



**HAL**  
open science

# Ordre magnétique à $q=0$ dans les cuprates supraconducteurs à haute température critique

Lucile Mangin-Thro

► **To cite this version:**

Lucile Mangin-Thro. Ordre magnétique à  $q=0$  dans les cuprates supraconducteurs à haute température critique. Matière Condensée [cond-mat]. Université Paris Saclay (COMUE), 2015. Français. NNT : 2015SACLS170 . tel-01282254

**HAL Id: tel-01282254**

**<https://theses.hal.science/tel-01282254>**

Submitted on 3 Mar 2016

**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.

NNT : 2015SACLS170

THÈSE DE DOCTORAT  
DE  
L'UNIVERSITÉ PARIS-SACLAY  
PRÉPARÉE À  
L'UNIVERSITÉ PARIS-SUD

LABORATOIRE LÉON BRILLOUIN

École Doctorale n°564 :

Physique en Ile-de-France

Discipline : Physique

Spécialité : Matière Condensée

*présentée et soutenue publiquement à Orsay le 3 décembre 2015 par :*

**Lucile MANGIN-THRO**

**Ordre magnétique à  $q=0$  dans les cuprates supraconducteurs  
à haute température critique**

**Composition du jury :**

<b>Julien BOBROFF,</b>	Professeur, Université Paris-Sud,	Président
<b>Sergio DI MATTEO,</b>	Professeur, Institut de Physique de Rennes,	Rapporteur
<b>Henrik RONNOW,</b>	Professeur, École Polytechnique Fédérale de Lausanne,	Rapporteur
<b>Alain SACUTO,</b>	Professeur, Université Paris-Diderot,	Examineur
<b>Chandra VARMA,</b>	Professeur, University of California Riverside,	Examineur
<b>Philippe BOURGES,</b>	Docteur, CEA Saclay,	Directeur de thèse
<b>Yvan SIDIS,</b>	Docteur, CEA Saclay,	Co-Directeur de thèse

# Remerciements

Il me semble évident que les premières personnes à qui je souhaite adresser mes remerciements sont mes directeurs de thèse Philippe Bourges et Yvan Sidis. Tout d'abord, je vous remercie de m'avoir permis de faire ce stage de master avec vous. J'ai ainsi pu entrer dans le monde de la supraconductivité, et plus particulièrement étudier les cuprates, qui sont devenus pour moi les matériaux les plus excitants. A la suite de ce stage, j'ai commencé ma thèse, durant laquelle j'ai pu aller beaucoup plus loin dans les travaux de recherche précédemment amorcés. Tout au long de mon parcours, chacun adoptant une approche différente, vous avez su être à l'écoute et me guider dans mes travaux de recherche mais aussi dans mes choix d'orientation et de carrière. Dans les moments les plus difficiles, vous avez su être patients. Vous m'avez également laissé faire mes choix pour que j'apprenne à mener seule mes projets à bien. Ce maigre paragraphe ne suffit bien évidemment pas à témoigner toute ma reconnaissance, je tenais simplement à vous remercier pour tout ce que vous m'avez appris, scientifiquement et humainement. Enfin, je tiens à mentionner que j'ai l'immense honneur et plaisir de pouvoir continuer à collaborer avec vous dans le cadre de mes nouvelles fonctions.

Je remercie également les autres membres de mon jury: Julien Bobroff (président), Sergio Di Matteo et Henrick Ronnow (rapporteurs), Alain Sacuto et Chandra Varma (examineurs). Je les remercie pour tout l'intérêt qu'ils m'ont témoigné, tout d'abord en acceptant de faire partie de mon jury de thèse puis en prenant le temps de lire mon manuscrit, de le commenter, d'assister à ma présentation, d'interagir avec moi et enfin de me décerner le titre de Docteur en Physique de l'Université Paris-Saclay.

Sans la direction du Laboratoire Léon Brillouin, représentée par Christiane Alba-Simionesco (je n'oublie pas les autres mais il est difficile de citer toute l'équipe), je n'aurais pas pu intégrer ce laboratoire mixte CEA-CNRS. Vous m'avez apporté soutien et gentillesse durant ces trois années. J'en profite pour remercier aussi toute l'équipe du réacteur Orphée, sans laquelle je n'aurais pas pu avoir de neutrons pour faire mes manip.

Je remercie chaleureusement tous mes collègues, qui m'ont beaucoup appris également sur le plan scientifique et technique mais aussi grâce à qui j'ai pu me tenir informée de l'actualité. Une pensée particulière à l'équipe café (dont je vais me garder de citer tous les noms, car ils sont nombreux, mais ils se reconnaîtront sans aucun doute). Nos discussions enrichissantes m'ont permis de répondre à plusieurs questions existentielles. Qu'est-il advenu du rat-dioactif? Un dindonneau muté peut-il devenir un bouc commissaire? Quelles seront les tendances capillaires de cet hiver? Qu'est ce qui est blanc et qui colle? Plus sérieusement, vous avez fait du quotidien un moment

exceptionnel. Je n'oublie pas non plus tous les autres membres du labo avec qui j'ai pu interagir, toujours disponibles et prévenants.

En dehors du laboratoire, j'ai eu l'opportunité de collaborer avec d'autres groupes; notamment, avec celui de Martin Greven (Université du Minnesota, États-Unis), mais aussi avec les membres de l'équipe de Bernhard Keimer (Max Planck Institute, Stuttgart), et avec Yuan Li (Université de Pékin, Chine). Lors d'expériences effectuées à l'Institut Laue Langevin, j'ai aussi été amenée à collaborer avec notamment Andrew Wildes, Paul Steffens, Sasha Ivanov qui sont devenus mes collègues. Je salue aussi toutes les autres personnes avec qui j'ai travaillé à l'ILL mais aussi au synchrotron Soleil. Je remercie l'Université d'Edimbourg (Ecosse) et plus particulièrement Chris Stock, qui m'ont généreusement accueillie pour un séminaire. Sans oublier toutes les personnes rencontrées aux conférences et dans d'autres laboratoires (LPS, IPhT...).

Enfin je remercie mes proches, famille et amis, et tout particulièrement Geoffrey qui a toujours garder calme et diplomatie et qui me soutient et motive dans tous mes projets.



# Table des matières

<b>Introduction générale</b>	<b>8</b>
<b>1 Introduction</b>	<b>9</b>
1.1 La supraconductivité, historique et concepts	10
1.1.1 Les découvertes	10
1.1.2 Propriétés générales	11
1.1.3 La théorie BCS	11
1.1.3.1 Paire de Cooper	11
1.1.3.2 Phénomène collectif et symétrie du gap supraconducteur	13
1.1.3.3 Effet isotopique et prédiction de la température critique	13
1.2 Les cuprates supraconducteurs à haute température critique	14
1.2.1 Structure et propriétés électroniques	14
1.2.2 Diagramme de phase générique	16
1.2.3 Le pseudo-gap	18
1.2.4 Les éléments en faveur d'une phase ordonnée apparaissant à $T^*$	20
1.2.5 Ordres de spin et/ou de charge	21
1.2.6 Les fluctuations antiferromagnétiques	23
1.3 Modèles du pseudo-gap	25
1.3.1 Les boucles de courant	25
1.3.2 État nématique électronique	27
1.3.3 Onde de densité de paires	27
1.3.4 Modèles spin-fermion	28
1.3.4.1 État mixte: onde de densité quadrupolaire et supraconductivité de symétrie $d$	28
1.3.4.2 Ordre de charge composite	29
1.4 Quel mécanisme pour la supraconductivité?	29
1.5 L'ordre magnétique à $q=0$	30
1.5.1 Les mesures de diffusion de neutrons polarisés	30
1.5.2 Modélisation des résultats de diffusion de neutrons	34
1.6 Apport de la thèse	36

<b>2 Méthodes expérimentales</b>	<b>37</b>
2.1 La diffusion de neutrons	38
2.1.1 Sonde de la matière	38
2.1.2 La section efficace de diffusion	39
2.1.2.1 Section efficace nucléaire	40
2.1.2.2 Section efficace magnétique	41
2.1.3 La résolution	43
2.1.4 La diffusion de neutrons polarisés	44
2.2 Spécificités des instruments utilisés	47
2.2.1 Le spectromètre trois-axes en général	47
2.2.1.1 Définition générale	47
2.2.1.2 Monochromateur et analyseur	49
2.2.1.3 Moniteur et détecteur	50
2.2.1.4 Environnement de l'échantillon	50
2.2.1.5 Polarisation du faisceau	50
2.2.2 Le spectromètre trois-axes 4F1 pour l'étude de l'ordre magnétique à $q=0$	53
2.2.2.1 Dispositif expérimental	53
2.2.2.2 Détermination du signal magnétique lié à l'ordre magnétique à $q=0$	53
2.2.3 Le diffractomètre D7	56
2.2.3.1 Dispositif expérimental	56
2.2.3.2 Analyse standard	57
2.2.3.3 Règles de polarisation	58
2.2.3.4 Traitement des données	58
2.3 Échantillons de cuprates	59
2.3.1 Les composés à base d'Y	61
2.3.2 Les composés à base de Bi	62
2.3.3 Les composés à base de Hg	64
2.3.4 Montage et orientation des échantillons	64
2.4 Détermination de la quantité et caractérisation de la phase verte pour l'étude des systèmes $YBa_2Cu_3O_{6+x}$	65
2.4.1 Étude structurale	66
2.4.2 Étude magnétique	68
<b>3 Étude du magnétisme lié à l'ordre magnétique à <math>q=0</math> dans un échantillon sous-dopé de référence: <math>YBa_2Cu_3O_{6.6}</math></b>	<b>73</b>
3.1 L'ordre magnétique à $q=0$ observé sur le diffractomètre D7	74
3.1.1 Reproductibilité des mesures effectuées sur le spectromètre trois-axes 4F1	74
3.1.2 Évolution en température des composantes du moment magnétique	77
3.1.3 Étude de la diffusion diffuse	80
3.2 L'ordre magnétique à $q=0$ et son lien avec l'anisotropie a-b	81
3.2.1 Résultats expérimentaux	81

3.2.2	Modélisation	86
3.3	L'ordre magnétique à $q=0$ et les fluctuations antiferromagnétiques	88
3.3.1	Les fluctuations AF dans l'échantillon Y123-UD61	88
3.3.2	Les fluctuations AF dans l'échantillon Hg1201-UD71	91
3.3.3	Comparaison des familles Y123 et Hg1201	94
3.4	Les modes plats dans la famille Y123	96
3.5	Conclusion	99
<b>4</b>	<b>Étude de l'ordre magnétique à <math>q=0</math> autour du dopage optimal dans la famille <math>YBa_2Cu_3O_{6+x}</math></b>	<b>101</b>
4.1	L'échantillon Y123-UD89	102
4.1.1	Mise en évidence de l'ordre magnétique à $q=0$	102
4.1.2	Mesure des longueurs de corrélation	105
4.1.2.1	Dans le plan $ab$	106
4.1.2.2	Le long de l'axe $c$	109
4.1.2.3	Difficulté de l'analyse de polarisation sur D7	111
4.1.3	Inclinaison du moment magnétique	113
4.1.3.1	Composantes, dans le plan et hors-plan, du moment magnétique	113
4.1.3.2	Étude de la diffusion magnétique diffuse	115
4.1.3.3	Deux régimes en température autour du dopage optimal?	119
4.1.4	La phase supraconductrice	120
4.1.4.1	Prolongement de l'étude de l'ordre magnétique à $q=0$ dans la phase supraconductrice	120
4.1.4.2	Étude plus approfondie du bruit de fond	121
4.1.4.3	Interprétation du signal élastique dans la phase supraconductrice	123
4.2	L'échantillon Y123-OD92b	127
4.3	Diagramme de phase de la famille Y123	132
4.4	Possibles excitations de basse énergie	133
4.4.1	Dépendance en énergie	133
4.4.2	Dépendance en température	133
4.4.3	Évolution en fonction du vecteur d'onde	136
4.5	Conclusion	137
<b>5</b>	<b>Étude de l'ordre magnétique à <math>q=0</math> dans les familles Bi2212 et Pb-Bi2201</b>	<b>139</b>
5.1	Diagramme de phase de la famille Bi2212	140
5.2	Régime proche du dopage optimal de la famille Bi2212	141
5.2.1	L'échantillon Bi2212-OD87	141
5.2.2	L'échantillon Bi2212-OP91	144
5.3	Deux cas limites, les échantillons Bi2212-UD85 et Bi2212-OD70	148
5.4	Calibration des intensités pour la famille Bi2212	152
5.4.1	1 <sup>ère</sup> étape: échantillons de référence	152
5.4.2	2 <sup>ème</sup> étape: échantillons à calibrer	154

5.5	Évolution de la température d'ordre $T_{mag}$ et de l'intensité magnétique $I_{mag}$ en fonction du dopage . . . . .	155
5.6	Évolution du signal magnétique en fonction de $Q = (1,0,L)$ . . . . .	158
5.7	Régime sous-dopé de la famille Pb-Bi2201 . . . . .	160
5.8	Diagramme de phase de la famille Pb-Bi2201 . . . . .	166
5.9	Conclusion . . . . .	167
	<b>Conclusion générale</b>	<b>169</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>171</b>
	<b>Résumé</b>	<b>183</b>
	<b>Abstract</b>	<b>183</b>

# Introduction générale

Depuis sa découverte en 1911, la supraconductivité a constamment poussé les physiciens du solide à rechercher de nouvelles théories sur son origine. Alors que l'on croyait avoir établi en 1957 la théorie BCS de la nature de la supraconductivité, la découverte dans les années 80 de nouveaux supraconducteurs non conventionnels (les cuprates) l'a remise en question. De manière surprenante, ces matériaux sont obtenus à partir d'un isolant. En dopant, les propriétés d'un métal normal sont retrouvées. Entre ces deux états, se trouve la mystérieuse phase de pseudo-gap, sous laquelle émerge le dôme supraconducteur. La caractérisation de cette phase de pseudo-gap est considérée comme la clé dans la compréhension de la supraconductivité.

Dans le cadre de ma thèse menée au Laboratoire Léon Brillouin, j'ai notamment étudié l'ordre magnétique à  $q=0$  dans les cuprates supraconducteurs à haute température critique par diffusion de neutrons. Cet ordre est potentiellement associé à la naissance du pseudo-gap. Le pseudo-gap tend à disparaître autour d'un point critique quantique autour duquel il est nécessaire de réaliser des mesures afin de déterminer la nature de cette phase.

Dans un premier temps (Chapitre 1), nous introduirons la physique des cuprates ainsi que les concepts utiles à la compréhension de la problématique de thèse. Nous dresserons pour ce faire une brève revue des observations expérimentales et des modèles proposés pour le pseudo-gap et plus particulièrement pour comprendre l'ordre magnétique à  $q=0$ . Ensuite, dans le Chapitre 2, nous présenterons la technique de diffusion de neutrons, comme sonde efficace du magnétisme dans ces matériaux, et les méthodes expérimentales spécifiques employées pour notre étude. Les premiers résultats expérimentaux présentés dans le Chapitre 3 concerneront l'étude d'un échantillon sous-dopé de référence de la famille  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ . Pour cette composition, l'ordre magnétique à  $q=0$  a déjà été observé, le but est de le caractériser davantage et de le comparer à d'autres observations expérimentales reportées pour ce même composé (comme les fluctuations anti-ferromagnétiques). Enfin, nous étudierons dans les Chapitres 4 et 5, l'évolution de cet ordre magnétique à  $q=0$  autour du point critique quantique pour les deux familles  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  et  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+x}$ . Nous comparerons également ces résultats au régime sous-dopé de la famille  $Bi_{1.8}Pb_{0.4}Sr_{1.8}CuO_{6+x}$ . La caractérisation expérimentale de l'ordre magnétique à  $q=0$  par diffusion de neutrons nous permet d'affiner sa modélisation et de déterminer son lien avec le pseudo-gap et la supraconductivité.

# Chapitre 1

## Introduction

De la mesure, vers la connaissance.

---

Kamerlingh Onnes

### Sommaire

---

<b>1.1 La supraconductivité, historique et concepts</b> . . . . .	<b>10</b>
1.1.1 Les découvertes . . . . .	10
1.1.2 Propriétés générales . . . . .	11
1.1.3 La théorie BCS . . . . .	11
<b>1.2 Les cuprates supraconducteurs à haute température critique</b> . . . . .	<b>14</b>
1.2.1 Structure et propriétés électroniques . . . . .	14
1.2.2 Diagramme de phase générique . . . . .	16
1.2.3 Le pseudo-gap . . . . .	18
1.2.4 Les éléments en faveur d'une phase ordonnée apparaissant à $T^*$ . . . . .	20
1.2.5 Ordres de spin et/ou de charge . . . . .	21
1.2.6 Les fluctuations antiferromagnétiques . . . . .	23
<b>1.3 Modèles du pseudo-gap</b> . . . . .	<b>25</b>
1.3.1 Les boucles de courant . . . . .	25
1.3.2 État nématique électronique . . . . .	27
1.3.3 Onde de densité de paires . . . . .	27
1.3.4 Modèles spin-fermion . . . . .	28
<b>1.4 Quel mécanisme pour la supraconductivité?</b> . . . . .	<b>29</b>
<b>1.5 L'ordre magnétique à <math>q=0</math></b> . . . . .	<b>30</b>
1.5.1 Les mesures de diffusion de neutrons polarisés . . . . .	30
1.5.2 Modélisation des résultats de diffusion de neutrons . . . . .	34
<b>1.6 Apport de la thèse</b> . . . . .	<b>36</b>

---

## 1.1 La supraconductivité, historique et concepts

### 1.1.1 Les découvertes

Dans sa quête des très basses températures afin de liquéfier l'hélium, K. Onnes a découvert en 1911 le phénomène de supraconductivité [1], ce qui lui valut le prix Nobel de Physique en 1913. Ce sont ses travaux sur le mercure (Hg) qui ont permis la première observation d'un état supraconducteur. Par la suite, de nombreux autres éléments du tableau périodique ont été testés et il apparut en fait que la plupart l'étaient également (avec ou sans application d'une pression). Encore plus étonnant, alors que nous aurions pu croire que les meilleurs candidats à la supraconductivité auraient été des éléments qualifiés de "bons conducteurs", il s'est avéré que ceux qui présentaient des défauts y étaient plus favorables.

A l'époque ce phénomène physique est uniquement observé avec une température critique (notée  $T_c$ ) basse, de l'ordre de quelques Kelvin. La Fig. 1.1 présente l'évolution de ces températures entre 1900 et 2010. Pendant plusieurs décennies, la température critique n'excèdera pas 24K. C'est à partir des années 80 que de nouveaux supraconducteurs à haute température critique sont découverts. En 1986, la supraconductivité dans les oxydes de cuivre (cuprates) a été découverte par J. G. Bednorz et K. A. Müller [2]. Ces matériaux atteignent aujourd'hui une  $T_c$  maximale de 130K. Un nouveau souffle dans la quête de la supraconductivité a également été donné par la découverte en 2008 de supraconducteurs à base de Fe par l'équipe de H. Hosono [3]. Ils présentent une  $T_c$  maximale de 64K. Plus récemment, des matériaux ultra-légers  $H_2S$  sous pression ont permis d'atteindre une  $T_c$  de l'ordre de 190K [4].

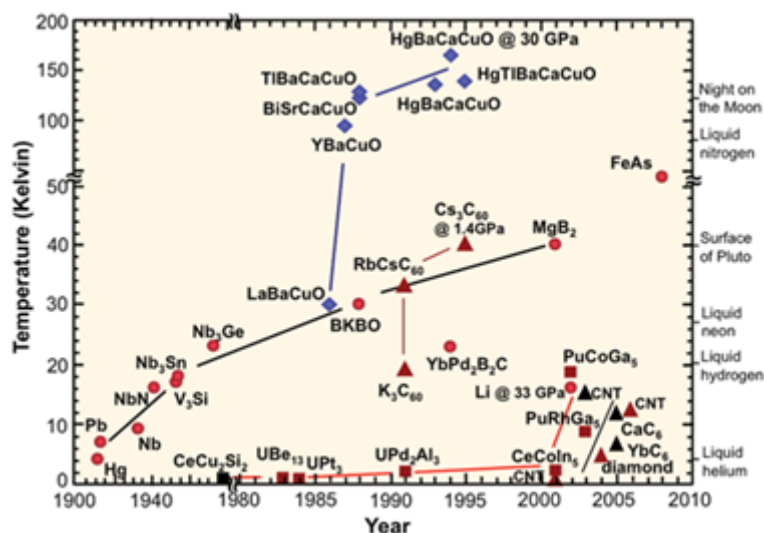


Figure 1.1: Évolution de la température critique  $T_c$ , des années 1900 à 2010. Notamment, les losanges bleus représentent les différentes familles de cuprates supraconducteurs à haute température critique.

### 1.1.2 Propriétés générales

Quel que soit le type de composé, la supraconductivité peut être définie par deux propriétés, qui se révèlent pour des températures inférieures à la température critique  $T_c$ :

- Le matériau est un conducteur parfait, c'est-à-dire qu'il ne présente pas de résistance au courant électrique. Il est intéressant de comparer cet effet à la résistance d'un métal classique: à mesure que la température baisse, elle chute jusqu'à se stabiliser à une valeur faible mais non nulle, en raison de la présence d'impuretés. Pour un supraconducteur, la chute de la résistance devient encore plus abrupte à basse température jusqu'à devenir nulle (la résistivité  $\rho=0$  à  $T < T_c$ ).

- Le matériau, qui est parfaitement diamagnétique, expulse des lignes de champ magnétique (en opposition à un champ qui lui est soumis). Le champ magnétique est expulsé du matériau supraconducteur en raison de courants électriques qui circulent à sa surface, ils sont appelés courants d'écrantage. Ils empêchent un champ magnétique extérieur d'accéder à l'intérieur et produisent également un champ magnétique à l'extérieur du matériau, qui est susceptible de repousser un aimant par exemple, donnant lieu à la lévitation magnétique. Il s'agit de l'effet Meissner (Fig. 1.2.a).

Ce sont ces propriétés exceptionnelles qui ont poussé la communauté scientifique à chercher de nouveaux matériaux dont la température critique serait de plus en plus proche de la température ambiante. Les chercheurs tentent de comprendre les mécanismes microscopiques à l'origine de ce phénomène afin d'apprendre à le maîtriser et de l'optimiser en vue d'applications futures.

### 1.1.3 La théorie BCS

En 1957, J. Bardeen, L. N. Cooper et J. R. Schrieffer proposent la théorie BCS [5] pour décrire le phénomène de supraconductivité, ils reçurent notamment le prix Nobel en 1972 pour leurs travaux. Cette théorie de la supraconductivité repose sur l'appariement de deux électrons.

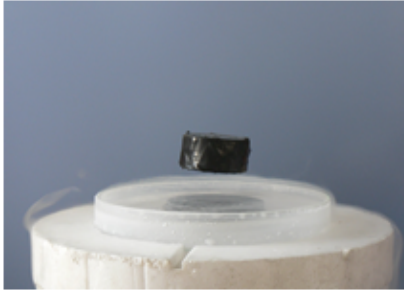
#### 1.1.3.1 Paire de Cooper

L. N. Cooper montra qu'une attraction faible entre deux électrons est moins coûteuse qu'un état où les électrons sont des particules indépendantes au niveau de Fermi. Une paire d'électrons, appelée paire de Cooper, est donc une entité stable.

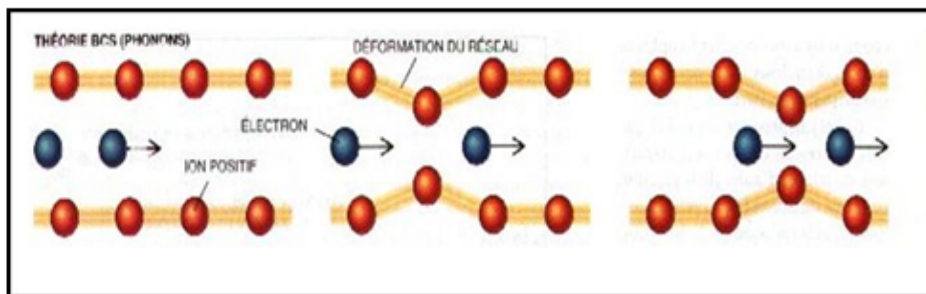
Cette force attractive entre les électrons est rendue possible par un couplage électron-phonon (Fig. 1.2.b), c'est à dire l'interaction entre les électrons et les vibrations du réseau. Les électrons ne sont pas seulement repoussés les uns les autres, ils sont aussi attirés par les ions qui les entourent chargés positivement. Dans son passage, un électron induit un déplacement des ions positifs vers lui. De par leur masse élevée, les ions répondent plus lentement et ne reviennent pas immédiatement à leur place. Cet excès de charges positives va avoir tendance à attirer un autre électron dans le sillage du premier. C'est ainsi qu'une paire de Cooper se forme.



(a) Effet Meissner



(b) Couplage électron-phonon



(c) Exemples de symétrie de la fonction d'onde

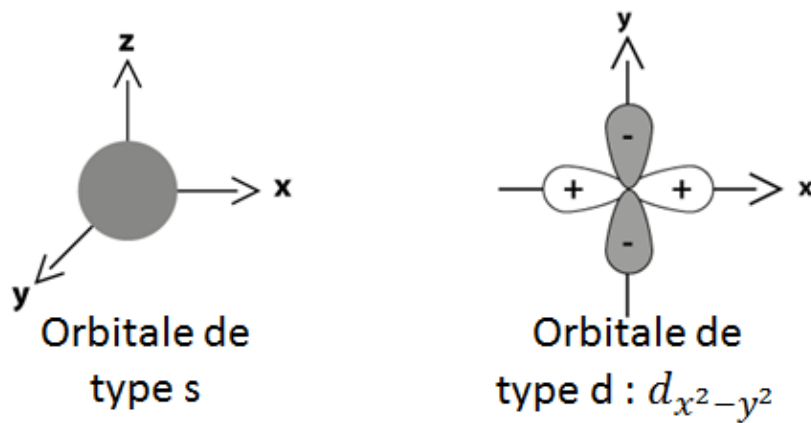


Figure 1.2: (a) Illustration de l'effet Meissner, lévitation d'un supraconducteur. (b) Description schématique du couplage électron-phonon. (c) Représentation de deux types d'orbitales, s et  $d_{x^2-y^2}$ .

### 1.1.3.2 Phénomène collectif et symétrie du gap supraconducteur

A l'origine, L. N Cooper considéra seulement le cas de la formation d'une paire d'électrons isolée dans un métal. En collaboration avec J. Bardeen et J. R. Schrieffer, dans le cadre de la théorie BCS, ils démontrèrent que la supraconductivité est un phénomène collectif. L'appariement de tous les électrons se fait de manière simultanée. A  $T_c$ , toutes les paires se forment et se condensent dans un même état quantique macroscopique.

L'appariement ouvre une bande interdite dans le spectre continu des états d'énergie permis pour les électrons, signifiant que toutes les excitations du système doivent posséder une quantité minimale d'énergie. Le gap énergétique supraconducteur est le prix à payer pour casser une paire de Cooper.

La fonction d'onde BCS est une superposition cohérente de tous les états de paires. Si le spin est un bon nombre quantique, le principe d'anti-symétrisation de Pauli peut être appliqué. La symétrie de la fonction d'onde (ou du gap) peut être s, d, etc. (spins différents donnant un singulet) alors que les symétries p, f, etc. correspondent à une configuration de spins parallèles (triplet). Dans le cas de la théorie BCS, il s'agit de la symétrie s (Fig. 1.2.c). Nous parlons de supraconductivité conventionnelle. Pour toutes les autres symétries, nous parlons de supraconductivité non conventionnelle.

### 1.1.3.3 Effet isotopique et prédiction de la température critique

Pour ce qui est des prédictions de la théorie BCS, l'effet isotopique peut être considéré: la fréquence des vibrations est inversement proportionnelle à la racine carrée de la masse des atomes. Comme il a été montré expérimentalement que la température critique est inversement proportionnelle à la racine carrée de la masse [6], cela suggère que les matériaux avec des ions plus lourds ont des températures de transition supraconductrice plus basses. En effet, les isotopes lourds étant plus difficiles à déplacer sont moins aptes à attirer les électrons ce qui induit une énergie de liaison plus faible pour les paires de Cooper. Ainsi, la théorie BCS ne donne que très peu d'espoir de découvrir des supraconducteurs avec une température plus élevée que 20K. De plus, la théorie BCS est très simplifiée: elle considère un gaz d'électrons, des matériaux tridimensionnels et une surface de Fermi sphérique. Il n'y a pas d'effet de topologie de surface de Fermi, ni d'effet multi-bande. Toutefois, il existe des matériaux, comme  $MgB_2$  [7], qui sont bidimensionnels et présentent un effet multi-bande. Ces matériaux sont conventionnels et possèdent une  $T_c$  de l'ordre de 40K. De plus, il existe des supraconducteurs (non conventionnels) avec des températures critiques bien plus élevées.

Le couplage électron-phonon est-il à l'origine de l'appariement des électrons pour tous les matériaux supraconducteurs?

## 1.2 Les cuprates supraconducteurs à haute température critique

Parmi les supraconducteurs non conventionnels, nous nous sommes intéressés aux oxydes de cuivre, plus communément appelés cuprates. Ces matériaux ont longtemps présenté les températures critiques les plus élevées (de l'ordre de 130K). Leur découverte, il y a maintenant presque 30 ans, a suscité un fort engouement car ils ont permis d'entrevoir la possibilité de découvrir de nouveaux supraconducteurs ayant des températures critiques encore plus hautes, voire même d'atteindre la température ambiante et pouvoir ainsi développer des dispositifs fonctionnels ne nécessitant pas de refroidissement à très basse température.

### 1.2.1 Structure et propriétés électroniques

En général, les supraconducteurs sont des matériaux tridimensionnels. A l'opposé, les cuprates sont caractérisés par l'empilement de plans carrés  $\text{CuO}_2$ . Il peut y avoir un ou plusieurs plans  $\text{CuO}_2$  par maille élémentaire, lorsqu'il n'y en a qu'un seul, c'est un système monocouche; lorsqu'il y en a deux, c'est un système bicouche. Les atomes de cuivre Cu sont représentés en bleu et les atomes d'oxygène O en rouge sur la Fig. 1.3 (nous conservons cette convention tout au long du manuscrit). Ces plans peuvent être vus comme pavés de petites plaquettes  $\text{CuO}_2$ , considérées comme la brique de base de ces matériaux. Les plans  $\text{CuO}_2$  sont séparés par d'autres couches atomiques: les réservoirs de charges (Fig. 1.3.a). Les cuprates peuvent être dopés en trous ou en électrons. L'échange de charges entre les plans  $\text{CuO}_2$  et les couches réservoirs permet le dopage en trous. Le transfert de charge se fait dans ce cas soit par substitution cationique, soit par modification de la stœchiométrie en oxygène.

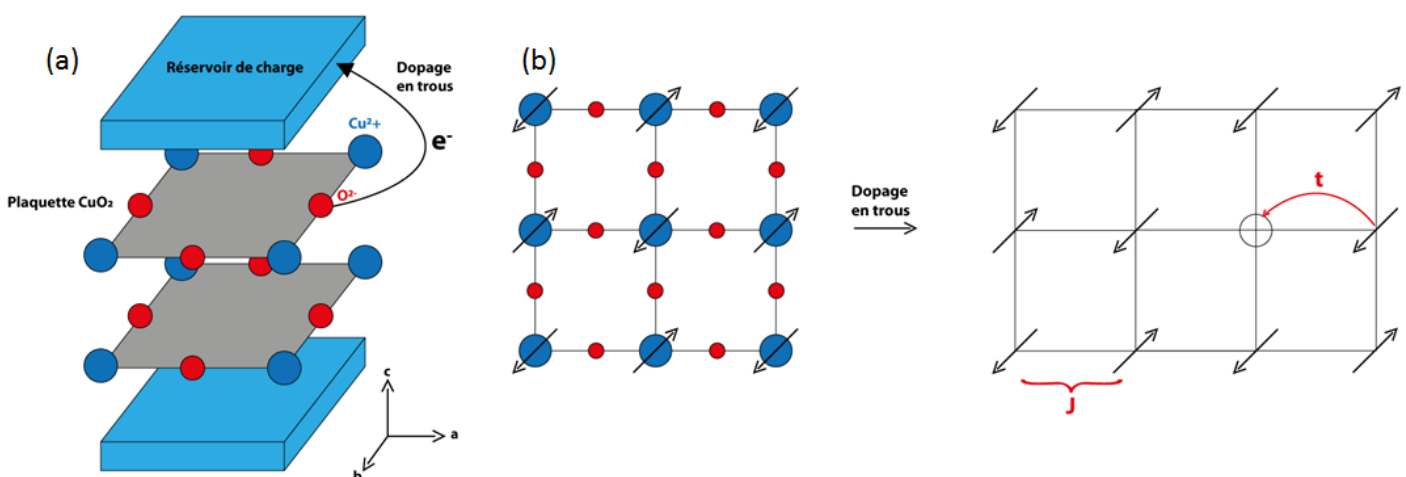


Figure 1.3: (a) Structure schématique des cuprates supraconducteurs. La brique de base de ces matériaux est la plaquette  $\text{CuO}_2$ . (b) Illustration du super-échange d'Anderson.

La Fig. 1.3.a donne donc une vision schématique des cuprates. De manière plus précise, pour les composés à un plan  $\text{CuO}_2$  par maille élément, l'atome de cuivre se trouve toujours au centre d'un octaèdre d'oxygènes, avec 4 oxygènes dans le plan  $\text{CuO}_2$  et 2 oxygènes apicaux. Dans les composés bicouches, l'octaèdre est coupé en deux de telle sorte que les cuivres de chaque plan appartiennent cette fois-ci à des pyramides d'oxygènes. Pour les composés à trois plans, un plan  $\text{CuO}_2$  est inséré au milieu de la bicouche et ainsi de suite pour former des composés à N plans par maille élémentaire.

Pour décrire les cuprates, il faudrait tenir compte de 3 orbitales pour les différents oxygènes et deux orbitales pour le cuivre (modèle à 5 bandes). Partant du principe que l'élément commun à tous les cuprates est la présence d'un ou plusieurs plans  $\text{CuO}_2$ , cette description peut être restreinte à un modèle à 3 bandes: les deux orbitales  $2p_x$  et  $2p_y$  des oxygènes des plans qui doivent être pleines à dopage nul et l'orbitale  $3d_{x^2-y^2}$  du cuivre qui est demi-remplie à dopage nul [8]. Cette description électronique doit ensuite intégrer les intégrales de saut entre Cu-O et O-O, ainsi que les répulsions coulombiennes sur les sites du cuivre et de l'oxygène, et la répulsion coulombienne entre sites premiers voisins. Une des particularités des cuprates est que la répulsion coulombienne sur le site du Cu ( $U$ ) est très grande. Le niveau électronique du cuivre est séparé en un niveau de Hubbard supérieur et un niveau de Hubbard inférieur. Le niveau de l'oxygène se trouve entre ces deux bandes de Hubbard. En dopant, les trous sont injectés sur l'oxygène et se délocalisent en passant du site du cuivre au site de l'oxygène. C'est ce qui permet de définir ces matériaux comme des isolants à transfert de charge (sous-entendu entre le cuivre et l'oxygène).

Cependant, ce modèle à 3 bandes demeure extrêmement compliqué à aborder d'un point de vue théorique. Il est toutefois possible de le réduire à un modèle effectif à une seule bande. Dans ce cas, chaque plaquette va être traitée comme une seule entité (ignorant les degrés de liberté internes de la plaquette). Lorsque cette plaquette n'est pas dopée, il y a un seul électron de spin  $S=\pm 1/2$  sur le site du cuivre, lorsqu'elle contient un trou de dopage sur l'oxygène cela forme un état singulet (de Zhang et Rice) qui porte une charge de dopage mais n'a pas de spin ( $S=0$ ) [9]. La forte répulsion coulombienne interdit la double occupation de la plaquette. On décrit alors les propriétés des cuprates à partir du modèle t-J, où t décrit le saut des trous d'une plaquette à une autre qui n'est pas occupée et J décrit l'interaction de super-échange qui produit des interactions antiferromagnétiques entre les plaquettes (Fig. 1.3.b). Il est à noter que dans un modèle à une bande, un modèle de Hubbard (t,U) se transforme en un modèle t-J lorsque U est grand ( $J \propto 4t^2/U$ ) [8].

Si le modèle t-J semble un bon point de départ pour aborder la physique des cuprates dans la limite des faibles dopages, la validité de cette approche au fur et à mesure que le dopage augmente n'est pas garantie. Par exemple, l'état de singulet Zhang-Rice pourrait ne plus être stable et serait alors remplacé par des états non-Zhang-Rice. De même, l'introduction du singulet Zhang-Rice permet de réduire le problème à 3 bandes à un problème à une seule bande effective. A plus fort dopage, il n'est pas exclu qu'il faille revenir à un modèle plus complexe à 3 ou 5 bandes.

### 1.2.2 Diagramme de phase générique

La Fig. 1.4 montre le diagramme de phase schématique pour le dopage en électrons (à gauche) et en trous (à droite). Nous observons une absence de symétrie du diagramme de phase en fonction du type de dopage. L'abréviation SC désigne l'état supraconducteur associé à la température critique notée  $T_c$ , et AF signifie antiferromagnétisme, la température de Néel associée est notée  $T_N$ , enfin, la phase de pseudo-gap est représentée par PG et sa température caractéristique est nommée  $T^*$ . Nous nous intéressons particulièrement à la zone du diagramme concernant le dopage en trous (noté  $p$ ). Il y a plus de composés dopés en trous et la température critique dans ce cas est généralement plus élevée.

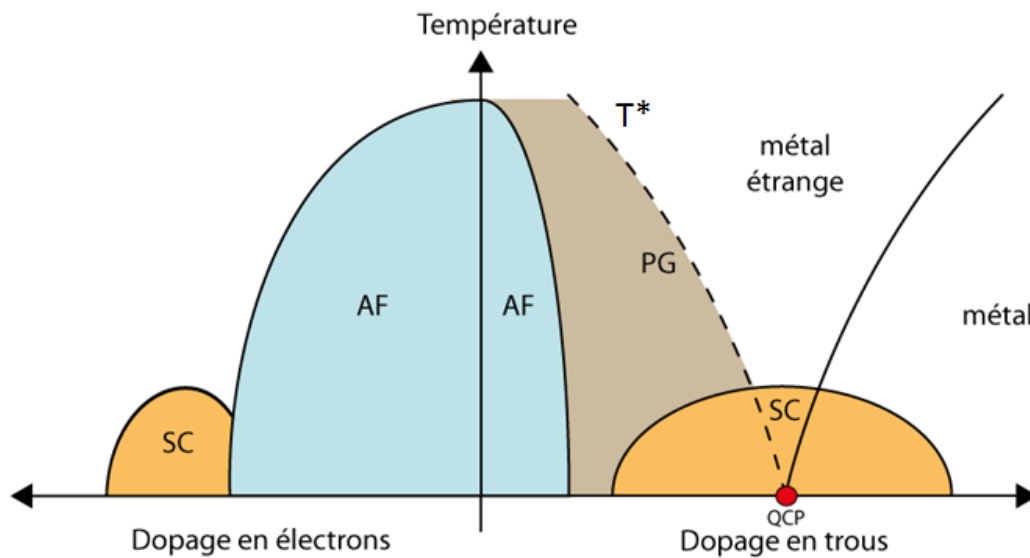


Figure 1.4: Diagramme de phase schématique, dopage en électrons (à gauche) et en trous (à droite).

A faible dopage ( $p < 0,05$ ), le système, décrit comme un isolant, présente un ordre antiferromagnétique (Fig. 1.3.b): un spin sur le site de cuivre ( $S=1/2$ ) est entouré par des spins pointant dans la direction opposée. En dopant avec des trous, des lacunes sont créées dans le réseau antiferromagnétique. Lorsque le trou se déplace, il renverse les spins et détruit l'ordre antiferromagnétique, mais de fortes fluctuations antiferromagnétiques persistent et interagissent avec les porteurs de charges. Cela mène à un ordre antiferromagnétique de Néel.

Pour des valeurs de dopage élevées ( $p > 0,3$ ), le matériau se comporte comme un métal. La susceptibilité magnétique est constante en température et la résistivité est quadratique en température [10]. Les mesures de photoémission résolue en angle (ARPES) [11] et les mesures des oscillations de la magnétorésistance résolue en angle [10, 12] sont en faveur de la présence de quasi-particules obéissant à la théorie de Landau du liquide de Fermi dans ces matériaux. Ces quasi-particules ont une masse effective légèrement différente de celle des électrons et cet état peut être assimilé à un gaz d'électrons en faible interaction.

Dans la gamme de dopage en trous intermédiaire, le système, coincé entre un isolant et un liquide de Fermi, présente des propriétés anormales, exotiques et complexes. Il y a notamment le dôme supraconducteur. Le dopage est optimal lorsque  $T_c$  est maximale ( $p=0,16$ ). Dans le cas de la supraconductivité conventionnelle, la symétrie de la fonction d'onde décrivant les paires de Cooper est  $s$ . Le paramètre d'ordre supraconducteur est alors isotrope. En quoi les cuprates sont des supraconducteurs non conventionnels? Expérimentalement, l'ensemble des mesures de longueur de pénétration dans l'état supraconducteur [13], des mesures spectroscopiques de photoémission [14] et des mesures de conductivité thermique [15] ont démontré que le gap supraconducteur dans les cuprates présente des nœuds. Une mesure de spectroscopie détermine une variation angulaire du gap (correspondant au module du paramètre d'ordre) mais elle ne donne aucune information sur la phase. Ces mesures ne permettent pas de distinguer entre un gap de symétrie  $s$  anisotrope et un gap de symétrie  $d$ . Pour la symétrie  $s$ , le gap ne change pas de signe alors que pour la symétrie  $d$  il varie. Une expérience sensible à la phase du paramètre d'ordre supraconducteur, la méthode des tri-cristaux qui est une mesure d'interférence, a permis d'établir l'existence d'un changement de signe du gap supraconducteur le long de la surface de Fermi [16]. Ainsi, le paramètre d'ordre supraconducteur des cuprates est non seulement anisotrope et il est de symétrie  $d$  ( $d_{x^2-y^2}$  Fig. 1.2.c).

Au dessus de ce dôme supraconducteur, nous pouvons observer un comportement de métal étrange ou liquide de Fermi marginal [17]. Par exemple, sa résistivité est linéaire en température contrairement au comportement quadratique attendu pour un métal standard. A plus basse température, la mystérieuse phase de pseudo-gap découle du métal étrange. Elle se caractérise par l'ouverture d'un gap partiel en dessous d'une certaine température  $T^* > T_c$  [18]. Bien que toutes les techniques expérimentales ne donnent pas exactement les mêmes valeurs pour  $T^*$ , ces valeurs sont souvent très proches et leurs évolutions en dopage sont similaires: à mesure que le dopage augmente,  $T^*$  diminue. La nature de cette phase a fait l'objet de nombreux débats. Nous distinguons notamment deux approches. D'une part, la phase de pseudo-gap pourrait être un effet précurseur de la supraconductivité. Dans ce cas, les paires de Cooper existent et sont préformées dans la phase de pseudo-gap (à  $T^*$ ) et acquièrent une cohérence de phase et se condensent seulement en dessous de  $T_c$ . Jusqu'à maintenant aucune preuve de l'existence de paires préformées dans les cuprates n'a été reportée [19]. D'autre part, la phase de pseudo-gap peut être considérée comme une phase en compétition avec la supraconductivité. Dans ce cas, il existerait un paramètre d'ordre propre à la phase de pseudo-gap avec une brisure de symétrie associée. L'ordre conduirait à un point critique quantique (QCP) lorsque la température de transition atteint le zéro absolu ( $T^* \rightarrow 0$ ). D'après les mesures thermodynamiques, le point critique quantique dans un tel scénario se trouverait autour de  $p = 0,19$  [20, 21], autour duquel de fortes fluctuations sont présentes. Le dôme supraconducteur se développerait justement autour de ce point terminal [22]. Les phases de pseudo-gap et supraconductrice sont vraiment distinctes dans ce cas, mais ce sont les fluctuations de spin et/ou de charge que cette phase engendre (au moment où elle tend à disparaître) qui seraient utiles à l'appariement supraconducteur (remplaçant les phonons du modèle BCS).

### 1.2.3 Le pseudo-gap

La première mise en évidence de cet état de pseudo-gap provient des mesures de résonance magnétique nucléaire (RMN). Peu après la découverte de la supraconductivité dans les cuprates, les mesures de H. Alloul et al [23] montrèrent une diminution systématique du Knight Shift en dessous d'une certaine température  $T^*$  (Fig. 1.5.a). Le Knight Shift est proportionnel à la partie réelle de la susceptibilité magnétique (uniforme) à  $q=0$ . Or, pour un métal standard, la susceptibilité de Pauli devrait être constante en température. Par ailleurs, dans la théorie du liquide de Fermi pour un métal, la susceptibilité de Pauli est proportionnelle à la densité d'états électroniques au niveau de Fermi. La diminution du Knight Shift a été interprétée comme une diminution partielle de la densité d'états au niveau de Fermi (pseudo-gap) en dessous de  $T^*$ . Une autre quantité mesurée par RMN est le taux de relaxation spin-réseau  $\frac{1}{T_1} \propto \sum_Q |F(Q)|^2 \frac{\chi''(Q,\omega)}{\omega}$  où  $F(Q)$  est le facteur de forme hyperfin associé au noyau observé et  $\chi''(Q, \omega)$  est la partie imaginaire de la susceptibilité magnétique. Le taux de relaxation spin-réseau  $1/({}^{63}\text{T}_1\text{T})$  du Cu, dont le facteur de forme hyperfin sélectionne les fluctuations autour du vecteur d'onde antiferromagnétique  $q_{\text{AF}}(=(0.5,0.5))$ , est proportionnel à la partie imaginaire de la susceptibilité magnétique proche de  $q_{\text{AF}}$ . Dans le cas de l'O, le facteur de forme sélectionne les fluctuations autour de  $q=0$ . Sur la Fig. 1.5.b, extraite des travaux de M. Takigawa et al [24], nous observons une diminution de  $1/({}^{63}\text{T}_1\text{T})$  en dessous d'une certaine température,  $T^*$ . Elle indique une diminution du poids spectral des fluctuations antiferromagnétiques à basse énergie.

Une autre signature du pseudo-gap est donnée par les mesures de résistivité. La Fig. 1.5.c présente les courbes de résistivité mesurées par T. Ito et al [25]. La température  $T^*$  d'apparition du pseudo-gap est déterminée lorsque la résistivité s'éloigne du comportement linéaire observé dans la phase métal étrange.

La Fig. 1.5.d présente des mesures de microscopie par effet tunnel (STM) effectuées par C. Renner et al [18]. Elle correspondent à l'évolution de la conductivité tunnel en fonction de la tension appliquée pour différentes températures. Plus la température est basse, plus ces courbes présentent un creux correspondant à l'ouverture d'un gap. Ces mesures indiquent la diminution de la densité électronique au niveau de Fermi et suggèrent la persistance d'un gap au dessus de  $T_c$ .

Les mesures de photoémission résolue en angle (ARPES) permettent également de mettre en évidence le pseudo-gap. Elles sondent notamment la surface de Fermi. Cette dernière, bien définie dans le régime sur-dopé ou à haute température dans le régime sous-dopé, se réduit à des arcs de Fermi plus la température est basse dans la région sous-dopée [26, 28] (sous  $T^*$ ). La longueur de ces arcs de Fermi diminue jusqu'à disparaître lorsque  $T$  tend vers zéro. La surface de Fermi disparaît progressivement en température au niveau des points anti-nodaux (Fig. 1.5.e).

Parallèlement, les mesures de spectroscopie Raman électronique (ERS) confirment cette dichotomie entre les points nodaux (canal  $B_{2g}$ ) et anti-nodaux (canal  $B_{1g}$ ) de la surface de Fermi (Fig. 1.5.f). Dans le canal  $B_{2g}$ , l'énergie mesurée suit l'évolution de  $T_c$  en dopage. Dans le canal  $B_{1g}$ , les résultats obtenus permettent de déterminer  $T^*$  [27].



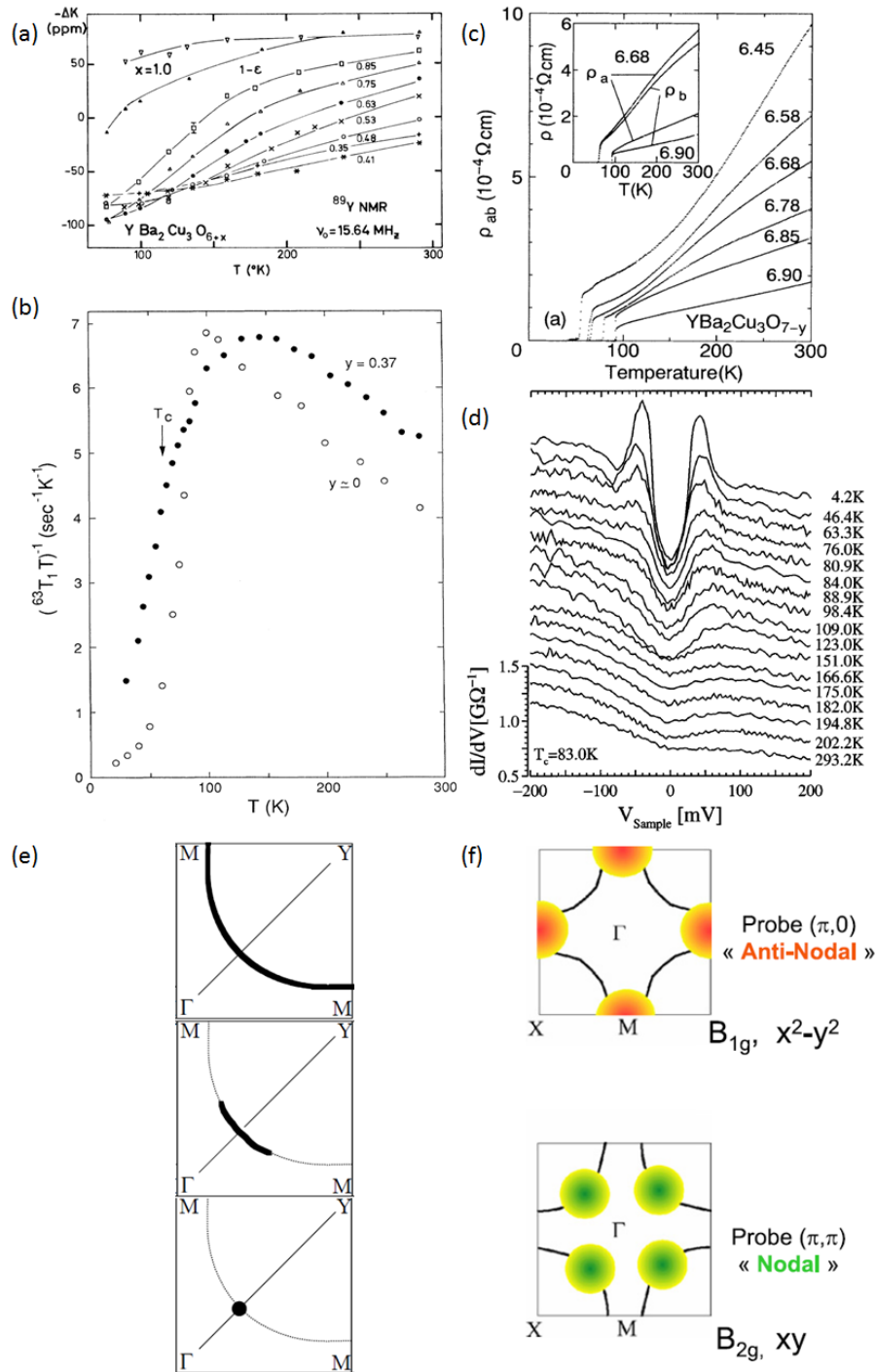


Figure 1.5: (a) Mesures RMN du Knight Shift de l'atome  $^{89}\text{Y}$  dans le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  (Y123) pour des dopages variant de  $x=0.35$  à  $x=1$ , d'après [23]. (b) Taux de relaxation du spin nucléaire  $1/T_1T$  de l'atome de Cu des plans  $\text{CuO}_2$  du composé Y123 pour  $x=0$  et  $x=0.37$ , d'après [24]. (c) Mesures de la résistivité planaire dans le composé Y123 pour des dopages variant de  $x=0.35$  à  $x=0.9$ , d'après [25]. (d) Mesures STM de la densité électronique dans le composé  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$  (Bi2212), d'après [18]. (e) Illustration schématique de l'évolution en température (de la plus haute vers la plus basse) de la surface de Fermi dans le régime sous-dopé des cuprates, d'après [26]. (f) Zones de la surface de Fermi étudiées par mesures de spectroscopie Raman électronique, d'après [27]. Nous distinguons les régions anti-nodales (B<sub>1g</sub>) et nodales (B<sub>2g</sub>).



Nous notons également que les mesures de chaleur spécifique [29] indiquent une diminution du poids spectral au niveau de Fermi au dessus de  $T_c$  dans la phase sous dopée.

La phase de pseudo-gap est donc caractérisée par l'ouverture de manière progressive d'un gap partiel (sur la surface de Fermi donc dans l'espace réciproque) pour une température inférieure à la température  $T^*$  mais supérieure à  $T_c$  ( $T^*$  diminuant en dopage). La diminution du poids spectral au niveau de Fermi à lieu tant dans le canal de charge (mesures ARPES, STM) que dans celui de spin (mesures RMN).

### 1.2.4 Les éléments en faveur d'une phase ordonnée apparaissant à $T^*$

Depuis la découverte du pseudo-gap, il est question de savoir s'il est associé à une transition de phase ou à un crossover, correspondant à un changement graduel des propriétés électroniques, sans réelle brisure de symétrie. Différentes sondes expérimentales fournissent la signature d'une brisure de symétrie en entrant dans l'état de pseudo-gap. Cette brisure de symétrie nous indique une transition de phase.

La diffusion de neutrons polarisés a permis de mettre en évidence un nouvel ordre magnétique apparaissant à  $T_{mag}$  pour quatre familles de cuprates:  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  (Y123) [30–33],  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+x}$  (Bi2212) [34],  $HgBa_2CuO_{4+x}$  (Hg1201) [35, 36] et  $La_{2-x}Sr_xCuO_4$  (La214) [37]. Pour la famille Hg1201 et Y123, la température  $T_{mag}$  correspond à la température du pseudo-gap  $T^*$  déterminée par des mesures de résistivité [25]. Pour Bi2212, les dépendances en dopage de  $T_{mag}$  et  $T^*$  déterminée par différentes techniques [27, 28, 38–41] (résistivité, RMN, ARPES, STM, ERS) sont en accord.  $T^*$  ne diminue pas de façon linéaire lorsque le dopage augmente et semble présenter un épaulement autour du dopage optimal pour la famille Bi2212 [42]. Cet ordre préserve l'invariance par translation, il s'agit d'un ordre (antiferro)magnétique à  $q=0$ . Dans le cas d'un tel ordre, plusieurs moments magnétiques doivent être présents au sein de la maille élémentaire mais l'aimantation de la maille élémentaire demeure nulle. De plus, cet ordre brise la symétrie par renversement du temps. Ces observations sont donc en faveur d'une transition de phase à  $T^*$ .

D'autres mesures fournissent des indications directes ou indirectes qu'une brisure de symétrie se produit à  $T^*$ . Des mesures de spectroscopie de résonance ultrasons, effectuées pour deux composés de la famille Y123, ont récemment apporté la première preuve thermodynamique qu'une véritable transition de phase a lieu lors de l'apparition du pseudo-gap [43]. Concernant les mesures d'ARPES dans la famille Bi2212, dans l'état de pseudo-gap, la lumière polarisée circulairement gauche donne un photocourant différent de celle polarisée circulairement droite [44]. Ce dichroïsme impliquerait une brisure de symétrie par renversement du temps spontanée en entrant dans la phase de pseudo-gap [45]. Les dépendances en température mesurées par la diffusion de neutrons [34] et des effets dichroïques [44] dans des échantillons aux dopages comparables correspondent. L'apparition de la brisure de symétrie par renversement du temps trouvée par les deux types de mesures est en bon accord.

De plus, l'apparition spontanée d'une anisotropie a-b du coefficient de Nernst à  $T_v$  [46] (observé pour la famille Y123) pourrait être interprétée comme une violation du principe de récipro-

ité d’Onsager dans un état qui brise la symétrie par renversement du temps [47]. En outre, l’observation d’anomalies dans la dérivée seconde de l’aimantation sous la température notée  $T_\chi$  [48] peut être comprise comme un couplage du paramètre d’ordre à la susceptibilité uniforme [49]. Enfin, un effet Kerr a été observé au sein de la phase de pseudo-gap sous  $T_K$  [50].  $T_K$  est inférieure à la température de pseudo-gap pour la famille Y123, alors que pour le système monocouche  $Pb_{0.55}Bi_{1.5}Sr_{1.6}La_{0.4}CuO_{6+x}$  (Pb-Bi2201) [51] cette température est en accord avec  $T^*$  (à ce jour, aucune mesure de diffusion de neutrons n’a été menée dans la famille Pb-Bi2201). Les dépendances en dopage des différentes températures  $T_{mag}$ ,  $T_v$ ,  $T_\chi$  (et  $T_K$ ) présentent une certaine similitude. Elles sont également comparables aux différentes mesures de  $T^*$  de l’apparition du pseudo-gap.

Ainsi, pour plusieurs familles d’échantillons, un nombre important de résultats expérimentaux sont en faveur d’une phase ordonnée (compatible avec l’ordre magnétique à  $q=0$ ), tant par la similarité des évolutions en dopage des températures caractéristiques que par les symétries mises en jeu. Le paramètre d’ordre et les symétries brisées restent encore à être clairement identifiés. Bien que la détection éventuelle de champs magnétiques associés à l’ordre magnétique à  $q=0$  par des sondes locales telles que la RMN, NQR ou  $\mu$ SR soit encore discutée [52–56], tous ces résultats devraient contribuer à une compréhension plus profonde de la nature intrinsèque de cet ordre potentiellement associé à la phase de pseudo-gap.

### 1.2.5 Ordres de spin et/ou de charge

Sur le diagramme de phase présenté sur la Fig. 1.6, nous retrouvons les phases: antiferromagnétique, supraconductrice et de pseudo-gap. Il existe également des états modulés ( $q \neq 0$ ) de spin (SDW), de charge (CDW), qui brisent l’invariance par translation.

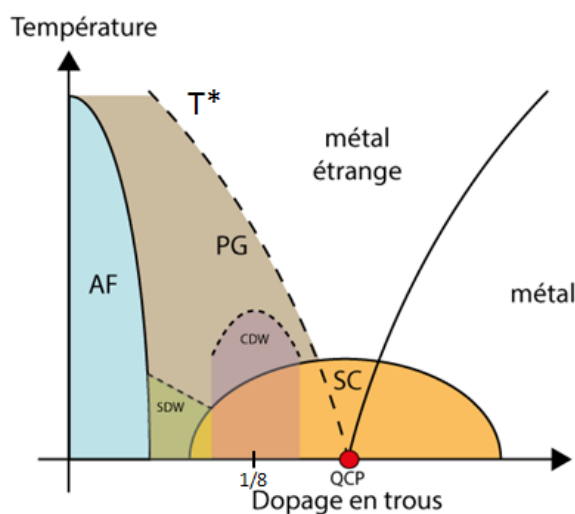


Figure 1.6: Diagramme de phase schématisé, dopage en trous. Nous retrouvons notamment les phases: antiferromagnétique, supraconductrice et de pseudo-gap. Il existe également d’autres types d’ordres: de spin (SDW), de charge (CDW), dont les caractéristiques varient selon les familles de cuprates.

La première mise en évidence de modulations de la charge et de spin a été reportée par la diffusion de neutrons dans les composés  $La_{1.6-x}Nd_{0.4}Sr_xCuO_4$  et  $La_{2-x}Ba_xCuO_4$  autour de  $p=1/8$  [57]. Dans cette étude, un signal magnétique incommensurable est observé autour du vecteur d'onde antiferromagnétique  $q_{AF}$  avec  $q_{IC} = q_{AF} \pm (\delta, 0)$  (et/ou  $\pm(0, \delta)$ ). A plus haute température, des réflexions de Bragg incommensurables centrées en  $2q_{IC}$  apparaissent et sont associées à un ordre de charge. Pour cette concentration particulière ( $p=1/8$ ), une diminution de la température de transition supraconductrice est également observée. Cet ordre incommensurable semble donc affecter la température critique. La combinaison des modulations de charge et de spin est habituellement interprétée par un modèle de type stripes [58]. En dopant avec des trous, le motif antiferromagnétique serait perturbé car le déplacement de ces trous peut provoquer la juxtaposition de deux électrons de même spin. Cela coûte de l'énergie au système. Il cherche alors à minimiser cette énergie en regroupant les électrons. La répulsion coulombienne quant à elle va s'opposer au confinement des trous. Cela conduit à un motif de rubans: alternance de zones chargées positivement ou négativement. Les lignes de trous, jouant le rôle d'un mur de domaine, séparent les domaines non dopés et corrélés entre eux. Les lignes de trous séparent donc deux domaines antiferromagnétiques en anti-phase.

Cet ordre statique de charge et de spin n'est pas observé dans d'autres cuprates. Pour les autres familles, les instabilités de spin (SDW) et de charge (CDW) apparaissent de manière indépendante.

Les instabilités de spin produisent une réponse magnétique caractérisée par les vecteurs d'onde planaires  $q_{SDW} = q_{IC}$ . Dans la famille La214, pour un niveau de dopage faible ( $p=0,085$ ), l'intensité associée à l'ordre SDW est forte [37]. Dans le cas de la famille Y123, pour un composé légèrement dopée ( $p\sim 0,08$ ), les fluctuations de spin incommensurables de basse énergie commencent à présenter une nette anisotropie a-b [59].  $T_{nem}$  est généralement interprétée comme la température à laquelle la symétrie de rotation d'ordre quatre (C4) est spontanément brisée (poussant le système dans un état nématique électronique). A des températures plus basses, les corrélations de spin gèlent à  $T_{SDW}$ , donnant lieu à une onde de densité de spin [59]. Pour des composés sous-dopés ( $p>0,09$ ) de la famille Y123, l'ordre SDW n'existe plus, seules des corrélations antiferromagnétiques subsistent.

De plus, un ordre de charge pour différentes familles de cuprates dans la gamme sous-dopée, Y123 [60–62], Bi2212 [63, 64], Bi2201 [65, 66], Hg1201 [67, 68], a été reporté. Cet ordre de charge présente un facteur de forme de symétrie  $d$ . Cela suggère que la modulation de la charge dans une plaquette  $CuO_2$  est portée par les oxygènes. Cet ordre est modulé d'une maille élémentaire à la suivante, il s'agit d'une onde de densité de charge (CDW). À une température  $T_{CDW} < T^*$ , des modulations de charge incommensurables orientées selon les axes cristallins, caractérisées par le vecteur d'onde  $q_{CDW} = \pm(\epsilon, 0)$  (et/ou  $\pm(0, \epsilon)$ ), ont été observées par diffusion de rayons X résonant (RXS) [61, 65, 69], diffraction de rayons X [62, 70–72] et microscopie à effet tunnel (STM) [63–66, 69, 73] à champ magnétique nul. Lorsqu'un champ magnétique extérieur est appliqué, l'ordre CDW est renforcé tandis que la supraconductivité est supprimée. Les mesures RMN [60, 74] et ultrasons [75] indiquent en outre que les corrélations de charge sont à longue portée uniquement sous l'application d'un champ magnétique (correspondant à un ordre CDW statique). Par

conséquent, l'ordre CDW rapporté dans les mesures de rayons X (sans champ magnétique) est fluctuant. Ceci est directement prouvé par l'absence de changement de signe de l'effet Hall [67]. Une reconstruction de la surface de Fermi (à champ non nul) interprétée d'après des expériences d'oscillations quantiques [76, 77], et des mesures de transport de Hall, Seebeck, et coefficients de Nernst [67, 78, 79] suggère également l'apparition d'un ordre électronique.

De manière générale, des ordres de spin et/ou de charge semblent être communs à tous les cuprates. Toutefois, ils ne se manifestent pas de la même manière selon les composés et ils n'apparaissent pas en même temps que la phase de pseudo-gap. En particulier, l'ordre de charge semble se développer de façon systématique autour d'un dopage caractéristique  $p \sim 1/8$ .

### 1.2.6 Les fluctuations antiferromagnétiques

En augmentant le dopage, alors que l'ordre antiferromagnétique a totalement disparu, des corrélations antiferromagnétiques subsistent. La diffusion élastique de neutrons permet de mettre en évidence une instabilité de spin (SDW) autour du vecteur d'onde antiferromagnétique  $q_{AF}$ . La diffusion inélastique des neutrons quant à elle révèle la persistance de fluctuations antiferromagnétiques autour de  $q_{AF}$ .

La partie haute du spectre des fluctuations en énergie ( $> 50 meV$ ) n'est pas affectée par la température que ce soit au travers de  $T^*$  ou de  $T_c$  [80] (Fig. 1.7). Elle est généralement considérée comme une réminiscence de la phase isolante antiferromagnétique.

La partie basse du spectre en énergie quant à elle subit de forts changements au travers de  $T^*$  et  $T_c$ .

Au dessus de  $T_c$  (donc dans la phase de pseudo-gap), le spectre en énergie est dominé par une excitation autour de  $30 meV$  très large en énergie. Il est à noter que le poids spectral de ces excitations se déplace vers les hautes énergies et l'intensité diminue lorsque l'on augmente le dopage. Aucune excitation magnétique, donc aucune énergie caractéristique, n'est mesurable au-delà du dopage optimal [81]. Ces fluctuations sont donc propres au régime sous-dopé. L'intensité des fluctuations antiferromagnétiques augmente graduellement de  $T^*$  à  $T_c$ .

En dessous de  $T_c$  (dans l'état supraconducteur), ce spectre se caractérise par l'ouverture d'un gap et l'observation d'une forte augmentation de la réponse magnétique à énergie finie, il s'agit du pic de résonance antiferromagnétique [82]. L'intensité magnétique ne fait que d'augmenter jusqu'à basse température. Le pic de résonance antiferromagnétique n'existe pas dans les supraconducteurs conventionnels et présente un caractère universel puisqu'il est observé dans de nombreux supraconducteurs non conventionnels dont les cuprates [83].

