grâce à une expérience de diffraction de fente à condition de bien normaliser la figure de diffraction par l’enveloppe avant de mesurer la visibilité loin du centre. C’est donc cette méthode que nous utiliserons par la suite pour extraire la longueur de corrélation, au niveau des fentes échantillon, de nos données expérimentales .

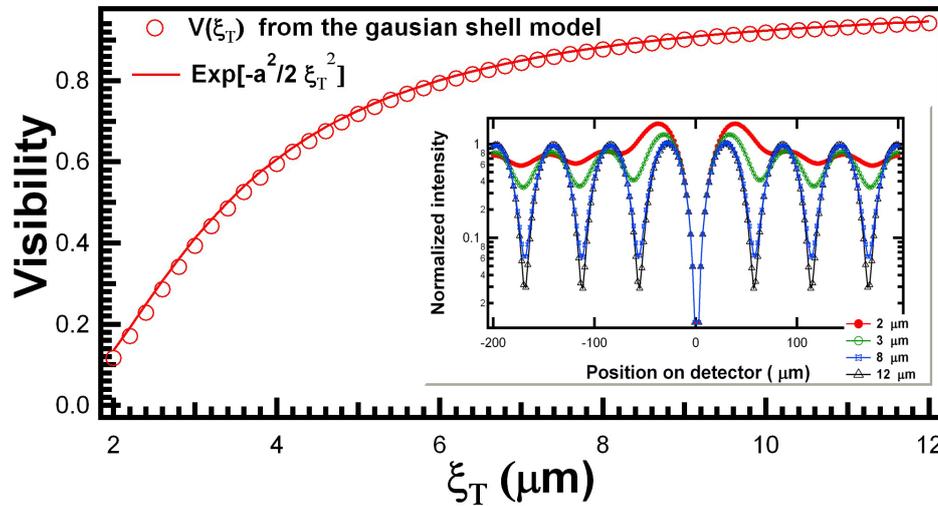


FIGURE 1.7 – La figure en encadré correspond aux simulations présentes en figure 1.6 une fois normalisées par l’enveloppe en  $\frac{1}{\alpha x^2}$  d’un sinus cardinal. La figure principale est une comparaison entre la visibilité attendue dans le cas de l’expérience des trous d’Young 1.41 et celle obtenue dans l’encadré [4].

### Mesure du degré de cohérence à partir de la diffraction d’une fente

Sur la ligne Cristal de Soleil nous avons pu mesurer la diffraction par une fente d’un faisceau de rayons X partiellement cohérent. Les mesures dans le régime de Fraunhofer ont été effectuées pour différentes valeurs de la longueur de cohérence. Afin de modifier cette valeur nous avons ouvert petit à petit les fentes sources, ce qui conduit à un brouillage des franges d’interférences (voir figure 1.8).

On peut également noter en regardant attentivement la figure 1.8 que l’espacement inter-franges est plus grand sur la partie droite des figures que sur la gauche. Ceci reflète une asymétrie de la fente diffractante liée à la façon dont sont conçus les fentes de rayons X. Cette asymétrie n’est visible que pour des fentes très fermées (i.e. ouverture inférieure ou de l’ordre de  $5\mu m$ ). Sur le schéma 1.9, on voit que les deux lames utilisées pour une fente se ferment en se chevauchant. Un observateur qui se déplace de haut en bas verra donc une ouverture de fente plus ou moins grande suivant sa position. Pour extraire la longueur de cohérence grâce à la mesure de la visibilité nous avons normalisé nos figures expérimentales par l’enveloppe d’un sinus cardinal comme dans la méthode proposée dans la partie précédente. Après normalisation on se retrouve avec une fonction sinusoïdale dont on peut mesurer la visibilité (voir encadré de la figure 1.10). Il faut garder à l’esprit

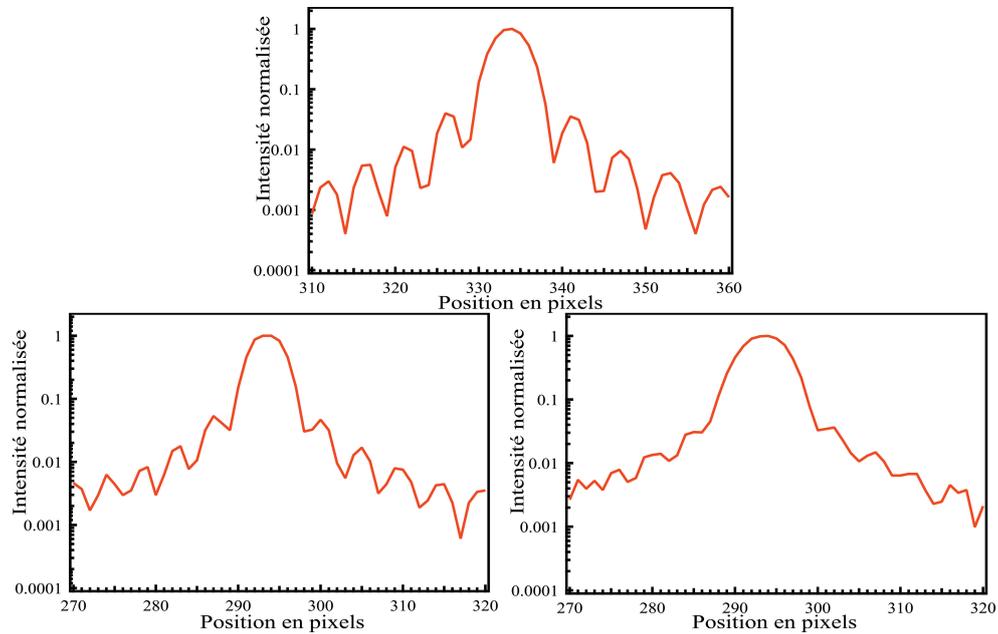


FIGURE 1.8 – Figures de diffraction de Fraunhofer d’une fente échantillon fermée à  $26\mu\text{m}$  et un détecteur placé à  $2\text{ m}$ . Nous avons effectué différentes mesures en faisant varier l’ouverture des fentes sources ce qui a pour effet de réduire la visibilité des franges d’interférences.

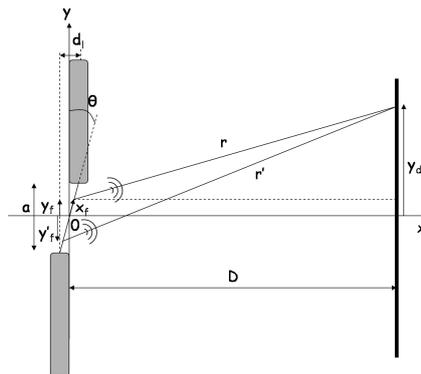


FIGURE 1.9 – Schéma des fentes diffractantes lors d’une expérience de rayons X. L’asymétrie des fentes engendre une asymétrie de la figure de diffraction (voir figure 1.3) [1].

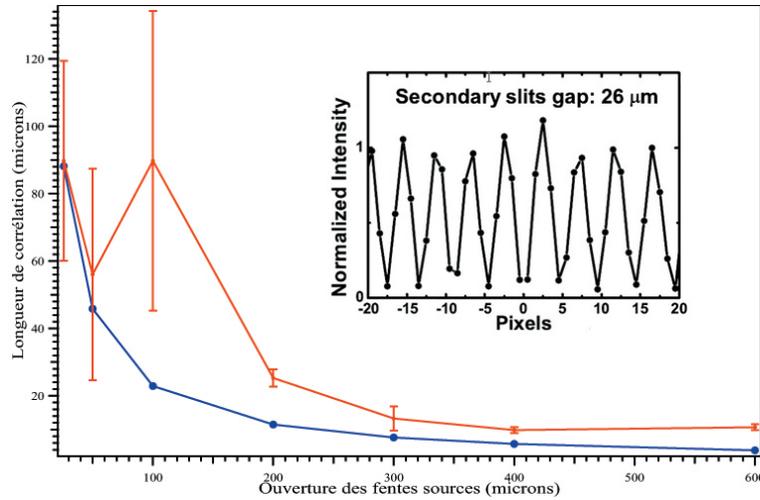


FIGURE 1.10 – Longueur de cohérence en fonction de l’ouverture des fentes sources. Comparaison entre le cas d’une source entièrement incohérente en bleu, et le cas d’une source dont les corrélations sont supposées gaussienne en rouge. L’encadré présente une courbe expérimentale que l’on a divisé par l’enveloppe en  $\frac{1}{\alpha x}$  afin d’extraire la visibilité et ainsi revenir à la longueur de corrélation gaussienne.

que lors de cette mesure la visibilité de la figure d’interférence est dégradée à cause de la taille finie des pixels. En effet un pixel intègre l’intensité sur toute sa taille ce qui a pour effet de réduire la visibilité des franges. On estime que la perte de visibilité due à la taille des pixels est de l’ordre de 10%. Il est intéressant de regarder l’évolution de la longueur de cohérence mesurée en fonction de la taille des fentes sources (voir figure 1.10).

Les incertitudes, pour des longueurs de corrélation très supérieures à la taille de la fente diffractante, deviennent importante (environ 50% d’incertitude). Si l’objet diffractant est de l’ordre de  $5\mu m$ , il ne fera interférer que des parties du faisceaux distants au maximum de  $5\mu m$ . Ainsi nous n’avons, à priori, pas d’informations sur la corrélation pour des points plus espacés. Toutefois l’aspect gaussiens de la forme des corrélations nous permet d’évaluer des longueurs de corrélations supérieures à la taille de la fente d’un facteur d’environ 4 mais pour des corrélations plus grandes les incertitudes deviennent trop importantes et nous pouvons seulement donner une valeur minimale à la longueur de corrélation. Il est intéressant de comparer cette longueur de cohérence pour un faisceau partiellement cohérent à la longueur de cohérence que l’on peut calculer en prenant une source entièrement incohérente comme dans la partie précédent. Dans le cas d’une source incohérente la longueur

de corrélation est donnée par la formule 1.32. Nous constatons qu'en prenant une source totalement incohérente la longueur de cohérence est sous-estimée mais les valeurs restent proches. Lors d'une expérience de cohérence on évaluera donc la longueur de cohérence en prenant une source totalement incohérente ce qui est plus rapide. Par contre pour faire des simulations précises de nos clichés de diffraction, il faudra prendre en compte l'aspect partiellement cohérent de notre faisceau. C'est ce que nous avons fait pour simuler les clichés de diffraction dans le régime de Fresnel présentés dans suite.

### 1.3.5 De Fresnel à Fraunhofer

Jusqu'ici nous nous sommes intéressés seulement au régime de Fraunhofer valable lorsque le détecteur peut être considéré à une distance infini par rapport à la fente ( $D \gg \frac{\pi a^2}{4\lambda}$ ). L'avantage de ce domaine est la simplicité de la figure de diffraction qui permet comme nous l'avons montré de revenir simplement à la longueur de corrélation du faisceau incident. Cependant il peut être intéressant d'observer la passage continue du régime de Fresnel à celui de Fraunhofer. La formule théorique devient un peu plus compliquée puisque, même pour un faisceau entièrement cohérent, la formule n'est pas analytique. En restant dans le cadre du modèle gaussien nous utiliserons la formule 4.26 de l'annexe pour effectuer toutes les simulations. Sur la simulation 1.12, on peut voir l'évolution d'un faisceau après diffraction par une fente. Un point de repère intéressant que l'on appelle point sombre de Poisson est visible sur la figure 1.12 b). Historiquement, Fresnel a montré le caractère ondulatoire de la lumière en plaçant un disque opaque devant un faisceau lumineux et en observant un maximum d'intensité au centre d'un écran placé après le disque. Ce point sombre, situé à une distance  $D_{FF} \simeq \frac{\pi a^2}{4\lambda}$ , délimite le passage d'un régime où le faisceau reste parallèle à un régime où le faisceau commence à diverger pour former (à l'infini) un sinus cardinal caractéristique du régime de Fraunhofer. Avant le point sombre, lorsque le faisceau reste parallèle celui-ci est environ de la taille de la fente diffractante et comporte de nombreuses oscillations au centre. Au contraire, lorsque le faisceau commence à diverger, les oscillations deviennent plus larges et la figure tend petit à petit vers un sinus cardinal.

Pour mesurer expérimentalement l'évolution du faisceau dans le régime de Fresnel, il est normalement nécessaire de changer la distance "D" entre les fentes et le détecteur. Malheureusement, il est compliqué expérimentalement de déplacer le détecteur. Pour palier à ce problème, nous pouvons à la place changer l'ouverture "a" des fentes diffractantes, ce qui aura pour effet de décaler la position du point sombre et permettre ainsi de mesurer différentes

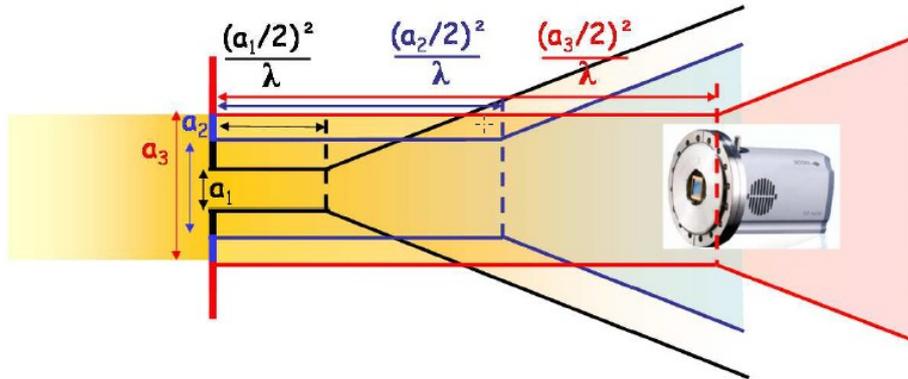


FIGURE 1.11 – Figures illustrant le passage de Fresnel ( $a_3$ ) à Fraunhofer ( $a_1$ ) en changeant la taille de la fente diffractante [1].

positions du régime de Fresnel (voir figure 1.11). Nous aurions pu également changer la longueur d'onde mais cela est beaucoup plus compliqué et aurait nécessité un détecteur suffisamment sensible sur une large gamme d'énergie (de  $8 \text{ keV}$  à  $52 \text{ keV}$ ).

Nous avons utilisé un faisceau de longueur d'onde  $\lambda = 1 \text{ \AA}$ , une distance fente détecteur  $D = 3 \text{ m}$  et un détecteur fait d'un scintillateur YAG dont la taille des pixels est de  $1.3 \mu\text{m}$ . Ce détecteur de très grande résolution est nécessaire afin de résoudre les oscillations rapides du régime de Fresnel. On peut voir sur la figure 1.13 la comparaison entre simulation et expérience des images à 2 dimensions dans le régime de Fresnel et sur la figure 1.14 les coupes où sont superposées expériences et simulations. En ajustant les simulations aux courbes expérimentales, nous obtenons une mesure de la longueur de corrélation. Il faut tout de même faire attention à une dernière chose. Les détecteurs possèdent une fonction d'étalement du point (FEP) qui rend compte de l'image d'un point sur le détecteur. Ici nous avons pris en compte cette FEP en convoluant la figure d'interférence par une lorentzienne de largeur 1.5 pixels. Notons que finalement, la largeur des fentes mesurée lors de l'expérience ne correspond pas exactement avec celle utilisée pour les simulations. La distance  $D$  et la longueur d'onde  $\lambda$  étant fixées et considérées comme parfaitement connues, la forme générale de la figure de diffraction (nombre d'oscillations, distance entre maxima successifs...) est donnée par l'ouverture des fentes. L'ajustement de la figure de diffraction nous permet donc d'obtenir une valeur précise de cette grandeur (l'écart à la mesure faite *in situ* vient simplement d'une mauvaise calibration de l'ouverture des fentes). Pour finir, l'ajustement de l'amplitude des oscillations permet de déduire la longueur de corrélation. Nous préférons quand même

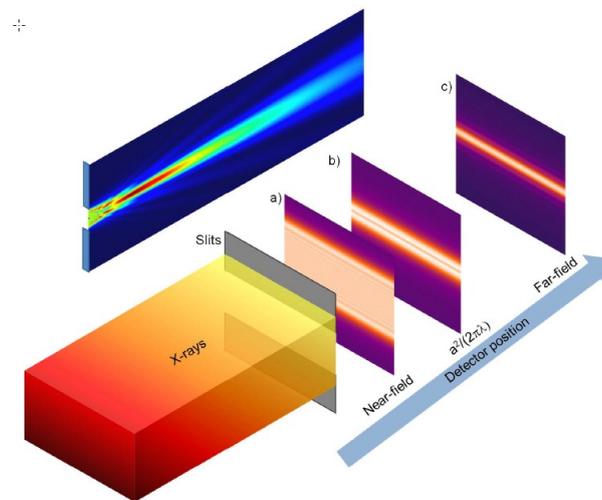


FIGURE 1.12 – Distribution d’intensité après diffraction par une fente. L’image du fond illustre l’évolution du faisceau au cours de la propagation. Le bleu foncé représente les minima d’intensité et le rouge foncé les maxima. Les figures a), b) et c) représentent respectivement des images du régime de Fresnel avant le point sombre, au niveau du point sombre et après le point sombre. Mesures réalisées sur la ligne Cristal de Soleil [4].

les mesures de la longueur de corrélation faites dans le régime de Fraunhofer où la mesure de la visibilité des franges suffit ce qui permet d’éviter de passer par l’ajustement d’une courbe théorique.

Nous avons pu tester la bonne cohérence de notre faisceau de rayons X en effectuant des expériences classiques de diffraction de fentes et ainsi mesurer de manière précise la longueur de cohérence de notre faisceau. Ces expériences qui ont été effectuées il y a de nombreuses années dans le visible sont nouvelles dans la gamme des rayons X et témoignent des grandes avancées techniques dans la maîtrise du rayonnement synchrotron. Comme nous allons le voir dans la suite la capacité d’un faisceau de rayons X cohérent à pouvoir donner des franges d’interférences est d’un grand intérêt pratique pour sonder les défauts dans les cristaux. Les expériences que nous présenterons dans le chapitre 3 ont pour but d’étudier, au moyen de la diffraction cohérente des rayons X, l’influence des défauts (plus particulièrement des dislocations) sur le comportement des ondes de densité de charge soumises à un potentiel. Ainsi, avant d’étudier les dislocation dans ce type de matériaux, nous allons présenter des expériences que nous avons effectuées, en diffraction cohérente des rayons X, sur des boucles de dislocations isolées dans le Silicium. Ceci nous permettra de démontrer l’intérêt de la diffraction cohérente des rayons

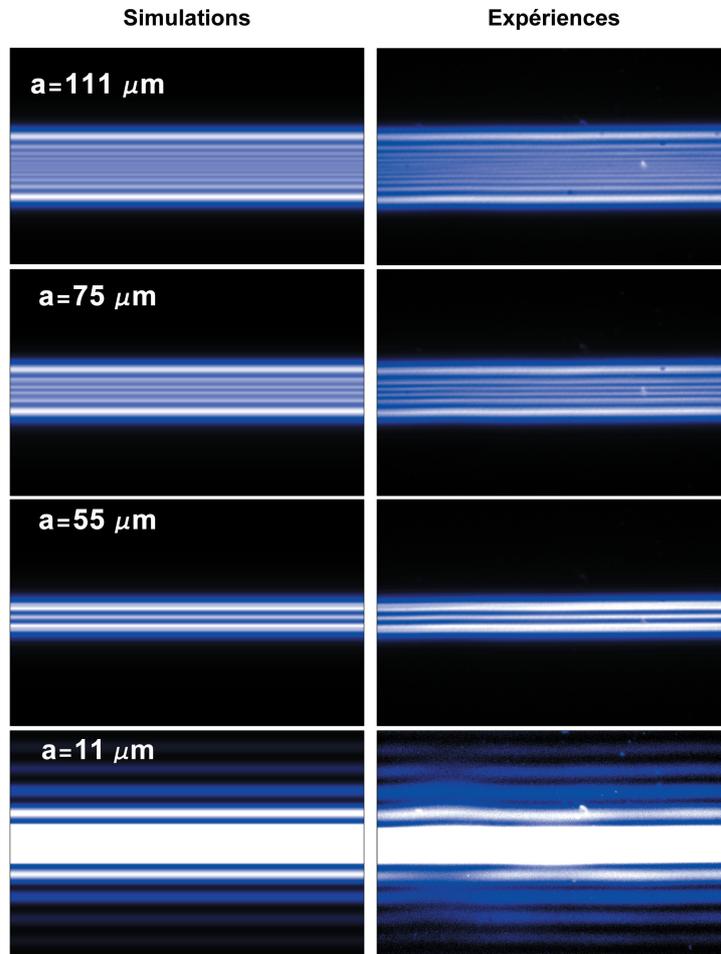


FIGURE 1.13 – Figures de diffraction d’une fente dans le régime de Fresnel. Ces figures à 2 dimensions permettent de comparer la forme générale des simulations et de l’expérience pour différentes ouvertures de fentes. Les ouvertures indiquées sont celles utilisées pour faire la simulation [4].

X dans l’étude des défauts avant de l’appliquer au cas plus compliqué d’une onde de densité de charge.

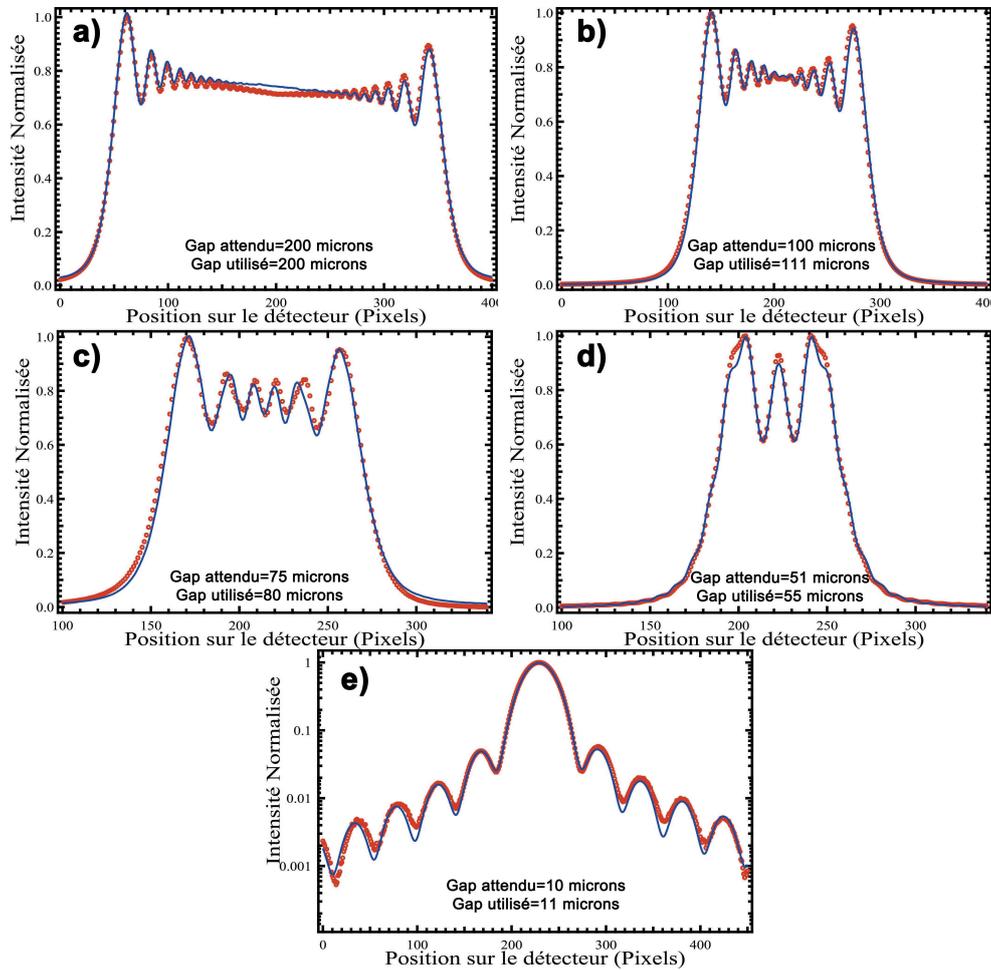


FIGURE 1.14 – Coupes des figures 1.13. En bleu la théorie (GSM) comparée à l'expérience en cercles rouges. Le changement de l'ouverture des fentes diffractantes permet de sonder différents endroits de la diffraction de Fresnel. a), b), c) Diffraction dans le régime de Fresnel, d) Diffraction proche du point sombre et e) Diffraction dans le régime de Fraunhofer. Mesures réalisées sur la ligne Cristal de Soleil



# Chapitre 2

## Utilisation de la cohérence pour l'étude des défauts cristallins

### Contents

---

<b>2.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>32</b>
<b>2.2</b>	<b>Observation d'un défaut.</b>	<b>32</b>
2.2.1	Diffraction classique	32
2.2.2	Diffraction cohérente	33
<b>2.3</b>	<b>Les dislocations</b>	<b>34</b>
2.3.1	Description géométrique	34
2.3.2	Description en terme de phase	38
2.3.3	Observation avec un faisceau cohérent	39
<b>2.4</b>	<b>Boucle de dislocation dans le Silicium.</b>	<b>41</b>
2.4.1	Présentation de l'échantillon.	41
2.4.2	Les dislocations en topographie.	41
2.4.3	Utilisation de la cohérence.	43

---

## 2.1 Introduction

Lorsque l'on parle de cristal, on pense à un arrangement périodique parfait d'atomes. En réalité, cette périodicité est souvent rompue par la présence de défauts de différentes sortes. Les types de défauts que l'on rencontre dans les cristaux peuvent se classer suivant leur dimensionnalité. Cela va d'un atome manquant (site atomique inoccupé), appelée lacune, et que l'on considère de dimension 0 (ponctuel), aux défauts à 3 dimensions qui sont en général des précipités d'une autre espèce chimique à l'intérieur du cristal.

Il est aussi intéressant de distinguer les défauts, dit d'amplitude, qui modifient localement la densité électronique et qui n'ont pas d'effet à longue portée, des défauts de phases qui décalent les atomes de leurs positions d'origines et qui eux vont avoir des effets à longues portées.

Dans la suite, nous nous intéresserons surtout aux défauts de phases pour lesquels la diffraction cohérente apporte énormément d'informations supplémentaires comparée à la diffraction classique.

## 2.2 Observation d'un défaut.

### 2.2.1 Diffraction classique

En diffraction classique, il est possible d'observer un effet de la présence des défauts d'amplitudes tel que les lacunes (ou plus généralement tous les défauts de dimension 0). Ce type de défaut va changer localement le facteur de diffusion atomique puisque l'atome n'est pas présent ou est remplacé. L'intensité diffractée étant la somme de toutes les amplitudes de diffusion des atomes éclairés par le faisceau de rayons X, un effet de tels défauts est théoriquement visible sur la figure de diffraction. Expérimentalement, si la densité de défauts n'est pas importante, l'effet sera trop fin pour être mesurable.

Les défauts de phases, si leur nombre est important, sont observables à grands angles. On peut écrire l'intensité diffractée comme la somme des intensités diffractées par chaque mailles. La présence de défauts a pour effet de décaler les mailles de leurs positions d'origines, il s'en suit une intensité de la forme [5] :

$$I(q) = \sum I(\rho_t) \exp(iq \cdot \rho_t) \quad (2.1)$$

$$I(\rho_t) = \sum \overline{f_s f_{s'}^* \exp[i \vec{q} \cdot (\delta \vec{R}_s - \delta \vec{R}_{s'})]} \quad (2.2)$$

où  $\vec{q}$  est le vecteur de diffusion,  $f_s$  le facteur de structure de la maille  $s$ ,  $\rho_t$  le vecteur de translation amenant de la maille  $s$  à la maille  $s'$  et  $\delta\vec{R}_s$  l'écart de position du premier atome de la maille par rapport à sa position d'origine (sans défaut).

On observe ainsi différents effets sur les pics de Bragg à cause de la présence de ces défauts. On peut observer une variation de l'intensité maximale pour des défauts localisés comme tous les défauts ponctuels. On peut également avoir un élargissement des pics pour des défauts ayant des effets à longues portées. C'est le cas, par exemple des dislocations qui créent de la diffusion en  $\frac{1}{q^3}$  autour des pics de Bragg [5]. Ce types de défauts est particulièrement intéressant puisque nous verrons qu'en diffraction cohérente les effets sur la figure de diffraction sont bien plus importants même pour un défaut isolé.

### 2.2.2 Diffraction cohérente

Le principal intérêt d'un faisceau spatialement cohérent est d'être sensible aux défauts entraînant des déphasages dans les matériaux. De tel défauts entraînent l'apparition de franges d'interférences sur la figure de diffraction. Lorsque notre faisceau est spatialement cohérent, nous sommes les amplitudes diffractés (contrairement au cas de la formule 2.1) par les différentes zones de l'échantillon :

$$I(q) = \sum_{i,j} A_i(q)A_j^*(q) \quad (2.3)$$

Cette somme fait intervenir les produits croisés des différentes amplitudes qui donnent lieu à plusieurs termes d'interférences. Ces termes vont créer des franges d'interférences en général très désordonnées (nombreux défauts) que l'on appelle tavelures (speckle en anglais). Le premier cliché de diffraction cohérente par des rayons X a été obtenu en 1991 lors d'une étude des domaines en antiphase dans  $Cu_3Au$  [6]. La figure 2.1, donne un exemple de cliché de diffraction cohérente comportant du speckle dû à des régions désordonnées dans le composé  $SrTiO_3$ .

Il est important de noter que pour observer ce genre d'image de speckle, il faut que le système soit stable durant le temps d'acquisition (qui peut être de plusieurs secondes). En effet si les défauts se modifient au cours du temps, les déphasages entre les différentes zones de l'échantillon vont changer, entraînant une modification de la figure de speckle. Si le temps d'acquisition est lent devant les déplacements des défauts, la figure de speckle sera moyennée dans le temps et nous retrouverons le pic lisse que l'on aurait

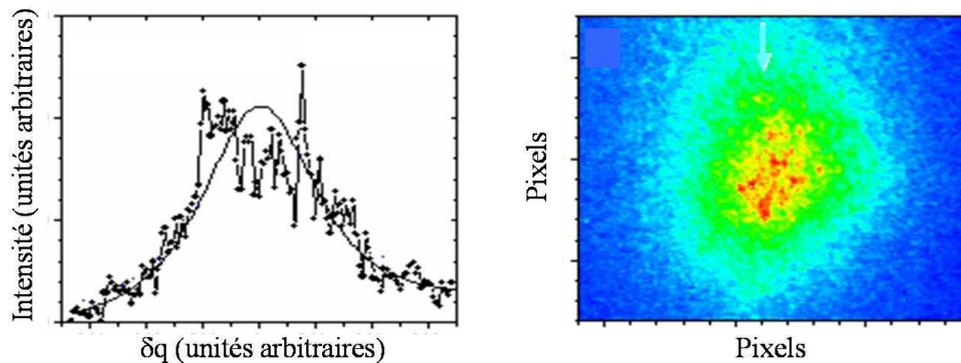


FIGURE 2.1 – Image de diffraction de rayons X avec un faisceau cohérent du pic de sur-structure  $(1/2 \ 1/2 \ 1/2)$  dans  $SrTiO_3$  à  $10 \text{ K}$  au-dessus de la transition ( $T_c = 100 \text{ K}$ ). Sur le profil de gauche la courbe en trait plein correspond à ce que l’on verrait en diffraction classique comparé à la même mesure avec un faisceau cohérent (points noirs). A droite une image de diffraction bidimensionnelle contenant du speckle [7].

obtenu en diffraction classique. Une technique appelée XPCS (X-ray photon corrélation spectroscopie) a été développée pour étudier les dynamiques lentes telles que les phénomènes de diffusion [8]. Cette technique consiste à regarder au cours du temps la modification de la figure de speckle pour en déduire les vitesses de déplacement des différents domaines présents dans le système étudié pour différents vecteurs d’onde.

Pour des systèmes statiques, de nombreuses techniques d’imageries, comme la ptychographie [9], ont été développées pour reconstruire, à partir de plusieurs clichés de diffractions cohérentes, l’objet diffractant. Ce type d’expérience nécessite un système stable dans le temps et la reconstruction de l’espace réel est souvent très compliquée.

Dans notre étude des dislocations présentée dans la suite, nous avons réussi à isoler une boucle de dislocation ce qui permet d’avoir une figure de diffraction bien plus ”simple” à interpréter.

## 2.3 Les dislocations

### 2.3.1 Description géométrique

Pour décrire une dislocation de manière géométrique, prenons l’exemple classique d’un cristal de forme cylindre que nous découpons sur un plan ra-

dial. La ligne de démarcation ainsi formée entre la partie du cylindre découpée et celle intacte est appelée la ligne de dislocation (voir figure 2.2). Ce sera le long de cette ligne que les déformations élastiques seront les plus fortes. Nous avons maintenant plusieurs choix pour déformer le cristal.

Il est possible, *a priori*, d'écartier les deux lèvres  $S_1$  et  $S_2$  de la coupure comme sur la figure 2.2 b). Cette dislocation de rotation possède une énergie élastique importante au niveau de la ligne de dislocation et son énergie décroît lentement quand on s'éloigne de la ligne. Le coup en énergie de cette déformation est trop important pour exister dans un cristal. Nous nous concentrerons donc sur les déformations de translation.

Pour déformer le cylindre, nous pouvons translater les lèvres  $S_1$  et  $S_2$  l'une par rapport à l'autre suivant un vecteur  $\vec{b}$  appelé vecteur de Burger. On distinguera les dislocations "vis" pour lesquelles le vecteur de Burger est parallèle à la ligne de dislocation (voir figure 2.2 c)) des dislocations "coin" où le vecteur de Burger est perpendiculaire à la ligne de dislocation (voir figure 2.2 d)). On peut bien sur avoir une dislocation qui est une combinaison des deux.

Intéressons-nous plus en détail aux dislocations coins. Pour cela prenons le cas d'un réseau cubique et regardons suivant un plan de coupe perpendiculaire à la ligne de dislocation (voir figure 2.3 a)). La première étape est donc de translater la partie supérieure du cristal par rapport à celle inférieure (voir figure 2.3 b)). On relie ensuite les deux volumes déphasés en faisant varier la phase de manière continue (voir figure 2.3 c)). Pour définir le vecteur de Burger de cette dislocation, nous pouvons prendre un circuit  $C$  dans le cristal parfait qui entoure la ligne de dislocation comme sur la figure 2.3 a)). Traçons ensuite le même circuit sur le cristal déformé, nous voyons sur la

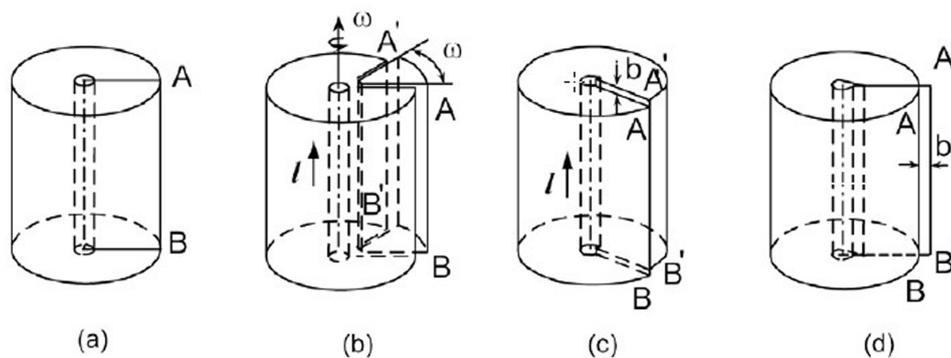


FIGURE 2.2 – Figures illustrant le principe géométrique de Voltera permettant de construire une dislocation [10].

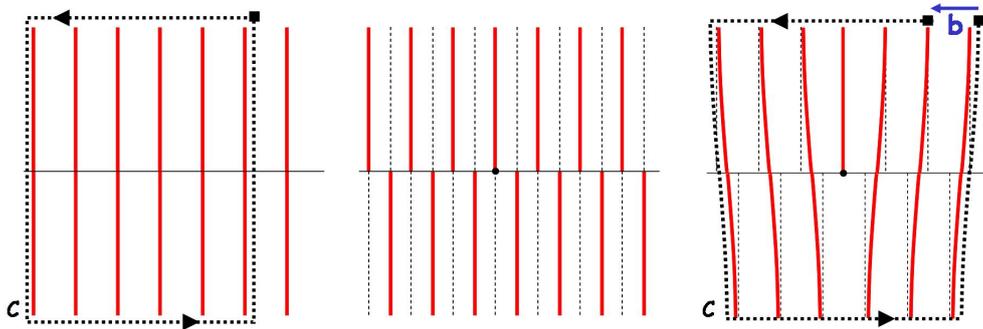


FIGURE 2.3 – Schéma de la construction d'une dislocation coin. La figure a) représente le cristal parfait et le circuit de Burger initial noté  $C$ . la figure b) représente la première étape qui est de translater deux volumes de l'échantillon. La figure c) représente la dislocation finale avec le circuit de Burger  $C$  associé qui permet de définir le vecteur de Burger  $\mathbf{b}$  [1].

figure 2.3 c) que pour refermer ce circuit, nous devons ajouter un vecteur que l'on définit comme le vecteur de Burger associé à cette dislocation. On peut donc définir une dislocation par sa ligne et son vecteur de Burger associé. Le raccordement des deux volumes se fait de manière plus ou moins abrupte suivant les constantes de forces élastiques du cristal considéré. Une dislocation parfaite comme décrite ici ne peut exister que pour un vecteur de Burger correspondant à un vecteur du réseau cristallin.

Si le vecteur de Burger n'est pas multiple d'un vecteur du réseau, l'énergie nécessaire au raccordement des deux volumes déphasés est très importante. Il existe tout de même des cas pour lesquels cette énergie est plus faible rendant possible l'existence d'une telle dislocation que l'on appellera dislocation partielle. Prenons l'exemple d'un réseau cubique face centré (voir figure 2.4 a)) qui nous intéressera par la suite lors de l'étude du silicium. Ce réseau peut être considéré comme un empilement de trois types de plans denses (111) empilés de manières successives ABC (voir figure 2.4 b)).

Représentons les différents plans successifs vus de côté (voir figure 2.5). On peut ainsi créer une dislocation en décalant deux domaines de l'échantillon et en ajoutant un plan de type B dans l'espace ainsi créé (voir figure 2.5). La dislocation ainsi créée possède un vecteur de Burger égal à  $\frac{a}{3}(111)$  et une ligne de dislocation dans le plan (111). A la différence d'une dislocation parfaite, on obtient en plus de la dislocation une faute d'empilement.

Les dislocations (parfaites ou partielles) ont des propriétés régies par les lois de l'élasticité que nous pouvons décrire en considérant les écarts des positions atomiques par rapport à leurs positions d'origines comme des déphasages.

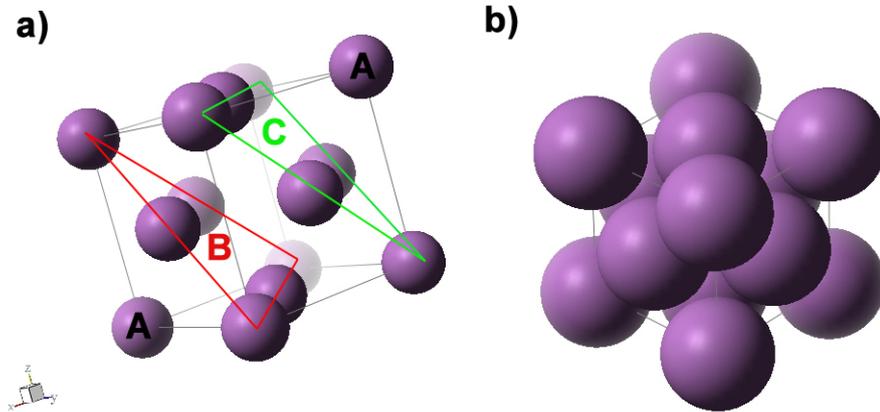


FIGURE 2.4 – Représentation du réseau cubique face centré. En figure a) le réseau à 3 dimensions en distinguant les plans ABC. En figure b) projection des plans ABC suivant la direction (111).

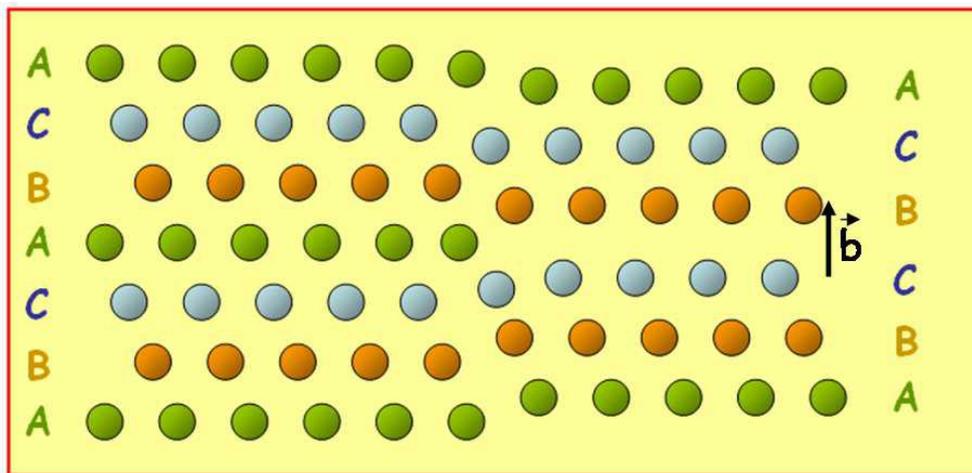


FIGURE 2.5 – Représentation d'une dislocation partielle intrinsèque, associée à une faute d'empilement. Le vecteur de Burger représenté vaut  $\mathbf{b} = \frac{1}{3} \langle 111 \rangle$ .

### 2.3.2 Description en terme de phase

On peut décrire les positions des atomes d'un cristal cubique de paramètre de maille  $a$  en terme de cosinus comme suit :

$$R(x, y, z) = \cos\left(\frac{2\pi x}{a}\right) + \cos\left(\frac{2\pi y}{a}\right) + \cos\left(\frac{2\pi z}{a}\right) \quad (2.4)$$

Construisons, à partir de cette description, une dislocation coin de vecteur de Burger  $\vec{\mathbf{b}} = a\vec{\mathbf{x}}$  et dont la ligne de dislocation est le long de  $z$  et située en  $(x_0, y_0)$ . Pour cela, nous commençons par décaler les deux demi-volumes de  $\frac{a}{4}$  pour  $y > y_0$  et de  $-\frac{a}{4}$  pour  $y < y_0$  (voir figure 2.3). En injectant ceci dans l'équation 2.4, nous obtenons la formule suivante :

$$R(x, y, z) = \cos\left(\frac{2\pi x}{a} - \text{sign}(y - y_0) * \frac{\pi}{2}\right) + \cos\left(\frac{2\pi y}{a}\right) + \cos\left(\frac{2\pi z}{a}\right) \quad (2.5)$$

Le décalage entre les deux volumes entraîne donc un déphasage de  $\pi$ . Nous voyons que dans cette description du cristal, nous pouvons décrire les déplacements atomiques par rapport à la position initiale des atomes comme un déphasage que nous noterons  $\phi(x, y)$ . Le raccordement des deux volumes est donné par les équations de l'élasticité. A l'équilibre thermodynamique, la phase doit être solution de [11] (modèle élastique) :

$$K_x \frac{\partial^2 \phi(x, y)}{\partial x^2} + K_y \frac{\partial^2 \phi(x, y)}{\partial y^2} + K_z \frac{\partial^2 \phi(x, y)}{\partial z^2} = 0 \quad (2.6)$$

Les grandeurs  $K_x$ ,  $K_y$  et  $K_z$  sont les constantes élastiques du matériau considéré. La solution de cette équation nous donne la forme suivante pour la phase à laquelle nous avons rajouté le déphasage créé par la translation des deux volumes :

$$\phi(x, y) = -\text{sign}(y - y_0) * \frac{\pi}{2} + \tan^{-1}\left(\sqrt{\frac{K_y}{K_x}} \frac{x - x_0}{y - y_0}\right) \quad (2.7)$$

Comme on peut le voir sur la figure 2.6, la jonction entre les parties supérieures et inférieures se fait de manière plus ou moins abrupte suivant l'asymétrie des constantes élastiques.

Une ligne de dislocation ne peut pas s'arrêter simplement dans un cristal et se prolongera jusqu'à la surface ou jusqu'à un autre défaut comme un joint de grain. En général pour réduire la longueur de la ligne de dislocation celle-ci va former une boucle en suivant les axes cristallographiques. Cette boucle de dislocation va ainsi séparer deux zones de cristal parfait qui seront déformées seulement au niveau de la ligne de dislocation.

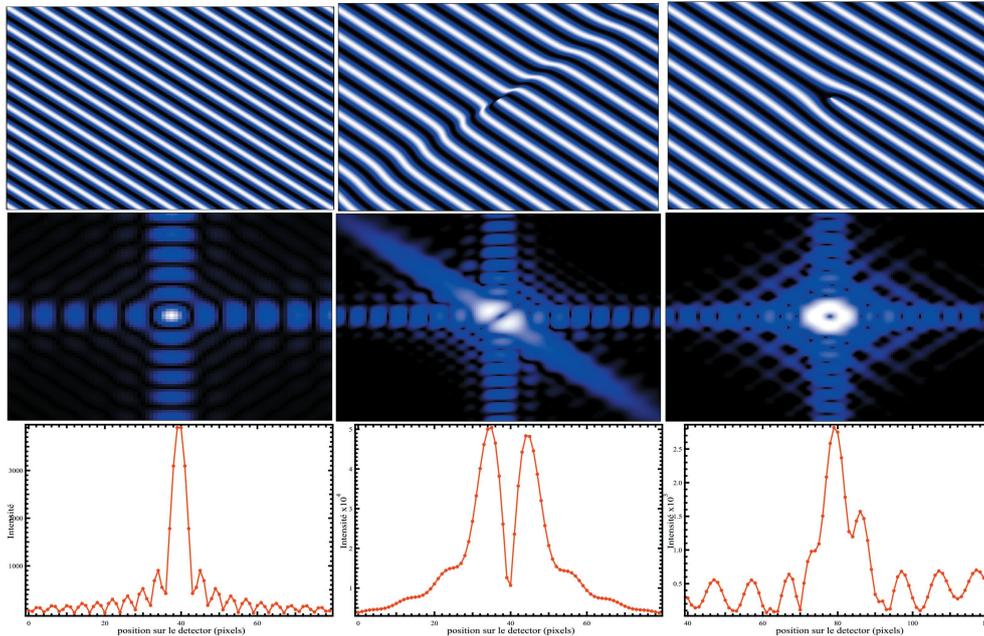


FIGURE 2.6 – Simulation d’une dislocation coin pour différents rapports des constantes de forces. figure a)  $\frac{K_y}{K_x} = 0.03$  et figure b)  $\frac{K_y}{K_x} = 1$  [12]

### 2.3.3 Observation avec un faisceau cohérent

Une dislocation a pour principal effet de déphaser deux zones de l’échantillon de  $\pi$ . Nous nous attendons donc à obtenir un minimum d’intensité au centre de la figure de diffraction lorsqu’une ligne de dislocation est présente dans la zone éclairée par notre faisceau. On peut simuler en détail ce qui est attendu lors de la diffraction d’une dislocation et comparer au cas du réseau parfait. Les simulations sont présentées en figure 2.6. On voit clairement l’effet du déphasage de  $\pi$  induit par la présence d’une dislocation. Avec ce défaut, nous obtenons un minimum d’intensité au centre du pic de Bragg. L’asymétrie de la figure de diffraction quant à elle, est liée aux constantes élastique du matériau. Lorsque l’on met des constantes élastiques égales (voir 2.6), le pic de Bragg devient symétrique et il se déforme petit à petit lorsque le rapport des constantes élastiques change (voir 2.6). Pour des constantes élastiques très anisotropes, une tige apparait dans la direction perpendiculaire à la ligne de dislocation.

Dans le cas d’une dislocation partielle dont le vecteur de Burger n’est plus un multiple du paramètre de maille, le déphasage entraîne en plus une faute d’empilement. La simulation du cliché de diffraction montre la présence, en plus du dédoublement du pic, d’une tige due à la faute d’empilement. Cette

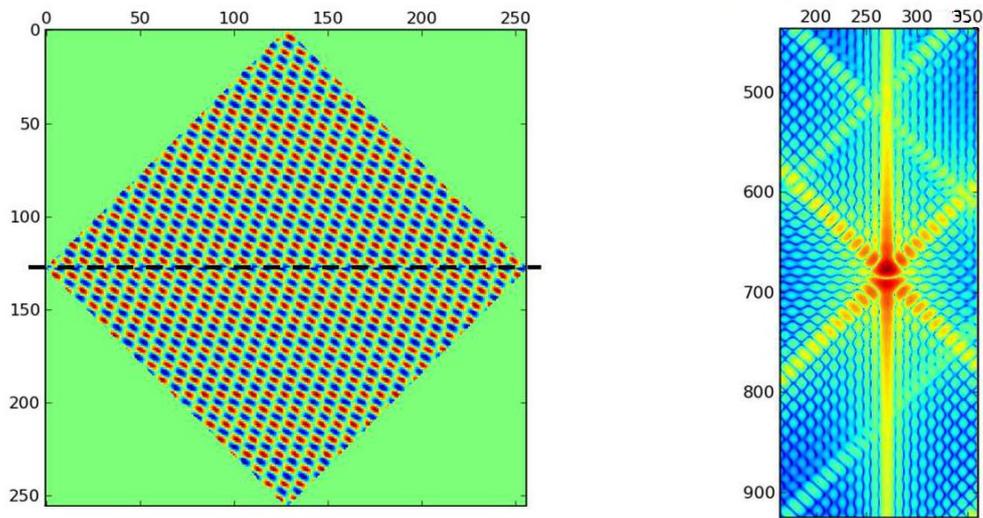


FIGURE 2.7 – Simulation d’un empilement ...ABCABC... avec une faute d’empilement au milieu. Les limites du volume ont été choisies non parallèles à la faute de manière à ne pas masquer les effets de la faute sur le profil de diffraction. La faute introduit un dédoublement du pic de Bragg et l’apparition d’une tige diffuse perpendiculaire au plan de la faute (échelle logarithmique)[1].

tige est perpendiculaire au plan de la faute (voir figure 2.7).

Il est vrai que pour des constantes élastiques très anisotropes, une tige apparait également pour une dislocation parfaite. Mais dans le silicium que nous allons étudier par la suite, les constantes élastiques ont un rapport de 1.5 pour lequel aucune tige n’apparait pour des dislocations parfaites. Nous pourrions donc différencier ces deux types de dislocations par la présence ou l’absence de la tige due à la faute d’empilement.

Nous voyons donc qu’un faisceau spatialement cohérent est très intéressant pour sonder les défauts dans la matière et notamment remonter au champ de contrainte engendré par de tels défauts. Appliquons donc cela à l’étude d’un échantillon de silicium comportant des dislocations.

## 2.4 Boucle de dislocation dans le Silicium.

### 2.4.1 Présentation de l'échantillon.

Nous avons étudié un échantillon de silicium pur mono-cristallin présentant des dislocations en très faible densité. Le silicium est connu pour sa très grande qualité cristalline. Des mono-cristaux de grandes tailles peuvent être fabriqués avec une pureté de plus de 99,99999%. Les atomes sont arrangés suivant une structure diamant, qui est une structure cubique à faces centrées avec 4 sites tétraédriques occupés. Son paramètre de maille vaut 5,43071 Å à température et pression ambiantes. Ses propriétés semi-conductrices en font un élément très largement utilisé en électronique. Cependant, l'échantillon que nous avons étudié a été fabriqué délibérément de manière à ce qu'il contienne des défauts. Le cristal utilisé a été obtenu par la méthode de croissance de Czochralski, et contient des impuretés d'oxygène à une concentration de  $10^{18}$  *atomes/cm*<sup>3</sup>. L'échantillon a ensuite été recuit pendant 35 heures à 1373 K, ce qui crée des précipités de *SiOx* et engendre des défauts tels que des fautes d'empilements dans la direction de l'empilement ...ABCABC..., c'est-à-dire la direction  $\langle 111 \rangle$ , bordées par des boucles de dislocation de Frank qui sont des boucles partielles de dislocation de vecteur de Burger  $\frac{1}{3} \langle 111 \rangle$ . Les fautes d'empilements peuvent être intrinsèques (un plan manquant) ou extrinsèques (un plan supplémentaire). Par ailleurs, outre ces boucles de dislocation partielles, on trouve des boucles parfaites de dislocation, dites prismatiques, de forme hexagonale, dont le vecteur de Burger est orienté suivant une direction  $\langle 110 \rangle$ . Ces boucles parfaites peuvent se dissocier en deux dislocations partielles dites dislocations de Shockley de vecteur de Burger  $\frac{1}{6} [121]$  et  $\frac{1}{6} [\bar{2}1\bar{1}]$ . Ainsi les deux dislocations de Shockley entourent un ruban de fautes d'empilements qui s'enroulent pour former la boucle de dislocation [11].

### 2.4.2 Les dislocations en topographie.

Lors d'une expérience de diffraction cohérente de rayons X, le faisceau cohérent a une largeur de 10  $\mu m$ . Il est donc difficile de localiser une dislocation isolée en sondant le cristal. Pour cela, avant d'étudier les boucles de dislocation en cohérent, nous les avons localisées grâce à une expérience de topographie X.

Cette technique est très efficace pour visualiser les boucles de dislocation dans un échantillon. Elle consiste à utiliser un faisceau le plus parallèle possible, et à analyser une tache de Bragg. Le plus souvent, cela se fait en transmission

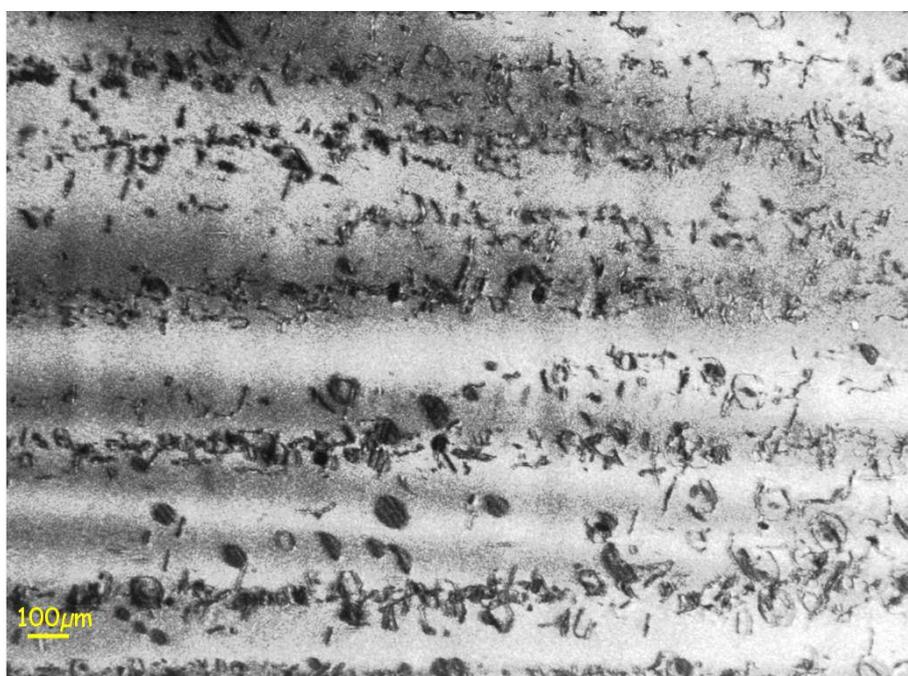


FIGURE 2.8 – Image de topographie X de l'échantillon de Silicium, mesuré sur le Bragg (220) sur la ligne ID09 de l'ESRF (G. Roland communication privée).

mais un montage en réflexion est tout à fait possible. La tache de Bragg est alors une image du volume sondé, où les boucles de dislocation apparaissent avec un contraste différent des zones parfaitement ordonnées.

Dans un montage en transmission, les régions ordonnées sont tellement parfaites que la diffraction se fait de manière dynamique. Dans ce cas, la longueur de pénétration dans le matériau est plus petite que celle obtenue dans le cas de la diffraction en régime cinématique. Elle vaut en effet environ  $5 \mu\text{m}$  en régime dynamique contre  $50 \mu\text{m}$  en régime cinématique. Les régions parfaitement ordonnées apparaissent donc sur l'image de topographie avec une faible intensité.

Lorsque l'on se trouve à proximité d'une ligne de dislocation, les plans atomiques sont déformés et on ne se situe plus en régime dynamique mais en régime cinématique. La longueur de pénétration devient plus grande, et cette région fait apparaître une zone de surintensité sur le pic de Bragg.

Les boucles partielles apparaissent avec un contraste de surintensité (noir sur un film photographique) alors que les boucles parfaites ont un contraste identique à celui des régions parfaitement ordonnées, c'est-à-dire un contraste de moindre intensité (blanc sur un film photographique). Dans ce dernier cas, seules les zones situées à proximité immédiate de la ligne de dislocation apparaissent en noir. Par ailleurs, les boucles de dislocation apparaissent en topographie à condition que le vecteur de Burger  $\vec{b}$  ne soit pas perpendiculaire au vecteur de diffusion  $\vec{q}$  de la tache de Bragg analysée. La figure 2.8 est une image en topographie X en transmission de l'échantillon étudié. On reconnaît les boucles de dislocation partielles et les boucles prismatiques. Certaines boucles sont débouchantes en surface, on les repère facilement à leur forme en demi-disque. On voit également que la concentration en défauts n'est pas complètement homogène mais que des lignes de plus grande concentration apparaissent. Grâce aux images de topographie faite in-situ nous avons pu sélectionner une boucle de dislocation isolée et fermer les fentes sur cette ligne pour rendre le faisceau cohérent.

### 2.4.3 Utilisation de la cohérence.

Le but de cette expérience est de coupler la topographie X et la diffraction cohérente sur le même instrument en jouant sur les propriétés de propagation des ondes décrites dans le chapitre précédent.

Les expériences suivantes ont été effectuées avec l'échantillon de silicium présenté précédemment sur la figure 2.8 et monté sur le diffractomètre six cercles de la ligne Cristal de Soleil. Nous avons utilisé un faisceau de longueur d'onde  $\lambda = 1.7462 \text{ \AA}$  ( $7.1 \text{ keV}$ ) généré par un ondulateur U20 et monochroma-

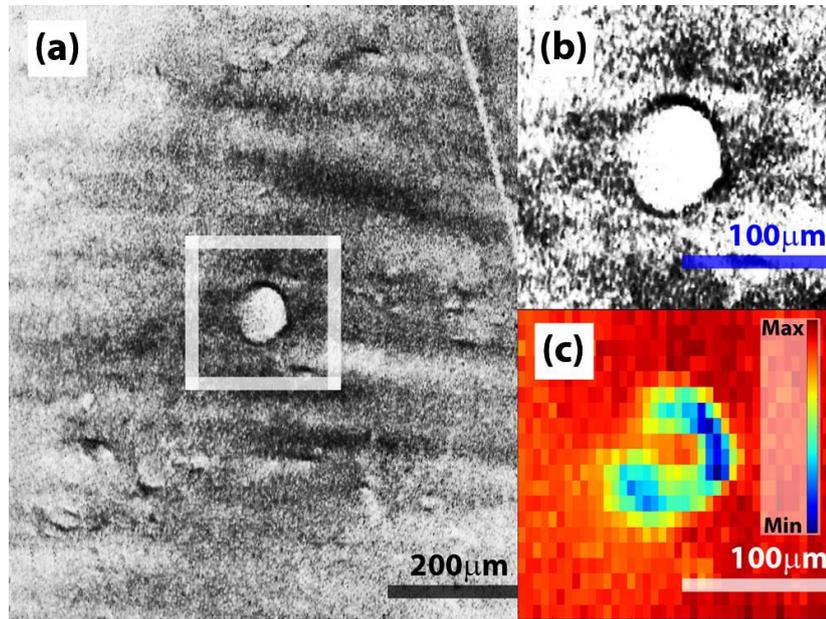


FIGURE 2.9 – Images de topographie en réflexion sur le Bragg (220). (a) Vue large de la dislocation puis en (b) zoom sur la dislocation isolée de l’image (a). Ces deux images ont été faites avec un film photographique. (c) Même dislocation sondée avec un détecteur ponctuel translaté à différentes positions [12]. Mesures effectuées sur la ligne Cristal de Soleil.

tisé par un double cristal de silicium (111). Pour obtenir un faisceau cohérent nous avons utilisé deux jeux de fentes. Les fentes sources ont été fermées à  $200 \times 200 \mu\text{m}^2$  et sont situées à  $13 \text{ m}$  des fentes échantillon qui ont été fermées soit à  $7 \times 7 \mu\text{m}^2$  soit à  $5 \times 5 \mu\text{m}^2$ . Nous pouvons ainsi estimer, grâce à la formule (1.32), une longueur de cohérence spatiale d’environ  $10 \mu\text{m}$  au niveau des fentes échantillon. Nous avons donc sélectionné un faisceau entièrement cohérent. Afin de repérer les boucles de dislocation, nous devons alterner les conditions de topographie X avec les conditions de cohérence. Pour pouvoir faire de la topographie, il faut un faisceau parallèle. Il suffit donc d’ouvrir les fentes échantillon pour laisser le faisceau parallèle se propager. Ensuite, pour passer en condition de diffraction cohérente, il suffit de refermer les fentes échantillon. Les images de topographie X et de cohérence ont été prises sur la réflexion de Bragg (220).

Les premières images de topographie X ont été effectuées avec des films photographiques qui ont été développés pendant l’expérience. Nous avons dans un premier temps imagé tout l’échantillon (voir figure 2.8) puis nous avons sélectionné une boucle de dislocation isolée (voir figure 2.9). Il ne reste

plus qu'à fermer les fentes à  $5 \times 5 \mu m^2$  pour effectuer de la diffraction dans le régime de Fraunhofer.

L'image du pic de Bragg est présentée sur la figure 2.10 a). On voit clairement le dédoublement, signe de la présence d'un défaut de phase lié à la ligne de dislocation. Les franges présentes dans la direction horizontale sont liées à la diffraction par les fentes échantillon. Nous observons également une tige dans une direction correspondant à la projection de la direction  $\langle 1\bar{1}1 \rangle$  sur le plan de la caméra. Nous avons vu, grâce aux simulations précédentes, qu'une tige apparaît dans le cas de constantes de forces très asymétriques ou lors de la présence d'une faute d'empilement. Dans le silicium, le rapport des constantes élastiques est de 1.5 et ne peut expliquer la présence d'une tige. On en déduit que cette tige est liée à une faute d'empilement présente dans le plan ( $\langle 1\bar{1}1 \rangle$ ). On peut à ce stade affirmer que la boucle de dislocation étudiée est soit une dislocation partielle de Frank soit une dislocation parfaite dissociée en deux partielles de Shokley. La différence entre les deux se fait par la présence d'une faute d'empilement à l'intérieur de la boucle pour une dislocation de Frank, alors qu'une boucle formée de dislocations de Shokley présente une faute d'empilement seulement au bord de la boucle entre les deux dislocations partielles dissociées qui forment un ruban de faute d'empilement [11]. Nous avons donc regardé l'intérieur de la boucle de dislocation. Nous voyons le résultat sur la figure 2.11 sur laquelle aucune tige n'est visible. Ainsi, la tige liée à la faute d'empilement n'est présente qu'au niveau des lignes de dislocation, on peut donc conclure que nous sommes en présence d'une dislocation parfaite  $\frac{1}{2} \langle \bar{1}\bar{1}0 \rangle$  dissociée en deux dislocations partielles de vecteurs de Burger  $\frac{1}{6} \langle \bar{1}\bar{2}1 \rangle$  et  $\frac{1}{6} \langle \bar{2}\bar{1}1 \rangle$  qui se présente dans l'espace réel comme indiqué sur la figure 2.10 b). Il est intéressant de souligner que nous observons, après diffraction par le silicium, des franges liées à la diffraction des fentes échantillons, mais seulement dans la direction horizontale et pas dans la direction verticale. Pour expliquer ce phénomène, il faut noter que la première frange arrive avec une divergence de 2 mdeg. Elle reste donc visible puisque la demi-largeur de la rocking curve est de 3 mdeg. Par contre la deuxième frange arrivant avec un angle de 3.5 mdeg, elle ne passe pas dans la rocking curve et n'est donc plus visible. Horizontalement, la divergence correspond à une rotation de l'échantillon dont l'extension angulaire est bien plus large. Ceci qui explique la présence d'ordres élevés dans cette direction.

La cohérence apporte de nombreux avantages dans l'imagerie des défauts de phase dans les cristaux. Comparé à la topographie, nous sommes capable de sonder plus précisément une boucle de dislocation et notamment la ligne de dislocation. Ceci nous a permis de différencier une boucle parfaite d'une boucle dissociée en deux partielles.

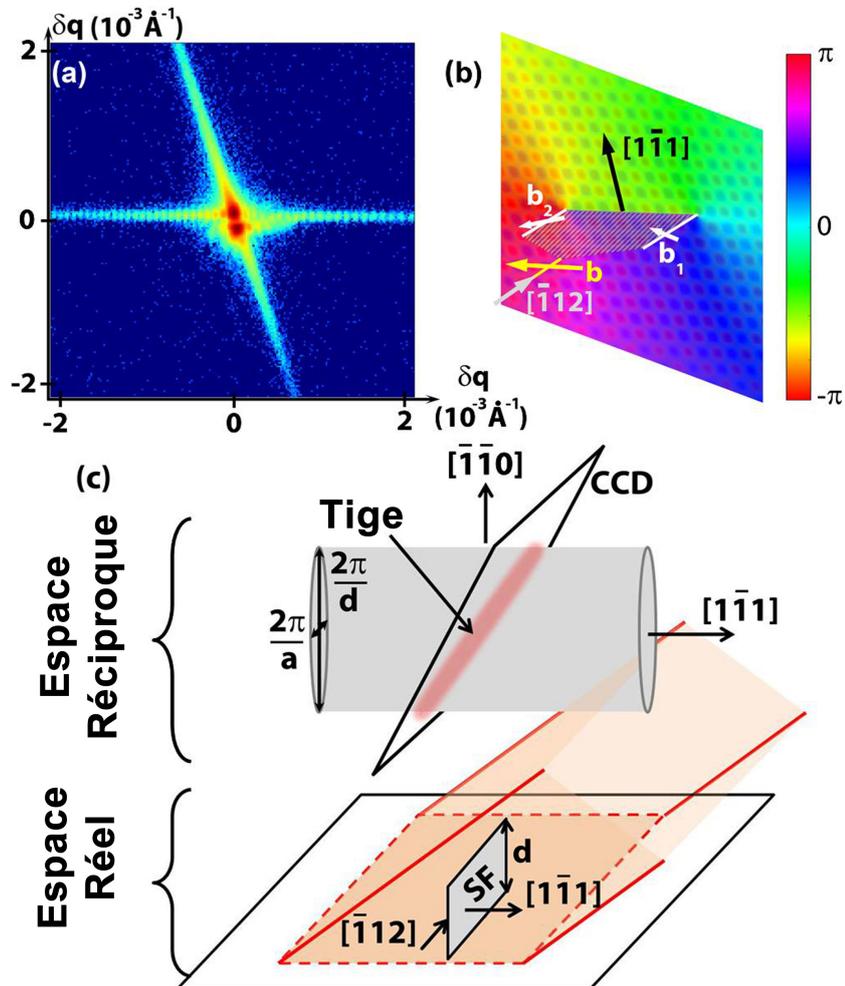


FIGURE 2.10 – (a) Mesure du pic de Bragg (220) en diffraction cohérente des rayons X. Le pic est dédoublé et une tige apparaît dans la direction  $\langle 1\bar{1}1 \rangle$ . Les franges dans la direction horizontale correspondent à la diffraction par les fentes échantillons. (b) Représentation d’une dislocation parfaite de vecteur de Burger  $\mathbf{b} = 1/2 \langle \bar{1}\bar{1}0 \rangle$  en jaune qui est dissociée en deux dislocations partielles de vecteur de Burger  $b_1 = 1/6 \langle \bar{2}\bar{1}1 \rangle$  et  $b_2 = 1/6 \langle \bar{1}\bar{2}\bar{1} \rangle$  en blanc. Le plan hachuré correspond à la faute d’empilement présente entre les deux dislocations. (c) Représentation de la coupe, par la caméra CCD, de la tige liée à la faute d’empilement dans l’espace réciproque, suivi de l’éclairage de la dislocation par le faisceau de rayons X dans l’espace réel [12]. Mesures effectuées sur la ligne Cristal de Soleil.