Les fluctuations de basse énergie présentent également une forme de dispersion en énergie caractéristique. Sur la Fig. 1.7, extraite d'après [84], nous prenons l'exemple de l'échantillon  $YBa_2Cu_3O_{6.6}$  ( $T_c=63K$ ,  $p \sim 0,12$ ). La dispersion des fluctuations antiferromagnétiques change entre la phase de pseudo-gap (c-d) et l'état supraconducteur (a-b). De plus, ces mesures révèlent une anisotropie (quasi-1D) dans la branche des basses énergies en dessous de  $T_c$  [84]. Bien que la dispersion vers les hautes énergies demeure incommensurable et isotrope dans les deux directions  $a^*$  et  $b^*$ , nous

ne distinguons pas d'incommensurabilité pour la branche dispersant vers le bas dans la phase de pseudo-gap (au dessus de  $T_c$ ). Nous parlons alors de dispersion en Y dans la phase de pseudo-gap et en X dans la phase supraconductrice. De plus, la largeur de ce mode suivant  $a^*$  est plus grande que suivant  $b^*$ . La branche qui disperse vers les basses énergies n'est pas observée jusqu'à énergie nulle, en effet celle-ci s'arrête brusquement à basse énergie, nous parlons alors de gap de spin qui s'ouvre en dessous de  $T_c$ .

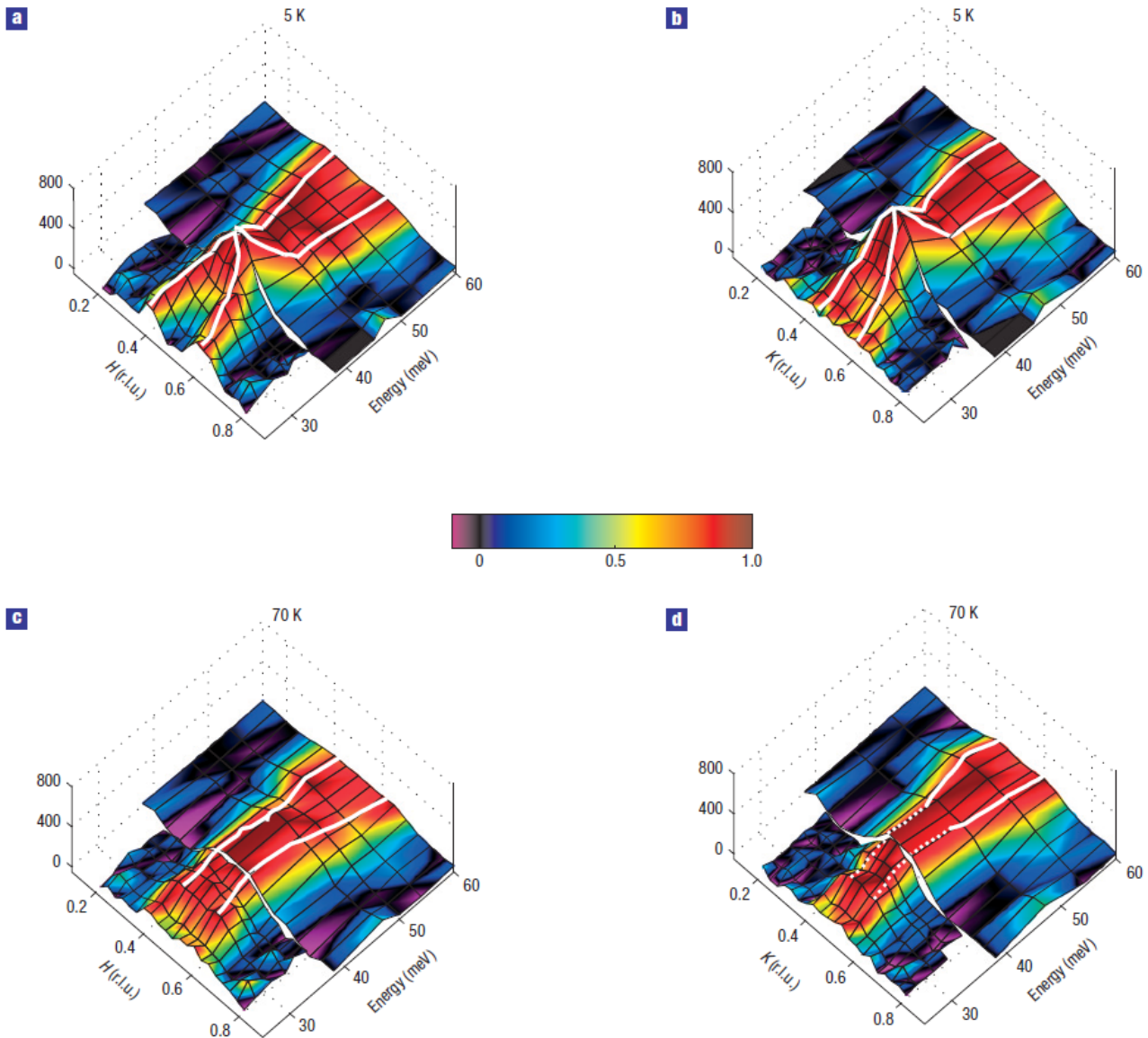


Figure 1.7: Dispersion de l'intensité magnétique dans l'état supraconducteur (a)-(b) (dont le maximum correspond au pic de résonance) et dans la phase normale (c)-(d), suivant les deux axes  $a^*$  (H,-1.5,-1.7) ((a) et (c)) et  $b^*$  (1.5,H,1.7) ((b) et (d)) d'après [84] pour l'échantillon  $YBa_2Cu_3O_{6.6}$  ( $T_c=63K$ ,  $p\sim 0,12$ ). La branche haute énergie est incommensurable dans tous les cas, la branche basse énergie quant à elle devient commensurable dans le cas de la phase normale. Une anisotropie est également mise en évidence dans la branche basse énergie (le paramètre d'incommensurabilité est plus grand suivant  $a^*$ ).



## 1.3 Modèles du pseudo-gap

Depuis ces trente dernières années, de nombreux modèles ont été proposés pour expliquer les propriétés électroniques exotiques de la phase de pseudo-gap dans les cuprates. Cette section n'a pas pour but d'être exhaustive, nous nous limiterons à quelques modèles relatifs à notre étude de l'ordre magnétique à  $q=0$  et à l'ordre de charge qui suscitent beaucoup d'intérêt actuellement.

### 1.3.1 Les boucles de courant

En considérant un modèle de Hubbard à trois bandes, c'est à dire en prenant en compte les degrés de liberté internes de la plaquette  $\text{CuO}_2$  (orbitales du cuivre et des oxygènes), C. Varma propose des boucles de courant [17] comme modèle du pseudo-gap. Dans ce scénario la phase de pseudo-gap tend à disparaître autour d'un point critique quantique (diagramme de phase Fig 1.8.a). Comment se forment ces boucles? D'après la théorie de champ moyen, une forte interaction électronique implique la répulsion de Coulomb entre le cuivre et les oxygènes voisins. Les états électroniques sont obtenus par la combinaison linéaire des orbitales de l'oxygène et du cuivre, mais leur fonction d'onde comporte une phase qui varie en passant du cuivre à l'oxygène. En mécanique quantique, un gradient de phase de la fonction d'onde correspond à un courant.

Différents motifs de boucles de courant ont été proposés [17, 86, 87]. Il y a la phase CC- $\theta_1$  (avec 4 boucles de courant par plaquette  $\text{CuO}_2$ , Fig. 1.8.b) et la phase CC- $\theta_2$  (avec 2 boucles de courant, Fig. 1.8.c). Dans les deux cas, les courants circulent en opposition de phase dans le plan et induisent des moments magnétiques orbitaux perpendiculaires au plan. La somme des moments magnétiques orbitaux est nulle dans chaque maille élémentaire (plaquette) et ces moments sont positionnés au centre des plans triangulaires formés par les boucles de courants. Cette phase préserve la symétrie par translation du réseau. Cela donne lieu à un ordre antiferromagnétique à  $q=0$ . En revanche, cette phase brise la symétrie par renversement du temps. Cette brisure de symétrie a pour conséquence de décrire la transition à  $T^*$  comme une vraie transition de phase.

Pour la phase CC- $\theta_2$ , il existe quatre états dégénérés différents de boucles, Fig. 1.8.d (brisure de la symétrie de rotation d'ordre quatre). Chaque état se déduit du premier par une rotation d'un angle de  $\pi/2$ ,  $\pi$  ou  $3\pi/2$ . Nous représentons également le paramètre d'ordre qui est défini par un vecteur anapolaire (moment toroïdal, flèche rouge Fig. 1.8.d), se trouvant dans le plan et pointant dans la direction diagonale de la plaquette  $\text{CuO}_2$ . Cet anapole résulte du produit vectoriel entre la distribution de moment et les quatre positions possibles des moments magnétiques orbitaux [88]. Les quatre états différents peuvent être décrits par un modèle d'Ashkin-Teller [91], comparable à un système de deux sous-réseaux de type Ising en interaction. En prenant en compte les fluctuations quantiques, l'état fondamental n'est pas restreint à un seul des quatre états classiques (décrits précédemment, Fig. 1.8.d) mais se présente comme la superposition quantique de ces derniers [85, 88, 92, 93].

La capacité de cet ordre à ouvrir un gap au niveau de Fermi reste toutefois une question ouverte. Une phase qui préserve l'invariance par translation ne produit pas de gap (sauf dans le cas de la supraconductivité). Cependant les fluctuations du paramètre d'ordre entraîneraient une

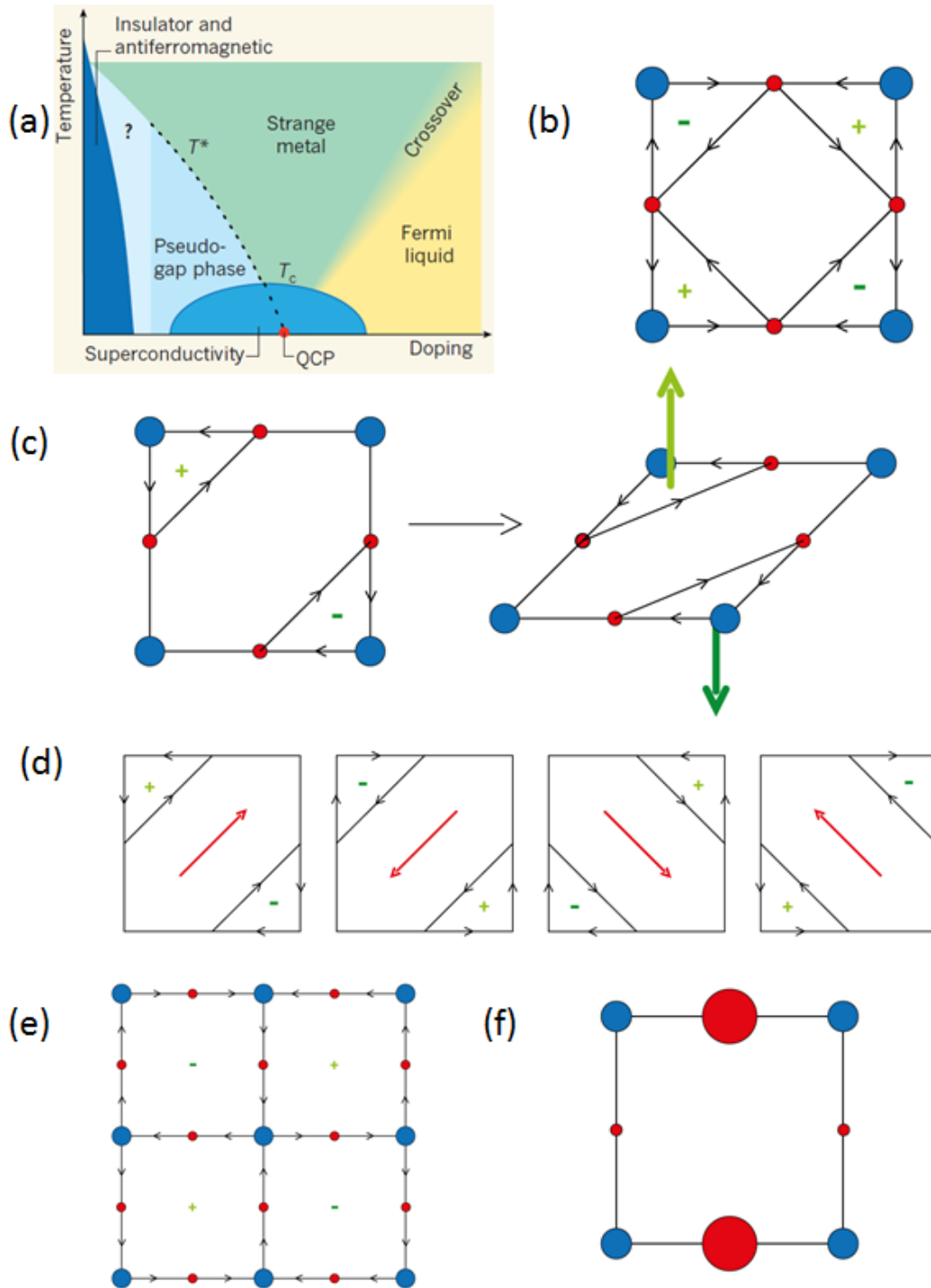


Figure 1.8: (a) Diagramme de phase, d'après [85]. (b) Phase CC-01 et (c) phase CC-02 proposées par C. Varma [17, 86, 87]. Les boucles de courant induisent des moments magnétiques orbitaux perpendiculaires à la plaquette  $\text{CuO}_2$ . Ce type d'ordre est caractérisé par la brisure par renversement du temps et l'invariance par translation. (d) Quatre états dégénérés de la phase CC-02 [88] (brisure de symétrie de rotation  $C_4$ ). La flèche rouge symbolise l'anapole. (e) Phase onde de densité  $d$  (DDW) d'après [89]. Les courants circulent dans les plaquettes  $\text{CuO}_2$  le long des liaisons cuivre-oxygène. Leur sens est alterné de maille en maille. (f) État nématique électronique d'après [90]. La densité électronique est distincte sur les sites de l'oxygène le long des deux directions orthogonales  $a$  et  $b$  au sein de la plaquette  $\text{CuO}_2$ .

instabilité de la surface de Fermi à  $q=0$  et donc l'ouverture d'un gap au niveau de Fermi [94].

Des analyses numériques effectuées par R. Thomale et M. Greiter [95, 96] ne confirment pas l'existence de cet ordre. Et la stabilité de cet état a longtemps été questionné. Les simulations Monte Carlo de C. Weber et al [97] ont montré dans un premier temps que la phase CC- $\theta$ II ne pouvait pas être stable (à longue portée). Ils ont alors proposé une phase de boucles (plus stable) mais délocalisées sur les oxygènes apicaux (modèle de Hubbard à 5 bandes). Des études plus récentes [98], prenant en compte des paramètres électroniques plus réalistes, montrent que la phase CC- $\theta$ II peut être stable.

Un autre type de modèle (à une bande) est basé sur l'existence de boucles de courant. Celles-ci sont associées à une onde de densité de charge de symétrie  $d$  ( $d$  density wave: DDW) proposée par S. Chakravarty et al [89] (Fig. 1.8.e). Les courants circulent dans les plaquettes  $\text{CuO}_2$  le long des liaisons cuivre-oxygène. Le sens du courant est alterné de maille en maille, assurant un moment magnétique macroscopiquement nul. Tout comme l'ordre antiferromagnétique de spin, une phase de boucles alternées présente une maille deux fois plus grande que la maille du réseau cristallin. Dans les mesures de diffraction, l'intensité magnétique devrait être observée au vecteur d'onde antiferromagnétique  $q_{\text{AF}}=(0.5,0.5)$ , distinct des réflexions de Bragg nucléaires.

### 1.3.2 État nématique électronique

Un ordre à  $q=0$  (invariance par translation) mais cette fois-ci de charge (non magnétique) a été proposé pour rendre compte de la physique des cuprates et notamment pour comprendre les mesures STM. Il brise la symétrie de rotation d'ordre quatre ( $C_4$ ), il s'agit de l'état nématique électronique [90] (Fig. 1.8.f). Il correspond à des instabilités de la surface de Fermi impliquant un déséquilibre spontané de charge entre les deux sites d'oxygène dans la maille élémentaire. Nous observons donc une densité électronique distincte sur les sites de l'oxygène le long des deux directions orthogonales  $a$  et  $b$  au sein de la plaquette  $\text{CuO}_2$ . En principe, cet ordre est différent d'un ordre magnétique à  $q=0$ . Cependant, en considérant différentes interactions sur-site et entre premiers voisins dans une approche de champ moyen, cette étude indique que les répulsions suppriment ou favorisent des ordres à  $q=0$ . En particulier, l'état nématique électronique et un ordre de boucles à  $q=0$  pourraient coexister [90].

### 1.3.3 Onde de densité de paires

Une autre hypothèse pour comprendre le pseudo-gap prend en compte un état d'onde de densité de paires (pair density wave: PDW). Il s'agit d'un état de paires de Cooper qui porteraient un moment fini, par opposition à la théorie BCS où les paires de Cooper portent un moment nul.

Dans son modèle, D. Agterberg et al [99] reprennent ce type d'ordre et propose qu'il puisse générer des boucles de courant (LC) magnéto-électriques. Cela donne lieu à un paramètre d'ordre non-supraconducteur invariant par translation mais qui brise la symétrie par renversement du temps et les symétries de paires, mais conserve leur produit. Ce paramètre d'ordre a une origine différente, mais partage les mêmes propriétés de symétrie qu'un ordre de boucles de courant. En



raison des fluctuations, ces boucles peuvent préempter l'ordre PDW (Fig. 1.9.a). De plus, dans un tel modèle, les boucles de courant pourraient coexister avec un ordre supraconducteur courte portée (spatialement) et éventuellement avec un état d'onde de densité de charge courte portée.

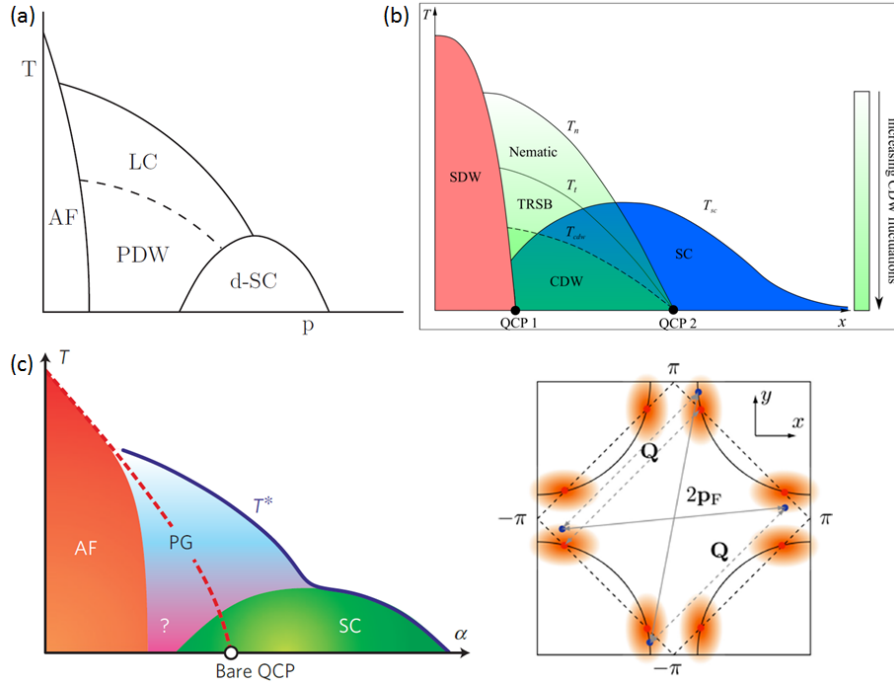


Figure 1.9: Diagramme de phase (a) d'après [99] et (b) d'après [100]. (c) Diagramme de phase d'après [101] et illustration des zones de points chauds sur la surface de Fermi d'après [102].

### 1.3.4 Modèles spin-fermion

#### 1.3.4.1 État mixte: onde de densité quadrupolaire et supraconductivité de symétrie $d$

Dans un modèle spin-fermion, ce sont les fluctuations antiferromagnétiques qui interviennent dans l'appariement des électrons et engendrent une supraconductivité non conventionnelle de symétrie  $d$ . Une des difficultés majeures de cette approche est qu'elle ne permet pas de comprendre le pseudo-gap. Ce n'est que récemment qu'il a été montré qu'à deux dimensions l'échange de fluctuations antiferromagnétiques autorisait simultanément la formation de paires de Cooper mais également de paires électron-trou, toutes deux de symétrie  $d$ . K. Efetov et al [101] ont ainsi proposé que l'état de pseudo-gap pourrait être une phase décrite simultanément par un état supraconducteur et un état onde de densité de charge quadrupolaire (QDW), tous deux de symétrie  $d$ . Cette phase se développe principalement autour des points de la surface de Fermi qui sont connectés par le vecteur d'onde antiferromagnétique  $q_{AF}$  (points chauds, Fig. 1.9.c). Si dans cette phase, on peut passer continument d'un état à l'autre, il est possible de sélectionner un seul des deux états. En abaissant la température, la supraconductivité l'emporte. A l'opposé en appliquant un champ magnétique, l'état QDW est favorisé. Des travaux plus récents montrent également que des instabilités électroniques subsidiaires, CDW et/ou PDW, peuvent apparaître à basse température (entre  $T_c$  et  $T^*$ ) [102]. Ce modèle propose une explication à la formation du pseudo-gap,

toutefois, il ne permet pas de comprendre l'existence d'un ordre magnétique à  $q=0$ . Les calculs dans un modèle à trois bandes [103] suggèrent même qu'un état QDW-PDW serait potentiellement en compétition avec la phase CC- $\theta_2$  de boucles de courant proposée par C. Varma.

### 1.3.4.2 Ordre de charge composite

Partant du même modèle spin-fermion, Y. Wang et A. Chubukov [100] proposent un ordre CDW composite, c'est à dire que le paramètre d'ordre est complexe (parties réelle et imaginaire). Un ordre de charge CDW seul a un paramètre d'ordre réel. Par opposition, lorsque le paramètre d'ordre est imaginaire pur, il n'y a pas une de modulation de la charge, mais une modulation du courant. Ici, le paramètre d'ordre complexe implique l'existence d'un état composite qui conduit à la fois à un état modulé de charge et de courant. D'un point de vue du diagramme de phase (Fig. 1.9.b), l'ordre CDW serait précédé de différents états. Tout d'abord, nous aurions un état nématique où il y a brisure de symétrie de rotation  $C_4$ . Ensuite, apparaîtrait une symétrie brisée par renversement du temps. Enfin, l'apparition de l'ordre CDW briserait l'invariance par translation. Il est intéressant de remarquer que dans l'état où la symétrie par renversement du temps est brisée, la valeur moyenne des modulations de la densité de charge et des modulations de courant est nulle mais pas celle de leur produit. Comme les vecteurs de propagation des ordres de charge et de courant sont de signes opposés ( $+q$  et  $-q$ ), la combinaison des deux conduirait à un ordre à  $q=0$ . Aussi, ce modèle propose l'existence de deux points critiques quantiques autour duquel s'articulent les ordres de spin et de charge.

Tous ces modèles sont différents dans leur approche avec d'une part des ordres à  $q=0$  et d'autres part des ordres à  $q\neq 0$  qui prédominent. Il est nécessaire d'accumuler des résultats expérimentaux afin de favoriser une piste de réflexion par rapport à une autre.

## 1.4 Quel mécanisme pour la supraconductivité?

In fine, même s'il ne fait pas l'objet de cette thèse, le but est de déterminer le mécanisme à l'origine de l'appariement supraconducteur.

Le couplage électron-phonon est la première interaction à laquelle nous pouvons penser. Dans le cadre de la théorie BCS, nous avons vu que le gap est de symétrie  $s$  alors que pour les cuprates, il est de symétrie  $d$ . Il est toutefois possible de considérer un mode de phonon particulier ainsi que la répulsion coulombienne intra-site [104], permettant de générer un potentiel attractif qui diminue à grand vecteur d'onde (satisfaisant la symétrie  $d$ ). Aucune valeur de  $T_c$  n'a été calculée et expérimentalement, aucun effet isotopique n'a pu être mis en évidence, suggérant un mécanisme différent pour ces systèmes. Toutefois, un rôle secondaire des phonons n'est pas à exclure.

Il a été établi aussi que prendre en compte les degrés de liberté de charge et de spin des électrons permet de prédire l'existence d'un potentiel attractif entre les électrons même en absence de phonons. En particulier, l'appariement peut se faire par l'échange d'autres bosons: des fluctuations de spin par exemple. Le couplage électron-phonon est alors remplacé par un couplage

spin-fermion [105]. Dans le cas d'une supraconductivité de symétrie  $d$  et lorsque le système est proche d'instabilité antiferromagnétique, les corrélations antiferromagnétiques peuvent induire un potentiel par exemple attractif entre deux électrons sur deux sites voisins ou répulsif si les électrons sont sur deux sites second voisins (Fig. 1.10).

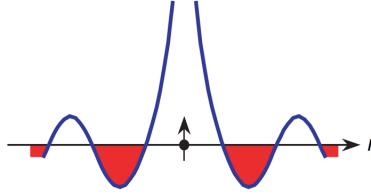


Figure 1.10: Illustration du couplage spin-fermion dans le cas d'une supraconductivité de symétrie  $d$ . Les corrélations antiferromagnétiques peuvent induire un potentiel d'interaction entre deux quasi-particules de spins opposés [105]. Les zones rouges symbolisent un potentiel attractif entre deux sites voisins.

Dans le cas de la phase CC- $\theta$ II proposée par C. Varma, les fluctuations des 4 domaines sont responsables de l'appariement supraconducteur [106]. Les fluctuations associées à l'ordre de ces boucles, contrôlant les propriétés du liquide de Fermi marginal, se couplent aux fermions (électrons). Deux symétries possibles découlent de la fonction de couplage considérée:  $s$  (potentiel répulsif) ou  $d$  ( $d_{x^2-y^2}$  ou  $d_{xy}$ , potentiel attractif). La symétrie  $d_{x^2-y^2}$  est en fait imposée par l'anisotropie des constantes de couplage entre les électrons et les fluctuations. En d'autres termes, la symétrie  $d_{x^2-y^2}$  est favorisée car dans ce cas le gap est maximum dans les directions où la densité d'état est la plus grande (minimisant l'énergie du système).

A ce jour, aucun consensus n'a été dégagé concernant l'appariement des électrons permettant à la supraconductivité de s'établir. Une étude plus approfondie du pseudo-gap, susceptible de fournir tous les ingrédients pour la supraconductivité, est nécessaire.

## 1.5 L'ordre magnétique à $q=0$

L'apport de cette thèse dans la problématique des cuprates concerne l'étude de l'ordre magnétique à  $q=0$  à l'aide de la diffusion de neutrons. Dans cette dernière partie, nous nous intéressons davantage aux découvertes relatives à l'ordre magnétique à  $q=0$ , tant au niveau expérimental qu'au niveau théorique.

### 1.5.1 Les mesures de diffusion de neutrons polarisés

L'utilisation de la diffusion de neutrons polarisés par B. Fauqué et al [30] a permis d'identifier pour la première fois un nouvel ordre magnétique dans la famille de composé  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  (Y123). Il a été vu que, dans la phase de pseudo-gap, un surcroît de signal de nature magnétique apparaît superposé aux positions de Bragg du réseau, ce qui conforte l'idée d'une phase ordonnée présentant des moments magnétiques. Cette étude a été menée pour cinq échantillons différents A, B, C, D et E (Fig.1.11.a-e, [30]) allant du moins au plus dopé (de  $p \sim 0,1$  à  $0,2$ ). L'intensité et la température

d'apparition de l'ordre diminue en augmentant le dopage, suivant l'évolution de la température  $T^*$  du pseudo-gap [25, 107] (Fig.1.11.f). L'ordre magnétique observé préserve la symétrie de translation, mettant en évidence un ordre magnétique à  $q=0$  au sein de la phase de pseudo-gap. Cela se traduit notamment par le fait que le signal est observé aux réflexions de Bragg de la forme  $\mathbf{Q} = (1,0,L)$  ou  $(0,1,L)$ , quel que soit  $L$  entier (notations en unités réduites, r.l.u.). Ici, l'étude a été menée à  $L=1$  [30].

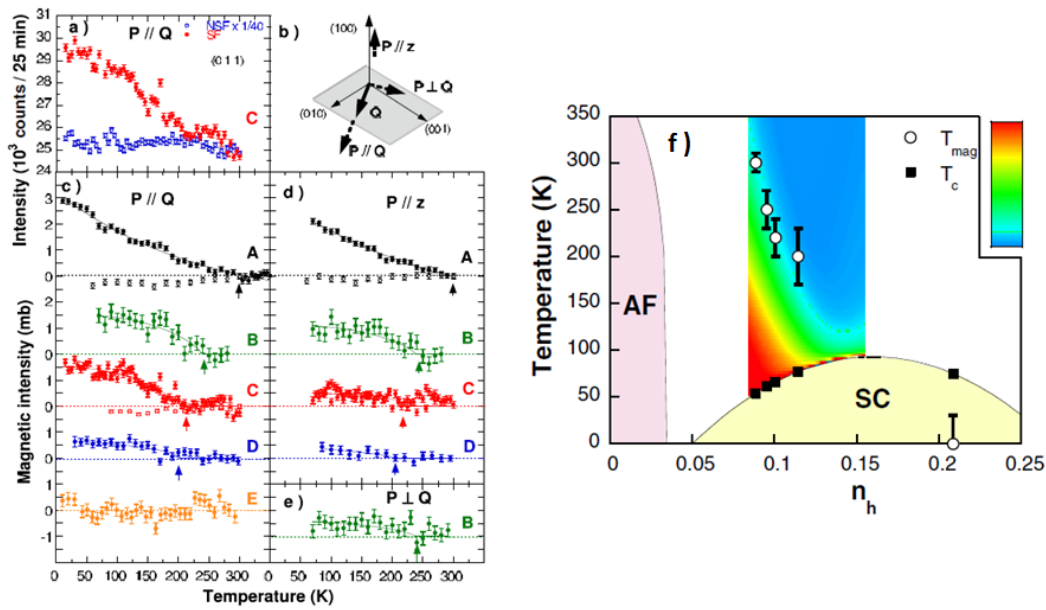


Figure 1.11: (a)-(e) Mise en évidence d'un ordre magnétique à  $q=0$  longue portée dans cinq échantillons de la famille Y123. Les appellations A, B, C, D et E sont explicitées dans [30]. P indique la direction de polarisation des neutrons. Pour plus de détails concernant cette étude se référer à [30]. (f) Diagramme de phase de la famille Y123 d'après [30]. Le dégradé de couleurs correspond aux mesures de résistivité.  $T^*$  est déterminé lorsque la résistivité s'écarte de son comportement linéaire (zone bleue).

Par ailleurs, la preuve d'un ordre à longue portée a été reportée par H. Mook et al [32], avec une limite inférieure de  $\xi_c \gg 75\text{\AA}$  pour la longueur de corrélation le long de l'axe  $c$  du cristal (soit le long de  $L$ ). Il n'y a pas de mesures permettant de déterminer les longueurs de corrélation dans le plan (limitées par la résolution instrumentale). Toutefois, aucun signal n'est observé en dehors de la réflexion de Bragg (à  $\mathbf{Q}=(0.9,0,L)$  par exemple) et l'intensité observée est forte, les longueurs de corrélation dans le plan ne peuvent pas être courtes. L'ordre magnétique (corrélations magnétiques statiques à l'échelle de temps des neutrons) est donc 3D et à longue portée.

Ces observations ont été reproduites dans plusieurs échantillons de la famille  $HgBa_2CuO_{4+x}$  (Hg1201) par Y. Li et al [35] à  $\mathbf{Q} = (1,0,L)$  avec  $L = 0$  et 1. Des études concernant la famille  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+x}$  (Bi2212) ont également été menées par S. De Almeida-Didry et al [34] dans trois échantillons, particulièrement pour un échantillon sous-dopé avec quatre valeurs de  $L$  (1, 3, 5 et 7). D'après tous ces travaux, l'ordre magnétique à  $q=0$  est caractérisé par l'apparition d'un signal magnétique en dessous d'une certaine température,  $T_{mag}$ , correspondant à la température  $T^*$  du pseudo-gap.

Le signal apparaît limité par la résolution, indiquant que cet ordre est à longue portée. L'étude en fonction du dopage suggère par ailleurs que cet ordre devrait disparaître pour des dopages supérieurs à  $p \sim 0,2$ . Enfin, nous observons le même type d'ordre pour ces trois familles (bicouches Y123 et Bi2212, monocouche Hg1201), indépendamment des propriétés structurales des matériaux (nombre de plans  $\text{CuO}_2$ ).

Des mesures similaires ont été menées dans la famille  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  (La214) pour un très faible dopage ( $p \sim 0,085$ ) par V. Balédent et al [37]. Dans cet échantillon, l'intensité magnétique à la position de Bragg est très faible. Une autre manière d'observer l'ordre magnétique à  $q=0$  a été mise en évidence. Il est possible d'étudier des positions de Bragg interdites par la structure ou bien regarder à une autre valeur de  $L$  non entière. Les Fig. 1.12.a-c présentent cette étude. L'ordre magnétique à  $q=0$  apparaît courte portée et 2D, avec des longueurs de corrélation de l'ordre de  $\xi \sim 2-3a$ . De plus, sa température d'apparition ( $T_{\text{mag}} \sim 120\text{K}$ ) est basse. La température  $T^*$  du pseudo-gap pour ce composé est mal connue.

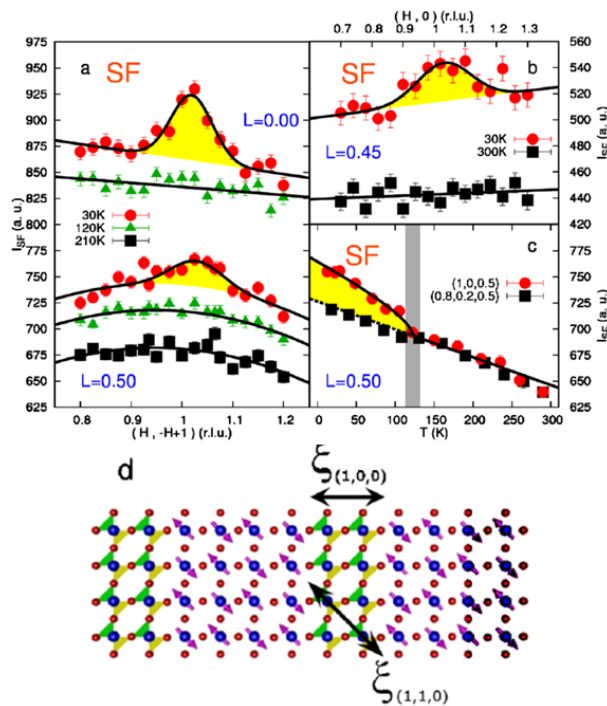


Figure 1.12: (a)-(c) Mise en évidence d'un ordre magnétique à  $q=0$  courte portée 2D dans un échantillon très sous-dopé de la famille La214. Pour plus de détails concernant cette étude se référer à [37]. (d) Possible interprétation: l'ordre magnétique à  $q=0$  serait confiné à l'intérieur d'un motif de type stripes [37].

Dans le cas de cette famille de composé, dans l'espace réel, les longueurs de corrélation magnétiques dans le plan, étant de l'ordre de deux mailles élémentaires, sont compatibles avec une image où l'ordre magnétique à  $q=0$  pourrait être confiné à l'intérieur d'un motif de type stripes, Fig. 1.12.d. Dans cette figure, l'ordre magnétique à  $q=0$  est représenté par le modèle de boucles de courant (CC- $\theta$ II) de C. Varma. L'ordre magnétique à  $q=0$  serait frustré par l'instabilité de spin et/ou de charge en compétition, qui semble beaucoup plus forte dans cette famille de cuprates que dans les autres.

L'intensité magnétique et la température associées à l'ordre magnétique à  $q=0$  sont donc faibles à bas dopage et diminuent à l'approche du dôme supraconducteur.

L'analyse des mesures de diffusion de neutrons indique que la réponse magnétique est produite par une composante hors plan et une composante dans le plan  $\text{CuO}_2$ . Dans un modèle magnétique colinéaire décrit par un moment magnétique  $M$ , l'existence des composantes du moment magnétique hors plan  $M_c$  et dans le plan  $M_{ab}$  donne lieu à une inclinaison du moment magnétique d'un angle  $\theta$  par rapport à l'axe  $c$  (Fig. 1.13.a). Cet angle est défini par:

$$\tan(\theta) = M_{ab}/M_c \quad (1.1)$$

Dans la famille Y123,  $\theta$  est de l'ordre de  $45^\circ \pm 20^\circ$ . Cette estimation vient de la moyenne entre les deux valeurs déterminées à  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$ ,  $35^\circ \pm 7^\circ$ , et à  $\mathbf{Q} = (1,0,1)$ ,  $55^\circ \pm 7^\circ$  [32, 108]. Les résultats dans les familles Hg1201 et La214 donnent la même inclinaison du moment magnétique par rapport à l'axe  $c$ . Cet ordre de grandeur de  $\sim 45^\circ$  pour toutes les familles vient du fait que les composantes dans le plan  $M_{ab}$  et hors du plan  $M_c$  mesurées sont comparables [36, 37, 108].

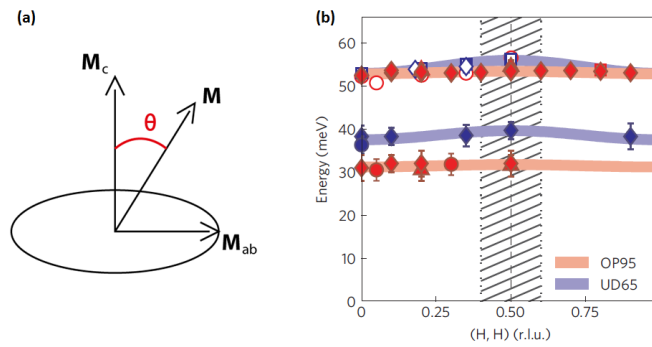


Figure 1.13: (a) L'angle  $\theta$  définit l'inclinaison du moment magnétique par rapport à l'axe  $c$ .  $M_{ab}$  est la composante du moment magnétique dans le plan et  $M_c$  celle hors plan. (b) Excitations magnétiques peu dispersives observées dans les composés Hg1201, d'après [109]. Pour chaque échantillon étudié, deux modes différents apparaissent à deux niveaux d'énergie différents, haute énergie et basse énergie.

Plus récemment, deux modes magnétiques peu (voire non) dispersifs, de type Ising, ont été découverts dans la phase de pseudo-gap de la famille Hg1201 [109, 110], nous parlons de modes plats. Il en existe deux types: de basse énergie et de haute énergie. La Fig. 1.13.b montre ces deux modes pour deux échantillons de la famille Hg1201: sous-dopé (UD) et sur-dopé (OD). Ils apparaissent à  $T^*$  ( $=T_{mag}$ ) comme l'ordre magnétique à  $q=0$  et ils sont différents des fluctuations de spin qui se développent autour du vecteur d'onde  $q_{AF}$ . Pour le moment, ces excitations n'ont pas encore été étudiées dans d'autres familles.

Ainsi, des mesures de diffusion de neutrons polarisés réalisées dans les systèmes bicouches Y123 [30–33], Bi2212 [34] et dans les systèmes monocouche Hg1201 [35, 36] ont apporté la preuve expérimentale d'un ordre magnétique à  $q=0$  longue portée 3D au sein de la phase de pseudo-gap. Dans le système monocouche La214, un ordre magnétique à  $q=0$  a également été observé [37], mais dans



ce système, il est 2D et à courte distance. Cet ordre magnétique préserve l'invariance par translation, mais, contrairement aux matériaux ferromagnétiques, il ne donne pas lieu à une aimantation uniforme [108]. Ces observations impliquent l'existence d'un ordre (antiferro)magnétique à  $q=0$ . L'évolution en dopage de la température  $T_{mag}$  mesurée par la diffusion de neutrons correspond à celle de la température  $T^*$  d'apparition du pseudo-gap, au moins pour des dopages  $p > 0,09$ . Il existe alors un paramètre d'ordre magnétique associé à la phase de pseudo-gap. Pour toutes les familles, l'analyse donne un moment magnétique non perpendiculaire aux plans  $\text{CuO}_2$ . Et des excitations associées à cet ordre ont été mesurées dans la famille Hg1201.

### 1.5.2 Modélisation des résultats de diffusion de neutrons

Parmi les modèles de boucles de courant proposés par C. Varma, la phase CC- $\theta_2$  semble la plus adéquate pour expliquer les observations de diffusion de neutrons. Nous rappelons que ce modèle [88] considère quatre états de boucles (domaines) possibles avec des motifs magnétiques différents, mais les moments orbitaux sont toujours perpendiculaires au plan  $\text{CuO}_2$ . Chaque domaine produit un signal magnétique hors plan, mesurable par diffusion de neutrons. La composante magnétique dans le plan observée par diffusion de neutrons, quant à elle, proviendrait de la superposition quantique des quatre états de boucles différents (phénomène d'interférence). De plus, des excitations magnétiques peu dispersives sont associés à cet ordre [88]. Il existe trois modes distincts: un mode non dispersif, mélangeant les deux sous réseaux et deux modes dégénérés correspondant chacun à la propagation d'un mode pour lequel un domaine subit une rotation d'un angle de plus ou moins  $\pi/2$ . Lorsqu'un couplage entre les deux réseaux est ajouté, la dégénérescence des deux modes collectifs est levée. Le troisième mode prédit n'est pas mesurable par diffusion de neutrons. Dans tous les cas, ces excitations commencent en centre de zone ( $q=0$ ) à une énergie finie non nulle, et dispersent faiblement. Ainsi, en plus des symétries mises en jeu, ce modèle permet de rendre compte de l'inclinaison du moment magnétique et des modes plats observés par diffusion de neutrons.

D'autres théories sont proposées pour expliquer l'ordre magnétique à  $q=0$  observé par la diffusion de neutrons.

Dans le modèle de boucles de courant discuté précédemment, le paramètre d'ordre est un anapole [88]. S. Di Matteo et M. R. Norman [111] ont montré que l'existence de l'anapole est accompagnée d'un quadrupole magnétique pour décrire les courants orbitaux dans le plan  $\text{CuO}_2$ . La Fig. 1.14.a montre la configuration où les composantes anapolaire et quadrupolaire sont toutes deux présentes. Par ailleurs, ils proposent une autre configuration de moments magnétiques pointant suivant les diagonales du plan. La Fig. 1.14.b présente le cas d'une composante magnétique quadrupolaire 2D pure (différente de la configuration précédente). D'après ces travaux, le cas d'une composante anapolaire pure ne peut exister. L'existence d'un quadrupole magnétique 2D semble indispensable dans la description d'un ordre magnétique à  $q=0$ . Il est également suggéré que les courants orbitaux ne sont pas nécessairement associés à de la magnéto-électricité.

Jusqu'à maintenant, nous avons considéré un ordre magnétique à  $q=0$  mettant en jeu des boucles de courant. Il est en fait possible d'imaginer des ordres de spin préservant la symétrie

de translation (Fig. 1.14.c). Dans leur interprétation, B. Fauqué et al [30] proposent l'existence de moments de spin colinéaires localisés sur les oxygènes des plans  $\text{CuO}_2$  arrangés de manière antiferromagnétique. Comme dans le cas de la phase  $\text{CC-}\theta_2$ , il n'y a aucun moment résultant pour une plaquette  $\text{CuO}_2$ . Il s'agit d'un état nématique de spin.

Toujours en considérant le rôle de l'oxygène, A. Moskvine propose l'existence de moments orbitaux sur les atomes d'oxygène [112]. Par rapport au modèle précédent [30], les moments de spin sont remplacés par des moments orbitaux. Ils sont également arrangés antiferromagnétiquement au sein de la plaquette. L'invariance par translation est conservée. De plus, ce modèle remet en cause l'état singulet de Zhang-Rice comme état fondamental de la structure électronique des cuprates. S'intéressant particulièrement à la diffusion de neutrons, le développement au deuxième ordre des calculs (mettant en jeu des fonctions de Bessel  $j_i$ ) implique l'existence de deux facteurs magnétiques qui se trouvent être comparables ( $j_0$  et  $j_2$ ) pour des vecteurs d'onde plus grands que  $\mathbf{Q} = (1,0,1)$ . Il en résulte l'existence de deux contributions pour décrire le moment magnétique associé à cet ordre à  $q=0$  (expliquant l'inclinaison  $\theta$ ).

En se penchant également sur la théorie de la diffusion de neutrons, S. Lovesey [113] propose une alternative à la compréhension des propriétés électroniques de la phase de pseudo-gap, tout en décrivant le magnétisme compatible avec un ordre magnétique à  $q=0$ . Les degrés de liberté de spin et orbitaux sont pris en compte pour donner lieu à des multipôles magnéto-électriques. Ces multipôles sont disposés dans un motif de type ferropolaire de maille en maille, Fig. 1.14.d. Les quadrupoles localisés sur les ions du Cu agiraient comme un paramètre d'ordre pour la phase de pseudo-gap. Comme dans le cas des travaux de S. Di Matteo et M. R. Norman [111], l'existence de quadrupoles semble importante pour décrire les observations par diffusion de neutrons.

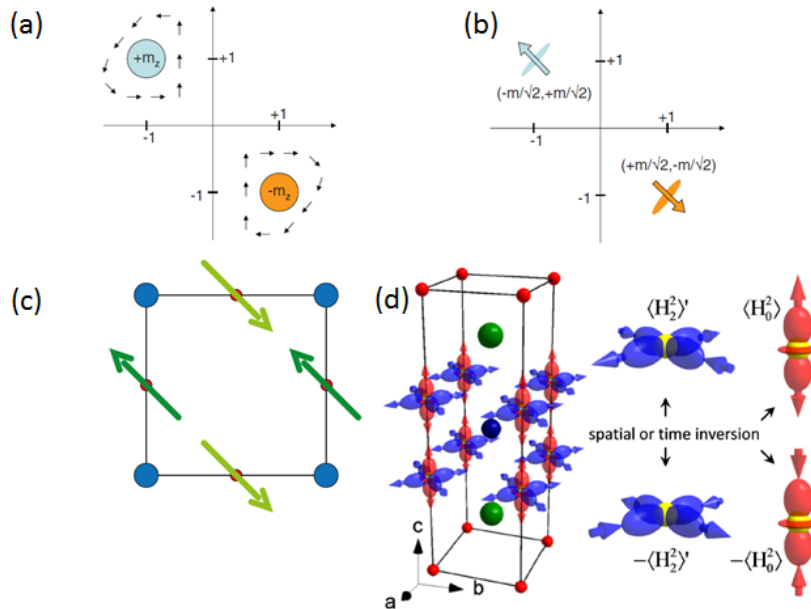


Figure 1.14: (a) Courants orbitaux avec une composante anapolaire et une composante quadrupolaire et (b) avec une composante quadrupolaire pur, d'après [111]. (c) Deux autres modèles proposent l'existence de moments de spin [30] ou orbitaux [112] sur le site de l'oxygène. (d) Des multipôles magnéto-électriques pourraient être à l'origine de l'ordre magnétique à  $q=0$  [113].



## 1.6 Apport de la thèse

Dans ce premier chapitre d'introduction, nous avons dressé une brève revue des découvertes expérimentales et propositions théoriques influant le débat actuel sur les cuprates supraconducteurs à haute température critique. La phase de pseudo-gap dans ces matériaux est particulièrement au centre de toutes les discussions. L'apport de cette thèse dans la problématique des cuprates concerne l'étude de l'ordre magnétique à  $q=0$ , se développant dans la phase de pseudo-gap, par diffusion de neutrons.

A ce jour, de nombreuses observations expérimentales ont été reportées, notamment pour une composition de la famille Y123 dans le régime sous-dopé (autour de  $p=0,12$ ). L'ordre magnétique à  $q=0$  a été mis en évidence, des fluctuations antiferromagnétiques et un ordre de charge sont également présents. Des preuves supplémentaires d'une anisotropie dans la dynamique de spin et dans les mesures d'effet Nernst nous pousse à nous demander si l'ordre magnétique à  $q=0$  présente également un tel effet, et quelles en sont les conséquences. Une étude approfondie de cet ordre par diffusion de neutrons nous permet de déterminer son facteur de structure, en d'autres termes cela nous permet de caractériser le motif magnétique responsable de la diffusion de neutrons. Il est également important de comparer cette composition de référence à d'autres systèmes. Par exemple, pour la famille Hg1201, l'ordre magnétique à  $q=0$  a également été mis en évidence, accompagné d'excitations magnétiques peu dispersives (observés uniquement dans cette famille pour le moment). Nous chercherons donc à généraliser l'observation de ces excitations dans la famille Y123. De plus, dans le régime sous-dopé de la famille Hg1201, les fluctuations antiferromagnétiques n'ont pas été étudiées. En procédant à cette étude, nous comparerons les fluctuations antiferromagnétiques dans les systèmes Hg1201 et Y123, et nous établirons leur possible lien avec l'ordre magnétique à  $q=0$ .

Jusqu'à maintenant l'ordre magnétique à  $q=0$  a principalement été étudié dans le régime sous-dopé (où il est à longue portée et 3D). Est-il toujours présent autour du dopage optimal? L'étude des deux systèmes Y123 et Bi2212 dans le régime de dopage optimal nous renseignera sur la nature de l'ordre dans cette région. Nous nous attacherons particulièrement à la détermination de la portée de l'ordre mais aussi à l'évolution de l'inclinaison du moment magnétique par rapport à l'axe  $c$ . Pour la première fois nous rapporterons son évolution en température, nous permettant de tester la compatibilité des modèles avec l'expérience. Une étude systématique de l'ordre magnétique à  $q=0$  en fonction de  $L$  nous permettra également de caractériser le motif magnétique associé. De plus, dans cette gamme de dopage, la phase de pseudo-gap et l'état supraconducteur sont de plus en plus proches en température. Jusqu'à présent aucune mesure de l'ordre magnétique à  $q=0$  dans l'état supraconducteur n'a été menée. Une telle étude est susceptible de nous informer quant à l'interaction entre les deux ordres.

Enfin, il existe d'autres familles de matériaux pour lesquelles cet ordre n'a pas encore été mesuré. Nous étendrons son étude au système Pb-Bi2201.

# Chapitre 2

## Méthodes expérimentales

### Sommaire

---

<b>2.1 La diffusion de neutrons</b> . . . . .	<b>38</b>
2.1.1 Sonde de la matière . . . . .	38
2.1.2 La section efficace de diffusion . . . . .	39
2.1.3 La résolution . . . . .	43
2.1.4 La diffusion de neutrons polarisés . . . . .	44
<b>2.2 Spécificités des instruments utilisés</b> . . . . .	<b>47</b>
2.2.1 Le spectromètre trois-axes en général . . . . .	47
2.2.2 Le spectromètre trois-axes 4F1 pour l'étude de l'ordre magnétique à $q=0$ . . . . .	53
2.2.3 Le diffractomètre D7 . . . . .	56
<b>2.3 Échantillons de cuprates</b> . . . . .	<b>59</b>
2.3.1 Les composés à base d'Y . . . . .	61
2.3.2 Les composés à base de Bi . . . . .	62
2.3.3 Les composés à base de Hg . . . . .	64
2.3.4 Montage et orientation des échantillons . . . . .	64
<b>2.4 Détermination de la quantité et caractérisation de la phase verte pour l'étude des systèmes <math>YBa_2Cu_3O_{6+x}</math></b> . . . . .	<b>65</b>
2.4.1 Étude structurale . . . . .	66
2.4.2 Étude magnétique . . . . .	68

---

Cette thèse porte sur l'étude des cuprates supraconducteurs à haute température critique par diffusion de neutrons. Dans ce chapitre, nous présenterons tout d'abord le principe de la diffusion de neutrons et son intérêt dans l'étude de la matière condensée ainsi que les différentes spécificités des instruments utilisés. Nous présenterons ensuite les différentes familles d'échantillons étudiées lors de nos expériences.

## 2.1 La diffusion de neutrons

Les expériences ont principalement été menées dans les deux centres de neutrons en France: le réacteur Orphée (CEA Saclay) associé au Laboratoire Léon Brillouin et l'Institut Laue-Langevin (Grenoble). Des mesures complémentaires ont été effectuées au réacteur FRM-II (Munich, Allemagne). Dans tous les cas, il s'agit de réacteurs nucléaires. Les neutrons sont produits par fission de l'uranium  $^{235}\text{U}$  avec une réaction en chaîne auto-alimentée et sont prélevés au niveau du cœur sans stopper cette réaction. Nous présenterons également des mesures réalisées au centre de neutrons SNS (Oak Ridge, États-Unis). Il s'agit d'une source à spallation: les neutrons sont produits à partir d'un faisceau de protons envoyés sur une cible de métal lourd.

### 2.1.1 Sonde de la matière

La technique de diffusion de neutrons est couramment utilisée pour sonder les propriétés de la matière. La dualité onde-corpuscule implique que le neutron est à la fois une onde (avec des processus d'interférence) et une particule (notion d'énergie et d'interactions).

Le neutron est une particule de masse  $m_n$ , de charge électrique nulle, possédant un spin  $S=1/2$  et un moment magnétique  $\mu_n = -\gamma\mu_N\hat{\sigma}$ , où  $\gamma = 1,913$  est le rapport gyromagnétique,  $\mu_N = \frac{e\hbar}{2m_p}$  est le magneton nucléaire, et  $\hat{\sigma}$  est l'opérateur de spin de Pauli. Sa durée de vie est de l'ordre de 15min, permettant ainsi de réaliser des expériences. Les neutrons étant neutres ont un bon pouvoir de pénétration dans la matière. Il s'agit donc d'une sonde en volume du matériau, s'affranchissant des effets de surfaces. De plus, la nature de son interaction nucléaire le rend sensible à tous les atomes et en particulier à des atomes de faible numéro atomique. Il est une technique complémentaire des rayons X, qui sont peu sensibles aux atomes légers et ont une longueur de pénétration variable suivant l'énergie.

De plus, les neutrons utilisés ont une longueur d'onde de l'ordre des distances interatomiques dans les cristaux (angström, Å) et une énergie  $E = \frac{p^2}{2m_n} = \frac{\hbar^2}{2m_n}k^2$  (de 0,1 à plus de 500 meV) comparable à celle des excitations élémentaires dans les matériaux ( $p = \hbar k$  est la quantité de mouvement où  $k$  est le vecteur d'onde). Ils interagissent avec le noyau des atomes, cette interaction nucléaire permet d'étudier la structure du réseau cristallin des matériaux et ses modes de vibration (phonons). En outre, comme ils possèdent un spin  $1/2$ , le moment magnétique du neutron peut interagir avec le champ magnétique statique ou dynamique créé par les spins et les moments orbitaux associés aux électrons, nous pouvons ainsi déterminer tous types d'ordres magnétiques et les excitations associées.

Enfin, nous pouvons travailler dans différentes gammes d'énergie de neutrons: de froids (<20meV) à chauds (entre 60 et 500meV) en passant par thermiques (de 10 à 130meV).

### 2.1.2 La section efficace de diffusion

Le processus de diffusion de neutron est représenté sur la Fig. 2.1. Il repose sur la règle d'or de Fermi et la section efficace associée correspond à la probabilité de diffusion d'un neutron après interaction avec de la matière (échantillon). La section efficace de diffusion s'exprime en barns ( $10^{-24} \text{cm}^2$ ). Nous considérerons les fonctions d'onde des neutrons comme des ondes planes (approximation de Born, correcte tant que la source de neutrons est suffisamment loin de l'échantillon). Dans cette partie, nous allons donner les formules de section efficace de diffusion en partant de la plus générale puis en considérant les sections efficaces de diffusion nucléaire et magnétique. Les différentes formules de section efficace peuvent également être trouvées dans des ouvrages de référence [114, 115].

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega}(\mathbf{Q}, \omega) = \frac{k_f}{k_i} \left(\frac{m_n}{2\pi\hbar^2}\right)^2 \sum_{\sigma_i, \sigma_f} \sum_{n_i, n_f} p(\sigma_i) p(n_i) | \langle k_f, \sigma_f, n_f | V | k_i, \sigma_i, n_i \rangle |^2 \delta((\epsilon_f - \epsilon_i) - \hbar\omega) \quad (2.1)$$

$d\Omega$ : angle solide du faisceau de neutrons après interaction

$d\omega$ : intervalle d'énergies finales

$k_i, k_f$ : vecteurs d'onde initial et final du faisceau de neutrons

$m_n$ : masse du neutron

$\sigma_i, \sigma_f$ : états de spin initial et final des neutrons

$n_i, n_f$ : nombres quantiques pour l'état initial et final de l'échantillon

$\epsilon_{i,f}$ : énergies initiale et finale de l'échantillon étudié

$E_{i,f}$ : énergies initiale et finale du faisceau de neutrons

$\hbar\omega = E_i - E_f$ : énergie de transfert

$V(\mathbf{r})$ : potentiel d'interaction

$p(n_i)$ : probabilité de trouver l'échantillon dans l'état initial  $n_i$

$p(\sigma_i)$ : probabilité de trouver le neutron dans l'état de spin initial  $\sigma_i$

La fonction Dirac  $\delta$  matérialise le principe de conservation. En effet, lors d'une mesure de diffusion de neutrons il existe deux contraintes cinématiques:

- conservation de l'énergie  $\hbar\omega$
- conservation du vecteur d'onde  $\mathbf{Q}$

Il existe deux types d'interaction, l'interaction nucléaire (neutron-noyau) et l'interaction électromagnétique (spin du neutron-spin de l'électron ou du noyau). Nous ne nous intéresserons pas à la section efficace d'absorption du neutron par l'échantillon, mais seulement de diffusion. Nous distinguons également la diffusion élastique, lorsque  $|E_i| = |E_f|$ , qui permet d'étudier la structure nucléaire ou magnétique, de la diffusion inélastique, lorsque  $E_i \neq E_f$ , qui sonde les excitations nucléaires et magnétiques des matériaux.

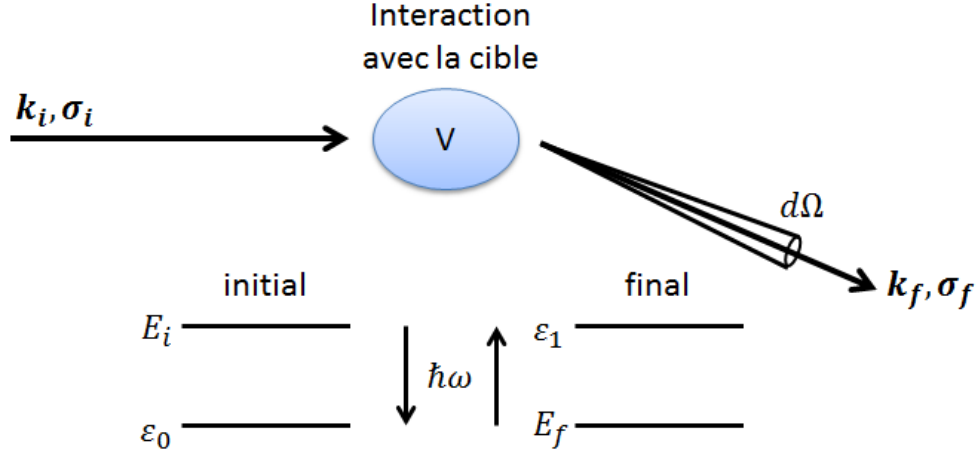


Figure 2.1: Illustration de l'interaction entre neutron et matière. Le neutron dans un état initial  $(k_i, \sigma_i)$  interagit avec l'échantillon (potentiel  $V$ ) et acquiert un nouvel état, l'état final  $(k_f, \sigma_f)$  dans un angle solide  $d\Omega$ .

### 2.1.2.1 Section efficace nucléaire

Pour l'interaction nucléaire le modèle le plus courant est le pseudo-potentiel de Fermi:

$$V(\mathbf{r}) = \frac{2\pi\hbar^2}{m_n} \sum_j^N b_{N_j} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j) \quad (2.2)$$

où  $b_{N_j}$  correspond à la longueur de diffusion de l'atome  $j$ ,  $\mathbf{R}_j$  à la position de l'atome  $j$ ,  $N$  au nombre d'atomes dans l'échantillon. Une diffusion isotrope et des noyaux ponctuels sont ici considérés. Ce potentiel est normalisé de telle sorte que la diffusion totale d'un noyau unique soit égale à  $4\pi|b_{N_j}|^2$ . Dans le cas présent, puisque nous ne considérons que l'interaction nucléaire, la somme sur l'état de spin de l'Eq. 2.1 se simplifie:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega}(\mathbf{Q}, \omega) = \frac{k_f}{k_i} \left(\frac{1}{2\pi\hbar}\right)^2 \sum_{jj'}^N \langle b_{N_j} b_{N_{j'}} \rangle \int_{-\infty}^{+\infty} \langle e^{i\mathbf{Q}(\mathbf{R}_j(t) - \mathbf{R}_{j'}(t=0))} \rangle e^{-i\omega t} dt \quad (2.3)$$

S'il n'y a pas de corrélation spatiale des longueurs de diffusion:

$$\langle b_{N_j} b_{N_{j'}} \rangle = \langle b \rangle^2 \text{ pour } j \neq j' \quad (2.4)$$

$$\langle b_{N_j} b_{N_{j'}} \rangle = \langle b \rangle^2 + (\langle b^2 \rangle - \langle b \rangle^2) \text{ pour } j = j' \quad (2.5)$$

Tout couple d'atomes  $(j, j')$  possède un terme de diffusion cohérente ( $b_{coh}^2 = \langle b \rangle^2$ ), correspondant à un système dont les noyaux auraient tous la même longueur de diffusion. Le cas particulier où  $j=j'$  entraîne un terme de diffusion incohérente ( $b_{incoh}^2 = \langle b^2 \rangle - \langle b \rangle^2$ ), indépendant de  $\mathbf{Q}$ , provenant de la distribution spatiale aléatoire des longueurs de diffusion (désordre isotopique). Par la suite nous noterons  $b = b_{coh}$ . Il est possible de décomposer  $\mathbf{R}_j = \mathbf{l} + \mathbf{d}$  avec  $\mathbf{l}$  un vecteur du réseau de Bravais et  $\mathbf{d}$  la position de l'atome dans la maille élémentaire située en  $\mathbf{l}$ . Nous notons  $u_{l,d} (= u_0 + \delta d)$  le déplacement par rapport à l'équilibre. En utilisant l'identité de Bloch [114],

l'Eq. 2.3 se réécrit:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega}(\mathbf{Q}, \omega) = \frac{k_f}{k_i} \left(\frac{1}{2\pi\hbar}\right)^2 \sum_{d,d',l,l'} \int dt e^{-i\omega t} b_d^* b_{d'} e^{-(W_d(\mathbf{Q})+W_{d'}(\mathbf{Q}))} e^{i\mathbf{Q}\cdot(\mathbf{d}-\mathbf{d}')} e^{\langle \mathbf{Q}\cdot\mathbf{u}_{l,d}\mathbf{Q}\cdot\mathbf{u}_{l',d'} \rangle} \quad (2.6)$$

### Diffusion élastique

On peut réécrire l'Eq. 2.6 en développant l'exponentielle à l'ordre zéro en  $\langle \mathbf{Q}\cdot\mathbf{u}_{l,d}\mathbf{Q}\cdot\mathbf{u}_{l',d'} \rangle$ :

$$\left. \frac{\partial\sigma}{\partial\Omega} \right|_{nucl.}^{él.}(\mathbf{Q}) = N \frac{(2\pi)^3}{v_0} \sum_{\mathbf{G}} \delta(\mathbf{Q}-\mathbf{G}) |F_N|^2 \quad (2.7)$$

où

$$F_N = \sum_d b_d e^{i\mathbf{Q}\cdot\mathbf{d}} e^{-W_d(\mathbf{Q})} \quad (2.8)$$

où  $v_0$  est le volume de la maille élémentaire,  $\mathbf{G}$  un vecteur du réseau réciproque,  $F_N$  est le facteur de structure nucléaire élastique et  $W_d(\mathbf{Q})$  le facteur de Debye-Waller: l'agitation thermique permet aux atomes de se déplacer par rapport à leurs positions d'équilibre. L'arrangement périodique du cristal est légèrement perturbé et l'amplitude de diffusion diminue.  $W_d$  correspond au carré du déplacement moyen de l'atome  $d$ :  $W_d(\mathbf{Q}) = \frac{1}{2} \langle (\mathbf{Q}\cdot\mathbf{u}_{l,d})^2 \rangle$ .

### Diffusion inélastique

On peut réécrire l'Eq. 2.6 en développant l'exponentielle au premier ordre en  $\langle \mathbf{Q}\cdot\mathbf{u}_{l,d}\mathbf{Q}\cdot\mathbf{u}_{l',d'} \rangle$  (processus à un phonon, correspondant à une excitation structurale du système):

$$\left. \frac{\partial^2\sigma}{\partial\Omega\partial\omega} \right|_{nucl.}^{inél.}(\mathbf{Q}, \omega) = \frac{k_f}{k_i} \frac{(2\pi)^3}{v_0} \sum_{\mathbf{G}, \mathbf{q}, \mathbf{j}} \delta(\mathbf{Q}+\mathbf{q}-\mathbf{G}) |F_j(\mathbf{Q})|^2 S(\mathbf{Q}, \omega) \quad (2.9)$$

où

$$F_j(\mathbf{Q}) = \sum_d \frac{1}{\sqrt{M_d}} b_d e^{-W_d(\mathbf{Q})} e^{i\mathbf{Q}\cdot\mathbf{d}} (\mathbf{Q}\cdot\mathbf{e}_d^j(\mathbf{q})) \quad (2.10)$$

et

$$S(\mathbf{Q}, \omega) = \frac{1}{2\omega_j(\mathbf{q})} [(1 + n_B(\omega_j, T))\delta(\omega - \omega_j) + n_B(\omega_j, T)\delta(\omega + \omega_j)] \quad (2.11)$$

$F_j(\mathbf{Q})$  est le facteur de structure nucléaire dynamique,  $M_d$  est la masse du noyau à la position  $d$ ,  $\mathbf{e}_d^j(\mathbf{q})$  est le vecteur de polarisation du phonon,  $n_B(\omega_j, T) = (e^{\frac{\hbar\omega_j}{k_B T}} - 1)^{-1}$  est la fonction de distribution de Bose-Einstein,  $k_B$  est la constante de Boltzmann, et les fonction  $\delta$  représentent la conservation de l'énergie et du moment.