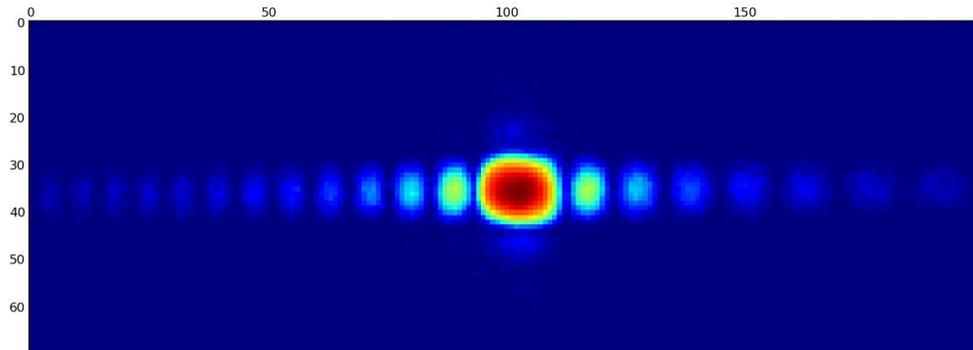


FIGURE 2.11 – Image sur la caméra CCD du pic de Bragg à son maximum au centre de la boucle de dislocation. Les franges d'interférences issues de la diffraction par la fente sont visibles dans la direction horizontale jusqu'à un ordre élevé alors que seule la première frange est visible dans la direction verticale.

Il existe bien entendu des techniques bien plus précises pour sonder des dislocations, telle que la microscopie électronique. Mais l'avantage de la diffraction cohérente des rayons X est de pouvoir sonder les dislocations dans le volume (c.à.d. à quelques micromètre de la surface) et non pas seulement dans des échantillons minces. Un autre avantage est de pouvoir appliquer des contraintes telles que les hautes pressions, les champs magnétiques et les champs électriques, pendant la mesure.

Pour aller plus loin, il serait intéressant de sonder la dynamique des dislocations en essayant, de les faire glisser, soit sous contrainte mécanique soit par chauffage.



# Chapitre 3

## Onde de Densité de Charge sous courant

### Contents

---

<b>3.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>50</b>
<b>3.2</b>	<b>La transition de Peierls</b>	<b>50</b>
3.2.1	Instabilité du gaz d'électron	50
3.2.2	Interaction électron phonon	54
3.2.3	Propriétés de transport	58
<b>3.3</b>	<b><i>NbSe<sub>3</sub></i> sous courant</b>	<b>62</b>
3.3.1	Description du composé <i>NbSe<sub>3</sub></i>	62
3.3.2	Procédure expérimentale.	64
3.3.3	Diffraction cohérente d'une ODC sous champ électrique	67
3.3.4	Interprétation	73
3.3.5	Conclusion	76
<b>3.4</b>	<b>Le Bronze Bleu sous courant.</b>	<b>78</b>
3.4.1	Introduction	78
3.4.2	Description du composé <i>K<sub>0,3</sub>MoO<sub>3</sub></i>	79
3.4.3	Mesures de transport	82
3.4.4	Discussion	88

---

## 3.1 Introduction

Les composés quasi-unidimensionnels présentant une transition de phase donnant lieu à une Onde de Densité de Charge ont été énormément étudiés dans les années 80. Historiquement les ODC ont été invoqué, notamment par Fröhlich, comme une explication de la supraconductivité [13]. Nous savons aujourd'hui qu'il n'en n'est rien, mais on parle parfois de supraconductivité de Fröhlich pour désigner le glissement d'une ODC.

Leur basse dimensionnalité en fait un atout pour étudier les propriétés de transport à une dimension. De plus les propriétés de transport non linéaire associées aux ODC sont elles aussi très intéressantes. Le début de ce chapitre est consacré à décrire de manière succincte la transition de phase de Peierls accompagné de l'établissement d'une ODC et ensuite expliquer les propriétés de transport de cet objet. Je présenterai ensuite deux expériences que j'ai effectuées sur des composés à ODC.

La première concerne le composé  $NbSe_3$ . Dans cette expérience nous avons mesuré, par diffraction cohérente des rayons X, le satellite associé à l'ODC en fonction d'un courant appliqué au matériau. Ceci nous a permis d'observer le rôle des défauts dans la mise en mouvement d'une ODC.

La deuxième expérience s'apparente plus à un projet toujours en cours sur le composé  $K_{0.3}MoO_3$  appelé également bronze bleu. Le but est de coupler des mesures de transport (mesures de bruit en courant), qui sondent les électrons condensés dans l'ODC, à des mesures de diffraction X, qui sondent les atomes du réseau et ainsi de corrélérer le mouvement de ces deux objets.

## 3.2 La transition de Peierls

### 3.2.1 Instabilité du gaz d'électron

La transition de Peierls est une transition de phase électronique liée à l'instabilité d'un gaz d'électron dans un cristal à une dimension. Il est donc intéressant de commencer par rappeler les propriétés d'un gaz d'électron unidimensionnel.

La stabilité de ce gaz d'électron est donnée par la susceptibilité électrique qui est la réponse à une excitation par un potentiel électrique. La théorie de la réponse linéaire nous apprend que cette susceptibilité peut s'écrire sous la forme suivante :

$$\chi(q) = \sum_k \frac{f_k - f_{k+q}}{\epsilon_k - \epsilon_{k+q}} \quad (3.1)$$

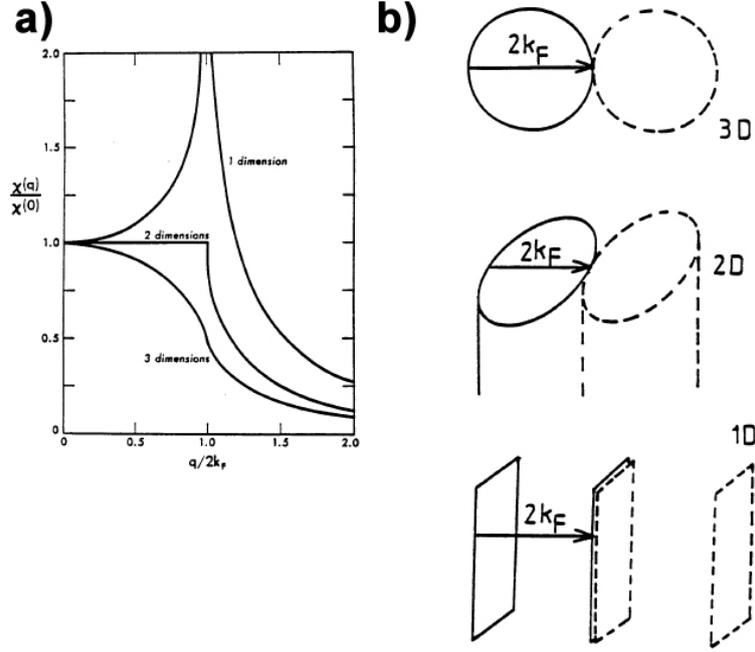


FIGURE 3.1 – La figure a) représente la susceptibilité en fonction du vecteur d'onde à température nulle et pour différentes dimensions. La figure b) représente les surfaces de Fermi à 1D, 2D et 3D [14].

où  $\epsilon_k$  est l'énergie des électrons de vecteur d'onde  $k$  et  $f_k = f(\epsilon_k, T)$  est la fonction de Fermi-Dirac. Cette équation connue sous le nom de fonction de Lindhardt se simplifie en considérant le cas 1D :

$$\chi(q) = -e^2 n(\epsilon_F) \ln\left(\frac{q + 2k_F}{q - 2k_F}\right) \quad (3.2)$$

où  $n(\epsilon_F)$  est la densité d'électron au niveau de Fermi qui vaut  $n(\epsilon_F) = \frac{1}{\pi \hbar v_F}$ . Cette susceptibilité diverge pour un vecteur d'onde  $q = 2k_F$  (voir figure 3.1 a)). À deux dimensions, la divergence n'est plus qu'une simple singularité alors qu'à trois dimensions, il reste seulement un point d'inflexion.

On favorisera donc une transition de phase pour un système de basse dimensionnalité. Cette instabilité, pour  $q = 2k_F$ , reflète les propriétés de symétrie de la surface de Fermi. La surface de Fermi d'une chaîne 1D est composée de deux plans en  $\pm k_F$ . Ces deux plans peuvent s'emboîter parfaitement lorsque l'on translate la surface de Fermi de  $2k_F$  (voir figure 3.1 b)). En revanche à 2D, la forme cylindrique de la surface de Fermi permet un emboîtement seulement sur une ligne et sur un seul point à 3D. Le nombre d'états couplés par un potentiel de période  $2k_F$  est donc bien plus important

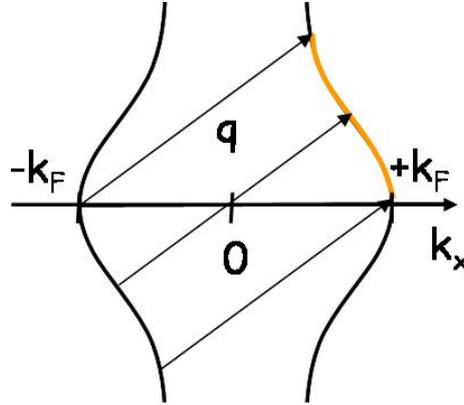


FIGURE 3.2 – Surface de Fermi à 2 dimensions,  $k_x$  est la direction horizontale et  $k_y$  la direction verticale, pour un gaz d'électron quasi-unidimensionnel. Les flèches représentent la direction de nesting la plus favorable que l'on notera  $k_F$  [1].

à 1D qu'à 2 ou 3D. Cette propriété de symétrie de la surface de Fermi est appelé "nesting" en anglais.

La divergence de la susceptibilité est donc vraie seulement à 1D. En général les matériaux ne sont pas purement 1D mais le recouvrement des orbitales électroniques peut être suffisamment asymétrique pour considérer le gaz d'électron comme délocalisé seulement dans une direction et donc quasi-unidimensionnel. La surface de Fermi s'en trouve donc légèrement modifiée. On obtient ainsi une surface de Fermi donnée en figure 3.2. Ici le nesting reste important et on peut recalculer la susceptibilité qui peut s'écrire pour un vecteur d'onde  $q = 2k_F$  en fonction de la température comme suit :

$$\chi(2k_F) = -e^2 n(\epsilon_F) \ln\left(\frac{1.14\epsilon_F}{k_B T}\right) \quad (3.3)$$

On obtient ainsi un maximum de la susceptibilité à  $2k_F$  pour toute température comme on peut le voir sur la figure 3.3. Ce maximum diverge de manière logarithmique lorsqu'on approche de la température nulle.

Comme nous allons le voir par la suite, la température de transition sera atteinte lorsque la valeur de la susceptibilité sera suffisante pour favoriser une distorsion du réseau cristallin. Pour aller plus loin, il faut donc étudier les excitations du réseau.

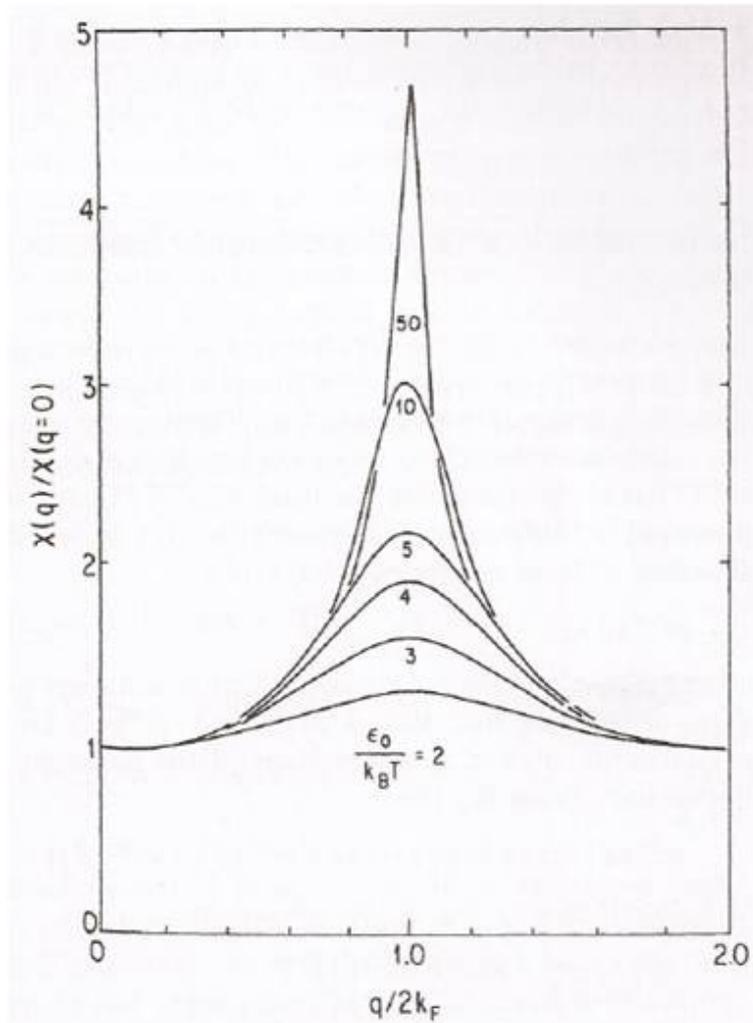


FIGURE 3.3 – Susceptibilité autour de  $2k_F$  dans le cas quasi-unidimensionnel représentée pour plusieurs valeurs de températures [15].

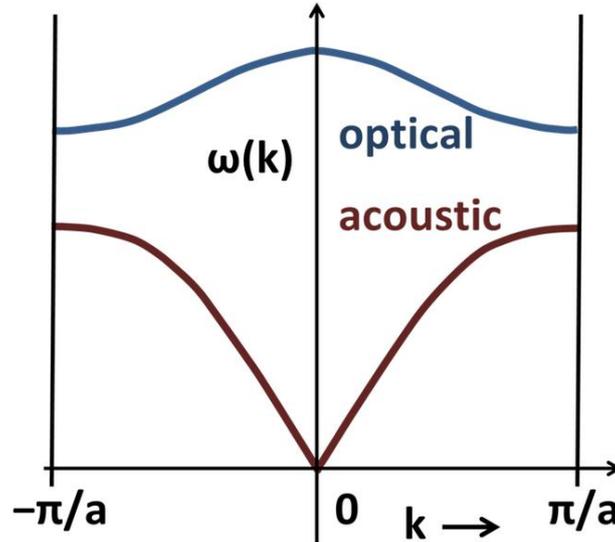


FIGURE 3.4 – Relation de dispersion des phonons pour un cristal unidimensionnel de paramètre de maille  $a$  et comportant plus d'un atome par maille. On a représenté ici seulement une branche acoustique et une optique dans la première zone de Brillouin.

### 3.2.2 Interaction électron phonon

La relation de dispersion des phonons comporte deux types de branches. Les branches de phonons optiques de haute énergie et les branches acoustiques qui s'annulent en centre de zone (voir figure 3.4). Ces vibrations du réseau cristallin peuvent interagir avec le gaz d'électron décrit plus haut. En prenant en compte cette interaction électron-phonon, on peut écrire l'Hamiltonien qui décrit le mieux notre système [16] :

$$H = \sum_k \varepsilon_k a_k^+ a_k + \sum_q \hbar \omega_q (b_{-q}^+ + b_q) + g \sum_{k,q} a_{k+q}^+ a_k (b_q^+ + b_q) \quad (3.4)$$

où  $g$  est la constante de couplage électron-phonon. Le premier terme correspond au gaz d'électron libre. Le deuxième correspond aux excitations de phonon du réseau hôte et le dernier terme est l'interaction entre électrons et phonons. Cet Hamiltonien est appelé Hamiltonien de Fröhlich. Avant de diagonaliser cet Hamiltonien, il est intéressant d'examiner le changement introduit par l'interaction électron phonon sur l'équation du mouvement des phonons donné par :

$$\ddot{Q}_q = -\frac{1}{\hbar^2} [[Q_q, H], H] \quad (3.5)$$

où  $Q_q$  est la coordonnée normale du phonon de vecteur d'onde  $q$ . Dans le cadre d'une approximation de champ moyen, cette équation du mouvement peut être réécrite sous la forme :

$$\begin{aligned} \ddot{Q}_q &= -\omega_{ren,q}^2 Q_q \\ \omega_{ren,q}^2 &= \omega_q^2 + \frac{2g^2\omega_q}{\hbar} \chi(q, T) \end{aligned} \quad (3.6)$$

L'équation 3.6 nous donne la nouvelle relation de dispersion des phonons modifiée par la présence d'interactions électron-phonon. La susceptibilité du gaz d'électron étant divergente pour  $q = 2k_F$ ,  $\omega_{ren,q}^2$  sera énormément modifié autour du vecteur d'onde de Fermi. En réécrivant cette relation de dispersion en  $2k_F$  on trouve :

$$\omega_{ren,2k_F}^2 = \omega_{2k_F}^2 - \frac{2g^2n(\epsilon_F)\omega_{2k_F}}{\hbar} \ln\left(\frac{1.14\epsilon_F}{k_B T}\right) \quad (3.7)$$

A cause du couplage électron-phonon, la susceptibilité du gaz d'électron intervient dans la relation de dispersion des phonons. Or nous avons vu que cette susceptibilité diverge dans le cas quasi-unidimensionnel lorsqu'on abaisse la température. Ceci entraîne un amollissement d'un mode de phonon pour un vecteur d'onde  $q = 2k_F$  appelée anomalie de Kohn. Cette anomalie est représentée en figure 3.5. On peut ainsi définir une température de transition de Peierls en champ moyen qui est atteinte lorsque  $\omega_{ren} = 0$ , ce qui nous donne :

$$k_B T_P^{MF} = 1.14\epsilon_0 e^{-\frac{1}{\lambda}} \quad (3.8)$$

où  $\lambda = \frac{g^2n(\epsilon_F)}{\hbar\omega_{2k_F}}$  correspond à la constante de couplage électron phonon adimensionnée. L'annulation de la fréquence de phonon correspond à une distorsion statique du réseau cristallin, le taux d'occupation des modes de phonons  $\pm 2k_F$  devient stable et macroscopique. On peut ainsi définir le paramètre d'ordre de la transition par :

$$\Delta = |\Delta| e^{i\phi} = g(\langle b_{2k_F} \rangle + \langle b_{-2k_F}^+ \rangle) \quad (3.9)$$

Ce paramètre d'ordre renseigne sur le taux d'occupation des phonons qui doit être nul en moyenne dans le cas où le réseau n'est pas distordu (autant de création que d'annihilation de phonon). En cas de distorsion, le taux d'occupation est non nul et le paramètre d'ordre augmente.

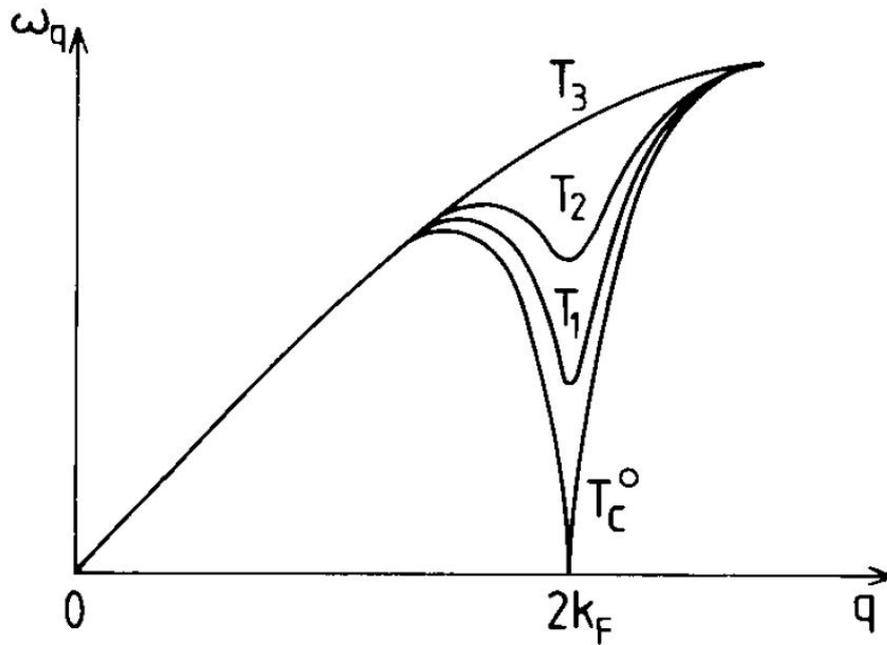


FIGURE 3.5 – Branche acoustique de la relation de dispersion des phonons pour différentes températures. Le couplage électron-phonon entraîne un amollissement du mode de phonon à  $2k_F$  que l'on appelle anomalie de Kohn et qui entraîne une distorsion du réseau [17].

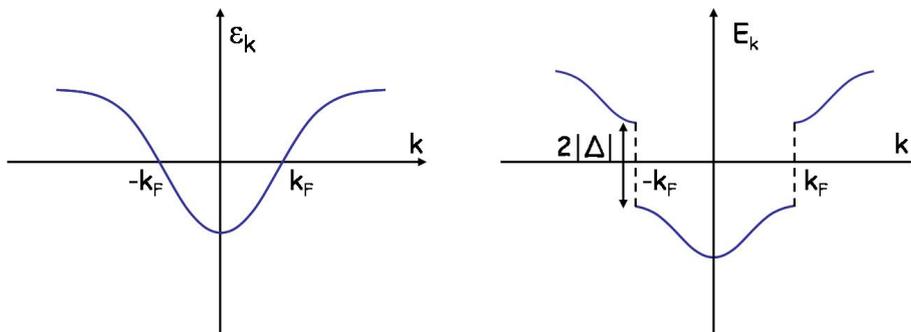


FIGURE 3.6 – Ouverture d'un gap au passage de la transition de Peierls [1].

Revenons maintenant à l'Hamiltonien de Fröhlich 3.4. Dans l'approximation de champ moyen cet Hamiltonien s'écrit [14] :

$$h = \sum_k \varepsilon_k a_k^+ a_k + 2g \sum_k [a_{k+2k_F}^+ a_k \langle b_{-2k_F}^+ \rangle + a_{k-2k_F}^+ a_k \langle b_{-2k_F} \rangle] + 2\hbar\omega_{2k_F} \langle b_{2k_F} \rangle^2 \quad (3.10)$$

On peut, à partir de là, diagonaliser cette Hamiltonien afin d'en extraire la relation de dispersion des électrons en dessous de la température de transition. On trouve ainsi la relation :

$$E_k = \varepsilon_F + \text{sign}(k - k_F) [\hbar^2 v_F^2 (k - k_F)^2 + \Delta^2]^{1/2} \quad (3.11)$$

La distorsion du réseau s'accompagne donc de l'ouverture d'un gap au niveau de Fermi. Le matériau devient donc isolant ou semi-conducteur. La minimisation de l'énergie totale du système fixe la valeur  $\Delta$  du gap.

$$\Delta = 2\varepsilon_F e^{-\frac{1}{\lambda}} \quad (3.12)$$

En comparant la valeur du gap à celle de la température de transition on en déduit une relation analogue à la relation BCS dans les supraconducteurs :

$$2\Delta = 3.52 k_B T_P^{MF} \quad (3.13)$$

L'ouverture du gap au niveau de Fermi tend à réduire l'énergie des électrons qui vont suivre la distorsion du réseau cristallin. Ainsi cette transition s'accompagne d'une modulation de la densité de charge que l'on appelle Onde de Densité de Charge (ODC). Cette modulation est donnée par la relation :

$$\rho = \rho_0 [1 + \frac{\Delta}{\hbar v_F k_F \lambda} \cos(2k_F x + \phi)] \quad (3.14)$$

En résumé, la transition de Peierls est une transition électronique de type métal/isolant entraînant une distorsion du réseau cristallin et l'ouverture d'un gap au niveau de Fermi dans la relation de dispersion du gaz d'électron. Le cout d'énergie élastique de la déformation du réseau est ainsi compensé par le gain d'énergie électronique grâce à l'abaissement des niveaux d'énergie proches du niveau de Fermi lors de l'ouverture du gap. Cette transition donne naissance à une modulation de la densité de charge appelé ODC (voir figure 3.7). Le vecteur d'onde de l'ODC ainsi créé est, dans certain cas, incommensurable avec la période initiale du réseau. Ceci, comme nous le verrons plus tard, entraîne des propriétés de transport remarquables.

Le calcul de l'état fondamental mené ici pose des problèmes de stabilité. Nous avons utilisé une approximation de champ moyen qui, nous le savons, prédit

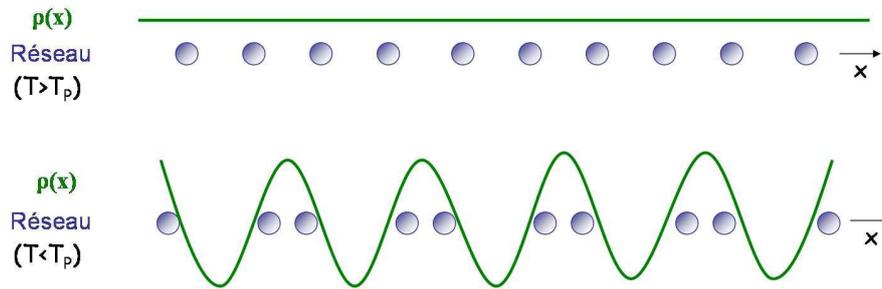


FIGURE 3.7 – Modulation de la densité électronique accompagnant la distorsion du réseau. Ici la distorsion est accentuée pour être visible mais cette distorsion est très faible devant le paramètre de maille du réseau. En pratique elle affecte plusieurs atomes de la chaîne et est de l'ordre de  $0.01 \text{ \AA}$ [1].

des transitions de phase à 1D alors que c'est impossible dans un système purement 1D. Dans de tels systèmes les fluctuations sont fortes et empêchent l'établissement d'un ordre à longue portée. Toujours est-il que les ODC ont été observées expérimentalement. Leur existence est liée au couplage entre différentes chaînes qui permet de réduire les fluctuations et ainsi d'augmenter la stabilité du système [18]. L'étude de la stabilité n'est pas réalisée ici, il faut seulement avoir conscience que la température de transition prédite par le champ moyen est plus élevée que les températures de transition réelles [19, 20, 21].

### 3.2.3 Propriétés de transport

Les matériaux à ODC ont été en grande partie étudiés pour leurs propriétés de transport non linéaires uniques. Ces propriétés viennent de l'incommensurabilité de la période de l'ODC avec la période du réseau sous-jacent. Grâce à cette incommensurabilité, toutes les positions de l'ODC par rapport au réseau hôte sont énergétiquement équivalentes. Une translation globale de ce système ne coûte donc pas d'énergie.

Il est difficile de décrire les excitations collectives des ODC de manière microscopique. On utilise en générale une approche de type Ginzbourg-Landau dépendante du temps. La nature complexe du paramètre d'ordre autorise des excitations d'amplitude ou de phase considérées comme découplées dans une première approximation. Dans la limite  $q = 0$ , les modes de phase, appelés phasons, correspondent à une translation du système (voir figure 3.8 a)), entraînant une pulsation  $\omega_\phi = 0$ . Les modes d'amplitude, appelés amplitudons, quant à eux, n'entraînent pas de translation de l'ODC (voir figure 3.8 b)) et nécessitent une énergie non nulle pour être excités. Dans toutes

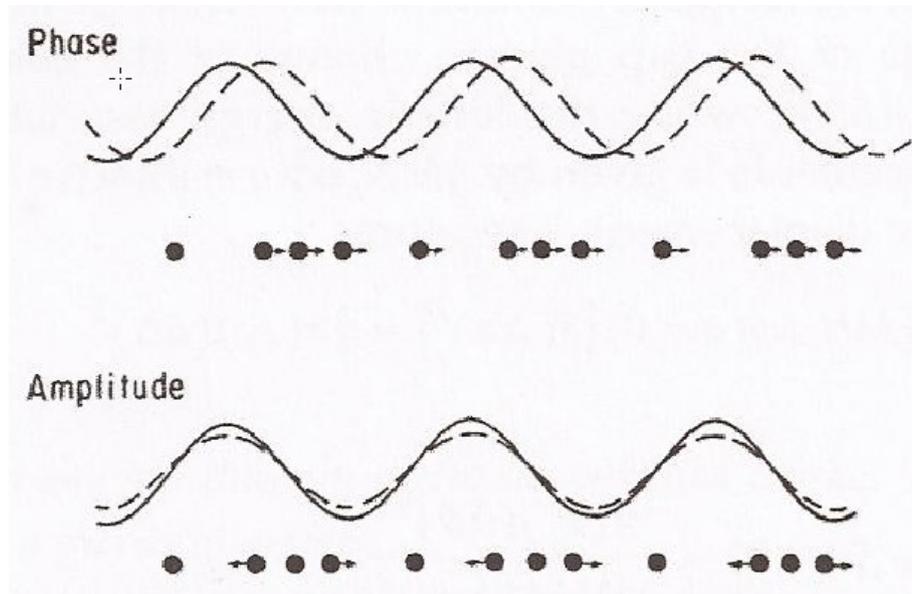


FIGURE 3.8 – Mode d'amplitude et de phase de l'ODC dans la limite  $q = 0$ . La vibration des atomes associée est elle aussi représentée [14].

les expériences menées par la suite, nous n'avons appliqué que des champs électriques continus et nous étudierons seulement les modes de phases entraînant une translation de l'ODC que l'on appelle glissement.

Considérons l'ODC comme un objet rigide que l'on peut décrire par le mouvement de son centre de masse. Les effets des parties sans défaut du réseau cristallin parfait sont moyennés et donnent lieu à une force de friction dynamique créant un amortissement  $\tau$ . L'effet des défauts présents dans le réseau cristallin peut être modélisé par un potentiel qui accroche l'ODC et l'empêche de glisser. Ce potentiel est pris de la forme  $V = A \sin(k_F x)$  à cause de la périodicité intrinsèque de l'ODC. En effet, les défauts tels que les lacunes, sont ponctuels mais sont ressentis à chaque passage d'une période de l'ODC. Leurs effets sur l'ODC sont donc considérés comme périodique. On peut ainsi écrire l'équation du mouvement pour une ODC soumise à un champ électrique [14].

$$\frac{d^2 x}{dt^2} + \frac{1}{\tau} \frac{dx}{dt} + \frac{\omega_0^2}{2k_F} \sin(2k_F x) = \frac{eE}{m^*} \quad (3.15)$$

où  $m^*$  est la masse effective attribuée à l'ODC. Cette équation non linéaire, de type sine Gordon, conduit à différents régimes pour le mouvement de l'ODC qui sont résumés sur la figure 3.9. Nous appellerons le premier cas régime d'accrochage. Dans ce cas, le champ électrique appliqué à l'ODC

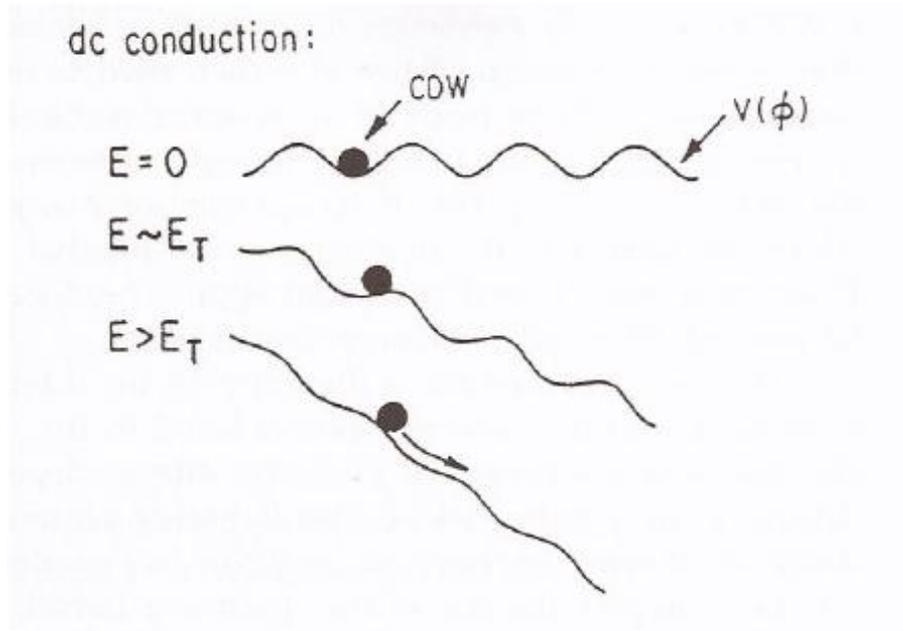


FIGURE 3.9 – Comportement de l’ODC en présence d’un champ électrique [14].

n’est pas suffisamment important pour la mettre en mouvement et elle reste bloquée dans le potentiel créé par les impuretés. Ainsi, l’ODC ne participe pas à la conductivité du matériau. Lorsqu’on augmente le champ électrique, l’ODC sort du potentiel lié aux impuretés et se met à glisser le long du cristal apportant des électrons supplémentaires à la conduction. Ce régime est appelé régime de glissement. Le passage d’un régime à l’autre est défini par le champ seuil  $E_T$  qui est nécessaire pour mettre l’ODC en mouvement.

$$E_T = \frac{m^* \omega_0^2}{2\pi n e} \quad (3.16)$$

Pour des champs électriques importants, le couplage aux impuretés devient négligeable. Dans ce cas, l’ODC se déplace uniformément. Le courant apporté par l’ODC s’écrit alors [22] :

$$j_{ODC} = \frac{n e^2 \tau}{m^*} E \quad (3.17)$$

Dans ce cas, le transport est linéaire, de même que pour un champ inférieur au champ seuil (pour lequel l’ODC ne contribue pas). Par contre, pour des champs électriques intermédiaires, ce système présente des propriétés de transport non linéaire à cause de la dépense en courant de la

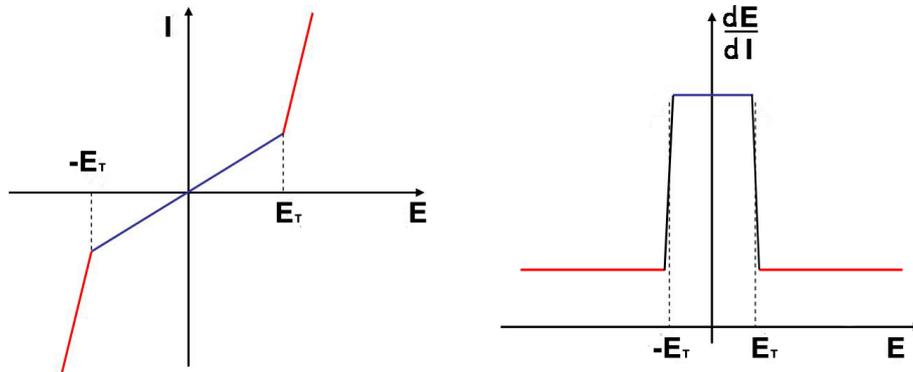


FIGURE 3.10 – Représentation schématique de la caractéristique courant-tension et de la variation de la résistance différentielle en fonction du champ électrique pour  $E < E_T$  et  $E > E_T$ , où  $E_T$  est le champ critique de dépiégeage aux impuretés.

résistivité due aux impuretés. Dans ce cas, l'excès de courant moyenné dans le temps peut s'écrire [14] :

$$\langle j_{ODC} \rangle_t = \frac{ne^2\tau}{m^*} \left[ 1 - \left( \frac{E_T}{E} \right)^2 \right]^{1/2} E \quad (3.18)$$

La figure 3.10 illustre la caractéristique courant-tension typique d'une mesure de transport non-linéaire, ainsi que la résistance différentielle en fonction du champ électrique.