#### 2.1.2.2 Section efficace magnétique

Le neutron possède un moment magnétique de spin, dont l'opérateur est défini par  $\mu_n = -\gamma\mu_N\hat{\sigma}$ . Il interagit avec la distribution de champs magnétiques (ou les fluctuations magnétiques) dans l'échantillon  $\mathbf{B}(\mathbf{r})$ . Ce champ magnétique est produit par les électrons non appariés. Le potentiel d'interaction s'écrit:

$$V(\mathbf{r}) = -\mu_n \cdot \mathbf{B}(\mathbf{r}) \quad (2.12)$$

l'Eq. 2.1 devient:

$$\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial \omega}(\mathbf{Q}, \omega) = \frac{k_f}{k_i} \left( \frac{m_n}{2\pi\hbar} \right)^2 (2\gamma\mu_N\mu_B)^2 \sum_{\sigma_i, \sigma_f, n_i, n_f} p(\sigma_i) p(n_i) | \langle k_f, \sigma_f, n_f | \sigma \cdot \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) | k_i, \sigma_i, n_i \rangle |^2 \delta((\epsilon_f - \epsilon_i) - \hbar\omega) \quad (2.13)$$

où

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = \text{rot} \left( \frac{\boldsymbol{\mu}_e \times \mathbf{r}}{|\mathbf{r}|^3} \right) + \frac{-e \mathbf{v}_e \times \mathbf{r}}{c |\mathbf{r}|^3} \quad (2.14)$$

avec  $\boldsymbol{\mu}_e = -2\mu_B \mathbf{S}$  l'opérateur moment magnétique de l'électron,  $v_e$  la vitesse de l'électron et  $c$  la vitesse de la lumière. Le premier terme de cette somme est la contribution de spin et le second la contribution orbitale. La contrainte sur  $\mathbf{B}$  est donnée par  $\text{div}(\mathbf{B})=0$ , ainsi seule la composante du moment perpendiculaire à  $\mathbf{Q}$ , notée  $\mathbf{M}_\perp$ , contribue à l'interaction magnétique. Cette composante est définie par:

$$\tilde{\mathbf{Q}} \times \mathbf{M} \times \tilde{\mathbf{Q}} = \mathbf{M}_\perp(\mathbf{Q}) = \sum_i e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{R}_i} [\tilde{\mathbf{Q}} \times (\mathbf{S}_i \times \tilde{\mathbf{Q}}) - \frac{i}{\hbar|\mathbf{Q}|} \tilde{\mathbf{Q}} \times \mathbf{p}_i] \quad (2.15)$$

et

$$\mathbf{M}_\perp^\dagger \cdot \mathbf{M}_\perp = \sum_{\alpha, \beta} (\delta_{\alpha, \beta} - \tilde{\mathbf{Q}}_\alpha \tilde{\mathbf{Q}}_\beta) M_\alpha^\dagger M_\beta \quad (2.16)$$

avec  $\tilde{\mathbf{Q}}$  le vecteur unitaire dans la direction  $\mathbf{Q}$  ( $\tilde{\mathbf{Q}} = \frac{\mathbf{Q}}{|\mathbf{Q}|}$ ),  $\alpha$  et  $\beta$  les composantes suivant  $x$ ,  $y$  ou  $z$  d'un repère orthonormé, et  $\delta_{\alpha, \beta} - \frac{\tilde{\mathbf{Q}}_\alpha \tilde{\mathbf{Q}}_\beta}{|\tilde{\mathbf{Q}}|^2}$  le facteur d'orientation (qui traduit également le fait que seule la composante perpendiculaire au vecteur de diffusion  $\mathbf{Q}$  contribue à l'interaction magnétique). Nous retrouvons les deux contributions: de spin ( $S_i$ ) et orbitale ( $p_i$ ). Nous noterons  $r_0 = \frac{m_n}{2\pi\hbar^2} 2\gamma\mu_N\mu_B 4\pi = -0,54 \cdot 10^{-12} \text{cm}$  ( $r_0^2 = 290 \text{mbarns}$ ). L'Eq. 2.13 devient alors:

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial \omega}(\mathbf{Q}, \omega) &= \frac{k_f}{k_i} r_0^2 \sum_{\alpha, \beta} (\delta_{\alpha, \beta} - \tilde{\mathbf{Q}}_\alpha \tilde{\mathbf{Q}}_\beta) \sum_{n_i, n_f} p(n_i) \sum_{j, j'} f_d^*(\mathbf{Q}) f_{d'}(\mathbf{Q}) e^{i\mathbf{Q} \cdot (\mathbf{R}_j - \mathbf{R}_{j'})} \\ &\times \frac{1}{2\pi\hbar} \int \langle M_\alpha M_\beta \rangle e^{-i\omega t} dt \end{aligned} \quad (2.17)$$

où  $f_d(\mathbf{Q})$  est le facteur de forme de l'ion magnétique considéré dans la maille, défini comme la transformée de Fourier de sa densité magnétique normalisée.

Dans ce cas, le magnétisme provient d'un site atomique. Si le motif magnétique est spatialement plus étendu (comme par exemple dans le cas de boucles de courant), la détermination du facteur de forme peut être plus complexe.

### Diffusion élastique

$$\left. \frac{\partial \sigma}{\partial \Omega} \right|_{\text{mag.}}^{\text{él.}}(\mathbf{Q}) = N \frac{(2\pi)^3}{v_0} \sum_{\mathbf{G}} \delta(\mathbf{Q} - \mathbf{G}) |F_M(\mathbf{Q})|^2 \quad (2.18)$$

où

$$F_M(\mathbf{Q}) = r_0 \sum_d f_d(\mathbf{Q}) e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{d}} e^{-W_d(\mathbf{Q})} \sigma \cdot \mathbf{M}_\perp \quad (2.19)$$

$F_M$  étant le facteur de structure magnétique élastique. Par analogie, nous pouvons définir une longueur de diffusion magnétique:

$$b_M(\mathbf{Q}) = r_0 f_d(\mathbf{Q}) \sigma \cdot \mathbf{M}_\perp \quad (2.20)$$



### Diffusion inélastique

A partir de l'Eq. 2.17, nous écrivons la fonction de corrélation  $S(\mathbf{Q}, \omega)$  qui est proportionnelle à la transformée de Fourier dans l'espace et le temps de la fonction de corrélation magnétique  $\langle M_\alpha M_\beta \rangle$ . Elle peut être reliée à la partie imaginaire de la susceptibilité magnétique  $\chi''(\mathbf{Q}, \omega)$  (exprimée en  $\mu_B^2 \cdot eV^{-1}$ ), définie par  $M = \chi(\mathbf{Q}, \omega) B_{ext}$  où  $\chi(\mathbf{Q}, \omega) = \chi'(\mathbf{Q}, \omega) + i\chi''(\mathbf{Q}, \omega)$ .

$$\begin{aligned} S_{\alpha,\beta}(\mathbf{Q}, \omega) &= \frac{1}{2\pi\hbar} \int \langle M_\alpha M_\beta \rangle e^{-i\omega t} dt \\ &= \frac{1 + n_B(\omega, T)}{\pi} \frac{\chi''_{\alpha,\beta}(\mathbf{Q}, \omega)}{(g\mu_B)^2} \end{aligned} \quad (2.21)$$

Nous avons alors une relation entre  $S(\mathbf{Q}, \omega)$  et  $\chi''(\mathbf{Q}, \omega)$  donnée par le théorème de fluctuation-dissipation où  $n_B(\omega, T)$  est la fonction de distribution de Bose-Einstein.  $\chi''(\mathbf{Q}, \omega)$  décrit le spectre des excitations magnétiques et le facteur de balance détaillée ( $1 + n_B(\omega, T) = (1 - e^{-\frac{\hbar\omega}{k_B T}})^{-1}$ ) indique comment ces excitations sont peuplées thermiquement.

### 2.1.3 La résolution

En théorie, il est possible de faire une mesure en un point donné de l'espace réciproque  $\mathbf{Q}_0$  à une énergie donnée  $\omega_0$ . En réalité, du fait de la précision de l'appareil et de la mosaïque des cristaux utilisés, nous mesurons un volume autour de cette position  $(\mathbf{Q}_0, \omega_0)$ , c'est l'ellipsoïde de résolution.

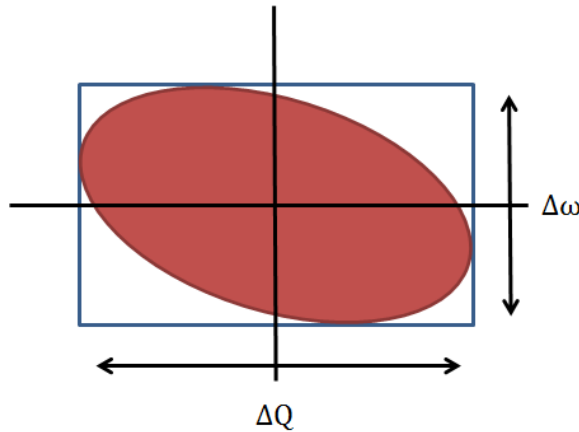


Figure 2.2: Illustration de l'ellipsoïde de résolution, la précision est de  $\Delta\mathbf{Q}$  pour le vecteur d'onde et  $\Delta\omega$  pour l'énergie.

D'après M. Cooper et R. Nathans [116], l'intensité mesurée est égale au produit de convolution de la section efficace de diffusion de neutrons (dépendant de la physique de l'échantillon), proportionnelle à  $S(\mathbf{Q}, \omega)$ , avec cet ellipsoïde donnée par la fonction de résolution  $R(\mathbf{Q} - \mathbf{Q}_0, \omega - \omega_0)$ . L'intensité mesurée correspond en fait à une intégration au voisinage de la position  $(\mathbf{Q}_0, \omega_0)$  et s'écrit :

$$I(\mathbf{Q}, \omega) = \int S(\mathbf{Q}, \omega) R(\mathbf{Q} - \mathbf{Q}_0, \omega - \omega_0) d^3\mathbf{Q} d\omega \quad (2.22)$$

Par déconvolution, nous pouvons donc déterminer la section efficace du phénomène physique étudié. La fonction de résolution, centrée en  $(\mathbf{Q}_0, \omega_0)$ , décrit la probabilité qu'un neutron soit détecté après interaction avec l'échantillon. Cette fonction s'écrit:

$$R(\mathbf{Q}, \omega) = R_0 e^{-\sum_{i,j=1}^4 X_i A_{ij} X_j} \quad (2.23)$$

où  $R_0$  est le facteur de normalisation,  $X_1$  la composante suivant  $\mathbf{Q}$ ,  $X_2$  la composante perpendiculaire à  $\mathbf{Q}$  dans le plan de diffusion (imposé par  $(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f)$ ),  $X_3$  la composante verticale perpendiculaire au plan de diffusion et  $X_4$  correspondant à l'énergie. La fonction de résolution est un ellipsoïde à 4 dimensions et les coefficients  $A_{ij}$  définissent une matrice symétrique (4D) dont les valeurs propres sont positives, Eq. 2.24. La résolution verticale n'est pas couplée avec les autres directions, les coefficients  $A_{3j}$  ( $j \neq 3$ ) sont donc nuls. Pour chaque instrument, les valeurs de  $A_{ij}$  sont différentes et lors d'un calcul de déconvolution il est nécessaire de connaître les valeurs de chaque terme de la matrice.

$$A = \begin{pmatrix} A_{11} & A_{12} & 0 & A_{14} \\ A_{12} & A_{22} & 0 & A_{24} \\ 0 & 0 & A_{33} & 0 \\ A_{14} & A_{24} & 0 & A_{44} \end{pmatrix} \quad (2.24)$$

$R_0$  peut être défini à l'aide des volumes de l'ellipsoïde incident  $v_i$  (dépendant du faisceau incident) et diffusé  $v_f$  (dépendant du faisceau dans l'état final) définis par [117]:

$$v_i = \int A'(|\mathbf{k}_i|) p_i(\mathbf{k}_i) dV_i \propto k_i^3 \cotan(\theta_i) \quad (2.25)$$

$$v_f = \frac{\hbar}{m} \int p_f(\mathbf{k}_f) dV_f \propto k_f^3 \cotan(\theta_f) \quad (2.26)$$

où  $A'(|\mathbf{k}_i|)$  correspond à la distribution maxwellienne du flux de neutrons. Nous rappelons (Eq. 2.1) que  $p_i(\mathbf{k}_i)$  et  $p_f(\mathbf{k}_f)$  sont les probabilités de trouver un neutron avec respectivement des vecteurs d'onde  $\mathbf{k}_i$  et  $\mathbf{k}_f$ .  $\theta_i$  et  $\theta_f$  sont les angles du faisceau incident et final respectivement. Le produit de ces deux volumes donne lieu à :

$$v_i v_f = \int R(\mathbf{Q} - \mathbf{Q}_0, \omega - \omega_0) d^3 \mathbf{Q} d\omega = \frac{\pi^2 R_0}{\sqrt{\det A}} \quad (2.27)$$

Les coefficients  $R_0$  et  $A_{ij}$  varient en fonction du cas considéré alors que  $v_f$  reste constant (pour  $k_f$  constant). Le volume de l'ellipsoïde dépend essentiellement de  $k_i$  et  $k_f$ .

#### 2.1.4 La diffusion de neutrons polarisés

Précédemment, nous avons vu qu'il existait différentes sections efficaces en fonction de l'interaction étudiée. En général, l'interaction magnétique peut induire un renversement du spin du neutron alors que l'interaction nucléaire conserve le spin du neutron. Toutefois, dans le cas d'une interaction avec le spin d'un noyau, le spin du neutron peut être renversé (diffusion incohérente de spin).

Lors d'une mesure de diffusion de neutrons non polarisés, nous mesurons simultanément les propriétés nucléaires et magnétiques. Nous avons vu, d'après l'Eq. 2.16, que l'intensité magnétique mesurée est proportionnelle à  $|\mathbf{M}_\perp|^2$ , où  $\mathbf{M}_\perp$  représente la composante du moment magnétique perpendiculaire à  $\mathbf{Q}$ .

Dans le cas d'une mesure de diffusion de neutrons polarisés, nous pouvons sélectionner l'état de spin initial  $\sigma_i$  et analyser l'état de spin final  $\sigma_f$ . Il existe deux états de spin possibles,  $\uparrow$  et  $\downarrow$ , qui sont définis par l'axe de quantification du spin des neutrons  $\mathbf{P}$  (polarisation). L'intensité magnétique mesurée est proportionnelle à  $|\langle \sigma_i | \sigma \cdot \mathbf{M}_\perp | \sigma_f \rangle|^2$  où  $\sigma$  représente les trois matrices de Pauli,  $\sigma_x$ ,  $\sigma_y$  et  $\sigma_z$ . La direction z est définie par  $\mathbf{P}$ , les directions x et y sont alors imposées pour former une base orthogonale. Enfin, nous distinguons deux processus de diffusion. Par exemple, si l'état initial du neutron est fixé à  $|\uparrow\rangle$ , le processus non-spin-flip (NSF), lors duquel le spin du neutron n'est pas renversé, est défini par  $\langle \uparrow | \sigma \cdot \mathbf{M}_\perp | \uparrow \rangle$  et inversement le processus spin-flip (SF) est défini par  $\langle \uparrow | \sigma \cdot \mathbf{M}_\perp | \downarrow \rangle$ . Seule la composante de  $\mathbf{M}_\perp$  perpendiculaire à  $\mathbf{P}$  contribue à l'intensité magnétique dans le canal SF, alors que la composante restante contribue à l'intensité mesurée dans le canal NSF. Nous pouvons ainsi étudier de façon sélective les propriétés nucléaires et magnétiques.

Nous noterons  $\alpha=(X,Y,Z)$  les trois directions différentes qui peuvent être prises par  $\mathbf{P}$  dans la base orthonormée (X,Y,Z) choisie de façon à ce que la direction Z soit perpendiculaire au plan de diffusion des neutrons (imposé par  $(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f)$ ) et que les directions Y et X appartiennent au plan de diffusion. Nous nous placerons ici dans le cas particulier où la direction X est parallèle à  $\mathbf{Q}$  et Y est perpendiculaire à  $\mathbf{Q}$ .

Les directions de polarisation,  $\alpha$ , peuvent être différentes avant et après interaction avec l'échantillon, nous pouvons définir le tenseur de polarisation suivant:

$$\begin{pmatrix} \langle X.X \rangle & \langle X.Y \rangle & \langle X.Z \rangle \\ \langle Y.X \rangle & \langle Y.Y \rangle & \langle Y.Z \rangle \\ \langle Z.X \rangle & \langle Z.Y \rangle & \langle Z.Z \rangle \end{pmatrix} \quad (2.28)$$

Nous considérons un système magnétique qui ne possède pas de chiralité ni de couplage avec le réseau. Nous négligeons les termes d'interférence magnétique/nucléaire du fait de l'existence de domaines où les moments sont de signes opposés. De plus, nous considérons une analyse longitudinale de polarisation (c'est à dire le cas où la direction de polarisation  $\alpha$  reste la même avant et après interaction avec l'échantillon, correspondant aux termes diagonaux du tenseur de polarisation Eq. 2.28). Les sections efficaces dans les canaux NSF et SF sont données par:

$$I_X^{\text{SF}} \propto |\mathbf{M}_\perp|^2 = |\mathbf{M}_\perp^Y|^2 + |\mathbf{M}_\perp^Z|^2 \quad I_X^{\text{NSF}} \propto |N|^2 \quad (2.29)$$

$$I_Y^{\text{SF}} \propto |\mathbf{M}_\perp^Z|^2 \quad I_Y^{\text{NSF}} \propto |N|^2 + |\mathbf{M}_\perp^Y|^2 \quad (2.30)$$

$$I_Z^{\text{SF}} \propto |\mathbf{M}_\perp^Y|^2 \quad I_Z^{\text{NSF}} \propto |N|^2 + |\mathbf{M}_\perp^Z|^2 \quad (2.31)$$

où N représente l'intensité nucléaire pure, et  $\mathbf{M}_\perp^Y$  et  $\mathbf{M}_\perp^Z$ , les composantes de  $\mathbf{M}_\perp$  le long des directions Y et Z. Nous mesurons toujours la composante du moment magnétique qui est à la fois

perpendiculaire à  $\mathbf{Q}$  et à  $\mathbf{P}$ . La Fig. 2.3 illustre notamment le processus de diffusion de neutrons polarisés, associé aux équations précédentes.

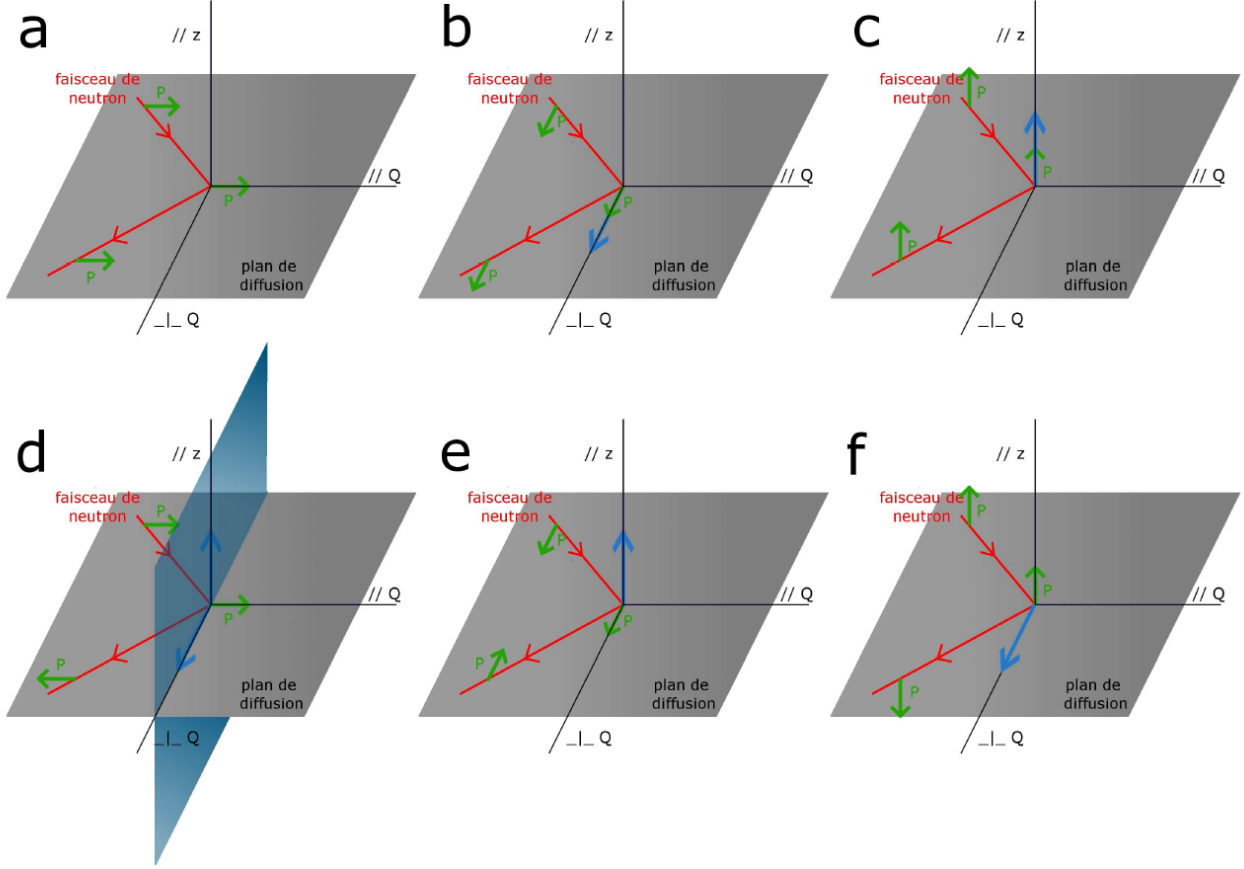


Figure 2.3: Diffusion de neutrons polarisés, d'après [118]. En rouge: le faisceau de neutrons diffusé par l'échantillon situé à l'origine du repère (X,Y,Z) avec X parallèle à  $\mathbf{Q}$ , Y perpendiculaire à  $\mathbf{Q}$  dans le plan de diffusion et Z perpendiculaire au plan de diffusion. En vert: le vecteur polarisation avant et après interaction avec l'échantillon. En bleu: la(les) composante(s) du moment magnétique mesurée(s) dans chaque configuration. (a)-(c) Canal NSF (d)-(f) Canal SF. (a) et (d)  $\mathbf{P} \parallel \mathbf{Q}$ . (b) et (e)  $\mathbf{P} \perp \mathbf{Q}$ . (c) et (f)  $\mathbf{P} \parallel \mathbf{Z}$ .

Il apparaît que l'intensité magnétique totale ( $|\mathbf{M}_\perp|^2$ ) se trouve dans le canal SF pour la polarisation X. De plus, l'intensité magnétique intrinsèque dans le canal SF pour X est égale à la somme des intensités magnétiques dans le canal SF pour Y et Z, il s'agit de la règle de somme:

$$I_X^{\text{SF}} = I_Y^{\text{SF}} + I_Z^{\text{SF}} \quad (2.32)$$

Aussi, pour chaque direction  $\alpha$ , nous pouvons définir le rapport de flipping, FR, qui est donné par l'équation suivante:

$$\text{FR}_\alpha = \frac{I_\alpha^{\text{NSF}}}{I_\alpha^{\text{SF}}} \quad (2.33)$$

Lorsqu'il est mesuré sur une réflexion de Bragg nucléaire (absence totale de magnétisme), nous parlons de rapport de flipping de référence, noté  $\text{FR}_\alpha^0$ . Il caractérise la qualité et la stabilité de polarisation du faisceau de neutrons (théoriquement, il ne dépend pas de  $\alpha$ , empiriquement nous

verrons que cela peut être le cas). En théorie,  $FR_{\alpha}^0$  devrait tendre vers l'infini. En pratique, la polarisation n'est pas parfaite, une fuite de polarisation existe principalement du canal NSF vers le canal SF. Nous verrons dans la partie concernant l'étude de l'ordre magnétique à  $q=0$  comment cette fuite contribue au signal brut mesuré.

### Cas particulier

Nous nous intéressons particulièrement à une structure magnétique colinéaire décrite par un moment magnétique  $M$ . Les composantes de  $M = (M_a, M_b, M_c)$  sont définies dans un repère cartésien,  $(a, b, c)$  correspondent aux axes cristallographiques de l'échantillon.

Nous considérons un système tétragonal ou faiblement orthorhombique mâclé. Le mâclage implique le mélange des domaines dans les deux directions  $a$  et  $b$ . Nous supposons que la population des domaines est équivalente. De plus, en considérant le plan de diffusion  $[1,0,0]/[0,0,1]$  pour lequel nous avons accès à  $\mathbf{Q} = (H, 0, L)$  (notations en unités réduites  $(2\pi/a, 2\pi/b, 2\pi/c)$ ), nous réécrivons l'Eq. 2.16:

$$|M_{\perp}|^2 = (1 - q_l^2)M_c^2 + (1 + q_l^2)\frac{1}{2}M_{ab}^2 \quad (2.34)$$

où  $q_l = \frac{2\pi}{c}L/|\mathbf{Q}|$  et  $M_{ab}^2 = M_a^2 + M_b^2$ . Et nous pouvons réécrire:

$$I_X^{SF} \propto |M_{\perp}|^2 \quad (2.35)$$

$$I_Y^{SF} \propto \frac{1}{2}M_{ab}^2 \quad (2.36)$$

$$I_Z^{SF} \propto (1 - q_l^2)M_c^2 + \frac{q_l^2}{2}M_{ab}^2 \quad (2.37)$$

D'après la Fig. 1.13, le moment magnétique peut être incliné d'un angle  $\theta$  par rapport à l'axe  $c$ . Nous avons  $M_{ab} = |M|\sin\theta$  et  $M_c = |M|\cos\theta$ . En effectuant des mesures pour les trois polarisations, nous pouvons déterminer cet angle  $\theta$ .

## 2.2 Spécificités des instruments utilisés

La majorité des expériences effectuées au cours de cette thèse concerne des mesures de diffusion de neutrons polarisés. Nous avons principalement utilisé le spectromètre trois-axes froid 4F1 situé au réacteur Orphée (Saclay), mais aussi le spectromètre trois-axes thermique 2T. Pour des études complémentaires nous avons également utilisé le diffractomètre 3T1. A l'ILL (Grenoble), nous avons notamment mené des expériences sur les spectromètres trois-axes thermique IN20 et froid IN14. Enfin nous avons également effectué des mesures de diffraction sur D7.

### 2.2.1 Le spectromètre trois-axes en général

#### 2.2.1.1 Définition générale

L'étude de la fonction de diffusion  $S(\mathbf{Q}, \omega)$  nécessite de contrôler les variables  $\mathbf{Q}$  et  $\omega$ . L'outil de choix pour la mesure de  $S(\mathbf{Q}, \omega)$  est le spectromètre trois-axes qui permet de mesurer le nombre

de neutrons diffusés en fonction du transfert de moment  $\mathbf{Q}$  et du transfert d'énergie  $\hbar\omega$ . Ce type d'instrument possède trois axes de rotation, Fig. 2.4, qui lui confèrent son nom:

- la sélection du faisceau de neutrons incident se fait par un monochromateur (vecteur d'onde  $\mathbf{k}_i$ )
- sur le deuxième axe, se trouve l'échantillon à étudier
- la sélection du faisceau de neutrons final se fait par un analyseur (vecteur d'onde  $\mathbf{k}_f$ )

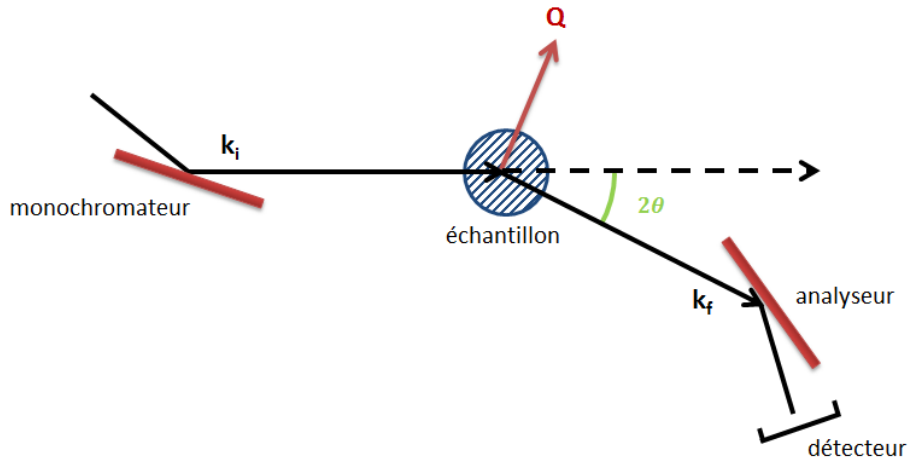


Figure 2.4: Schéma de principe d'un spectromètre trois-axes. La longueur d'onde du faisceau incident,  $\lambda_i = 2\pi/k_i$ , est sélectionné par un monochromateur. L'analyseur quant à lui sélectionne le vecteur d'onde diffusé  $\mathbf{k}_f$  par l'échantillon. L'angle entre  $\mathbf{k}_i$  et  $\mathbf{k}_f$  est noté  $2\theta$ .

Au cours du processus de diffusion, un électron dans un état initial  $|k_i, \sigma_i, n_i\rangle$  est diffusé dans un état final  $|k_f, \sigma_f, n_f\rangle$  après interaction avec l'échantillon. Ce processus de diffusion obéit à deux règles (contraintes cinématiques) de conservation de l'énergie et du vecteur d'onde :

$$\mathbf{Q} = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_f \quad (2.38)$$

$$\hbar\omega = E_i - E_f \propto k_i^2 - k_f^2 \quad (2.39)$$

On dispose de quatre degrés de liberté dans ce type de spectrométrie: les trois directions de l'espace réciproque et l'énergie donnant lieu à un vecteur  $(\mathbf{Q}, \omega)$ . Principalement, nous avons recours à deux types de mesures: soit l'énergie est constante et le vecteur d'onde  $\mathbf{Q}$  varie, soit c'est l'inverse. La première méthode consiste à faire varier le vecteur  $\mathbf{Q}$ . Soit nous procédons à une rotation de l'échantillon sur lui-même, impliquant une mesure à module de  $\mathbf{Q}$  constant. Soit nous procédons à une coupe en  $\mathbf{Q}$ . La deuxième méthode, quant à elle, consiste à fixer le vecteur  $\mathbf{Q}$  et à faire varier l'énergie du système: c'est une coupe en énergie. Une dernière étude consiste à fixer  $\mathbf{Q}$  et  $\omega$  et à faire varier un paramètre extérieur comme par exemple la température. Notons que lorsque l'échantillon est un monocristal, nous avons accès au vecteur  $\mathbf{Q}$  alors que si l'échantillon est une poudre, nous avons uniquement accès à son module car toutes les orientations de l'échantillon sont équivalentes.

2.2.1.2 Monochromateur et analyseur

Le faisceau de neutrons issu du réacteur est polychromatique. Le faisceau de neutrons est rendu monochromatique, de vecteur d'onde  $\mathbf{k}_i$ , par l'utilisation d'un cristal monochromateur en condition de Bragg.

$$n\lambda = 2d \sin(2\theta/2) = 4\pi \sin(2\theta/2) / |\mathbf{Q}| \tag{2.40}$$

$d$  étant la distance interatomique ( $d=2\pi/|\mathbf{Q}|$ ),  $2\theta$  correspond à l'angle entre  $\mathbf{k}_i$  et  $\mathbf{k}_f$  (Fig. 2.4),  $n$  est un entier et  $\lambda$  est la longueur d'onde. De la même manière, nous sélectionnons le vecteur d'onde  $\mathbf{k}_f$  à l'aide d'un monocristal analyseur.

Les monocristaux utilisés pour la sélection de la longueur d'onde peuvent être de différents types: cuivre, graphite pyrolytique, silicium, germanium, alliage Heusler. Ils possèdent des distances interatomiques  $d$  différentes, par exemple pour le graphite (0,0,2),  $d=3,35$ . Ces matériaux sont choisis pour leur bonne réflectivité neutronique (qui assure le maximum de neutrons sur l'échantillon). Il est possible en plus de focaliser le faisceau de neutrons en courbant horizontalement et/ou verticalement le monochromateur ou l'analyseur, pour augmenter l'intensité du faisceau sur l'échantillon.

De plus, ces deux éléments diffractent avec une longueur d'onde  $\lambda$  mais aussi avec toutes les harmoniques  $\lambda/n$  (avec  $n$  entier) qui peuvent contaminer une étude. Généralement, la plus gênante est la  $\lambda/2$  car elle est intense et son énergie est proche de celle qui est le plus souvent étudiée. Pour minimiser l'effet de ces harmoniques, nous utilisons des filtres. Les courbes de transmission des filtres graphite et béryllium sont présentées sur la Fig. 2.5. Le graphite permet de supprimer les harmoniques. Nous choisissons de travailler à une longueur d'onde  $\lambda$  de telle sorte que la transmission pour  $\lambda/2$  soit la plus faible possible. Le béryllium a la particularité de ne laisser passer que les neutrons ayant une énergie inférieure à 5meV ( $\lambda \sim 4\text{\AA}$ ).

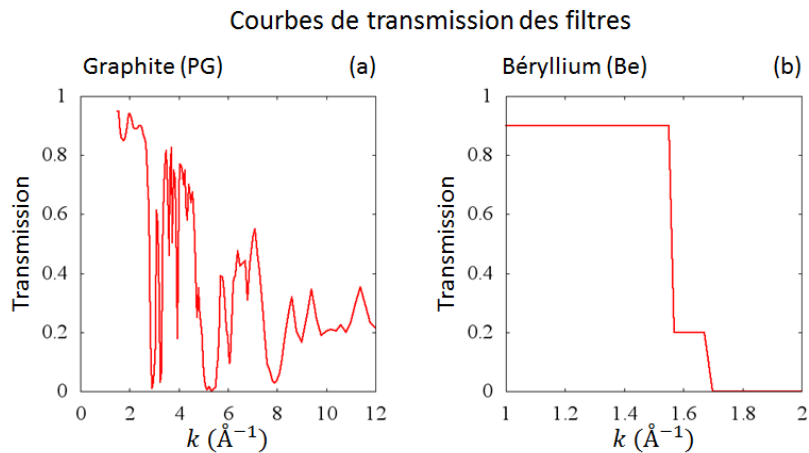


Figure 2.5: Principe générale d'un filtre: avoir une bonne transmission pour la longueur d'onde  $\lambda$  considérée et être en mesure de supprimer les  $\lambda/n$ . Courbes de transmission des filtres graphite (a) et béryllium (b) en fonction du vecteur d'onde  $k = \frac{2\pi}{\lambda}$ . (a) Pour un vecteur d'onde  $k=2,57\text{\AA}^{-1}$ , l'harmonique d'ordre deux ( $\sim 5\text{\AA}^{-1}$ ) est bien filtrée. (b) Le maximum d'intensité est transmis pour un vecteur d'onde jusqu'à  $k=1,55\text{\AA}^{-1}$ , au delà de  $1,7\text{\AA}^{-1}$  plus rien ne passe.



### 2.2.1.3 Moniteur et détecteur

Entre le monochromateur et l'échantillon, le moniteur sert à mesurer le nombre de neutrons incidents. La détection des neutrons est assurée par un gaz absorbant d' $^3\text{He}$ . Les neutrons incidents sont absorbés par le gaz qui s'ionise, les électrons sont alors accélérés par une différence de potentiel (de l'ordre de 2 à 4kV), le courant créé est amplifié via un phénomène d'avalanche électronique. L'efficacité du moniteur est inversement proportionnelle à  $k_i$ . Nous travaillons donc généralement à moniteur constant pour s'affranchir du terme  $k_f/k_i$  dans la section efficace. En effet, cela devient important dans le cas où nous effectuons nos mesures à  $k_f$  constant car nous compensons la variation du  $k_i$ . A  $k_i$  constant (terme  $k_f^3$  dans la résolution, Eq. 2.26), nous mesurons tout de même à moniteur constant pour être capable d'étudier nos résultats indépendamment de la variation du flux de neutrons incidents. L'efficacité du moniteur reste toutefois faible, il prélève une fraction des neutrons incidents.

Après interaction avec l'échantillon, les neutrons sont analysés et l'intensité est mesurée par un détecteur dont le principe de fonctionnement est similaire à celui du moniteur avec une pression plus forte (quelques bars) du gaz d' $^3\text{He}$  permettant de compter tous les neutrons.

### 2.2.1.4 Environnement de l'échantillon

Deux types d'environnement échantillon ont été utilisés durant ces travaux: le cryostat et le displex. Le cryostat fonctionne grâce à la circulation d'hélium liquide. La régulation de l'hélium se fait par une vanne froide et le contrôle de la température se fait par une résistance chauffante. Pour réduire la consommation d'hélium, l'environnement est généralement pré-refroidi à l'aide d'azote, ainsi, le différentiel en température est plus petit. Le displex quant à lui est un réfrigérateur à cycle fermé, utilisant du gaz d'hélium. Le gaz est comprimé par une tête froide en phase liquide et s'évapore au niveau de l'échantillon en absorbant de la chaleur. Le tout est dans une enceinte isolée de l'extérieur par du vide. Comme pour le cryostat, la température est maintenue par une résistance chauffante au niveau de l'échantillon, et elle est mesurée par une résistance calibrée. Typiquement nous effectuons nos mesures dans une gamme de température allant de 10K à 300K.

### 2.2.1.5 Polarisation du faisceau

Durant cette thèse, la majorité des expériences concerne des mesures de neutrons polarisés. Pour ce faire, il est nécessaire de polariser le faisceau en amont, de le guider tout au long de son parcours, et d'analyser la polarisation finale. Les différents éléments employés sont décrits ci-dessous.

#### - L'alliage Heusler

L'alliage Heusler ( $\text{Cu}_2\text{MnAl}$ , (111)), Fig 2.6.a, a la propriété de ne diffracter que les neutrons d'un seul état de spin. Il possède une longueur de diffusion magnétique  $b_M (= r_0 f_d(\mathbf{Q})\sigma \cdot \mathbf{M}_\perp$ , Eq. 2.20) qui compense exactement la longueur de diffusion nucléaire  $b_N$  pour une direction de spin donnée. En effet, il s'agit d'un élément ferromagnétique, saturé par un champ magnétique extérieur vertical produit par des aimants permanents (de l'ordre de 1,5T). Tous les moments du

cristal sont alors alignés dans une seule direction. Les neutrons vont interagir avec la structure ferromagnétique. Les intensités,  $I$ , des faisceaux diffusés pour chaque polarisation dépendent de la direction relative du spin du neutron par rapport aux moments magnétiques:  $I(|+ \rangle) \propto b_N + b_M$  et  $I(|- \rangle) \propto b_N - b_M$ , où  $|+ \rangle$  représente le cas où le spin du neutron et le moment magnétique ont la même direction, inversement pour  $|- \rangle$ . Dans le cas du  $Cu_2MnAl$ , ce sont les atomes de manganèse qui s'ordonnent et la longueur de diffusion nucléaire  $b_N$  est négative avec  $b_M = -b_N > 0$ , donc seuls les neutrons dans la configuration  $|- \rangle$  vont être diffusés.

**- Le bender**

Le bender, Fig 2.6.b, est un guide de neutrons qui permet de sélectionner les neutrons ayant un état de spin donné. Il s'agit d'un super-miroir polarisant: un dispositif multi-couches avec une alternance de couches non magnétiques et de couches ferromagnétiques. Les couches ferromagnétiques constituées généralement de CoFe sont saturées par un champ magnétique extérieur produit par des aimants permanents. Les neutrons dont le spin a la même direction que les moments des couches ferromagnétiques seront ainsi réfléchis. Contrairement à l'alliage Heusler, ce sont les neutrons dans la configuration  $|+ \rangle$  qui vont être diffusés avec le bender. Le bender est principalement utilisé pour des neutrons froids car sa transmission devient mauvaise au delà du vecteur d'onde  $2,662\text{\AA}^{-1}$ .

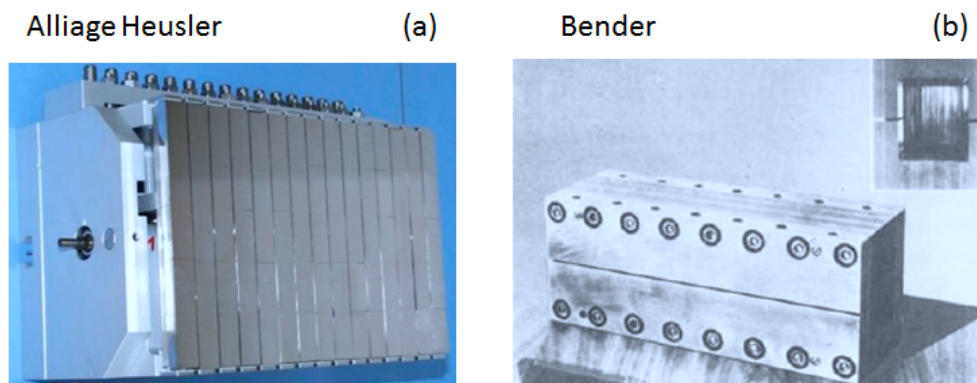


Figure 2.6: Photographies d'un alliage Heusler (a), constitué de 65 monocristaux, et d'un bender (b), formé de plusieurs dizaines de super-miroirs CoFe/TiGd.

**- Le flipper**

A l'aide des deux éléments présentés précédemment, bender ou alliage Heusler, nous ne mesurons qu'une seule configuration de spin, c'est donc en faisant varier l'orientation du spin, grâce au flipper, que nous pouvons étudier séparément les canaux SF ou NSF. Ce système est constitué de deux bobines électromagnétiques à  $90^\circ$  l'une de l'autre qui permettent de renverser à volonté le spin du neutron. Le principe est d'appliquer un courant à une bobine pour renverser le sens du champ magnétique. Le flipper de Mezei est constitué de deux bobines de Helmholtz distinctes. La première génère un champ vertical compensant le champ extérieur, créant ainsi une zone de champ nul. La seconde produit un champ horizontal permettant de faire précesser le spin jusqu'à le retourner (précession de Larmor, processus non-adiabatique). Le courant appliqué à cette deuxième bobine est dépendant de la longueur d'onde du neutron incident.

### - Champs de guide et bobines

Pour que les neutrons conservent leur polarisation, des champs de guide (quelques dizaines de Gauss) sont présents tout au long de leur parcours. En effet, sous l'effet de faibles champs magnétiques parasites dans des directions quelconques, la polarisation du neutron précéderait dans toutes les directions et le faisceau se dépolariiserait.

Afin d'être en mesure de réaliser l'analyse de polarisation, nous pouvons utiliser un jeu de bobines de Helmholtz ou bien des dispositifs (CRYOPAD, MUPAD) pour lesquels il existe une zone de champ nul.

Un ensemble de bobines de Helmholtz placées autour de l'échantillon produisent un champ de quelques Gauss. En jouant sur les courants de chacune d'entre elles, nous sommes en mesure d'orienter les champs magnétiques donc la polarisation des neutrons dans les trois directions orthogonales, de manière adiabatique. Le nombre de bobines utilisées peut différer selon l'instrument utilisé. Les bobines qui induisent des champs magnétiques selon la verticale produisent la polarisation Z, celles selon l'horizontale produisent les polarisations X et Y. Avec un tel jeu de bobines, nous avons forcément accès à une analyse longitudinale de polarisation: la direction de la polarisation est la même avant et après interaction avec l'échantillon (correspondant aux termes diagonaux du tenseur de polarisation Eq. 2.28).

Un autre type d'appareil peut être utilisé: CRYOPAD (de l'anglais CRYOgenic Polarization Analysis Device) [119]. Son enceinte constituée de supraconducteurs refroidis sous  $T_c$  avec de l'hélium permet d'avoir une chambre à champ nul. Les supraconducteurs écrantent les champs magnétiques parasites extérieurs. En plus de cela des petites bobines appelées nutateurs permettent de choisir la polarisation à l'entrée et à la sortie de cette zone. Dans le cas de CRYOPAD, nous avons accès à toutes les configurations de polarisation possibles, c'est l'analyse de polarisation sphérique (c'est à dire que la direction de la polarisation peut être différente avant et après interaction avec l'échantillon). Nous avons ainsi accès à tous les termes du tenseur de polarisation, Eq. 2.28. Sur le même principe, il existe un autre dispositif: MUPAD constitué de mumétal (alliage de nickel et de fer caractérisé par sa forte perméabilité) empêchant les champs magnétiques parasites extérieurs de pénétrer dans l'enceinte.

Nous étudions des échantillons supraconducteurs. S'ils sont soumis à un champ magnétique dans une certaine direction (polarisation) au dessus de  $T_c$ , en refroidissant, lorsque l'échantillon devient supraconducteur, les lignes de champ peuvent être piégées dans cette même direction. Sous  $T_c$ , si nous changeons la direction du champ magnétique appliqué (de façon non adiabatique), nous observons une dépolariisation du faisceau de neutrons. Avec des dispositifs comme CRYOPAD ou MUPAD, l'échantillon se trouve dans une zone de champ nul, nous pouvons donc étudier l'échantillon pour les différentes directions de polarisation quelle que soit la température. Avec le jeu de bobines de Helmholtz, même s'il n'y a pas de zone de champ nul, l'étude sous  $T_c$  est également possible. Il suffit de ne pas tourner la direction de polarisation sous  $T_c$  (il faut le faire avant de refroidir l'échantillon).

## 2.2.2 Le spectromètre trois-axes 4F1 pour l'étude de l'ordre magnétique à $q=0$

### 2.2.2.1 Dispositif expérimental

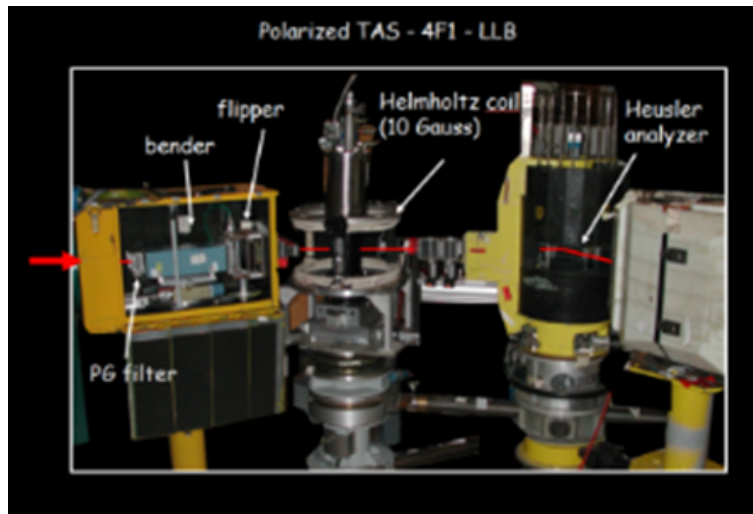


Figure 2.7: Photographie du spectromètre 4F1 (LLB-Orphée, Saclay) pour la diffusion de neutrons polarisés. Le faisceau incident est polarisé par un bender suivi d'un flipper de Mezei. Nous utilisons deux bobines de Helmholtz pour la polarisation Z et trois pour les directions dans le plan X et Y. La polarisation du faisceau final est analysée par un alliage Heusler suivi d'un détecteur.

Pour ce type d'étude, l'échantillon est installé dans un dispex sur le spectromètre trois-axes froid 4F1 (LLB-Orphée, Saclay), Fig. 2.7. Ce spectromètre est équipé d'un double monochromateur graphite et d'un analyseur graphite. Lorsqu'il est utilisé pour la diffusion de neutrons polarisés, un bender et un flipper de Mezei sont insérés après le double monochromateur. De même, nous remplaçons l'analyseur graphite par un analyseur en alliage de Heusler (lors de nos mesures, nous avons eu l'occasion d'en utiliser deux de tailles différentes). Des champs magnétiques guides de quelques dizaines de Gauss sont installés sur le parcours pour maintenir la polarisation de spin des neutrons. Autour de l'échantillon nous utilisons un jeu de cinq bobines de Helmholtz pour choisir la direction de polarisation (3 pour X et Y, 2 pour Z). Nous avons effectué nos mesures avec un vecteur d'onde initial fixé à  $k_i = 2,57\text{\AA}^{-1}$ . Pour ce vecteur d'onde, un filtre en graphite est placé devant le bender. Dans ces conditions expérimentales, la résolution en énergie sur 4F1 est de l'ordre de 1meV. Sa précision en  $|\mathbf{Q}|$  est de l'ordre de  $0,1\text{\AA}^{-1}$ .

Sur 4F1, comme pour tous les spectromètres trois-axes utilisés pendant cette thèse (par exemple les spectromètres trois-axes thermiques 2T ou IN20), nous sommes dans le cas particulier où la polarisation X est parallèle au vecteur d'onde  $\mathbf{Q}$ . Nous appliquons donc le formalisme présenté précédemment pour la diffusion de neutrons polarisés (Fig. 2.3).

### 2.2.2.2 Détermination du signal magnétique lié à l'ordre magnétique à $q=0$

L'ordre magnétique à  $q=0$  préserve l'invariance par translation. Il est caractérisé dans ce cas par un motif magnétique dans la maille élémentaire dont la résultante de l'aimantation est nulle. A min-

ima, il peut être décrit par deux moments magnétiques couplés de manière antiferromagnétique dans la maille élémentaire. Il produit ainsi un signal magnétique qui se superpose aux réflexions de Bragg nucléaires.

Nous cherchons à estimer le moment magnétique  $|\mathbf{M}|$  associé à l'ordre magnétique à  $q=0$ . Expérimentalement, nous avons accès à  $|\mathbf{M}_\perp|$  (section efficace de diffusion magnétique élastique, Eq. 2.18). Dans le cas particulier d'un signal produit par des boucles de courant dans la phase CC- $\theta$ II (présentée au Chapitre 1), nous considérons deux moments magnétiques orbitaux de sens opposés par plaquette  $\text{CuO}_2$  et nous réécrivons le facteur de structure magnétique élastique (Eq. 2.19) pour une position de Bragg de la forme  $\mathbf{Q} = (H, 0, L)$  [108]:

$$|F_M|^2 = r_0^2 f(Q)^2 \beta(L)^2 4 \sin^2(2\pi x_0 H) |\mathbf{M}_\perp|^2 \quad (2.41)$$

où  $|\mathbf{M}_\perp|^2$  est donné par l'Eq. 2.34 pour un système quadratique ou mâclé (il est exprimé en fonction des composantes du moment  $\mathbf{M}$ ).  $r_0 = -0,54 \cdot 10^{-12} \text{ cm}$  ( $r_0^2 = 290 \text{ mbarns}$ ) donne la longueur de diffusion magnétique.  $x_0 = 0,146$  est la position du moment magnétique dans la maille (centre du triangle Fig. 1.8.c).  $f(Q)$  représente le facteur de forme magnétique normalisé. A  $\mathbf{Q}=0$ , il vaut donc 1 et il tend vers 0 à grand vecteur d'onde  $|\mathbf{Q}|$ . Son évolution en fonction de  $\mathbf{Q}$  n'est pas connu, nous considérons une estimation moyenne  $f(Q)^2 = 0,5$  pour  $|\mathbf{Q}| \sim 1,7 \text{ \AA}^{-1}$  [108].  $\beta(L)$ , quant à lui, représente le facteur de structure magnétique, le long de l'axe  $c$ . Nous reprendrons plus en détails ce calcul dans les chapitres concernés.

Dans le cas d'un ordre magnétique longue portée dans un système homogène, l'intensité d'une réflexion de Bragg magnétique est proportionnelle au carré du moment ordonné ( $I_{mag} \propto |\mathbf{M}|^2$ ). L'intensité du signal magnétique  $I_{mag}$  associée à l'ordre magnétique à  $q=0$  étant beaucoup plus faible que le signal nucléaire, il est nécessaire de pouvoir différencier les deux canaux SF et NSF, nous utilisons donc la diffusion de neutrons polarisés. Comme le maximum de signal magnétique apparaît dans le canal SF pour la polarisation X (si la règle de somme est vérifiée, Eq 2.32), nous pouvons nous limiter à cette mesure pour déterminer  $I_{mag}$ . Pour déterminer non seulement l'amplitude du signal magnétique, mais aussi la température  $T_{mag}$  à partir de laquelle il se développe, nous procédons à un suivi en température. Lorsque nous procédons à une mesure de diffusion de neutrons, l'intensité magnétique n'est pas strictement égale à l'intensité mesurée dans le canal SF, Fig 2.8. Nous obtenons la somme de trois termes: sur le bruit de fond BG se trouve l'intensité magnétique  $I_{mag}$  et la fuite polarsaiton  $\frac{I_\alpha^{NSF}}{FR^0}$  avec  $FR^0$  qui en principe ne varie pas en température puisqu'il est défini sur une réflexion de Bragg nucléaire (nous verrons pour chaque cas pratique considéré dans les chapitres suivants comment et pourquoi il peut en dépendre). L'intensité diffusée dans le canal SF pour la polarisation  $\alpha = (X, Y, Z)$ , en fonction de la température, s'écrit alors:

$$I_\alpha^{SF}(T) = I_{mag,\alpha}(T) + \frac{I_\alpha^{NSF}(T)}{FR_\alpha^0(T)} + BG_\alpha^{SF}(T) \quad (2.42)$$

Pour la comparaison directe de résultats provenant de différents échantillons ou sur le même échantillon mais obtenus au cours de différentes expériences, il est pratique d'utiliser l'inverse du

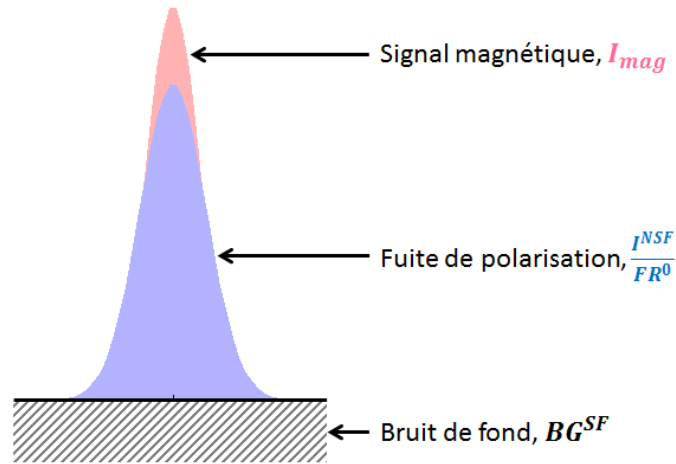


Figure 2.8: Intensité mesurée dans le canal SF. Elle se décompose en trois contributions. Le signal magnétique  $I_{mag}$  associé à l'ordre magnétique à  $q=0$  est représenté en rouge. En plus de l'existence d'un niveau de bruit de fond  $BG^{SF}$  (en hachuré noir), le signal magnétique apparaît sur une fuite de polarisation  $\frac{I_{NSF}}{FR^0}$  (en bleu).

rapport de flipping,  $1/FR_\alpha$ . Après avoir soustrait le bruit de fond, nous pouvons réécrire l'Eq. 2.42 ainsi:

$$1/FR_\alpha(T) = 1/FR_\alpha^0(T) + \frac{I_{mag,\alpha}(T)}{I_\alpha^{NSF}(T)} \quad (2.43)$$

Pour extraire  $I_{mag,\alpha}(T)$ , les paramètres à déterminer sont le bruit de fond et le rapport de flipping de référence. La dépendance en température du bruit de fond,  $BG_\alpha^{SF}(T)$ , peut être déterminée en effectuant une mesure en dehors de la réflexion de Bragg, et la dépendance en température du rapport de flipping de référence,  $FR_\alpha^0(T)$ , par une mesure à  $\mathbf{Q} = (0,0,L)$  où aucun signal magnétique n'a été observé jusqu'à maintenant [30] (et aussi où aucun signal magnétique n'est attendu dans un modèle de boucles de courants (Fig. 2.9)), ou encore à grand vecteur d'onde  $|\mathbf{Q}|$  là où tout signal magnétique devient extrêmement faible et peut être ignoré. En effet, le signal magnétique décroît et devient négligeable à grand vecteur d'onde du fait de la décroissance du facteur de forme magnétique. Plus les moments magnétiques sont spatialement étendus, plus la décroissance est rapide.

Une fois toutes ces mesures effectuées, nous soustrayons  $1/FR_\alpha(T) - 1/FR_\alpha^0(T)$  (Fig. 2.9), et en multipliant par le signal dans le canal NSF,  $I_\alpha^{NSF}(T)$ , nous pouvons observer une dépendance en température caractéristique de  $I_{mag,\alpha}$  de la forme  $(1 - T/T_{mag})^{2\beta}$  (fonction de type paramètre d'ordre où  $\beta$  est l'exposant critique).



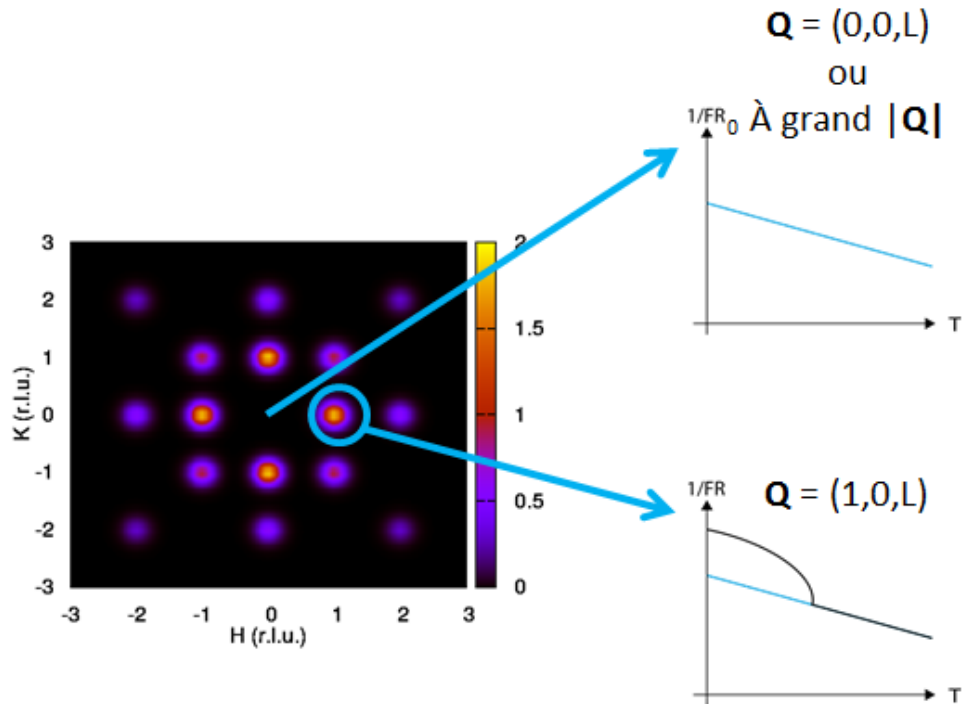


Figure 2.9: Figure de diffusion de neutrons prenant en compte les 4 domaines de boucles de courant [108]. L'inverse du rapport de flipping est mesuré à  $\mathbf{Q} = (1,0,L)$ , nous le comparons ensuite à une mesure à  $\mathbf{Q} = (0,0,L)$  où aucun signal magnétique n'est attendu, ou à grand vecteur d'onde  $|\mathbf{Q}|$  là où tout signal magnétique devient extrêmement faible et peut être ignoré

## 2.2.3 Le diffractomètre D7

### 2.2.3.1 Dispositif expérimental

En plus des mesures de diffusion de neutrons polarisés effectuées sur les spectromètres trois-axes, nous avons procédé à des mesures de diffusion de neutrons polarisés sur le diffractomètre à neutrons froids D7 (ILL, Grenoble). Les Fig. 2.10.a-b présentent un schéma de l'appareil et des angles associés au dispositif de polarisation. Nous notons que la configuration instrumentale est comparable à celle décrite pour le spectromètre trois-axes avec cependant une différence notable: nous ne sélectionnons pas l'énergie finale, et la méthode d'analyse de polarisation est différente de celle considérée pour les spectromètres trois-axes.

Le dispositif expérimental de cet appareil, Fig. 2.10.a, est notamment donné dans [120, 121]. Il est composé d'un monochromateur à triple lame qui sélectionne les neutrons incidents. Un filtre béryllium est placé après le monochromateur, nous avons travaillé à  $k_i = 1,3\text{\AA}^{-1}$  ( $\equiv E_i = 3,5\text{meV}$ ). Un polariseur super-miroir et un flipper de Mezei sélectionnent les neutrons avec un spin donné. D7 est équipé d'un mode de polarisation fixe centré autour de l'échantillon. Deux bobines de part et d'autre de la table échantillon sont utilisées pour la polarisation Z, une seule pour chaque polarisation X et Y. La polarisation finale est ensuite analysée par 66 benders super-miroirs sur une large gamme d'angles de diffusion. Deux détecteurs sont situés après chaque bender, ce qui donne un rapport de flipping variable pour chaque détecteur. Comme il s'agit d'un diffractomètre,



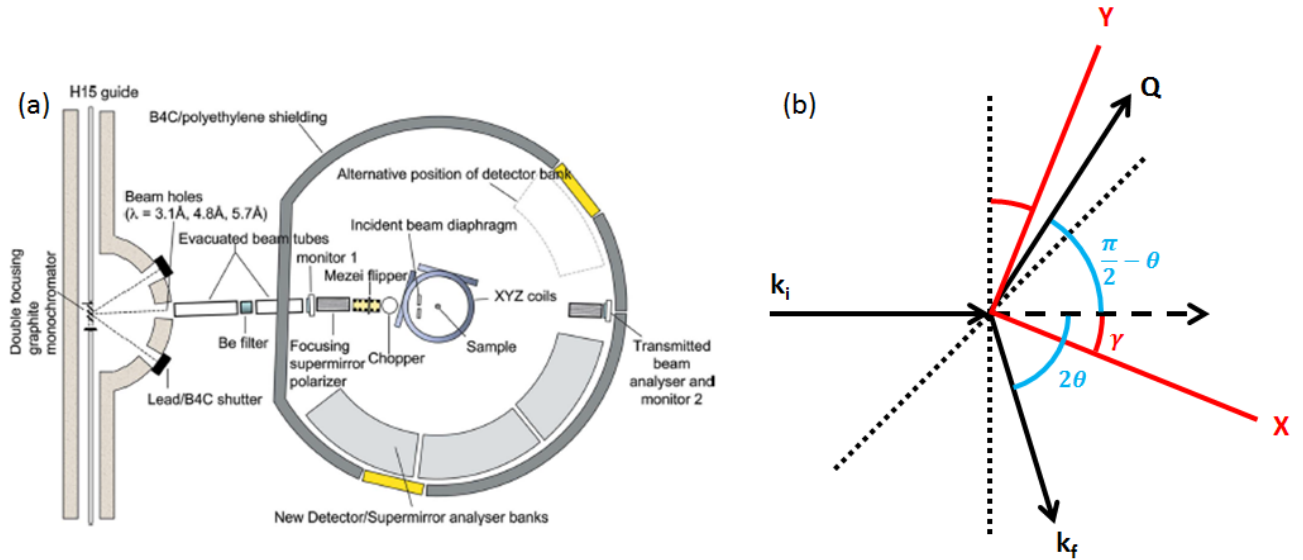


Figure 2.10: Le diffractomètre D7 (ILL, Grenoble) (a) Vue schématique du dispositif expérimental (extrait d'après [120]). Le faisceau incident est polarisé par un bender suivi d'un flipper de Mezei. Nous utilisons une bobine pour chaque direction de polarisation X et Y, deux bobines dans le cas de Z. La polarisation du faisceau final est analysée par des benders suivi chacun de deux détecteurs. (b) Vue schématique des différents angles de diffusion et de la polarisation dans le plan de diffusion. Les directions de la polarisation sur D7 sont le long de directions arbitraires. La direction X fait un angle  $\gamma$  de  $24^\circ$  par rapport à  $k_i$  dans notre cas [121].

les neutrons ayant une énergie finale proche de  $E_i$  sont détectés (les énergies de  $-k_B T$  à  $E_i$  sont intégrées). Enfin, bien que la résolution angulaire soit détériorée pour maximiser le flux sur D7, cet instrument possède toutefois une résolution en  $Q$  (résolution longitudinale) 4 fois meilleure que 4F1 dans les conditions de mesures que nous avons utilisées (la résolution dépend de  $k_i$ ).

### 2.2.3.2 Analyse standard

Pour le traitement des données, il est possible d'utiliser le logiciel LAMP fourni par l'ILL [122]. La procédure standard consiste en une soustraction de bruit de fond, une correction du rapport de flipping et une normalisation des intensités pour chaque canal.

Dans un premier temps, nous avons effectué des mesures de bruit de fond provenant d'un porte-échantillon vide afin de pouvoir comparer les mesures avec et sans échantillon.

Ensuite, un cylindre de quartz de la taille de l'échantillon considéré est placé dans le cryostat. La diffusion diffuse à partir de quartz amorphe est entièrement nucléaire. Par conséquent, il indique le rapport entre la diffusion NSF et la diffusion SF sur tous les détecteurs (132 détecteurs). Cela donne le rapport de flipping FR pour chaque détecteur. Dans la limite de FR grand [120]:

$$I_{corr}^{SF} = I^{SF} - \frac{1}{FR - 1} (I^{NSF} - I^{SF}) \quad (2.44)$$

$$I_{corr}^{NSF} = I^{NSF} + \frac{1}{FR - 1} (I^{NSF} - I^{SF}) \quad (2.45)$$

Enfin, nous effectuons des mesures sur un cylindre de vanadium, pour corriger les données selon l'efficacité de chaque détecteur et pour être en mesure de convertir la section efficace en unités absolues.

### 2.2.3.3 Règles de polarisation

Les directions de polarisation X et Y sont dans le plan de diffusion et la direction de polarisation Z est perpendiculaire à ce plan. Mais à la différence du spectromètre trois-axes 4F1, la direction de polarisation X sur D7 est tournée d'un angle  $\gamma$  de  $24^\circ$  par rapport à  $\mathbf{k}_i$  [121] (Fig. 2.10.b). Le repère orthonormé (X,Y,Z) subit une rotation d'un angle  $\beta$  par rapport à celui considéré pour 4F1 et nous réécrivons les Eq. 2.35, 2.36 et 2.37 (pour le plan de diffusion [1,0,0]/[0,0,1]) valables dans le cas d'un système magnétique ordonné:

$$I_X^{\text{SF}} \propto \frac{1}{2}M_{ab}^2 + I_Z^{\text{SF}} \cos^2\beta \quad (2.46)$$

$$I_Y^{\text{SF}} \propto \frac{1}{2}M_{ab}^2 + I_Z^{\text{SF}} \sin^2\beta \quad (2.47)$$

$$I_Z^{\text{SF}} \propto (1 - q_l^2)M_c^2 + \frac{q_l^2}{2}M_{ab}^2 \quad (2.48)$$

D'après la Fig. 2.10.b, l'angle entre la polarisation X et le vecteur d'onde  $\mathbf{Q}$  est égal à  $\beta = \gamma + \frac{\pi}{2} - \frac{2\theta}{2}$ . L'intensité magnétique maximale est obtenue grâce à la somme des trois sections efficaces dans le canal SF :  $I_X^{\text{SF}} + I_Y^{\text{SF}} + I_Z^{\text{SF}}$ . Nous avons également  $I_X^{\text{SF}} + I_Y^{\text{SF}} - I_Z^{\text{SF}} \propto M_{ab}^2$ . Dans la limite  $q_l \rightarrow 0$  (ce qui est le cas pour L petit),  $I_Z^{\text{SF}} \propto M_c^2$ . Cela permet d'étudier séparément les deux composantes du moment magnétique M, quelque soit l'angle  $\beta$ .