Le courant apporté par l'ODC dans le régime non linéaire est dépendant du temps. La fréquence fondamentale correspond au déplacement de l'ODC d'une période et vaut :

$$f_0 = \frac{\langle j_{ODC} \rangle}{ne\lambda_{ODC}} \quad (3.19)$$

L'interaction avec les défauts rend la dépendance en temps non-sinusoidale entraînant l'apparition de nombreuses harmoniques. On appelle ce "bruit" en courant le "Narrow Band Noise" [23, 24].

Dans ce chapitre, les impuretés ont été traitées de manière macroscopique sans regarder leurs effets locaux sur l'ODC. Ces effets peuvent être nombreux suivant le type de défaut rencontré. Nous reviendront sur ce point à la fin du prochain chapitre afin d'interpréter les résultats expérimentaux obtenus sur le composé  $NbSe_3$ .

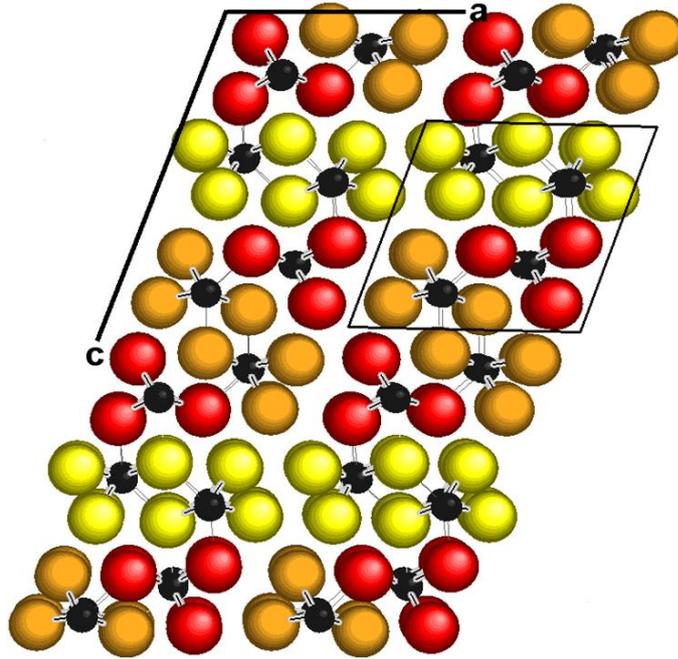


FIGURE 3.11 – Structure cristalline de  $NbSe_3$  dans le plan perpendiculaire aux chaînes. En jaune les chaînes de type I, en orange les chaînes de type II et en rouge les chaînes de type III [25]).

### 3.3 $NbSe_3$ sous courant

#### 3.3.1 Description du composé $NbSe_3$

Le composé  $NbSe_3$  fait partie d'une famille de composés inorganiques, les trichalcogénides de métaux de transitions. Il cristallise en une structure rhomboédrique de groupe d'espace P21/m (voir figure 3.11). Les paramètres de maille, à  $T = 300\text{ K}$  sont les suivants :  $a = 10.006\text{ \AA}$ ,  $b = 3.478\text{ \AA}$ ,  $c = 15.626\text{ \AA}$  avec l'angle  $\beta = 109.3^\circ$ . Ce matériau se compose de chaînes de Niobium enfermées dans des cages de Sélénium, ces chaînes sont suivant la direction  $b$ . On trouve trois types de chaînes, notées I, II et III, qui diffèrent par la taille des liaisons Se-Se. Certaines liaisons sont courtes (type III), d'autres moyennes (type I), et les autres longues (type II). L'interaction entre les différentes chaînes est faible et les électrons sont délocalisés seulement dans la direction  $\vec{b}$ . On peut ainsi considérer ce matériau comme quasi-unidimensionnel.

La surface de Fermi de ce composé présente des effets de nesting importants dus à la forme quasi 1D du matériau. Les propriétés physiques des trois types de chaînes sont différentes. Les chaînes de type I présentent une

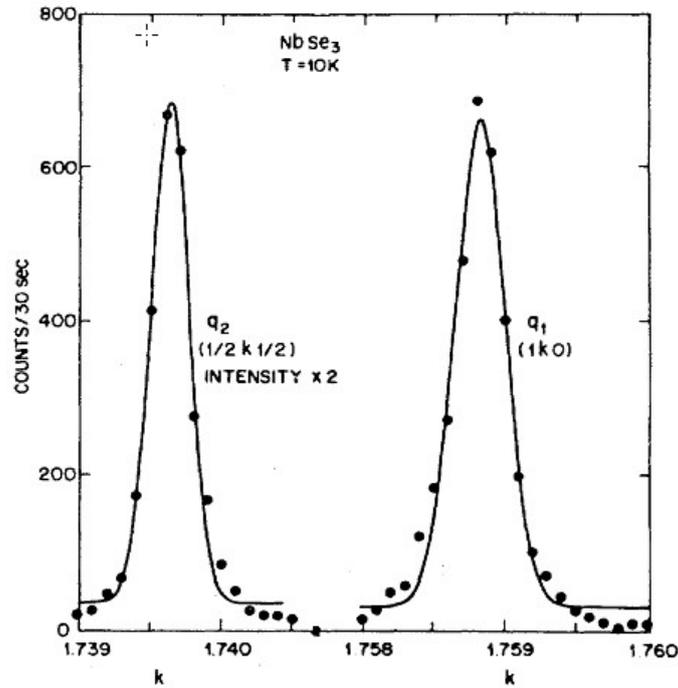


FIGURE 3.12 – Pics de diffractions X associés respectivement aux ODC  $Q_2$  et  $Q_1$  [27].

transition de type Peierls à la température  $T_{p1} = 145K$ . Cette transition donne naissance à une ODC le long des chaînes avec comme vecteur d'onde de la modulation  $Q_1 \simeq (0 \ 0.241 \ 0)$  qui est incommensurable avec le pas du réseau (c'est cette transition que nous étudierons par la suite). Les chaînes de type II présentent elles aussi une transition de type Peierls mais à une température plus faible,  $T_{p2} = 59K$ . La modulation de la charge totale due aux deux transitions est cette fois plus compliquée, le vecteur de la modulation vaut  $Q_2 \simeq (0.5 \ 0.26 \ 0.5)$  lui aussi incommensurable avec le réseau. Les chaînes de type III quant à elles, ne transitent pas. La distorsion atomique entraînée par les deux transitions de Peierls crée de nouvelles périodicités dans le cristal. Cette transition est donc visible en diffraction des rayons X grâce à l'apparition de nouveaux pics de Bragg, appelés satellites, autour des pics de Bragg initiaux. Dans le cas de  $NbSe_3$ , on voit des pics en  $\pm Q_1$  associés à la transition des chaînes de type I ainsi que des pics en  $\pm Q_2$  associés à la transition des chaînes de type II (voir figure 3.12). L'ODC dans ce matériau étant incommensurable avec le pas du réseau hôtes, elle peut être mise en mouvement par l'application d'un champ électrique [26].

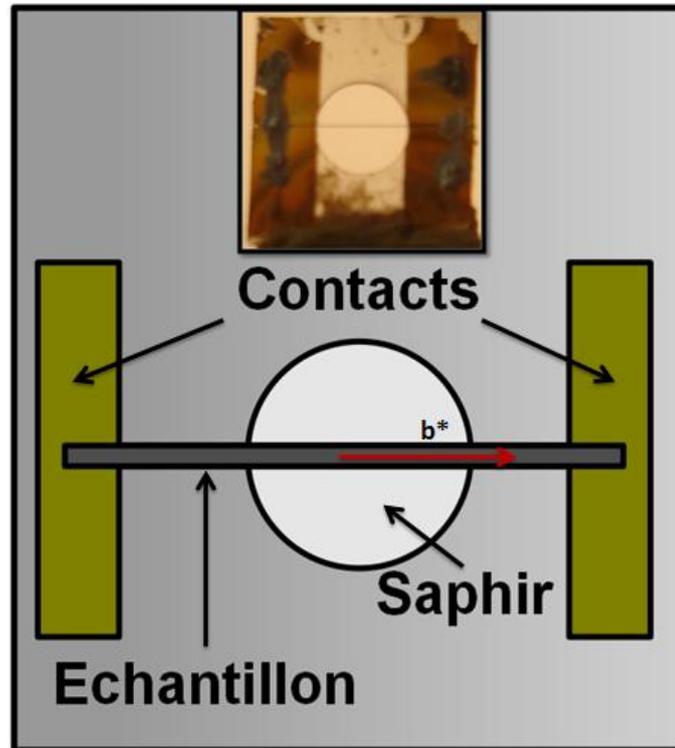


FIGURE 3.13 – Schéma du porte échantillon avec les contacts et le support en saphir. La direction des chaînes qui correspond également à celle du courant appliqué lors de l'expérience, est représentée par la flèche rouge. En encart une photo de l'échantillon de  $NbSe_3$  et du support utilisé pour l'expérience.

### 3.3.2 Procédure expérimentale.

#### Préparation de l'échantillon.

La croissance de cristaux de  $NbSe_3$  se fait sous la forme de rubans allongés dans la direction  $\vec{b}^*$ . Pour cet expérience, nous avons sélectionné des mono-cristaux de grande qualité cristalline d'épaisseur d'environ  $1.8 \mu m$ , de largeur  $50 \mu m$  et de longueur de plus de  $10 mm$ . Ces échantillons ont été collés avec du collodium sur un substrat de saphir pour maintenir un bon contact thermique tout en étant isolés électriquement du support. Ceci permet de faire des mesures de transport à basse température. L'échantillon a été nettoyé à l'aide d'un plasma d'oxygène pour ensuite déposer deux contacts d'or par évaporation et ainsi garantir des contacts de qualité (voir figure 3.13). La préparation de ces échantillons a été effectuée par A. Sinchenko.

Avant de débiter l'expérience de rayons X, nous avons caractérisé notre

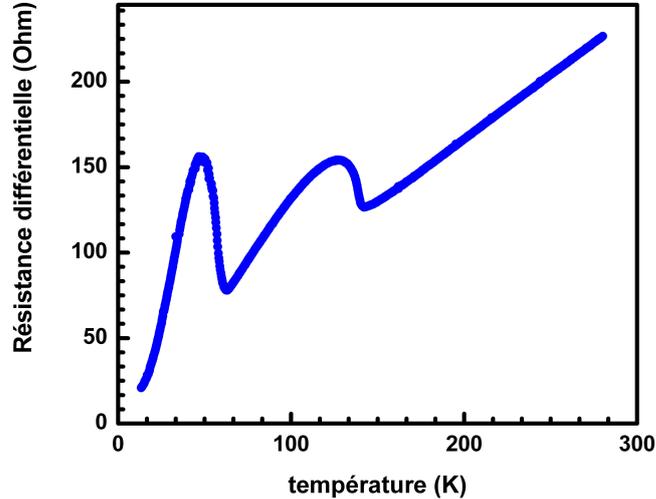


FIGURE 3.14 – Courbe de résistance différentielle en fonction de la température de l'échantillon utilisée lors de l'expérience. Deux anomalies, représentées par les flèche noire, sont présentes à  $T_{p1} = 145 K$  et  $T_{p2} = 59 K$  signe de deux transitions métal isolant.

échantillon grâce à des mesures de résistivité deux points. La transition de Peierls ouvre un gap au niveau de Fermi, cependant une deuxième bande coupe le niveau de Fermi et le matériau reste métallique, on observe donc une anomalie de la résistivité en fonction de la température. Sur la figure 3.14 on mesure les deux remontés de la résistivité dus aux deux transitions de Peierls à  $T_{p1} = 145 K$  et  $T_{p2} = 59 K$  pour notre échantillon utilisé durant l'expérience.

Lorsqu'on applique un courant à ce matériau dans la phase ODC, on observe un glissement de l'ODC. Comme nous l'avons vu précédemment, lors du glissement, les électrons condensés dans l'ODC participent à la conduction. Ceci se traduit par une chute brutale de la résistivité du matériau lorsqu'on dépasse le courant seuil. Nous avons ainsi mesuré la résistivité différentielle en fonction du courant appliqué pour avoir une idée du courant seuil (voir figure 3.15). Nous avons ainsi mesuré un courant seuil de  $I_s = 0.8 mA$  à  $120 K$ . Durant l'expérience de diffraction, nous avons mesuré une nouvelle fois la résistivité différentielle *in-situ* pour confirmer le glissement de l'ODC.

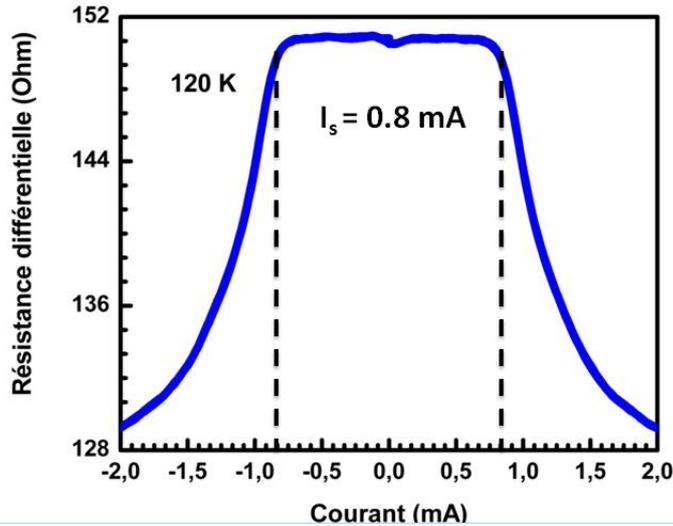


FIGURE 3.15 – Courbe de résistivité différentielle de l'échantillon étudié prise à 120K. On trouve le courant seuil aux alentours de  $I_s = 0.8 \text{ mA}$

### Qualité cristalline et champ seuil

Les mesures de diffraction des rayons X ont été effectuées sur la ligne ID10A de l'ESRF. Lors de cette expérience, nous avons utilisé un faisceau d'énergie  $E = 8.05 \text{ keV}$  généré par un onduleur U25 et un double monochromateur de Si(111). La dispersion en énergie  $\frac{\Delta E}{E} = 1.410^{-4}$  qui est donc la même que sur la ligne Cristal de Soleil, donne une longueur de cohérence temporelle  $\xi_L \simeq 0.9 \mu\text{m}$ , comme nous l'avons vue dans le chapitre 1. Pour obtenir un faisceau cohérent dans la direction transverse nous avons utilisé deux jeux de fentes comme décrit dans la partie 1.3.3. Les fentes sources définissent une taille de source de  $200 \times 200 \mu\text{m}^2$  et sont positionnées à  $D = 12 \text{ m}$  des sources échantillons. Ainsi la cohérence transverse au niveau de l'échantillon est de  $\xi_T = 9.2 \mu\text{m}$ . Les fentes échantillons positionnées à  $20 \text{ cm}$  ont donc été fermées à  $10 \times 10 \mu\text{m}$  afin d'avoir un taux de cohérence spatial d'environ 90%.

Pour simplifier l'étude de l'ODC dans  $NbSe_3$ , nous avons travaillé à une température de  $120 \text{ K}$ . Ainsi nous avons fait transiter uniquement les chaînes de type I (voir figure 3.11) et l'ODC est colinéaire à  $\vec{b}$  de vecteur d'onde  $Q_1$ . Pour le refroidissement, l'échantillon a été placé dans un cryostat à flux d'Hélium. Cette expérience a été effectuée en transmission dans le plan horizontale sur la ligne Troïka à l'ESRF.

Avant d'analyser le satellite, on va voir le pic de Bragg (0 2 0) pour à la fois orienter notre échantillon et pour en sonder l'état cristallin (voir figure 3.16

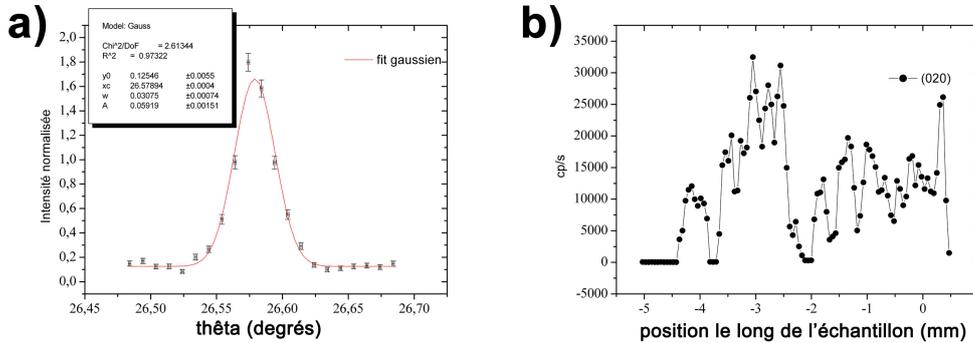


FIGURE 3.16 – a) Réflexion de Bragg (020), les fentes échantillon sont fermées à  $20 \mu m(H) \times 50 \mu m(V)$ . La largeur du pic correspond à la taille du faisceau. b) Scan de l'échantillon en position de Bragg (020). On constate de nombreuses variations d'intensité indiquant un matériau très déformé le long de l'axe  $b^*$ . Pour la suite de l'expérience, nous nous sommes placés loin des contacts et dans une zone où l'intensité du satellite est forte.

a)). En restant sur le maximum du pic de Bragg et en translatant le faisceau le long de l'échantillon, on constate que celui-ci présente une très grande mosaïcité surement due à des contraintes fortes avec le substrat ou avec la colle entrainant une déformation de l'échantillon (voir figure 3.16 b)). Malgré cette mosaïcité, il est possible de trouver une zone mono-domaine. Le pic de Bragg correspondant (voir figure 3.16 a)) possède une largeur à mi-hauteur de  $w = 0.031 \pm 0.001$  degré pour un ajustement du pic par une gaussienne. En comparaison du silicium qui est un des composés avec la meilleure qualité cristalline, la largeur est bien plus grande (quelque millième pour le silicium). Malgré cela on peut trouver des zones du cristal de bonne qualité et contenant peu de défauts.

Après avoir refroidit à  $120 K$ , nous avons mesuré le satellite  $Q_1 = (0 \ 1.241 \ 0)$  associé à l'ODC. L'intensité du satellite comme celle du pic de Bragg dépend fortement de la position. Cependant nous avons trouvé des zones de  $10 \times 10 \mu m^2$  propres où le Bragg et le satellite ont des largeurs similaires. Dans la zones que nous avons sélectionné, le pic du satellite possède une largeur de  $w = 0.025 \pm 0.001$  degrés, comparable à celle du pic de Bragg (voir figure 3.17).

### 3.3.3 Diffraction cohérente d'une ODC sous champ électrique

Nous avons fermé les fentes échantillon à  $10 \times 10 \mu m^2$  pour sélectionner une partie cohérente du faisceau et sonder les défauts de l'ODC. Pour cela

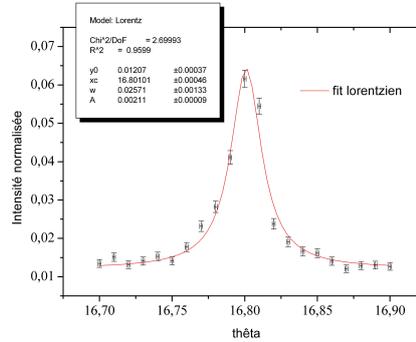


FIGURE 3.17 – Satellite de l’ODC (0 1.25 0). On a un facteur 2 d’atténuation et les fentes sont fermées  $20 \mu m(H) \times 50 \mu m(V)$ .

nous avons utilisé une caméra CCD sensible aux rayons X de taille de pixel  $23 \times 23 \mu m^2$  et situé à une distance de  $D = 1.8 m$ . Dans ce qui suit, toutes les mesures du satellite sont présentées avec une image à 2 dimensions suivie de deux coupes dans les directions verticale et horizontale. La direction verticale correspond à la direction  $\vec{b}^*$  de l’espace réciproque que l’on appellera également la direction longitudinale. Cette direction est parallèle à l’axe des chaînes qui, à  $120 K$ , correspond au vecteur d’onde de l’ODC (à cette température seules les chaînes de type I ont transité). La direction horizontale sonde la direction  $\vec{t}^* = \vec{a}^* + \vec{c}^*$  transverse au vecteur d’onde de l’ODC. Elle correspond à la direction la plus molle du système. Avant la mesure de chaque image une rocking curve a été effectuée afin de se placer au maximum de celle-ci.

### En dessous du courant seuil

Sur la figure 3.18 on peut voir la mesure du satellite pour des courants variant de  $0 mA$  à  $0.8 mA$ . Rappelons que le courant seuil mesuré sur la figure 3.15 est de  $0.8 mA$ . L’ODC est donc statique dans ce régime.

En regardant les images à deux dimensions, on constate que le satellite sans courant est fin et isotrope. Dès qu’un courant est appliqué à l’échantillon, même très faible ( $I = \frac{1}{4} I_S$ ), le satellite devient fortement anisotrope. On constate l’apparition de speckle dans la direction  $\vec{t}^*$  alors que dans la direction  $\vec{b}^*$ , la forme du satellite reste globalement inchangée. Cette différence forte entre les deux directions reflète le caractère unidimensionnel de l’ODC. La présence de nombreuses franges d’interférences est le signe de la présence

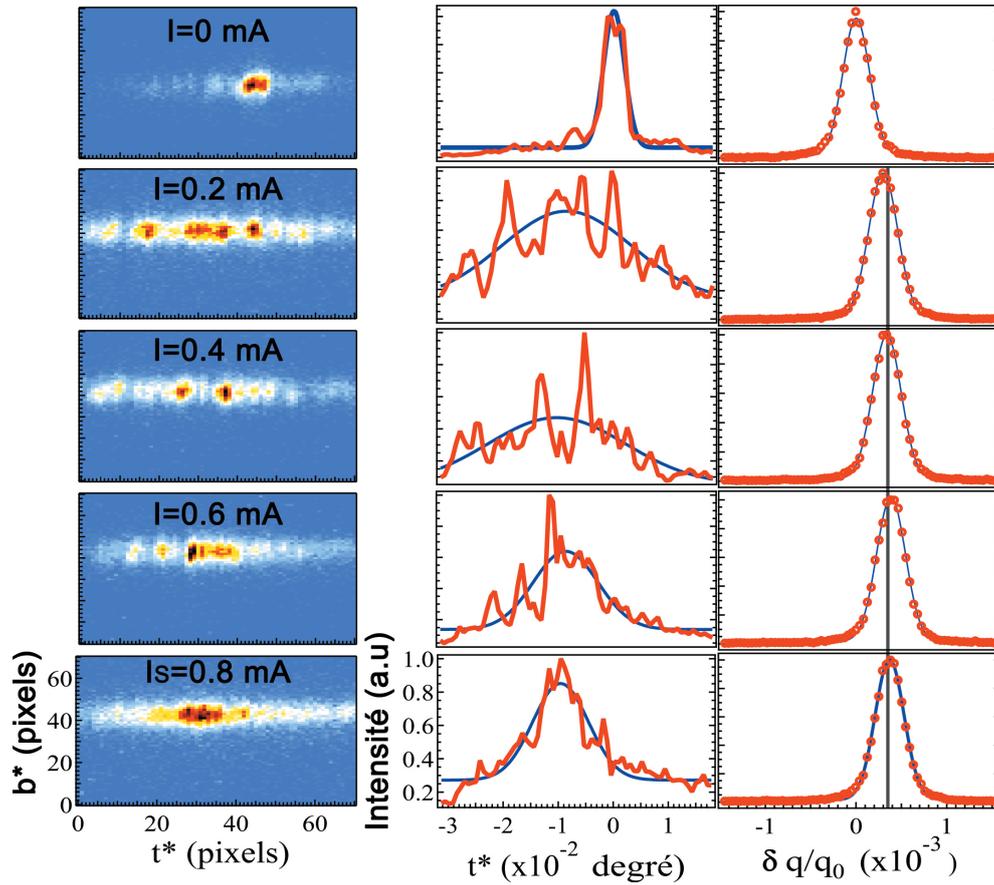


FIGURE 3.18 – Mesures du satellite associé à l'ODC (0 1.241 0) pour des courants variant de 0  $mA$  (en haut) à 0.8  $mA$  (en bas) par pas de 0.2  $mA$ . La colonne de gauche correspond à l'image à 2 dimensions. Les colonnes du centre et de droite correspondent respectivement à une coupe suivant la direction  $\mathbf{b}^*$  et à une coupe suivant la direction  $\mathbf{t}^*$ . Sur les coupes sont présentés des ajustements gaussiens pour obtenir la largeur globale des pics. On constate que cette largeur diminue avec le courant. Les lignes grises correspondent respectivement de gauche à droite aux positions du satellite : au-dessus du courant seuil, sans courant et en-dessous du courant seuil.

de nombreux défauts de phase dans la direction  $\vec{t}^*$ . Les ODC présentent sur les différentes chaînes sont toujours statiques puisque le courant seuil n'est pas atteint, mais elles se sont déphasées les unes par rapport aux autres sous la contrainte imposée par le courant.

Si l'on regarde attentivement les coupes dans la direction  $\vec{t}^*$ , on constate que la largeur, qui a augmenté lorsqu'on a appliqué du courant, diminue progressivement quand on approche du courant seuil, de même que le nombre de franges d'interférence. Ceci est le signe qu'avant de commencer à glisser, l'ODC retrouve sa cohérence de phase.

L'élargissement du pic a déjà été observé par diffraction classique des rayons X mais jamais avec une telle précision (due à notre micro faisceau). De plus, la cohérence nous permet d'affirmer que les défauts responsables de cet élargissement sont des défauts de phase puisque des défauts d'amplitude ne donneraient pas lieu à des franges d'interférence mais seulement à un élargissement du pic.

Ce phénomène de distorsion et de réorganisation avant la mise en mouvement d'un système élastique accroché à des défauts répartis aléatoirement est bien connu et assez général [28, 29]. On appelle cela le phénomène de creep qui est également attendu pour bien d'autres systèmes. Parmi eux, on peut citer les réseaux de vortex dans les supraconducteurs de type II qui peuvent être mis en mouvement [30]. Nous avons également les parois de domaines magnétiques misent en mouvement par l'application d'un courant polarisé en spin. Nous confirmons ici que le phénomène de "creep" est présent dans les ODC.

Regardons maintenant ce qui se passe dans la direction  $\vec{b}^*$  qui, rappelons-le, correspond à l'axe des chaînes. Les coupes présentées sur la figure 3.18 montrent que la forme du satellite dans cette direction reste inchangée. La largeur, contrairement au cas précédente, reste la même lorsqu'on applique du courant. Par contre on constate un décalage du pic de  $\frac{\delta q}{q_0} = 3.5 \cdot 10^{-4}$ . Ce décalage vers les grands vecteurs d'onde correspond à une contraction de l'ODC dans l'espace réel. Pour qu'il y ait une contraction, il faut condenser des électrons dans l'ODC. Or, comme nous le verrons dans la partie théorie 1.7, cela n'est normalement pas possible en dessous du courant seuil.

### Au-dessus du courant seuil

Sur la figure 3.19, on peut voir la mesure du satellite pour des courants variant de 1 mA à 1.8 mA. Rappelons que le courant seuil mesuré sur la figure 3.15 est de 0.8 mA. Par conséquent ces mesures sondent l'ODC pour des courants supérieurs au courant seuil. L'ODC se trouve dans le régime de

glissement.

Comme en dessous du courant seuil, on observe un pic anisotrope, allongé dans la direction  $\vec{t}^*$ . Si l'on regarde attentivement les coupes dans cette direction, on constate que les nombreux pics très fins liés aux franges d'interférence ont disparus. Au contraire, on obtient seulement un pic très large pour  $I = 1 \text{ mA}$  qui se sépare en deux pics de largeurs différentes pour des courants plus élevés. Ces pics sont lisses et larges, ce qui tend à penser qu'ils ne sont pas dus à des déphasages dans la direction  $\vec{t}^*$  entre les différentes ODC. En effet, le courant seuil étant dépassé, l'ODC glisse le long de la direction  $\vec{b}^*$ , ce qui a été confirmé par les mesures *in-situ* de résistivité. L'ODC est donc en mouvement, les déphasages entre les différents domaines de l'ODC vont donc changer continuellement dans le temps de même que l'image de speckle. Sachant que dans le composé  $NbSe_3$ , on estime la fréquence de glissement de l'ODC à quelques MHz. Chaque image présentée ici résulte d'une intégration sur 20 secondes. Nous moyennons donc dans le temps la figure de speckle, ce qui a pour effet de lisser le pic de diffraction. Nous ne sommes donc plus sensibles aux défauts de phase de l'ODC et ces deux pics sont dus à autre chose.

Il est connu qu'en surface, les échantillons de  $NbSe_3$  présentent des marches allongées dans la direction  $\vec{b}^*$ . Ces marches ont des effets importants sur l'ODC [31, 28]. En présence d'un tel défaut de surface le vecteur d'onde de l'ODC va tourner d'un côté de la marche alors que de l'autre côté, il restera inchangé (voir figure 3.20). Nous sommes donc en présence de deux vecteurs d'ondes tournés l'un par rapport à l'autre ce qui explique la présence de deux pics de diffraction dans la direction  $\vec{t}^*$  dans le plan de la CCD. Ce dédoublement du pic, dû à la présence d'une marche, a déjà été observé par diffraction par A. F. Isakovic [32].

Intéressons-nous aux coupes dans la direction  $\vec{b}^*$ . Une fois de plus, la forme et la largeur du satellite restent inchangés. Par contre, la position du satellite à une nouvelle fois changé au passage du seuil mais ne varie plus ensuite. Ce dernier subit un décalage de  $\frac{\delta a}{q_0} = -1.9.10^{-4}$ . Ce déplacement vers les petits angles correspond cette fois à une dilatation de l'ODC. Cette dilatation peut être expliquée par la conversion entre électrons de conduction et électrons condensés dans l'ODC au niveau des électrodes comme nous allons le voir dans la partie théorique qui suit [34]. Dans cette partie, nous reprendrons toutes les observations expérimentales que nous comparerons aux théories existantes pour finalement effectuer des simulations des clichés de diffraction obtenus.

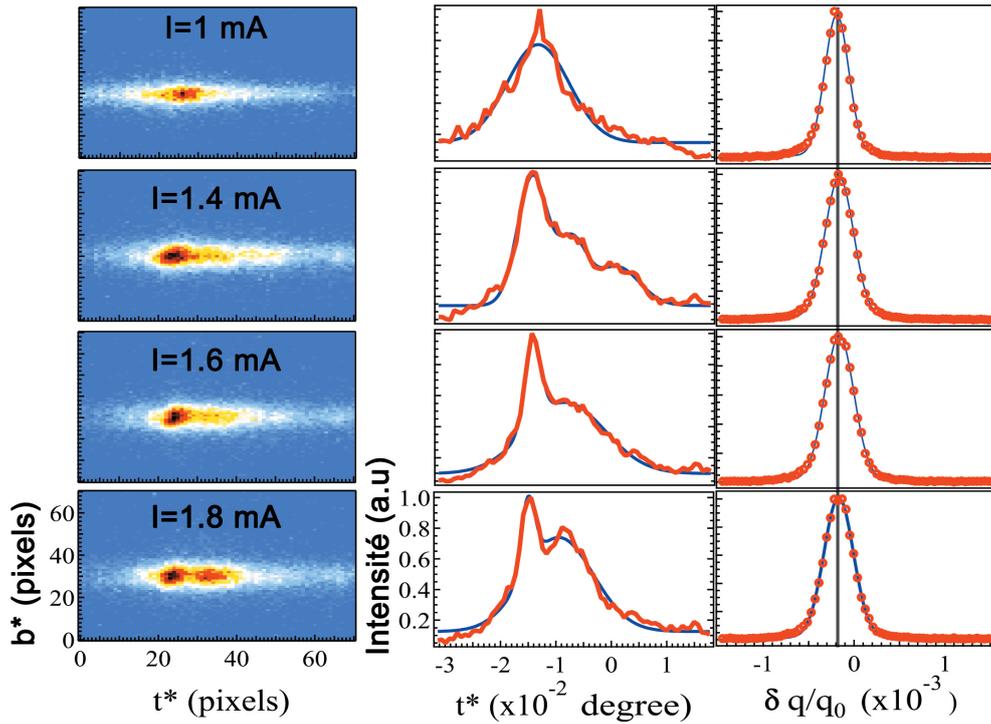


FIGURE 3.19 – Mesure du satellite associé à l’ODC (0 1.241 0) au-dessus du courant seuil, pour des courants variant de 1  $mA$  (en haut) à 1.8  $mA$  (en bas) par pas de 0.2  $mA$ . La colonne de gauche correspond à l’image à 2 dimensions. Les colonnes du centre et de droite correspondent respectivement à une coupe suivant la direction  $\mathbf{b}^*$  et à une coupe suivant la direction  $\mathbf{t}^*$ . Sur les coupes sont présentés des ajustements gaussiens pour obtenir la largeur globale des pics. Contrairement au cas en dessous du courant seuil, nous pouvons ici ajuster le profil à l’aide de deux gaussiennes pour des courants suffisamment élevés. Les lignes grises correspondent respectivement de gauche à droite aux positions du satellite : au-dessus du courant seuil, sans courant et en dessous du courant seuil.

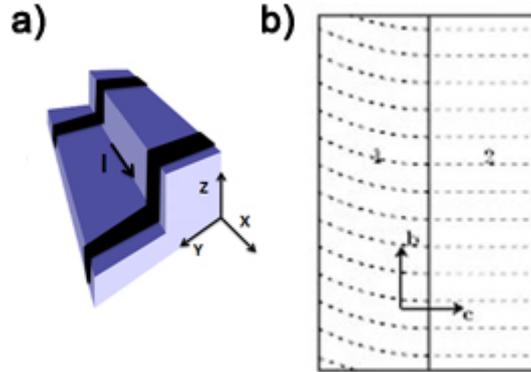


FIGURE 3.20 – Déformation d’une ODC en présence d’une marche. A gauche, schéma de la surface de l’échantillon, à droite, représentation des plans d’onde de l’ODC. L’ODC est déformée dans la partie 1 de l’échantillon alors qu’elle reste intacte dans la partie 2 [33].

### 3.3.4 Interprétation

#### Contraction et dilatation de l’ODC

Dans la suite, nous noterons  $x$  la direction longitudinale (précédemment appelé  $\vec{b}^*$ ),  $y$  la direction  $\vec{t}^*$  et  $z$  la direction perpendiculaire à la surface  $(x, y)$ . Nous distinguerons la densité d’électrons condensés dans l’ODC noté  $n_c$  de la densité d’électrons dit normaux (non condensés) provenant des bandes d’énergies des chaînes n’ayant pas transitées et notée  $n_n$ . Commençons par examiner le décalage du pic de diffraction observé dans la direction longitudinale. Dans  $NbSe_3$ , lorsque l’on applique un courant et que l’ODC est en mouvement (i.e. au-dessus du courant seuil) une contraction ou une dilatation de l’ODC a déjà été observée dans des expériences classiques de diffraction des rayons X [34]. Ce décalage dans le régime de glissement de l’ODC est interprété comme étant dû à la conversion entre électrons de conduction normaux et électrons condensés dans l’ODC. En effet cette conversion entraîne une déformation de l’ODC au niveau des électrodes. On obtient ainsi une contraction de l’ODC au niveau de la cathode et une dilatation au niveau de l’anode. On voit, sur la figure 3.21, ces déformations qui s’atténuent exponentiellement proche des contacts. On constate également qu’une déformation est présente loin des contacts (à  $0.4\text{ mm}$  de l’anode) et que celle-ci varie linéairement avec la distance.

En supposant que l’on sonde une partie de l’échantillon proche de l’anode,

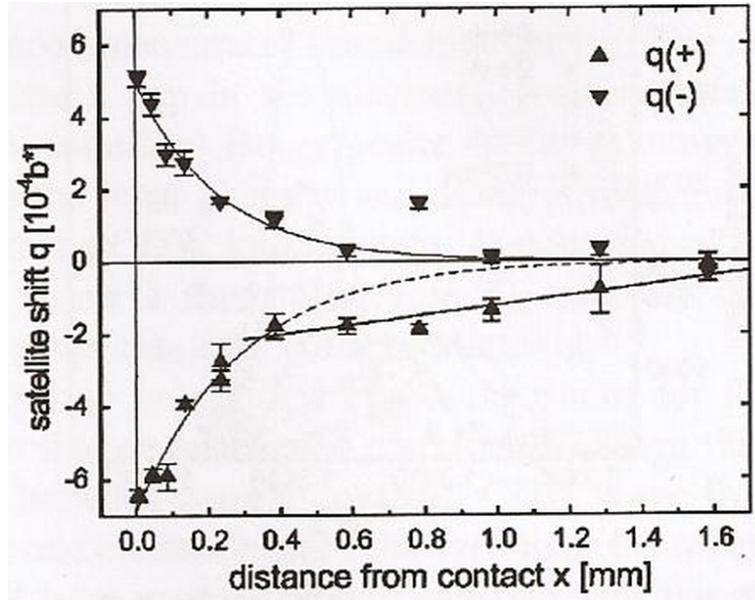


FIGURE 3.21 – Décalage du satellite en unité de  $\mathbf{b}^*$  en présence d'un courant positif ( $q_+$ ) (négatif  $q_-$ ) supérieur au courant seuil, sur la moitié de l'échantillon ( $0 < x < 2$ ). Le bord du contact se trouve en  $x = 0$  représenté par une ligne verticale. La ligne horizontale correspond à la position du satellite sans courant. Le décalage  $q_-$  est ajusté avec une exponentielle décroissante et le décalage  $q_+$  avec une exponentielle décroissante suivit d'une loi linéaire [34].

on doit observer une dilatation de l'ODC qui résulte en un décalage du pic de diffraction vers les grands angles. De plus, cette déformation ne dépend que de la position sur l'échantillon et pas du courant appliqué. C'est exactement ce que l'on observe puisque au passage du courant seuil le satellite se décale vers les grands angles puis reste fixe lorsque l'on continue à augmenter le courant. Un tel décalage loin des contacts pourrait également être lié à la présence d'un défaut d'accrochage fort qui jouerait le rôle d'un contact "artificiel" comme suggéré dans [35].

D'après nos mesures, nous observons également une contraction de l'ODC en dessous du courant seuil. Puisque l'ODC ne bouge pas il n'y pas de conversion d'électrons de conduction en électrons condensés dans l'ODC comme au dessus du seuil. Il ne devrait donc pas y avoir de changement dans la densité de charge  $n_c$  condensée dans l'ODC. Nous n'attendons donc aucun décalage puisque la variation  $\delta q_c$  du vecteur d'onde est reliée directement à  $n_c$  par la relation :

$$\delta q_c(x) = \partial\varphi/\partial x = \pi n_c \quad (3.20)$$

Ce que l'on peut dire, c'est que la condition d'électro-neutralité entraîne une modification locale de la densité de porteur normaux  $n_n$  qui suit les variations du vecteur d'onde de l'ODC :

$$n_n = -n_c = -\frac{1}{\pi} \frac{\partial\varphi}{\partial x} \quad (3.21)$$

Ce déséquilibre de la densité de porteurs normaux est difficile à expliquer en détail. Quoiqu'il en soit, l'application d'un courant électrique peut amener à de tels déséquilibres.

### Direction transverse

Examinons maintenant les profils dans la direction transverse. A l'équilibre, l'équation liant les déformations élastiques de l'ODC au champ électrique appliqué est la suivante :

$$\frac{e}{\pi} E = \frac{\hbar v_F}{2\pi} \left( \frac{\partial^2 \varphi}{\partial x^2} + \alpha \left( \frac{\partial^2 \varphi}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 \varphi}{\partial z^2} \right) \right) \quad (3.22)$$

Le coefficient  $\alpha$  rend compte de l'anisotropie des constantes élastiques du matériau. Comme nous l'avons remarqué dans la partie expérimentale, le speckle présent en dessous du courant seuil est dû au phénomène de "creep". Ce dernier est la conséquence de la présence de défauts sur lesquels s'accroche l'ODC. Ces défauts ne sont pas répartis de manière homogène dans le matériau et leurs forces d'accrochages diffèrent. Ceci entraîne la présence de plusieurs domaines de l'ODC ayant des champs seuil différents. Lorsque l'on augmente le courant, de plus en plus de domaines tendent à se mettre en mouvement ce qui déforme le front d'onde. Supposons que ces déformations sont constantes dans la direction  $z$ , nous pouvons ainsi négliger le terme  $\partial^2 \varphi / \partial z^2$  de l'équation 3.22. De plus, la longueur de corrélation est bien plus grande suivant  $x$  que suivant  $y$ . Preuve en est de la largeur des profils plus petite (corrélation plus grande) suivant  $x$  que suivant  $y$  3.18 . Finalement l'effet principal du champ électrique sur l'ODC se fait ressentir dans la direction  $y$ . L'équation 3.22 se simplifie en :

$$\frac{e}{\pi} E = \frac{\hbar v_F \alpha}{2\pi} \frac{\partial^2 \varphi}{\partial y^2}. \quad (3.23)$$

Supposons que sur certaines chaînes  $y = d_n$ , l'ODC soit fortement accrochée par de nombreux défauts. La phase de ces chaînes  $\varphi_n$  sera donc fixe,

l'accrochage aux défauts brisant l'invariance par translation de l'ODC suivant  $x$ . Ainsi cette phase qui conserve la même valeur que sans courant, peut être prise arbitrairement égale à 0 pour faciliter les calculs. On sépare ainsi l'ODC en plusieurs domaines séparés par des chaines fortement accrochées  $(d_{n-1}, d_n)$  pour lesquels la phase vaut  $\phi(d_n) = \phi(d_{n-1}) = 0$ . Ainsi la solution de l'équation (3.23) pour  $y \in [d_{n-1}, d_n]$  s'écrit :

$$\varphi = \frac{2eE}{\alpha\hbar v_F}(y - d_n)(y - d_{n+1}) \quad (3.24)$$

Au-dessus du courant seuil nous observons la présence de deux pics non symétriques, lisses et larges qui ne sont pas dus à des effets d'interférence. L'un des deux pics reste sur la position initiale du satellite sans courant alors que le deuxième est décalé. Lorsque l'on augmente le courant, la position et la largeur de ces deux pics restent inchangés.

Il est plus facile de décaler le pic dans la direction longitudinale comme nous l'avons vu précédemment que dans la direction transverse. Pour ce faire nous devons introduire un défaut important le long de la direction  $x$  qui brise la parité entre  $y$  et  $-y$ . Nous devons ainsi avoir la contribution de deux domaines : l'un proche du défaut et l'autre dans le volume de l'échantillon.

La présence d'une marche en surface de l'échantillon allongé dans la direction des chaines peut expliquer ce double pic en jouant le rôle d'un défaut qui briserai la parité dans la direction  $y$ . En effet le bord de la marche est une importante perturbation pour l'ODC dont les chaines ne possèdent pas de voisin d'un côté. Ceci a pour effet de créer un nouveau potentiel affectant l'ODC la composante  $k_y$  du vecteur d'onde de l'ODC varie donc de 0 dans le volume à  $k_{y0}$  au niveau de la marche. La direction du vecteur d'onde de l'ODC tourne dans le plan  $(x,y)$ , ce qui est en accord avec des mesures de topographie de rayons X menées par Y. Li [28].

Nous avons effectué des simulations de l'espace réel et les figures de diffraction correspondantes (voir figure 3.22). Dans ces simulations nous prenons en compte le phénomène de creep avec l'équation 3.24 pour laquelle nous avons défini 3 domaines différents. Nous prenons également en compte la présence d'une marche le long de  $x$  en position  $y = 0$ . Les simulations reproduisent correctement nos observations expérimentales (voir figure 3.22).

### 3.3.5 Conclusion

Nous avons sondé, grâce à cette expérience de diffraction cohérente des rayons X, le comportement d'une ODC sous l'application d'un courant. Plus précisément, nous avons pu voir l'influence des défauts sur les déformations

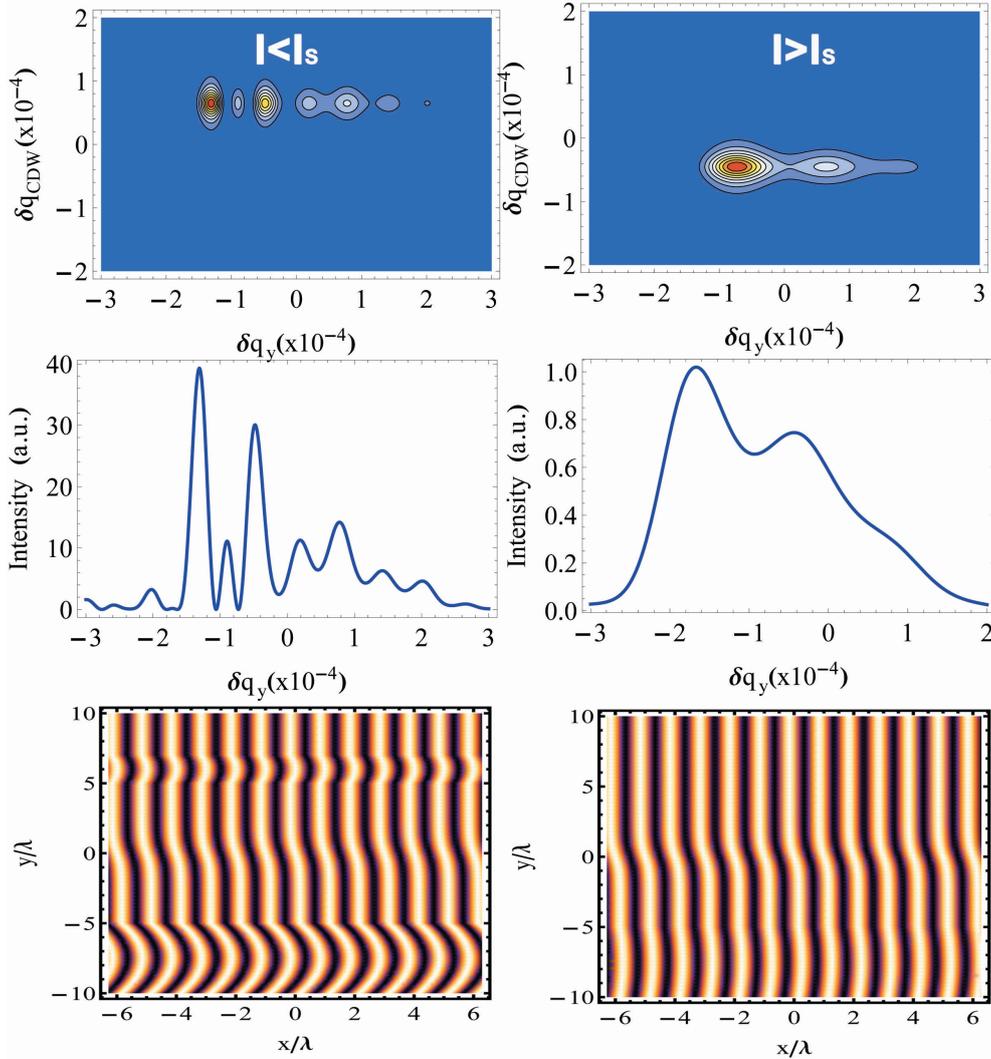


FIGURE 3.22 – Simulations représentant l’espace réel et réciproque de l’ODC. Les deux colonnes représentent de gauche à droite les cas en dessous du courant seuil et au-dessus du courant seuil. Sur chaque colonne sont représentés de haut en bas l’espace réciproque suivi des coupes longitudinales et transverses et finalement l’espace réel.

de l'ODC, dans les directions transverse et longitudinale, que ce soit en dessous comme au dessus du courant seuil.

En-dessous du courant seuil, nous avons pu confirmer la présence de creep avant la mise en mouvement de l'ODC et la réduction du nombre de défauts à l'approche du courant seuil lorsque l'ODC se réorganise. La diffraction cohérente permet d'être sûr de la présence de défauts de phase et non d'amplitude.

Au-dessus du seuil, nous avons sondé l'effet de la présence d'une marche en surface, ce qui est courant dans les composés  $NbSe_3$ . Nous avons également vu, grâce à la très grande résolution de notre micro-faisceau, un effet de la conversion de courant au niveau des électrodes.

Contrairement à certaines expériences [29] nous ne voyons aucun rétrécissement dans la direction longitudinale lorsque nous augmentons le courant (ce qui correspondrait à une augmentation des corrélations longitudinales). Ceci dit ces effets vus par R. Danneau [29], n'arrivent que pour des courants importants ( $I > 3I_S$ ) or, à cause d'un manque de temps, nous n'avons pas pu excéder des courants d'environ  $I = 2I_S$ .

La grande force de cette expérience est de pouvoir résoudre simultanément les différents effets liés au contact, aux défauts cristallins, et aux défauts de surface dans les régimes statiques et de glissement de l'ODC. Et ainsi d'avoir un point de vue général sur la physique du glissement des ODC.

## 3.4 Le Bronze Bleu sous courant.

### 3.4.1 Introduction

Dans notre étude de  $NbSe_3$  nous avons utilisé la diffraction cohérente des rayons X pour sonder ce composé. Or les rayons X sont sensibles à la densité électronique des électrons de cœurs des atomes du réseau qui est bien plus importante que celle des électrons condensés dans l'ODC. Bien sûr la nouvelle périodicité du réseau en  $2k_F$  est directement liée à l'ODC mais nous ne sondons pas directement les électrons condensés. Nous sommes en train de mettre en place une expérience durant laquelle nous pourrions sonder en même temps les atomes du réseau en diffraction X et les électrons condensés dans l'ODC grâce à des mesures de transport.

Nous avons vu précédemment que le glissement d'une ODC s'accompagne de l'excitation d'un phason du réseau cristallin. S'il est cohérent dans tout le matériau (toutes les chaînes vibrent en phase), ce phason peut être visible en diffraction X résolue en temps par la variation de l'intensité du pic de Bragg associé à la surmodulation de la fréquence de vibration du phason. De plus en

transport nous pouvons avoir accès à la fréquence de glissement des électrons qui est corrélée au phason du réseau cristallin. Nous voulons donc corrélérer les mesures de diffraction des rayons X et de transport. Ceci nécessite de faire des mesures de transport fines en même temps que la diffraction des rayons X en synchrotron.

Ce projet a donc demandé de nombreuses préparations. Lors des expériences de transport nous devons mesurer des tensions de l'ordre de la dizaine de micro-volt, ce qui nécessite de s'affranchir de tout signal parasite. Lors d'expérience test nous avons tenté d'effectuer nos mesures de transports sur la ligne Cristal de Soleil. Cependant, l'ensemble du diffractomètre et du cryostat dans lequel est placé l'échantillon, agit comme une antenne et capte de nombreux signaux électromagnétiques parasites, ce qui rend impossible les mesures électrique de bruit. Afin de s'affranchir de ce problème, nous avons dû modifier le cryostat pour découpler la masse de l'échantillon de celle du cryostat et ainsi isoler notre système. De plus, pour éviter tout phénomène d'induction, les 4 fils utilisés pour les mesures de résistivité sont tressés avec un fils de masse. Ainsi nous prévoyons d'effectuer correctement des mesures de transport directement dans le diffractomètre. L'expérience finale est prévue en fin d'année 2012.

Je ne pourrais présenter ici que les expériences de transport préliminaires que nous avons effectuées au Laboratoire de Physique des Solides.

Nous avons choisi de travailler sur le composé  $K_{0.3}MoO_3$  plutôt que  $NbSe_3$  car les fréquences de glissement de l'ODC ainsi que la fréquence du phason, sont plus faibles ( $< 1GHz$ ). Le phason est alors plus facilement accessible en diffraction X.

### 3.4.2 Description du composé $K_{0.3}MoO_3$

Le bronze bleu de Molybdène  $K_{0.3}MoO_3$ , que nous appellerons par la suite bronze bleu, a une structure monoclinique, de groupe d'espace  $C2/m$ , avec 20 molécules par maille [36]. La structure a été résolue en 1966 par Graham et Wadsley [37]. Le bronze bleu est composé de 10 octaèdres de  $MoO_6$  qui sont empilés pour former des chaînes suivant la direction  $\vec{b}$ , le contact se faisant par les sommets des octaèdres (voir figure 3.23). Dans chaque regroupement, il existe trois sites cristallographiquement différents pour le Molybdène, que l'on note Mo(1), Mo(2) et Mo(3), et seuls les octaèdres Mo(2) et Mo(3) partagent leurs sommets le long des chaînes. Par ailleurs, seules les orbitales des atomes Mo(2) et Mo(3) contribuent aux deux bandes de conduction du bronze bleu. Les atomes de Potassium cèdent 3 électrons ce qui correspond à

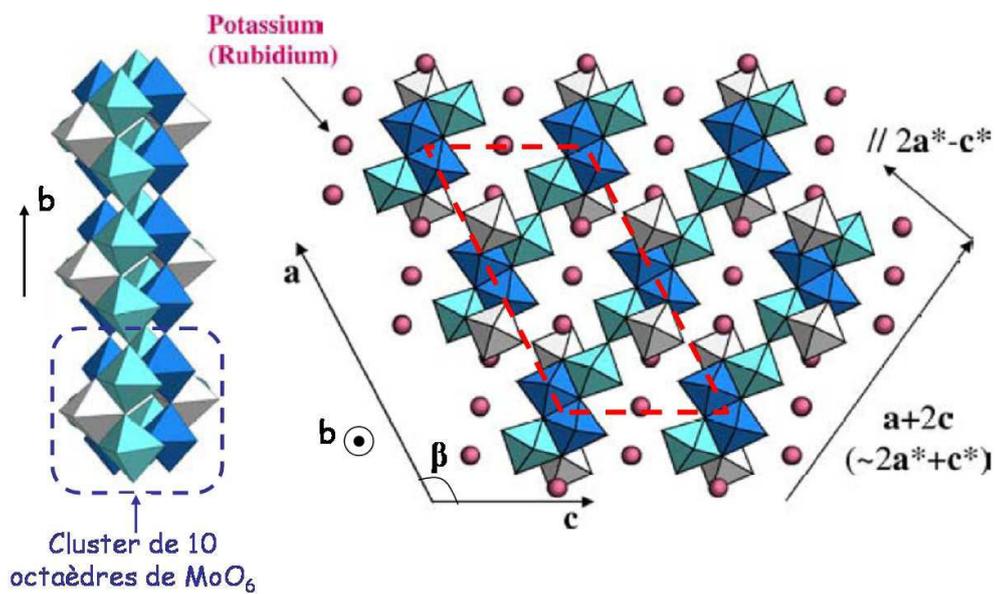


FIGURE 3.23 – Structure du bronze bleu. À gauche : représentation des chaînes suivant la direction **b**, composées de l'empilement de clusters formés de dix octaèdres de  $MoO_6$ . Les octaèdres blanc, bleu foncé et bleu clair correspondent respectivement aux sites Mo(1), Mo(2) et Mo(3). À droite : représentation dans le plan (**a**, **c**). La maille monoclinique est représentée en pointillés rouges [1].

Espace Réel	Espace réciproque
$a = 18,25 \text{ \AA}$	$a^* = 0,38814 \text{ \AA}^{-1}$
$b = 7,56 \text{ \AA}$	$b^* = 0,83111 \text{ \AA}^{-1}$
$c = 9,885 \text{ \AA}$	$c^* = 0,71878 \text{ \AA}^{-1}$
$\alpha = \gamma = 90^\circ$	$\alpha^* = \gamma^* = 90^\circ$
$\beta = 117,5^\circ$	$\beta^* = 62,5^\circ$
$\vec{a}^* \cdot \vec{c}^* = 0,12843 \text{ \AA}^{-2}$	

FIGURE 3.24 – Paramètres de maille du bronze bleu dans l’espace réel et réciproque à température et pression ambiante [1].

un remplissage de ces deux bandes d’environ 3/4. Dans le plan perpendiculaire à  $\vec{b}$ , les chaînes sont en contact les unes avec les autres par le sommet des octaèdres dans la direction  $\vec{a} + 2\vec{c}$ , formant des plans de chaînes. Dans la direction perpendiculaire à  $\vec{a} + 2\vec{c}$  (correspondant à la direction  $2\vec{a}^* - \vec{c}^*$  en utilisant les notations de l’espace réciproque), les chaînes ne sont pas en contact, mais sont séparées par les donneurs d’électrons K. Le tenseur de conductivité est donné par  $\sigma_b = 3.10^2 \Omega^{-1}cm^{-1}$ ,  $\sigma_{2a-c} = 10 \Omega^{-1}cm^{-1}$  et  $\sigma_{2a+c} = 0.5 \Omega^{-1}cm^{-1}$  [38]. Le bronze bleu est donc fortement anisotrope, beaucoup plus conducteur suivant l’axe des chaînes  $\vec{b}$ . La maille monoclinique est représentée sur la figure 3.23, et les paramètres de maille à 100 K sont donnés sur la figure 3.24. Dans ce tableau sont également donnés les paramètres du réseau réciproque de la maille monoclinique du bronze bleu, ainsi que la valeur de  $a^*$  et  $c^*$  souvent utile dans les calculs numériques.

Le bronze bleu subit une transition de Peierls à  $T_P = 183 K$ , passant d’un état métallique pour  $T > T_P$  à un état isolant pour  $T < T_P$ . Par ailleurs, un amollissement de phonon est mesuré lorsqu’on s’approche de cette température. La figure 3.25 représente la dispersion de branches de phonons de basse fréquence, sur laquelle on peut voir un amollissement de phonon précurseur de l’anomalie de Kohn, déjà présent à 230 K, signe de la proximité de la transition de Peierls.

En diffraction des rayons X lorsque l’on passe la transition, des réflexions satellites sont présentes, signe que la transition a eu lieu dans tout l’échantillon, avec des longueurs de corrélations tendant vers la taille de l’échantillon. Ces réflexions apparaissent avec des vecteurs réduits  $\vec{q}_c = (0.5, \pm \vec{q}_b, 0.5)$  à partir des réflexions de Bragg [40]. Pour prendre en compte l’aspect tridimensionnel du couplage et faire apparaître explicitement le vecteur d’onde  $2k_F$  de l’ODC, il est plus judicieux de définir le vecteur d’onde des réflexions as-

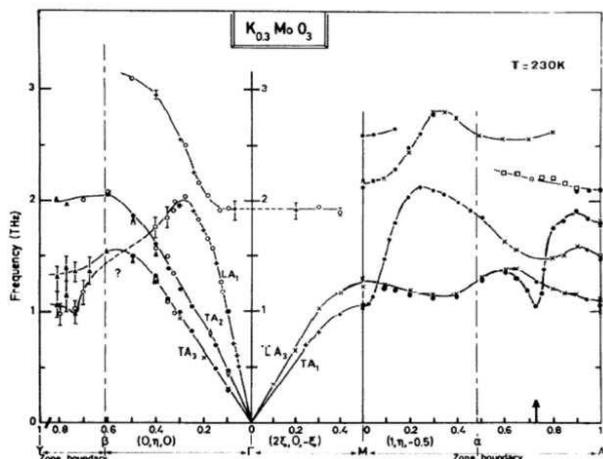


FIGURE 3.25 – Spectre de phonon de basse fréquence dans le bronze bleu. Un amollissement de phonon, précurseur de l’anomalie de Kohn, apparaît clairement à 230 K (flèche) pour un vecteur d’onde  $2k_F = 0.748b^*$  [39].

sociées à l’ODC par  $\vec{q}_c = (1, 1 \pm \vec{q}_b, 0.5)$ , où  $2k_F = 1 - q_b$ . Ces satellites apparaissent à des positions telles que  $2k_F \simeq 0.748 b^*$ , qui est une position incommensurable proche de  $0.75 b^*$ . La valeur du vecteur d’onde de l’ODC est difficile à relier au remplissage de bande dans le bronze bleu. En effet deux bandes coupent le niveau de Fermi. La première est remplie à 95% et la deuxième à 50%. En moyenne le taux de remplissage est donc de l’ordre de 75%, ce qui explique la valeur du vecteur d’onde de l’ODC dans ce composé.

### 3.4.3 Mesures de transport

Dans le cadre d’une collaboration avec J. Gabelli du laboratoire de physique des solides nous avons effectué de nombreuses mesures de transport. Nous avons commencé par caractériser notre échantillon dont la photo est présentée figure 3.27. Pour cela, nous avons besoin de déterminer la résistance en dessous de la transition et le courant seuil nécessaire pour faire glisser l’ODC. Pour affiner nos mesures nous avons utilisé un montage 4 points qui permet de s’affranchir des résistances des fils (notées  $R_{fi}$  sur le schéma 3.26) amenant le courant et des résistances contacts (notées  $R_{ci}$  sur le schéma 3.26) qui faussent la mesure de la résistance de notre échantillon. Le principe de cette mesure est illustré sur la figure 3.26. Un courant important est injecté par les contacts extérieurs et la mesure de la résistance se fait à l’aide d’un courant très faible circulant dans l’appareil de mesure qui lui est branché sur les contacts intérieurs. Les formules de la figure 3.26 montrent que dans

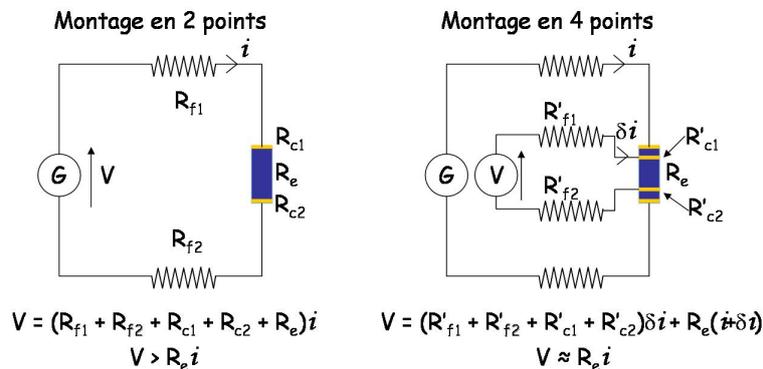


FIGURE 3.26 – Illustration de la différence entre un montage 2 points et un montage 4 points. Le courant de mesure  $\delta i$  est faible devant le courant  $I$  [1].

le cas d'une mesure 4 points les résistances de fils et de contacts ne sont pas prises en compte. Ainsi, nous mesurons seulement la résistance de notre échantillon.

Lors de la mesure de cette résistance, il faut également faire attention à ne pas mettre l'ODC en mouvement avec le courant servant à mesurer la résistance. Pour cela nous avons appliqué un courant entre 1 et 10  $\mu A$  pour effectuer la mesure (le courant seuil étant de l'ordre de 0.1 mA. Le signal à mesurer est donc très faible. Pour découpler le signal venant de notre échantillon des signaux parasites, nous avons utilisé une détection synchrone. Cet instrument envoie un courant alternatif de basse fréquence qui sert à la fois de courant de mesure et de référence. La tension mesurée est multipliée par cette référence. Ceci permet de sélectionner le signal venant de l'échantillon par rapport à des signaux parasites.

En polarisant l'échantillon à l'aide d'une source de tension et de la détection synchrone nous avons accès à  $\frac{dV}{dI}$  (voir insert figure 3.28). La mesure de la résistance différentielle est présentée sur la figure 3.28. Le courant seuil ainsi mesuré est de 0.2 mA. La résistance pour des courants inférieurs au seuil est hystérétique. Lors de montées et descentes successives en courant, on constate que la résistance augmente à chaque cycle de courant jusqu'à se stabiliser. Cet effet est dû à la présence de nombreux états métastables proches en énergie, l'ODC pouvant s'accrocher de différentes manières aux défauts. On constate aussi la présence d'une résonance juste avant le courant seuil. Cette résonance n'a toujours pas trouvé d'explication.

Nous avons vu précédemment que l'excès de courant apporté par le glissement d'une ODC suit la relation 3.18 pour des courants importants. Afin d'extraire le courant lié à l'ODC nous avons mesuré la caractéristique courant

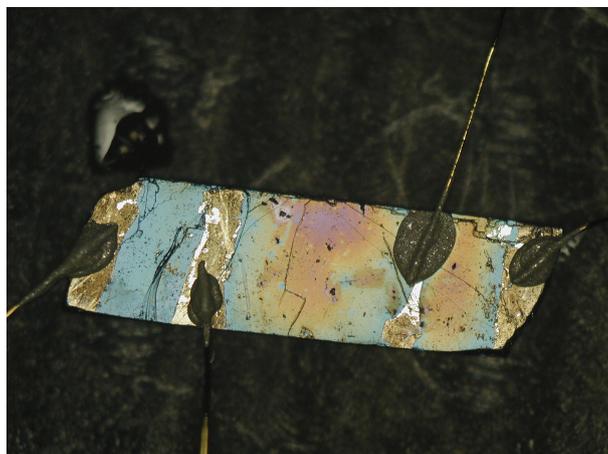


FIGURE 3.27 – Photo de l'échantillon de bronze bleu utilisé pour les mesures de transport. On voit les quatre contacts en or pour les mesures quatre points

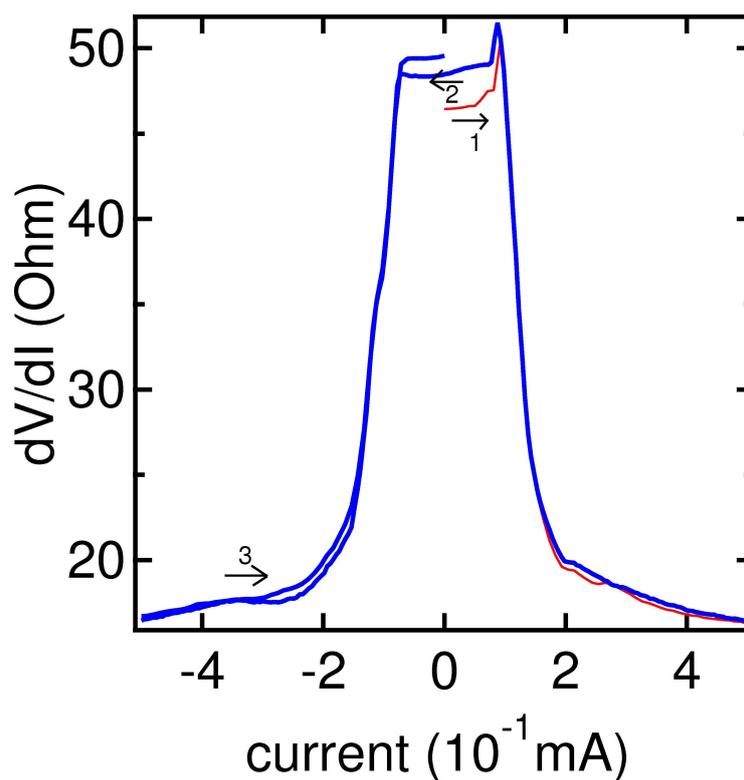


FIGURE 3.28 – Résistance différentielle en fonction du courant appliqué à l'échantillon. Sont superposées différentes mesures lors de montée en courant (en bleu) et de descente en courant (en rouge). Un phénomène d'hystérésis est visible.

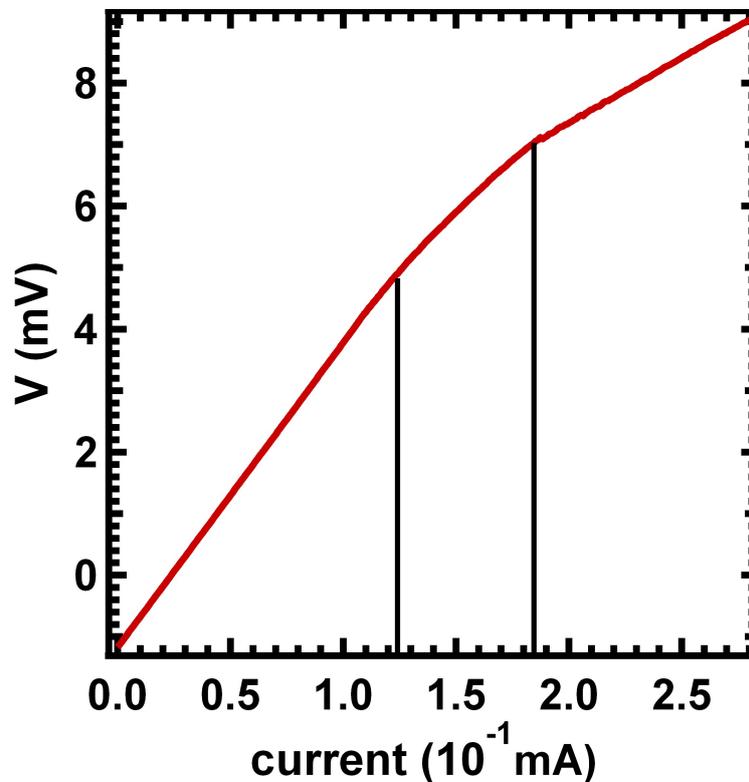


FIGURE 3.29 – Caractéristique courant/tension de notre échantillon de bronze bleu. On voit le décrochement lié au glissement de l'ODC définissant le courant seuil.

tension présentée en figure 3.29. Le courant lié à l'ODC noté  $j_{ODC}$  représente l'écart à la loi d'Ohm (lié aux électrons condensés). Cet excès de courant est comparé à la théorie sur la figure 3.30.