Dans la limite opposée du magnétisme désordonné, nous considérons généralement la section efficace des corrélations magnétiques isotropes, soit  $M_a^2 = M_b^2 = M_c^2$ . Cela correspond à un modèle de paramagnétisme qui est généralement utilisé pour analyser les résultats de diffusion diffuse obtenus sur D7 [120]. L'intensité paramagnétique  $S_{mag}$  s'écrit:

$$S_{mag} = 2I_X^{\text{SF}} + 2I_Y^{\text{SF}} - 4I_Z^{\text{SF}} \quad (2.49)$$

L'analyse complète de polarisation utilisée sur D7 permet d'extraire l'intensité (para)magnétique quel que soit le bruit de fond (diffusion nucléaire et diffusion incohérente de spin). La seule hypothèse est que le bruit de fond est indépendant de la polarisation. L'Eq. 2.49 détermine la diffusion magnétique totale seulement pour la diffusion paramagnétique. Dans cette limite,  $S_{mag} = (2/3)g^2S(S+1)$  où  $g$  est le facteur de Landé et  $S$  le spin effectif.

### 2.2.3.4 Traitement des données

Dans le but d'obtenir une meilleure statistique lors de notre analyse des mesures de diffraction sur D7, nous avons recours à la moyenne des intensités mesurées  $I_i$  provenant de  $N$  détecteurs:  $\bar{I} = \sum_{i=1}^N I_i / N$ . Cette quantité est en fait liée à l'aire intégrée du signal considéré (Fig. 2.11), selon une direction particulière, ici notée  $q$ . L'intensité à chaque détecteur  $I_i$  (c'est à dire pour un vecteur

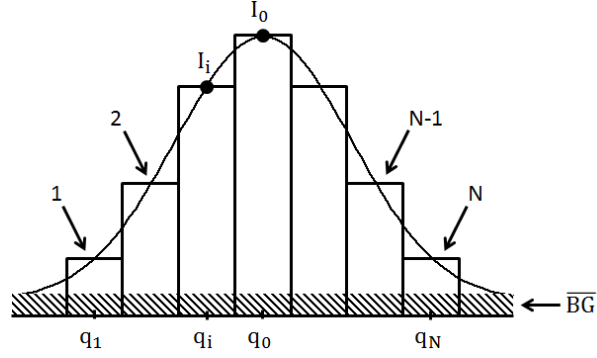


Figure 2.11: Moyenner les intensités. La somme des intensités  $I_i$  mesurées dans chaque détecteur  $i$  correspond en fait à l'intégration du signal considéré.

d'onde  $q_i$ ) est la somme d'un bruit de fond  $BG_i$  et d'une contribution provenant d'un pic centré en  $q_0$  avec une pleine largeur à mi-hauteur (FWHM, de l'anglais full width at half maximum)  $\Delta q$  et une amplitude (magnétique)  $I_0$ . En considérant un profil gaussien:

$$I(q) = BG + I_0 \exp(-4 \ln 2 (q - q_0)^2 / \Delta q^2) \quad (2.50)$$

L'intensité moyennée  $\bar{I}$  peut s'écrire:

$$\bar{I} = \sum_{i=1}^N I_i / N = \overline{BG} + \frac{\int_{q_1}^{q_N} \exp(-4 \ln 2 (q - q_0)^2 / \Delta q^2) dq}{\int_{q_1}^{q_N} dq} = \overline{BG} + I_0 \frac{\Delta q}{q_N - q_1} \sqrt{\frac{\pi}{4 \ln 2}} \quad (2.51)$$

où  $(q_N - q_1)$  est la largeur sur laquelle nous moyennons les intensités et  $\overline{BG}$  est le niveau de bruit de fond moyen. Nous pouvons ainsi reporter la quantité  $\bar{I} - \overline{BG}$ , qui est proportionnelle au produit de l'amplitude maximale et de la largeur en  $q$ ,  $\propto I_0 \Delta q$ .

## 2.3 Échantillons de cuprates

Durant cette thèse, nous avons principalement étudié des monocristaux provenant de quatre familles de composés:  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  (Y123),  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+x}$  (Bi2212),  $Bi_{1.8}Pb_{0.4}Sr_{1.8}CuO_{6+x}$  (Pb-Bi2201) et  $HgBa_2CuO_{4+x}$  (Hg1201). La quantité  $x$  indique la teneur en oxygène de l'échantillon, elle influe de façon non linéaire sur le niveau de dopage en trous  $p$ . La structure cristalline des deux premières familles est présentée sur la Fig. 2.12. Le Tab. 2.1 quant à lui nous renseigne sur les caractéristiques générales des quatre familles: la température critique maximale,  $T_c^{max}$ , les paramètres de maille (en notation tétragonale et à température ambiante) et le nombre de plans  $CuO_2$  par maille élémentaire.

De plus, pour les composés des familles Y123 et Bi2212, le niveau de dopage en trous,  $p$ , peut être donné par la relation phénoménologique suivante:  $p = \pm \sqrt{(1 - T_c / T_c^{max}) / 82,6} + 0,16$  [123]. Le dopage optimal est considéré pour  $p=0,16$ . Cette relation correspond à une description parabolique de la dépendance en dopage de  $T_c$ . Une autre formule peut être employée, uniquement pour la famille Y123, d'après [124]:  $p = 11,491(1 - c/c_0) + 5,17 \cdot 10^9(1 - c/c_0)^6$  où  $c_0 = 11,8447$  est le paramètre de maille le long de  $c$  au dopage nul. Dans ce cas, la dépendance en dopage de  $T_c$  est plus réaliste.

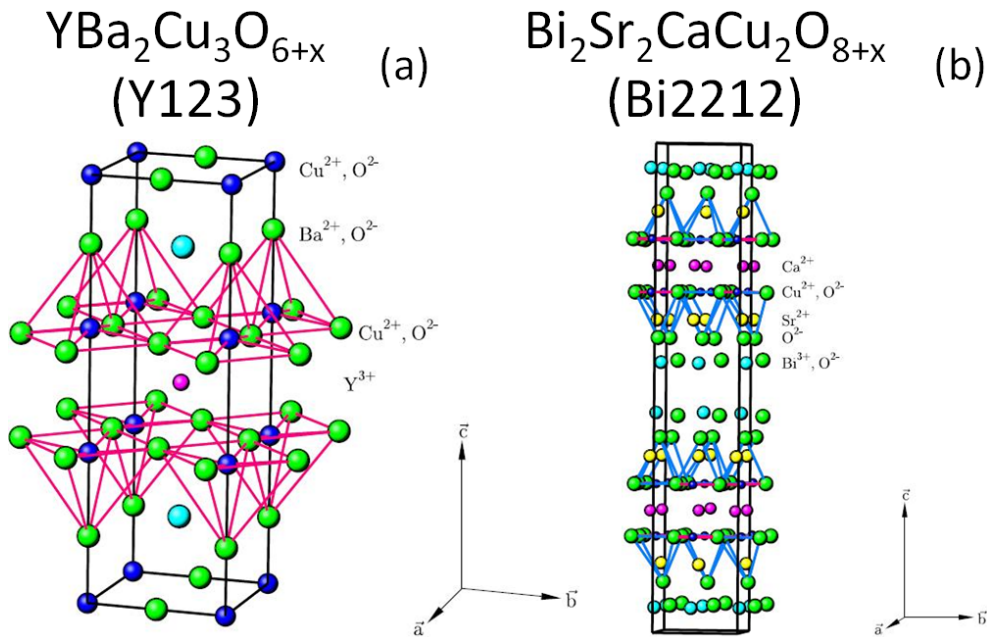


Figure 2.12: Structure cristalline des systèmes (a)  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  (Y123) où le biplan  $CuO_2$  est représenté et (b)  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+x}$  (Bi2212) où 2 biplans  $CuO_2$  sont représentés.

Table 2.1: Présentation des familles de composés étudiées. Nous retrouvons la température critique maximale,  $T_c^{max}$ , les paramètres de maille (notation tétragonale),  $a, b$  et  $c$ , et le nombre de plans  $CuO_2$  par maille élémentaire.

Formule chimique	$T_c^{max}$	Paramètres de maille	Nombre de plans $CuO_2$
$YBa_2Cu_3O_{6+x}$	93K	$a=b=3,85\text{\AA}$ et $c=11,7\text{\AA}$	2
$Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+x}$	91K	$a=b=3,82\text{\AA}$ et $c=30,9\text{\AA}$	2
$Bi_{1.8}Pb_{0.4}Sr_{1.8}CuO_{6+x}$	20K	$a=b=3,7\text{\AA}$ et $c=24,4\text{\AA}$	1
$HgBa_2CuO_{4+x}$	97K	$a=b=3,9\text{\AA}$ et $c=9,5\text{\AA}$	1

### 2.3.1 Les composés à base d'Y

Le composé  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  (Y123) (Fig. 2.12.a) est caractérisé par une alternance de couches CuO / BaO / CuO<sub>2</sub> / Y / CuO<sub>2</sub> / BaO / CuO. Il comporte donc deux plans CuO<sub>2</sub> par maille élémentaire. Les couches CuO, constituées de chaînes CuO, servent de réservoirs de charges. Le dopage s'effectue en faisant varier la teneur en oxygène de ces chaînes. Pour le composé  $YBa_2Cu_3O_6$ , les chaînes CuO n'ont pas d'oxygène et le système est tétragonal. Pour le composé  $YBa_2Cu_3O_7$ , les chaînes CuO sont complètes en oxygène et le système est orthorhombique. La plupart des échantillons d'Y123 que nous avons étudiés sont mâclés, dans ce cas les domaines dans les directions a et b sont mélangés. Nous décrirons par la suite nos échantillons en utilisant des notations pseudo-tétragonales avec  $a=b=3.85\text{\AA}$  et  $c=11.7\text{\AA}$ .

La technique de synthèse de nos matériaux est le MTG (de l'anglais Melt Texture Growth). Avec cette méthode, les échantillons sont en fait obtenus à partir de la phase verte  $Y_2BaCuO_5$ . Le dopage se fait sous pression d'oxygène à très haute température ( $P(O_2)=0,1\text{atm}$  à  $660^\circ\text{C}$ ).

Les échantillons de la famille Y123 que nous avons utilisés sont répertoriés dans le Tab. 2.2, tableau récapitulatif fourni à la fin de ce chapitre.

Le composé  $YBa_2Cu_3O_{6.85}$  que nous avons principalement étudié se trouve dans la région sous dopée (mais proche du dopage optimal) du diagramme de phase. Sa température critique supraconductrice est de  $T_c=89\text{K}$  et son dopage en trous est de  $p=0,15$ . Nous l'appellerons Y123-UD89 (UD pour sous-dopé). Il s'agit d'un monocristal d'un volume de  $1.5\text{cm}^3$  [125–127] dont la masse effective est de 8g. Par effectif, nous voulons dire après déduction de la quantité de phase verte présente dans l'échantillon (Fig. 2.16) dont la méthode sera détaillée lors de l'étude de la phase verte.

Nous avons également étudié le composé sous-dopé  $YBa_2Cu_3O_{6.6}$ , dont la température critique est de  $T_c=61\text{K}$  et le dopage en trous de  $p=0,12$ . Nous le nommerons Y123-UD61. Cet échantillon possède une masse de 10,8g [30, 128]. En collaboration avec le groupe du Prof. B. Keimer à l'Institut Max Planck (Stuttgart), nous avons étudié un autre échantillon, monocristallin, de la même composition. Il s'agit d'un ensemble de 80 monocristaux dont la masse totale atteint 9g. La technique de synthèse utilisée pour cet échantillon est différente du MTG, l'échantillon ne contient donc pas de phase verte. Il présente une  $T_c=62\text{K}$ , nous le noterons Y123-UD62. Enfin toujours pour la même composition, nous avons étudié cette fois-ci un échantillon démâclé dont la température critique est de  $T_c=63\text{K}$  et le dopage en trous de  $p=0,12$  (Y123-UD63), sa masse est de 3g [84].

Enfin, nous avons étudié deux échantillons sur-dopés (OD) de même composition  $YBa_2Cu_3O_{6.97}$  dont la température critique est de  $T_c=92\text{K}$  et le dopage en trous est de  $p=0,17$ . Nous les nommerons Y123-OD92 a et b. Le plus gros des deux (a) a une masse effective de 85g. Le plus petit (b), quant à lui, pèse 4,2g [129].

### 2.3.2 Les composés à base de Bi

Le composé  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$  (Bi2212) (Fig. 2.12.b) peut être représenté comme un empilement de couches SrO / BiO / BiO / SrO et CuO / Ca / CuO selon l'axe  $c$ . Tout comme le composé Y123, il contient deux plans  $\text{CuO}_2$  par maille élémentaire. Dans ce composé ce sont les oxygènes interstitiels qui jouent le rôle de réservoirs de charges. Une des particularités de ce composé est que les plans BiO ne sont pas commensurables avec les plans  $\text{CuO}_2$ , comme si le système était constitué de deux sous-systèmes distincts imbriqués l'un dans l'autre. La structure exacte de ce composé est particulièrement difficile à décrire. La structure du Bi2212 est habituellement décrite comme faiblement orthorhombique suivant les diagonales d'une plaquette  $\text{CuO}_2$ , avec  $a_0 \simeq b_0 = 5.4\text{\AA}$  et  $c_0=30.9\text{\AA}$ . Les échantillons sont naturellement démâclés. Comme nous l'avons dit, il existe une forte incommensurabilité:  $0.21b^*+c^*$  [130, 131]. Pour l'étude des propriétés magnétiques des plans  $\text{CuO}_2$  et dans le but de comparer les différentes études de l'ordre magnétique à  $q=0$  dans nos échantillons, nous pouvons nous limiter à une description simplifiée en considérant le système comme pseudo-tétragonal avec  $a=a_0/\sqrt{2}=b=b_0/\sqrt{2}=3.82\text{\AA}$  et  $c=c_0=30.9\text{\AA}$  [34, 132], correspondant à une rotation de  $45^\circ$  dans le plan  $ab$  par rapport au cas orthorhombique.

Contrairement à Y123, Bi2212 est un système très peu étudié par diffusion de neutrons. En effet, il est difficile d'obtenir des échantillons monocristallins d'un volume suffisant pour réaliser de telles mesures (ou bien il est nécessaire de recourir au montage de plusieurs cristaux). Mais contrairement à Y123, ces échantillons se clivent très facilement et ont une excellente qualité de surface. Ils sont très largement étudiés par des sondes en surface ou ayant un faible pouvoir de pénétration (STM, ARPES, ERS).

La technique de synthèse utilisée pour les monocristaux de la famille Bi2212 est le TSFZ (de l'anglais Traveling Solvent Floating Zone). Les monocristaux sont extraits à partir d'un germe. Pour atteindre la température critique désirée, des recuits sous atmosphère contrôlée en oxygène ( $P(\text{O}_2)=0.1\text{atm}$  à  $450^\circ\text{C}$ ) ont été réalisés [133].

La température critique est déterminée par des mesures d'aimantation avec un dispositif SQUID (magnétomètre) pour des échantillons de petite taille. Pour les montages d'échantillons étudiés par diffusion de neutrons, nous utilisons la dépolarisation du faisceau de neutrons. Les résultats de cette méthode (normalisés à haute température) sont présentés pour tous les échantillons de la famille Bi2212 sur la Fig. 2.13.a. Cela consiste, à une température supérieure à  $T_c$ , à se placer dans une configuration (polarisation et position en  $\mathbf{Q}$ ) donnée. En refroidissant l'échantillon sous  $T_c$ , l'échantillon devient supraconducteur et les lignes de champ sont alors piégées dans la direction initiale. A basse température, nous changeons la direction de polarisation des neutrons (de manière non adiabatique), nous dépolarisons ainsi le faisceau (les lignes de champs se retrouvent non parallèles à la polarisation). Enfin, en chauffant, nous retrouvons petit à petit le rapport de flipping initial. La température à laquelle la polarisation est restaurée définit  $T_c$ .

Les échantillons à base de Bi que nous avons utilisés sont répertoriés dans le Tab. 2.3 à la fin de ce chapitre.



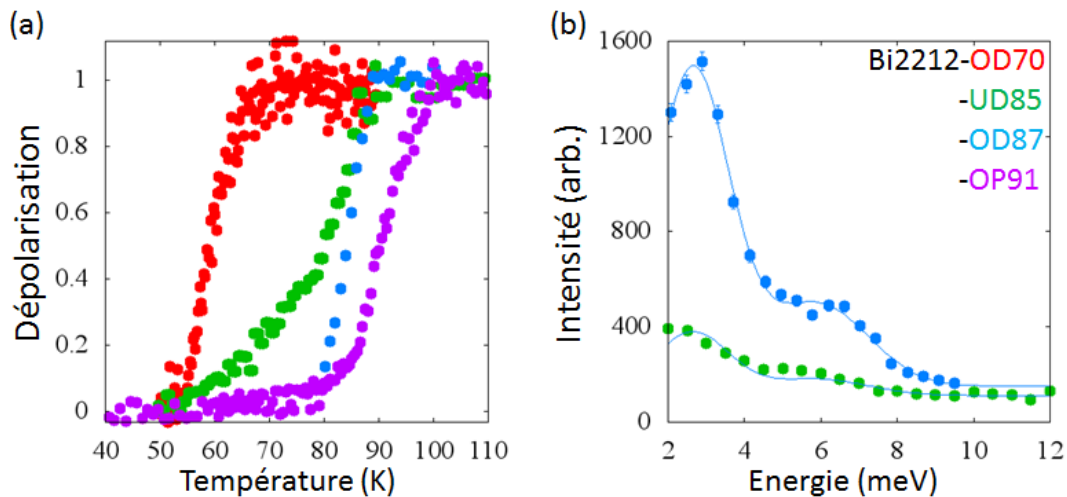


Figure 2.13: (a) Caractérisation de la température critique  $T_c$  par des mesures de dépolarisation de faisceau de neutrons pour quatre échantillons: Bi2212-OD70 (points rouges), Bi2212-UD85 (points verts), Bi2212-OD87 (points bleus) et Bi2212-OP91 (points violets). (b) Mesures de phonon à basse énergie et à  $\mathbf{Q} = (0,0,13)$  pour les échantillons Bi2212-UD85 (points verts) et Bi2212-OD87 (points bleus). Le rapport entre les deux mesures est de 5. L'intensité étant proportionnelle au volume échantillon, cela donne directement le rapport des volumes des 2 échantillons.

Nous avons étudié l'échantillon sur-dopé, Bi2212-OD87, avec une température critique  $T_c=87\text{K}$  et un dopage en trous  $p=0,18$ . Il s'agit d'un cylindre de  $300\text{mm}^3$  avec un cristal principal de  $250\text{mm}^3$  et un secondaire de  $50\text{mm}^3$  tourné à  $2^\circ$  [34, 132, 134]. Sa masse est estimée à 2g.

Nous avons étudié un autre échantillon sur-dopé, Bi2212-OD70, dont la température critique est de  $T_c=70\text{K}$  et le dopage en trous est de  $p=0,22$ . Il est composé d'un ensemble de monocristaux dont le volume atteint  $300\text{mm}^3$  également [34, 132, 135].

L'échantillon sous-dopé, Bi2212-UD85, quant à lui possède une température critique de  $T_c=85\text{K}$  et son dopage en trous est de  $p \sim 0,13-0,14$ . Il s'agit d'un ensemble de trois monocristaux. Une fois que ces monocristaux sont co-alignés, le volume échantillon total atteint une valeur de  $300\text{mm}^3$  [133]. Cependant, le volume échantillon qui contribue réellement lors de la diffusion de neutrons est plus faible. Pour estimer la fraction échantillon utile, nous comparons l'échantillon Bi2212-UD85 à Bi2212-OD87. Des mesures de phonon à  $\mathbf{Q} = (0,0,13)$ , Fig. 2.13.b, montrent que l'échantillon Bi2212-UD85 possède un volume 5 fois plus petit que Bi2212-OD87, soit  $50\text{mm}^3$  [132]. Sa masse est en fait estimée à 0,35g.

Tous ces échantillons (Bi2212-UD85, Bi2212-OD87, Bi2212-OD70) ont été étudiés en collaboration avec l'IUT de Blois.

Nous avons également étudié un plus gros échantillon de bonne qualité dont la température critique est de  $T_c=91\text{K}$ . Cet échantillon est optimalement dopé (OP,  $p \sim 0,16$ ). L'échantillon que nous avons utilisé est une sous-partie de celui présenté sur la photographie du Tab. 2.3. Il est constitué de deux cristaux co-alignés (sur les sept présents initialement), la masse totale atteint 5,5g [136]. Nous l'appellerons Bi2212-OP91 (collaboration avec le Prof. J.M. Tranquada, Brookhaven National Laboratory).



Enfin, un autre type de composé à base de Bi a été étudié. Celui-ci comporte un seul plan  $\text{CuO}_2$  et contient du plomb (Pb). Il s'agit du composé  $\text{Bi}_{1.8}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_{1.8}\text{CuO}_{6+x}$ . L'utilisation du plomb atténue les incommensurabilités et permet une meilleure croissance. Ses paramètres de maille sont  $a=b=3,7\text{\AA}$  et  $c=24,4\text{\AA}$ . L'échantillon qui a été étudié est sous-dopé, sa température critique est de  $T_c=5\text{K}$  et son dopage en trous de  $p=0,14$  [137]. Nous le nommerons Pb-Bi2201-UD5 (collaboration avec le Prof. M. Fujita, Japon).

### 2.3.3 Les composés à base de Hg

Le composé  $\text{HgBa}_2\text{CuO}_{4+x}$  (Hg1201) possède un plan  $\text{CuO}_2$  par maille élémentaire. Il présente une structure tétragonale et ses paramètres de maille sont  $a=b=3,9\text{\AA}$  et  $c=9,5\text{\AA}$ . En collaboration avec le groupe du Prof. M Greven (Université du Minnesota), nous avons étudié un échantillon sous-dopé de cette famille dont la température critique est de  $T_c=71\text{K}$  (nous le nommerons Hg1201-UD71), son niveau de dopage est de  $p=0,095$ . Il est constitué de 34 monocristaux co-alignés sur deux plaques d'aluminium (Tab 2.4). Sa masse est de 2g [138].

### 2.3.4 Montage et orientation des échantillons

Le montage des différents échantillons étudiés est donné par des photographies dans les Tab. 2.2, 2.3 et 2.4. Les échantillons peuvent être (co)alignés en utilisant différentes méthodes: les échantillons peuvent être collés sur une plaque en aluminium (Al) ou enroulés dans des feuilles d'Al et/ou attachés sur de minces plaques et tiges d'Al. En utilisant ces différentes méthodes, nous assurons la reproductibilité des mesures indépendamment de la variation de l'amplitude du bruit de fond associé à la présence ou non de colle (la colle étant constituée d'hydrogène, donne une large diffusion incohérente).

De plus, durant cette thèse, les échantillons sont en général alignés dans le plan de diffusion  $[1,0,0]/[0,0,1]$  (notations tétragonales), pour l'étude de l'ordre magnétique à  $q=0$ . Les vecteurs d'onde  $\mathbf{Q}$  de la forme  $(H,0,L)$  sont ainsi accessibles (nous rappelons que les vecteurs d'onde sont donnés en unité réduite  $(2\pi/a, 2\pi/b, 2\pi/c)$ ). Dans le cas du composé Bi2212, comme sa structure cristalline appartient au groupe d'espace  $\text{Bb}2b$ , seules les réflexions de Bragg  $\mathbf{Q} = (1,0,L)$  avec  $L$  impair existent, Fig. 2.14.a Nous présentons également sur cette figure les contaminations de poudre d'aluminium, à des valeurs non entières de  $L$  et à grand vecteur d'onde (lignes pointillées), pour les différencier du signal provenant des réflexions de Bragg. Leurs intensités sont comparables à celles des réflexions de Bragg pour des valeurs de  $L$  petites, elles apparaissent non négligeables. Les valeurs de  $L$  accessibles pour la famille Pb-Bi2201 sont les mêmes, c'est à dire impaires. Enfin, pour les composés Y123, toutes les valeurs de  $L$  entières sont permises, Fig. 2.14.b. La qualité du profil de raie dépend des défauts d'empilement le long de l'axe  $c$ . Plus ces défauts sont nombreux, plus le pic s'évase, jusqu'à donner une diffusion diffuse (du fait de la texture des échantillons).

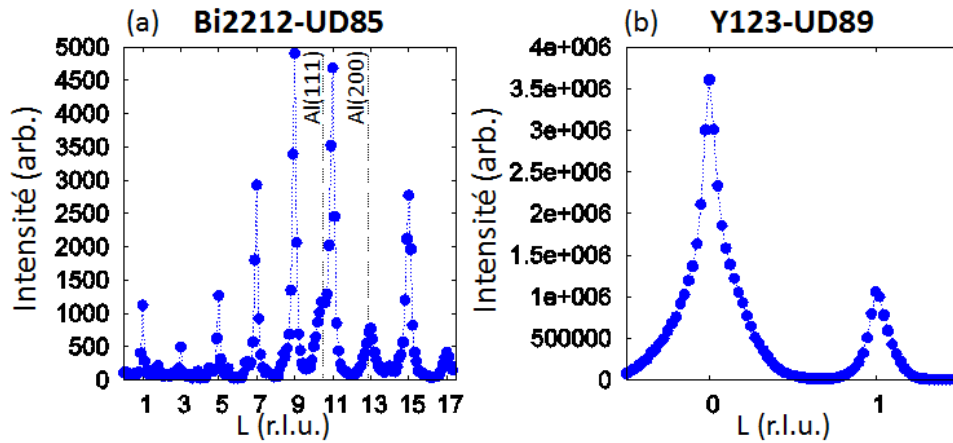


Figure 2.14: Intensités mesurées par diffusion de neutrons en fonction de  $\mathbf{Q} = (1,0,L)$  dans l'échantillon (a) Bi2212-UD85; la mesure a été effectuée à température ambiante dans le canal NSF avec la polarisation X sur 4F1. Les réflexions de Bragg observables possèdent une valeur de L impaire. Les contaminations de poudre d'aluminium, à des valeurs non entières de L et à grand vecteur d'onde, sont matérialisées par des lignes pointillées. (b) Y123-UD89; la mesure a été effectuée à température ambiante sur le diffractomètre 3T1. Les réflexions de Bragg sont observables pour toutes valeurs de L entières.

## 2.4 Détermination de la quantité et caractérisation de la phase verte pour l'étude des systèmes $YBa_2Cu_3O_{6+x}$

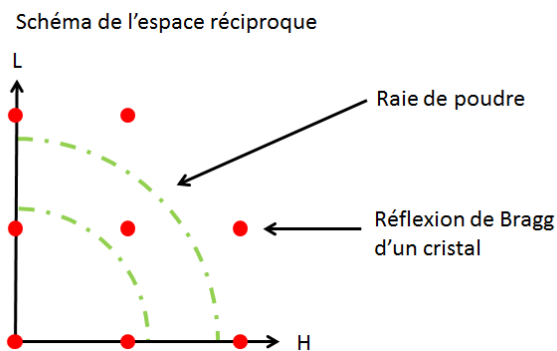


Figure 2.15: Représentation schématique de l'espace réciproque avec en rouge les positions de Bragg. Les lignes pointillées vertes représentent des contaminations de poudre, elles peuvent provenir de l'aluminium (du fait du montage) ou de phase d'impureté (comme la phase verte).

Lors d'une expérience, nous pouvons avoir affaire à plusieurs types de contaminations comme par exemple des raies de poudres. La Fig. 2.15 présente un schéma de l'espace réciproque dans lequel les points rouges correspondent à des réflexions de Bragg du cristal et les lignes vertes, présentes à module de  $\mathbf{Q}$  constant, correspondent à des raies de poudre. Les raies de poudre peuvent être de natures différentes. Nous avons déjà mentionné la poudre d'aluminium (Fig. 2.14.a). Dans le cas des échantillons de la famille Y123, du fait de la méthode de croissance utilisée, nous avons vu qu'ils peuvent contenir de la poudre de phase verte.

Le système Y123 est en effet connu pour avoir une phase non supraconductrice  $Y_2BaCuO_5$  de couleur verte dont l'existence et la structure cristallographique ont été reportées par C. Michel et B. Raveau [139]. Également, des mesures de diffraction de neutrons ont été menées par T. Chattopadhyay [140], mettant en évidence une figure de diffraction caractéristique de la phase verte (que nous détaillerons lors de l'étude structurale de la phase verte). Cette phase présente en plus des propriétés magnétiques [140]. Les mesures de susceptibilité montrent que la phase verte est antiferromagnétique avec une température de Néel  $T_N=28K$ , le moment magnétique effectif est de  $\mu_{eff} = 2\mu_B (= g\sqrt{S(S+1)}\mu_B)$  et sa température de Curie-Weiss  $T_{CW} = 78K$ .

Il est alors crucial de déterminer la quantité de phase verte présente dans nos échantillons et de déterminer son comportement en fonction des différents paramètres utilisés (comme le vecteur d'onde, l'énergie et la température), afin d'être en mesure d'extraire le signal magnétique propre à nos échantillons supraconducteurs. Pour ce faire, nous possédons une pastille compacte de poudre de phase verte de 5,1g. Nous l'avons étudiée sur différents appareils: le diffractomètre 3T1 pour l'étude structurale, le diffractomètre D7 et le spectromètre trois-axes 4F1 pour l'étude magnétique.

### 2.4.1 Étude structurale

Les résultats pour l'étude structurale de la phase verte ont été collectés grâce au diffractomètre 3T1, avec un vecteur d'onde incident  $k_i=2,662\text{\AA}^{-1}$ . Dans un premier temps, nous avons reproduit les mesures de diffraction de neutrons menées dans [140] avec notre pastille compacte de poudre de phase verte. La Fig. 2.16.a présente le signal mesuré en fonction de l'angle  $2\theta$ . Nous rappelons que  $2\theta$  est l'angle entre  $\mathbf{k}_i$  et  $\mathbf{k}_f$  (Fig. 2.4), il est lié au module de  $\mathbf{Q}$  (Eq. 2.40,  $2\theta = 2\sin^{-1}(\frac{\lambda|\mathbf{Q}|}{4\pi})$ ). Cette figure de diffraction présente des pics caractéristiques à des  $2\theta$  donnés. Il est à noter que la position de ces pics dépend de la longueur d'onde à laquelle nous effectuons la mesure. Enfin, comme il s'agit d'une poudre, ces pics d'intensités sont en fait présents à module de  $\mathbf{Q}$  constant (Fig. 2.15) et forment ce que nous appelons des anneaux de poudre.

Ensuite, pour connaître la quantité de phase verte dans nos échantillons, nous avons reproduit cette mesure (à la même longueur d'onde incidente) pour chaque échantillon considéré. Nous l'avons fait pour deux échantillons, Y123-UD89 et Y123-OD92a, Fig. 2.16.b-c. Les tâches jaunes/rouges dans les différentes cartes en couleurs correspondent à des réflexions de Bragg et les lignes verticales rouges (plus ou moins prononcées) correspondent à des raies de poudre. Prenons l'exemple de l'échantillon Y123-UD89, Fig. 2.16.b, nous avons reproduit la coupe en  $2\theta$ , pour plusieurs valeurs d'angle de rotation de l'échantillon sur lui-même, en allant de la réflexion de Bragg  $\mathbf{Q} = (2,0,0)$  à  $\mathbf{Q} = (0,0,6)$ , donnant lieu à la grande carte en couleurs (haut de la Fig. 2.16.b). Nous y comparons en plus, en bas de la Fig. 2.16.b, la carte en couleurs pour la phase verte. Puisque qu'il s'agit d'une poudre uniforme (non texturée), le motif reste le même quel que soit l'angle de rotation de l'échantillon. En comparant les deux cartes, nous remarquons des raies de poudre communes aux deux figures (aux mêmes valeurs de  $2\theta$ ), attestant de la présence de phase verte dans cet échantillon. Pour un même temps de mesure, nous avons pu extraire un rapport d'intensité des raies de 3,6 entre les mesures sur la poudre de phase verte (5,1g) et l'échantillon Y123-UD89

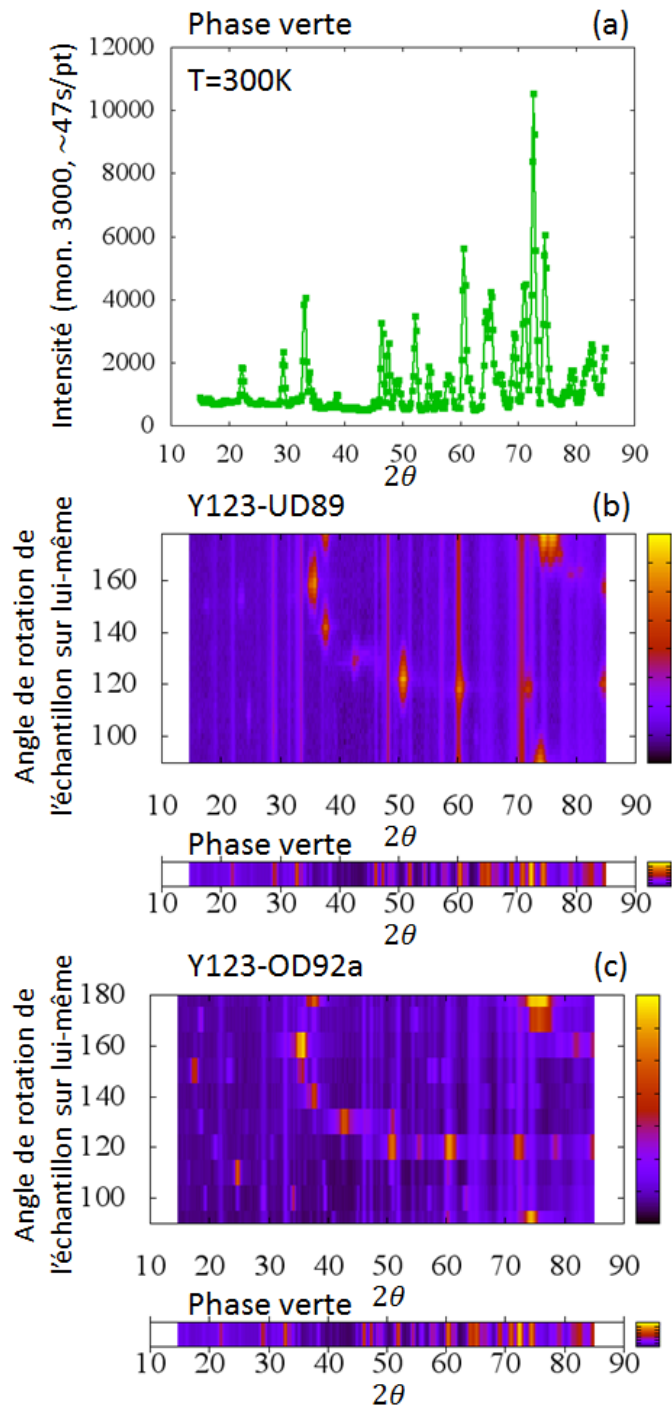


Figure 2.16: (a) Figure de diffraction d'un échantillon de phase verte. (b)-(c) Cartes en couleurs représentant l'intensité mesurée en fonction de  $2\theta = 2\sin^{-1}(\frac{\lambda|Q|}{4\pi})$  pour différents angles de rotation de l'échantillon sur lui-même comparées aux raies de poudre de la phase verte. (b) Y123-UD89 et (c) Y123-OD92a.

( $1,5\text{cm}^3 \equiv 9,4\text{g}$ ). Nous en déduisons que Y123-UD89 contient 1,4g de phase verte. Nous estimons ainsi la quantité de phase verte dans l'échantillon Y123-UD89 à hauteur de 15%. La masse effective de cet échantillon est alors de 8g. De la même manière, nous trouvons un pourcentage de phase verte similaire dans l'échantillon Y123-OD92a, Fig. 2.16.c.

## 2.4.2 Étude magnétique

Dans un second temps, nous nous intéressons aux propriétés magnétiques de la phase verte. Nous rappelons qu'il s'agit d'un système paramagnétique [140].

Nous avons justement étudié le signal paramagnétique provenant de la phase verte grâce au diffractomètre D7 ( $k_i=1,3\text{\AA}^{-1}$ ), qui permet une étude de diffusion quasi-élastique de neutrons. Pour ce faire, nous avons mesuré dans un premier temps les intensités pour les trois polarisations X, Y et Z (Fig. 2.17.a, canal SF) à température ambiante ( $T=300\text{K}$ , dans la limite paramagnétique  $T > 10T_N$ ). Chaque détecteur de l'appareil correspond à une valeur de  $2\theta$  différente. Le signal apparaît le plus faible pour Z (direction de la polarisation hors du plan de diffusion) alors que pour les deux directions de polarisation dans le plan (X et Y), il est plus élevé. De plus, le signal apparaît décroissant pour toutes les polarisations. Nous notons des pics d'intensité à des valeurs de  $2\theta$  particulières quelle que soit la polarisation. Ils peuvent provenir d'une correction insuffisante du rapport de flipping obtenu avec le quartz. Ensuite, en appliquant l'Eq. 2.49, nous obtenons le signal paramagnétique  $S_{mag}(= 2I_X^{SF} + 2I_Y^{SF} - 4I_Z^{SF})$ , Fig. 2.17.b, en fonction de  $2\theta$ . Nous observons une allure globalement décroissante. La distribution de points observée est probablement due à une correction insuffisante de l'efficacité des détecteurs obtenue avec le vanadium. Cette quantité est de l'ordre de 0,1barns. Pour comparaison, l'intensité est de l'ordre de 4barns pour la réflexion de Bragg nucléaire  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$  dans le système Y123. La phase verte est alors négligeable par rapport à une réflexion de Bragg forte (signal élastique). Cependant, en dehors, l'intensité pour le système Y123 est a priori plus faible, la phase verte devient donc plus importante et non négligeable pour l'analyse. La courbe verte de la Fig. 2.17.b correspond au facteur de forme magnétique du cuivre au carré. Pour calculer ce facteur de forme, nous avons utilisé la formule d'après [141] où les termes d'ordre supérieur de la fonction de Bessel  $j$  sont considérés (cas asphérique, renforcé par les effets de covalence):

$$f(\mathbf{Q}) = \langle j_0 \rangle - \frac{5}{7}(1 - q_i^2) \langle j_2 \rangle \quad (2.52)$$

avec  $\langle j_0 \rangle = A_0 e^{-a_0 s^2} + B_0 e^{-b_0 s^2} + C_0 e^{-c_0 s^2} + D_0$  et  $\langle j_2 \rangle = (A_2 e^{-a_2 s^2} + B_2 e^{-b_2 s^2} + C_2 e^{-c_2 s^2} + D_2) s^2$  où  $s = \sin(2\theta/2)/\lambda = |\mathbf{Q}|/4\pi$ . Les valeurs des  $A_i$ ,  $a_i$ ,  $B_i$ ,  $b_i$ ,  $C_i$ ,  $c_i$  et  $D_i$  sont prises d'après [142]. La chute de ce facteur de forme magnétique correspond bien à la décroissance de  $S_{mag}$ .

De plus, il est intéressant d'ajouter que la contribution de phase verte est moindre lorsque la température diminue. En effet, sur le diffractomètre D7 nous intégrons en énergie et l'intensité mesurée est proportionnelle à  $I \propto \int S(\mathbf{Q}, \omega) d\omega \propto \int \frac{1}{1 - e^{-\hbar\omega/k_B T}} \frac{\chi''(\omega)}{(g\mu_B)^2} d\omega$  (Eq. 2.21). Dans la limite  $k_B T > \omega$ , le facteur de balance détaillée  $\frac{1}{1 - e^{-\hbar\omega/k_B T}}$  devient  $\frac{k_B T}{\omega}$  et donc  $I \propto k_B T \int \frac{\chi''(\omega)}{\omega (g\mu_B)^2} d\omega \propto k_B T \frac{\chi'(\omega=0)}{(g\mu_B)^2}$ . Comme  $\chi'(\omega=0) \propto \frac{1}{3} \frac{\mu_{eff}^2}{T+T_{CW}} \propto \frac{1}{3} \frac{S(S+1)(g\mu_B)^2}{T+T_{CW}}$ , nous obtenons  $I \propto \frac{T}{T+T_{CW}}$  avec  $T_{CW} = 78\text{K}$

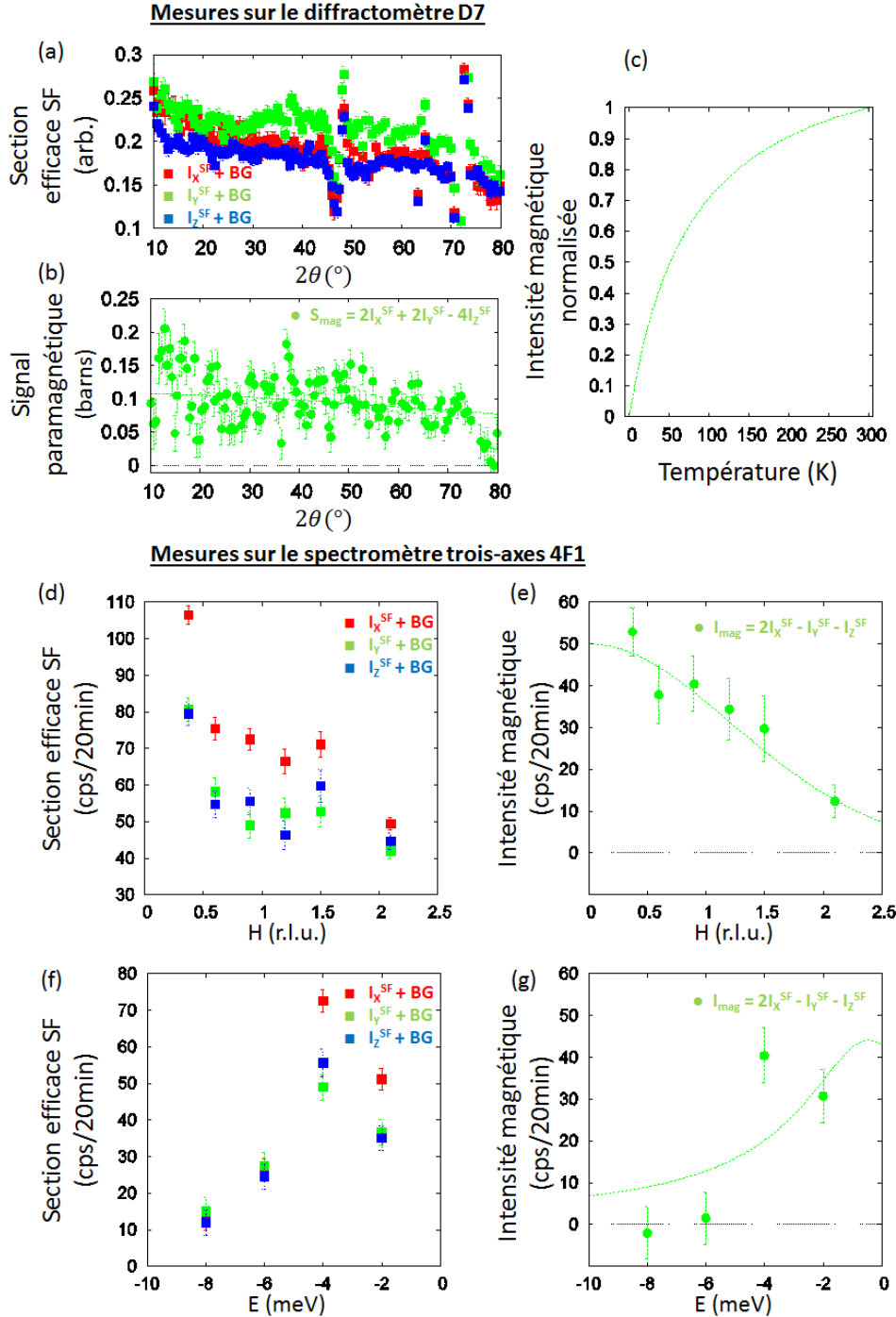


Figure 2.17: (a)-(b) Mesures effectuées sur le diffractomètre D7 (à  $T=300\text{K}$ ). (a) Sections efficaces SF pour les polarisations X, Y et Z en fonction de  $2\theta$ . (b) Signal paramagnétique  $S_{mag}$  (Eq. 2.49) en fonction de  $2\theta$ . (c) Dépendance en température du signal magnétique dans la phase verte  $\propto \frac{T}{T+T_{CW}}$  avec  $T_{CW} = 78\text{K}$ . Cette courbe est extrapolée jusqu'à basse température, nous négligeons le fait que la phase verte s'ordonne en dessous de  $T_N=28\text{K}$ . (d)-(g) Mesures effectuées sur le spectromètre trois-axes 4F1 (à  $T=300\text{K}$ ). (d) Sections efficaces SF pour les polarisations X, Y et Z en fonction du vecteur d'onde  $\mathbf{Q} = (H,0,0)$  à  $E=-4\text{meV}$ . (e) Intensité magnétique (extrait après analyse de polarisation, Eq. 2.32) en fonction de  $\mathbf{Q} = (H,0,0)$  à  $E=-4\text{meV}$ . (f) Sections efficaces SF pour les polarisations X, Y et Z en fonction de l'énergie  $E$  à  $\mathbf{Q} = (0.9,0,0)$ . (g) Intensité magnétique (extrait après analyse de polarisation, Eq. 2.32) en fonction de  $E$  à  $\mathbf{Q} = (0.9,0,0)$ . Nous rappelons que pour une poudre nous avons uniquement accès au module du vecteur d'onde ( $2\theta \propto |\mathbf{Q}|$ ). Ici, nous reportons le signal magnétique pour des vecteurs d'onde  $\mathbf{Q}$  calculés pour un échantillon de la famille Y123.

[140]. La Fig. 2.17.c illustre cette décroissance, nous devrions perdre 30% de contribution de phase verte en passant de  $T = 300\text{K}$  à  $100\text{K}$ .

Afin de déterminer dans quelle gamme d'énergie la phase verte se développe, nous avons complété notre étude du signal magnétique à température ambiante ( $T=300\text{K}$ ) sur le spectromètre trois-axes 4F1 ( $k_i=2,57\text{\AA}^{-1}$ ), qui nous permet de réaliser des mesures de diffusion inélastique de neutrons. Nous rappelons que pour une poudre nous avons uniquement accès au module du vecteur d'onde ( $2\theta \propto |\mathbf{Q}|$ ). Par la suite, nous reporterons le signal magnétique pour des vecteurs d'onde  $\mathbf{Q}$  calculés pour un échantillon de la famille Y123.

La Fig. 2.17.d montre l'évolution, en fonction du vecteur d'onde  $\mathbf{Q} = (H,0,0)$  ( $H$  entre 0 et 2.5 r.l.u.), des sections efficaces dans le canal SF pour les polarisations X, Y et Z. Les trois quantités diminuent plus le vecteur d'onde est grand et l'intensité maximale apparaît pour la polarisation X (comme attendu d'après l'Eq. 2.29) quel que soit  $H$ . Le signal magnétique, Fig.2.17.e, est extrait après analyse de polarisation (Eq. 2.32):  $I_{mag} = 2I_X^{SF} - I_Y^{SF} - I_Z^{SF}$ . Cette mesure a été effectuée pour  $E=-4\text{meV}$ , correspondant à la gamme d'énergie que nous étudions dans les systèmes Y123. Nous observons qu'à énergie non nulle, le signal magnétique lié à la phase verte est important sur une large gamme de vecteur d'onde. Nous reportons à nouveau le facteur de forme magnétique du cuivre au carré, dont l'évolution est en accord avec le signal magnétique mesuré.

Les Fig. 2.17.f-g, quant à elles, montrent l'évolution du signal mais cette fois-ci en fonction de l'énergie  $E$  (en meV). Nous nous sommes placés à une position  $2\theta$  correspondant à une position légèrement en dehors de la réflexion de Bragg, à  $\mathbf{Q} = (0.9,0,0)$ , pour un échantillon de la famille Y123 et nous avons étudié quatre valeurs d'énergie: -8, -6, -4 et -2 meV. Les sections efficaces dans le canal SF pour les trois polarisations X, Y et Z augmentent lorsque nous nous approchons de 0meV, Fig. 2.17.f. Ces trois quantités sont confondues pour -8meV et -6meV. Par opposition, à -4meV et -2meV, l'intensité pour la polarisation X est plus élevée. Après analyse de polarisation (Eq. 2.32), nous obtenons le signal magnétique, Fig. 2.17.g. Nous remarquons que la contribution magnétique de la phase verte est faible voir nulle pour des énergies inférieures à -6meV. Pour -4meV et -2meV, nous observons un signal magnétique notable. D'après [114], un signal paramagnétique (quasi-élastique) évolue comme une fonction lorentzienne de la forme  $\frac{\Gamma}{\Gamma^2 + E^2}$ . En tenant compte de la résolution, nous ajustons le signal magnétique par le produit de la lorentzienne avec  $k_f^3 \cotan(\theta_f)$  (Eq. 2.26),  $\Gamma$  est de 3meV.

Nous en retenons que les échantillons Y123-UD89 et Y123-OD92a de la famille Y123 contiennent de la phase verte, de l'ordre de 15% pour les deux échantillons. Il s'agit d'un taux non négligeable de phase verte. Lorsque nous étudions des signaux intenses et localisés en  $\mathbf{Q}$ , l'impact sur les conclusions physiques reste faible. Il est nécessaire d'y prêter une attention particulière lorsque nous étudions des signaux très larges et diffus (notamment lors d'une diffusion inélastique à basse énergie).



Table 2.2: Les composés à base d'Y

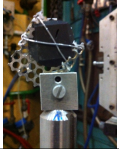


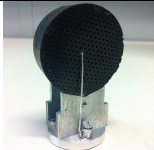
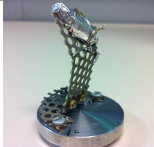
Montage	Nom	T <sub>c</sub>	Dopage	Masse	Références
	Y123-UD89 ( $YBa_2Cu_3O_{6.85}$ )	89K	0,15	8g	[125–127]
	Y123-UD61 ( $YBa_2Cu_3O_{6.6}$ )	61K	0,12	10,8g	[30, 128]
	Y123-UD62 ( $YBa_2Cu_3O_{6.6}$ )	62K	0,12	9g	
	Y123-UD63 ( $YBa_2Cu_3O_{6.6}$ démâclé)	63K	0,12	3g	[30, 84]
	Y123-OD92a ( $YBa_2Cu_3O_{6.97}$ )	92K	0,17	85g	
	Y123-OD92b ( $YBa_2Cu_3O_{6.97}$ )	92K	0,17	4,2g	[129]



Table 2.3: Les composés à base de Bi



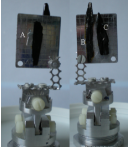

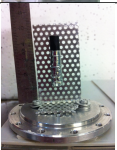

Montage	Nom	T <sub>c</sub>	Dopage	Masse	Références
	Bi2212-OD87	87K	0,18	2g	[34, 132, 134]
	Bi2212-OD70	70K	0,22	2g	[34, 132, 135]
	Bi2212-UD85	85K	0,13-0,14	0,35g	[34, 132]
	Bi2212-OP91	91K	0,16	5,5g	[136]
	Pb-Bi2201-UD5	5K	0,14	7g	

Table 2.4: Les composés à base de Hg

Montage	Nom	T <sub>c</sub>	Dopage	Masse	Références
	Hg1201-UD71	71K	0,095	2g	[138]

# Chapitre 3

## Étude du magnétisme lié à l'ordre magnétique à $q=0$ dans un échantillon sous-dopé de référence: $YBa_2Cu_3O_{6.6}$

### Sommaire

---

<b>3.1 L'ordre magnétique à <math>q=0</math> observé sur le diffractomètre D7</b> . . . . .	<b>74</b>
3.1.1 Reproductibilité des mesures effectuées sur le spectromètre trois-axes 4F1 . . . . .	74
3.1.2 Évolution en température des composantes du moment magnétique . . . . .	77
3.1.3 Étude de la diffusion diffuse . . . . .	80
<b>3.2 L'ordre magnétique à <math>q=0</math> et son lien avec l'anisotropie a-b</b> . . . . .	<b>81</b>
3.2.1 Résultats expérimentaux . . . . .	81
3.2.2 Modélisation . . . . .	86
<b>3.3 L'ordre magnétique à <math>q=0</math> et les fluctuations antiferromagnétiques</b> . . . . .	<b>88</b>
3.3.1 Les fluctuations AF dans l'échantillon Y123-UD61 . . . . .	88
3.3.2 Les fluctuations AF dans l'échantillon Hg1201-UD71 . . . . .	91
3.3.3 Comparaison des familles Y123 et Hg1201 . . . . .	94
<b>3.4 Les modes plats dans la famille Y123</b> . . . . .	<b>96</b>
<b>3.5 Conclusion</b> . . . . .	<b>99</b>

---

Dans ce chapitre, nous nous intéressons à trois échantillons sous-dopés de la famille Y123 (mâclé ou démâclé) de même composition  $YBa_2Cu_3O_{6.6}$  (Tab. 2.3). Ils possèdent un dopage de l'ordre de  $p \sim 0,12$ , et  $T_c \sim 61-62K$  pour les échantillons mâclés alors que  $T_c \sim 63K$  pour l'échantillon démâclé. De nombreuses sondes expérimentales et de nombreux phénomènes (les fluctuations antiferromagnétiques, un ordre magnétique à  $q=0$ , un ordre de charge) ont été étudiés pour cette composition. Quelles sont leurs caractéristiques? Y-a-t-il un lien entre ces différents effets? De plus, nous comparerons les données obtenues pour cette composition d'Y123 avec l'étude de la famille Hg1201.

### 3.1 L'ordre magnétique à $q=0$ observé sur le diffractomètre D7

#### 3.1.1 Reproductibilité des mesures effectuées sur le spectromètre trois-axes 4F1

L'ordre magnétique à  $q=0$  a été mis en évidence pour la première fois par B. Fauqué et al [30] lors de mesures de diffusion de neutrons polarisés sur le spectromètre trois-axes 4F1. Pour l'échantillon mâclé Y123-UD61 ( $T_c=61K$ ), il est établi que la température d'apparition de l'ordre est de  $T_{mag}=250K$  et l'inclinaison du moment magnétique est estimée à  $45^\circ \pm 20^\circ$  [108].

Dans le but de confirmer l'existence de l'ordre magnétique à  $q=0$  sur un autre instrument, nous avons réalisé des mesures de diffusion de neutrons polarisés avec l'échantillon Y123-UD61 sur le diffractomètre D7. L'échantillon est aligné le plan de diffusion  $[1,0,0]/[0,0,1]$ . Nous avons ainsi accès aux vecteurs d'onde de la forme  $\mathbf{Q} = (H,0,L)$ . Sur le diffractomètre D7, pour une position de l'échantillon donnée, nous mesurons toutes les valeurs de  $2\theta$  accessibles grâce aux multi-détecteurs, ce qui définit une trajectoire dans l'espace réciproque. La Fig. 3.1 représente la trajectoire (ligne rouge) dans l'espace réciproque étudié lors de nos mesures de diffraction sur D7, elle passe notamment par  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$  (point bleu), où le signal magnétique est connu pour être le plus grand dans l'échantillon Y123-UD61 [32, 108].

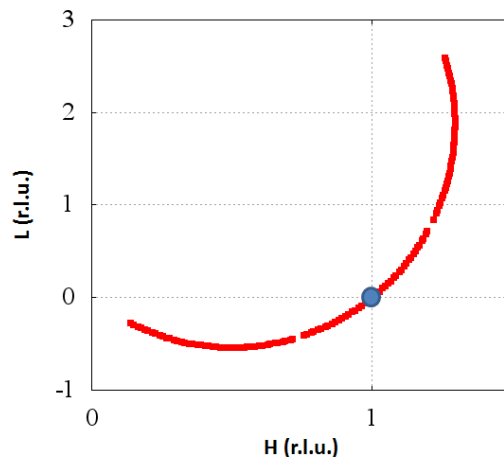


Figure 3.1: Schéma de l'espace réciproque étudié sur le diffractomètre D7 avec l'échantillon Y123-UD61.

Dans les conditions de mesures choisies ( $k_i = 1, 3\text{\AA}^{-1}$ ), D7 possède une résolution longitudinale quatre fois meilleure par rapport au spectromètre 4F1, et présente un flux élevé. Ce diffractomètre est équipé d'un mode de polarisation fixe XYZ [120] avec Z vertical et X et Y pointant dans le plan de diffusion, Fig 2.10.b (Chapitre 2). Pour les trois polarisations X, Y et Z, les canaux SF et NSF ont été systématiquement mesurés.

Dans le cas de l'étude d'une réflexion de Bragg, d'après la Fig. 2.8, il existe une forte fuite de polarisation du canal NSF vers SF. Ainsi les intensités mesurées dans le canal SF, peuvent se décomposer en:  $I_\alpha^{\text{SF}} = I_{\text{mag},\alpha} + I_\alpha^{\text{NSF}}/\text{FR}^0 + \text{BG}$ , où  $I_{\text{mag}}$  est le signal magnétique associé à l'ordre magnétique à  $q=0$ ,  $I^{\text{NSF}}$  est l'intensité mesurée dans le canal NSF,  $\text{FR}^0$  est le rapport de flipping de référence et BG est le bruit de fond. La réflexion de Bragg  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$  est intense, nous négligerons le bruit de fond.

Afin d'extraire uniquement le signal magnétique  $I_{\text{mag}}$ , nous reportons sur les Fig. 3.2.a-c les dépendances en température des intensités mesurées autour de la réflexion de Bragg  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$ , pour les trois polarisations X, Y et Z dans les canaux SF ( $I_\alpha^{\text{SF}}$ ) et NSF divisée par le rapport de flipping  $\text{FR}^0$  déterminé à haute température ( $I_\alpha^{\text{NSF}}/\text{FR}^0$ ). Afin d'obtenir un meilleur contraste des intensités, nous utilisons la méthode de moyenne que nous avons présentée dans le Chapitre 2 (Fig. 2.11) sur les trois détecteurs centrés autour de  $H=1$ . Nous remarquons que toutes les quantités décroissent en température. Notamment, la décroissance de l'intensité de Bragg nucléaire (NSF) est principalement due au facteur de Debye-Waller (qui traduit le déplacement des atomes par rapport à leur position d'équilibre, Eq. 2.8). De plus, le refroidissement et le réchauffement peuvent provoquer des petits déplacements de l'échantillon en raison de la contraction et de la dilatation thermique des différents éléments comme par exemple la canne échantillon. La décroissance de l'intensité NSF peut être amplifiée à cause du déplacement de l'échantillon en température.

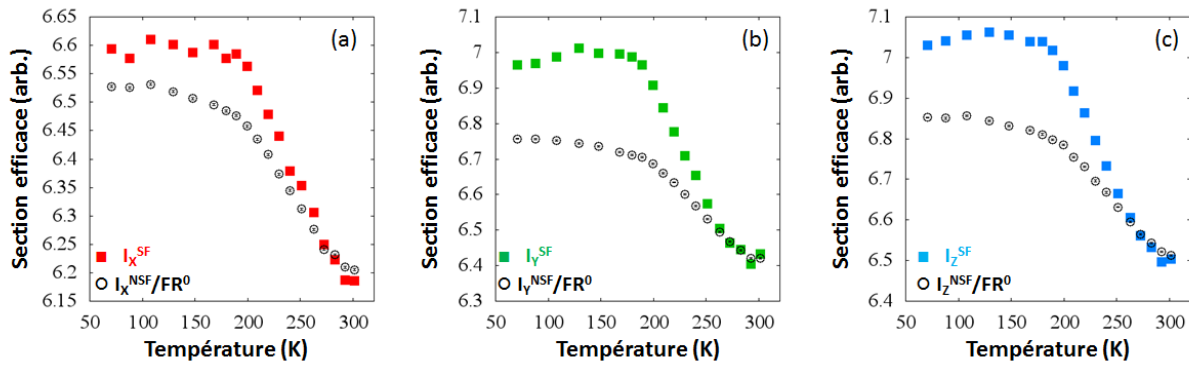


Figure 3.2: Y123-UD61. Mesures effectuées sur le diffractomètre D7. Dépendances en température des intensités mesurées dans les canaux SF (carrés pleins) et NSF/ $\text{FR}^0$  (cercles noirs vides) sur la réflexion de Bragg  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$  pour les 3 polarisations (a)  $\text{FR}_X^0=44,1$ , (b)  $\text{FR}_Y^0=42,6$  et (c)  $\text{FR}_Z^0=42$ .

Nous observons un surcroît d'intensité dans le canal SF sous  $\sim 250\text{K}$ , quelle que soit la polarisation  $\alpha$ . Cette température notée  $T_{\text{mag}}$  correspond à l'apparition du signal magnétique  $I_{\text{mag},\alpha}$  ( $I_{\text{mag},\alpha} = I_\alpha^{\text{SF}} - I_\alpha^{\text{NSF}}/\text{FR}_\alpha^0$ ). La valeur de  $T_{\text{mag}} \sim 250\text{K}$  est tout à fait en accord avec les résultats de l'étude menée par B. Fauqué et al [30]. A basse température, nous remarquons également que

le maximum d'intensité magnétique apparaît pour la polarisation Y ( $I_{mag,Y}$ ). Pour la polarisation Z,  $I_{mag,Z}$  est du même ordre de grandeur alors que pour la polarisation X,  $I_{mag,X}$  est beaucoup plus faible. L'analyse de polarisation (définie par les Eq. 2.46-2.48) est respectée. La somme des trois  $I_{mag,\alpha}$  est égale à deux fois l'intensité magnétique totale et le facteur de structure nucléaire au carré ( $|F_N|^2$  donné par l'Eq. 2.8) de la réflexion de Bragg nucléaire  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$  est de 4barns. En appliquant un simple coefficient de proportionnalité, nous pouvons convertir l'intensité magnétique en unités absolues. Nous trouvons que l'intensité magnétique est de 4mbarns pour  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$ . D'après notre étude de la famille Bi2212 [132] (que nous détaillerons au Chapitre 5), la décroissance en L de l'intensité magnétique suit une forme caractéristique commune à toutes les familles de cuprates. Notamment, l'intensité magnétique est réduite d'un facteur trois lorsque l'on passe de  $L=0$  à  $L=1$  pour le système Y123. Nous reportons la dépendance en température de l'intensité magnétique ainsi déterminée à  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$  sur la Fig. 3.3 (en noir) pour pouvoir la comparer directement à la mesure effectuée sur le même échantillon à  $\mathbf{Q} = (1,0,1)$  (en rouge) par B. Fauqué et al sur le spectromètre 4F1 [30] (Fig. 1.11.c-d, échantillon B).

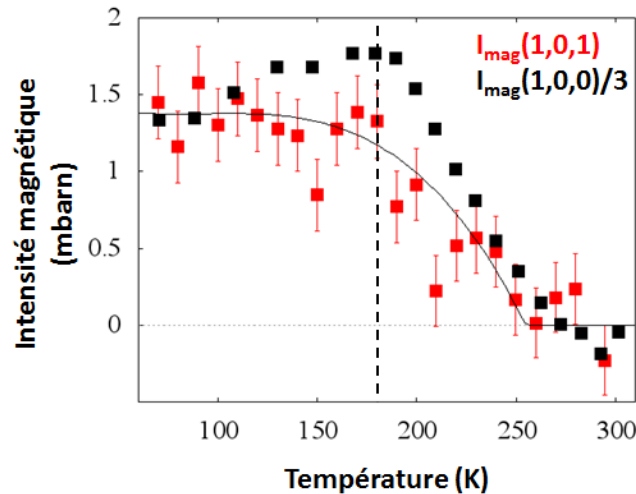


Figure 3.3: Y123-UD61. Dépendance en température de l'intensité magnétique (en mbarns) mesurée à  $\mathbf{Q} = (1,0,1)$  (extraite d'après [30]) comparée à celle mesurée à  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$  sur D7 divisée par un facteur 3. D'après [132], l'intensité magnétique est réduite d'un facteur trois lorsque l'on passe de  $L=0$  à  $L=1$ . De plus, les intensités sont converties en unités absolues en utilisant un simple coefficient de proportionnalité entre les intensités mesurées (SF et NSF) et le facteur de structure au carré pour une réflexion de Bragg nucléaire de référence (pour  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$ ,  $|F_N|^2=4\text{barns}$ ). La ligne verticale est à 180K.

Les deux dépendances en température sont globalement similaires, le signal apparaît sous  $T_{mag} \sim 250\text{K}$  et augmente à basse température. Nous avons donc reproduit sur le diffractomètre D7 l'observation de l'ordre magnétique à  $q=0$  pour l'échantillon Y123-UD61. Toutefois, le profil de la dépendance en température n'est pas strictement le même. Les mesures sur D7 indiquent une ré-entrance (correspondant à une diminution du signal magnétique) en dessous de  $\sim 180\text{K}$  qui n'est pas observable d'après les résultats obtenus sur 4F1. Est-ce un effet intrinsèque ou extrinsèque? Il est à noter que le changement de pente est visible dans les canaux SF et NSF sur

les Fig. 3.2.a-c. La soustraction pourrait amplifier l'effet. Les mesures sur D7 présentent une meilleure statistique pouvant expliquer pourquoi l'effet n'a pas pu être observé précédemment sur 4F1. Nous pouvons également nous demander si cet effet est général ou bien spécifique à  $L=0$ . L'origine d'un tel phénomène reste toutefois à être identifié. Même s'il n'y a pas de ré-entrance d'après les mesures effectuées sur 4F1, nous observons tout de même un changement de pente de l'intensité magnétique autour de 180K. Pour un échantillon de même dopage, un effet Kerr anormal a été reporté autour de  $T_K=150K$  [50]. L'observation d'un effet Kerr au sein d'un état brisant la symétrie par renversement du temps est possible [143]. Nos mesures de diffusion de neutrons polarisés mettent en évidence un ordre magnétique à  $q=0$  brisant la symétrie par renversement du temps et ces nouvelles mesures sur D7 pourraient indiquer un phénomène dans la même gamme de température dans laquelle un effet Kerr est observé. Cette observation suggère une possible compétition entre l'ordre magnétique à  $q=0$  et d'autres états observés au sein de la phase de pseudo-gap. Il est nécessaire de tester la reproductibilité de cette observation sur D7 avec d'autres compositions de la famille Y123 ou sur 4F1 avec une meilleure statistique.