On constate sur la figure 3.29 la présence de deux décrochements. La présence de deux courants seuils a déjà été observé dans certains matériaux et vient du décrochement successif de deux domaines macroscopiques de l'ODC. Nous avons pour l'instant mesuré le courant moyen porté par l'ODC mais si l'on regarde le courant au cours du temps on constate que celui-ci fluctue. Ces fluctuations électroniques sont souvent appelées du bruit et sont gênantes pour la plupart des expériences. En réalité ces fluctuations, sont le reflet des mécanismes du transport électrique. L'étude du bruit peut donc permettre d'accéder à de nouvelles informations sur la physique des conducteurs. La première donnée que nous pouvons extraire, à l'aide d'un analyseur de spectre, est la distribution en fréquence de la puissance de bruit. Sur le spectre présenté sur la figure 3.31 on constate l'apparition de pics dans le

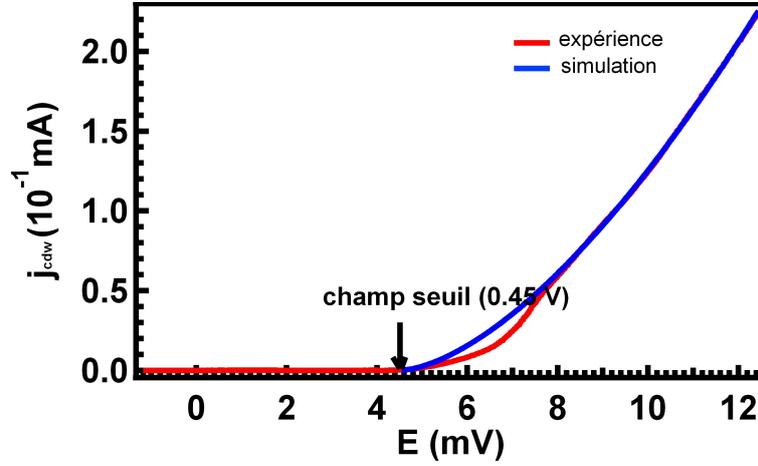


FIGURE 3.30 – Excès de courant apporté par le glissement de l’ODC comparé à la théorie.

régime de glissement pour des fréquences bien déterminés, c’est ce que l’on appelle le Narrow Band Noise (NBN). On peut définir une fréquence fondamentale à basse fréquence suivit d’une harmonique, indiqué par les flèches noires sur la figure 3.31. Ce NBN est dû au glissement à vitesse  $v_g$  constante de l’ODC :

$$\rho = \rho_0 \cos\left(\frac{k_F}{2} v_g t\right) \quad (3.25)$$

$$f_0 = \frac{k_f v_g}{4\pi} \quad (3.26)$$

La présence d’harmonique est due à la déformation de l’ODC au niveau des contacts qui rend l’ODC non-sinusoidale. Un bruit en  $f^{-\alpha}$  (avec  $\alpha > 1/2$ ), appelé Broad Band Noise, dont on peut s’affranchir en le soustrayant, est également présent [41]. Ce bruit est dû à la présence d’impuretés ou de défauts macroscopiques tels que des joints de grain ou des fissures dans l’échantillon. Nous avons ensuite enregistré une série de spectre pour différents courants. Ces spectres ont été tracés sur une image 2D présentée figure 3.32. On voit clairement la fondamentale et les harmoniques qui apparaissent après le courant seuil (soulignés par les flèche bleues sur l’image 3.32). Ces fréquences sont liées à la vitesse de glissement de l’ODC et vont donc se décaler vers les hautes fréquences lorsque nous augmentons le courant. On voit également l’apparition de pics dans les basses fréquences pour des courants important (flèche rouge sur l’image 3.32). Nous n’arrivons toujours pas à expliquer ces basses fréquences.

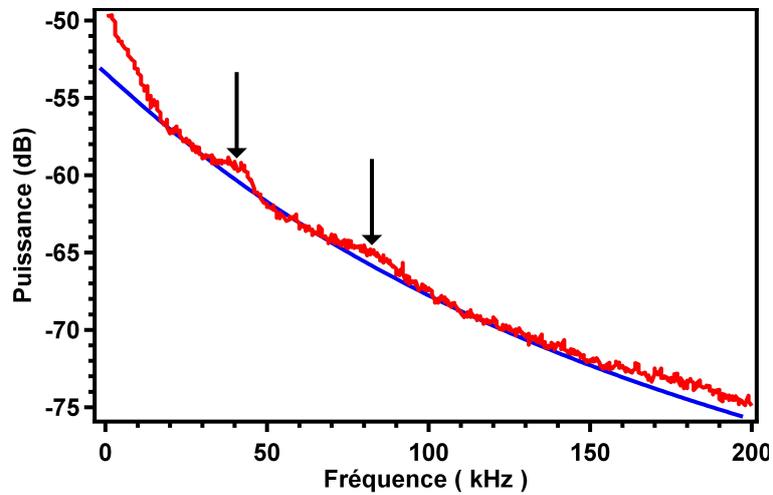


FIGURE 3.31 – Spectre du courant pour un courant appliqué supérieur au courant seuil. La présence de deux pics en fréquence est indiquée par les flèches noires

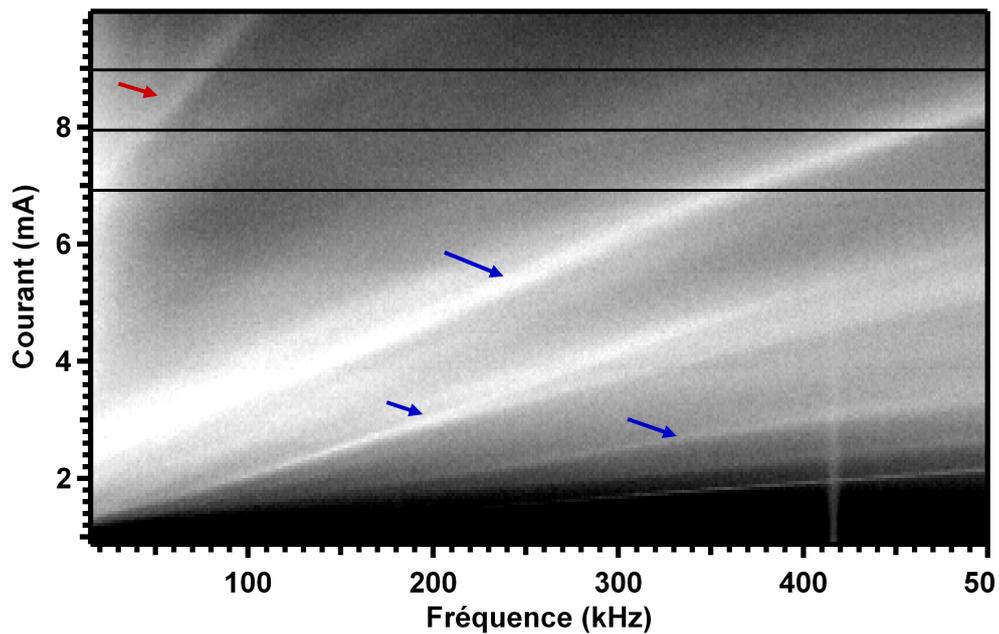


FIGURE 3.32 – Ensemble des spectres regroupés sur une même figure après soustraction du bruit en  $1/f^\alpha$ . l'ordonnée représente le courant appliqué à l'échantillon, l'abscisse représente la fréquence. Le code couleur représente la puissance en dB. Les flèches bleues indiquent les pics en fréquence dus au glissement de l'ODC la flèche rouge montre l'apparition d'un pic à basse fréquence.

Nous pouvons aller plus loin dans l'étude de ces fluctuations de courant en étudiant la distribution de probabilité  $P(i)$  mesurée pendant un intervalle de temps  $\Delta t$  [42, 43]. Une telle distribution est entièrement déterminée par ces moments, donnés pour un moment d'ordre  $n > 1$  par la relation :

$$\langle \delta i^n \rangle_t = \langle (i(t) - I)^n \rangle_t \quad (3.27)$$

où  $I = \langle i(t) \rangle$ , la valeur moyenne du courant est définie comme le moment d'ordre 1. Le moment d'ordre 2 correspond à la variance de la distribution. Ces moments d'ordre 1 et 2 ont été largement étudiés dans toutes sortes de matériaux. Par contre, les moments d'ordres supérieurs sont peu étudiés. En effet, la bande passante finie de la chaîne de détection, modifie la distribution de probabilité mesurée. Celle-ci tend vers une gaussienne en vertu du théorème de la limite centrale et rend la mesure des moments d'ordre supérieur délicate. Le temps séparant le passage de deux électrons est de l'ordre de  $\frac{e}{I} \simeq 10^{-13}$  s. Ainsi, lors d'une mesure de courant avec une chaîne de détection de bande passante  $\Delta f \simeq 10^6$  Hz, nous enregistrons de nombreux passages d'électrons, l'écart à la gaussienne de la distribution mesurée est donc très faible. Pour mesurer cette distribution, nous avons utilisé une carte d'acquisition pouvant faire des mesures à haute fréquence et répéter de nombreuses fois la mesure. Nous avons ainsi mesuré la distribution  $P(i)$  pour différents courants appliqués à l'ODC. De cette distribution de courant nous pouvons extraire les moments d'ordre 2 et 3 en fonction du courant appliqué qui sont présentés figure 3.33 et 3.34.

Le moment d'ordre 2 commence à augmenter lorsque le courant seuil est dépassé (ce qui est logique puisque l'amplitude des oscillations de courant est dû au glissement de l'ODC). A partir de  $0.4$  mA, le comportement du moment d'ordre 2 devient compliqué. Le moment d'ordre 3 quant à lui, reste nul jusqu'à  $0,4$  mA. La distribution  $P(I)$  est donc symétrique. Au-delà de  $0.4$  mA, le moment d'ordre 3 diminue puis ré-augmente et change de signe, il continue ensuite à augmenter linéairement. Ce changement de signe indique une inversion de la dissymétrie de la distribution de probabilité. L'interprétation théorique de ces moments demande une étude approfondie. Des expériences supplémentaires doivent être menées sur différents échantillons pour voir si ces effets sont dépendants de l'échantillon, auquel cas l'interprétation théorique risque d'être difficile.

### 3.4.4 Discussion

Ces mesures de transport ont permis de préparer l'échantillon pour les expériences de diffraction cohérentes. La première étape de ces mesures sera

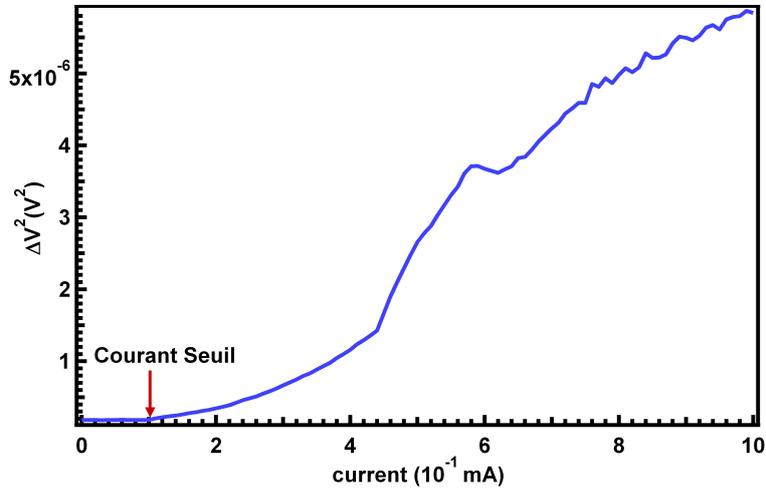


FIGURE 3.33 – Moment d'ordre 2 de la distribution de courant  $P(I)$ . Ce dernier commence à augmenter lorsqu'on dépasse le courant seuil marqué par la flèche rouge sur le graphique.

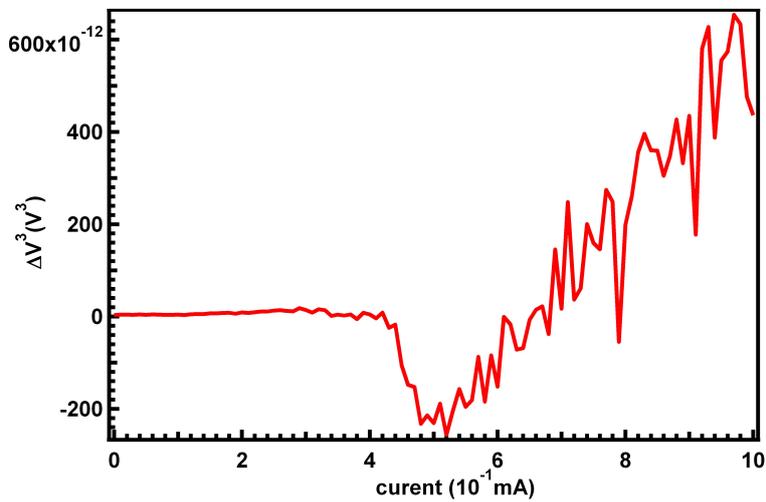


FIGURE 3.34 – Moment d'ordre 3 de la distribution de courant  $P(I)$ . On observe un changement de signe du moment d'ordre 3 pour un courant de  $0.7 \text{ mA}$ .

de corrélérer in-situ les fréquences que nous voyons apparaître en transport sur la figure 3.32 aux variations d'intensité du pic de Bragg associé à l'ODC. Ceci permettra de corrélérer les mouvements du réseau à celui des électrons condensés dans l'ODC. Le deuxième aspect intéressant est l'étude des fluctuations à basses fréquences qui apparaissent à haut courant (voir figure 3.32). Ces basses fréquences pourraient correspondre à une nouvelle périodicité de l'ODC de grande longueur d'onde. Or sur des expériences de diffraction cohérente menées par Vincent Jacques [44] on peut voir l'apparition de pics supplémentaires autour des satellites de l'ODC dans la direction de glissement pour des courants importants. Ces pics supplémentaires correspondent à une nouvelle périodicité 1000 fois supérieure à la périodicité de l'ODC. Les basses fréquences que nous voyons en transport correspondraient, elles, à une périodicité seulement 100 fois plus grande que la période initiale de l'ODC. Ces mesures ont été effectuées sur des échantillons différents ce qui peut expliquer cet écart. Il serait donc intéressant de voir l'apparition de ces pics de diffraction en même temps que le signal basse fréquence en transport. Finalement, sans parler de corrélation entre transport et diffraction, il faudrait pousser plus loin l'étude des moments de la distribution des fluctuations d'intensité pour essayer de comprendre les mécanismes liés au glissement de l'ODC.

# Chapitre 4

## Coexistence d'états électronique

### Contents

---

<b>4.1</b>	<b>Introduction . . . . .</b>	<b>92</b>
<b>4.2</b>	<b>Le Chrome : coexistence d'ondes de densité de charge et de spin . . . . .</b>	<b>93</b>
4.2.1	Les Ondes de densité de spin . . . . .	93
4.2.2	Diffraction magnétique . . . . .	94
4.2.3	Description du composé . . . . .	95
4.2.4	Coexistence ODC et ODS . . . . .	99
<b>4.3</b>	<b><i>NbSe<sub>2</sub></i> : coexistence ODC et supraconductivité .</b>	<b>105</b>
4.3.1	La supraconductivité . . . . .	105
4.3.2	Description du composé . . . . .	107
4.3.3	Résultats expérimentaux . . . . .	110

---

## 4.1 Introduction

La divergence de la susceptibilité que nous avons vue au paragraphe 3.2.1 peut être à l'origine de différentes instabilités et peut conduire à autre chose qu'une transition de type ODC. Dans le cas général, la réponse de la densité électronique  $\rho_{ind}$  à un potentiel extérieur  $\phi_{ext}$  induit elle-même un potentiel  $\phi_{ind}$ . Dans le cadre de la réponse linéaire et en supposant que  $\phi_{ind} = -g\rho_{ind}$  (où  $g$  est une constante de couplage), on obtient la relation :

$$\rho_{ind}(q, T) = \chi(q, T)\phi = \chi(q, T)(\phi_{ext} + \phi_{ind}) \quad (4.1)$$

$$\rho_{ind}(q, T) = \frac{\chi(q, T)\phi_{ext}}{1 + g\chi(q, T)} \quad (4.2)$$

Cette densité est instable si  $g < 0$ , lorsque le dénominateur s'annule :

$$1 + g\chi(q, T) = 0 \quad (4.3)$$

Ainsi en utilisant la susceptibilité du gaz unidimensionnel calculée au paragraphe 3.2.1 (voir équation 3.2) on obtient la température de transition dans le cadre du champ moyen :

$$k_B T^{MF} = 1.14\epsilon_F \exp\left(\frac{-1}{gn(\epsilon_F)}\right) \quad (4.4)$$

où  $n(\epsilon_F)$  est la densité d'état au niveau de Fermi. L'état fondamental à  $T = 0$  peut être formé de paires électron/électron (noté  $e^- - e^-$ ) ou électron/trou (noté  $e^- - t$ ). Cet état dépendra de la nature du couplage  $g$ , qui peut coupler des états de moment  $q = 0$  ou  $q = 2k_F$  via une interaction électron/phonon ou électron/électron. On peut obtenir 4 états fondamentaux différents résumés dans le tableau suivant :

	appariement	spin total	moment total
Supraconductivité singulet	$e^- - e^-$	0	0
Supraconductivité triplet	$e^- - e^-$	1	0
Onde de densité de charge	$e^- - t$	0	$2k_F$
Onde de densité de spin	$e^- - t$	1	$2k_F$

Par exemple comme nous l'avons vu au chapitre précédent les ODC se développent via une interaction électron phonon qui couple des états en  $\pm k_F$  entraînant l'établissement d'un état de moment total  $q = 2k_F$ . Ces 4 états

fondamentaux sont très différents et parfois antagonistes comme pour la supraconductivité et les Ondes de Densité de Spin (ODS). Malgré tout on peut trouver, dans certains matériaux, une phase où coexistent ces différents états. L'étude de ces phases de coexistence a retrouvé un intérêt important avec les supraconducteurs à haute température critique. En effet, ces matériaux présentent parfois la coexistence d'un paramètre d'ordre supraconducteur avec un paramètre d'ordre d'ODS. Ceci a poussé certains chercheurs à étudier (ou réétudier) des matériaux possédant une phase de coexistence comme celle des supraconducteurs non conventionnel. Dans la suite nous étudierons le cas de trois composés possédant des phases de coexistence.

Le premier est le Chrome dans lequel coexistent une ODS et une ODC. Ce composé est surprenant puisqu'il est entièrement tridimensionnel mais qu'il possède des transitions de type Peierls qui ne sont censées exister qu'à basse dimension. Nous étudierons donc l'effet de l'ODS sur l'ODC dans ce composé.

Nous étudierons ensuite le matériau  $NbSe_2$ . Considéré comme quasi-bidimensionnel, nous observons dans ce composé la coexistence entre une phase supraconductrice et une phase ODC.

Il est important de noter que toutes les expériences présentées dans ce chapitre sont encore préliminaires.

## 4.2 Le Chrome : coexistence d'ondes de densité de charge et de spin

### 4.2.1 Les Ondes de densité de spin

Les Ondes de densité de spin (ODS) sont l'équivalent des ODC pour le magnétisme. Cette transition est due à une interaction électron/électron et peut être décrite par un Hamiltonien de Hubbard à une dimension [14]

$$H = \sum_k \epsilon_k a_{k,\sigma}^+ a_{k,\sigma} + \frac{U}{N} \sum_{q,\sigma} n_{q,\sigma} n_{-q,-\sigma} \quad (4.5)$$

$$n_{q,\sigma} = \sum_k a_{k,\sigma}^+ a_{k+q,\sigma}$$

où  $U$  est l'interaction électron/électron. Nous ne prenons pas en compte ici l'interaction électron/phonon qui tendrait à favoriser l'apparition d'une ODC. L'interaction entre électron de spins opposés entraîne une réponse importante du gaz d'électron à un champ magnétique. La divergence de la susceptibilité donne lieu en champ moyen à une température de transition donnée par une relation analogue à celle des ODC (voir introduction) :

$$k_B T_{ODS}^{MF} = 1.14 \epsilon_F e^{\frac{1}{\lambda_e}} \quad (4.6)$$

où  $\lambda_e = U n(\epsilon_F)$  est la constante de couplage électron/électron adimensionnée. En dessous de la température de transition, une modulation statique de la densité de spin  $\langle S(x) \rangle$  se développe :

$$\langle S(x) \rangle = 2|S| \cos(2k_F x + \phi) \quad (4.7)$$

Le paramètre d'ordre est donné ici par la densité de spin :

$$\Delta = \Delta e^{i\phi} = US \quad (4.8)$$

Cette densité de spin est nulle au-dessus de  $T_{ODS}^{MF}$  et croît au passage de la transition lorsque les électrons de spin opposé se séparent. Comme pour les ODC, nous pouvons diagonaliser le Hamiltonien 4.5 et obtenir la même relation de dispersion que pour les ODC (voir equation 3.11). Cette transition s'accompagne donc également de l'ouverture d'un gap à  $2k_F$ .

### 4.2.2 Diffraction magnétique

Les réseaux magnétiques comme les ODS sont en général sondés par diffraction de neutron (le spin de ces derniers étant très sensible au magnétisme) mais nous pouvons également étudier le magnétisme à l'aide de rayons X polarisés [45]. L'intensité est beaucoup plus faible que celle obtenue à l'aide de neutron mais la résolution angulaire est bien meilleure et la taille des faisceaux plus petite. Ceci permet une étude fine de l'évolution des largeurs et des positions des pics de Bragg. De plus, en rayons X, nous pouvons obtenir un faisceau spatialement cohérent ce qui n'est pas le cas des faisceaux de neutron, ouvrant ainsi de nouvelles possibilités dans l'étude des structures magnétiques.

La diffusion magnétique des rayons X dépend en partie du changement de polarisation entre faisceau incident et faisceau diffusé. En supposant que nous sommes dans le vide, les vecteurs polarisations sont contenus dans les plans perpendiculaires aux faisceaux incident et diffusé. Le vecteur polarisation peut s'écrire en fonction de deux composantes. Une composante  $\pi$  dans le plan de diffraction  $(k_i, k_f)$  et une composante  $\sigma$  perpendiculaire au plan de diffraction. Dans les synchrotrons, la polarisation d'un faisceau de rayons X sortant d'un onduleur est rectiligne et situé dans le plan de l'orbite des électrons. Ainsi, lors d'une expérience dont le plan de diffraction est horizontale, nous avons un faisceau incident de polarisation  $\pi$ . Nous pouvons avoir une diffusion avec ou sans changement de polarisation du faisceau. Dans

notre cas, l'amplitude diffusée ne contient que deux contributions noté  $M_{\pi,\pi}$  et  $M_{\pi,\sigma}$  [46]. L'amplitude diffusée s'écrit :

$$A(\theta) = -i \frac{\hbar\omega r_0}{mc^2} (M_{\pi,\pi} + M_{\pi,\sigma}) \quad (4.9)$$

où les contributions  $M_{\pi,\pi}$  et  $M_{\pi,\sigma}$  s'écrivent en fonction de l'angle  $\theta$  de diffraction et d'une combinaison linéaire des moments orbitaux ( $L_x$ ,  $L_y$  et  $L_z$ ) et de spins ( $S_x$ ,  $S_y$  et  $S_z$ ) de l'atome considéré :

$$\begin{aligned} M_{\pi,\pi} &= \sin(2\theta) [2\sin^2(\theta)L_y + S_y] \\ M_{\pi,\sigma} &= -2\sin^2(\theta) [\cos(\theta)(L_x + S_x) - \sin(\theta)S_z] \end{aligned} \quad (4.10)$$

Nous pouvons ainsi étudier des réseaux magnétiques à l'aide de la diffraction des rayons X. Il faut cependant garder à l'esprit que l'intensité est bien plus faible que pour la diffusion par l'onde de densité de charge. Le rapport d'intensité est de l'ordre :

$$\left( \frac{A_{magnetique}}{A_{charge}} \right)^2 = \left( \frac{\hbar\omega}{mc^2} \right)^2 \frac{N_m f_m}{N f_c} \quad (4.11)$$

où  $f_m$  et  $f_c$  sont les facteurs de forme, respectivement, magnétique et de charge.  $N_m$  est le nombre d'électrons non appariés et  $N$  le nombre total d'électrons par atome. Ce rapport est d'environ  $10^{-6}$  pour le fer. Si l'on compare à l'intensité d'un satellite lié à une ODC le rapport est de l'ordre de  $10^{-3}$ . Ceci rend la diffraction magnétique non résonante des rayons X compliquée [47, 45, 48].

### 4.2.3 Description du composé

Le chrome cristallise en une structure cubique centré de paramètre de maille  $a^* = 2.88\text{\AA}$ . En diffraction cette structure entraine des extinctions pour  $h + k + l = 2n + 1$  qui se superposent aux structures magnétique comme nous allons le voir. Malgré la simplicité de la structure, le chrome possède des propriétés physiques surprenantes et dont l'origine est encore mal comprise.

Après des années de recherche, la structure magnétique du chrome est maintenant bien comprise [50]. Malgré son aspect tridimensionnel, la surface de Fermi présente des propriétés de nesting qui sont représentées sur la figure 4.1. Le nesting de vecteur  $2k_F$  donne naissance à une ODS le long des directions  $\langle 100 \rangle$  [51]. En dessous de la température de Néel ( $T_N = 311\text{ K}$ ), l'ordre magnétique qui se développe peut être décomposé en 2 réseaux

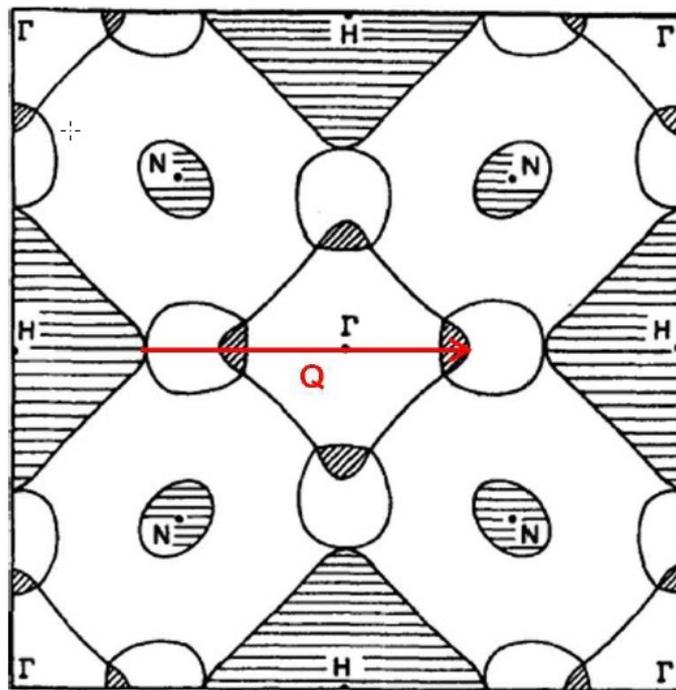


FIGURE 4.1 – Surface de Fermi du chrome à 2 dimensions,  $k_x$  est la direction horizontale et  $k_y$  la direction verticale. Est représenté par une flèche rouge le nesting entre la poche d'électrons centrale et les poches de trous sur les bords donnant naissance à l'ODS [49].

magnétiques. Tout d'abord un ordre antiferromagnétique se développe avec un vecteur d'onde (111). A cet antiferromagnétisme ce superpose l'ODS de vecteur d'onde incommensurable  $q_{SDW} = 1-\delta$  avec  $\delta \simeq 0.047$  en unité de réseau réciproque à 311 K. Ainsi au lieu d'avoir un pic de Bragg en (100), ce dernier se sépare en deux pics en  $(1 \pm q_{SDW} \ 0 \ 0)$  liés à l'ODS. On peut ainsi avoir trois domaines suivant que l'ODS soit dans la direction (100), (010) ou (001). Les différents échantillons que nous allons utiliser dans nos expériences ont subi une croissance dans des conditions permettant de favoriser un domaine par rapport aux deux autres [52]. On obtient ainsi des échantillons dit, mono-domaine, pour lesquels l'ODS se développe dans la direction (001) (voir figure 4.4). Les spins peuvent être alignés dans la direction (010) ou (100). Ils sont donc perpendiculaires au vecteur d'onde de la modulation (voir figure 4.2). Comme nous l'avons vu précédemment, la polarisation du faisceau de rayons X émis en Synchrotron nous permet de sonder ces pics de Bragg magnétiques. Contrairement à la diffraction des neutrons, la diffraction magnétique des rayons X permet de séparer les contributions orbitales des contributions de spins. Ainsi des expériences ont vérifié que le moment orbital du chrome est nul [48]. Ainsi en prenant  $S_z = 0$  et d'après les équations 4.9 et 4.10, l'amplitude diffusée est donnée par la formule :

$$A(\theta) = -i \frac{\hbar \omega r_0}{mc^2} (S_y \sin 2\theta - 2S_x \sin^2 \theta \cos \theta) \quad (4.12)$$

Lorsque l'on abaisse la température, une transition de phase du première ordre se produit. A  $T_{SF} = 123 \text{ K}$ , les spin s'alignent le long du vecteur de la modulation. On appelle cela une transition de "spin flip" (voir figure 4.2). Cette fois  $S_x = S_y = 0$  et  $S_z \neq 0$ . L'amplitude diffusée change et devient ainsi :

$$A(\theta) = -i 2 \frac{\hbar \omega r_0}{mc^2} S_z \sin^3 \theta \quad (4.13)$$

Le pic de sur-structure lié à l'ODS disparaît à la transition de spin flip car l'intensité en  $\sin^3 \theta$  devient trop faible pour être mesurée. Il a été suggéré que cette transition de spin flip pourrait être liée à des effets de contraintes dans le matériau [53].

En plus de l'ODS, on observe également à 311 K l'apparition d'une ODC dans la même direction que l'ODS et qui possède un vecteur d'onde  $q_{ODC} = 2q_{ODS} = 4k_F$ . Deux théories peuvent expliquer l'apparition de cet ODC. La première énoncée par Young et Sokoloff [54], reprend l'argument de nesting mais cette fois entre les deux poches de trous distantes de  $4k_F$  comme présenté sur la figure 4.1. La deuxième théorie fait intervenir un effet

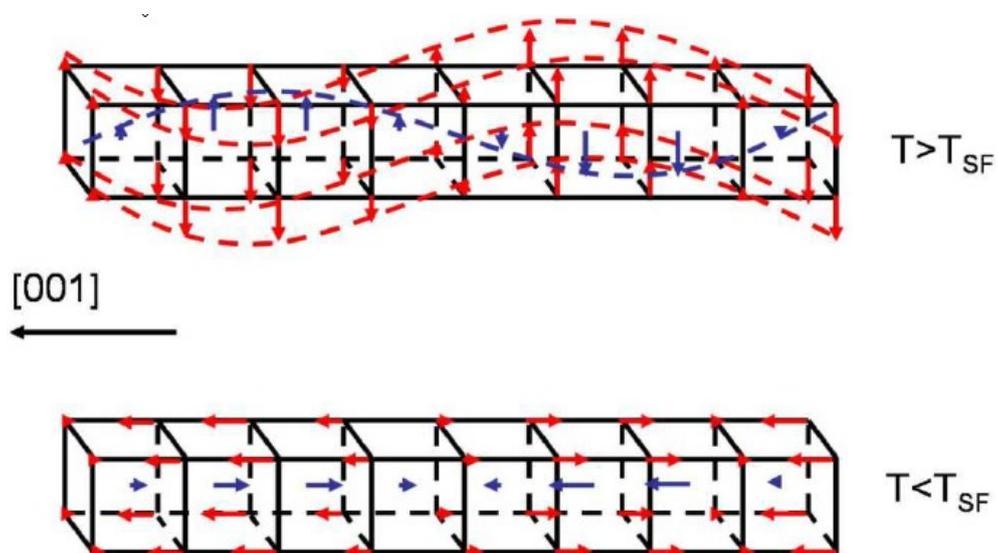


FIGURE 4.2 – Figure représentant la structure magnétique du Chrome au-dessus de la température de spin flip en haut, et en dessous de la température de spin flip en bas. On a représenté une ODS dans la direction (001) ce qui est le cas pour notre échantillon. En rouge sont représentés les spins des atomes des coins du cube et en bleu les spins des atomes centraux. En réalité la longueur d'onde est de l'ordre de 21 mailles atomiques et est incommensurable mais pour des raisons évidentes de clarté, nous l'avons réduite à 3 mailles atomiques [1].

de magnétostriction dû à l'apparition de l'ODS. Cette magnétostriction entraînerait une distorsion périodique de vecteur d'onde  $4k_F$ , ce qui correspond à deux fois le vecteur d'onde magnétique. Les expériences menées jusqu'à présent, n'ont toujours pas pu écarter une théorie par rapport à l'autre.

Afin d'avancer dans la compréhension du lien entre l'ODC et l'ODS de nombreuses expériences ont été mises en œuvre. La micro-diffraction des rayons X a montré que les domaines présentant des ODC et des ODS sont corrélés [55]. De plus, l'ordre de spin et de charge décroissent toutes les deux exponentiellement avec la pression [56] et disparaissent rapidement avec le dopage. Malgré cela, des différences existent, notamment sur leur longueur de cohérence. Des expériences de diffraction cohérente des rayons X ont montré que l'ODS est moins sensible aux défauts que l'ODC [57]. Dans le but de sonder encore les liens entre ODS et ODC, nous avons mesuré le satellite lié à l'ODC au passage de la transition spin flip en diffraction cohérente des rayons X. Jusqu'à maintenant, aucun effet de la spin flip n'a été observé sur l'ODC mais l'utilisation de la diffraction cohérente des rayons X et d'un micro faisceau nous permet d'être plus sensibles aux modifications de largeur du satellite et à la présence de défauts.

#### 4.2.4 Coexistence ODC et ODS

Les premières expériences de test sur cet échantillon ont donné des largeurs pour le pic de Bragg de l'ordre de 0.1 degré ce qui témoigne d'une mauvaise qualité cristalline. En observant la surface au microscope, on peut constater sur la figure 4.3 que celle-ci est très déformée. Afin d'améliorer cet état de surface qui nuit aux profils de diffraction des rayons X, nous l'avons poli avec des disques de polissage dont les grains ont varié de  $30 \mu m$  à  $1 \mu m$ . Ainsi, au final, les défauts de surface restant sont de l'ordre du micron (voir figure 4.3). Enfin, pour relâcher les contraintes appliquées au matériau lors du polissage (écrouissage), nous avons effectué une attaque chimique pour enlever environ  $10 \mu m$  d'épaisseur à l'échantillon. Ce traitement nous a permis d'améliorer considérablement la qualité cristalline pour avoir des Bragg de largeur 0.008 degrés alors que nous avions une largeur de pic de 0.1 degré avant le traitement.