En considérant le motif magnétique associé à la phase CC- $\theta_2$  des boucles de courant (qui est compatible avec nos mesures) et dans le cas d'un ordre magnétique longue portée dans un système homogène, nous estimons le moment magnétique grâce à l'Eq. 2.41 (Chapitre 2). Dans cette équation,  $\beta(L)$  représente le facteur de structure magnétique le long de l'axe  $c$ , il est lié à la structure magnétique à l'intérieur de la bicouche dans le cas du système Y123. La dépendance en  $L$  de l'ordre magnétique à  $q=0$  (mesuré sur trois réflexions de Bragg  $(1,0,L)$  différentes pour la famille Y123 [30–32]) indique une décroissance rapide lorsque  $L$  augmente. Cette évolution a été interprétée comme un couplage le long de  $c$  entre les moments magnétiques. Il pourrait être de nature ferromagnétique (les deux plans au sein de la bicouche pourraient être en phase) puisque la plus forte intensité magnétique est observée pour  $L=0$ . Par conséquent, une forme pour  $\beta(L)$  serait  $2\cos(\pi\frac{d}{c}L)$  avec  $d=0,28c=3,3\text{\AA}$  la distance entre deux plans  $CuO_2$  pour le système Y123 [108]. Nous considérons également une valeur moyenne pour le facteur de forme magnétique,  $f(Q)^2 = 0,5$ . Dans ces hypothèses, nous estimons un moment magnétique de l'ordre de  $0.1\mu_B$  pour l'échantillon  $YBa_2Cu_3O_{6.6}$  [108]. Ce moment magnétique, faible, a donc pu être détecté sur deux types d'instruments différents.

### 3.1.2 Évolution en température des composantes du moment magnétique

Dans le cas d'un système magnétique ordonné, nous définissons les deux composantes du moment magnétique  $M_{ab}$  dans le plan et  $M_c$  hors plan (Fig. 1.13.a). Nous reprenons les Eq. 2.46-2.48 valables sur D7 dans le plan de diffusion  $[1,0,0]/[0,0,1]$ :

$$I_{mag,X} \propto \frac{1}{2}M_{ab}^2 + I_Z^{SF} \cos^2\beta \quad (3.1)$$

$$I_{mag,Y} \propto \frac{1}{2}M_{ab}^2 + I_Z^{SF} \sin^2\beta \quad (3.2)$$

$$I_{mag,Z} \propto (1 - q_l^2)M_c^2 + \frac{q_l^2}{2}M_{ab}^2 \quad (3.3)$$

D'après l'analyse de polarisation,  $(I_{mag,Y} - I_{mag,X})/I_{mag,Z} = \sin^2\beta - \cos^2\beta$  donne une constante. Pour  $\mathbf{Q} = (1,0,L=0)$ ,  $q_l = \frac{2\pi}{c}L/|\mathbf{Q}|=0$  et  $\beta = \gamma + 90^\circ - \frac{2\theta}{2} \sim 74^\circ$ . En effet  $\gamma = 24^\circ$  [121] et  $\frac{2\theta}{2} = \sin^{-1}(\frac{\lambda|\mathbf{Q}|}{4\pi}) \sim 40^\circ$ . Ainsi  $(I_{mag,Y} - I_{mag,X})/I_{mag,Z} \sim 0,8$ . La Fig. 3.4.a présente la dépendance en température de  $(I_{mag,Y} - I_{mag,X})/I_{mag,Z}$  obtenu d'après les Fig. 3.2.a-c. Cette quantité est constante et égale à 0,8 de 70K à 180K (la règle de somme est respectée), elle diminue et s'écarte sensiblement de cette valeur entre 180K et 250K.

Quel que soit l'angle  $\beta$ , la combinaison des intensités pour les différentes polarisations permet d'étudier séparément les deux composantes du moment magnétique.  $I_{mag,X} + I_{mag,Y} - I_{mag,Z}$  correspond à  $M_{ab}^2$  et  $I_{mag,Z}$  donne  $M_c^2$ . Les Fig. 3.4.b-c présentent les deux quantités  $M_c^2$  et  $M_{ab}^2$ , ainsi déterminée, en fonction de la température. Les deux composantes se développent à mesure que nous baissons la température. Toutefois cette évolution n'est pas continue, et présente une cassure autour de  $T \sim 180K$ . Comme discuté précédemment, nous observons une ré-entrée du signal magnétique, elle apparaît légèrement plus marquée pour  $M_{ab}$ . De plus, la composante hors plan apparaît plus élevée que celle dans le plan. Le rapport entre  $M_c^2$  et  $M_{ab}^2$  est de 1,75 à basse température. D'après l'Eq. 1.1, nous pouvons définir un angle d'inclinaison du moment magnétique par rapport à l'axe c par  $\tan(\theta) = M_{ab}/M_c$ . Ainsi, nous pouvons non seulement extraire la valeur de cet angle mais aussi sa dépendance en température, Fig. 3.4.d. Elle semble diminuer plus la température est basse. D'après l'analyse de polarisation, cet effet semble réel. De manière générale,  $\theta = 37^\circ \pm 6^\circ$  en dessous de  $T_{mag}=250K$ . Au dessus de cette température, les deux composantes sont comparables, elles sont très faibles puis tendent vers 0 (puisque nous avons déterminé  $FR^0$  pour qu'à haute température le signal magnétique soit nul). L'angle  $\theta$  est défini comme étant le rapport de  $M_{ab}$  sur  $M_c$ , comme  $M_c$  tend vers 0 à haute température, nous ne pouvons pas déterminer  $\theta$  au dessus de 250K. La valeur de l'inclinaison du moment magnétique à basse température est tout à fait compatible avec la valeur  $35^\circ \pm 7^\circ$  établi d'après les études précédentes à  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$  [32, 108]. A  $\mathbf{Q} = (1,0,1)$ , la valeur est de  $55^\circ \pm 7^\circ$  [30, 108], correspondant à un rapport entre  $M_c^2$  et  $M_{ab}^2$  de l'ordre de 0,5. Dans un cas, la composante dans le plan est plus faible que celle hors plan, dans l'autre cas, c'est l'inverse. Pour un même échantillon, l'angle  $\theta$  mesuré par diffusion de neutrons (dépendant du rapport entre les deux composantes) varie en fonction de L. Cela indique un facteur de structure particulier le long de l'axe c.

Quelle que soit la nature de la structure magnétique responsable de la diffusion de neutrons, nos résultats confirment l'existence d'un moment magnétique incliné dans l'échantillon Y123-UD61 pour  $L=0$ . La plupart des modèles interprète l'origine de l'inclinaison du moment magnétique en ne considérant que les positions de Bragg avec  $L=1$  [56, 112, 113]. Notre observation est valable quelque soit L et exclue tous les modèles où  $\theta$  est nul à  $L=0$ . Dans le cas du modèle des multipôles magnéto-électriques [113], le moment magnétique dipolaire et le quadrupole magnéto-électrique des atomes de Cu sont en accord avec la diffusion de neutrons à la position de Bragg  $\mathbf{Q} = (1,0,1)$  mais n'impliquent pas d'inclinaison pour  $L=0$ . Également, dans le modèle des moments orbitaux sur les atomes d'oxygène [112], il existe deux facteurs magnétiques comparables (fonctions de Bessel  $j_0$  et  $j_2$ ) pour des vecteurs d'onde plus grands que  $\mathbf{Q} = (1,0,1)$  impliquant une inclinaison du moment magnétique. Pour des vecteurs d'onde dont le module  $|\mathbf{Q}|$  est plus



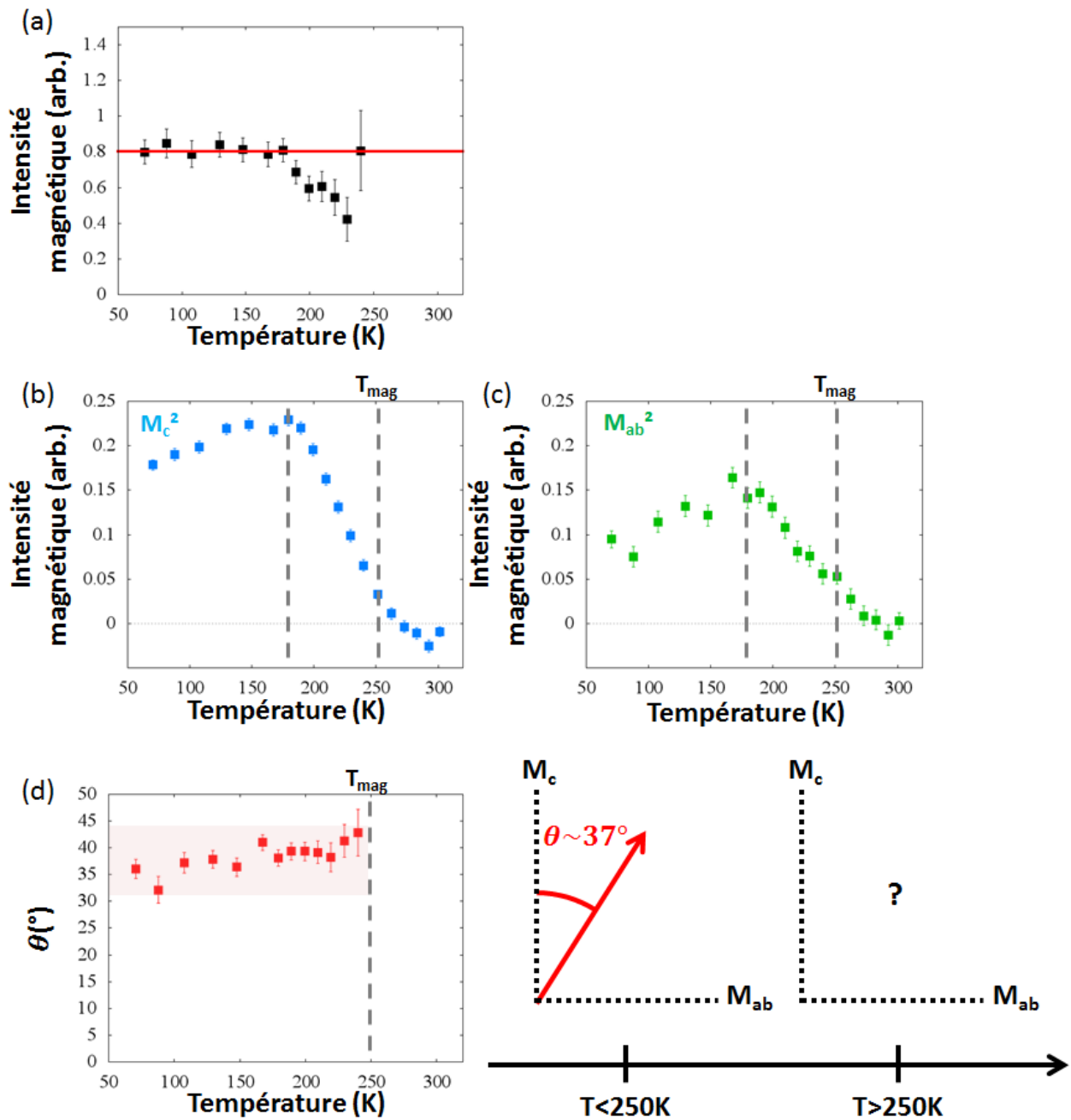


Figure 3.4: Y123-UD61. Mesures effectuées sur le diffractomètre D7. (a) Dépendance en température de la quantité  $(I_{mag,Y} - I_{mag,X})/I_{mag,Z}$  mesurée, la ligne rouge correspond à cette même quantité mais calculée  $\sin^2\beta - \cos^2\beta \sim 0,8$ . (b)-(c) Dépendances en température des composantes du moment magnétique (a) hors plan  $M_c^2$  et (b) dans le plan  $M_{ab}^2$ . (c) Dépendance en température de l'inclinaison du moment magnétique et sa représentation schématique.

faible (comme par exemple  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$ ),  $j_0$  est beaucoup plus grand que  $j_2$ , dans ce cas le moment magnétique tend à être le long de  $c$  pour  $L=0$ . Enfin, dans le cas du modèle de boucles de courant incluant les oxygènes apicaux [56], les moments magnétiques sont inclinés par construction. Notamment, la composante planaire ne contribue pas à  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$ . Ces trois modèles ne sont donc pas compatibles avec nos observations.

### 3.1.3 Étude de la diffusion diffuse

Nous avons étudié le signal en dehors de la réflexion de Bragg  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$  en restant le long de la même trajectoire (ligne rouge Fig. 3.1). Nous avons appliqué l'analyse de polarisation généralement utilisée pour analyser les résultats de diffusion diffuse obtenus sur D7,  $S_{mag} = 2I_X^{SF} + 2I_Y^{SF} - 4I_Z^{SF}$  (Eq. 2.49). La Fig. 3.5 montre cette quantité en fonction de  $H$  (projection de la trajectoire selon  $H$ ), pour trois températures 70K, 250K ( $T_{mag}$ ) et 300K.

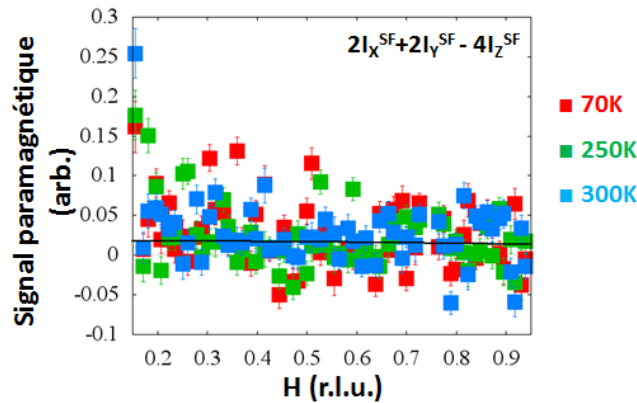


Figure 3.5: Y123-UD61. Mesures effectuées sur le diffractomètre D7. Signal paramagnétique  $S_{mag} = 2I_X^{SF} + 2I_Y^{SF} - 4I_Z^{SF}$  en fonction de  $H$ , aux trois températures 70K, 250K ( $T_{mag}$ ) et 300K.

Quelle que soit la température, nous remarquons que seuls quelques points sortent de la distribution d'intensité. Pour des valeurs faibles de  $H$ , du fait de la moins bonne efficacité des détecteurs, l'intensité peut être anormalement élevée. De plus, il existe une contamination provenant de poudre de  $CuO$  dont la température d'ordre antiferromagnétique est  $T_N=230K$  [144]. Elle est visible autour de  $H=0,5$ . Globalement, le signal paramagnétique apparaît constant. En mettant à la même échelle le signal paramagnétique mesuré pour la phase verte (d'après la Fig. 2.17.b), nous pouvons reporter la contamination de phase verte dans cet échantillon (ligne noire de la Fig. 3.5). Enfin, dans la statistique de nos mesures l'évolution en fonction de  $H$  de ce signal ne semble pas présenter d'effet particulier en température. Ainsi, l'étude de la diffusion diffuse ne nous apporte aucune information supplémentaire concernant l'échantillon Y123-UD61.

## 3.2 L'ordre magnétique à $q=0$ et son lien avec l'anisotropie a-b

Le système Y123 est orthorhombique du fait de l'ajout d'oxygène. Une anisotropie a-b pourrait être ainsi naturellement induite par la structure. Les premières mesures à mettre en évidence une anisotropie a-b ont été les mesures de transport électrique [145]. Ces mesures ont été interprétées par un modèle de type stripes. L'étude de la dynamique de spin, montrant une nette anisotropie a-b [84], quant à elle, est en faveur d'un état électronique nématique. L'anisotropie a-b dans l'effet Nernst (apparaissant à  $T_v=T^*$ ) reportée dans la famille Y123 est également attribuée à l'émergence d'un état nématique électronique [46] et est interprétée comme une preuve de la brisure de symétrie spontanée de la rotation d'ordre 4 (C4), qui devient détectable dans des échantillons démâclés de la famille Y123. D'un point de vue théorique, il est intéressant de noter que la coexistence d'un état de boucles de courants (qui est un modèle potentiel pour l'ordre magnétique à  $q=0$ ) et d'un état nématique électronique (ordre de charge à  $q=0$ ) est autorisée [90]. D'un point de vue expérimental, la symétrie par renversement du temps et la symétrie de rotation semblent être brisées à  $T^*$ . Les mesures de diffusion de neutrons polarisés montrent déjà la brisure par renversement du temps, cela a motivé de nouvelles mesures dans le but d'observer une signature possible de la brisure de symétrie C4, notamment en observant une anisotropie a-b du facteur de structure de l'ordre magnétique à  $q=0$ .

### 3.2.1 Résultats expérimentaux

En collaboration avec le Professeur Y. Li (Université de Pékin), nous avons étudié l'échantillon démâclé sous-dopé  $YBa_2Cu_3O_{6.6}$  (Y123-UD63,  $T_c=63K$ ). Il s'agit du même échantillon étudié par V. Hinkov et al [84] pour l'étude de l'anisotropie de la dynamique de spin (Fig. 1.7), il a également été étudié par B. Fauqué et al [30] pour la première mise en évidence de l'ordre magnétique à  $q=0$ .

Les résultats de cette étude ont été collectés sur le spectromètre trois-axes 4F1 (description Chapitre 2). Nous rappelons que dans ce cas, la direction de polarisation X se trouve le long du vecteur d'onde  $\mathbf{Q}$ , c'est donc dans cette configuration que nous obtenons le maximum d'intensité magnétique dans le canal SF (Eq. 2.32). Y est la direction de polarisation perpendiculaire à  $\mathbf{Q}$  dans le plan de diffusion et Z est la direction de polarisation perpendiculaire au plan de diffusion. Les intensités dans les canaux SF et NSF ont été systématiquement mesurées pour les trois polarisations X, Y et Z à différents vecteurs d'onde de la forme  $\mathbf{Q} = (H,0,L)$  et  $\mathbf{Q} = (0,H,L)$  (avec  $L=0$  et 1). L'échantillon a été aligné dans différents plans de diffusion pour pouvoir accéder à ces différents vecteurs d'onde. Pour  $L=0$ , le plan de diffusion est  $[1,0,0]/[0,1,0]$  avec l'axe c perpendiculaire au plan de diffusion. Nous avons ainsi accès à  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$  et  $\mathbf{Q} = (0,1,0)$ . Pour  $L=1$ , le plan de diffusion est  $[-1,1,0]/[1,1,2]$  avec la direction  $(1,1,v)$  perpendiculaire au plan de diffusion ( $v = (\frac{c}{a})^2 \sim 9$ ). La combinaison  $\frac{1}{2}(-[-1,1,0] + [1,1,2])$  permet d'obtenir  $\mathbf{Q} = (1,0,1)$  et  $\frac{1}{2}([-1,1,0] + [1,1,2])$ ,  $\mathbf{Q} = (0,1,1)$ .

D'une part, les intensités mesurées dans le canal NSF, données dans le Tab. 3.1, pour les quatre vecteurs d'onde  $\mathbf{Q} = (1,0,0)/\mathbf{Q} = (0,1,0)$  et  $\mathbf{Q} = (1,0,1)/\mathbf{Q} = (0,1,1)$  sont différentes selon les directions  $[1,0]$  et  $[0,1]$  quelle que soit la valeur de L. Nous remarquons une anisotropie (due au démâclage) au niveau des intensités nucléaires.

Table 3.1: Intensités mesurées dans le canal NSF pour les quatre vecteurs d'onde  $\mathbf{Q} = (1,0,0)/\mathbf{Q} = (0,1,0)$  et  $\mathbf{Q} = (1,0,1)/\mathbf{Q} = (0,1,1)$

$\mathbf{Q}$	(1,0,0)	(0,1,0)	(1,0,1)	(0,1,1)
$I^{NSF}$	$1,6 \cdot 10^6$ cps/20min	$1,1 \cdot 10^6$ cps/20min	$1,5 \cdot 10^6$ cps/20min	$1,5 \cdot 10^5$ cps/20min

D'autre part, nous cherchons à étudier les intensités magnétiques. Nous rappelons que nous mesurons toujours ce qui est perpendiculaire à  $\mathbf{Q}$  et à la direction de polarisation (Fig. 2.3). En considérant le moment magnétique  $M = (M_a, M_b, M_c)$ , l'intensité magnétique mesurée dans le canal SF pour la polarisation X est l'intensité magnétique totale mesurée (Eq. 2.16):

$$I_{mag,X} \propto \left(1 - \left(\frac{2\pi}{a} \frac{H}{|\mathbf{Q}|}\right)^2\right) M_a^2 + \left(1 - \left(\frac{2\pi}{b} \frac{K}{|\mathbf{Q}|}\right)^2\right) M_b^2 + \left(1 - \left(\frac{2\pi}{c} \frac{L}{|\mathbf{Q}|}\right)^2\right) M_c^2 \quad (3.4)$$

Pour les polarisations Y et Z, une partie de l'intensité magnétique est transférée du canal SF vers le canal NSF. Ainsi pour  $\alpha = (X, Y, Z)$ ,

$$I_{mag,\alpha} \propto A^\alpha M_a^2 + B^\alpha M_b^2 + C^\alpha M_c^2 \quad (3.5)$$

Nous regroupons l'ensemble des coefficients  $A^\alpha$ ,  $B^\alpha$ ,  $C^\alpha$  calculés pour les différents vecteurs d'onde étudiés et les différentes polarisations dans le tableau suivant.

$\alpha$	$\mathbf{Q}$	A	B	C	$\mathbf{Q}$	A	B	C
X	(1,0,0)	0	1	1	(0,1,0)	1	0	1
Y	(1,0,0)	0	0	1	(0,1,0)	0	0	1
Z	(1,0,0)	0	1	0	(0,1,0)	1	0	0
X	(1,0,1)	0,1	1	0,9	(0,1,1)	1	0,1	0,9
Y	(1,0,1)	0,01	0,09	0,82	(0,1,1)	0,09	0,01	0,82
Z	(1,0,1)	0,09	0,91	0,08	(0,1,1)	0,91	0,09	0,08

Il apparaît pour les vecteurs d'onde de la forme  $\mathbf{Q} = (1,0,L)$  que la direction de polarisation Y (Z) mesure essentiellement la composante  $M_c^2$  ( $M_b^2$ ). Pour les vecteurs d'onde de la forme  $\mathbf{Q} = (0,1,L)$ , Y sonde toujours  $M_c^2$  alors que Z sonde  $M_a^2$ .

Afin d'être en mesure de caractériser le moment magnétique, nous mesurons  $I_{mag}$ . La méthode générale pour extraire le signal magnétique,  $I_{mag}$ , associé à l'ordre magnétique à  $q=0$  a été présentée dans le Chapitre 2 et déjà abordée lors de la description de nos mesures sur D7. Nous ré-écrivons ici l'Eq. 2.42 (où  $\alpha=(X,Y,Z)$  représente la direction de polarisation):

$$I_\alpha^{SF}(T) = BG_\alpha^{SF}(T) + \frac{I_\alpha^{NSF}(T)}{FR_\alpha^0(T)} + I_{mag,\alpha}(T) \quad (3.6)$$

Comme dans l'étude précédente, nous considérerons que le bruit de fond BG est négligeable par rapport à une réflexion de Bragg intense. En revanche, nous avons mesuré les intensités diffusées dans les canaux SF et NSF à un grand vecteur d'onde (Fig. 2.9) afin d'obtenir la dépendance en température de l'inverse du rapport de flipping de référence  $1/FR_\alpha^0(T) = 1/FR_\alpha^0 + a_\alpha T$ .

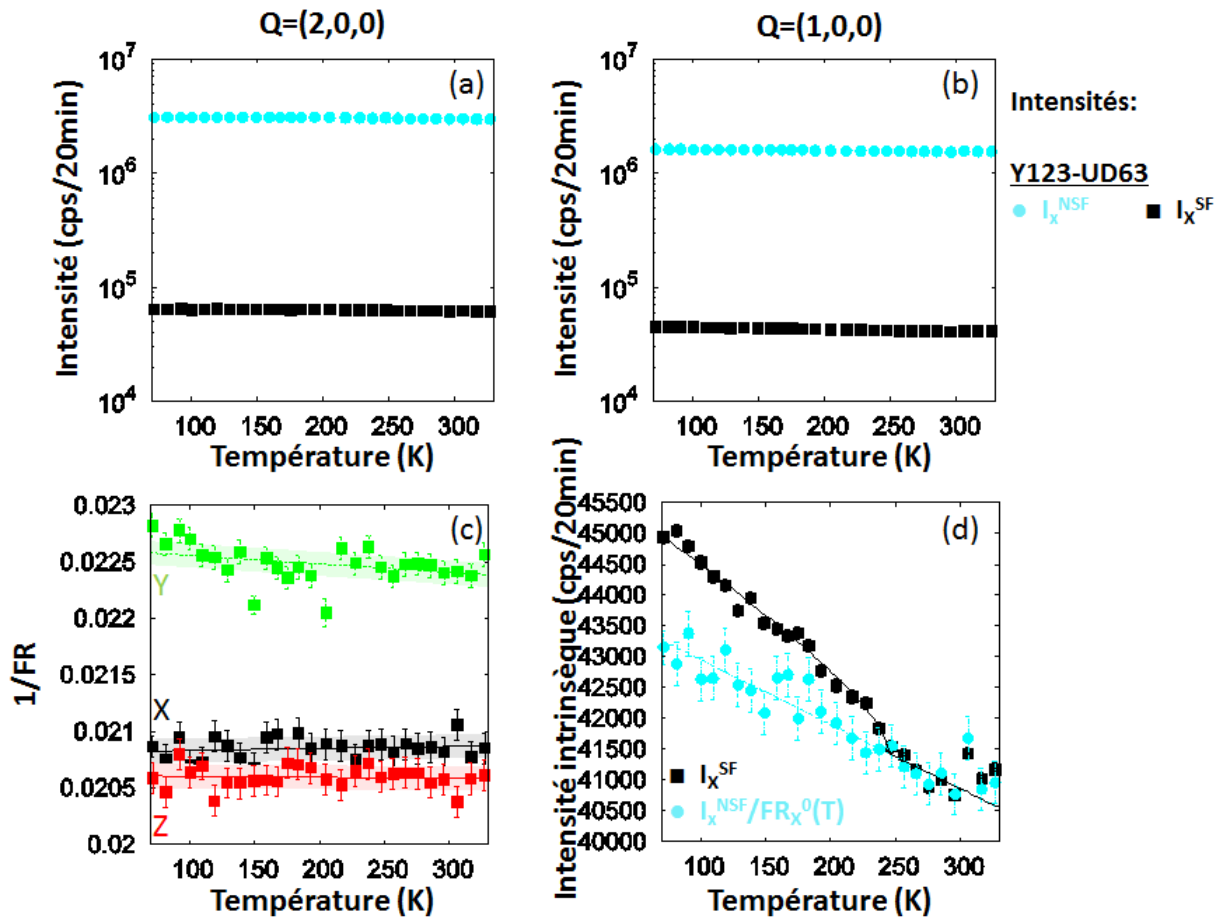


Figure 3.6: Y123-UD63. Mesures effectuées sur le spectromètre 4F1 avec la polarisation X. (a) Dépendances en température des intensités brutes mesurées à  $Q = (2,0,0)$ , dans les canaux NSF (symboles bleus) et SF (symboles noirs). (b) Dépendances en température des intensités brutes mesurées à  $Q = (1,0,0)$ , dans les canaux NSF (symboles bleus) et SF (symboles noirs). (c) Dépendances en température de l'inverse du rapport de flipping  $1/FR$  à  $Q = (2,0,0)$  pour les trois polarisations X, Y et Z. (d) Dépendances en température de l'intensité de Bragg à  $Q = (1,0,0)$  dans les canaux SF (symboles noirs) et NSF (symboles bleus) divisée par le rapport de flipping de référence  $FR_X^0(T)$ , de manière à n'avoir aucun signal à haute température.

Sur la Fig. 3.6 nous donnons l'exemple de mesures effectuées pour  $L=0$ . Nous reportons les intensités brutes mesurées pour la polarisation X à  $\mathbf{Q} = (2,0,0)$  (Fig. 3.6.a, pour la référence de rapport de flipping) et à  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$  (Fig. 3.6.b, pour l'étude de l'ordre magnétique à  $q=0$ ). La dépendance en température de l'inverse du rapport de flipping,  $\alpha_X T$ , (obtenu en divisant  $I_X^{SF}(T)$  par  $I_X^{NSF}(T)$  à  $\mathbf{Q} = (2,0,0)$ ) est reportée dans la Fig. 3.6.c. Nous la comparons à celles obtenues pour les polarisations Y et Z. La dépendance est légèrement croissante en température pour X et Z et elle est décroissante pour Y. Nous notons également que le rapport de flipping est moins bon pour Y. Quelle que soit la polarisation, la pente est faible (il y a peu de correction). Les bandeaux colorés matérialisent l'erreur sur la pente. Elle est de l'ordre de  $\pm 1.10^{-4}$  pour les trois polarisations.

Cette quantité ne devrait dépendre ni de la température, ni de la polarisation, ni des échantillons. Cependant, empiriquement, nous remarquons que ce n'est pas le cas. Ceci est essentiellement dû à des inhomogénéités de la polarisation du faisceau de neutrons. Également, les changements en température peuvent provoquer des petits déplacements de l'échantillon dus à la contraction et à la dilatation thermique de la canne échantillon. De même, il peut dépendre de l'échantillon étudié à cause des différentes formes de mosaïques et d'échantillons (correspondant à une projection différente sur l'analyseur). Il convient de souligner qu'il ne présente qu'une variation de quelques pourcents dans la plage de température comprise entre  $T_c$  et la température ambiante. Cette correction est beaucoup plus petite que les barres d'erreurs expérimentales.

Nous comparons sur la Fig. 3.6.d l'intensité mesurée pour la polarisation X dans le canal SF (carrés noirs) et dans le canal NSF (points bleus) divisée par le rapport de flipping de référence  $FR_X^0(T)$ , normalisé à haute température pour  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$ . En effet, il faut tenir compte des petites variations d'amplitude du rapport de flipping en passant d'une réflexion de Bragg à une autre. Nous remarquons que les deux signaux sont décroissants en température, mais avec une pente différente. A haute température, lorsqu'aucun ordre magnétique ne s'est développé, l'intensité  $I_X^{SF}$  se réduit à la fuite de polarisation du signal,  $I_X^{NSF}/FR_X^0$ . Lorsque la température diminue, en dessous de  $T_{mag} \sim 240K$ , le signal magnétique  $I_{mag,X}$  se superpose à ce signal. Nous pouvons ajuster ce signal par une courbe de la forme  $(1 - T/T_{mag})^{2\beta}$  (fonction de type paramètre d'ordre) avec  $\beta=0,25$ . La température  $T_{mag} \sim 240K$  est en bon accord avec la température  $220K \pm 20K$  déterminée lors des premières mesures de l'ordre magnétique à  $q=0$  [30] sur ce même échantillon démâclé.

D'après l'Eq. 3.6 (notamment en divisant par  $I_\alpha^{NSF}(T)$ ) nous obtenons:

$$I_{mag,\alpha}(T) = (1/FR_\alpha(T) - 1/FR_\alpha^0(T))I_\alpha^{NSF}(T) \quad (3.7)$$

En utilisant cette formule pour tous les vecteurs d'onde et toutes les polarisations, nous obtenons les résultats de la Fig. 3.7. Chaque courbe est ajustée par la même fonction de type paramètre d'ordre avec  $T_{mag} \sim 240K$ . Sous cette température, l'amplitude de l'intensité magnétique  $I_{mag}$  diffère selon le vecteur d'onde et la polarisation.

Considérons dans un premier temps la polarisation X. Nous remarquons pour  $L=0$  une nette différence entre les directions  $[1,0]$  et  $[0,1]$ , preuve d'une d'anisotropie a-b pour l'ordre magnétique à  $q=0$ . Pour  $L=1$ , le signal magnétique obtenu avec la polarisation X reste du même ordre de grandeur dans les deux directions  $[1,0]$  et  $[0,1]$ . L'anisotropie a quasiment disparu pour la polarisation X. Il existe donc une forte anisotropie qui varie en fonction de L.

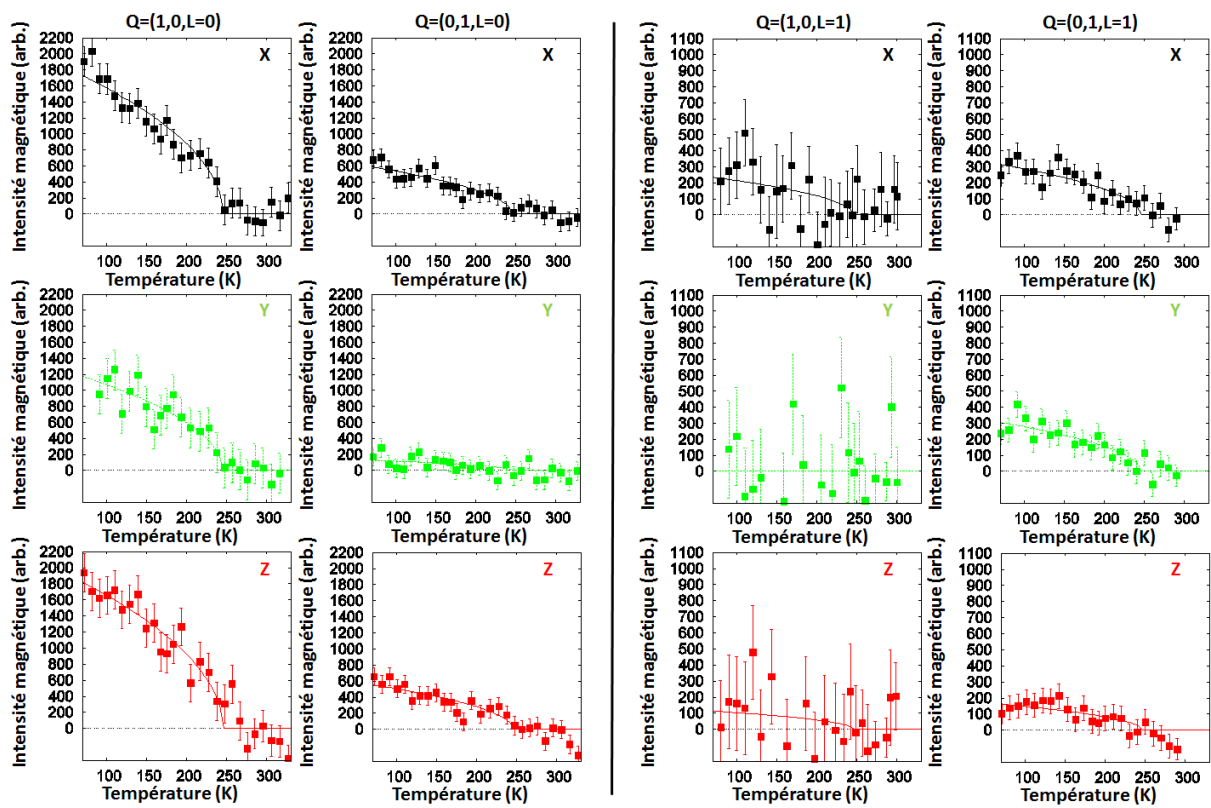


Figure 3.7: Y123-UD63. Mesures effectuées sur le spectromètre 4F1. Dépendances en température de l'intensité magnétique normalisée aux positions de Bragg  $Q = (1,0,L)$   $L=0,1$  pour les trois polarisation X, Y et Z.



Pour les autres polarisations, pour  $L=0$ , une anisotropie de l'intensité pour les polarisations Y et Z est également observable. Pour  $L=1$ , dans le cas de la polarisation Z, les intensités semblent comparables quelle que soit la direction alors que pour la polarisation Y, l'anisotropie est inversée.

Si nous cherchons maintenant à quantifier cette anisotropie, nous remarquons que la règle de somme (Eq. 2.32) est respectée pour tous les vecteurs d'onde, sauf pour  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$ . La somme des intensités pour les polarisations Y et Z n'est pas égale à celle pour la polarisation X. Cet effet pourrait être intrinsèque (et par exemple impliquer l'existence de chiralité dans le système que nous négligeons généralement) ou extrinsèque. En mâclant, c'est à dire en moyennant les intensités dans les deux directions  $[1,0]$  et  $[0,1]$ , nous obtenons pour la polarisation Y:  $M_c^2 \propto \frac{1}{2}(1200 + 200) = 700$  cps/20min et pour la polarisation Z:  $M_{ab}^2 = M_a^2 + M_b^2 \propto (1800 + 600) = 2400$  cps/20min. L'angle d'inclinaison du moment magnétique par rapport à l'axe c est défini par  $\tan(\theta) = M_{ab}/M_c$ , dans ce cas  $\theta = 61^\circ$ . Or, d'après l'étude de l'échantillon mâclé Y123-UD61 (de même composition  $YBa_2Cu_3O_{6.6}$ ) sur D7,  $\theta \sim 37^\circ$  pour  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$ , qui est en accord avec les études précédentes [108]. Pour obtenir une valeur de  $\theta$  comparable, nous pouvons imaginer deux cas. Soit l'intensité pour la polarisation Y ( $\propto M_c^2$ ) est trop faible soit l'intensité pour la polarisation Z ( $\propto M_{ab}^2$ ) trop élevée. Dans le premier cas, en conservant les intensités pour les polarisations X et Z et en augmentant Y, la règle de somme ne serait pas vérifiée. En revanche, dans le second cas, la règle de somme serait respectée. Nous en déduisons que l'intensité pour la polarisation Z à  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$  est probablement sur-estimée.

Dans ce cas l'anisotropie dans le plan serait plus faible. L'anisotropie hors plan quant à elle est forte et varie en fonction de L.

### 3.2.2 Modélisation

Plusieurs modélisations sont possibles, nous nous plaçons ici dans le cadre des boucles de courant dans la phase CC- $\theta_2$ . Il existe quatre états de boucles différents qui peuvent être obtenus par des rotations de  $\pi/2$  [88]. Ces boucles de courant produisent des moments magnétiques aux positions  $(\pm x_0, \pm x_0)$  ou  $(\pm x_0, \mp x_0)$  dans les plans  $CuO_2$  (Fig. 1.8.c-d). Un anapole (moment toroïdal) piloté par ces moments perpendiculaires au plan  $CuO_2$  pointe dans le plan. Comme il existe 4 états possibles pour chaque plan et que nous considérons un biplan, il y a 16 configurations possibles. Nous les regroupons en 4 catégories (qui possèdent chacune 4 configurations). Nous donnons un exemple de chaque catégorie sur la Fig. 3.8. Nous avons fixé l'état de boucles pour le plan inférieur et en faisant varier l'état de boucles du plan supérieur nous observons les cas où les anapoles sont en anti-phase, en phase et lorsque la résultante des deux anapoles pointe le long de la direction a ou b. Nous rappelons que le composé Y123 présente 2 plans  $CuO_2$  par maille élémentaire séparés d'une distance  $\pm \frac{d}{2}$  de l'atome d'yttrium ( $d=0,28c=3,3\text{\AA}$ ).

Intéressons nous à l'intensité magnétique hors plan ( $I_{mag,Y} \propto M_c^2$ ). Nous rappelons que l'intensité magnétique est donnée par le facteur de structure magnétique au carré  $|F_M|^2$  (au facteur de forme près). Pour les deux premières catégories,  $I_{mag,Y}$  est soit proportionnelle à  $|2M_c \sin(2\pi x_0)|^2 |2\sin(\pi \frac{d}{c} L)|^2$  (anti-phase), soit proportionnelle à  $|2M_c \sin(2\pi x_0)|^2 |2\cos(\pi \frac{d}{c} L)|^2$  (phase).

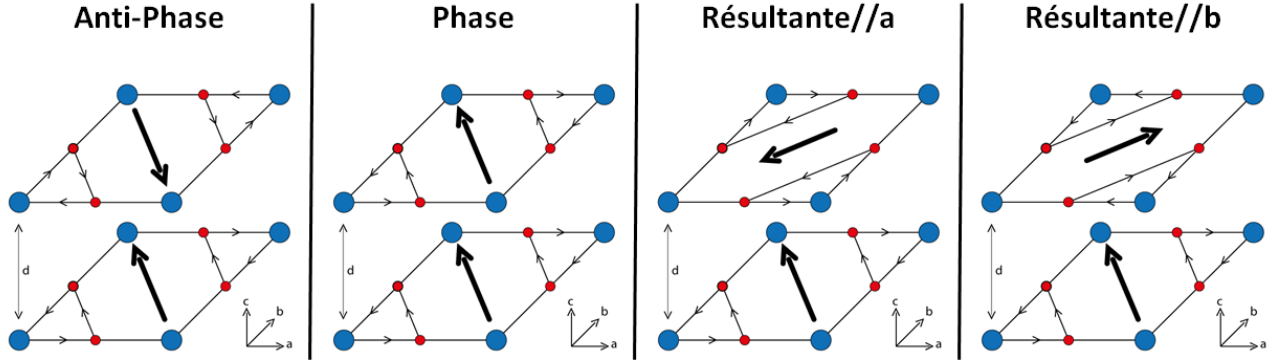


Figure 3.8: Étude de l'anisotropie a-b pour un système biplan. Il existe plusieurs motifs magnétiques possibles au sein de la bicouche. Nous avons fixé l'état de boucles pour le plan inférieur et en faisant varier l'état de boucles du plan supérieur nous observons les cas où les anapoles sont en anti-phase, en phase et lorsque la résultante des deux anapoles pointe le long de la direction a ou b.

L'anisotropie a-b si elle existe ne peut pas changer avec  $L$ . Ces configurations ne sont donc pas compatibles avec nos mesures. Le cas anti-phase n'est de toute façon pas possible puisque expérimentalement le maximum d'intensité est observé pour  $L=0$ .

Calculons à présent  $I_{mag,Y}$  pour les deux autres cas.

Dans le cas où la résultante des deux anapoles pointe le long de la direction a, nous avons:

$$F_M = 2M_c [2\sin(\pi\frac{d}{c}L)\sin(2\pi x_0 H)\cos(2\pi x_0 K) + 2\cos(\pi\frac{d}{c}L)\cos(2\pi x_0 H)\sin(2\pi x_0 K)] \quad (3.8)$$

$$I_{mag,Y}[1, 0, L] \propto |2M_c \sin(2\pi x_0)|^2 |2\sin(\pi\frac{d}{c}L)|^2 \quad (3.9)$$

$$I_{mag,Y}[0, 1, L] \propto |2M_c \sin(2\pi x_0)|^2 |2\cos(\pi\frac{d}{c}L)|^2 \quad (3.10)$$

et dans le cas où la résultante des deux anapoles pointe le long de la direction b:

$$F_M = 2M_c [2\cos(\pi\frac{d}{c}L)\sin(2\pi x_0 H)\cos(2\pi x_0 K) + 2\sin(\pi\frac{d}{c}L)\cos(2\pi x_0 H)\sin(2\pi x_0 K)] \quad (3.11)$$

$$I_{mag,Y}[1, 0, L] \propto |2M_c \sin(2\pi x_0)|^2 |2\cos(\pi\frac{d}{c}L)|^2 \quad (3.12)$$

$$I_{mag,Y}[0, 1, L] \propto |2M_c \sin(2\pi x_0)|^2 |2\sin(\pi\frac{d}{c}L)|^2 \quad (3.13)$$

Nous définissons le facteur d'anisotropie  $D = \frac{I[1,0,L]-I[0,1,L]}{I[1,0,L]+I[0,1,L]}$ . Lorsque le système est isotrope,  $D$  est nul. Il est négatif (positif) lorsque l'intensité est plus faible le long de a (b). Dans le cas où la résultante des deux anapoles pointe le long de la direction a,  $D = -\cos(2\pi\frac{d}{c}L)$ , dans l'autre cas,  $D = +\cos(2\pi\frac{d}{c}L)$ .

D'après la Fig. 3.7, à  $L=0$  pour la polarisation Y l'intensité est plus faible dans la direction  $[0,1]$  (le long de b). Cela correspond à un facteur d'anisotropie  $D$  positif. Ainsi, nous sélectionnons le modèle où la résultante des deux anapoles pointe le long de la direction b.

Pour ce modèle, à  $L=1$ , le signal magnétique  $I_{mag,Y}$  devrait être comparable quelle que soit la direction. Nous observons qu'il est faible voire nul pour la direction  $[1,0]$ . Cela peut être tout simplement dû à la statistique ou bien cela pourrait être expliqué par une distance  $d$  (séparant les

plans donc les moments) plus grande. En effet, nous pourrions imaginer, dans un modèle considérant les oxygènes apicaux, que les boucles seraient délocalisées. Une distance  $d$  plus grande pourrait effectivement diminuer la contribution dans la direction  $[1,0]$  en faveur de la direction  $[0,1]$  (tel que  $\cos(\pi \frac{d}{c}L) \sim 0$  dans l'Eq. 3.12).

Pour conclure, quelle que soit l'interprétation théorique de nos résultats, nous avons prouvé une nette anisotropie a-b de l'intensité magnétique associée à l'ordre magnétique à  $q=0$ . Cette forte anisotropie est contrôlée par la composante hors plan. L'anisotropie dans le plan quant à elle semble plus faible. Dans le cadre d'un modèle de boucles de courant, nos mesures sélectionnent toutes les configurations pour lesquelles la résultante des anapoles pour une bicouche va être alignée le long de b.

### 3.3 L'ordre magnétique à $q=0$ et les fluctuations antiferromagnétiques

L'ordre magnétique à  $q=0$  apparaît à  $T_{mag}$ . De la même manière, des fluctuations antiferromagnétiques, notamment de basse énergie, se développent sous  $T^*$  ( $=T_{mag}$ ) [84]. Y-a-t-il un lien entre ces deux phénomènes? Pour répondre à cette question, nous allons étudier et comparer les fluctuations antiferromagnétiques dans deux échantillons de familles différentes, Y123 et Hg1201, pour lesquelles l'ordre magnétique à  $q=0$  est longue portée.

#### 3.3.1 Les fluctuations AF dans l'échantillon Y123-UD61

Dans un premier temps, nous avons réalisé des mesures de diffusion inélastique de neutrons avec l'échantillon Y123-UD61 ( $T_c = 61K$ ,  $T_{mag} = 250K$ ) sur le spectromètre trois-axes thermique 2T ( $k_f = 4.1\text{\AA}^{-1}$ , correspondant à une énergie finale  $E_f=35\text{meV}$ ). L'échantillon est orienté dans le plan de diffusion  $[1,1,0]/[0,0,1]$ , de telle sorte que nous puissions avoir accès à n'importe quel vecteur d'onde de la forme  $\mathbf{Q} = (H,H,L)$ . Nous rappelons qu'à dopage nul, la maille élémentaire antiferromagnétique est deux fois plus grande que celle du réseau cristallin (schéma de gauche dans la Fig. 1.3.b). En augmentant le dopage, l'ordre antiferromagnétique disparaît mais des fluctuations persistent et se développent autour du vecteur d'onde  $\mathbf{Q} = (0.5,0.5,L)$ . D'après l'Eq. 2.21, la transformée de Fourier dans l'espace et le temps de la fonction de corrélation entre les spins est reliée à la partie imaginaire de la susceptibilité magnétique généralisée pondérée par le facteur de balance détaillée,  $S(\mathbf{Q}, \omega) \propto \frac{1}{1 - e^{-\frac{\hbar\omega}{k_B T}}} \chi''(\mathbf{Q}, \omega)$ . Dans le cas d'un biplan, la partie imaginaire de la susceptibilité magnétique contient deux termes correspondant aux fluctuations en phase entre les plans (fluctuations paires, +) et aux fluctuations en opposition de phase (fluctuations impaires, -). La partie imaginaire de la susceptibilité s'écrit alors  $\chi''(\mathbf{Q}, \omega) \propto \sin^2(\pi \frac{d}{c}L) \chi''_- + \cos^2(\pi \frac{d}{c}L) \chi''_+$ . Dans le cas du composé Y123, le spectre de fluctuations de basse énergie est dominé par les fluctuations impaires. Elles sont les plus intenses avec  $L=(n+1/2)c/d$  avec  $d=0,28c=3,3\text{\AA}$  la distance entre les plans  $CuO_2$  au sein de la bicouche et  $n$  un entier. Nous travaillons à  $L=5,4$ .

Sur la Fig. 3.9.a, nous reportons des coupes en énergie réalisées autour du vecteur d'onde antiferromagnétique  $Q=(0.5,0.5,L=5.4)$  à quatre températures différentes (points noirs pleins): 10K ( $T < T_c$ ), 70K, 150K ( $T_c < T < T_{mag}$ ) et 275K ( $T > T_{mag}$ ). Nous avons effectué des mesures de diffusion inélastique de neutrons non polarisés, nous mesurons donc simultanément un signal nucléaire (inélastique, correspondant aux phonons) auquel se superpose un signal magnétique. Nous remarquons que plus la température est grande plus le niveau d'intensité à basse énergie est élevé. Ceci est dû au peuplement thermique des phonons, ce n'est donc pas un signal magnétique. En revanche, nous remarquons un surplus d'intensité entre 30meV et 40meV qui est présent à basse température et qui devient évanescent en augmentant la température. Ce surcroît d'intensité est en fait lié à l'apparition du pic de résonance antiferromagnétique (sous  $T_c$ ).

Pour extraire des informations sur le signal magnétique, il faut s'affranchir du bruit de fond d'origine structurale. Nous avons donc réalisé des coupes à énergie constante autour du vecteur d'onde antiferromagnétique le long de la direction  $[1,1,0]$ . La Fig. 3.9.b en est un exemple, pour les températures 10K et 275K à une énergie  $E=32$ meV. Nous ajustons chaque courbe avec une fonction de type gaussienne associée au signal magnétique sur un bruit de fond structural dont la forme est décrite par un polynôme. Nous pouvons ainsi extraire l'intensité du signal magnétique et la valeur du bruit de fond à  $Q = (0.5,0.5,5.4)$ . En procédant ainsi pour chaque énergie, nous obtenons les points rouges de la Fig. 3.9.a pour le bruit de fond.

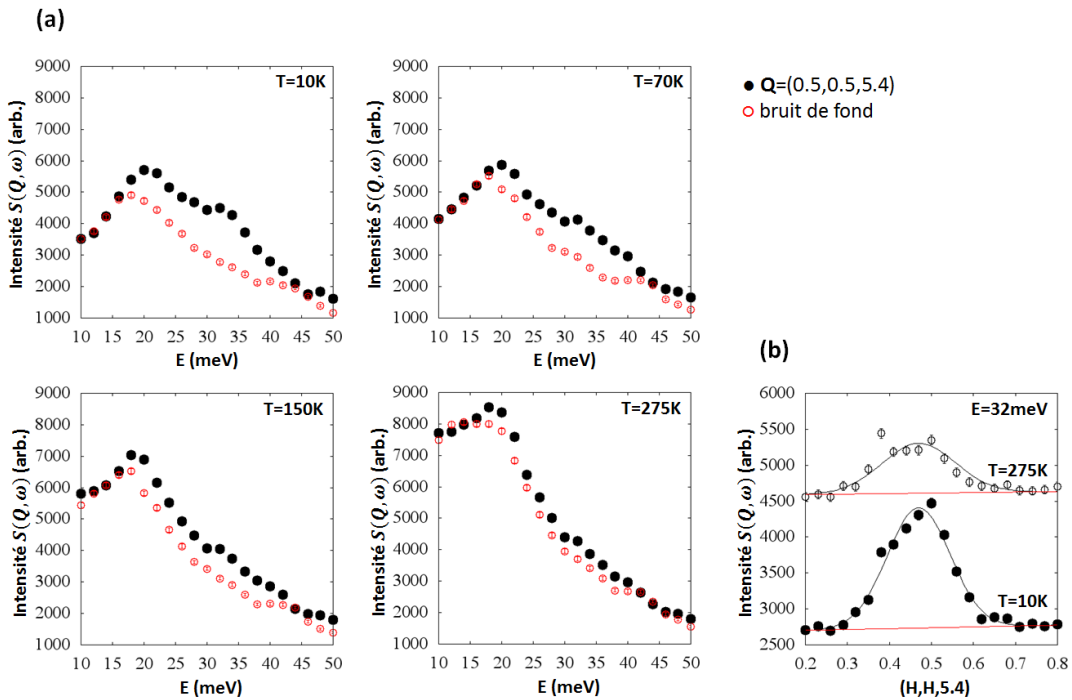


Figure 3.9: Y123-UD61. Mesures effectuées sur le spectromètre trois-axes 2T. (a) Mesures de l'intensité en fonction de l'énergie à  $Q = (0.5,0.5,5.4)$  (points noirs pleins) pour quatre températures: 10K, 70K, 150K, 275K. Les points rouges représentent le bruit de fond. Il est déterminé en effectuant des coupes à énergie constante autour de  $Q = (0.5,0.5,5.4)$  le long de la direction  $[1,1,0]$ . Nous en donnons un exemple sur la figure (b) avec  $E=32$ meV pour  $T=10$ K et  $T=275$ K. Les résultats sont ajustés par une fonction de type gaussienne (ligne noire) sur un bruit de fond polynomial (ligne rouge).

Jusqu'à maintenant, nous avons considéré  $S(\mathbf{Q}, \omega)$ . Une fois l'intensité magnétique corrigée du facteur de balance détaillée ( $\frac{1}{1-e^{-\hbar\omega/k_B T}}$ ), nous obtenons  $\chi''(\mathbf{Q}, \omega)$ . La Fig. 3.10.a montre la partie imaginaire de la susceptibilité magnétique au vecteur d'onde antiferromagnétique. A 10K (dans l'état supraconducteur),  $\chi''(\mathbf{Q}, \omega)$  présente un maximum autour de 32meV: il s'agit du pic de résonance magnétique. Dans l'état normal ( $T > 70K$ ), les fluctuations magnétiques perdent en intensité et se retrouvent redistribuées sur une plus large gamme en énergie, les excitations sont amorties. De plus, à basse énergie ( $E < 32meV$ ),  $\chi''(\mathbf{Q}, \omega)$  présente un épaulement, plus marqué à basse température. Cet épaulement peut être expliqué en considérant la fonction de résolution du spectromètre et la dispersion des excitations magnétiques (Fig. 3.10.b). En effet, nous mesurons le produit de convolution entre les deux. Pour l'état supraconducteur, à basse énergie nous observons une évolution progressive des deux branches de dispersion alors qu'au centre nous obtenons un pic. L'épaulement moins marqué dans l'état normal s'explique par un changement de dispersion des excitations magnétiques (passage de la dispersion en X à Y, Fig. 3.10.b).

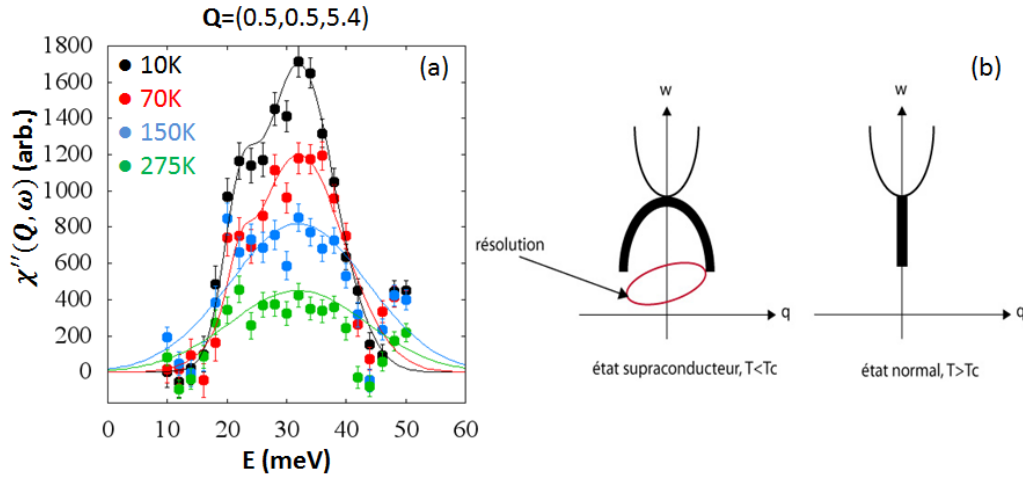


Figure 3.10: Y123-UD61. Mesures effectuées sur le spectromètre trois-axes 2T. (a) Dépendances en énergie de  $\chi''(\mathbf{Q}, \omega)$  à 10K, 150K, 175K et 275K. (b) Schéma des dispersions en X (état supraconducteur) / Y (état normal) d'après [84].

Enfin, nous nous intéressons plus particulièrement à l'évolution en température de  $\chi''(\mathbf{Q}, \omega)$  au voisinage du pic de résonance magnétique. Nous avons donc suivi en température l'évolution de l'intensité diffusée au vecteur d'onde antiferromagnétique  $\mathbf{Q} = (0.5, 0.5, 5.4)$  à l'énergie de résonance  $E=32meV$  (Fig. 3.11.a). Dans cette étude, nous avons également ôté le bruit de fond structural déterminé par la série de coupes à 32meV le long de la direction  $[1, 1, 0]$  (Fig. 3.9.b). Le signal magnétique a ensuite été corrigé du facteur de balance détaillée pour extraire la partie imaginaire de la susceptibilité magnétique. L'évolution en température de  $\chi''(\mathbf{Q}, \omega)$  suggère deux augmentations significatives aux températures  $T_c=61K$  et  $T_{mag}=T^*=250K$ . Nous observons l'apparition d'un signal magnétique à 250K dont l'intensité augmente graduellement jusqu'à  $T_c$ . Puis en entrant dans l'état supraconducteur, nous observons un surcroît d'intensité correspondant à l'apparition du pic de résonance magnétique. Sur la Fig. 3.11.b, nous reportons une mesure similaire effectuée avec l'échantillon sous-dopé démaclé Y123-UD63 ( $T_c = 63K$ ,  $T_{mag}=T^*=220K$ ) [84].

Pour cet échantillon le pic de résonance magnétique est mesuré à  $E=38\text{meV}$ . Le suivi en température de  $\chi''(\mathbf{Q}, \omega)$  à cette énergie est similaire à celui que nous venons de décrire pour notre échantillon. Cela atteste de la reproductibilité de notre observation quel que soit l'échantillon.

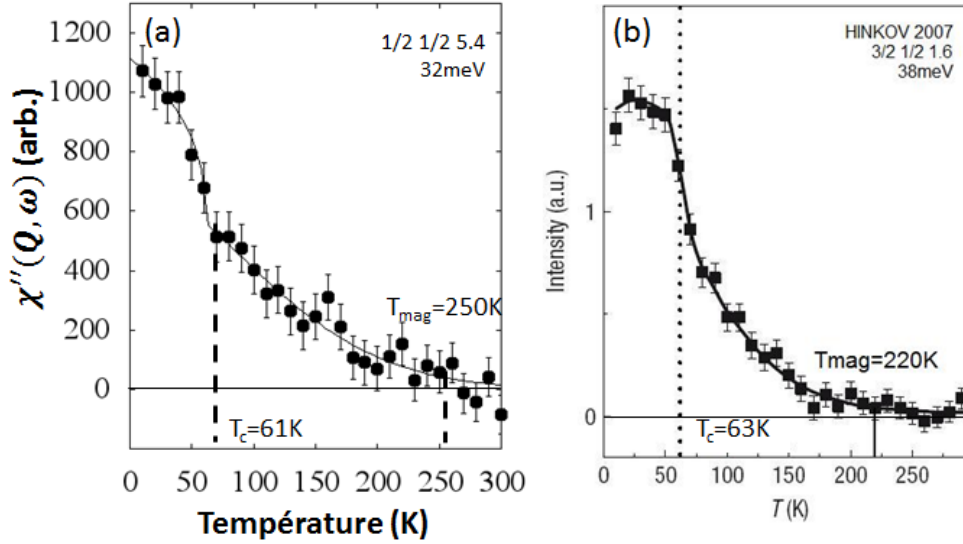


Figure 3.11: Y123-UD61. Mesures effectuées sur le spectromètre trois-axes 2T. Dépendance en température de  $\chi''(\mathbf{Q}, \omega)$  au vecteur d'onde antiferromagnétique à  $E=32\text{meV}$ , comparée à celle mesurée par V. Hinkov et al à  $E=38\text{meV}$  dans l'échantillon démâclé Y123-UD63 [84].

### 3.3.2 Les fluctuations AF dans l'échantillon Hg1201-UD71

En collaboration avec M. K. Chan et al [138] (groupe du Professeur M. Greven, Université du Minnesota), nous avons étudié l'échantillon sous-dopé Hg1201-UD71 ( $T_c=71\text{K}$ , Tab 2.4). Les fluctuations antiferromagnétiques dans cet échantillon ont été étudiées sur l'instrument temps de vol ARCS (SNS, Oak Ridge). Ce type d'instrument possède plusieurs détecteurs comme un diffractomètre mais l'emploi d'un élément appelé chopper placé en amont de l'appareil permet d'effectuer des mesures de diffusion inélastique de neutrons. L'échantillon a été aligné de manière à ce que son axe  $c$  soit le long du faisceau incident. Cela implique que pour un vecteur d'onde  $(H, K)$  fixé,  $L$  dépend de l'énergie de transfert. Deux configurations ont été utilisées, l'énergie incidente  $E_i = 70\text{meV}$  et  $130\text{meV}$ , avec des fréquences de rotation de chopper de  $420\text{Hz}$  et  $600\text{Hz}$ , respectivement.

Les Fig. 3.12.a-b présentent la partie imaginaire de la susceptibilité magnétique  $\chi''(\mathbf{Q}, \omega)$  en fonction de l'énergie et de la position  $H$  autour du vecteur d'onde antiferromagnétique  $q_{AF} = (H, 0.5)$  pour deux températures:  $5\text{K} (< T_c)$  et  $85\text{K} (> T_c)$ . A  $5\text{K}$ , dans l'état supraconducteur,  $\chi''(\mathbf{Q}, \omega)$  apparaît très intense autour de l'énergie  $51\text{meV}$ . Cette quantité est fortement réduite jusqu'à devenir nulle en dessous de  $27\text{meV}$ . De plus, nous remarquons que pour des énergies supérieures à  $59\text{meV}$ , la réponse magnétique devient dispersive. Ainsi, entre  $27\text{meV}$  et  $59\text{meV}$  la partie imaginaire de la susceptibilité magnétique  $\chi''(\mathbf{Q}, \omega)$  est élevée avec un maximum à  $51\text{meV}$  et elle présente deux branches de dispersion à haute énergie (dispersion en forme en Y, comparable à celle ob-



servée dans l'état normal pour la famille Y123, Fig. 1.7 et Fig. 3.10). Enfin, nous retrouvons le même comportement à 85K (état normal). La dispersion de ces excitations magnétiques n'est pas affectée par le passage entre l'état supraconducteur et l'état normal.

Afin de préciser la dépendance en énergie et en fonction du vecteur d'onde de ces excitations magnétiques, différentes coupes dans l'espace réciproque ( $H,K$ ) aux deux températures 5K et 85K et à énergies constantes (72, 62, 51, 36 et 21meV) ont été réalisées (Fig. 3.12.c-l). Nous retrouvons le caractère dispersif à haute énergie (anneau d'intensité) qui tend à disparaître autour de 51meV (disque d'intensité) jusqu'à ne plus avoir de signal à basse énergie. Quelle que soit l'énergie, le signal est isotrope.

Les Fig. 3.12.m-q présentent des coupes dans les deux directions  $[0.5,0]$  et  $[0.5,0.5]$  pour les mêmes énergies que les Fig. 3.12.c-l à quatre températures différentes: 5K, 85K mais aussi 220K et 350K. Pour  $T=5K$ , les coupes selon les deux directions sont présentées séparément, pour les autres températures, elles sont moyennées. A basse énergie ( $<27meV$ ), aucun signal n'est observable quelle que soit la température. A 36meV puis 51meV, le signal apparaît de plus en plus fort à mesure que la température diminue (jusqu'à 85K). Il reste le même en passant de 85K à 5K. Pour les deux énergies supérieures à 59meV présentées, le signal devient incommensurable, il présente deux maximums en intensité.

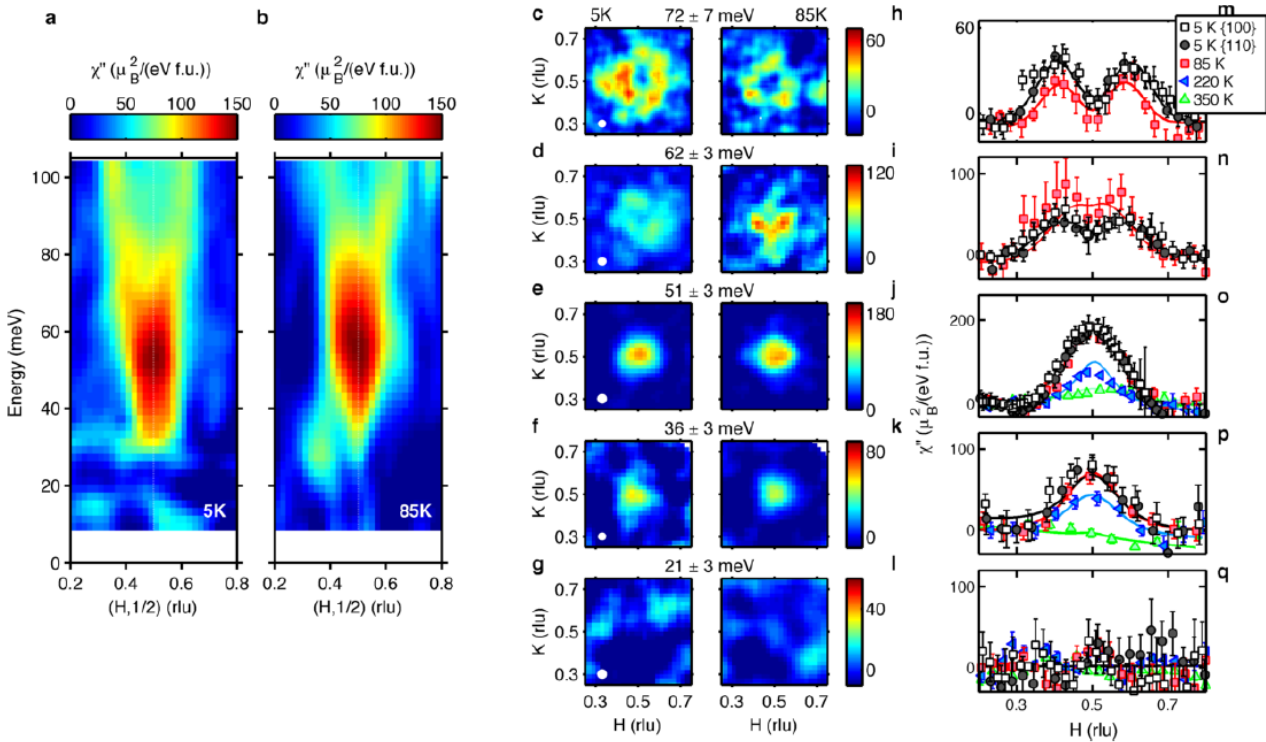


Figure 3.12: Hg1201-UD71. (a)-(b) Cartes en couleurs de la partie imaginaire de la susceptibilité magnétique  $\chi''(\mathbf{Q}, \omega)$  en fonction de l'énergie et de la position  $H$  autour du vecteur d'onde antiferromagnétique  $q_{AF} = (H, 0.5)$  pour deux températures: 5K ( $< T_c$ ) et 85K ( $> T_c$ ). (c)-(l) Cartes en couleur de la distribution de l'intensité magnétique dans l'espace réciproque à 5K (c)-(g) et 85K (h)-(l) pour différentes énergies. (m)-(q) Coupes en  $H$  correspondantes. Ces données ont été obtenues d'après des mesures de diffusion inélastique de neutrons par temps de vol (ARCS, SNS Oak Ridge) [138].



Après ajustement des courbes des Fig. 3.12.m-q par des fonctions de type gaussienne de la forme  $e^{-4\ln 2|\frac{(H-0.5)-\delta}{2\kappa}|^2}$  où  $2\kappa$  est la pleine largeur à mi-hauteur et  $\delta$  le paramètre d'incommensurabilité (c'est à dire l'écart par rapport au vecteur antiferromagnétique  $q_{\text{AF}}$ ), la dépendance en énergie de  $\delta$  est reportée sur la Fig. 3.13. Les symboles noirs et rouges correspondent aux résultats pour 5K et 85K, respectivement. La largeur du bandeau coloré pour chaque température est donnée par  $2\kappa$ . Nous avons  $\delta=0 \pm 0.03$  (r.l.u.) pour des énergies inférieures à 51meV et  $\delta \neq 0$  sinon. Nous retrouvons la dispersion en Y discutée précédemment.

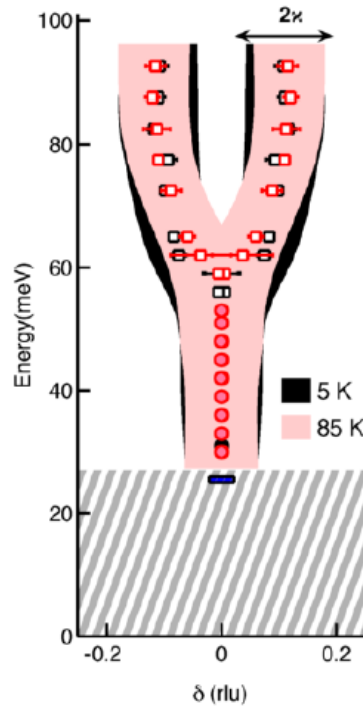


Figure 3.13: Hg1201-UD71. Dépendance en énergie du paramètre d'incommensurabilité  $\delta$ . Les symboles noirs et rouges correspondent aux résultats pour 5K et 85K, respectivement. La largeur du bandeau coloré pour chaque température est donnée par  $2\kappa$  (qui est la pleine largeur à mi-hauteur d'une gaussienne de la forme  $e^{-4\ln 2|\frac{(H-0.5)-\delta}{2\kappa}|^2}$ ). La dispersion est en forme de Y quelle que soit la température [138]. Par opposition, pour la famille Y123, la dispersion est en forme de Y dans l'état normal alors qu'elle est en forme de X dans l'état supraconducteur (Fig. 1.7, Fig. 3.10).

Un signal commensurable maximal est donc obtenu pour 51meV (Fig. 3.12.o) et il n'y a pas de changement entre l'état supraconducteur et à  $T_c+15\text{K}$ , indiquant l'absence de résonance dans cet échantillon. Le suivi complet en température de la partie imaginaire de la susceptibilité magnétique à  $q_{\text{AF}}$   $E=51\text{meV}$  a été déterminé d'après des mesures effectuées sur le spectromètre trois-axes HB3 (HFIR, Oak Ridge) avec une énergie finale  $E_f = 14,7\text{meV}$  [138]. La méthode d'analyse est la même que celle présentée pour l'échantillon Y123-UD61. La dépendance en température de  $\chi''(\mathbf{Q}, \omega)$  à  $q_{\text{AF}}$   $E=51\text{meV}$  est reportée sur la Fig. 3.14.c (points bleus).

### 3.3.3 Comparaison des familles Y123 et Hg1201

La Fig. 3.14.a, extraite d'après [138], présente les diagrammes de phase superposés des familles Y123 (axes noirs) et Hg1201 (axes rouges). Nous rappelons que nous avons étudié les échantillons Y123-UD61 et Hg1201-UD71 (les doubles flèches sur la figure indiquent le dopage de ces échantillons). Autour de ce dopage, une myriade de phénomènes sont présents, notamment les fluctuations antiferromagnétiques [138], l'ordre magnétique à  $q=0$  [30, 36] et l'ordre de charge CDW [61, 146]. La température critique  $T_c$  est atténuée, le dôme supraconducteur présente un creux (légèrement moins marqué pour la famille Hg1201). Tous ces éléments communs justifient la comparaison des deux échantillons. Les dépendances en température de ces trois phénomènes pour Y123-UD61 et Hg1201-UD71 sont comparées sur les Fig. 3.14.b-c.

En entrant dans la phase de pseudo-gap à  $T^*=T_{mag}$  (250K pour Y123-UD61, 300K pour Hg1201-UD71), les fluctuations antiferromagnétiques (points bleus) et l'ordre magnétique à  $q=0$  (carrés rouges) apparaissent en même temps et augmentent jusqu'à basse température. Cela suggère un fort lien entre les fluctuations antiferromagnétiques et l'ordre magnétique à  $q=0$ . Dans la phase de pseudo-gap, quel que soit l'échantillon, la dispersion des fluctuations présente une forme en Y (Fig. 3.10 et Fig. 3.13). De plus, ni la susceptibilité magnétique ni l'intensité magnétique à  $q=0$  ne présentent de changement à  $T_{CDW}$  (150K pour Y123-UD61, 200K pour Hg1201-UD71), l'ordre de charge ne semble pas avoir d'effet sur les fluctuations antiferromagnétiques et sur l'ordre magnétique à  $q=0$ .

Sous  $T_c$ , le comportement est différent selon l'échantillon. Dans le cas de l'échantillon Y123-UD61, il y a un fort effet de la supraconductivité, un pic de résonance apparaît et la dispersion est caractérisé par une forme en X (Fig 3.10). Ceci est notamment observable quel que soit le dopage pour la famille Y123 et également pour des échantillons de la famille Hg1201 autour du dopage optimal [147]. De plus, le signal associé à l'ordre de charge (CDW, triangles verts) diminue. Dans le cas de l'échantillon Hg1201-UD71, nous n'observons pas de pic de résonance, la dispersion reste en forme de Y (Fig. 3.13) et il ne semble pas y avoir de diminution de signal associé à l'ordre de charge. L'effet de la supraconductivité est faible dans ce cas. Tous ces éléments indiquent que la réponse dans l'échantillon Hg1201-UD71 est dominée par la formation du pseudo-gap.

Il est également intéressant de se demander comment cela se corrèle à d'autres informations électroniques. Par exemple, des mesures Raman ont été effectuées dans la famille Hg1201 sur une large gamme de dopage [27]. Ces mesures présentent un pic dans le canal  $B_{1g}$  en dessous de  $T_c$ , sauf pour un échantillon sous-dopé avec une  $T_c$  de 78K (comparable à l'échantillon Hg1201-UD71). Cela suggère que l'effet de la supraconductivité est faible pour cet échantillon. Il serait intéressant de comparer ces résultats à une mesure Raman avec un échantillon sous-dopé de la famille Y123 dont la  $T_c$  est proche de 61K. Si un pic est présent dans le canal  $B_{1g}$  en dessous de  $T_c$ , nous pourrions généraliser l'observation selon laquelle l'effet de la supraconductivité est plus marqué pour la famille Y132 que pour la famille Hg1201 dans la gamme de dopage étudiée.

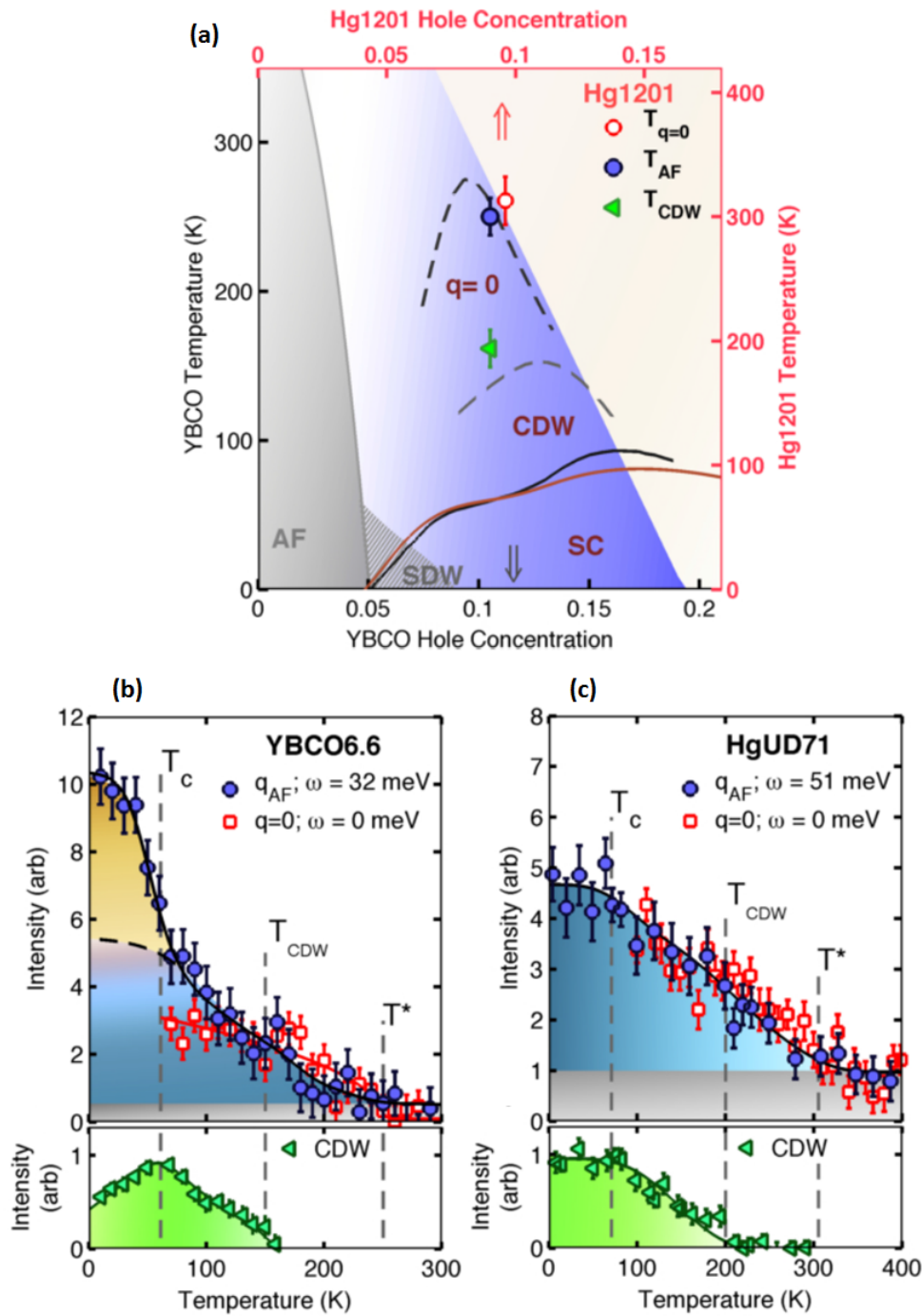


Figure 3.14: (a) Diagramme de phase de la famille Hg1201 (axes rouges) comparé à celui de la famille Y123 (axes noirs) [138]. (b)-(c) Dépendance en température du signal associé aux fluctuations antiferromagnétiques (points bleus), à l'ordre magnétique à  $q=0$  (carrés rouges) et à l'ordre CDW (triangles verts) pour deux échantillons sous-dopés des familles Hg1201 (a) et Y123 (b). Les lignes pointillées symbolisent les différentes température caractéristiques:  $T^* \sim T_{mag}$ ,  $T_{CDW}$  et  $T_c$ . Les observations de fluctuations antiferromagnétiques et de l'ordre magnétique à  $q=0$  proviennent de mesures de diffusion (in)élastique de neutrons (non) polarisés [36, 138]. Les observations de l'ordre de charge quant à elles proviennent de mesures de rayons X [61, 146].

Enfin, dans une approche de magnétisme localisé (en partant du motif antiferromagnétique de spins), la dispersion en forme de X peut être vu comme une signature des corrélations de l'état SDW [148]. Comme elle est absente pour l'échantillon Hg1201-UD71, nous pouvons supposer que la famille Hg1201 est moins sensible aux instabilités SDW que la famille Y123. De plus, la comparaison de ces deux familles suggèrent que la dispersion en Y plutôt que X est essentielle dans la compréhension du pseudo-gap.

Les fluctuations antiferromagnétiques et l'ordre magnétique à  $q=0$  apparaissent en même temps que la phase de pseudo-gap. L'ordre de charge survient au sein de cette phase. Quel est le lien entre tous ces effets? Parmi les différents modèles du pseudo-gap, les modèles spin-fermion, comme l'ordre de charge composite [100] ou l'onde de densité quadrupolaire (QDW) [102], rendent compte des corrélations antiferromagnétiques et tentent d'expliquer les instabilités électroniques présentes au sein des cuprates (notamment l'ordre de charge). Un lien est-il possible avec un ordre magnétique à  $q=0$ ? D'une part, de récents travaux semblent indiquer que la phase CC- $\theta$ II du modèle de boucles de courant est en forte compétition avec un ordre QDW [103]. D'autre part, un ordre à  $q=0$  brisant la symétrie par renversement du temps semble compatible avec un ordre de charge composite [100]. Quelle que soit l'interprétation théorique, ces trois phénomènes existent et se manifestent dans la phase de pseudo-gap. Des travaux supplémentaires sont nécessaires afin de déterminer comment ces trois effets coexistent.

### 3.4 Les modes plats dans la famille Y123

Un nouveau type d'excitations magnétiques a été découvert dans la phase de pseudo-gap de la famille Hg1201 sur une large gamme de dopage [109]. Deux modes peu dispersifs (modes plats) de basse énergie (30-40meV) et de haute énergie (50-60meV) ont été mis en évidence (Fig. 1.13.b Chapitre 1). Ils prennent leur origine autour du centre de la zone de Brillouin et apparaissent à la température de pseudo-gap  $T^*(=T_{mag})$  comme l'ordre magnétique à  $q=0$ . Bien qu'ils soient différents des fluctuations de spin qui se développent autour du vecteur d'onde  $q_{AF}$ , les deux excitations magnétiques se croisent en énergie [109]. Les énergies des modes plats correspondant aux énergies de résonance. Ainsi, il y a un lien entre les deux excitations bien que les fluctuations antiferromagnétiques se développent autour du vecteur d'onde antiferromagnétique  $q_{AF}$  (lié à l'arrangement des moments de spin sur les sites de cuivre) alors que les modes plats ont été interprétés comme des excitations liées à l'ordre magnétique à  $q=0$  (interprété par des boucles de courant [88]). Jusqu'à présent ces excitations ont seulement été reportées pour la famille Hg1201.

Afin de tester leur universalité, nous avons mené, en collaboration avec le Professeur Y. Li et le groupe du Professeur B. Keimer (MPI, Stuttgart), des recherches de ces excitations dans la famille Y123. Nous avons étudié l'échantillon Y123-UD62 ( $T_c=62K$ ). Des mesures de diffusion inélastique de neutrons non polarisés ont été effectuées sur le spectromètre trois-axes PUMA (FRM-II). Pour approfondir cette étude, des mesures de diffusions de neutrons polarisés ont été réalisées sur le spectromètre trois-axes IN20 (ILL), instrument muni du dispositif de polarisation CRYOPAD.

Comme pour le spectromètre trois-axes 4F1, la direction de polarisation X sur IN20 se trouve le long de la direction du vecteur d'onde  $\mathbf{Q}$ . Enfin, toutes ces mesures de diffusion inélastique ont été réalisées à vecteur d'onde final constant,  $k_f=4,1\text{\AA}^{-1}$ .

L'échantillon a été aligné dans le plan de diffusion  $[1,1,0]/[0,0,1]$ . Nous avons ainsi accès aux vecteurs d'onde de la forme  $\mathbf{Q}=(H,H,L)$ . Comme décrit lors de l'étude des fluctuations antiferromagnétiques,  $\chi''(\mathbf{Q},\omega)$  est une somme de deux termes modulés par  $\sin^2(\pi\frac{d}{c}L)$  et  $\cos^2(\pi\frac{d}{c}L)$ . La recherche des modes plats se fait aux vecteurs d'onde de la forme  $\mathbf{Q}=(H,H,L)$  avec L choisi pour que les fluctuations paires (couplage ferromagnétique) ou les fluctuations impaires (couplage antiferromagnétique) soient les plus intenses. Ensuite, les mesures consistent à faire des coupes en énergie le long de la direction  $[H,H]$  (ligne pointillée verte Fig. 3.15.a), généralement à deux températures: en dessous de  $T_c$  et autour ou au dessus de  $T^*$ . En procédant à la différence entre les deux, nous pouvons obtenir un signal apparaissant dans la phase de pseudo-gap.

Dans un premier temps, intéressons nous au résultat de diffusion de neutrons non polarisés. La Fig. 3.15.b présente la différence en température 4K-230K de la coupe en énergie mesurée à  $\mathbf{Q}=(0.05,0.05,6.8)$ .  $L=6,8$  correspond à l'étude de fluctuations paires. Globalement, nous remarquons la croissance de cette différence en énergie, elle est essentiellement due au facteur de balance détaillée. La croissance d'un signal supplémentaire autour de 35meV semble se produire. Cet effet apparaît moins marqué par rapport aux observations rapportés pour la famille Hg1201 [109].

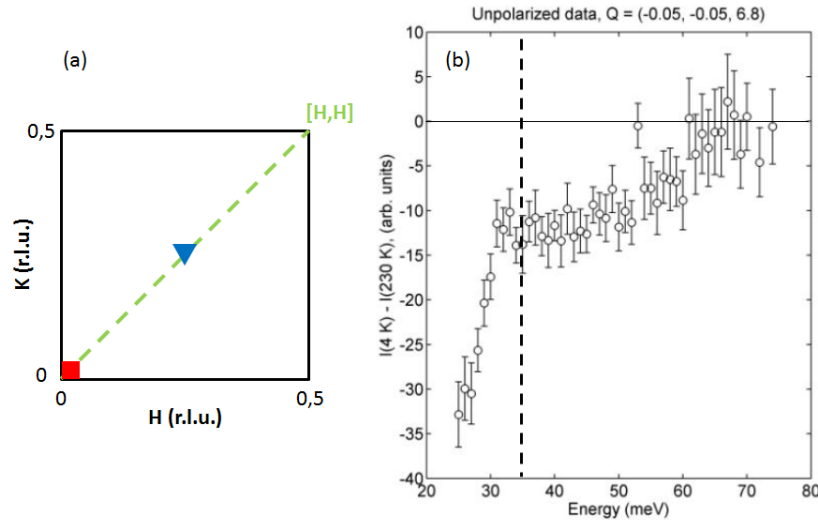


Figure 3.15: (a) Schéma de l'espace réciproque. Les excitations peu dispersives sont étudiées le long de la direction  $[H,H]$  (ligne pointillée verte). Nous avons notamment étudié ces excitations à  $\mathbf{Q}=(0.05,0.05,6.8)$  (carré rouge) et  $\mathbf{Q}=(0.25,0.25,5.1)$  (triangle bleu). (b) Une mesure préliminaire de diffusion inélastique de neutrons non polarisés a été réalisée sur le spectromètre trois-axes PUMA (FRM-II). Nous présentons ici la différence en température 4K-230K d'une coupe en énergie à  $\mathbf{Q}=(0.05,0.05,6.8)$ .

Afin de tester la nature magnétique et plus généralement pour approfondir cette étude en procédant à plusieurs coupes en énergie et à différentes positions, nous avons eu recours à la diffusion de neutrons polarisés. Comme pour la famille Hg1201, il est nécessaire d'étudier ces excitations pour différentes positions le long de la direction  $[H,H]$  et pour différentes valeurs de

L. Nous avons effectué nos mesures à  $\mathbf{Q} = (0.05, 0.05, 6.8)$  (carré rouge sur la Fig. 3.15.a, fluctuations paires) et  $\mathbf{Q} = (0.25, 0.25, 5.1)$  (triangle bleu sur la Fig. 3.15.a, fluctuations impaires). De plus, pour comparaison, nous avons effectué des mesures au vecteur d'onde antiferromagnétique  $\mathbf{Q} = (0.5, 0.5, 5.1)$ .

La Fig. 3.16.a présente des coupes en énergie, allant de 10meV à 70meV, des sections efficaces mesurées à  $T=2\text{K}$  dans le canal SF pour les trois polarisations X, Y, Z aux deux positions  $\mathbf{Q} = (0.5, 0.5, 5.1)$  et  $\mathbf{Q} = (0.05, 0.05, 6.8)$ . Nous observons pour  $\mathbf{Q} = (0.5, 0.5, 5.1)$  un pic d'intensité autour de 35meV quelle que soit la polarisation et un écart important entre la polarisation X (qui donne l'intensité la plus élevée) et les deux autres polarisations Y et Z alors que pour  $\mathbf{Q} = (0.05, 0.05, 6.8)$ , la différence entre les polarisations si elle existe est très faible. En procédant à l'analyse de polarisation  $2I_X^{\text{SF}} - I_Y^{\text{SF}} - I_Z^{\text{SF}}$  (Eq. 2.32), nous obtenons les résultats de la Fig. 3.16.b. Sur cette figure, nous présentons le signal magnétique mesuré à  $\mathbf{Q} = (0.5, 0.5, 5.1)$  et  $\mathbf{Q} = (0.05, 0.05, 6.8)$  mais aussi à  $\mathbf{Q} = (0.25, 0.25, 5.1)$ . Nous remarquons clairement que l'intensité magnétique est élevée pour le vecteur antiferromagnétique. Par opposition, pour les deux autres positions proches du centre de la zone de Brillouin, le signal apparaît beaucoup plus faible voire nul dans la barre d'erreur.

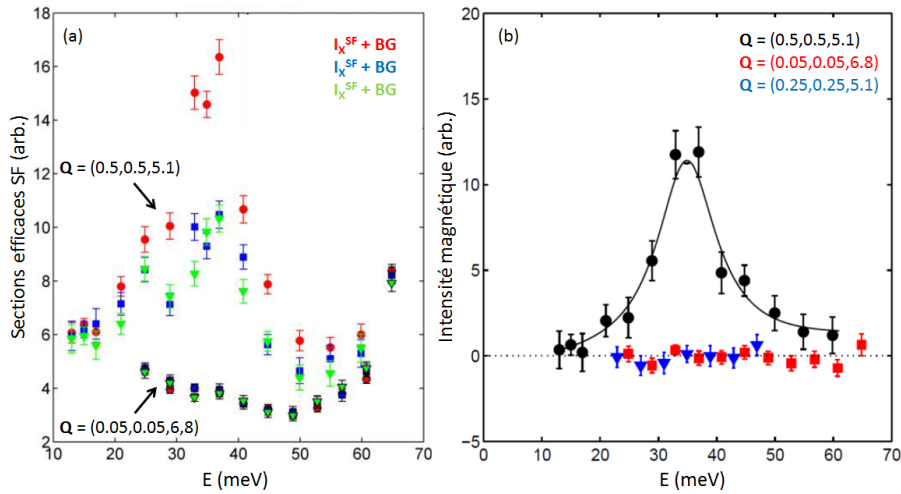


Figure 3.16: Mesures effectuées sur le spectromètre trois-axes IN20 ( $T=2\text{K}$ ). (a) Coupes en énergie des sections efficaces SF pour les trois polarisations X, Y, Z à  $\mathbf{Q} = (0.5, 0.5, 5.1)$  et  $\mathbf{Q} = (0.05, 0.05, 6.8)$ . (b) Dépendance en énergie du signal magnétique, extrait après analyse de polarisation (Eq. 2.32), pour  $\mathbf{Q} = (0.5, 0.5, 5.1)$ ,  $\mathbf{Q} = (0.05, 0.05, 6.8)$  et  $\mathbf{Q} = (0.25, 0.25, 5.1)$ .

La Fig. 3.17 est un zoom de la précédente figure. Là encore, il est difficile d'affirmer qu'un signal magnétique soit présent à  $\mathbf{Q} = (0.05, 0.05, 6.8)$  et  $\mathbf{Q} = (0.25, 0.25, 5.1)$ . Nos mesures ne semblent pas indiquer la présence de modes plats dans cette gamme d'énergie pour la famille Y123. Si un signal existe, il est de l'ordre de 20 fois plus faible que le signal au vecteur antiferromagnétique. Dans le cas de la famille Hg1201, les signaux aux deux positions (au centre et en bord de zone) sont du même ordre de grandeur [109]. L'effet observé dans les mesures de diffusion de neutrons non polarisés, Fig. 3.15.b, pourrait provenir d'une anomalie due à un phonon.



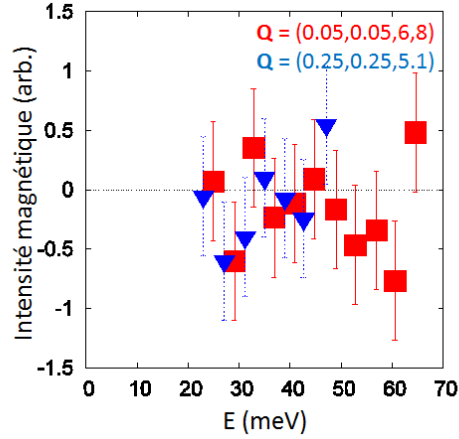


Figure 3.17: Mesures effectuées sur le spectromètre trois-axes IN20. Zoom de la dépendance en énergie du signal magnétique, extrait après analyse de polarisation (Eq. 2.32), pour  $Q = (0.05, 0.05, 6.8)$  et  $Q = (0.25, 0.25, 5.1)$ .

Nous n'observons donc pas d'excitations associées aux modes plats dans la gamme d'énergie 20-60meV avec l'échantillon sous-dopé Y123-UD62. Nous rappelons que la recherche de ces modes plats a été réalisée à des vecteurs d'onde de la forme  $(H, H, L)$  avec  $L$  déterminé en considérant soit le cas où les plans sont en phase au sein de la bicouche, soit le cas où ils sont en opposition de phase. Or, d'après notre étude de l'anisotropie a-b du facteur de structure avec l'échantillon démâclé Y123-UD63, un modèle où la résultante de deux anapoles au sein de la bicouche pointe le long de b serait le plus adéquat (Fig. 3.8.d). Nous pouvons donc supposer que la recherche d'excitations dans le système Y123 doit se faire à d'autres valeurs de  $L$  pour lesquelles le facteur de structure de l'Eq. 3.11 est le plus intense.

### 3.5 Conclusion

En réalisant des mesures de diffusion de neutrons polarisés sur un diffractomètre, nous avons confirmé l'existence de l'ordre magnétique à  $q=0$  (jusqu'à présent observé sur un spectromètre trois-axes). De plus, nous confirmons l'existence de l'inclinaison du moment magnétique par rapport à l'axe  $c$ , pour des vecteurs d'onde de la forme  $Q = (1, 0, L)$  avec notamment  $L=0$ . De ce fait, nous remettons en cause tous les modèles de l'ordre magnétique à  $q=0$  qui excluent la possibilité d'observer cette inclinaison pour  $L=0$ . Parmi ceux présentés dans le Chapitre 1, le modèle considérant des multipôles magnéto-électriques [113], les moments orbitaux sur les atomes d'oxygène [112] et les boucles de courant incluant les oxygènes apicaux [56] ne sont pas compatibles. L'inclinaison du moment magnétique mesurée par diffusion de neutrons implique l'existence de deux composantes, dans le plan et hors plan. L'anisotropie a-b de l'amplitude du signal associé à l'ordre magnétique à  $q=0$  observée indique que la composante hors plan du moment magnétique n'est pas isotrope. Dans un modèle de boucles de courant [88], cela correspondrait à une résultante, de deux anapoles (au sein de la bicouche), pointant le long d'une direction particulière,



$b^*$ . L'anisotropie de la composante dans le plan du moment magnétique quant à elle est plus faible. Les mesures de diffusion de neutrons prouvent non seulement la brisure de la symétrie par renversement du temps mais aussi indiquent la brisure de symétrie par rotation. Ces deux brisures de symétrie indiquent une transition de phase à  $T^*$ . A la même température, des fluctuations antiferromagnétiques de basse énergie deviennent mesurables (signature spécifique de la phase de pseudo-gap sur la dynamique de spin). L'effet de la supraconductivité sur ces fluctuations antiferromagnétiques (la résonance et dispersion en X) n'est pas le même selon la famille considérée, pour l'échantillon sous-dopé de la famille Hg1201, nous ne les avons pas observées. La dispersion en Y dans la phase de pseudo-gap, quant à elle, est commune aux deux familles. Dans les mêmes gammes d'énergie que les fluctuations antiferromagnétiques, des excitations peu dispersives (modes plats) ont été observées pour la famille Hg1201. Ces modes plats, s'ils existent pour la famille Y123, sont soit beaucoup moins intenses soit localisés à des vecteurs d'onde différents du fait du couplage des plans au sein de la bicouche.

# Chapitre 4

## Étude de l'ordre magnétique à $q=0$ autour du dopage optimal dans la famille $YBa_2Cu_3O_{6+x}$

### Sommaire

---

<b>4.1</b>	<b>L'échantillon Y123-UD89</b> . . . . .	<b>102</b>
4.1.1	Mise en évidence de l'ordre magnétique à $q=0$ . . . . .	102
4.1.2	Mesure des longueurs de corrélation . . . . .	105
4.1.3	Inclinaison du moment magnétique . . . . .	113
4.1.4	La phase supraconductrice . . . . .	120
<b>4.2</b>	<b>L'échantillon Y123-OD92b</b> . . . . .	<b>127</b>
<b>4.3</b>	<b>Diagramme de phase de la famille Y123</b> . . . . .	<b>132</b>
<b>4.4</b>	<b>Possibles excitations de basse énergie</b> . . . . .	<b>133</b>
4.4.1	Dépendance en énergie . . . . .	133
4.4.2	Dépendance en température . . . . .	133
4.4.3	Évolution en fonction du vecteur d'onde . . . . .	136
<b>4.5</b>	<b>Conclusion</b> . . . . .	<b>137</b>

---

L'existence de l'ordre magnétique à  $q=0$  a été mise en évidence sur une gamme relativement large en dopage. Pour la famille Y123, dans le régime sous-dopé il est longue portée 3D alors qu'il disparaît autour de  $p \sim 0,2$  (pour un échantillon sur-dopé) [30]. Toutefois, son évolution autour du dopage optimal n'a pas encore été étudiée par diffusion de neutrons pour cette famille. Dans ce chapitre, nous nous intéresserons également à l'évolution de l'ordre magnétique à  $q=0$  dans la phase supraconductrice.

## 4.1 L'échantillon Y123-UD89

### 4.1.1 Mise en évidence de l'ordre magnétique à $q=0$

Dans le but de généraliser l'observation d'un changement significatif du signal magnétique lors du passage de l'état de métal étrange à la phase de pseudo-gap autour du dopage optimal, nous avons réalisé des mesures de diffusion élastique de neutrons polarisés avec l'échantillon  $YBa_2Cu_3O_{6.85}$  que nous notons Y123-UD89 ( $T_c=89K$ ,  $p=0,15$ ) [125, 126], sur le spectromètre 4F1 avec la polarisation X. L'échantillon est aligné dans le plan de diffusion  $[1,0,0]/[0,0,1]$  et nous avons étudié l'ordre magnétique à  $q=0$  sur les réflexions de Bragg  $\mathbf{Q} = (1,0,L)$  avec  $L=0$  et  $1$  en fonction de la température.

Pour extraire l'intensité magnétique propre à ces positions, nous avons étudié le signal à  $\mathbf{Q} = (2,0,0)$  et  $\mathbf{Q} = (0,0,4)$ , pour la référence de rapport de flipping, dont les dépendances en température des intensités brutes dans les canaux SF et NSF sont présentées sur les Fig. 4.1.a-b. En effet, nous n'attendons aucun signal magnétique à grand vecteur d'onde ou à  $\mathbf{Q} = (0,0,L)$  (Fig. 2.9). Nous présentons aussi les intensités mesurées à  $\mathbf{Q} = (1,0,1)$  et  $\mathbf{Q} = (0,9,0,1)$  (mesure du bruit de fond) sur la Fig. 4.1.c. Nous soustrayons le bruit de fond pour obtenir les intensités intrinsèques.

La dépendance en température de l'inverse du rapport de flipping est présentée pour les deux vecteurs d'onde  $\mathbf{Q} = (2,0,0)$  et  $\mathbf{Q} = (0,0,4)$  sur les Fig. 4.1.d-e. Par la suite, l'inverse du rapport de flipping de référence  $1/FR_X^0(T)$  sera défini par la moyenne de ces deux inverses de rapport de flipping. La Fig. 4.1.f montre les dépendances en température de l'intensité de Bragg intrinsèque à  $\mathbf{Q} = (1,0,1)$  dans les canaux SF (symboles noirs) et NSF (symboles bleus) divisée par le rapport de flipping de référence  $FR_X^0(T)$ . Les deux signaux décroissent mais avec des pentes différentes. A haute température ils sont confondus dans la barre d'erreur. En refroidissant, nous observons un surcroît d'intensité dans le canal SF par rapport au NSF, sous  $\sim 200K$ , associé à l'apparition d'un signal magnétique.

L'intensité magnétique normalisée  $I_{mag,X}/I_X^{NSF}$  obtenue à  $\mathbf{Q} = (2,0,0)$  et  $\mathbf{Q} = (0,0,4)$  est reportée dans les Fig. 4.2.a-b, le signal magnétique, s'il existe, est sous le seuil de détection ( $< 5 \cdot 10^{-5}$ ) pour ces vecteurs d'onde. Les dépendances en température des intensités magnétiques normalisées pour  $\mathbf{Q} = (1,0,L)$  ( $L=0$  et  $1$ ) sont reportées dans les Fig. 4.2.c-d. Un signal magnétique apparaît en dessous de  $T_{mag} \sim 200K \pm 20K$ . Nos mesures d'abord effectuées à  $\mathbf{Q} = (1,0,1)$  sont confirmées à  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$  (Fig. 4.2.d) où les données sont en plus comparées à une étude précédente menée sur un échantillon sous-dopé de la famille Y123:  $YBa_2Cu_3O_{6,6}$  [32].

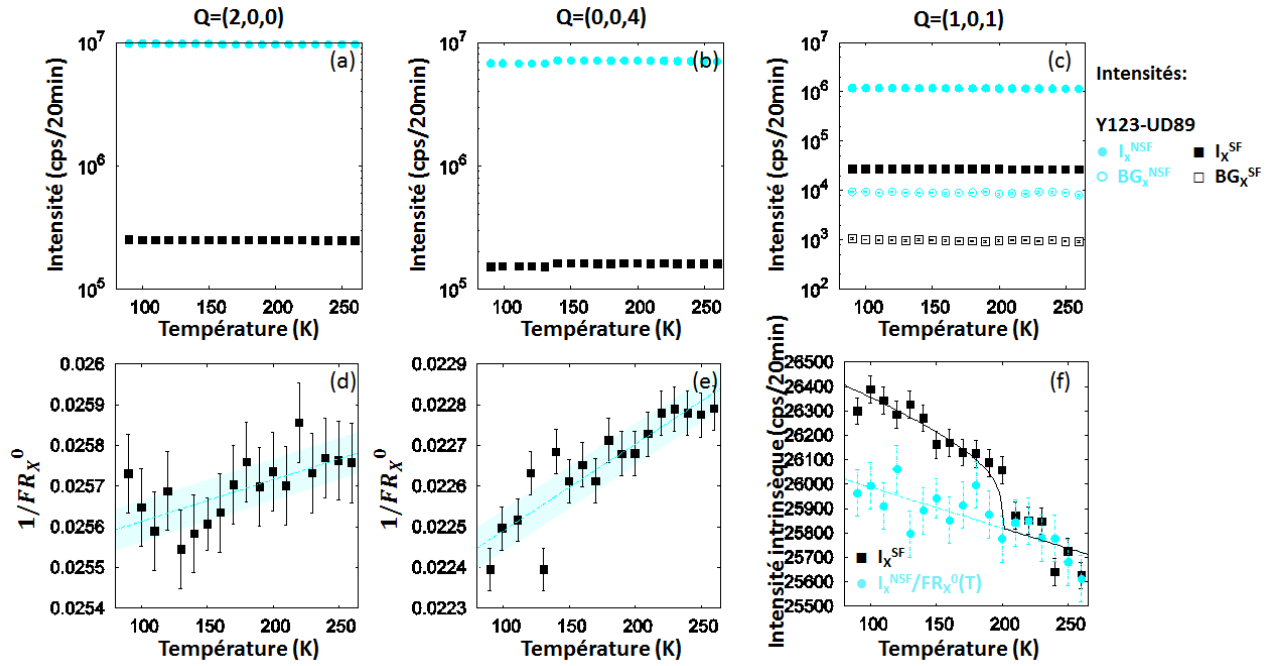


Figure 4.1: Y123-UD89. Mesures effectuées sur le spectromètre 4F1 avec la polarisation X. (a) Dépendances en température des intensités brutes mesurées à  $Q = (2,0,0)$ , dans les canaux NSF (symboles bleus) et SF (symboles noirs). (b) Dépendances en température des intensités brutes mesurées à  $Q = (0,0,4)$ , dans les canaux NSF (symboles bleus) et SF (symboles noirs). (c) Dépendances en température des intensités brutes mesurées aux positions  $Q = (1,0,1)$  (réflexion de Bragg, symboles pleins) et  $Q = (0.9,0,1)$  (référence de bruit de fond, symboles ouverts), dans les canaux NSF (symboles bleus) et SF (symboles noirs). (d) Dépendances en température de l'inverse du rapport de flipping  $1/FR_X^0(T)$  à  $Q = (2,0,0)$ . (e) Dépendances en température de l'inverse du rapport de flipping  $1/FR_X^0(T)$  à  $Q = (0,0,4)$ . (f) Dépendances en température de l'intensité de Bragg intrinsèque (bruit de fond soustrait) à  $Q = (1,0,1)$  dans les canaux SF (symboles noirs) et NSF (symboles bleus) divisée par le rapport de flipping de référence  $FR_X^0(T)$ , de manière à n'avoir aucun signal à haute température.

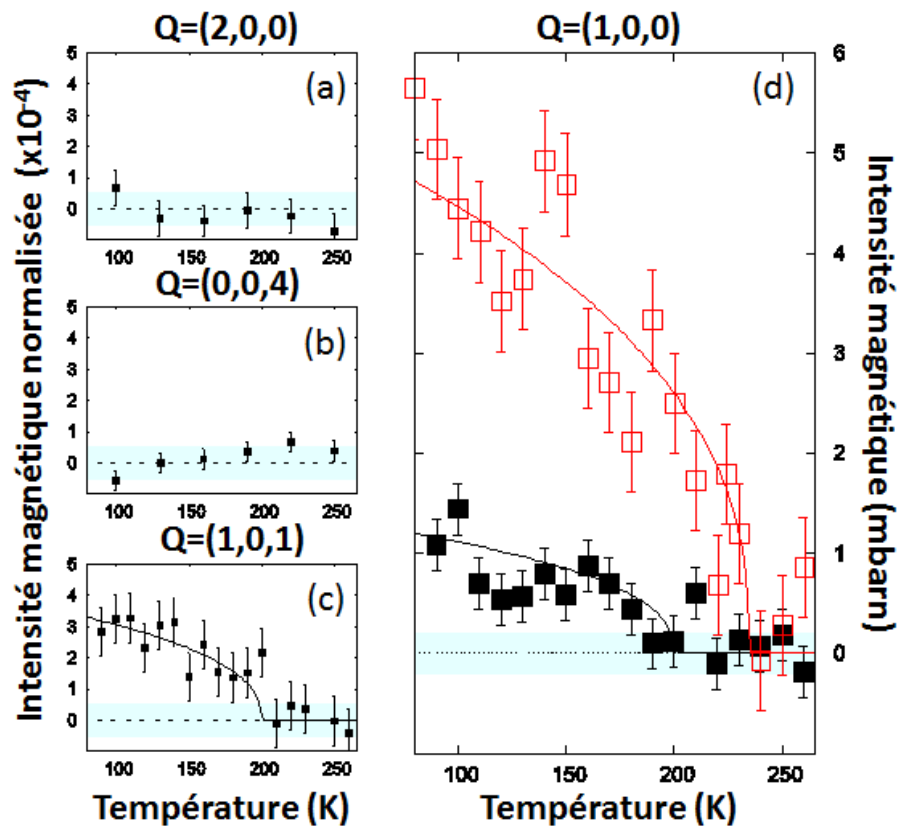


Figure 4.2: Y123-UD89. Mesures effectuées sur le spectromètre 4F1 avec la polarisation X. Dépendances en température de l'intensité magnétique normalisée aux positions de Bragg (a)  $Q = (2,0,0)$  et (b)  $Q = (0,0,4)$  prises comme références de l'inverse du rapport de flipping  $1/FR_X^0(T)$  et aux positions de Bragg (c)-(d)  $Q = (1,0,L)$  pour l'étude de l'ordre magnétique à  $q=0$ . (c)  $L=1$ , (d)  $L=0$ . Les données pour  $Q = (1,0,0)$  (Y123-UD89, carrés noirs pleins) ont été converties en unités absolues en utilisant l'intensité de la réflexion de Bragg  $Q = (0,0,4)$  [30] et comparées à l'étude d'un échantillon sous-dopé de la famille Y123:  $YBa_2Cu_3O_{6.6}$  ( $T_c=63K$ ) (carrés rouges ouverts) [32].

Le signal magnétique possède une dépendance en température caractéristique que nous avons ajustée par la fonction  $(1 - T/T_{mag})^{2\beta}$  avec  $2\beta = 0,4 \pm 0,17$ . Cette valeur de  $\beta$  est comparable à celle trouvée dans l'échantillon sous-dopé (Réf. [32] et étude Chapitre 3). Nous pouvons convertir l'intensité magnétique normalisée en unités absolues suivant une méthode déjà décrite dans des études précédentes [30]. Cette méthode de calibration s'effectue en deux étapes. Dans un premier temps, nous calculons le facteur de structure au carré ( $|F_N|^2$ , Eq. 2.8) pour une réflexion de Bragg de référence. Nous considérons la réflexion de Bragg  $\mathbf{Q} = (0,0,4)$  pour laquelle  $|F_N|^2 = 7$  barns [30] (ce calcul sera notamment détaillé dans le Chapitre 5 suivant). L'intensité de cette réflexion varie peu avec le dopage en trou et son module  $|\mathbf{Q}|$  est proche de celui des réflexions de Bragg  $\mathbf{Q}=(1,0,L)$  que nous avons étudiées (s'affranchissant ainsi de l'effet de résolution). Ensuite, nous appliquons un simple coefficient de proportionnalité:  $I_X^{NSF}(1,0,L) \times 7 / I_X^{NSF}(0,0,4)$ . Dans notre cas,  $I_X^{NSF}(1,0,0) / I_X^{NSF}(0,0,4) \sim 4/7$ , et l'intensité magnétique normalisée ( $= I_{mag,X} / I_X^{NSF}$ ) pour  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$  est de  $3 \cdot 10^{-4}$ . Ainsi, pour  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$  l'intensité magnétique  $I_{mag,X}$  est de  $4 \times 3 \cdot 10^{-4}$  barns = 1,2 mbarns. En appliquant la même procédure pour  $\mathbf{Q} = (1,0,1)$ , nous obtenons une intensité magnétique trois fois plus faible, soit 0,4 mbarns. En comparaison à des mesures effectuées avec des échantillons sous-dopés à  $\mathbf{Q} = (1,0,1)$  [30] et  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$  [32], l'intensité magnétique dans Y123-UD89 est quatre fois plus faible (Fig. 4.2.d). En considérant les mêmes hypothèses que celles énoncées aux Chapitres 2 et 3 pour déterminer le moment magnétique (Eq. 2.41) et en gardant à l'esprit que l'intensité magnétique est proportionnelle au carré du moment magnétique  $|\mathbf{M}|^2$ , le moment magnétique est deux fois plus faible et est estimé à seulement 0,05  $\mu\text{B}$  pour Y123-UD89 comparé à 0,1  $\mu\text{B}$  pour les échantillons sous-dopés [108]. La valeur du moment est déterminée dans l'hypothèse d'un ordre magnétique longue portée pour la phase CC- $\theta_2$ , alors que nous nous trouvons en présence d'un ordre possiblement à courte portée. Cette méthode nous permet toutefois d'obtenir une bonne estimation de l'ordre de grandeur du moment magnétique. Quelles que soient les hypothèses, cette étude nous permet de mettre en évidence une forte diminution de l'intensité magnétique à  $q=0$  dans l'échantillon Y123-UD89 alors que  $T_{mag}$  demeure élevée. La diminution de l'intensité suggère la redistribution du signal magnétique dans l'espace réciproque et pourrait être expliquée par une diminution des longueurs de corrélation.

#### 4.1.2 Mesure des longueurs de corrélation

Nous avons également mené une expérience de diffusion de neutrons polarisés avec cet échantillon Y123-UD89 aligné dans le plan de diffusion  $[1,0,0]/[0,0,1]$  sur le diffractomètre D7. Cet instrument possède une meilleure résolution en  $\mathbf{Q}$  que 4F1 dans les conditions choisies afin de déterminer les longueurs de corrélation dans le plan. La Fig. 4.3 présente l'espace réciproque étudié lors de nos mesures de diffraction sur D7. Comme nous l'avons déjà abordé au Chapitre 3, cet instrument permet de mesurer l'intensité le long de trajectoires (plusieurs valeurs de  $2\theta$  accessibles). Nous avons réalisé des mesures selon différentes trajectoires passant par différentes positions  $\mathbf{Q} = (1,0,L)$ , entre les réflexions de Bragg  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$  et  $\mathbf{Q} = (1,0,1)$  (zones bleues sur la Fig. 4.3).

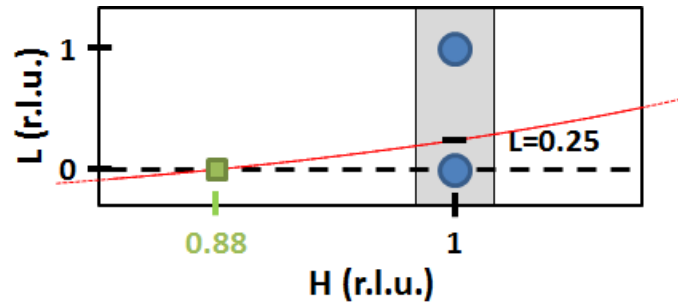


Figure 4.3: Représentation schématique de l'espace réciproque étudié lors de notre expérience de diffraction sur D7. Nous nous sommes particulièrement intéressés à la trajectoire passant par  $\mathbf{Q} = (1,0,0.25)$  (ligne rouge) pour l'extraction des longueurs de corrélation magnétique et à l'étude de la diffusion diffuse autour de  $\mathbf{Q} = (0.88,0,0)$  (zone verte). Les zones bleues matérialisent les réflexions de Bragg  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$  et  $\mathbf{Q} = (1,0,1)$  entre lesquelles nous avons réalisé notre étude.

#### 4.1.2.1 Dans le plan ab

Nous avons particulièrement orienté nos recherches le long de la trajectoire passant par  $\mathbf{Q} = (1,0,0.25)$  (ligne rouge sur la Fig. 4.3). A cette position, le contraste entre l'intensité magnétique et l'intensité nucléaire par rapport à une position de Bragg comme  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$  est amélioré. En effet, à  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$ , le rapport entre l'intensité magnétique et l'intensité nucléaire est environ de  $3 \cdot 10^{-4}$ , comme nous l'avons vu sur la Fig. 4.2.c. Lorsque nous effectuons nos mesures légèrement en dehors de la réflexion de Bragg, le signal magnétique diminue légèrement mais est toujours présent, tandis que la diffusion nucléaire est réduite (de l'ordre de 5 fois plus faible). Comme le signal magnétique que nous recherchons est faible (estimé à  $0,05 \mu B$ ), ce vecteur d'onde est un bon compromis.

La Fig. 4.4 présente deux coupes en H (projection de la trajectoire des  $\mathbf{Q} = (H,0,L)$  selon H) de l'intensité mesurée autour de  $\mathbf{Q} = (1,0,0.25)$  dans le canal SF, à deux températures 100K (carrés rouges) et 300K (carrés noirs). Les intensités provenant des trois polarisations X, Y et Z sont sommées. Ces données sont obtenues en appliquant la procédure d'extraction du signal sur D7 présentée au Chapitre 2, en tenant compte de la correction du rapport de flipping mesuré à partir d'un échantillon de quartz (Eq. 2.44 et 2.45). Pour faciliter l'observation, nous avons en plus appliqué une fonction logarithme. Bien que les courbes présentent une anomalie en leurs centres (forme du signal en creux), nous observons un surcroît d'intensité qui apparaît en baissant la température (zone colorée en jaune).

L'observation de ce signal en creux nous informe sur le fait que la correction du rapport de flipping provenant de la mesure du quartz est incomplète et erronée, le rapport de flipping varie en angle  $2\theta$  (selon H), prouvant ainsi la nécessité d'ajuster ces rapports de flipping. Le quartz amorphe donne une diffusion peu corrélée en  $\mathbf{Q}$  et les rapports de flipping sont généralement fiables pour corriger la diffusion diffuse. Toutefois, des erreurs systématiques peuvent se produire lors de mesures autres que de la diffusion diffuse, par exemple une réflexion de Bragg. Nous étudions un monocristal. Sur ce type d'échantillon, les rapports de flipping sont différents de ceux obtenus avec le quartz de référence (en raison des différentes tailles et mosaïques des monocristaux). Pour améliorer l'analyse, nous ajustons le rapport de flipping pour chaque détecteur en considérant



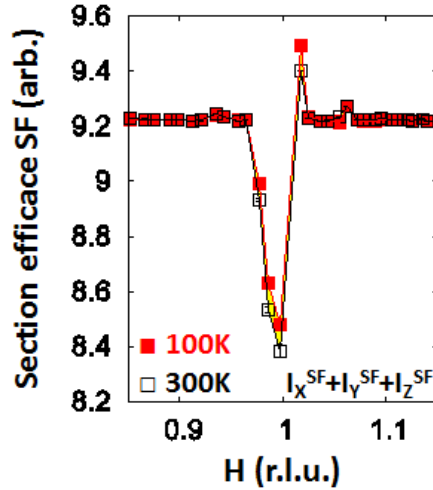


Figure 4.4: Y123-UD89. Mesures effectuées sur le diffractomètre D7. Coupes en H de l'intensité mesurée dans le canal SF sommée sur les trois polarisations  $I_X^{SF} + I_Y^{SF} + I_Z^{SF}$  autour de  $Q = (1,0,0.25)$  à  $T=300K$  (carrés noirs) et  $T=100K$  (carrés rouges), après correction du rapport de flipping mesuré avec l'échantillon de quartz. Pour faciliter l'observation, nous avons en plus appliqué une fonction logarithme. L'aire en jaune représente l'augmentation de signal apparaissant à basse température.

l'absence de signal magnétique à une température de référence  $T_{ref}$  (ici la température ambiante) pour chaque  $Q$  et pour chaque polarisation. Pour calculer le nouveau rapport de flipping à appliquer, nous avons ré-écrit l'Eq. 2.44:

$$FR_{ajust} = \frac{I^{NSF} - I^{SF}}{I^{SF} - (I_{corr}^{SF})_{ajust}} + 1 \quad (4.1)$$

En pratique, nous prenons les valeurs mesurées des intensités  $I_{NSF}$  et  $I_{SF}$  (après correction du bruit de fond) pour les détecteurs pour lesquels nous souhaitons ajuster le rapport de flipping. Ensuite, nous déterminons une valeur d'intensité SF pour qu'à 300K il n'y ait pas de signal magnétique ( $(I_{SF}^{corr})_{ajust}$ ). Enfin nous appliquons l'Eq. 4.1, et ceci pour toutes les trajectoires étudiées. Le  $FR_{ajust}$  ainsi obtenu est utilisé dans les Eq. 2.44 et 2.45 afin d'appliquer la bonne correction de rapport de flipping. Par la suite, tous les résultats présentés pour l'échantillon Y123-UD89 tiendront compte de cet ajustement du rapport de flipping.

Nous reportons sur la Fig. 4.5.a l'évolution du signal magnétique en fonction de la température et du vecteur d'onde autour de  $Q = (1,0,0.25)$ . Les intensités mesurées dans le canal SF pour les polarisations X et Z sont moyennées. Nous reportons ces différentes coupes sur la Fig. 4.5.b, avec de bas en haut les résultats pour des températures allant de 300K à 100K. A mesure que la température diminue, nous observons un signal croissant centré en  $H=1$ . Le signal magnétique, maximum à basse température, apparaît dès les hautes températures (bien avant  $T_{mag}=200K$ ). A l'aide d'un ajustement par une gaussienne, nous pouvons extraire la pleine largeur à mi-hauteur. Sur la Fig.4.5.c, nous reportons cette quantité en fonction de la température. Dans la précision de notre mesure, la dépendance en température de la largeur semble constante. A aucune température particulière, nous ne pouvons observer de changement notable. En sommant toutes les coupes pour

$T \leq 200K$ , nous obtenons une meilleure statistique et nous pouvons extraire  $\Delta h = 0.025 \pm 0.004$  r.l.u.. La partie grisée sur la Fig.4.5.c correspond à la résolution  $\Delta h_{res}$ . Nous l'avons déterminée en ajustant la réflexion de Bragg  $Q = (1,0,0)$  dans le canal NSF, à basse température  $T=100K$ . Nous obtenons  $\Delta h_{res} = 0,0195 \pm 0.001$  r.l.u., Fig. 4.5.d.

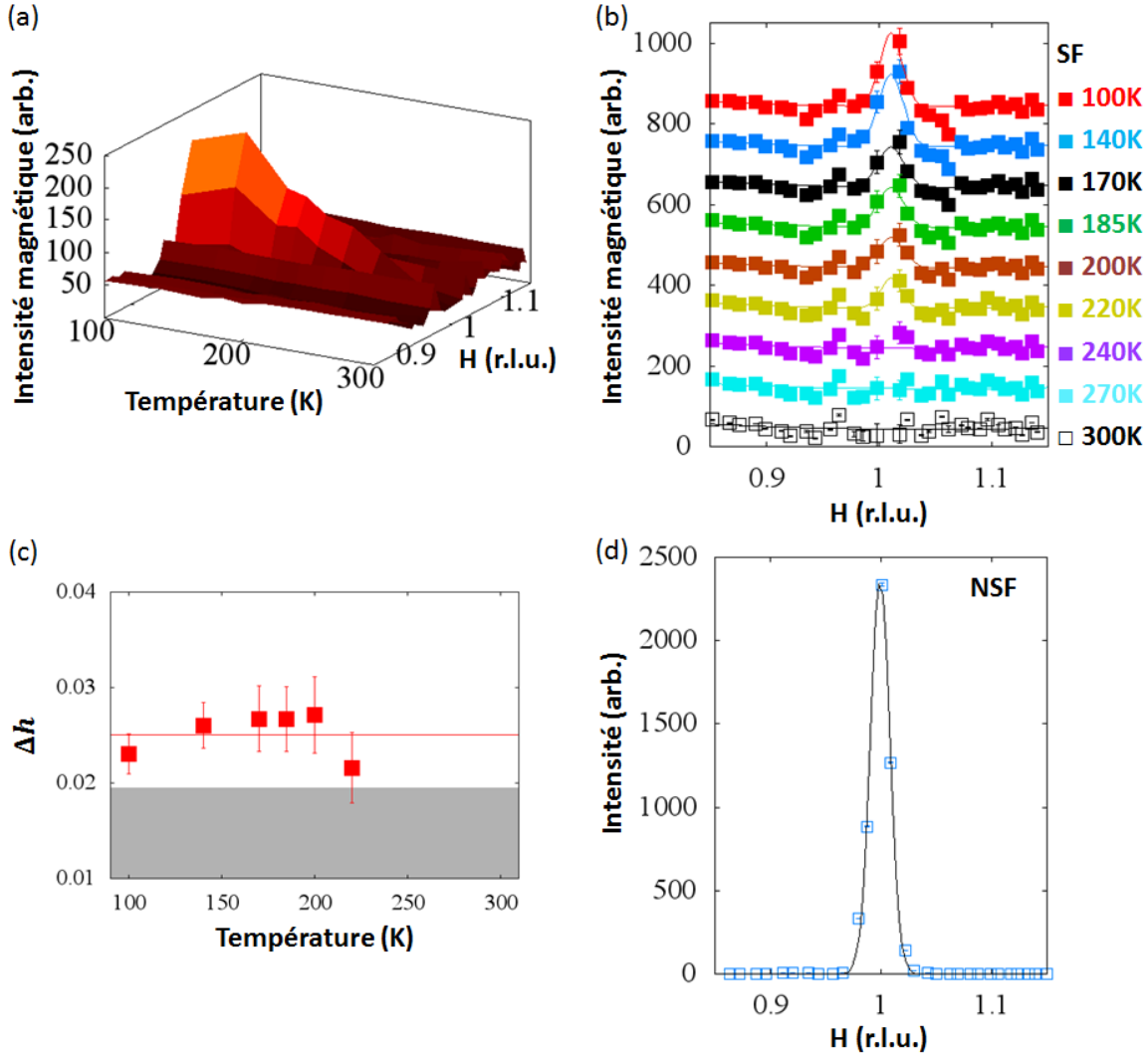


Figure 4.5: Y123-UD89. Mesures effectuées sur le diffractomètre D7. (a) Visualisation 3D des coupes en H réalisées autour de  $Q = (1,0,0.25)$ , après ajustement du rapport de flipping, à plusieurs températures comprises entre 300K et 100K. (b) Coupes en H de cette même intensité magnétique. Les résultats présentés proviennent de la moyenne des intensités mesurées dans le canal SF pour les polarisations X et Z. (c) Dépendance en température de  $\Delta h$ . L'aire grisée correspond à la résolution  $\Delta h_{res} = 0,0195 \pm 0.001$  r.l.u déterminée par (d) l'intensité mesurée dans le canal NSF à  $Q = (1,0,0)$ , pour la polarisation Z, à basse température  $T=100K$ .

Nous supposons que les longueurs de corrélation dans le plan sont isotropes. La longueur de corrélation  $\xi_a$  est obtenue par déconvolution:  $\xi_a = a / (\pi * \Delta h_i)$ , où  $\Delta h_i = \sqrt{\Delta h^2 - \Delta h_{res}^2}$  ( $a = 3,85\text{\AA}$  est le paramètre de maille). Nous en déduisons  $\xi_a \sim 20a \sim 75\text{\AA}$ . La longueur de corrélation dans le plan est donc finie.

La résolution le long de H est meilleure sur D7 que sur 4F1 dans les conditions de mesures choisies. Sur 4F1,  $\Delta h_{res}=0.08$  r.l.u., la longueur de corrélation observée dans le plan,  $\xi_a \sim 20a$ , est donc trop grande pour être détectée sur ce spectromètre (signal limité par la résolution). La réduction de l'intensité observée sur 4F1 (Fig. 4.2.d) n'est pas imputable à  $\xi_a$  fini, il est donc nécessaire de déterminer  $\xi_c$ .

#### 4.1.2.2 Le long de l'axe c

Nous avons effectué des mesures sur une autre trajectoire passant par  $Q = (1,0,0.5)$  pour quatre températures: 100K, 170K, 240K et 300K. Le signal à cette position est beaucoup plus faible, rendant l'étude plus délicate. Dans le but d'améliorer le contraste des intensités, nous avons recours à la moyenne des intensités donnée par l'Eq. 2.51. Pour chaque température étudiée et quel que soit le vecteur d'onde, nous avons moyenné les intensités sur  $N=10$  détecteurs.

Nous reportons sur la Fig. 4.6.a la dépendance en température de l'intensité magnétique maximale (obtenue par la somme des trois sections efficaces dans le canal SF) pour les deux valeurs de L étudiées (0,25 et 0,5). Un bruit de fond est soustrait, il est obtenu par la dépendance en température de l'intensité en dehors de  $Q = (1,0,L)$  (Fig. 4.5.b) autour de  $H \sim 0,9$  ou  $H \sim 1,1$ .

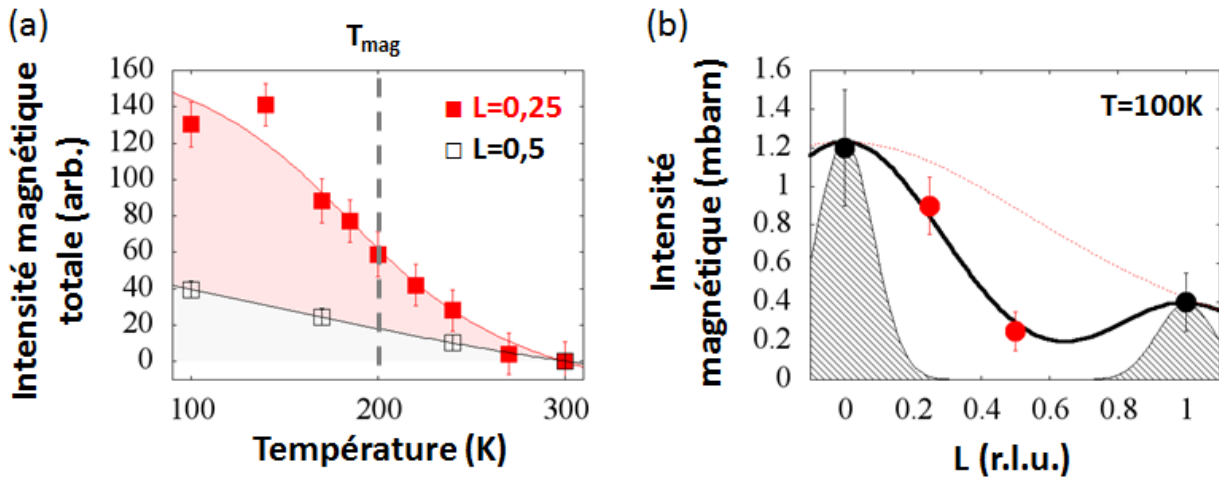


Figure 4.6: Y123-UD89. Mesures effectuées sur le diffractomètre D7. (a) Dépendance en température de l'intensité magnétique maximale obtenue en sommant l'intensité pour les trois polarisations  $I_X^{SF} + I_Y^{SF} + I_Z^{SF}$  (bruit de fond soustrait) pour deux valeurs de L: 0,25 (carrés pleins rouges) et 0,5 (carrés vides noirs). (b) Dépendance en L de l'intensité magnétique (en mbarn) d'après les mesures de 4F1 (points noirs) et D7 (points rouges), à 100K. La partie hachurée correspond à des mesures dans des échantillons d'Y123 plus sous-dopés où l'ordre est 3D [32, 108]. La ligne rouge en pointillés représente des corrélations 2D comme observées dans  $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$  [37]. Les trois courbes sont normalisées à  $L=0$ .

D'une part, nous observons que le signal commence à augmenter bien avant la température de transition  $T_{mag}=200$ K, en accord avec ce qui a été vu précédemment sur la Fig. 4.5.b. Cela voudrait dire que nous ne sommes pas en présence d'une réelle transition de phase mais plutôt d'une aug-

mentation des corrélations à basse température (crossover). D'autre part, la comparaison entre les deux valeurs de  $L$  montre que les deux intensités magnétiques augmentent, mais plus fortement pour  $L = 0,25$ . Ce comportement suggère une redistribution progressive de l'intensité magnétique le long de la direction  $\mathbf{Q} = (1,0,L)$  vers les positions de Bragg magnétiques, mettant en évidence une transition 2D vers 3D des corrélations magnétiques en température.

La conversion en unités absolues des intensités à  $\mathbf{Q} = (1,0,L)$  permet une comparaison des résultats obtenus sur 4F1 (points noirs Fig. 4.6.b) et D7 (points rouges Fig. 4.6.b). Pour la calibration sur D7, nous avons utilisé la réflexion de Bragg  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$  dont le facteur de structure nucléaire au carré (donné par l'Eq. 2.8) est de 4barns. En considérant que la somme des intensités pour les trois polarisations est égale à deux fois l'intensité magnétique totale et en appliquant un facteur de proportionnalité entre les intensités mesurées, l'intensité magnétique à  $\mathbf{Q} = (1,0,0.25)$  est de  $0.9 \pm 0,15$  mbarns. Comme le rapport entre les deux courbes pour les deux valeurs de  $L$  est de  $\sim 3,6$  (Fig. 4.6.a), l'intensité magnétique en  $\mathbf{Q} = (1,0,0.5)$  est de  $0,25 \pm 0,1$  mbarns. Nous rappelons que l'intensité magnétique est de  $1,2 \pm 0,3$  mbarns à  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$  et  $0,4 \pm 0,15$  mbarns à  $\mathbf{Q} = (1,0,1)$ . Le signal apparaît large le long de  $c^*$ . La largeur  $\Delta l$  est estimée à  $0,65 \pm 0,05$  r.l.u. à 100K. En utilisant la résolution  $\Delta l_{res} = 0,25$  r.l.u. (essentiellement donnée par la mosaïque de l'échantillon dans cette direction), nous pouvons extraire la longueur de corrélation  $\xi_c = c/(\pi * \Delta l_i)$ ,  $\Delta l_i = \sqrt{\Delta l^2 - \Delta l_{res}^2}$  (où  $c = 11,7\text{\AA}$  est le paramètre de maille). Ainsi,  $\xi_c \sim 0,5c \sim 6\text{\AA}$ , la longueur de corrélation apparaît très courte le long de  $c$ . Il est à noter que la largeur  $\Delta l$  mesurée est environ trois fois plus grande que la résolution le long de  $c$  de 4F1 ( $\Delta l_{res}=0.2$  r.l.u.). Elle serait donc mesurable sur ce spectromètre.