L'expérience de diffraction a été effectuée sur la ligne CRISTAL de SOLEIL. Pour avoir une bonne cohérence spatiale et temporelle, nous travaillons habituellement à basse énergie, aux alentours de  $8 keV$  (voir chapitre 1). Le seuil K du chrome étant à  $5.989 keV$ , nous avons travaillé juste en dessous du seuil pour éviter la fluorescence mais tout en restant non résonnant. Nous avons travaillé dans le plan horizontal, en utilisant une caméra CCD Andor comme détecteur dont les pixels ont une taille de  $13 \times 13 \mu m^2$ . Le paramètre

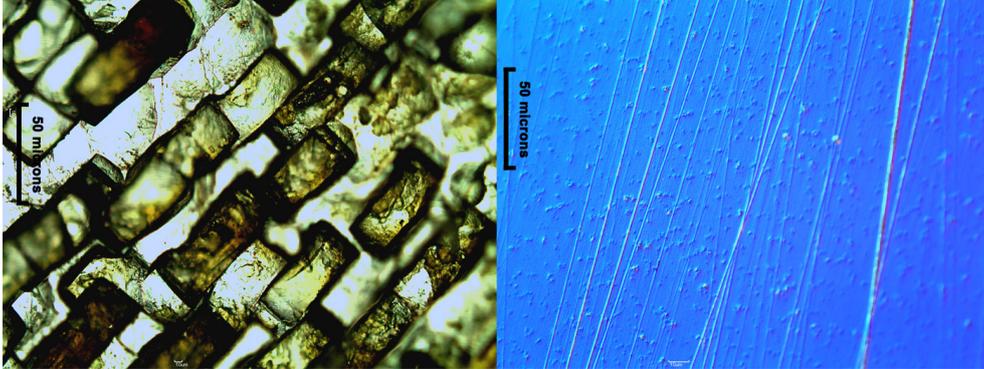


FIGURE 4.3 – A gauche, l'état de surface de notre échantillon avant le polissage. On voit des défauts de surface de plusieurs dizaine de micron. A droite, l'image de la même surface après polissage. Il subsiste seulement quelques rayures d'une largeur de l'ordre du micron. L'échantillon a ensuite subit une attaque chimique sur une dizaine de micron pour relâcher les contraintes dues au polissage

de maille du chrome étant de  $2.88 \text{ \AA}$ , les pics de Bragg à cette énergie se retrouvent à grands angles. Nous n'avons donc accès qu'au Bragg (002) dans le plan horizontal et dont l'angle de diffraction  $2\theta \approx 90$  degrés. Le but étant de voir l'influence de la transition de spin flip sur l'ODC, nous avons mesuré le satellite (0 0 2 +  $2\delta$ ) de l'ODC et le satellite (0 0 1 +  $\delta$ ) de l'ODS pour plusieurs températures. La figure 4.4 représente une coupe du réseau réciproque dans le plan (0 $kl$ ). Le satellite d'ODS en fonction de la température de 150  $K$  à 70  $K$  est présenté sur la figure 4.5. Nous avons dans le même temps mesuré le satellite d'ODC pour différentes températures. Lors de la mesure de l'ODC, les fentes échantillons ont été fermées à  $10 \times 10 \mu m^2$  afin d'obtenir un faisceau cohérent et ainsi sonder les défauts de phase et voir leur évolution avec la température (voir figure 4.6).

La mesure de l'ODS a été effectuée avec des fentes échantillon ouvertes à  $100 \times 100 \mu m^2$ . Le faisceau n'est donc pas cohérent. En intégrant l'intensité du pic sur la caméra, nous en déduisons une température de transition de l'ordre de  $T_{SF} = 80 \text{ K}$  (voir figure 4.2). Dans la littérature, cette température de spin flip est de  $T_{SF} = 123 \text{ K}$ . Il est bien connu que les températures de transition de l'ODC, de l'ODS et de la spin-flip sont très sensibles au taux de dopage [50]. La différence peut donc s'expliquer par un matériau dopé par la présence d'impuretés, diminuant ainsi la température de transition [50]. Sur la figure 4.6 on constate un élargissement de l'ODC au passage de la transition de spin flip. Nous avons mesuré la largeur du pic dans la direction de l'élargissement en fonction de la température (voir figure 4.7).

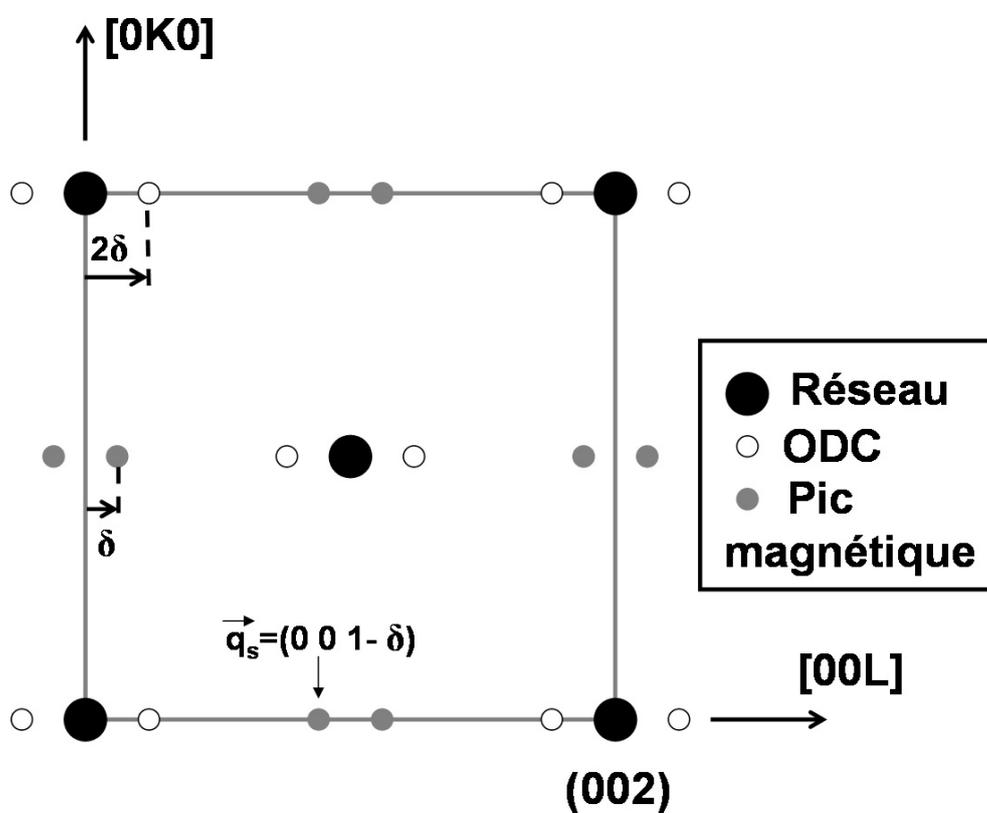


FIGURE 4.4 – Coupe de l'espace réciproque du chrome pur mono-cristallin mono-domaine [1].

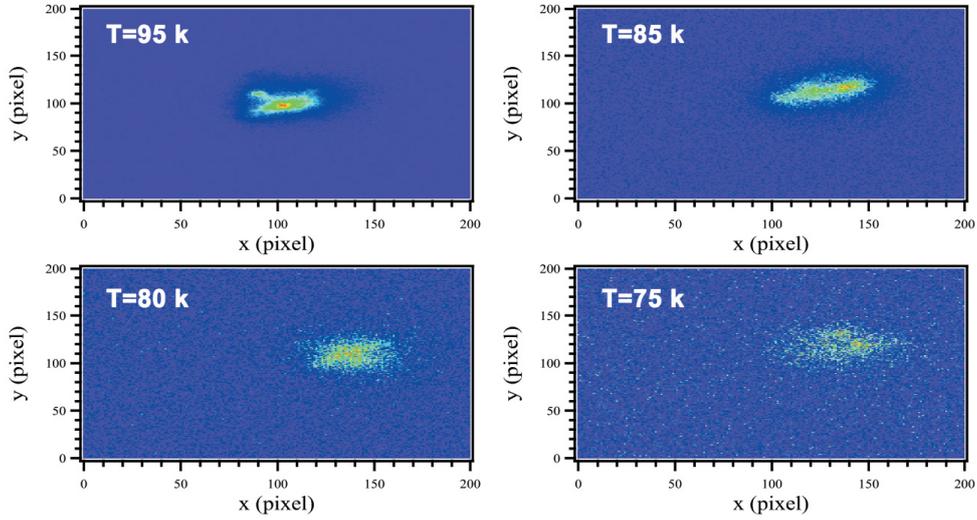


FIGURE 4.5 – Images à 2 dimensions du satellite  $(0\ 0\ 1 + \delta)$  associé à l'ODS pour différentes températures. L'intensité du satellite diminue lorsqu'on abaisse la température et que l'on dépasse la température de spin flip (voir texte). Nous pouvons estimer cette température de transition à  $T_{SF} = 80K$ .

Dans la littérature, aucun élargissement n'avait été observé mais notre micro-faisceau cohérent est plus sensible au changement de largeur ainsi qu'aux défauts de phase. Nous avons reproduit cette mesure pour différentes positions du faisceau sur l'échantillon en faisant des pas de  $10\ \mu m$  ce qui correspond à la taille de notre faisceau. Ceci nous a permis de sonder une large zone afin de s'affranchir de la dilatation thermique. On obtient un élargissement quel que soit la position sur l'échantillon autour de la spin flip (voir figure 4.7).

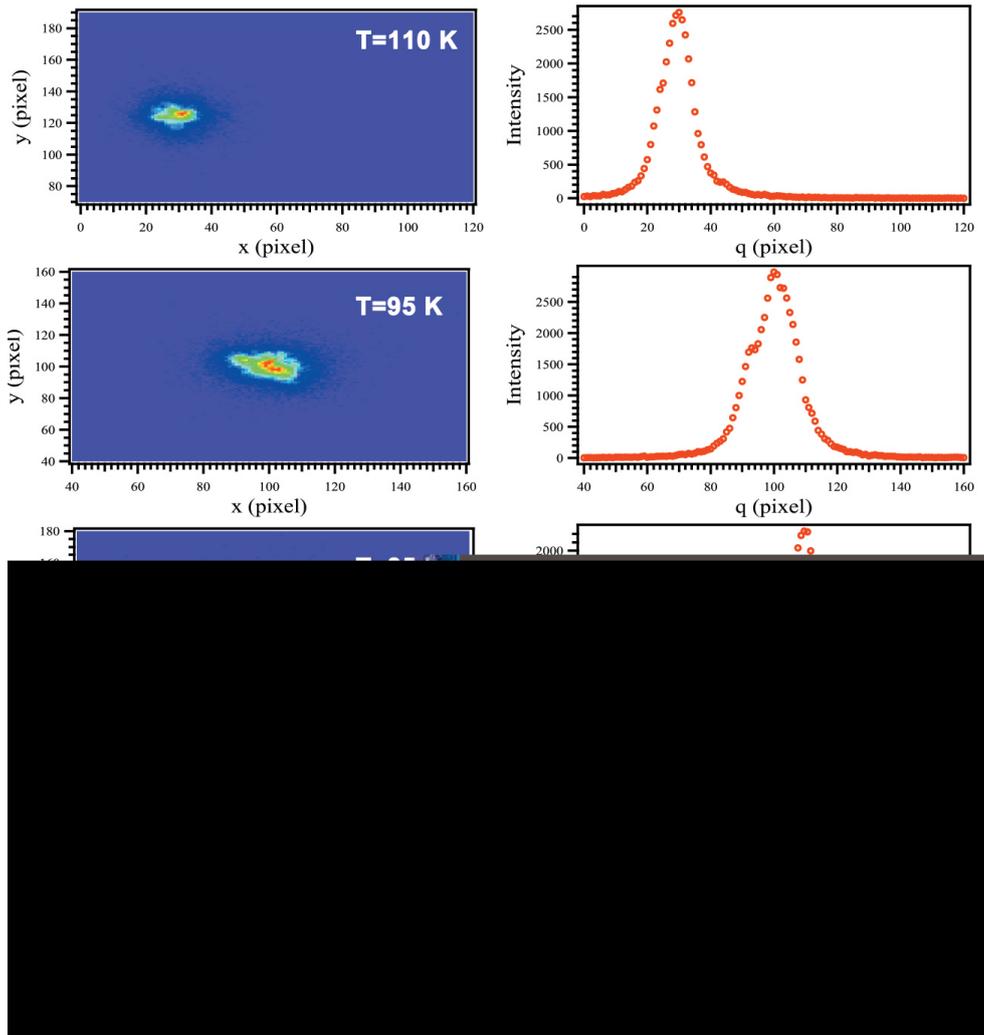


FIGURE 4.6 – Colonne de gauche : images à 2 dimensions du satellite ( $2+2\delta\ 0$ ) associé à l'ODC en fonction de la température de  $110\text{ K}$  à  $75\text{ K}$ . Colonne de droite : coupe dans la direction horizontale. On constate un élargissement du pic au passage de la spin flip.

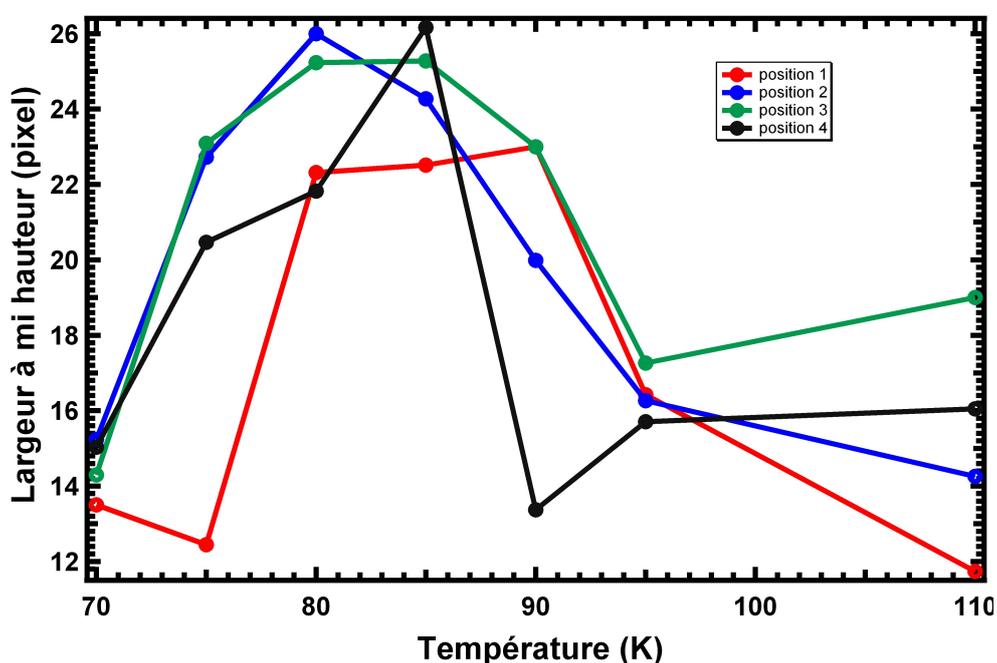


FIGURE 4.7 – Largeur du pic  $(2 + 2\delta 0 0)$  associée à l'ODC en fonction de la température. La mesure a été reproduite pour différentes positions sur l'échantillon. D'une position à l'autre le faisceau a été translaté de  $10 \mu m$  (ce qui correspond à la taille du faisceau) dans le sens de la contraction thermique. Nous observons un élargissement du pic associé à l'ODC au passage de la spin flip.

## 4.3 $NbSe_2$ : coexistence ODC et supraconductivité

### 4.3.1 La supraconductivité

La supraconductivité conventionnelle à été découverte dans le Mercure par K. Onnes en 1911 mais ce n'est que 40 ans après, dans les années 1950, qu'une description adéquate d'abord phénoménologique par Ginzburg et Landau puis microscopique par Bardeen, Cooper et Schrieffer, a pu être proposée. L'état fondamental est décrit par un Hamiltonien proche de l'Hamiltonien de Frölich que nous avons vu pour les ODC avec une partie d'interaction électron/phonon de la forme :

$$H_{eph} = \sum_{k,q} g_q a_{k+q}^+ a_k (b_q + b_{-q}^+) \quad (4.14)$$

où les  $a^+$  et  $a$  sont les opérateurs de création et d'annihilation d'électrons et les  $b^+$  et  $b$  les opérateurs de phonons.  $g$  est une constante de couplage électron-phonon. Cette interaction électron-phonon peut se réécrire comme une interaction attractive entre électrons [58]. Cette interaction attractive va former des paires entre électrons de moments opposés (puisque le moment total doit être conservé). On peut ainsi écrire l'Hamiltonien BCS sous la forme simplifiée :

$$H_{BCS} = \sum_k \epsilon_k a_k^+ a_k - \frac{V}{\Omega} \sum_{k,k'} a_{k,\uparrow}^+ a_{-k,\downarrow}^+ a_{-k',\uparrow} a_{k',\downarrow} \quad (4.15)$$

On définit ainsi les opérateurs annihilation et création de paire de Cooper [59] par les relations :

$$\begin{aligned} c_k^+ &= a_{k,\uparrow}^+ a_{-k,\downarrow}^+ \\ c_k &= a_{-k',\uparrow} a_{k',\downarrow} \end{aligned} \quad (4.16)$$

Le paramètre d'ordre de cette transition est tout naturellement donné par le nombre moyen de paires de Cooper présentes, ce nombre étant nul dans la phase haute température :

$$\Delta = \frac{V}{\Omega} \sum_k \langle c_k^+ c_{-k}^+ \rangle \quad (4.17)$$

Cette transition s'accompagne de l'ouverture d'un gap au niveau de Fermi de valeur  $2\Delta$  qui correspond à l'énergie nécessaire pour briser une paire de

Cooper [59]. La relation BCS relie ainsi cette valeur du gap à la température de transition de phase :

$$\Delta = 1.75k_B T_c \quad (4.18)$$

Dans l'état supraconducteur, la résistivité électrique est rigoureusement nulle. Ces matériaux permettent ainsi de transporter du courant sans dissipation. Cette propriété est la plus évidente mais la vraie nature d'un supraconducteur est révélée par ses propriétés magnétiques. Lorsque l'échantillon est refroidit de l'état normal à l'état supraconducteur sous champ magnétique, ce dernier va expulser le champ magnétique lors de la transition afin d'avoir un champ  $B = 0$  à l'intérieur du matériau [60]. Cette propriété appelé effet Meissner est décrit par l'équation suivante du champ magnétique  $B$  en fonction d'un champ extérieur appliqué  $H_{ext}$  :

$$B = H_{ext} + 4\pi M = 0, \quad (4.19)$$

ce qui correspond à une susceptibilité  $\chi = -1/4\pi$ . Nous observons donc dans les supraconducteurs un diamagnétisme parfait qui découle de la conductivité infinie. Cependant, à partir d'une certaine valeur  $H_c$  de champ appliqué à l'échantillon, l'état supraconducteur est détruit. On obtient ainsi pour des matériaux très purs la courbe d'aimantation présentée sur la figure 4.8. On appelle ces matériaux des supraconducteurs de type I.

D'autres matériaux, appelés supraconducteurs de type II, montrent une courbe d'aimantation schématisée figure 4.9. Pour des champs faibles, on retrouve un comportement diamagnétique parfait jusqu'à un champs critique  $H_{c1}$ . Au-dessus de ce champ, le matériau possède toujours des propriétés supraconductrices mais le diamagnétisme est partiel. Puis, après un champ critique  $H_{c2}$ , la supraconductivité est complètement détruite. Le comportement entre les deux champs critiques  $H_{c1}$  et  $H_{c2}$  s'explique par une pénétration du champ magnétique dans le supraconducteur entraînant l'apparition de zones où la supraconductivité est détruite et pour lesquelles le matériau est dans l'état normal. Ces zones, appelées vortex, sont traversées par des lignes de champs magnétiques et entourées de super courants qui tendent à renforcer le champ magnétique (au contraire des super courants loin de ces zones qui s'opposent au champs magnétique). Les différents vortex s'organisent ensuite en réseau périodique, le plus souvent hexagonal, et dont le paramètre de maille  $a$  dépend du champ appliqué  $B$  :

$$a \propto \sqrt{B} \quad (4.20)$$

Ainsi l'augmentation du champ magnétique densifie le réseau de vortex jusqu'à détruire complètement l'état supraconducteur [62].

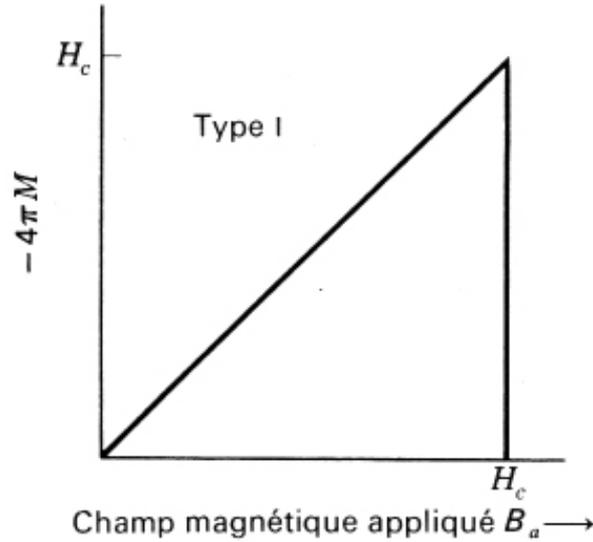


FIGURE 4.8 – Courbe d’aimantation d’un supraconducteur de type I. On voit un comportement diamagnétique parfait jusqu’à un certain champ critique  $H_c$  à partir duquel la supraconductivité est détruite [61].

Nous allons dans la suite étudier comment cet état supraconducteur peut être influencé par (ou peut influencer) la coexistence d’un état ODC. Nous tenterons également d’observer un réseau de vortex en diffraction magnétique des rayons X (voir annexe 2), tout cela dans le matériau  $NbSe_2$ , supraconducteur de type II et échantillon modèle pour l’étude des réseaux de vortex et de la supraconductivité conventionnelle.

### 4.3.2 Description du composé

Le composé  $NbSe_2$  cristallise en une structure composée d’une succession de plans hexagonaux formés par les atomes de Sélénium. Entre ces plans, s’intercalent les atomes de Niobium (voir figure 4.10). Cette structure est fortement anisotrope et (de la même manière que pour le Graphite) les différents plans hexagonaux de vecteurs de base  $\vec{a} = \vec{b} = 3.47 \text{ \AA}$  sont faiblement liés entre eux (distance inter plan 12,54  $\text{\AA}$ ). Cette structure peut donc être qualifiée de quasi-bidimensionnelle.

Comme on s’y attend pour une structure bidimensionnelle,  $NbSe_2$  ne présente pas la particularité de nesting parfait. On ne peut donc pas parler de transition de Peierls à proprement dit. Par contre, on constate que le nesting, même imparfait, combiné à une interaction électron-phonon suffisante, entraîne l’apparition d’une phase d’onde de densité de charge. La

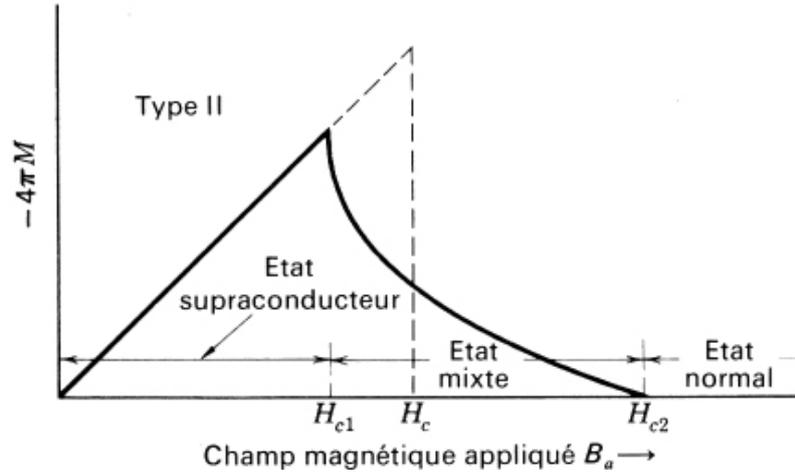


FIGURE 4.9 – Courbe d’aimantation d’un supraconducteur de type II. On voit un comportement diamagnétique parfait jusqu’à un certain champ critique  $H_{c1}$ . A partir de ce champ le diamagnétisme devient partiel à cause de la pénétration du champ magnétique à travers les vortex. A partir d’un deuxième champ critique  $H_{c2}$  l’état supraconducteur est complètement détruit [61].

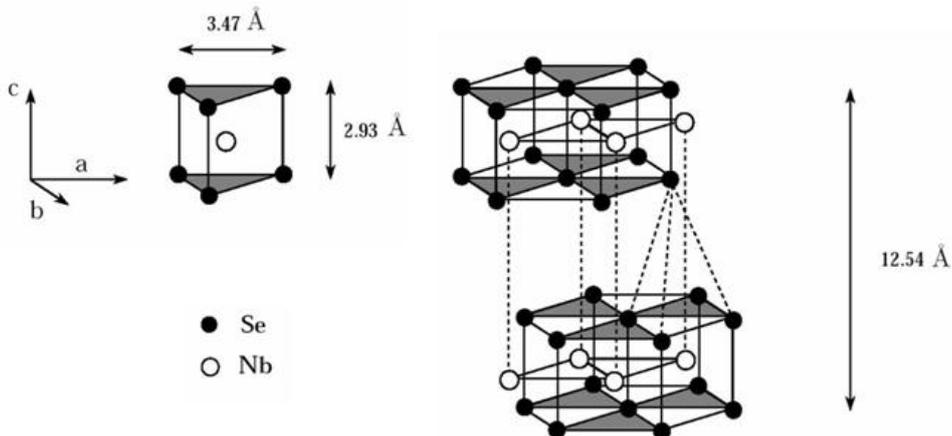


FIGURE 4.10 – Structure du composé  $NbSe_2$ , tiré de [63]. Structure du composé  $NbSe_2$  les plan hexagonaux de sélénium sont espacés d’environ  $12 \text{ \AA}$  rendant leur interaction faible comparé au paramètre de maille  $a = 3.$ . On peut ainsi considérer ce matériaux comme bidimensionnel.

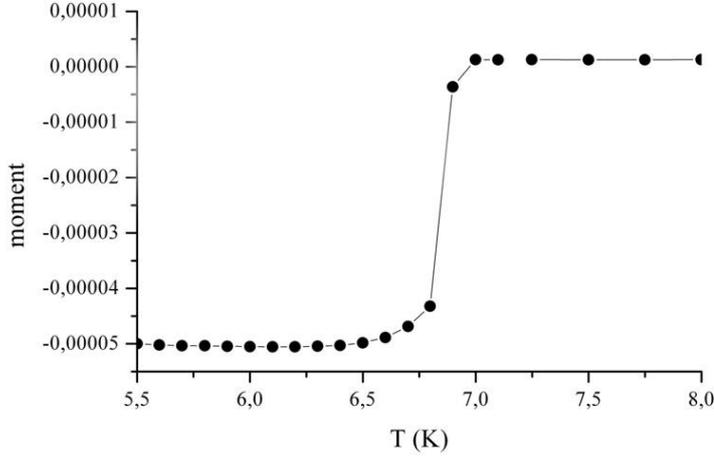


FIGURE 4.11 – Courbe d’aimantation en fonction de la température. Moment magnétique en unités arbitraires. On trouve une température de transition supraconductrice de  $T_c = 6.8 K$ . Mesures de SQUID réalisées au LPS par Julien Bobroff

température de transition est de  $T_p = 35 K$ . Si l’on regarde attentivement la surface de Fermi, le nesting le plus favorable se trouve dans la direction  $\vec{q} = (1/3, 1/3, 0)$  (voir [64]) or, expérimentalement, on trouve une ODC qui se développe suivant les directions  $\vec{q} \simeq (1/3, 0, 0)$  et  $\vec{q} \simeq (0, 1/3, 0)$ . Ceci montre que contrairement à une transition de Peierls classique ce n’est pas le nesting qui va être le paramètre le plus important mais l’interaction électron/phonon. Notons que l’onde de densité de charge reste incommensurable avec le pas du réseau et on constate que celle-ci se développe avec un vecteur d’onde  $\vec{q}_c = 1/3(1 - \delta)a^*$  [65]. Malgré cette incommensurabilité, aucune propriété de transport non linéaire associée au glissement de l’ODC n’a été observée dans ce matériau, sûrement à cause de l’aspect bidimensionnel de l’ODC.

En plus d’une transition ODC,  $NbSe_2$  possède une transition supraconductrice à plus basse température ( $T_c = 7 K$ ). Des études de diffraction de rayons X montrent que la longueur de corrélation atteint un minimum à  $T = 7 K$ , ce qui est proche de la température de transition supraconductrice [63]. Nous avons décidé d’étudier les effets du passage de la transition supraconductrice sur l’ODC en utilisant un micro-faisceau cohérent qui sera très sensible à un élargissement de pic ou à l’apparition de défauts de phase. Les rayons X n’étant pas sensibles à la transition supraconductrice, nous avons déterminé la valeur  $T_c$  de cette température de transition grâce à une mesure de SQUID qui nous donne une valeur de transition à  $T_c = 6.8 K$  (voir figure 4.11).

Comme souvent avant une expérience en synchrotron, nous avons préala-

blement orienté l'échantillon en laboratoire sur une anode tournante au LPS. L'orientation est présentée sur la figure 4.12.

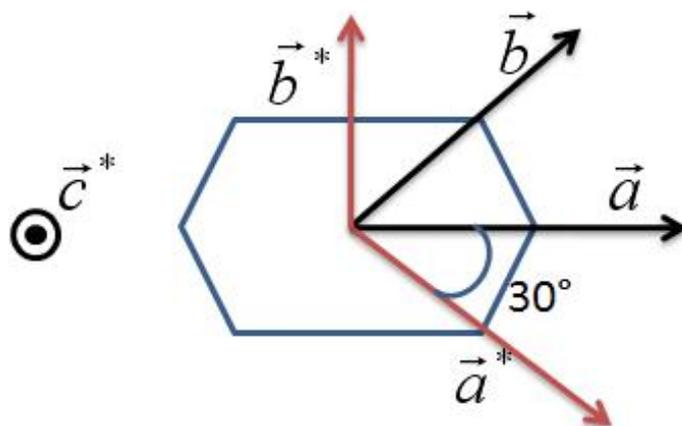


FIGURE 4.12 – Orientation de l'échantillon de  $NbSe_2$

Dans la suite, nous présenterons des résultats préliminaires d'une expérience sur la coexistence entre supraconductivité et ODC. En annexe 2 est présenté une expérience qui a pour but de voir pour la première fois un réseau de vortex dans la phase supraconductrice par diffraction de rayons X.

### 4.3.3 Résultats expérimentaux

#### Coexistence ODC et supraconductivité

Nous avons effectué une expérience de diffraction cohérente sur la ligne CRISTAL de Soleil pour mesurer l'évolution du satellite d'ODC au passage de la transition supraconductrice et ainsi voir s'il y a un quelconque lien entre les deux phénomènes. Nous avons donc sondé le satellite  $(2/3 + \delta \ 0 \ 0)$  au-dessus de la transition supraconductrice (à  $T = 8K$ ) et en dessous de la transition ( $T = 6K$ ). Nous avons utilisé un faisceau cohérent avec des fentes échantillon fermées à  $10 \times 10 \ \mu m$ . Malheureusement, le satellite d'ODC s'est révélé très diffus, nous laissant donc avec peu d'intensité (environ  $0.1 \ cps/s$ ) (voir figure 4.13). Pour pouvoir observer suffisamment de signal nous avons du combiner les pixels 8 par 8 ce qui permet d'augmenter la valeur du signal sur bruit mais par la même occasion nous empêche de voir du speckle. Nous avons ainsi pu observer une modification de la largeur à mi-hauteur et de l'intensité maximale du satellite au passage de la transition supraconductrice (voir

figure 4.13). Nous n'avons pas eu le temps de mesurer la rocking curve mais seulement une coupe au maximum de celle-ci. Cependant il semblerait que la longueur de corrélation augmente de plusieurs pourcents au passage de la transition supraconductrice. L'ordre à longue distance de l'ODC semble donc s'améliorer dans la phase supraconductrice. La longueur de corrélation atteint une valeur d'environ  $50 \text{ nm}$ . Ainsi, même si la contraction des matériaux est quasiment nulle lors d'un refroidissement de  $8 \text{ K}$  à  $6 \text{ K}$ , il n'est pas exclu que le faisceau ai bougé de quelques centaines de nanomètres entre les deux mesures du satellite changeant ainsi le domaine éclairé et entraînant la contraction observée. Pour confirmer que le changement de largeur est dû au passage de la transition supraconductrice, il faudrait réitérer l'expérience sur différents échantillons mieux ordonnés. Si cette contraction du satellite au passage de la supraconductivité se confirmait, on pourrait conclure que l'ODC est favorisé par l'apparition de la supraconductivité. Ce résultat peut sembler curieux puisque les deux phénomènes sont antagonistes. Pourtant des expériences d'ARPES tendent aussi vers cette conclusion [66, 67].

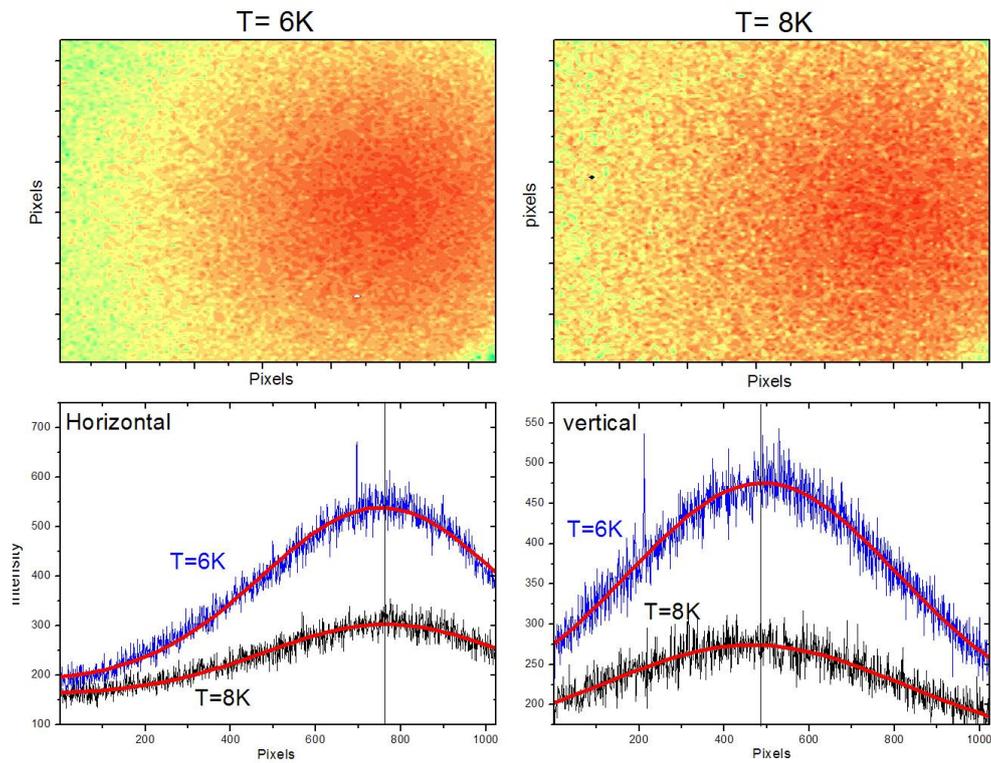


FIGURE 4.13 – Images de diffraction présentant l’image à 2D suivit des coupes dans les directions verticales et horizontales. La colonne de gauche présente les résultats pour une température de 6  $K$  dans la phase supraconductrice et la colonne de droite pour une température De 8  $K$  donc dans la phase ODC. Mesures effectuées sur la ligne Cristal de SOLEIL

# Conclusion

La majorité des expériences présentées dans cette thèse sont des expériences de diffraction cohérente des rayons X. Ainsi la caractérisation et l'étude précise d'un faisceau de rayons X cohérent fut une nécessité afin d'interpréter correctement les expériences qui ont suivies.