La dépendance en  $L$  observée est intermédiaire entre deux cas limites: des corrélations 2D (ligne rouge Fig. 4.6.b) comme observées dans La214 à faible dopage [37] et un ordre 3D bien défini (partie hachurée Fig. 4.6.b) dans les échantillons de la famille Y123 sous-dopés où  $\xi_c \gg 7c$  [32, 108]. Les courbes sont normalisées à  $L=0$ . La perte du caractère 3D de l'ordre est accompagnée de la réduction des longueurs de corrélation. La large dépendance en  $L$  pour Y123-UD89 (ligne noire Fig. 4.6.b) peut expliquer la forte baisse de l'intensité magnétique, correspondant à la redistribution de celle-ci dans l'espace réciproque. Entre l'échantillon  $YBa_2Cu_3O_{6.6}$  et l'échantillon  $YBa_2Cu_3O_{6.85}$ ,  $T_{mag}$  passe de 250K à 200K (réduction de 20%). L'intensité magnétique à  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$  est réduite de 75% alors que l'intensité intégrée passe de  $I \times \Delta l = 5\text{mbarns} \times 0,2$  à  $1,2\text{mbarns} \times 0,65$  (réduction de 22%). Ainsi, bien que l'intensité magnétique soit fortement réduite en s'approchant du dopage optimal pour une position de Bragg, l'évolution en dopage de l'intensité intégrée en  $L$  suit celle de la température  $T_{mag}$ . La large dépendance en  $L$  justifie également le fait que nous pouvions étudier les corrélations dans le plan grâce à la projection selon  $H$ , autour de  $\mathbf{Q} = (1,0,L)$  avec  $L$  non entier.

Grâce à nos mesures sur le diffractomètre D7, nous avons démontré la courte portée de l'ordre magnétique, dans le plan et le long de  $c$ . L'étude de quelques trajectoires autour des différentes positions  $\mathbf{Q} = (1,0,L)$  a révélé la persistance de la diffusion magnétique hors des réflexions de Bragg.

Bien que la sensibilité des mesures magnétiques locales telles que la résonance magnétique nucléaire (RMN) devrait permettre d'observer le moment magnétique (de l'ordre de  $0,1\mu_B$ ) rapporté par les mesures de diffusion de neutrons, elle ne fournissent aucune indication de la présence de champ magnétique statique. Le fait que les longueurs de corrélation soient finies pourrait permettre de comprendre le désaccord entre les mesures RMN et la diffusion de neutrons. Nous pouvons supposer l'existence de domaines magnétiques de taille finie, qui pourraient fluctuer très lentement. Il n'est cependant pas possible de donner une valeur de cette échelle de temps d'après nos mesures. Une limite haute peut toutefois être donnée par l'échelle de temps caractéristique de diffusion de neutrons qui est de  $\sim 10^{-14}s$ . Pour  $E=1meV$ , d'après  $E = \hbar\omega$  (avec  $\hbar \sim 10^{-17}eV.s$ ),  $1/\omega = 10^{-14}s$ . Dans le cas de la RMN [149, 150] les échelles de temps sont beaucoup plus longues. Dans le cadre du modèle de boucles de courant, les travaux de C. M. Varma [94] indiquent que des domaines avec une longueur de corrélation typique de l'ordre de  $\sim 25a$  fluctueraient trop rapidement pour être détectés par des sondes locales, mais suffisamment lentement pour qu'une réponse quasi-élastique soit observable par diffusion de neutrons. Ainsi, nous devrions avoir des longueurs de corrélations finies quel que soit le dopage pour expliquer le fait que l'ordre magnétique à  $q=0$  ne soit pas observé par les sondes locales.

Si nous comparons maintenant les longueurs de corrélation de l'ordre magnétique à  $q=0$  à celles de l'ordre de charge (CDW) [146] pour le dopage  $p\sim 0,15$ , nous remarquons que  $\xi_{CDW} \sim 8a < \xi_{ab} \sim 20a$ . De la même manière, la température d'apparition de l'ordre magnétique à  $q=0$  est supérieure à la température d'apparition de l'ordre de charge quel que soit le dopage, et pour  $p\sim 0,15$ ,  $T_{CDW} \sim 115K < T_{mag} \sim 200K$ . Cela suggère la prééminence de l'ordre magnétique à  $q=0$  sur l'instabilité CDW.

Enfin, pour rendre compte des longueurs de corrélation finies, nous pouvons émettre l'hypothèse selon laquelle il y aurait du désordre dans notre échantillon, dont la nature peut être extrinsèque ou intrinsèque. Par exemple, des fragments de chaînes CuO dans Y123 pourraient induire un désordre au voisinage des plans CuO<sub>2</sub> (désordre extrinsèque), ce qui créerait des domaines magnétiques. Le désordre a également été proposé pour expliquer la courte portée des corrélations de l'ordre CDW [150]. D'autre part, nous ne pouvons pas non plus exclure que la formation de domaines puisse provenir de la compétition avec d'autres instabilités électroniques (désordre intrinsèque).

#### 4.1.2.3 Difficulté de l'analyse de polarisation sur D7

Jusqu'à maintenant, pour déterminer l'intensité magnétique maximale, nous avons considéré des sommes d'intensités provenant des différentes polarisations. En théorie (Eq. 2.46-2.48), nous sommes en mesure d'étudier séparément les trois polarisations. L'angle  $\beta$  ( $= \gamma + \frac{\pi}{2} - \frac{2\theta}{2}$ , Chapitre 2) entre le vecteur d'onde  $\mathbf{Q}$  étudié et la direction de polarisation  $X$  est connu sur le diffractomètre D7. Ainsi, pour un vecteur d'onde de la forme  $\mathbf{Q} = (1,0,L)$  avec  $L$  qui tend vers 0, nous aurions  $|\mathbf{Q}| \sim 1,6\text{\AA}^{-1}$  et donc  $\theta \sim 40^\circ$  (d'après l'Eq. 2.40), d'où  $\sin^2(\beta) > \cos^2(\beta)$ . L'intensité magnétique

maximale devrait donc être observable pour la polarisation Y. Toutefois, nous avons observé expérimentalement que ce n'était pas le cas.

La Fig. 4.7.a montre la dépendance en température des intensités moyennées sur  $N=10$  détecteurs pour les trois polarisations X, Y et Z dans le canal SF autour de  $Q = (1,0,0.25)$ . La Fig. 4.7.b présente les mêmes quantités pour le vecteur d'onde  $Q = (1,0,0.5)$ . Dans les deux cas, l'intensité pour la polarisation Y est la plus faible et les intensités pour les polarisations X et Z sont plus élevées.

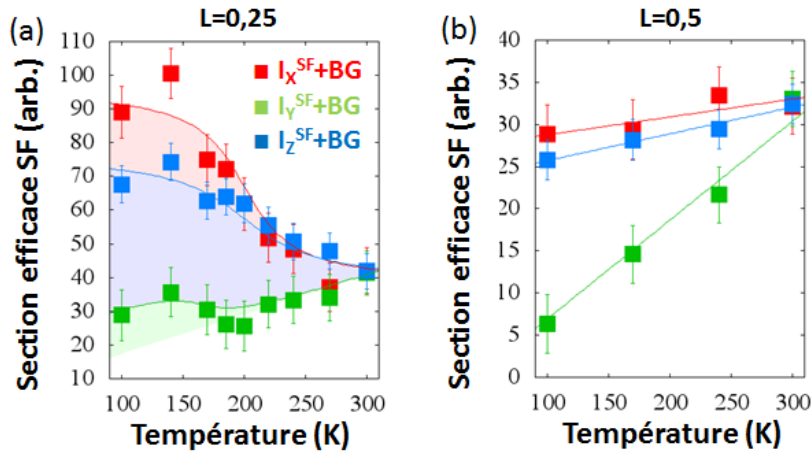


Figure 4.7: Y123-UD89. Mesures effectuées sur le diffractomètre D7. Dépendance en température de l'intensité mesurée dans le canal SF pour les trois polarisations X, Y et Z pour (a)  $L=0,25$  et (b)  $L=0,5$ .

Ce problème pourrait provenir d'un décentrage de l'échantillon Y123-UD89 (du fait de son montage et/ou de sa forme) car nous ne l'avons pas observé dans le cas de l'étude de l'échantillon Y123-UD61 (Chapitre 3). De plus, le rapport de flipping peut varier en température. Lors de l'ajustement des rapports de flipping (Eq. 4.1) nous appliquons la même correction quelle que soit la température. Cette variation n'est en plus pas forcément la même pour toutes les polarisations.

L'aire blanche dans la Fig. 4.7.a matérialise le bruit de fond. Nous supposons qu'il est le même quelle que soit la polarisation. Pour le déterminer, la première hypothèse est que le signal à  $T=300K$  est nul. Ensuite, le bruit de fond ne peut pas être constant sinon l'intensité serait négative pour la polarisation Y (quelque soit la valeur de  $L$ ). Nous supposons que le bruit de fond est une droite passant par le point à  $T=300K$ . Sa pente est déterminée par les mesures à  $L=0,5$ . La pente minimale possible du bruit de fond est donnée par la droite verte de la Fig. 4.7.b. En reportant la pente de bruit de fond déterminée à partir des mesures à  $L=0,5$  pour les mesures à  $L=0,25$ , nous remarquons que l'intensité pour la polarisation Y est nulle et les intensités pour les polarisations X et Z restent comparables à haute température.

Le possible décentrage de l'échantillon implique que les intensités mesurées dans le plan ne suivent pas les Eq. 2.46-2.47. Nous considérerons alors la somme des intensités pour les polarisation X et Y qui est indépendante de  $\beta$ .



### 4.1.3 Inclinaison du moment magnétique

#### 4.1.3.1 Composantes, dans le plan et hors-plan, du moment magnétique

Nous avons vu dans les Chapitres 1 et 2 et lors de l'étude de l'échantillon Y123-UD61 (Chapitre 3) qu'il est possible d'étudier séparément les deux composantes du moment magnétique, celle dans le plan  $M_{ab} = \sqrt{M_a^2 + M_b^2}$  et celle hors plan  $M_c$  (Fig. 1.13.a). Nous ne pouvons pas distinguer  $M_a$  et  $M_b$  puisque l'échantillon Y123-UD89 est mâché.

D'après les Eq. 2.46-2.48,  $I_X^{SF} + I_Y^{SF} - I_Z^{SF}$  donne directement la composante dans le plan  $M_{ab}^2$  tandis que  $I_Z^{SF}$  correspond essentiellement à la composante hors plan du moment magnétique,  $M_c^2$  (lorsque  $q_l = \frac{2\pi}{c}L/|Q|$  tend vers 0). C'est effectivement le cas avec  $L = 0,25$ .

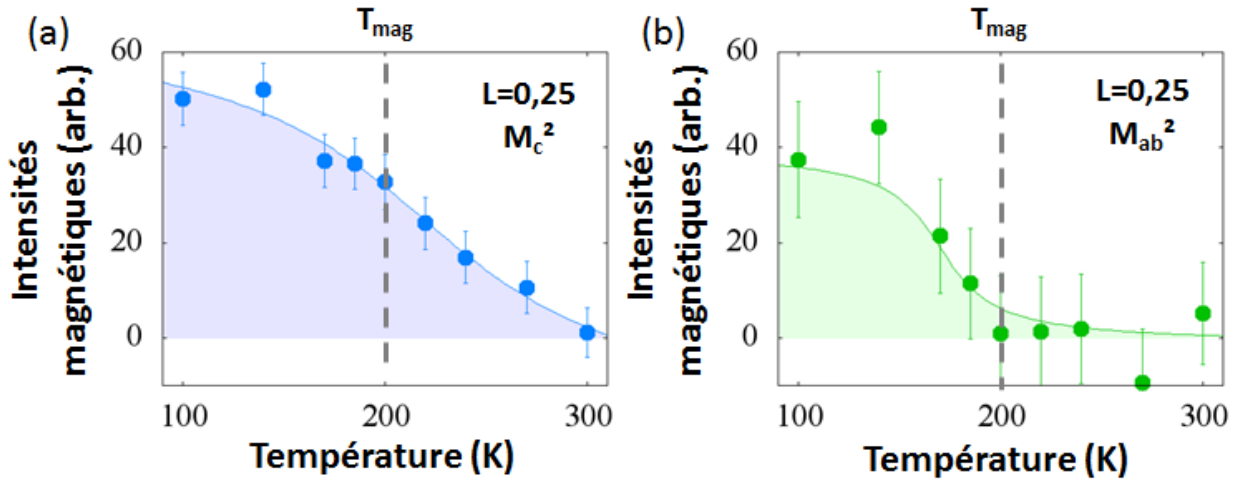


Figure 4.8: Y123-UD89. Mesures effectuées sur le diffractomètre D7. Dépendance en température des deux composantes du moment magnétique à  $L=0,25$ : (a) composante hors-plan  $M_c^2$  et (b) composante dans le plan  $M_{ab}^2$ . Les deux figures qui sont présentées tiennent compte de la soustraction du bruit de fond.

En appliquant ces deux principes, nous obtenons les dépendances en température des deux composantes du moment magnétique, Fig. 4.8.a-b. Les données sont obtenues après moyenne des intensités sur  $N=10$  détecteurs auxquelles nous avons soustrait le bruit de fond discuté précédemment. Nous remarquons que les deux quantités décroissent en température. Toutefois, la composante  $M_{ab}$  diminue plus rapidement que  $M_c$ . Quelle est l'origine de ces deux comportements différents en température? D'après l'Eq. 2.51, où l'intensité moyennée  $\bar{I} \propto I_0 \Delta q$  avec  $I_0$  l'intensité magnétique et  $\Delta q \propto 1/\xi_{ab}$ ,  $\bar{I}$  donne le rapport de l'intensité magnétique sur la longueur de corrélation dans le plan:  $\bar{I} \propto I_0/\xi_{ab}$ . Nous pouvons supposer que les deux composantes du moment magnétique possèdent des dépendances en température distinctes de part leur amplitude  $I_0$  et/ou leur longueur de corrélation  $\xi_{ab}$ .

A basse température, les deux composantes, dans le plan et hors plan, sont présentes, impliquant l'existence d'un angle d'inclinaison du moment magnétique. En effet, comme décrit dans le Chapitre 1, le rapport entre  $M_{ab}$  et  $M_c$  à 100K peut être utilisé pour définir un angle d'inclinaison  $\theta$  du moment magnétique par rapport à l'axe c avec  $\tan(\theta) = M_{ab}/M_c$  (Eq. 1.1). D'après les Fig. 4.8.a-b, ce rapport est de  $\sim 0,84$ . Ainsi, l'angle  $\theta$  est de l'ordre de  $40^\circ \pm 9^\circ$  pour  $L=0,25$  à basse température



(100K). D'après la Fig. 4.6.b, les corrélations magnétiques à  $L=0,25$  appartiennent au même pic que  $L=0$  (pic large en L). La valeur déterminée ici reste donc valable pour  $L=0$ . Une valeur similaire de l'angle d'inclinaison à basse température pour  $L=0$  a justement été reportée pour des échantillons sous-dopés de la même famille, d'après [30, 108] et notre étude de l'échantillon  $YBa_2Cu_3O_{6.6}$  du Chapitre 3. Cette valeur est aussi en accord avec les observations dans d'autres familles comme La214 [37], Hg1201 [36] ou encore Bi2212 [132] que nous allons étudier dans le chapitre suivant.

A mesure que la température augmente, au dessus de  $T_{mag}=200K$ , la composante dans le plan tend à disparaître (l'intensité magnétique est faible voire nulle dans les barres d'erreur). De ce fait, à haute température, seule la composante hors plan subsiste, tout en diminuant graduellement à son tour jusqu'à  $T=300K$ . Toujours en calculant le rapport entre les deux composantes, nous obtenons la dépendance en température de l'angle  $\theta$  d'inclinaison du moment magnétique, dont la représentation schématique est donnée dans la Fig. 4.9.  $\theta$  diminue rapidement lorsque la température augmente, jusqu'à tendre vers 0.

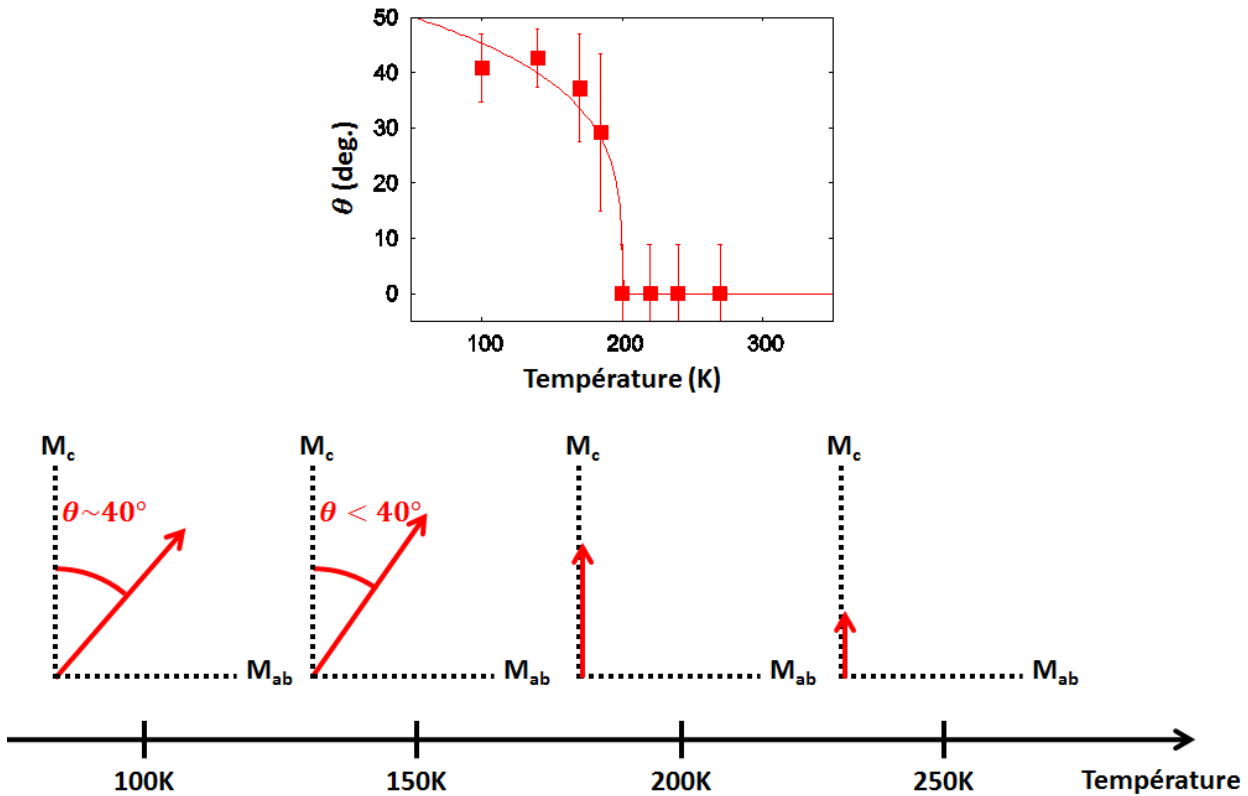


Figure 4.9: Y123-UD89. Mesures effectuées sur le diffractomètre D7. Dépendance en température de l'angle d'inclinaison  $\theta$  du moment magnétique par rapport à l'axe c et sa représentation schématique.

La composante le long de c se corrèle la première à haute température alors que la composante dans le plan est absente. Le système présente donc un caractère Ising le long de l'axe c à haute température (le moment magnétique reste confiné dans la direction perpendiculaire au plan  $CuO_2$ ), comme prédit initialement par la théorie des boucles de courant [87]. La composante dans le plan se développe seulement sous  $T_{mag}$  donnant lieu à l'inclinaison du moment magnétique à basse température.

Comme nous l'avons déjà démontré lors de l'étude de la composition  $YBa_2Cu_3O_{6.6}$ , notre résultat exclut tous les modèles où  $\theta$  est nul à  $L=0$  (pour  $T < T_{mag}$ ). La dépendance en température de  $\theta$  n'est pas non plus compatible avec les théories où la direction du moment est fixe, comme par exemple avec un modèle de boucles de courant délocalisées hors des plans  $CuO_2$  (incluant les oxygènes apicaux) [97]. Il en va de même dans le cas où la composante dans le plan est liée au couplage spin-orbite [151]. Dans ces modèles [97, 151], la composante dans le plan devrait en plus impliquer un signal magnétique observable à  $\mathbf{Q} = (0,0,L)$ , ce qui n'est pas le cas expérimentalement (Fig. 4.2.b). Dans l'approche des boucles de courant dans le plan, il n'y a pas de moment dans le plan à proprement parler. Nous rappelons que ce modèle [92] considère quatre états de boucles (domaines) possibles avec des motifs magnétiques différents, mais les moments orbitaux sont toujours perpendiculaires au plan  $CuO_2$ . Chaque domaine produit un signal magnétique hors plan, mesurable par diffusion de neutrons. La composante magnétique dans le plan observée par diffusion de neutrons, quant à elle, proviendrait de la superposition quantique des quatre états de boucles différents (phénomène d'interférence). A haute température, les fluctuations thermiques domineraient les effets quantiques, ainsi la composante dans le plan disparaîtrait.

Dans le cas de l'échantillon Y123-UD61 ( $p \sim 0,12$ ) également étudié sur D7 (Chapitre 3, Fig. 3.4, étude réalisée à  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$ ), les deux composantes semblent apparaître en même temps à  $T_{mag}$ . Dans la précision de notre mesure, à plus haute température si un signal existe il est très faible pour  $M_{ab}$  comme pour  $M_c$  par rapport au signal à basse température. Cela suggère que l'évolution en température des composantes n'est pas la même en dopage. Autour du dopage optimal ( $p \sim 0,15$ ), comme un signal magnétique est clairement présent au dessus de  $T_{mag}$ , il ne s'agit plus véritablement d'un ordre mais nous parlons de corrélations magnétiques. Ce phénomène apparaîtrait progressivement à l'approche du point critique quantique ( $p \sim 0,2$ ).

#### 4.1.3.2 Étude de la diffusion magnétique diffuse

Pour le moment, nous nous sommes uniquement intéressés aux positions de la forme  $\mathbf{Q} = (1,0,L)$  (bandeau gris de la Fig. 4.3). Sur le diffractomètre D7, nous mesurons des trajectoires, nous avons donc accès à l'intensité en dehors de ce bandeau. En restant le long de la trajectoire passant par  $\mathbf{Q} = (1,0,0.25)$ , nous nous sommes particulièrement intéressés à la position  $\mathbf{Q} = (0.88,0,0)$  (symboles verts sur les Fig. 4.3 et Fig. 4.10). Le signal à cette position est faible en comparaison au signal observé à la position de Bragg.

Sur la Fig. 4.11.a, nous reportons les dépendances en température des sections efficaces dans le canal SF pour les trois polarisations X, Y et Z à  $H=0,88$ . Nous avons moyenné les intensités sur  $N=10$  détecteurs. Nous observons que l'intensité mesurée pour la polarisation Y est la plus élevée, la hiérarchie des intensités selon la polarisation attendue sur le diffractomètre D7 est donc ici respectée. Comme nous sommes en dehors de la réflexion de Bragg, la variation du rapport de flipping en température n'a aucun impact sur la valeur des intensités mesurées. Les intensités pour les polarisations X et Y apparaissent constantes à haute température puis chutent à basse température. Pour la polarisation Z, l'évolution est monotone croissante.

Sur la Fig. 4.11.b, nous présentons les dépendances en température des deux composantes du

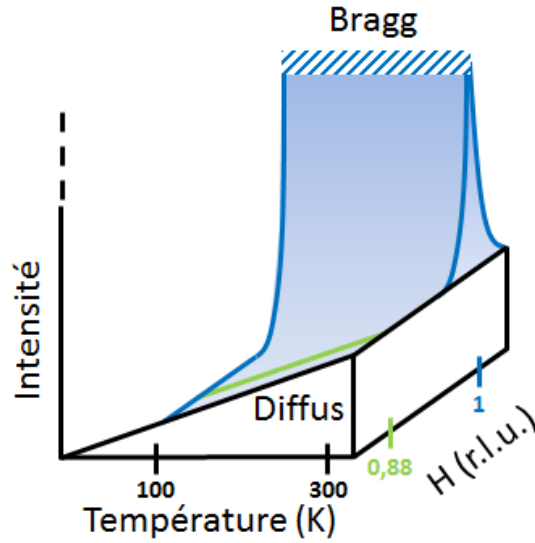


Figure 4.10: Représentation schématique de l'intensité mesurée lors de notre expérience de diffraction sur D7, en fonction de la température et du vecteur d'onde.

moment magnétique à  $H=0,88$  (nous rappelons  $M_{ab}^2 = I_X^{SF} + I_Y^{SF} - I_Z^{SF}$  et  $M_c^2 \propto I_Z^{SF}$ ). L'aire grisée matérialise le bruit de fond. Il peut être déterminé par les Eq. 2.46-2.48 en supposant qu'il est le même quelle que soit la polarisation. La formule utilisée est  $(\frac{d\sigma}{d\Omega})_Z^{SF} - ((\frac{d\sigma}{d\Omega})_X^{SF} - (\frac{d\sigma}{d\Omega})_Y^{SF}) / \cos 2\beta$  où  $(\frac{d\sigma}{d\Omega})_\alpha^{SF} = I_\alpha^{SF} + BG^{SF}$ . En reprenant les ajustements utilisés pour les différentes polarisations dans la Fig. 4.11.a nous obtenons les lignes verte et bleue de la Fig. 4.11.b. Les deux composantes augmentent en température. A haute température,  $M_{ab}^2$  est constante. Ces évolutions en température sont opposées à celles observées à  $H=1$ , Fig. 4.8. Nous observons une balance d'intensité magnétique entre les deux positions. En effet, lorsque le signal apparaît à basse température pour  $H=1$ , il diminue pour  $H \neq 1$ . Les deux effets semblent donc intimement liés.

A titre de comparaison, nous reportons sur la Fig. 4.11.c, les dépendances en température des sections efficaces SF pour les trois polarisations X, Y et Z à  $H=0,6$ . Nous remarquons que quelle que soit la valeur de H, les trois quantités augmentent en température. Toutefois, ces quantités augmentent plus rapidement pour  $H=0,88$  que pour  $H=0,6$ . Cela suggère que le signal se structure à l'approche de la position de Bragg (vers  $H=1$ ). Nous notons également que les niveaux d'intensité sont différents, ils sont plus élevés pour  $H=0,6$ . Cela signifie-t-il que le signal magnétique augmente lorsque  $Q$  tend vers 0?

En appliquant l'Eq. 2.49 pour extraire le signal paramagnétique, nous obtenons  $S_{mag} = 2I_X^{SF} + 2I_Y^{SF} - 4I_Z^{SF}$ . Nous reportons cette quantité sur la Fig. 4.11.d pour les deux valeurs de  $H=0,88$  (carrés pleins) et  $H=0,6$  (carrés vides). Elle est indépendante du bruit de fond et présente un maximum autour de  $T_{mag} = 200K$  pour  $H=0,88$ . Le signal paramagnétique ne varie pas en température pour  $H=0,6$  mais présente un niveau plus élevé.

Si nous étudions davantage l'évolution en fonction de H de ce signal paramagnétique aux trois températures 100K, 200K et 300K, Fig.4.12.a, nous remarquons effectivement qu'il augmente plus H est petit. Cette remontée de l'intensité magnétique est-elle réelle? En considérant que

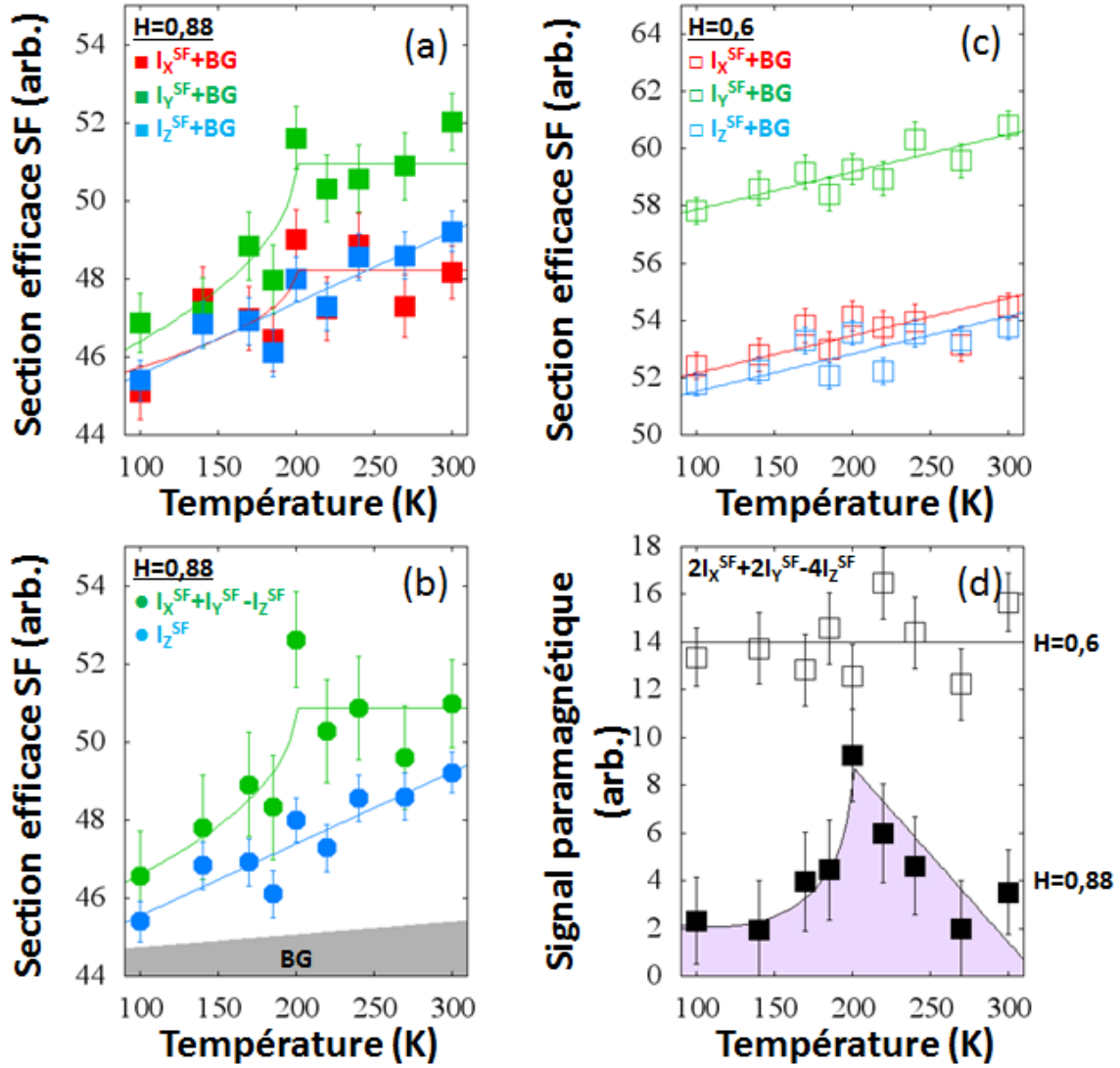


Figure 4.11: Y123-UD89. Mesures effectuées sur le diffractomètre D7. (a) Dépendance en température des sections efficaces SF autour de  $H=0,88$  pour les trois polarisations X, Y et Z. (b) Dépendance en température des deux composantes du moment magnétique pour  $H=0,88$ ,  $M_{ab}^2 = I_X^{SF} + I_Y^{SF} - I_Z^{SF}$  (points verts) et  $M_c^2 \propto I_Z^{SF}$  (points bleus), sur le bruit de fond BG matérialisé par l'aire grisée. (c) Dépendance en température des sections efficaces SF autour de  $H=0,6$  pour les trois polarisations X, Y et Z. (d) Dépendance en température du signal paramagnétique  $S_{mag} = 2I_X^{SF} + 2I_Y^{SF} - 4I_Z^{SF}$ , comparaison entre  $H=0,6$  (carrés vides noirs) et  $H=0,88$  (carrés pleins noirs).

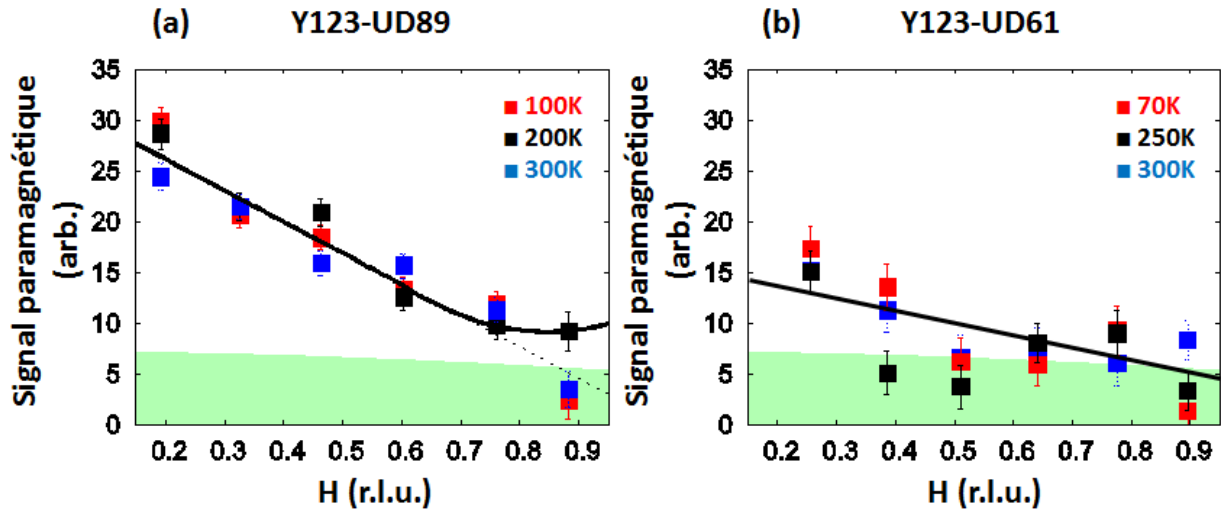


Figure 4.12: (a) Y123-UD89. Mesures effectuées sur le diffractomètre D7. Évolution du signal paramagnétique  $S_{mag} = 2I_X^{SF} + 2I_Y^{SF} - 4I_Z^{SF}$  en fonction du vecteur d'onde, à 100K (carrés rouges), 200K (carrés noirs) et 300K (carrés bleus). L'aire verte correspond au signal magnétique provenant de la phase verte présente dans notre échantillon. (b) Comparaison avec l'échantillon Y123-UD61.

l'échantillon Y123-UD89 contient 15% de phase verte et en mettant les deux dépendances en H du signal paramagnétique de la phase verte (Fig. 2.17.b) et de l'échantillon Y123-UD89 à la même échelle, nous obtenons l'aire verte de la Fig.4.12.a. Un signal magnétique est présent partout en H. En revanche,  $S_{mag}$  augmente à 200K pour H proche de 1. Nous reprenons la dépendance en H du signal paramagnétique pour l'échantillon Y123-UD61 (Fig. 3.5) que nous moyennons (Fig.4.12.b) et mettons à la même échelle que celle présentée pour l'échantillon Y123-UD89. Le signal varie en fonction de H de manière moins marquée pour l'échantillon sous-dopé. De plus, aucun effet notable ne semble se produire en température. Cela pourrait être expliqué par le fait que l'échantillon Y123-UD61 (dont le dopage  $p=0,12$  est loin du point critique quantique  $p\sim 0,2$ ) est moins sensible aux fluctuations. Les effets (en fonction du vecteur d'onde et de la température) dans le signal paramagnétique apparaissent plus faibles dans ce cas.

Nous pouvons réécrire le signal paramagnétique en fonction des composantes du moment magnétique :  $S_{mag} \propto 2 \langle M_{ab}^2 \rangle - \langle M_c^2 \rangle$ , d'après les Eq. 2.46-2.48. Si la diffusion était purement isotrope ( $M_{ab}^2 = 2M_c^2$ ), les deux quantités présentées pour  $H=0,88$  dans la Fig. 4.11.b devraient avoir la même dépendance en température, pondérée par un facteur 1 pour  $M_c^2$ , 2 pour  $M_{ab}^2$  et un facteur 2 pour  $S_{mag}$ . Ce n'est pas le cas, nous en déduisons que la diffusion est anisotrope. De plus, la forme du maximum observé à  $H=0,88$  est habituellement la signature d'une diffusion magnétique critique de transition de phase. Cependant, nous devrions l'observer dans toutes les sections efficaces, ce qui n'est pas le cas. Il est peut-être visible dans les sections efficaces SF pour les polarisations X et Y mais pas du tout pour Z. Cette forme marquée est surtout visible dans la différence ce qui nous amène à une interprétation différente. Les moments fluctueraient à haute température et se corrèleraient en refroidissant (de manière différente selon la composante). A

haute température les deux composantes fluctuent, c'est pourquoi le signal paramagnétique est très faible voire nul.  $\langle M_c^2 \rangle$  commence à se corréliser et diminue donnant lieu à une augmentation de  $S_{mag}$ . Sous  $T_{mag}=200K$ ,  $\langle M_{ab}^2 \rangle$  se corrèle à son tour, induisant la diminution observée dans  $S_{mag}$ . Les dépendances en température distinctes des composantes du moment magnétique sont ainsi confirmées par le comportement anormal de la diffusion magnétique diffuse mesurée hors de la zone magnétique  $Q = (1,0,L)$ .

#### 4.1.3.3 Deux régimes en température autour du dopage optimal?

Le moment magnétique est donc caractérisé par deux températures différentes:  $T_{mag} \sim 200K$  et  $T \geq 300K$ . 300K est une limite inférieure empirique, nous ne savons pas comment évolue notre signal à plus haute température.

La température  $T_{mag}$  déterminée par la diffusion de neutrons correspond à la température  $T^*$  déterminée par la résistivité. La Fig. 4.13.a donne la courbe de résistivité en fonction de la température mesurée par Y. Ando et al [107] pour un échantillon de composition  $YBa_2Cu_3O_{6.85}$  comparable à notre échantillon Y123-UD89.  $T^*$  est déterminée lorsque la résistivité s'écarte du comportement linéaire en température (ligne rouge). Nous confirmons que  $T_{mag} \sim 200K$  est en accord avec  $T^*$  pour la composition  $YBa_2Cu_3O_{6.85}$ .

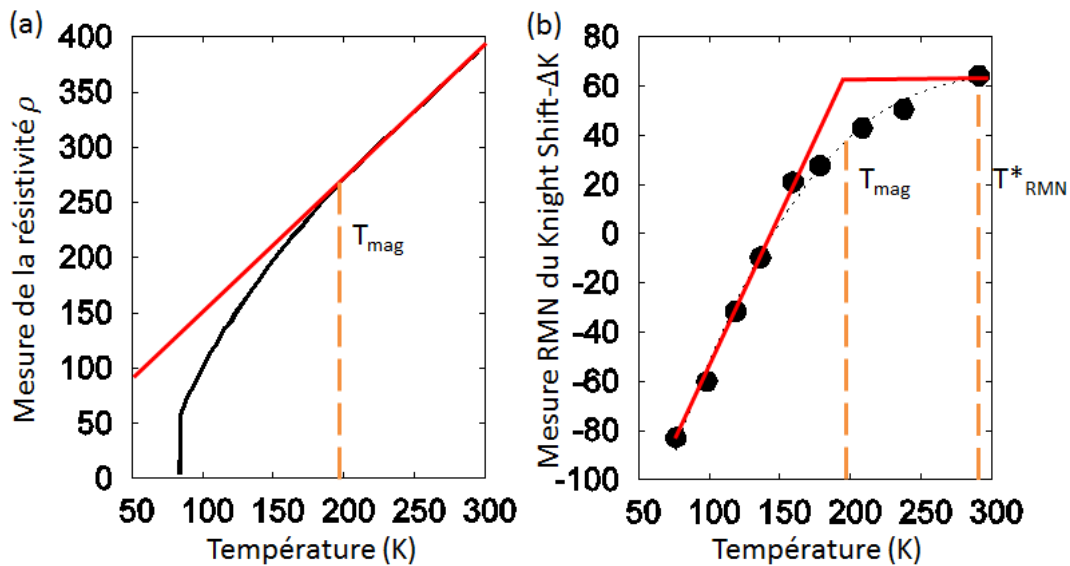


Figure 4.13: Composition  $YBa_2Cu_3O_{6.85}$ . (a) Dépendance en température de la résistivité d'après [107]. (b) Dépendance en température du Knight Shift mesuré par RMN d'après [23].

La température  $T^*_{RMN}$  déterminée par la diminution du Knight Shift est, quant à elle, bien supérieure. Pour le composé  $YBa_2Cu_3O_{6.85}$ , nous avons  $T_{mag} \sim 200K$ ,  $T^* \sim 180K$  [25], et  $T^*_{RMN} \sim 300K$  [23, 152]. Ces températures sont-elles liées au même phénomène? Autrement dit, l'ordre magnétique que nous reportons est-il effectivement relié à la phase de pseudo-gap définie par la RMN? Pour répondre à cette question il faut tout d'abord s'intéresser à la manière dont  $T^*_{RMN}$  est déterminée. La variation du Knight Shift est proportionnelle à la susceptibilité uniforme  $\chi(Q=0)$ , elle-

même proportionnelle à la densité d'état au niveau de Fermi dans le cas d'un métal. A haute température cette susceptibilité est constante en température (susceptibilité de Pauli), et  $T_{RMN}^*$  correspond à la température en dessous de laquelle  $\chi(Q=0)$  commence à décroître. Si nous traçons les tangentes à haute température et à basse température de la courbe du Knight Shift, leur point d'intersection coïncide en fait avec la température  $T_{mag}$  déterminée par mesures de diffusion de neutrons. D'après les mesures RMN du Knight Shift, nous pouvons également définir deux températures.

De manière globale, nous pouvons nous demander si nous observons le même ordre qui s'exprime de manière différente en température ou si nous sommes en présence d'une cascade d'instabilités électroniques d'origines différentes. Dans tous les cas, l'existence de comportements différents en température des deux composantes du moment magnétique apporte une nouvelle contrainte dans la modélisation du pseudo-gap. Pour établir l'universalité de ces observations, il est nécessaire non seulement de répéter ces mesures dans d'autres échantillons de la famille Y123 mais aussi pour les autres familles de cuprates.

#### 4.1.4 La phase supraconductrice

##### 4.1.4.1 Prolongement de l'étude de l'ordre magnétique à $q=0$ dans la phase supraconductrice

Aucune étude approfondie n'a été réalisée concernant l'évolution de l'ordre magnétique à  $q=0$  en entrant dans la phase supraconductrice, encore moins pour des échantillons proches du dopage optimal, là où la température critique  $T_c$  est maximale. Nous avons donc étendu nos mesures sous  $T_c$  avec l'échantillon Y123-UD89, aligné dans le plan de diffusion  $[1,0,0]/[0,0,1]$  sur le spectromètre 4F1.

Nous avons effectué nos mesures aux positions de Bragg  $\mathbf{Q}=(1,0,0)$  et  $\mathbf{Q}=(2,0,0)$  (pour déterminer la référence de rapport de flipping) de 10K à 110K, avec la polarisation X. En température, le faisceau de neutrons est susceptible d'être dépolarisé en entrant dans l'état supraconducteur, une attention toute particulière doit être portée aux mesures en dessous de  $T_c$ . Les mesures à grand  $|\mathbf{Q}|$  ( $\mathbf{Q}=(2,0,0)$ ), où le signal magnétique est faible ou absent, nous permettent de vérifier qu'il n'y a pas de dépolarisation du faisceau de neutrons, Fig.4.14.a. Aussi, d'après la méthode de détermination de  $T_c$  que nous avons présentée au Chapitre 2, nous savons que pour éviter toute dépolarisation il ne faut pas tourner la direction de la polarisation pour  $T < T_c$ .

La Fig. 4.14.b présente l'intensité magnétique normalisée pour l'ensemble des données concernant l'étude du signal magnétique à  $\mathbf{Q}=(1,0,0)$  pour l'échantillon Y123-UD89 (combinées avec les résultats de la Fig. 4.2.d). Nous avons rassemblé les deux résultats de mesures autour de la température  $T=100K$ . Puisque les niveaux d'intensités brutes ne sont pas exactement les mêmes entre deux expériences différentes, nous avons combiné les données après analyse complète. Trois points en température permettent de mettre les deux jeux de données à la même échelle.

Nous remarquons qu'un signal magnétique est toujours présent en dessous de 100K, il est même plus élevé. Cette observation est compatible avec les mesures reportées pour d'autres échantillons de la famille Y123 par B. Fauqué et al [30], Fig. 1.11. Le signal que nous observons lors



des mesures de neutrons polarisés, associé à l'ordre magnétique à  $q=0$ , continue donc d'augmenter bien en-dessous de  $T_c$ , sans changement de pente notable.

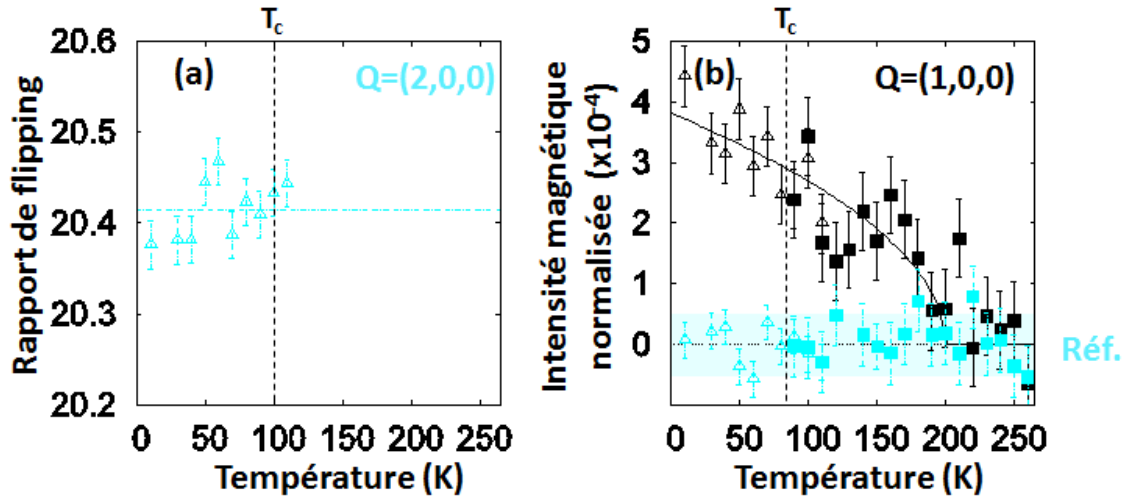


Figure 4.14: Y123-UD89. Mesures effectuées sur le spectromètre 4F1 avec la polarisation X. (a) Dépendance en température du rapport de flipping mesuré à  $Q = (2,0,0)$ . (b) Dépendance en température de l'intensité magnétique normalisée mesurée aux positions  $Q = (2,0,0)$  et  $Q = (0,0,4)$  prises comme références de l'inverse du rapport de flipping  $1/FR_X^0(T)$  (symboles bleus) et à  $Q = (1,0,0)$  (symboles noirs) pour l'étude de l'ordre magnétique à  $q=0$ . Nous reportons sur cette figure le prolongement de l'étude présentée dans la Fig. 4.2.d (symboles carrés) en dessous de la température critique  $T_c=89K$  (symboles triangulaires).

#### 4.1.4.2 Étude plus approfondie du bruit de fond

Nous nous sommes également intéressés à l'évolution du bruit de fond dans la phase supraconductrice. Sur les Fig. 4.15.a-b, nous reportons les dépendances en température des intensités mesurées dans les canaux NSF et SF à  $Q = (0.9,0,0)$  pour les polarisations X, Y et Z (mesures effectuées également sur le spectromètre trois-axes 4F1). Lors de nos mesures de diffusion de neutrons polarisés, nous étudions systématiquement le signal présent dans le canal NSF afin de vérifier l'absence de pic parasite en température. Dans le cas présent, la dépendance en température de la section efficace NSF est décroissante et ne présente pas d'anomalie. La dépendance en température de la section efficace SF est également décroissante. Nous observons en plus que les niveaux d'intensités sont différents selon la polarisation. Notamment, le niveau pour la polarisation Y est le plus élevé alors que le maximum d'intensité dans le canal SF est attendu pour la polarisation X sur 4F1. Avec le dispositif de bobines de Helmholtz utilisé, le rapport de flipping n'est pas le même selon la polarisation il est particulièrement moins bon pour la polarisation Y, il y a donc une fuite de polarisation plus forte, expliquant le niveau plus élevé. Sur la Fig. 4.15.c, nous comparons la dépendance en température de la section efficace SF pour la polarisation X à la moyenne des intensités mesurées pour les polarisations Y et Z. En appliquant l'analyse de polarisation  $2I_X^{SF} - I_Y^{SF} - I_Z^{SF}$  (Eq. 2.32), nous obtenons l'intensité magnétique présentée dans la Fig. 4.15.d (carrés noirs pleins). Un surcroît d'intensité notable apparaît à basse température, dans la phase

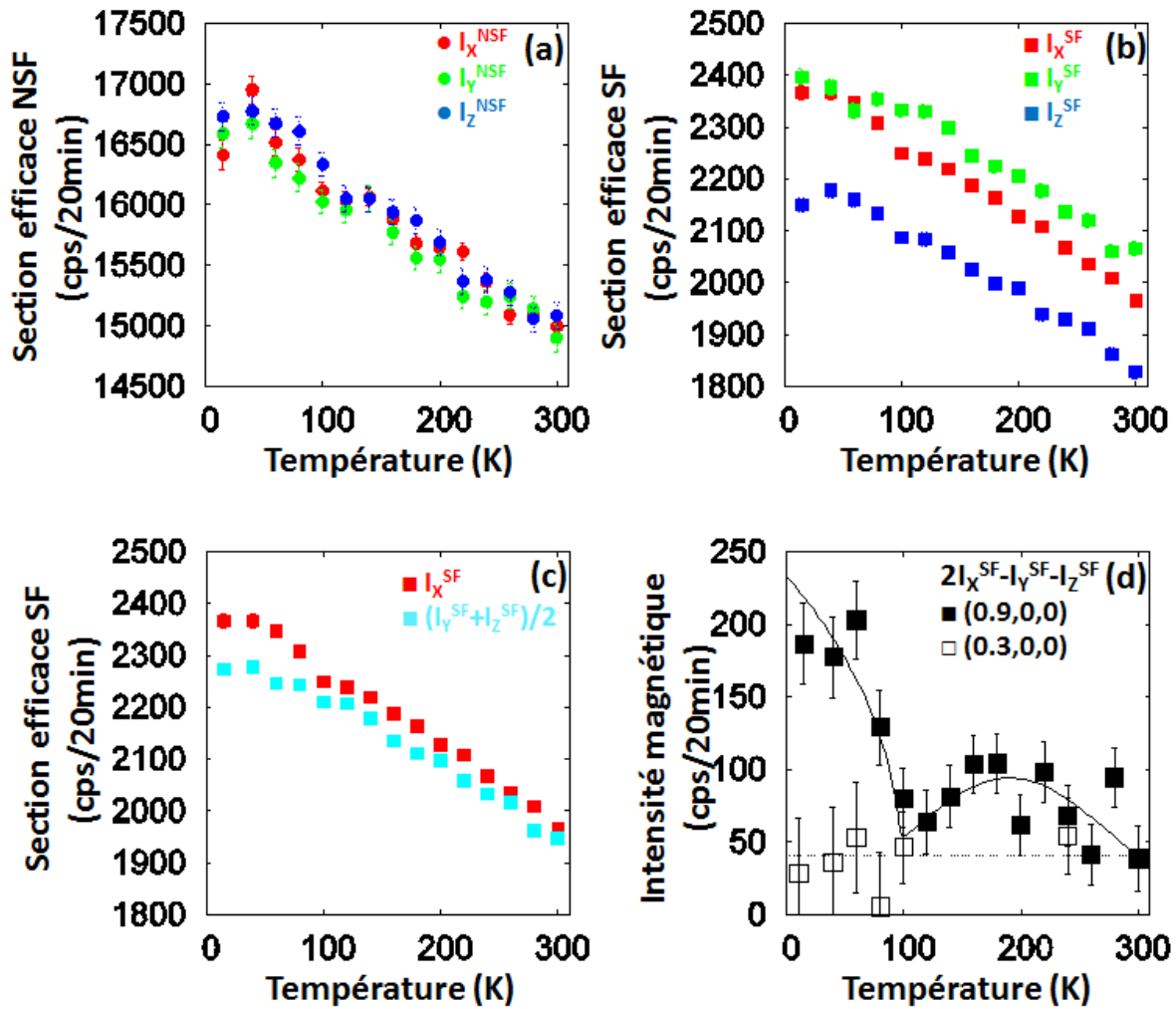


Figure 4.15: Y123-UD89. Mesures effectuées sur le spectromètre 4F1. Dépendance en température des sections efficaces SF à  $Q = (0.9, 0, 0)$  ( $E=0\text{meV}$ ) pour les trois polarisations X, Y et Z. (a) NSF et (b) SF. (c) Dépendance en température de la section efficace SF pour la polarisation X (carrés rouges) en comparaison à la moyenne des intensités mesurées pour les polarisations Y et Z (carrés bleus clairs). (d) Dépendance en température de l'intensité magnétique extraite après analyse de polarisation à  $Q = (0.9, 0, 0)$  (carrés noirs pleins) et  $Q = (0.3, 0, 0)$  (carrés noirs vides).

supraconductrice. Nous observons également un possible effet (plus faible) à haute température autour de  $T_{mag}=200K$ . La Fig. 4.15.d montre également la même analyse de polarisation effectuée à  $Q = (0.3,0,0)$  (carrés noirs vides), où aucun changement en température ne semble se produire. Nous considérons ce signal constant en température (ligne pointillée noire). L'effet en température semble spécifique à  $Q = (0.9,0,0)$ . L'étude du signal paramagnétique sur le diffractomètre D7 autour de  $H=0,88$  dans le même échantillon indiquait la présence d'un signal magnétique autour de  $T_{mag}$  (Fig. 4.11.d), qui est à comparer avec la possible augmentation de signal observée sur la Fig. 4.15.d. Sous  $T_c$ , le signal magnétique est beaucoup plus élevé. Ainsi, la position que nous considérons habituellement comme une référence de bruit de fond n'est pas libre de tout magnétisme. Le signal à  $Q = (0.9,0,0)$  reste toutefois beaucoup plus faible que l'intensité mesurée sur la position de Bragg (de l'ordre de 10 fois moins élevée).

Nous avons effectué le même type d'analyse que présenté sur la Fig. 4.15.d à différentes valeurs de  $Q = (H,0,0)$  avec  $H$  compris entre 0,3 et 1,1 (Fig. 4.16.a-e). L'évolution en température du signal magnétique, extrait après analyse de polarisation, pour  $H=0,8$  et  $H=1,1$  est difficile à caractériser (du fait de sa distribution statistique). Dans le but d'étudier l'évolution globale du signal magnétique à basse température, nous moyennons les intensités pour  $T \leq 100K$  (zone rouge) pour toutes les valeurs de  $H$ . Nous reportons ces quantités sur la Fig. 4.16.f (points rouges) auxquelles nous comparons l'intensité magnétique mesurée à 240K (points bleus). Nous obtenons ainsi l'évolution du signal magnétique en fonction du vecteur d'onde à basse et haute températures. Ce signal magnétique apparaît centré autour de  $H=1$ . La largeur extraite d'un ajustement par une fonction gaussienne est de l'ordre de 0,3 r.l.u. pour les points à basse température. A haute température, le signal ne semble pas varier en fonction de  $H$  et présente un niveau d'intensité que nous avons ajusté par une droite. L'écart entre les deux courbes correspond au surcroît de signal magnétique apparaissant dans la phase supraconductrice. Ainsi, nous observons un signal magnétique au-delà de la réflexion de Bragg. Ces mesures suggèrent que cette nouvelle diffusion magnétique se développe à proximité de  $q=0$ . Toutefois, la faiblesse de l'intensité diffusée ne nous permet pas de savoir si le signal est centrée à  $q=0$  ou à un vecteur d'onde fini (suggérant la présence d'un état magnétique modulé).

#### 4.1.4.3 Interprétation du signal élastique dans la phase supraconductrice

Pour l'échantillon Y123-UD89, nos mesures de diffusion de neutrons polarisés à  $Q = (1,0,0)$  indiquent que le signal magnétique continue d'augmenter sous  $T_c$  (Fig. 4.14 et Fig. 4.17.a). En se plaçant en dehors de la réflexion de Bragg, notamment à  $Q = (0.9,0,0)$ , nous avons découvert qu'un signal magnétique notable apparaissait également à basse température (Fig. 4.15.d et Fig. 4.17.b). En présence de fluctuations ou à cause de la compétition avec la supraconductivité, nous nous serions attendus à une diminution de l'intensité associée à l'ordre magnétique à  $q=0$  sous  $T_c$ . Est-ce qu'il s'agit du même signal magnétique qui s'élargit ou bien deux signaux qui se développent à basse température avec deux largeurs différentes?

Dans la Fig. 4.17.c nous proposons une possible description de l'intensité magnétique à basse température en fonction du vecteur d'onde autour de  $Q = (1,0,0)$ . Le pic fin rouge correspond au

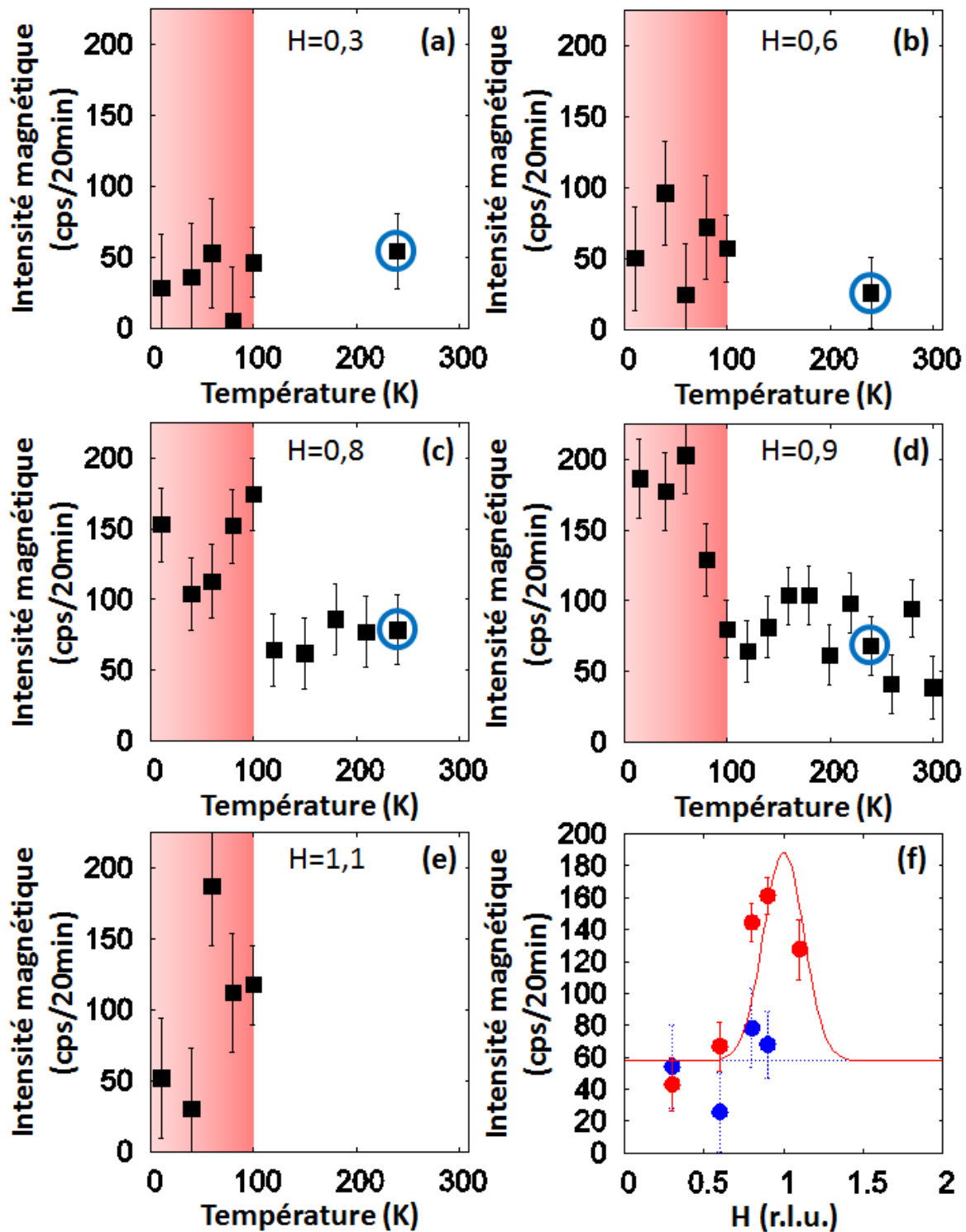


Figure 4.16: Y123-UD89. Mesures effectuées sur le spectromètre 4F1. (a)-(e) Dépendance en température de l'intensité magnétique extraite après analyse de polarisation à  $Q = (H,0,0)$  pour  $H=0,3;0,6;0,8;0,9;1,1$ . Nous avons ensuite moyenné les intensités sous  $T=100$  K (aire rouge) et reporté l'intensité à  $T=240$  K (cercle bleu) pour obtenir (f) la coupe en H de l'intensité magnétique pour les deux gammes de températures: sous  $T=100$  K (points rouges) et à  $T=240$  K (points bleus).

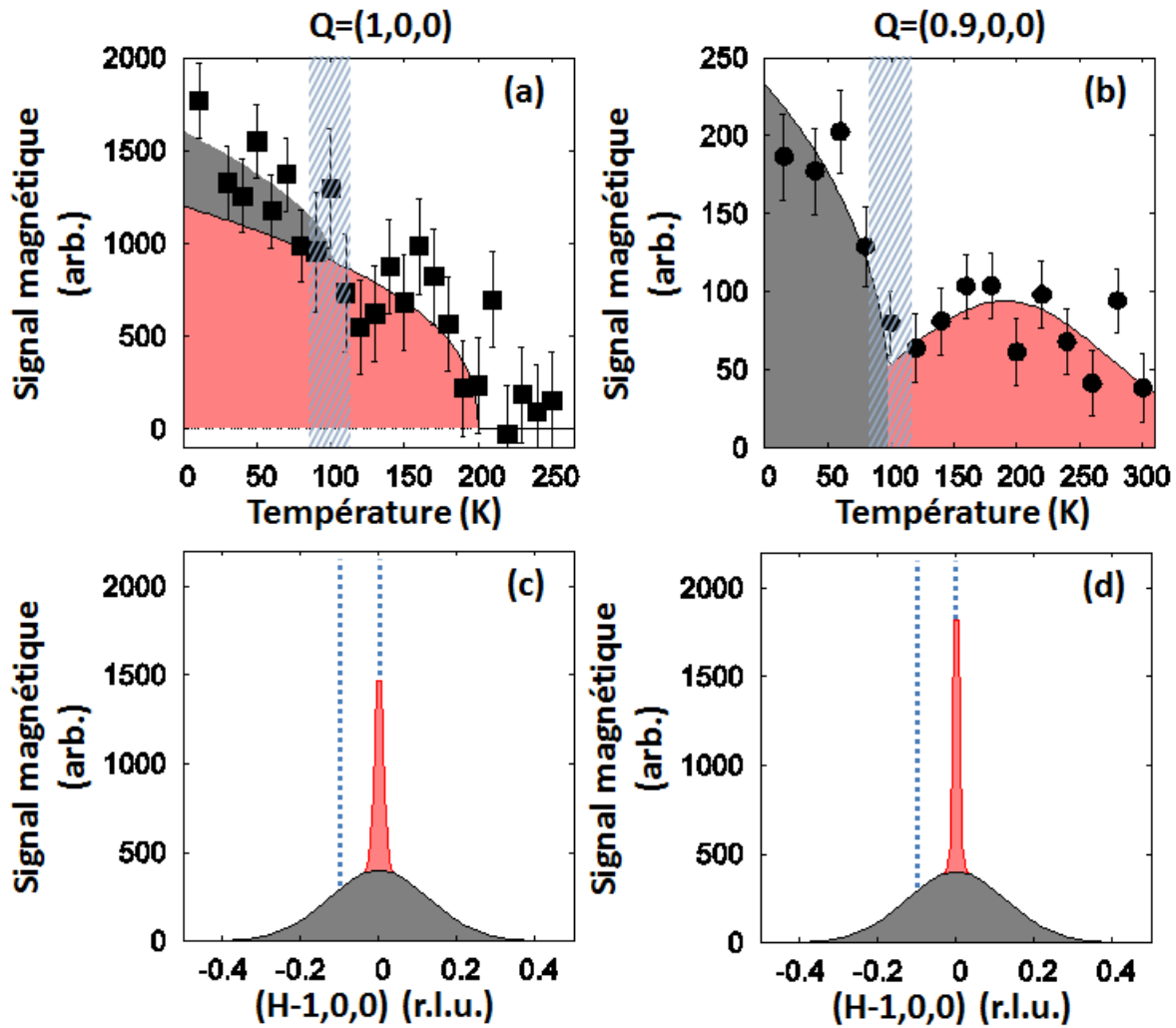


Figure 4.17: Y123-UD89. Dépendance en température de l'intensité magnétique mesurée à (a)  $Q = (1,0,0)$  et (b)  $Q = (0.9,0,0)$  avec  $E=0\text{meV}$  (mêmes données que sur les Fig. 4.14.b et 4.15.d). L'aire colorée en rouge correspond à la partie du signal qui apparaît autour de  $T_{mag}$  et la grise à basse température (autour de  $T_c$ ). (c) Possible description de l'intensité magnétique autour de  $Q = (1,0,0)$  à basse température. (d) Même figure, après déconvolution de la résolution. Les lignes verticales bleues indiquent  $H=1$  et  $H=0,9$ .

signal magnétique apparaissant à partir de  $T_{mag}$  et qui subsiste jusqu'à basse température. Sa largeur est de 0.025 r.l.u., comme déterminée sur le diffractomètre D7. L'intensité magnétique supplémentaire apparaissant uniquement à basse température est matérialisée en gris. La largeur du signal est de 0,3 r.l.u. (Fig. 4.16.f). Nous pouvons reprendre ces données en déconvoluant de la résolution. Comme nous l'avons fait précédemment lors de la détermination des longueurs de corrélation,  $\Delta h_i = \sqrt{\Delta h^2 - \Delta h_{res}^2}$ . Comme  $\sqrt{0.025^2 - 0.0195^2} = 0.016$ , nous retrouvons  $\xi \sim 20a$  pour le pic rouge, et  $\sqrt{0.16^2 - 0.0195^2} = 0.16$  correspondant à  $\xi \sim 2a$  pour le signal gris. De plus, en considérant que l'aire intégrée (produit entre l'intensité au maximum et la largeur) du signal magnétique est conservée, nous obtenons la Fig. 4.17.d. Le pic rouge apparaît plus intense et plus fin.