L'utilisation de la théorie pour des sources dites totalement incohérentes nous a permis d'obtenir les relations donnant des valeurs approchées des longueurs de cohérence temporelle et spatiale. Grâce à cela, nous pouvons en début de chaque expérience de diffraction cohérente des rayons X, calculer simplement et rapidement une valeur approchée des longueurs de corrélation de notre faisceau et les ajuster afin d'avoir un bon compromis entre cohérence et intensité.

Pour aller plus loin dans l'étude de ces faisceaux, nous avons ensuite mis en place une expérience "classique" de diffraction par une fente. Le développement plus compliqué de la théorie de la diffraction d'un faisceau partiellement cohérent nous a permis d'ajuster nos données expérimentales et ainsi de remonter de manière précise à la longueur de corrélation spatiale.

Fort de notre caractérisation des faisceaux cohérents, nous avons pu utiliser la technique de diffraction cohérente des rayons X pour l'étude des défauts de phase dans la matière. La première expérience effectuée sur l'étude des boucles de dislocation dans le Silicium est à la fois une expérience test pour l'utilité d'un faisceau cohérent, mais également une vraie avancée dans l'étude de tel défaut cristallin. Nous avons ainsi montré que la cohérence apporte de nombreux avantages dans l'imagerie des défauts de phase dans les cristaux. En comparaison à la topographie, nous sommes capable de sonder plus précisément une boucle de dislocation et notamment la ligne de dislocation. Ceci nous a permis de différencier une boucle parfaite d'une boucle dissociée en deux partielles. Avec cette technique nous ouvrons l'étude de ces défauts immergés dans le volume de l'échantillon contrairement aux techniques, par ailleurs plus précise, telles que la microscopie électronique qui sonde les dislocations proches de la surface. De plus, nous pouvons espérer étudier les propriétés de tels objets sous pression ou sous champs électromagnétique.

En étudiant la topologie d'une boucle de dislocation nous avons en même temps montré la grande sensibilité de la diffraction cohérente des rayons X aux défauts de phases. C'est donc naturellement que nous nous sommes orientés vers l'étude du glissement d'une ODC sous l'application d'un courant. En effet, les défauts jouent un rôle important lors de la mise en mouvement d'une ODC. Nous avons donc effectué une expérience de diffraction cohérente de rayons X sur l'ODC du composé  $NbSe_3$ . Jusqu'à cette expérience le seul signe de la déformation d'une ODC lors de l'application d'un courant inférieur au seuil était un élargissement du pic de diffraction. Grâce à la diffraction cohérente des rayons X, nous avons pu confirmer l'apparition de défauts de phase (et non d'amplitude) dont le nombre diminue lorsque le courant approche du courant seuil ce qui confirme la théorie du "creep". Au-dessus du seuil, nous avons sondé l'effet de la présence d'une marche en surface ce qui est courant dans les composés  $NbSe_3$ . Nous avons également vu, grâce à la très grande résolution de notre micro-faisceau, un effet de la conversion de courant au niveau des électrodes. La grande force de cette expérience est de pouvoir résoudre simultanément les différents effets liés au contact, aux défauts cristallins, et aux défauts de surface dans les régimes statiques et de glissement de l'ODC, et ainsi d'avoir un point de vue général sur la physique du glissement des ODC.

Afin de pousser un peu plus l'étude des ODC sous courant, nous avons mis en place une expérience dans laquelle nous couplerons diffraction et mesure de bruit. Pour cette expérience, que nous effectuerons sur le composé  $K_{0.3}MoO_3$ , nous avons effectué de nombreuses pré-mesures de transport qui ont permis de préparer l'échantillon pour les expériences de diffraction cohérentes. Ces expériences qui auront lieu fin 2012 permettront de corrélérer *in-situ* la diffraction aux mesures de transport et ainsi de corrélérer le glissement des électrons condensés dans l'ODC aux vibrations du réseau.

Après avoir étudié les ODC, il nous a paru naturel d'étudier ce système lorsqu'il coexiste avec d'autres phases telles qu'une ODS ou la supraconductivité. Les effets de la coexistence sont souvent faibles et compliqués à étudier. Nous avons tout de même réussi à observer un élargissement du pic de Bragg lié à l'ODC lors du passage de la "spin flip" dans le chrome. Nous pensons que cet élargissement est lié à un amollissement des constantes élastiques lors de la transition de "spin flip", mais un travail théorique reste à effectuer pour appuyer nos expériences. De même, l'étude dans le composé  $NbSe_2$ , d'un effet quelconque de la transition supraconductrice sur l'ODC, nous a permis d'observer lors d'expériences préliminaires un élargissement du satellite lié à l'ODC mais ce résultat est à prendre avec précaution à cause de la mauvaise qualité cristalline de l'échantillon utilisé.

Nous avons terminé par la présentation d'expériences dans lesquelles nous

tentons d'observer un réseau de vortex en diffraction des rayons X. Les résultats sont encourageants mais une étude plus importante, tant théorique qu'expérimentale doit être mise en place notamment à l'aide de champ magnétique variable qui permettrait de faire évoluer le paramètre de maille du réseau de vortex. Les réseaux de vortex sont très semblables aux ODC et possèdent également des propriétés de glissement lors de l'application d'une contrainte extérieure. Ainsi, l'observation de tels objets en rayons X nous permettrait d'étudier leur mouvement avec un faisceau cohérent comme pour les ODC et ainsi retrouver peut être le même comportement.



# Annexe 1

En partant de la formule de Fresnel pour la diffraction par une fente mais en prenant cette fois une vibration lumineuse en chaque point  $s(x_1, t)$  qui ne soit pas forcément monochromatique on obtient la formule générale pour l'amplitude en un point  $X$  de l'écran :

$$A(X) = \frac{i}{\lambda} \int_{-\frac{a}{2}}^{\frac{a}{2}} \alpha_1 s(x_1, t - \frac{d_1}{c}) dx_1 \quad (4.21)$$

où  $d_1$  est la distance de  $x_1$  à  $X$  et  $\alpha_1$  l'atténuation subit lors de cette propagation. On peut ensuite calculer l'intensité diffracté en  $X$  :

$$I(X) = \frac{1}{\lambda^2} \int_{-\frac{a}{2}}^{\frac{a}{2}} \int_{-\frac{a}{2}}^{\frac{a}{2}} \alpha_1 \alpha_2^* \langle s(x_1, t) s^*(x_2, t - \tau) \rangle_t dx_1 dx_2 \quad (4.22)$$

Cette formule est l'équivalent de la formule numéro machin mais pour un ensemble de source continue. On peut ensuite faire apparaître les fonction de corrélation définie par la formule machin 2 :

$$I(X) = \frac{1}{\lambda^2} \int_{-\frac{a}{2}}^{\frac{a}{2}} \int_{-\frac{a}{2}}^{\frac{a}{2}} \alpha_1 \alpha_2^* \sqrt{I(x_1)} \sqrt{I(x_2)} \gamma(x_1, x_2; \tau) dx_1 dx_2 \quad (4.23)$$

où l'on a posé  $I(x_i) = \langle s(x_i, t) s^*(x_i, t) \rangle_t$ . On peut exprimer  $\gamma(x_1, x_2; \tau)$  en fonction de  $\gamma(x_1, x_2; 0)$  après propagation ce qui donne, en supposant les corrélations temporelles parfaites, la formule suivante :

$$I(X) = \frac{1}{\lambda^2} \int_{-\frac{a}{2}}^{\frac{a}{2}} \int_{-\frac{a}{2}}^{\frac{a}{2}} \alpha_1 \alpha_2^* \sqrt{I(x_1)} \sqrt{I(x_2)} \gamma(x_1, x_2; 0) \exp -i\pi \frac{(x_1 - X)^2 + (x_2 - X)^2}{\lambda z} dx_1 dx_2 \quad (4.24)$$

Pour aller plus loin nous allons supposer que la forme des corrélations et de l'intensité du faisceau incident sont gaussiennes :

$$\begin{aligned}
I(x_i) &= A \exp - \frac{x_i^2}{2\sigma^2} \\
\gamma(x_1, x_2; 0) &= \exp - \frac{(x_1 - x_2)^2}{2\xi_T^2}
\end{aligned}
\tag{4.25}$$

En injectant ces équations dans ... on obtient la forme de l'intensité diffracté par une fente dans le cadre du modèle gaussien :

$$I(X) = \frac{A^2}{\lambda^2 z^2} \int_{-\frac{a}{2}}^{\frac{a}{2}} \int_{-\frac{a}{2}}^{\frac{a}{2}} \exp\left(-\frac{x_1^2 + x_2^2}{4\sigma^2}\right) \exp\left(-\frac{(x_1 - x_2)^2}{2\xi_T^2}\right) \exp\left[-i\pi \frac{(x_1 - X)^2 - (x_2 - X)^2}{\lambda z}\right] dx_1 dx_2
\tag{4.26}$$

Dans une expérience de de diffraction cohérente en synchrotron la taille des fentes diffractes de l'ordre de  $10 \mu m$  est bien inférieur à la largeur  $\sigma$  u faisceau qui est de l'ordre de  $100 \mu m$  on peut donc considérer la fente comme éclairée de façon homogène et ainsi prendre la gaussienne liées à la forme du faisceau égale à 1. Si on ce place à une distance D des fentes considérée comme suffisamment grande pour être dans le régime de Fraunhofer, la formule se simplifie en :

$$I(X) = \frac{1}{\lambda^2 D^2} \int_{-\frac{a}{2}}^{\frac{a}{2}} \int_{-\frac{a}{2}}^{\frac{a}{2}} \exp\left(-\frac{(x_1 - x_2)^2}{2\xi}\right) \exp\left(\frac{2i\pi}{\lambda D}(X(x_1 - x_2))\right) dx_1 dx_2 \tag{4.27}$$

# Annexe 2

## Réseau de vortex

Les rayons X étant sensible au magnétisme, nous avons donc préparé des expériences afin d'observer un réseau de vortex dans la phase supraconductrice du composé  $NbSe_2$ . Comme nous l'avons vu dans la partie 4.3.1, les réseaux de vortex ont déjà été observé soit en diffraction de neutron, soit par mesure STM dans un échantillon de  $NbSe_2$  [68]. L'inconvénient de la diffraction des neutrons est l'impossibilité d'obtenir un faisceau cohérent mais également la résolution angulaire qui reste faible [62]. Ainsi l'observation en diffraction des rayons X d'un réseau de vortex ouvrirait des portes dans l'étude de ces réseaux magnétiques. En particulier, la cohérence des faisceaux de rayons X nous permettrait de voir le glissement d'un réseau de vortex comme nous avons pu le faire dans le chapitre précédent avec les ODC. Pour observer cet objet, nous avons effectué deux expériences en synchrotron qui ont demandé de nombreuses préparations. En effet le paramètre de maille du réseau de vortex est de l'ordre du micron, ce qui ramène les pics de Bragg à petits angles. Pour réaliser de telles expériences, nous avons besoin d'insérer un puits pour supprimer le faisceau direct en sorti de l'échantillon, mais il faut également optimiser la ligne pour éviter d'avoir des signaux parasites et du bruit de fond à petits angles. Nous avons donc effectué notre première expérience sur la ligne SWING de Soleil qui est spécialisée dans les mesures aux petits angles. Malheureusement, cette ligne ne possède ni cryostat pour refroidir l'échantillon ni diffractomètre pour l'orienter. Nous avons donc utilisé le cryostat de la ligne cristal, qui nous permet de descendre à 4 K pour lequel nous avons du fabriqué un support compatible avec la ligne SWING. Nous avons également installé, en quelques jour, un diffractomètre sur la ligne afin de pouvoir orienter correctement l'échantillon.

Enfin pour obtenir un réseau de vortex, l'échantillon doit être soumis à un champ magnétique le long de l'axe  $\vec{c}$ . Nous avons opté pour insérer des aimants permanents autour de l'échantillon, à l'intérieur du cryostat. La pièce portant les aimants à été fabriqué au LPS. Ce montage nous permet d'avoir un champ de l'ordre de 0.6 T au niveau de l'échantillon et qui est homogène

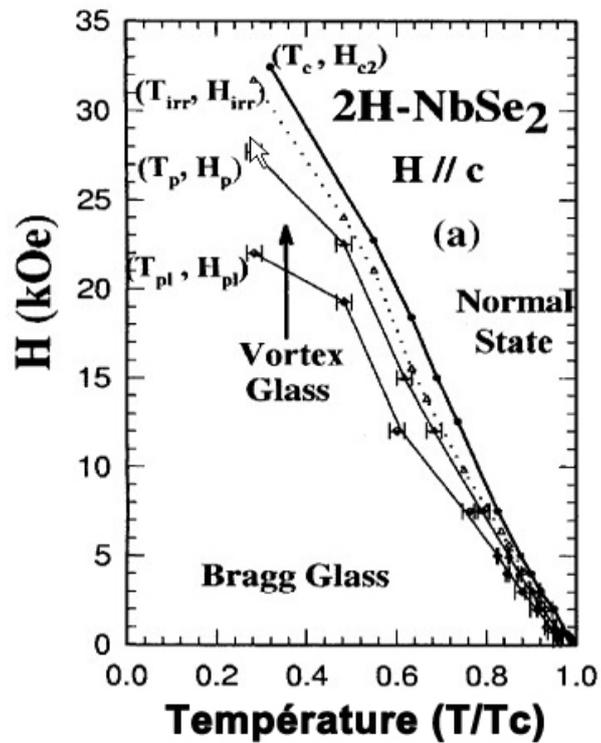


FIGURE 4.14 – Diagramme de phase du réseau de vortex dans  $NbSe_2$ . Le champ critique  $H_{c1}$  étant inférieur à  $1 \text{ kOe}$ , il n'est pas représenté. Nous prenons comme champ critique à ne pas dépasser pour rester dans une phase avec un réseau de vortex, le champ  $H_{pl}$  qui vaut  $12 \text{ kOe}$  pour une température de  $4 \text{ K}$  [69].

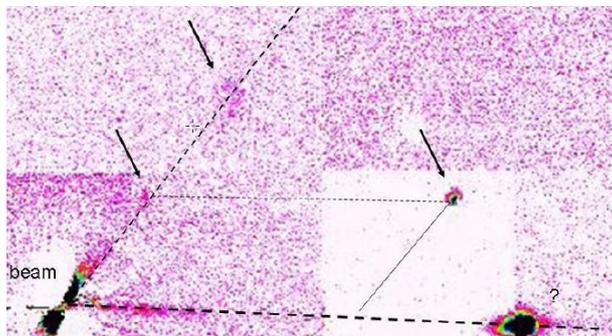


FIGURE 4.15 – Image de diffraction à petit angles obtenue sur la ligne SWING de SOLEIL. On observe du signal au niveau des flèche qui pourrait être du à la présence du réseau de vortex dans l'échantillon de  $NbSe_2$

sur la taille de l'échantillon. Le diagramme de phase du composé  $NbSe_2$  est présenté sur la figure 4.14, on voit que, pour une température de  $T = 4 K$ , le champ critique  $H_{c1}$  que nous devons dépasser est inférieur à  $1 kOe$  ce qui correspond à  $0.1 T$ . De plus, le champ critique  $H_{c2}$  à ne pas dépasser pour ne pas détruire l'état supraconducteur vaut  $1.2T$ . Ainsi, avec un champ de  $0.6 T$ , nous sommes dans la phase "Bragg glass" du diagramme de phase. Nous aurons ainsi bien la présence d'un réseau de vortex. Finalement l'expérience de diffraction se faisant par transmission, nous avons clivé notre échantillon afin d'obtenir un feuillet de  $70 \mu m$  d'épaisseur.

Sur la figure 4.15, on voit l'apparition de signal autour du puits qui pourrait être du à la présence du réseau de vortex. Malheureusement, nous n'avons pas pu affiner ces mesures, la préparation ayant pris beaucoup de temps. Nous avons donc retenté cette expérience sur la ligne ID01 de l'ESRF. Le montage expérimental était identique mais avec une résolution moins bonne. Les résultats de cette expérience sont présentés sur la figure 4.16. Lors de passage de l'état normal à l'état supraconducteur, on voit que la diffusion autour du faisceau directe prend une forme faisant penser à un hexagone. L'intégration de l'intensité sur une couronne centré sur le puits présenté sur la figure 4.16 fait apparaître des pics espacés d'un angle compris entre 50 et 70 degrés laissant penser à la présence de pics lié aux vortex mais trop proches du faisceau direct pour être correctement observé. Nous ne pouvons donc pas conclure sur l'observation d'un réseau de vortex mais ces expériences préliminaires laissent bon espoir. Afin d'améliorer cette expérience, il faut surtout travailler sur la façon d'appliquer le champ magnétique. En effet, l'utilisation d'aimant permanent empêche de faire des mesures en faisant varier le champ magnétique. L'utilisation d'une bobine permettrait d'obtenir un champ magnétique variable, ce qui permet d'influer le paramètre de maille du réseau de vortex et

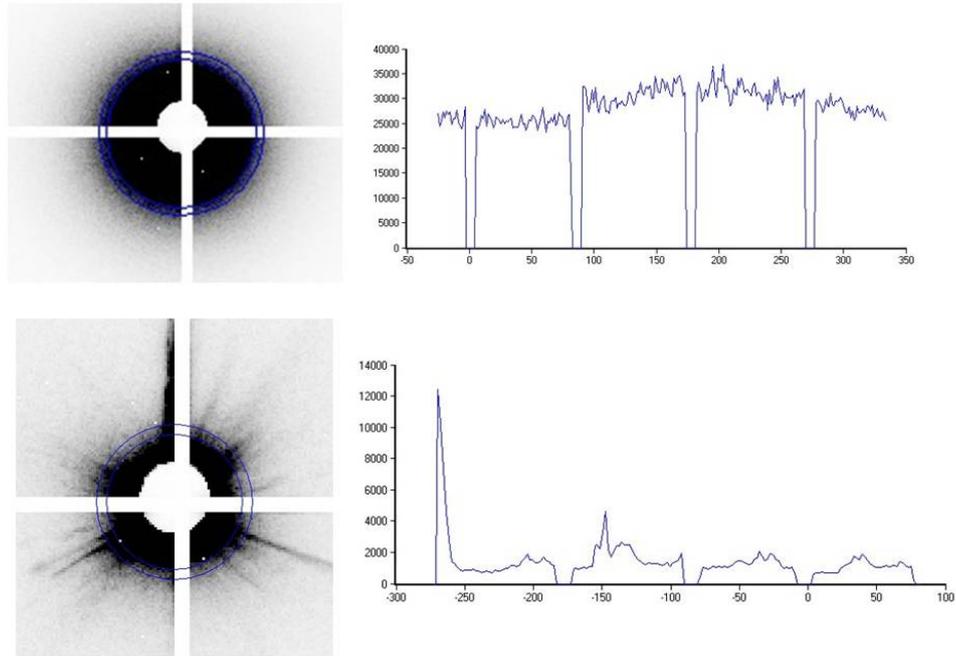


FIGURE 4.16 – Image de diffraction à petits angles. La ligne du haut correspond à la phase haute température ( $T = 15\text{ K}$ ). La ligne du bas correspond à la phase basse température ( $T = 4\text{ K}$ ). A côté des images à 2 dimensions sont présentées des coupes le long de la couronne bleu. Sur la coupe à basse température, on constate la présence de pics espacés d'un angle variant entre 50 et 70 degré. Ces pic sont peut être la signature du réseau de vortex.

ainsi pouvoir éloigner les pics de Bragg du faisceau direct.

# Bibliographie

- [1] V.L.R. Jacques. Application de la diffraction cohérente des rayons x à l'étude de défauts topologiques dans les structures atomiques et électroniques. *Ph.D. thesis*, 2009.
- [2] M. Born and E. Wolf. *Principles of Optics Electromagnetic Theory of Propagation, Interference and Diffraction of Light*. Pergamon Press (Ney York, NY), 1964.
- [3] L. Mandel and E. Wolf. *Optical Coherence and Quantum Optics*. Cambridge University Press, 1995.
- [4] E. Pinsolle V.L.R. Jacques, D. Le Bolloc'h. Estimation of the coherence properties of an undulator-generated x-ray beam from near-field and far-field slit diffraction visibilities. *accepté par Phys. Rev. B*, 107(19) :199602–, November 2012.
- [5] M.A. Krivoglaz. *Théorie de la diffusion des rayons X et des neutrons thermiques par les cristaux réels*. Masson et Cie, 1969.
- [6] M. Sutton, S. G. J. Mochrie, T. Greytak, S. E. Nagler, L. E. Berman, G. A. Held, and G. B. Stephenson. Observation of speckle by diffraction with coherent x-rays. *Nature*, 352(6336) :608–610, August 1991.
- [7] S. Ravy, D. Le Bolloc'h, R. Currat, A. Fluerasu, C. Mocuta, and B. Dkhil. Sr<sub>2</sub>FeO<sub>4</sub> displacive transition revisited via coherent x-ray diffraction. *Physical Review Letters*, 98(10) :105501, 2007.
- [8] S. Streit, C. Gutt, V. Chamard, A. Robert, M. Sprung, H. Sternemann, and M. Tolan. Two-dimensional dynamics of metal nanoparticles on the surface of thin polymer films studied with coherent x rays. *Phys. Rev. Lett.*, 98(4) :047801–4, January 2007.
- [9] Pierre Thibault, Martin Dierolf, Oliver Bunk, Andreas Menzel, and Franz Pfeiffer. Probe retrieval in ptychographic coherent diffractive imaging. *Ultramicroscopy*, 109(4) :338–343, March 2009.
- [10] Anna L. Kolesnikova Alexey E. Romanov. Application of disclination concept to solid structures. *Progress in materials science*, 54(6) :740–769, August 2009.

- [11] J. Friedel. *Dislocations*. Pergamon Press, 1964.
- [12] V. L. R. Jacques, S. Ravy, D. Le Bolloc'h, E. Pinsolle, M. Sauvage-Simkin, and F. Livet. Jacques et al. reply :. *Phys. Rev. Lett.*, 107(19) :199602–, November 2011.
- [13] H. Frohlich. On the theory of superconductivity : The one-dimensional case. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, 223(1154) :296–305, 1954.
- [14] G. Grüner. *Density Waves in Solids*. Addison Wesley, 1994.
- [15] A.J. Heeger. *Highly Conducting One-Dimensional Solids*. 1979.
- [16] L.P. Gork'ov and G. Grüner. *Charge Density Waves in Solids*. Elsevier Science, 1989.
- [17] W. Kohn. Image of the fermi surface in the vibration spectrum of a metal. *Phys. Rev. Lett.*, 2(9) :393–, May 1959.
- [18] C. Schlenker, J. Dumas, C. Escribe-Filippini, and H. Guyot. Charge density wave instabilities and transport properties of the low-dimensional molybdenum bronzes and oxides. In C. Schlenker, editor, *Low-Dimensional Electronic Properties of Molybdenum Bronzes and Oxides*. Kluwer Academic Publishers, 1989.
- [19] P. A. Lee, T. M. Rice, and P. W. Anderson. Fluctuation effects at a peierls transition. *Phys. Rev. Lett.*, 31(7) :462–, August 1973.
- [20] G.A. Toombs. Quasi-one-dimensional conductors. *Physics Reports*, 40 :181, 1978.
- [21] D. Jérôme and H.J.Schulz. Organic conductors and superconductors. *Advances in Physics*, 31 :299, 1982.
- [22] P. A. Lee and T. M. Rice. Electric field depinning of charge density waves. *Phys. Rev. B*, 19(8) :3970–r, April 1979.
- [23] R. M. Fleming and C. C. Grimes. Sliding-mode conductivity in nbse3 : Observation of a threshold electric field and conduction noise. *Phys. Rev. Lett.*, 42(21) :1423–, May 1979.
- [24] P. Monceau, N. P. Ong, A. M. Portis, A. Meerschaut, and J. Rouxel. Electric field breakdown of charge-density-wave-induced anomalies in nbse<sub>3</sub>. *Phys. Rev. Lett.*, 37(10) :602–, September 1976.
- [25] H J. P. van Midden A. Prodan. Charge density wave ordering in nbse3 : possible models and the experimental evidence. *arXiv*, April 2010.
- [26] J. Richard P. Monceau and M. Renard. Charge-density-wave motion in nbse3. i. studies of the différential resistance dv/di. *Phys. Rev. B*, 25(2) :931–, January 1982.

- [27] R. M. Fleming and D. E. Moncton. High-q-resolution scattering using synchrotron x radiation : 2h-tase2 and nbse3. *Phys. Rev. B*, 30(4) :1877–, August 1984.
- [28] Y. Li, S. G. Lemay, J. H. Price, K. Cicak, K. O’Neill, K. Ringland, K. D. Finkelstein, J. D. Brock, and R. E. Thorne. Imaging shear in sliding charge-density waves by x-ray diffraction topography. *Phys. Rev. Lett.*, 83(17) :3514–, October 1999.
- [29] R. Danneau, A. Ayari, D. Rideau, H. Requardt, J. E. Lorenzo, L. Ortega, P. Monceau, R. Currat, and G. Grübel. Motional ordering of a charge-density wave in the sliding state. *Phys. Rev. Lett.*, 89(10) :106404–, August 2002.
- [30] Y. Abulafia et al. Plastic vortex creep in yba2cu3o72x crystals. *Phys. Rev. Lett.*, 77 :1596, 1996.
- [31] Andreas Glatz and Thomas Nattermann. Displacement profile of charge densitywaves and domainwalls at critical depinning. *Phys. Rev. B*, 92(25) :257205–, 2004.
- [32] A. F. Isakovic, P. G. Evans, J. Kmetko, K. Cicak, Z. Cai, B. Lai, and R. E. Thorne. Shear modulus and plasticity of a driven charge density wave. *Phys. Rev. Lett.*, 96(4) :046401–, January 2006.
- [33] K. Cicak K. O’Neill and R. E. Thorne. Measurement of the shear strength of a charge densitywave. *Phys. Rev. Lett.*, 93(6) :066601–01, August 2004.
- [34] S. Brazovskii, N. Kirova, H. Requardt, F. Ya. Nad, P. Monceau, R. Currat, J. E. Lorenzo, G. Grübel, and Ch. Vettier. Plastic sliding of charge density waves : X-ray space resolved-studies versus theory of current conversion. *Phys. Rev. B*, 61(16) :10640–, April 2000.
- [35] P. Monceau D. Rideau. X-ray scattering evidence for macroscopic strong pinning centers in the sliding cdw state of nbse3. *Europhys. Lett.*, 86(2) :289, February 2001.
- [36] M. Greenblatt. Transition metal oxides bronzes with quasi low-dimensional properties. In Claire Schlenker, editor, *Low-Dimensional Electronic Properties of Molybdenum Bronzes and Oxides*. Kluwer Academic Publishers, 1989.
- [37] J. Graham and A.D. Wadsley. The crystal structure of the blue potassium molybdenum bronze, k0.28moo3. *Acta Crystallographica*, 20 :93, 1966.
- [38] C. Schlenker and J. Dumas. *Crystal Chemistry and Properties of Materials with Quasi-One-Dimensional Structures*. D.Reidel Publ. Co; Dordrecht, Boston, 1986.

- [39] J. P. Pouget, B. Hennion, C. Escribe-Filippini, and M. Sato. Neutron-scattering investigations of the kohn anomaly and of the phase and amplitude charge-density-wave excitations of the blue bronze  $\text{K}_0.3\text{MoO}_3$ . *Phys. Rev. B*, 43(10) :8421–, April 1991.
- [40] J.P. Pouget. Structural instabilities in the low dimensional molybdenum bronzes and oxides. In C. Schlenker, editor, *Low-Dimensional Electronic Properties of Molybdenum Bronzes and Oxides*. Kluwer Academic Publishers, 1989.
- [41] T.L. Adelman M.P. Maher. Size effects, phase slip, and the origin of  $f^{-\alpha}$  noise in  $\text{NbSe}_3$ . *Phys. Rev. Lett.*, 43(12) :1596, April 1991.
- [42] J. Gabelli and B. Reulet. Dynamics of quantum noise in a tunnel junction under ac excitation. *Phys. Rev. Lett.*, 100 :026601, January 2008.
- [43] J. Gabelli and B. Reulet. Le bruit dissymétrique du courant électrique. *Image de la physique*, page 35, January 2007.
- [44] V. L. R. Jacques, D. Le Bolloc’h, S. Ravy, J. Dumas, C. V. Colin, and C. Mazzoli. Evolution of a large-periodicity soliton lattice in a current-driven electronic crystal. *Phys. Rev. B*, 85(3) :035113–, January 2012.
- [45] F. de Bergevin and M. Brunel. Diffraction of x-rays by magnetic materials. i. general formulae and measurements on ferro- and ferrimagnetic compounds. *Acta Crystallographica Section A*, 37(3) :314–324, May 1981.
- [46] M. Blume and Doon Gibbs. Polarization dependence of magnetic x-ray scattering. *Phys. Rev. B*, 37(4) :1779–1789, Feb 1988.
- [47] Doon Gibbs, D. R. Harshman, E. D. Isaacs, D. B. McWhan, D. Mills, and C. Vettier. Polarization and resonance properties of magnetic x-ray scattering in holmium. *Phys. Rev. Lett.*, 61(10) :1241–1244, Sep 1988.
- [48] D. Mannix, P.C. de Camargo, C. Giles, A.J.A. de Oliveira, F. Yokai-chiya, and C. Vettier. The chromium spin density wave : magnetic x-ray scattering studies with polarisation analysis. *The European Physical Journal B*, 20(1) :19–25, 2001.
- [49] J. L. Fry, N. E. Brener, D. G. Laurent, and J. Callaway. Fermi surface of paramagnetic and antiferromagnetic chromium. *Journal of Applied Physics*, 52(3) :2101–2103, 1981.
- [50] Eric Fawcett. Spin-density-wave antiferromagnetism in chromium. *Rev. Mod. Phys.*, 60(1) :209–283, Jan 1988.
- [51] A. W. Overhauser and A. Arrott. Mechanism of antiferromagnetism in chromium. *Phys. Rev. Lett.*, 4(5) :226–, March 1960.

- [52] P. C. de Camargo, I. Mazzaro, C. Giles, F. Yokaichiya, A. J. A. de Oliveira, H. Klein, and J. Baruchel. Origin of single q charge-density wave domains in chromium. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 233(1-2) :65 – 68, 2001.
- [53] W.B. Cowan. Strain and the spin-flip transition in chromium : Landau theory. *Journal of Physics F : Metal Physics*, 8 :423, 1978.
- [54] C.Y. Young and J.B. Sokoloff. The role of harmonics in the first order antiferromagnetic to paramagnetic transition in order. *Journal of Physics F : Metal Physics*, 4 :1304, 1974.
- [55] P.G. Evans, E.D. Isaacs, G. Aeppli, Z. Cai, and B. Lai. X-ray micro-diffraction images of antiferromagnetic domain evolution in chromium. *Science*, 295 :1042, 2002.
- [56] R. Jaramillo Yejun Feng. *Phys. Rev. Lett.*, 99 :137201, 2007.
- [57] V. L.R. Jacques, D. Le Bolloc'h, S. Ravy, C. Giles, F. Livet, and S. B. Wilkins. Spin density wave dislocation in chromium probed by coherent x-ray diffraction. *Eur. Phys. J. B*, 70(3) :317–325, 2009.
- [58] J. Labbé. Iii seconde quantification et exemples d'utilisation. *Cour du DEA de physique des solides*, 3 :75, 2005.
- [59] M. Héritier. *Cours "Transitions de phases, Magnétisme et Supraconductivité" du parcours "Physique de la Matière Condensée" du Master 2 Recherche "Concepts Fondamentaux de la Physique", chapitre 10 : "Magnétisme itinérant" - <http://www.lps.u-psud.fr/spip.php?article1356&lang=fr>*, 2005.
- [60] H. Aloul. *Physique des électron dans les solides*.
- [61] Neil W. Ashcroft et N. David Mermin. *Physique des solides*.
- [62] U. Yaron. Neutron diffraction studies of flowing and pinned magnetic flux lattices in 2h-nbse2. *Phys. Rev. Letter*, 73(20), 1994.
- [63] C-H Du et al. *J. Phys : Condens. Matter*, 12 :5361, 2000.
- [64] I.I. Mazin M.D. Johannes and C.A. Howells. Fermi-surface nesting and the origin of charge-density wave in nbse2. *Phys. Rev. B*, 73 :205102, 2006.
- [65] F.J. DiSalvo M.E. Moncton, J.D. Axe. Neutron scattering study of the charge-density wave transitions in 2h-tase2 and 2h-nbse2. *Phys. Rev. B*, 16 :801, January 1977.
- [66] T. Yokoya et al. Fermi surface sheet-dependent superconductivity in 2h-nbse2. *Science*, 294 :2518, 2001.

- [67] T. Kiss, T. Yokoya, A. Chainani, S. Shin, T. Hanaguri, M. Nohara, and H. Takagi. Charge-order-maximized momentum-dependent superconductivity. *Nat Phys*, 3(10) :720–725, October 2007.
- [68] C. A. Murray H. F. Hess and J. V. Waszczak. Scanning-tunneling-microscopy study of distortion and instability of inclined flux-line-lattice structures in the anisotropic superconductor 2h-nbse<sub>2</sub>. *Phys. Rev. B*, 69 :2138, October 1992.
- [69] S.S. Banerjee et al. Disordered type-ii superconductors : a universal phase diagram for low-*t<sub>c</sub>* systems. *Physca C*, 355 :39–50, 2001.