Dans le Chapitre 3, nous avons mis en évidence le lien entre l'ordre magnétique à  $q=0$  et les fluctuations antiferromagnétiques pour l'échantillon Y123-UD61 ( $YBa_2Cu_3O_{6.6}$ ) et l'échantillon Hg1201-UD71, toutefois uniquement dans la phase normale. Ces deux phénomènes apparaissent en même temps, à  $T^*(=T_{mag})$ . A présent, nous étendons notre analyse dans la phase supraconductrice et nous considérons l'échantillon Y123-UD89 ( $YBa_2Cu_3O_{6.85}$ ).

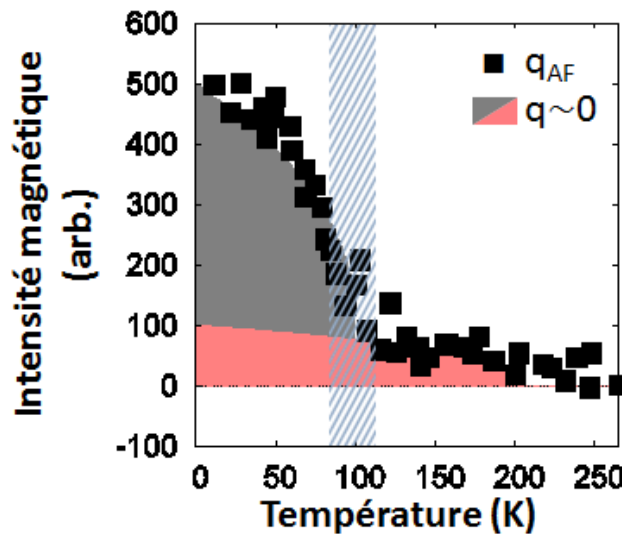


Figure 4.18: Y123-UD89. Signal magnétique associé à l'ordre magnétique à  $q=0$  intégré en  $Q$ , comparé à la dépendance en température des fluctuations antiferromagnétiques (carrés noirs) mesurées à  $Q = (1.5, 0.5, 1.7)$   $E=41\text{meV}$  [125].

Nous reportons le résultat de l'étude des fluctuations antiferromagnétiques mesurées à  $Q = (1.5, 0.5, 1.7)$   $E=41\text{meV}$  [125] dans le même échantillon Y123-UD89 sur la Fig. 4.18 (carrés noirs). Nous observons le pic de résonance magnétique, propre à l'état supraconducteur. En ne considérant que le signal magnétique localisé en  $Q = (1, 0, 0)$ , nous aurions des dépendances en température de l'intensité magnétique à  $q=0$  et à  $q_{AF}$  très différentes. En revanche, en intégrant le signal magnétique en  $Q$ , nous obtenons la dépendance en température de la Fig. 4.18. Les deux dépendances sont normalisées à  $T=10\text{K}$ . Dans ce cas, nous observons une nette augmentation d'intensité

magnétique dans l'état supraconducteur pour  $q \sim 0$  comparable à ce qui est observé à  $q_{AF}$ . Ceci renforce l'idée selon laquelle les deux phénomènes sont liés. Bien que ces mesures de diffusion, élastique et inélastique, de neutrons soient effectuées à des positions différentes, elles présentent une dépendance en température particulière, avec un effet à  $T^*$  et un autre sous  $T_c$ . Il est nécessaire de généraliser cette observation à d'autres dopages afin d'en comprendre l'origine.

Enfin, jusqu'à maintenant, nous avons considéré que le signal magnétique apparaissait sous la température critique  $T_c$  (=89K pour l'échantillon Y123-UD89). Des mesures de rayons X dans un échantillon de composition proche ont signalé l'apparition d'un ordre de charge autour de  $T_{CDW} \sim 115K < T_{mag} \sim 200K$  [153]. Ainsi, l'intensité magnétique, qui apparaît bien en dessous de  $T_{mag}$ , pourrait continuer d'augmenter à partir d'une température proche de  $T_c$  ou  $T_{CDW}$ . Cette remarque soulève la question du lien entre l'ordre magnétique à  $q=0$  et l'ordre de charge. Notre étude de l'ordre magnétique à  $q=0$  a été motivée initialement par la théorie des boucles de courant [87] pour expliquer le pseudo-gap. La découverte plus récente de l'ordre de charge à  $T_{CDW}$  ( $T_c < T_{CDW} < T_{mag}$ ) a suscité de nouvelles théories (Chapitre 1). Notamment, dans le modèle considérant un état d'onde de densité de paires (PDW) [99], l'état de boucles de courant pourrait co-exister avec un état d'onde de densité de charge courte portée. Aussi, dans le cadre du modèle de l'ordre de charge composite [100], il existerait un état précurseur dont les symétries (brisure par renversement du temps) sont compatibles avec l'état de boucles de courant. L'ordre magnétique à  $q=0$  pourrait être lié à d'autres états d'onde de densité (à  $q \neq 0$ ). Des mesures avec plus de points en température ou avec un échantillon pour lequel les écarts entre  $T_c$ ,  $T_{CDW}$  et  $T_{mag}$  sont plus grands seraient nécessaires pour déterminer la température exacte en dessous de laquelle le signal magnétique de basse température apparaît.

## 4.2 L'échantillon Y123-OD92b

Dans le but de caractériser davantage l'ordre magnétique à  $q=0$ , cette fois-ci en s'approchant plus du point critique quantique ( $p \sim 0,2$ ), nous avons étudié l'échantillon  $YBa_2Cu_3O_{6,97}$  noté Y123-OD92b ( $T_c=92K$ ,  $p=0,17$ ) [129]. Il est aligné dans le plan de diffusion  $[1,0,0]/[0,0,1]$ .

Suivant le même principe que pour les échantillons étudiés précédemment, nous avons mesuré, sur le spectromètre 4F1 avec la polarisation X, les dépendances en température des intensités dans les canaux NSF et SF à  $\mathbf{Q} = (0,0,4)$  (référence de rapport de flipping), Fig. 4.19.a, ainsi qu'aux positions  $\mathbf{Q} = (1,0,1)$  (réflexion de Bragg considérée pour l'étude de l'ordre à  $q=0$ ) et  $\mathbf{Q} = (0,9,0,1)$  (bruit de fond), Fig. 4.19.b. La dépendance en température de l'inverse du rapport de flipping,  $1/FR_X^0(T)$ , à  $\mathbf{Q} = (0,0,4)$  est donnée dans la Fig. 4.19.c. Nous observons une pente croissante. Le bandeau bleu matérialise la distribution statistique de  $1/FR_X^0$  le long de cette pente ( $\pm 1.10^{-4}$ ). Enfin, la Fig. 4.19.d donne la dépendance en température de l'intensité de Bragg intrinsèque à  $\mathbf{Q} = (1,0,1)$  dans les canaux SF et NSF divisée par le rapport de flipping de référence  $FR_X^0(T)$ . Les deux courbes se croisent en température, mais aucun surcroît d'intensité SF à basse température n'est observable. Les Fig. 4.20.a-b, quant à elles, donnent les intensités magnétiques normalisées,  $I_{mag,X}/I_X^{NSF}$ ,



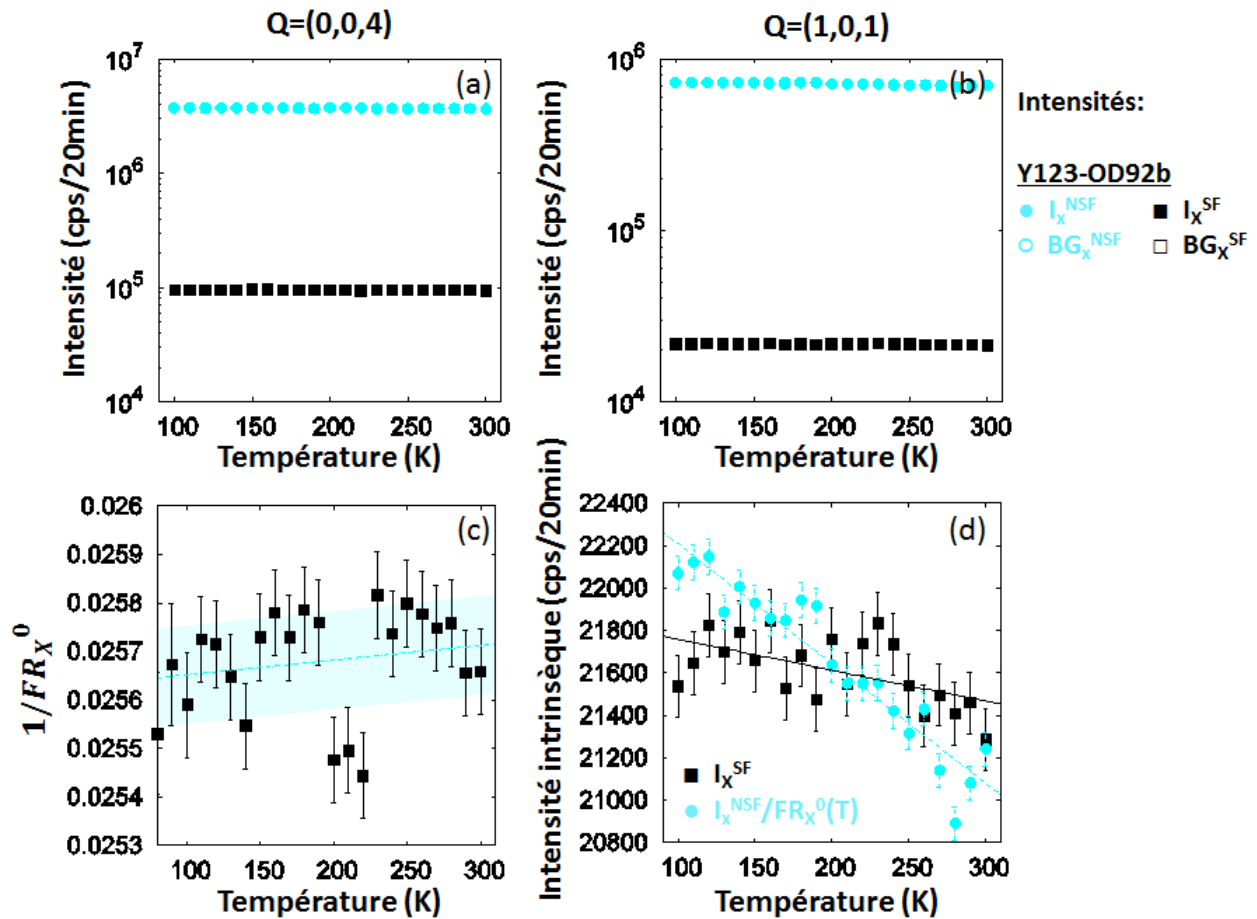


Figure 4.19: Y123-OD92b. Mesures effectuées sur le spectromètre 4F1 avec la polarisation X. (a) Dépendances en température des intensités brutes mesurées à  $Q = (0,0,4)$ , dans les canaux NSF (symboles bleus) et SF (symboles noirs). (b) Dépendances en température des intensités brutes mesurées aux positions  $Q = (1,0,1)$  (réflexion de Bragg, symboles pleins) et  $Q = (0,9,0,1)$  (référence de bruit de fond, symboles ouverts), dans les canaux NSF (symboles bleus) et SF (symboles noirs). (c) Dépendances en température de l'inverse du rapport de flipping  $1/FR_X^0(T)$  à  $Q = (2,0,0)$ . (d) Dépendances en température de l'intensité de Bragg intrinsèque (bruit de fond soustrait) à  $Q = (1,0,1)$  dans les canaux SF (symboles noirs) et NSF (symboles bleus) divisée par le rapport de flipping de référence  $FR_X^0(T)$ , de manière à n'avoir aucun signal à haute température.

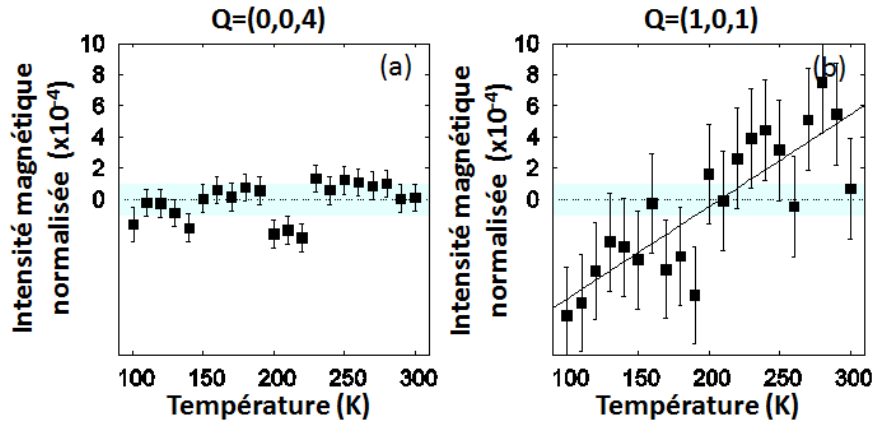


Figure 4.20: Y123-OD92b. Mesures effectuées sur le spectromètre 4F1 avec la polarisation X. Dépendances en température de l'intensité magnétique normalisée à la position de Bragg (a)  $Q = (0,0,4)$  prise comme référence de l'inverse du rapport de flipping  $1/FR_X^0(T)$  et à (b)  $Q = (1,0,1)$  pour l'étude de l'ordre magnétique à  $q=0$ .

pour les positions de Bragg  $Q = (0,0,4)$  et  $Q = (1,0,1)$ . La forte variation en température observée sur la Fig. 4.20.b montre la difficulté de cette mesure. Aucun effet ne semble se produire dans la phase normale dans la précision de cette mesure. Nous n'avons pas étendu cette étude à  $Q = (1,0,1)$  à plus basse température, nous ne pouvons pas exclure un possible effet dans la phase supraconductrice. Il est donc nécessaire de reproduire ces mesures sur plus large gamme en température et avec une meilleure statistique. Aussi, l'échantillon Y123-OD92a ( $T_c=92K$ ,  $p=0,17$ ) possède un dopage proche du point critique quantique ( $p\sim 0,2$ ), et il possède une masse plus importante que Y123-OD92b (Tab. 2.2). L'étude de l'ordre magnétique à  $q=0$  dans Y123-OD92a est également une piste à considérer.

Pour l'échantillon Y123-OD92b, nous n'avons pas étudié le signal magnétique sous  $T_c$  à  $Q = (1,0,1)$ . En revanche, nous l'avons étudié à  $Q = (0,9,0,0)$ . Nous avons reproduit les mesures de diffusion de neutrons polarisés sur le spectromètre 4F1 présentées précédemment pour l'échantillon Y123-UD89 (Fig. 4.15).

La Fig. 4.21.a montre les intensités brutes mesurées dans le canal SF pour les trois polarisations X, Y et Z. Là encore, l'intensité pour la polarisation Y est anormalement élevée. Après analyse de polarisation (Eq. 2.32), nous obtenons la dépendance en température de l'intensité magnétique (Fig. 4.21.b), elle se trouve sur un niveau négatif. Nous remarquons une plus forte intensité à basse température qu'à haute température. Nous ajustons ce signal par une gaussienne sur une droite croissante. Le signal magnétique apparaît à partir de 70K. L'augmentation nette à basse température (sous  $T_c$ ) du signal magnétique à  $Q = (0,9,0,0)$  est confirmée. D'après l'étude précédente de l'échantillon Y123-UD89, le surplus de signal magnétique à  $H=0,9$  implique un surplus de signal à  $H=1$ . Est-ce la cas pour l'échantillon Y123-OD92b? Une étude plus approfondie dans la phase supraconductrice de cet échantillon est nécessaire.

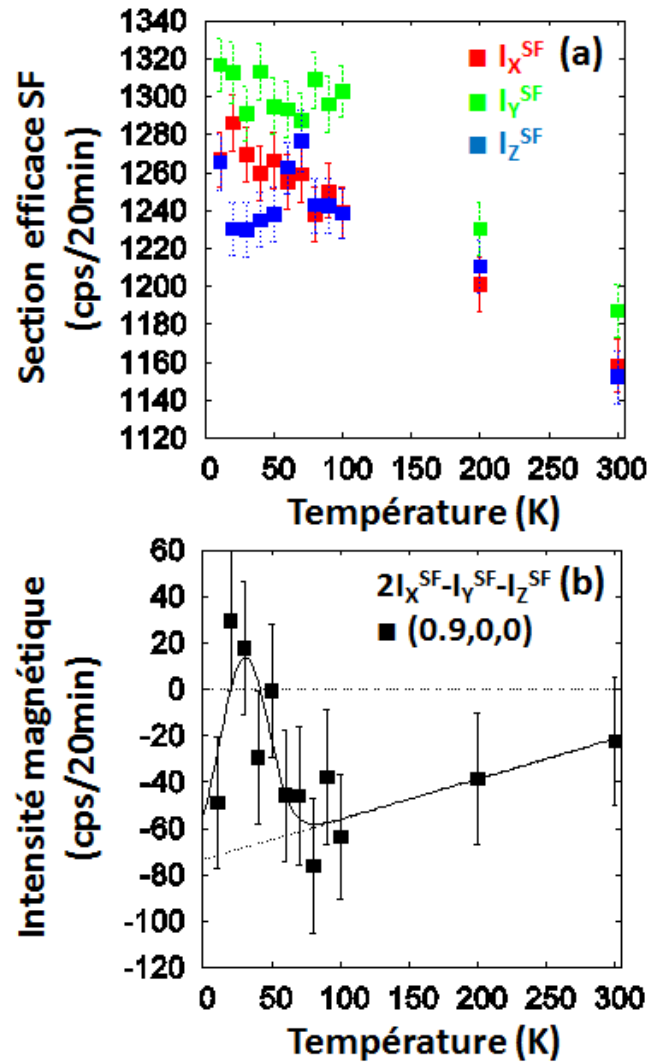


Figure 4.21: Y123-OD92b. Mesures effectuées sur le spectromètre 4F1. (a) Dépendance en température des sections efficaces SF à  $Q = (0.9, 0, 0)$  ( $E=0\text{meV}$ ) pour les trois polarisations X, Y et Z. (b) Dépendance en température de l'intensité magnétique extraite après analyse de polarisation à  $Q = (0.9, 0, 0)$  ( $E=0\text{meV}$ ).

Dans la continuité de ces travaux, nous avons mené une expérience sur le diffractomètre D7. La Fig. 4.22.a présente l'espace réciproque étudié sur D7 avec l'échantillon Y123-OD92b. Nous avons étudié la trajectoire passant par  $Q = (1,0,-0.25)$ . Lors des mesures sous  $T_c$ , nous avons observé une légère dépolarisation. Le rapport de flipping diminue en température. Cette fuite de polarisation rend l'étude de la réflexion de Bragg (à  $H=1$ ) délicate dans la phase supraconductrice et nous n'avons rien observé dans la phase normale. En revanche, pour l'étude de la diffusion diffuse, à  $H=0,9$ , la fuite de polarisation est beaucoup moins gênante.

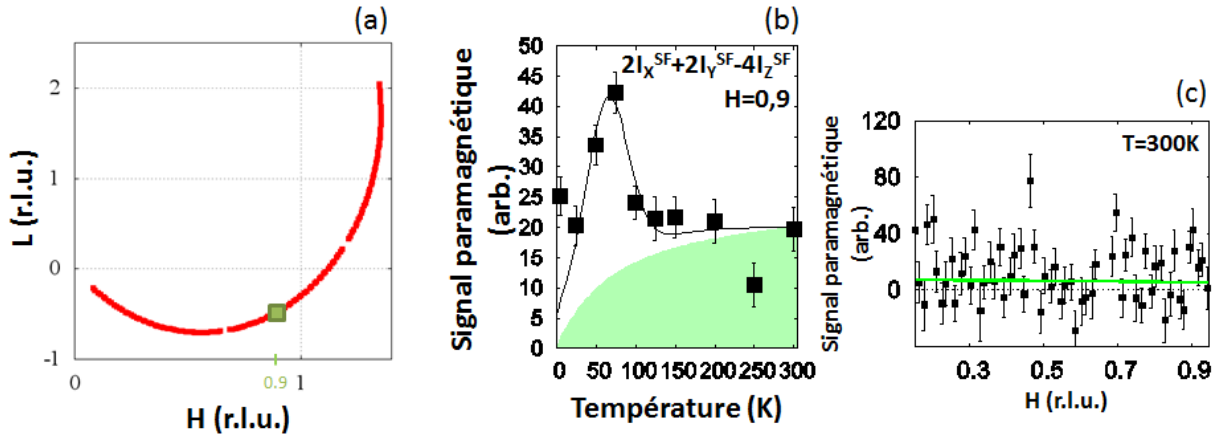


Figure 4.22: Y123-OD92b. Mesures effectuées sur le diffractomètre D7. (a) Schéma de l'espace réciproque étudié. (b) Dépendance en température du signal paramagnétique  $S_{mag} = 2I_X^{SF} + 2I_Y^{SF} - 4I_Z^{SF}$ , autour de  $H=0,9$ . (c) Dépendance en  $H$  du signal paramagnétique  $S_{mag}$  à 300K. Les lignes et zones vertes matérialise la contamination provenant de la phase verte.

A cette position, nous avons étudié le signal paramagnétique  $S_{mag}$  (Eq. 2.49), Fig. 4.22.b. Ce signal est obtenu en moyennant  $N=10$  détecteurs autour de  $H=0,9$ . Nous observons un signal magnétique élevé avec une augmentation autour de 70K. La Fig. 4.22.c quant à elle donne la dépendance en  $H$  du signal paramagnétique non moyenné à 300K pour l'échantillon Y123-OD92b. En mettant à la même échelle le signal paramagnétique mesuré pour la phase verte (d'après la Fig. 2.17.b), nous observons que le signal paramagnétique à 300K pour l'échantillon Y123-OD92b provient essentiellement de la phase verte. Enfin, en considérant la dépendance en température du signal magnétique pour la phase verte (déterminée au Chapitre 2, Fig. 2.17.c), nous obtenons l'aire verte de la Fig. 4.22.b. Nous n'observons aucun effet dans la phase normale. Le pic d'intensité autour de 70K semble réelle. De plus, cela est en accord avec la mesure effectuée sur 4F1 (Fig. 4.21.b) qui suggère une augmentation à basse température de l'intensité magnétique.

Pour l'échantillon Y123-UD61 ( $YBa_2Cu_3O_{6.6}$ ), l'intensité de l'ordre magnétique à  $q=0$  et  $T_{mag}$  sont élevées. Pour l'échantillon Y123-UD89 ( $YBa_2Cu_3O_{6.85}$ ), l'intensité est réduite mais  $T_{mag}$  reste élevée. Dans le cas présent, pour l'échantillon Y123-OD92b ( $YBa_2Cu_3O_{6.97}$ ), nous n'observons aucun signal magnétique dans la phase normale. Les études à  $H=0,9$  (que ce soit sur 4F1 ou D7) montrent un signal magnétique sous  $T_c$ , autour de 70K. S'agit-il de  $T_{mag}$ ? Dans ce cas, cela impliquerait que des corrélations magnétiques à  $q=0$  subsistent dans la phase supraconductrice.

### 4.3 Diagramme de phase de la famille Y123

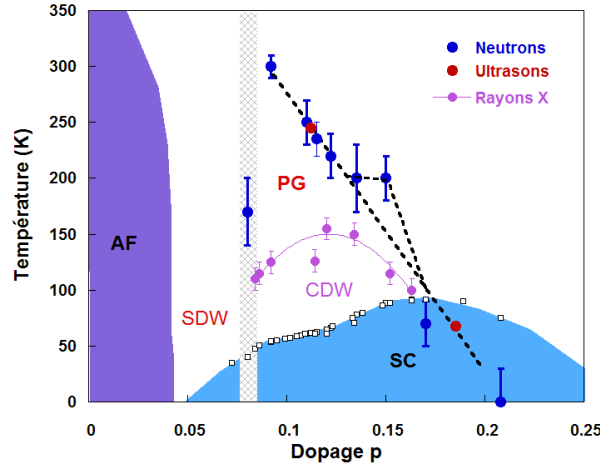


Figure 4.23: Diagramme de phase de la famille Y123. Les températures déterminées par les mesures de diffusion de neutrons polarisés [30, 32, 37]  $T_{mag}$  (points bleus), les mesures d'ultrasons [43] (points rouges) et par les mesures de rayons X [153]  $T_{CDW}$  (points violets) y sont comparées.

Sur le diagramme de phase de la famille Y123, Fig. 4.23, les points bleus correspondent aux températures  $T_{mag}$  déterminées par les mesures de diffusion de neutrons polarisés. A  $p=0,15$  (Y123-UD89), nous observons un léger écart à la ligne définie par les mesures de diffusion de neutrons précédentes [33]. L'ordre magnétique à  $q=0$  persiste à haute température. A plus haut dopage  $p=0,17$  (Y123-OD92b), aucun signal n'a été reporté dans la phase normale, indiquant la disparition brutale du paramètre d'ordre. Un signal magnétique a toutefois été reporté sous  $T_c$ . L'ordre disparaît complètement autour de  $p\sim 0,2$ . L'évolution de  $T_{mag}$  en fonction du dopage est très abrupt pour la famille Y123. Ceci est d'ailleurs compatible avec les observations rapportées par les mesures RMN du Knight Shift où la ligne de pseudo-gap chute très vite également [152]. De plus, l'évolution en fonction du dopage des températures  $T_{mag}$  semble en accord avec celle des températures déduites des mesures d'ultrasons résonants [43] (points rouges) bien que ces résultats soient discutés et que la ligne de transition de phase soit remise en cause [154]. Ces deux techniques indiquent une brisure de symétrie potentiellement associée à l'apparition de la phase de pseudo-gap, qui coexisterait avec la phase supraconductrice à basse température.

Enfin, les températures  $T_{CDW}$  (points violets) correspondent à l'observation par mesures de rayons X [153] d'un ordre de charge. Nous observons un dôme dont la température est maximale pour  $p=0,12$  (correspondant à la composition  $YBa_2Cu_3O_{6.6}$ ). Toutefois,  $T_{CDW}$  reste inférieure à  $T_{mag}$  quelque que soit le dopage. Autour du dopage optimal, la compétition entre l'ordre magnétique à  $q=0$  et l'ordre de charge pourrait être une possible explication de l'écart de  $T_{mag}$  par rapport à la ligne droite. A plus haut dopage, aucune indication d'un ordre de charge n'a été reportée et des corrélations magnétiques à  $q=0$  subsisteraient dans l'état supraconducteur.

## 4.4 Possibles excitations de basse énergie

En s'éloignant de la réflexion de Bragg  $\mathbf{Q} = (1,0,0)$ , nous avons observé un signal magnétique à  $\mathbf{Q} = (0.9,0,0)$  qui évolue en température. Jusqu'à maintenant nous avons effectué des mesures de diffusion élastique ( $E=0\text{meV}$ ) de neutrons polarisés sur le spectromètre trois-axes 4F1 ou quasi-élastique (intégration en énergie) sur le diffractomètre D7. Afin d'étudier le caractère dynamique de ce signal, nous avons également effectué des mesures de diffusion inélastique ( $E\neq 0\text{meV}$ ) de neutrons polarisés avec l'échantillon Y123-UD89 sur le spectromètre trois-axes IN14 (ILL,  $k_f = 1,5\text{\AA}^{-1}$ ), mais l'intensité du signal magnétique était malheureusement trop faible pour être clairement identifiée dans ces conditions expérimentales (le terme de résolution  $\nu_f \propto k_f^3 \cotan\theta_f$  est trop faible, Eq. 2.26). De cette expérience, nous avons conclu qu'il était nécessaire de travailler avec une valeur de  $k_f$  plus grande (pour maximiser l'intensité). Nous avons donc réalisé nos mesures sur le spectromètre trois-axes thermique 2T (avec  $k_f = 2,662\text{\AA}^{-1}$ ) dans le cas des mesures avec des énergies positives. Nous avons également complété ces mesures dans la gamme des énergies négatives sur le spectromètre trois-axes froid 4F1 (avec  $k_i = 2,57\text{\AA}^{-1}$ ). Nous négligeons dans cette partie l'effet de la résolution ( $\nu_f$ ) sur nos mesures. La comparaison des résultats sur ces deux instruments a pour but d'être plus qualitative que quantitative.

### 4.4.1 Dépendance en énergie

Dans un premier temps, nous avons étudié le spectre de ces possibles excitations à l'ambiante ( $T=300\text{K}$  correspondant à la phase désordonnée). La Fig. 4.24 montre la dépendance en énergie du signal magnétique, extrait après analyse de polarisation (Eq. 2.32), à  $\mathbf{Q} = (0.9,0,0)$ , mesurée sur une gamme d'énergies allant de  $-12\text{meV}$  à  $19\text{meV}$ . L'analyse de polarisation est la seule méthode pour mettre en évidence un signal magnétique non corrélé et faible. Nous avons regroupé sur cette figure des mesures effectuées sur les spectromètres trois-axes 2T (points rouges) et 4F1 (points bleus). Pour ce faire, nous avons mesuré le même phonon autour de  $\mathbf{Q} = (2,0,0)$  et  $E=-4\text{meV}$  sur les deux spectromètres et utilisé leur rapport pour mettre les deux jeux de données à la même échelle.

A température ambiante, le signal magnétique est visible de  $-8$  à  $8$  meV. En considérant que notre échantillon contient 15% de phase verte, nous sommes en mesure de reporter la quantité de signal magnétique provenant de la phase verte (dont la dépendance en énergie a été présentée sur la Fig. 2.17.g). Le signal magnétique provenant de la phase verte est présent dans la même gamme d'énergie. Un signal magnétique inélastique à  $\mathbf{Q} = (0.9,0,0)$  subsiste toutefois à température ambiante. Comment cela évolue-t-il en température?

### 4.4.2 Dépendance en température

Nous avons réalisé des suivis en température pour deux énergies basses,  $2\text{meV}$  (sur le spectromètre 2T avec  $k_f$  constant) et  $-4\text{meV}$  (sur le spectromètre 4F1 avec  $k_i$  constant), qui d'après la Fig. 4.24 semblent présenter un signal magnétique non nul. Les Fig. 4.25.a-b montrent les dépendances en température des sections efficaces dans le canal SF pour les trois polarisations X, Y et Z et les

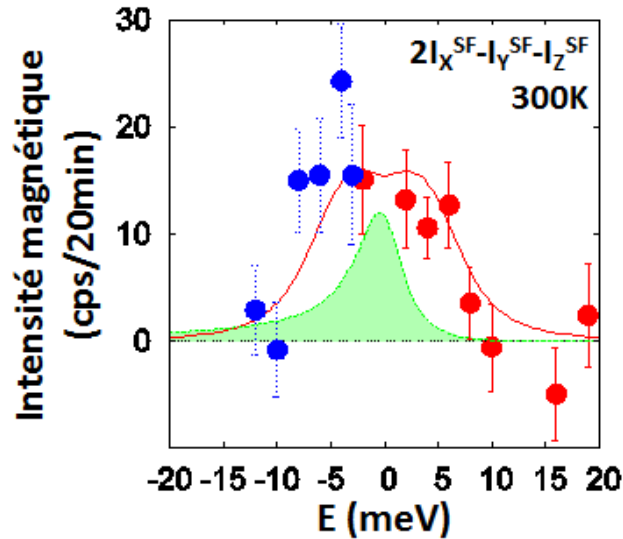


Figure 4.24: Y123-UD89. Dépendance en énergie du signal magnétique, extrait après analyse de polarisation, à  $Q = (0.9, 0, 0)$   $T=300K$ . Nous présentons ici l'ensemble des données mesurées sur les spectromètre 4F1 (points bleus) et 2T (points rouges). La ligne rouge est un guide à l'œil et l'aire verte correspond au signal magnétique provenant de la phase verte présente dans notre échantillon.

Fig. 4.25.c-d montrent l'intensité magnétique (après analyse de polarisation) à  $Q = (0.9, 0, 0)$  pour ces deux énergies.

Sur la Fig. 4.15.e, nous avons vu que pour  $E=0\text{meV}$ , le signal magnétique à basse température augmente considérablement et celui à haute température est faible. Pour  $E=2\text{meV}$ , nous notons la présence d'un pic d'intensité magnétique à basse température, autour de  $\sim 70K$  (proche de  $T_c=89K$ ), ainsi qu'une légère remontée à haute température. Nous savons d'après la Fig. 4.24 qu'à haute température (300K) une partie de signal magnétique provient de la phase verte. Dans le Chapitre 2, nous avons déterminé sa dépendance en température pour un signal intégré en énergie sur D7 ( $\int S(\mathbf{Q}, \omega) d\omega \propto \frac{T}{T+T_{CW}}$  avec  $T_{CW} = 78K$ , Fig. 2.17.c). Dans ce cas,  $S(\mathbf{Q}, \omega) \propto \frac{1}{1-e^{-\hbar\omega/k_B T}} \chi''(\omega) \propto \frac{k_B T}{\hbar\omega} \frac{\omega\Gamma}{\omega^2 + \Gamma^2} \chi'_0(\omega) \propto \frac{T}{T+T_{CW}} \frac{\Gamma}{\omega^2 + \Gamma^2}$ . Nous considérerons que cette dépendance est la même quelle soit l'énergie et nous la reportons sur la Fig. 4.25.c. Les mesures faites à  $E=2\text{meV}$  sont en faveur d'un signal magnétique à basse température, cependant plus faible et plus difficile à extraire qu'à  $E=0\text{meV}$ . Pour  $E=-4\text{meV}$ , nous remarquons que le signal magnétique est élevé à haute température, avec une possible augmentation autour de 150K. A basse température, le signal diminue fortement. Ceci est essentiellement dû à la diminution du facteur de balance détaillée en température pour une énergie non nulle (Eq. 2.11, 2.21). Contrairement à  $0\text{meV}$  et  $2\text{meV}$ , l'effet à basse température ( $T < T_c$ ) semble avoir disparu pour  $-4\text{meV}$ . Les points négatifs viennent du fait que l'intensité pour la polarisation X est plus faible (Fig. 4.25.b). Nous reportons également pour cette énergie la contribution de phase verte. Le signal magnétique propre à notre échantillon supraconducteur semble se développer autour de 150K pour  $E=-4\text{meV}$ .



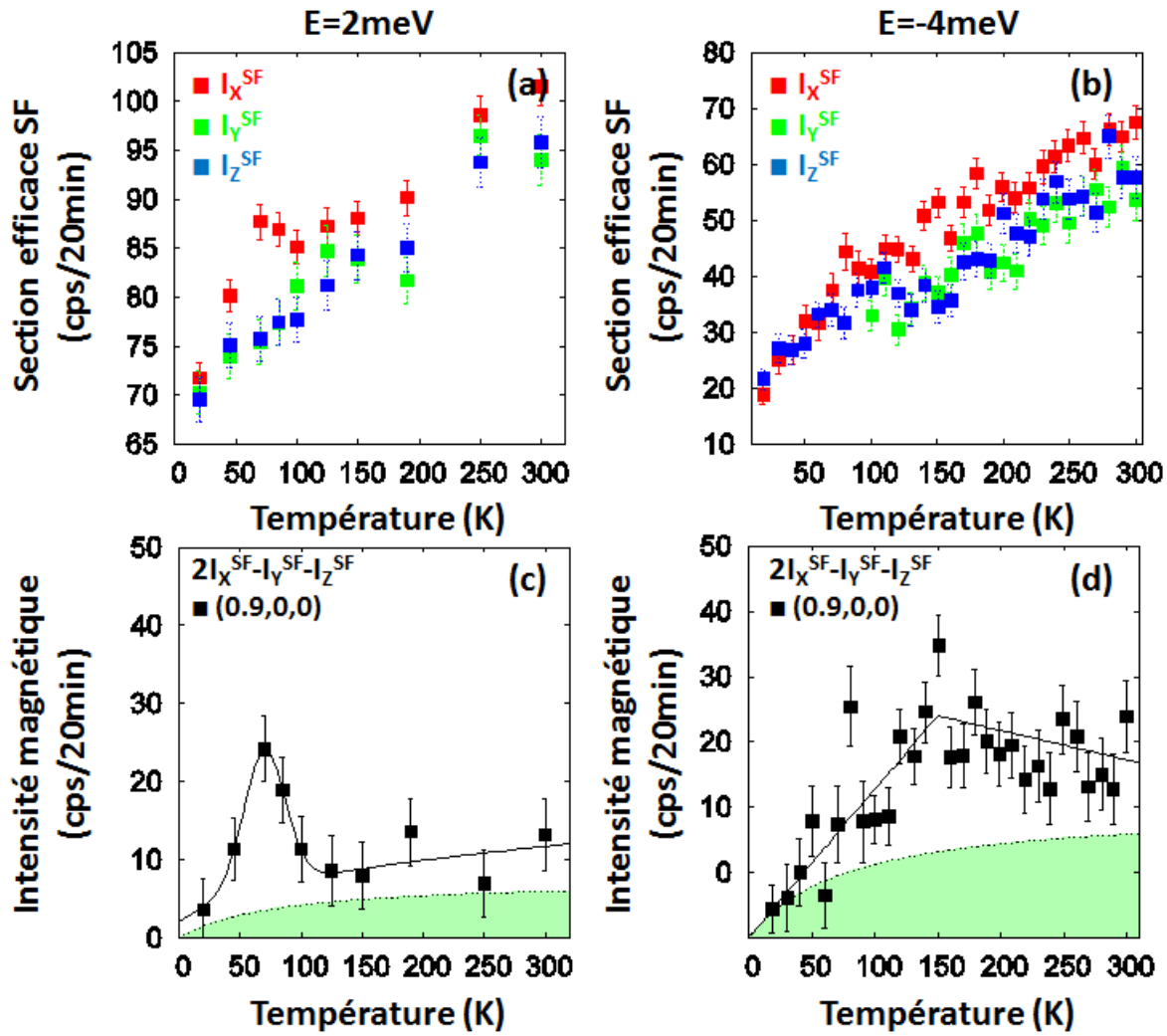


Figure 4.25: Y123-UD89. (a)-(b) Dépendance en température des sections efficaces SF à  $Q = (0.9, 0, 0)$  avec (a)  $E=2\text{meV}$  ( $2T$ ,  $k_f$  constant) et (b)  $E=-4\text{meV}$  ( $2T$ ,  $k_i$  constant) pour les trois polarisations X, Y et Z. (c)-(d) Dépendance en température de l'intensité magnétique, extraite après analyse de polarisation, à  $Q = (0.9, 0, 0)$  avec (c)  $E=2\text{meV}$  et (d)  $E=-4\text{meV}$  (carrés noirs pleins). L'aire verte correspond au signal magnétique provenant de la phase verte présente dans notre échantillon.

### 4.4.3 Évolution en fonction du vecteur d'onde

Nous avons ensuite étudié l'évolution de ce signal en fonction du vecteur d'onde dans le cas de  $E=-4\text{meV}$  à  $T=300\text{K}$ . Nous avons procédé à une analyse de polarisation à différentes valeurs de  $Q = (H,0,0)$  entre 0,3 et 2,5, Fig. 4.26.a, pour savoir à partir de quelle valeur de  $H$  ce signal disparaît. Nous observons une forte décroissance du signal magnétique en fonction de  $H$ . En comparaison, nous avons tracé les facteurs de forme magnétique du cuivre (ligne bleue) et de l'oxygène (ligne rouge). Le facteur de forme de l'oxygène est déterminé à partir de la Réf. [155]. Nous notons que celui-ci est le plus proche de nos mesures sans toutefois les reproduire. De plus, nos mesures indiquent que le signal ne fait que d'augmenter plus  $H$  est petit. Toujours en considérant qu'il y a 15% de phase verte dans notre échantillon et que son évolution en  $H$  suit le facteur de forme du cuivre, nous reportons l'aire verte sur la Fig. 4.26.a. Une partie non négligeable du signal magnétique subsiste au dessus de cette zone, montrant ainsi que l'augmentation aux petits angles n'est pas uniquement due à la présence de phase verte dans notre échantillon, elle semble réelle (comme suggéré lors de l'étude sur D7, Fig. 4.12, où le même signal est observé).

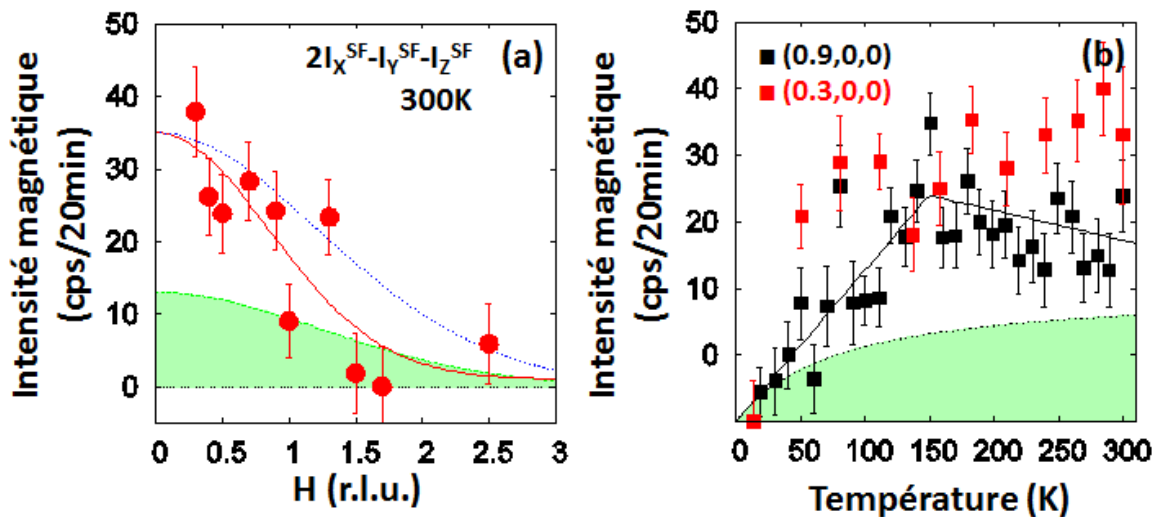


Figure 4.26: Y123-UD89. Mesures effectuées sur le spectromètre 4F1. (a) Coupe en  $H$  de l'intensité magnétique, extraite après analyse de polarisation, pour  $E=-4\text{meV}$  à  $T=300\text{K}$ . Les facteurs de forme magnétique de l'oxygène (ligne rouge) et du cuivre (ligne bleue) y sont reportés. (b) Dépendances en température du signal magnétique à  $Q = (0.9,0,0)$  (carrés noirs) et à  $Q = (0.3,0,0)$  (carrés rouges). L'aire verte correspond au signal magnétique provenant de la phase verte présente dans notre échantillon.

Nous comparons sur la Fig. 4.26.b les dépendances en température du signal magnétique mesuré à  $Q = (0.9,0,0)$  (carrés noirs) et à  $Q = (0.3,0,0)$ , (carrés rouges). Elles sont différentes. A  $Q = (0.3,0,0)$ , le signal magnétique est globalement croissant. Nous retrouvons que le niveau d'intensité est plus élevé à  $Q = (0.3,0,0)$  qu'à  $Q = (0.9,0,0)$  à haute température (entre 150K et 300K). Puis, les deux signaux chutent de la même manière à basse température.

Malgré la présence de phase verte, nous montrons que la dépendance en  $Q$  diminue plus rapidement que le facteur de forme magnétique du Cu, ce qui pourrait être en accord avec la théorie

des boucles de courant. Cependant, nous ignorons encore si l'intensité magnétique disparaît lorsque  $Q$  tend vers 0, comme prévu pour le modèle de boucles de courant. En effet, dans cette approche, d'après l'Eq. 2.41, la section efficace magnétique est proportionnelle à  $\sin^2(2\pi x_0 H)$  qui vaut 0 pour  $H=0$ . Nous attendrions donc un signal magnétique nul à  $|Q|=0$ . De plus, dans ce modèle, une symétrie discrète de type Ising est considérée. Des fluctuations de basses énergies sont-elles possibles dans un tel modèle? La direction du moment ne peut pas fluctuer dans ce cas, mais nous pourrions supposer que c'est son amplitude qui fluctue.

Pour faciliter la poursuite de cette étude, l'utilisation d'échantillons de la famille Y123 sans ou avec moins de phase verte est nécessaire. Les échantillons obtenus avec la technique de croissance MTG (Chapitre 2) sont susceptibles de contenir de la phase verte. Des échantillons obtenus avec d'autres méthodes de synthèse (comme dans le cas de l'échantillon Y123-UD62 étudié au Chapitre 3) sont de bons candidats. Il serait également intéressant de mesurer ces excitations magnétiques de basse énergie dans d'autres familles de cuprates. Enfin, des mesures avec un haut flux de neutrons seraient également un avantage compte tenu de la faiblesse du signal magnétique.

## 4.5 Conclusion

Dans le chapitre précédent, nous avons établi la présence d'un ordre magnétique à  $q=0$  longue portée 3D pour la composition  $YBa_2Cu_3O_{6.6}$ . Au voisinage du dopage optimal, pour la composition  $YBa_2Cu_3O_{6.85}$ , l'ordre magnétique à  $q=0$  persiste. L'intensité magnétique est fortement réduite mais  $T_{mag}$  reste élevée. La réduction de l'intensité magnétique correspond à la redistribution de cette intensité dans l'espace réciproque. Elle se traduit par des longueurs de corrélations courtes, dans le plan et le long de l'axe  $c$ . Cela implique l'existence de domaines de taille finie. La fluctuation de ces domaines pourrait expliquer pourquoi les sondes locales n'ont pas reporté l'existence d'un tel ordre. La formation de ces domaines pourrait être due à un désordre lié à la structure du système (chaînes CuO pour la famille Y123) ou à la compétition avec d'autres instabilités électroniques (ordre de charge). Nous observons des corrélations magnétiques à  $q=0$ . De plus, les deux composantes du moment magnétique évoluent différemment en température donnant lieu à une évolution particulière de l'inclinaison du moment magnétique. Il est faible et perpendiculaire au plan  $CuO_2$  à haute température alors qu'il devient plus fort et incliné à basse température. Cela exclut tous les modèles qui prévoient un moment fixe (géométriquement parlant). En revanche, l'antagonisme entre fluctuations quantiques et fluctuations thermiques pourrait expliquer cette évolution en température dans le cadre des boucles de courant. La composante hors plan évolue de manière particulière en température. Il semblerait également que cette dépendance soit différente en fonction du dopage. Il est nécessaire d'étendre cette étude à d'autres échantillons pour en comprendre l'origine. En outre, au dopage optimal, nous avons démontré que l'intensité magnétique associée à l'ordre magnétique à  $q=0$  continue d'augmenter sous  $T_c$ , ceci non seulement à la position de Bragg mais aussi en dehors. Cela suggère la coexistence de l'ordre magnétique à  $q=0$  avec l'état supraconducteur. L'intégration en  $Q$  de cette intensité permet également de reproduire la dépendance en température des fluctuations antiferromagnétiques,

suggérant à nouveau un fort lien entre l'ordre magnétique à  $q=0$  et les fluctuations antiferromagnétiques. Pour la même composition, des mesures préliminaires indiquent que des fluctuations de basse énergie associées à l'ordre magnétique à  $q=0$  existent mais sont faibles. Sont-elles liées aux fluctuations des états de boucles proposées pour expliquer la supraconductivité? Enfin, le signal associé à l'ordre magnétique à  $q=0$  disparaît soudainement à l'approche du point critique quantique ( $p \sim 0,2$ ). L'évolution en dopage obtenue est en accord avec celle attendue pour la phase de pseudo-gap.

# Chapitre 5

## Étude de l'ordre magnétique à $q=0$ dans les familles Bi2212 et Pb-Bi2201

### Sommaire

---

<b>5.1 Diagramme de phase de la famille Bi2212</b>	<b>140</b>
<b>5.2 Régime proche du dopage optimal de la famille Bi2212</b>	<b>141</b>
5.2.1 L'échantillon Bi2212-OD87	141
5.2.2 L'échantillon Bi2212-OP91	144
<b>5.3 Deux cas limites, les échantillons Bi2212-UD85 et Bi2212-OD70</b>	<b>148</b>
<b>5.4 Calibration des intensités pour la famille Bi2212</b>	<b>152</b>
5.4.1 1 <sup>ère</sup> étape: échantillons de référence	152
5.4.2 2 <sup>ème</sup> étape: échantillons à calibrer	154
<b>5.5 Évolution de la température d'ordre <math>T_{mag}</math> et de l'intensité magnétique <math>I_{mag}</math> en fonction du dopage</b>	<b>155</b>
<b>5.6 Évolution du signal magnétique en fonction de <math>Q = (1,0,L)</math></b>	<b>158</b>
<b>5.7 Régime sous-dopé de la famille Pb-Bi2201</b>	<b>160</b>
<b>5.8 Diagramme de phase de la famille Pb-Bi2201</b>	<b>166</b>
<b>5.9 Conclusion</b>	<b>167</b>

---

Dans ce dernier chapitre, nous étudierons l'ordre magnétique à  $q=0$  dans deux familles de composés à base de Bi. Nous approfondirons son étude pour la famille  $Bi2212$  (évolution à l'approche du dopage optimal, inclinaison du moment magnétique, facteur de structure) et nous le mettrons en évidence pour la première fois dans un échantillon de la famille  $Pb-Bi2201$ .

## 5.1 Diagramme de phase de la famille $Bi2212$

Comme nous l'avons déjà abordé dans le Chapitre 1, la phase de pseudo-gap dans le système bicouche  $Bi2212$  a été largement étudiée en utilisant des sondes de surface comme la spectroscopie de photoémission résolue en angle (ARPES) [42] et la spectroscopie Raman électronique (ERS) [27, 156] ou à l'échelle atomique en utilisant la microscopie à effet tunnel (STM) [73, 157]. En complément des mesures d'ARPES circulairement polarisées [44, 45] dans lesquelles un effet dichroïque est observé, les mesures de diffusion de neutrons polarisés [34, 132] ont montré que le pseudo-gap est associé à une brisure de symétrie par renversement du temps. Les dépendances en température des intensités magnétiques mesurées par diffusion de neutrons polarisés et de l'effet de dichroïsme observé en ARPES présentent une remarquable similarité [158]. De plus, les mesures de STM, reportant une densité électronique anisotrope, sont en faveur de l'existence d'un ordre à  $q=0$  pour la famille  $Bi2212$  [73].

Intéressons nous, dans un premier temps, à la température d'apparition de cet ordre magnétique. En dopant, il est attendu que la température de pseudo-gap diminue de façon linéaire et que cette phase disparaisse autour d'un dopage de l'ordre de  $p \sim 0,2$  [20]. Dans l'hypothèse où la phase de pseudo-gap correspond à une phase ordonnée, ce dopage correspond au point critique quantique [108, 158]. Dans le cas de la famille  $Bi2212$  [34, 132], comme le montre la Fig. 5.1, l'évolution de  $T_{mag}$  (points rouges) en fonction du dopage n'est pas linéaire jusqu'au point critique quantique. Cette dépendance est comparable à celle de la température  $T^*$  (carrés bleus) déduite des mesures d'ARPES [42]. Les mesures Raman [27, 156] sont également en accord avec cette évolution en dopage.

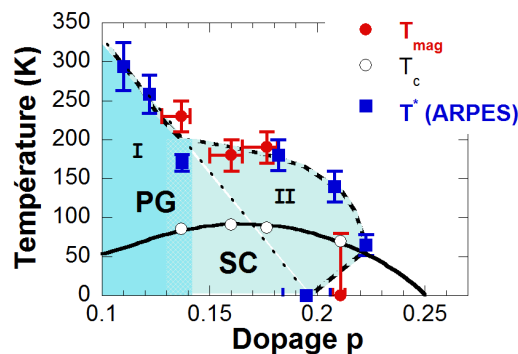


Figure 5.1: Diagramme de phase de la famille  $Bi2212$ . L'évolution en fonction du dopage des températures  $T_{mag}$  (points rouges, déterminées par les mesures de diffusion de neutrons polarisés [34, 132]) et  $T^*$  (carrés bleus, déduites des mesures d'ARPES [42]) permet de dégager deux régimes distincts: diminution linéaire (régime I) et zone caractérisée par la présence d'un plateau (régime II).

Nous pouvons distinguer deux régimes en fonction du dopage:  $T^*$  ( $=T_{mag}$ ) diminue d'abord linéairement avec le dopage (régime I, jusqu'à  $p \sim 0,13-0,14$ ), mais à l'approche du dopage optimal ( $p = 0,16$ ), un plateau apparaît. Il disparaît abruptement à plus grand dopage (régime II). Les mesures d'ARPES suggèrent même un comportement ré-entrant [42]. Ce comportement est toutefois discuté et remis en cause par des calculs thermodynamiques [159].

La recherche de l'ordre magnétique à  $q=0$  dans les composés de la famille Bi2212, par diffusion de neutrons polarisés, a été initialement menée durant la thèse de S. De Almeida-Didry [34], avec l'étude de trois échantillons: Bi2212-UD85 (à la frontière entre les régimes I et II), Bi2212-OD87 (régime II) et Bi2212-OD70 (limite haut dopage du régime II). Afin de fournir une description plus quantitative de cet ordre magnétique, nous avons complété cette étude dans deux échantillons du régime II: Bi2212-OD87 (sur-dopé) et Bi2212-OP91 (optimalement dopé). Nous avons également ré-analysé les mesures de polarisation effectuées dans les échantillons Bi2212-UD85 et Bi2212-OD70, afin d'en extraire l'orientation du moment magnétique. De plus, nous avons établi une procédure de calibration en unités absolues de l'intensité magnétique permettant une comparaison quantitative directe entre les différentes familles d'échantillons, notamment entre les deux systèmes bicouches Bi2212 et Y123.

## 5.2 Régime proche du dopage optimal de la famille Bi2212

### 5.2.1 L'échantillon Bi2212-OD87

Les travaux menés par S. De Almeida-Didry et al [34] dans la famille de composés Bi2212 ont notamment montré que l'ordre magnétique à  $q=0$  s'établit à relativement haute température pour l'échantillon sur-dopé Bi2212-OD87 ( $T_c=87K$ ,  $p\sim 0,18$ ) par rapport à l'échantillon sous-dopé Bi2212-UD85 ( $T_c=85K$ ,  $p\sim 0,135$ ). L'étude réalisée sur la réflexion de Bragg  $\mathbf{Q} = (1,0,1)$  suggérait  $T_{mag} \sim 170K$  pour  $p\sim 0,18$  (par rapport à  $T_{mag} \sim 230K$  pour  $p\sim 0,135$ ). Dans le but d'affiner notre estimation de  $T_{mag}$  pour l'échantillon Bi2212-OD87, nous avons réalisé des mesures avec cet échantillon aligné dans le plan de diffusion  $[1,0,0]/[0,0,1]$  sur le spectromètre trois-axes 4F1. Nous avons ainsi accès aux vecteurs d'onde de la forme  $\mathbf{Q} = (H,0,L)$  et nous considérons plus particulièrement la réflexion de Bragg  $\mathbf{Q} = (1,0,3)$ . De plus, nous avons effectué nos mesures avec la polarisation X pour laquelle l'intensité magnétique totale est attendue dans le canal SF (Eq. 2.32).

Nous reprenons la méthode pour mettre en évidence l'ordre magnétique à  $q=0$  déjà employée dans les chapitres précédents. Nous rappelons qu'il est nécessaire de mesurer les intensités dans les canaux SF et NSF à un grand vecteur d'onde afin d'obtenir la dépendance en température de l'inverse du rapport de flipping de référence  $1/FR_X^0(T) = 1/FR_X^0 + \alpha_X T$ , il est également nécessaire de mesurer les intensités à une position de bruit de fond ( $BG_X^{SF/NSF}(T)$ ) en plus de la réflexion de Bragg considérée pour obtenir l'intensité intrinsèque  $I_X^{SF/NSF}(T)$ .

Nous avons donc mesuré l'intensité diffusée dans les canaux SF et NSF à  $\mathbf{Q} = (2,0,0)$  (Fig. 5.2.a),  $\mathbf{Q} = (0,9,0,3)$  et  $\mathbf{Q} = (1,0,3)$  (Fig. 5.2.b) en fonction de la température. Pour la famille Bi2212, dans la phase supraconductrice, la dépolarisation du faisceau de neutrons (avec le dispositif de bobines



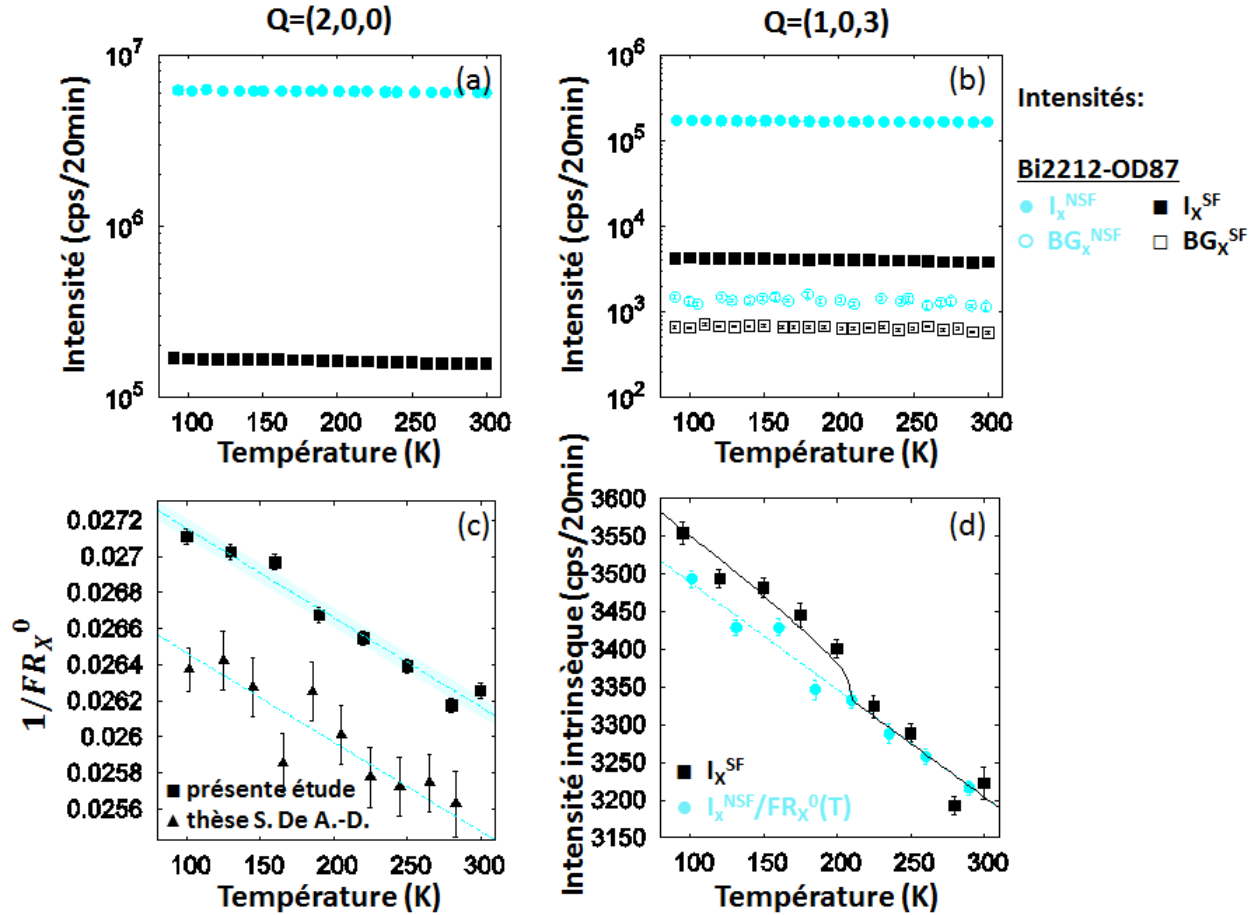


Figure 5.2: Bi2212-OD87. Mesures effectuées sur le spectromètre 4F1 avec la polarisation X. (a) Dépendances en température des intensités brutes mesurées à  $Q = (2,0,0)$ , dans les canaux NSF (symboles bleus) et SF (symboles noirs). (b) Dépendances en température des intensités brutes mesurées aux positions  $Q = (1,0,3)$  (réflexion de Bragg, symboles pleins) et  $Q = (0,9,0,3)$  (référence de bruit de fond, symboles ouverts), dans les canaux NSF (symboles bleus) et SF (symboles noirs). (c) Dépendances en température de l'inverse du rapport de flipping,  $1/FR_X^0(T)$ , à  $Q = (2,0,0)$  pour la présente étude (carrés noirs) et extrait des travaux de S. De Almeida-Didry (triangles noirs), données auxquelles nous avons ajouté une constante (+0.004) pour faciliter la comparaison avec la présente étude (le niveau de rapport de flipping différent est dû à une qualité de polarisation du faisceau différente). (d) Dépendances en température de l'intensité de Bragg intrinsèque (bruit de fond soustrait) à  $Q = (1,0,3)$  dans les canaux SF (symboles noirs) et NSF (symboles bleus) divisée par le rapport de flipping de référence  $FR_X^0(T)$ , de manière à n'avoir aucun signal à haute température.

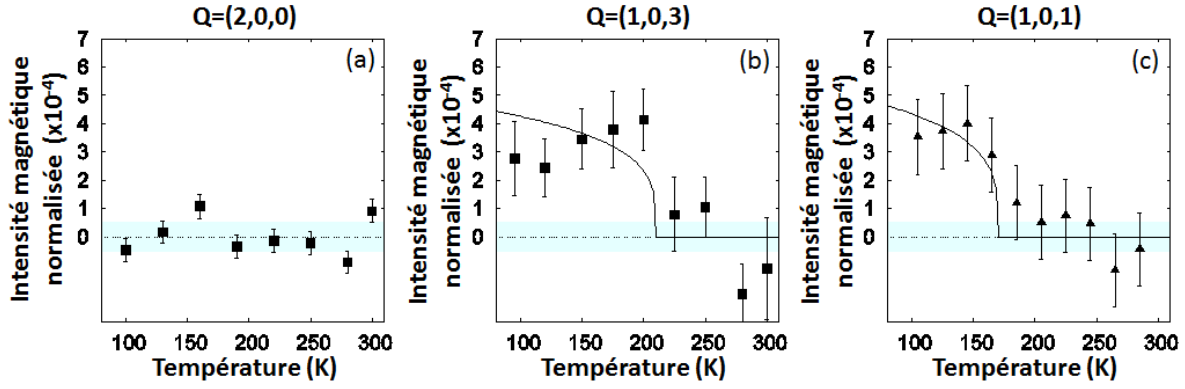


Figure 5.3: Bi2212-OD87. Mesures effectuées sur le spectromètre 4F1 avec la polarisation X. Dépendances en température de l'intensité magnétique normalisée à la position de Bragg (a)  $Q = (2,0,0)$  prise comme référence de l'inverse du rapport de flipping  $1/FR_X^0(T)$  et aux positions de Bragg (b)-(c)  $Q = (1,0,L)$  pour l'étude de l'ordre magnétique à  $q=0$ . (b)  $L=3$ , (c)  $L=1$  selon [34].

de Helmholtz) est systématique, nous n'avons donc pas pu étudier ce signal sous  $T_c$ . En procédant au rapport entre  $I_X^{NSF}(T)$  et  $I_X^{SF}(T)$  et en moyennant les points en température pour avoir une meilleure statistique, nous obtenons la dépendance en température de l'inverse du rapport de flipping,  $a_X T$ , qui est reportée dans la Fig. 5.2.c (symboles carrés) pour  $Q = (2,0,0)$ . Nous observons une pente décroissante, et le bandeau bleu matérialise l'erreur sur la pente. Les symboles triangulaires sur la Fig 5.2.c montrent la dépendance en température de l'inverse du rapport de flipping à  $Q = (2,0,0)$  extrait des travaux de thèse de S. De Almeida-Didry [34]. La principale différence entre les deux mesures réside dans la taille de l'analyseur Heusler utilisé. Bien que les deux mesures ont été faites durant deux expériences différentes, nous observons des pentes similaires. Sur la Fig. 5.2.b, l'intensité de bruit de fond  $BG_X$  mesurée à  $Q = (0.9,0,3)$  apparaît faible pour le canal NSF (symboles bleus) mais non négligeable pour le canal SF (symboles noirs) par rapport à l'intensité  $I_X$  mesurée à la position de Bragg  $Q = (1,0,3)$ . De plus, comme pour l'inverse du rapport de flipping, sa dépendance en température est susceptible de perturber notre analyse. Ainsi, nous soustrayons systématiquement le bruit de fond afin de ne conserver que la dépendance en température propre à la réflexion de Bragg.

Après correction du bruit de fond, nous moyennons également les intensités de Bragg en température pour obtenir une meilleure statistique. Nous comparons sur la Fig. 5.2.d le signal ainsi obtenu dans le canal SF (carrés noirs) et dans le canal NSF (points bleus) divisé par le rapport de flipping de référence  $FR_X^0(T)$ , normalisé à haute température. L'ordre de grandeur de  $FR_X^0$  à haute température est de  $\sim 50$ . Nous remarquons que les deux signaux sont décroissants en température, mais avec une pente différente. A haute température, lorsqu'aucun ordre magnétique ne s'est développé, l'intensité  $I_X^{SF}$  se réduit à la fuite de polarisation du signal,  $I_X^{NSF}/FR_X^0$ . Lorsque la température diminue, en dessous de  $T_{mag} \sim 210K$ , le signal magnétique  $I_{mag,X}$  se superpose à ce signal. D'après la Fig 5.2.d, l'écart entre  $I_X^{SF}$  et  $I_X^{NSF}/FR_X^0$  à basse température, qui nous donne  $I_{mag,X}$  d'après l'Eq. 2.42, est de 50 coups et d'après la Fig. 5.2.b, l'ordre de grandeur de  $I_X^{NSF}$  est de  $10^5$ . Ainsi,  $I_{mag,X}/I_X^{NSF} \sim 50/10^5 = 0,0005$ . L'ordre de grandeur de la fuite de polarisation est

$1/\text{FR}_X^0 \sim 0,02$ . La contribution du signal magnétique est donc faible et le signal diffusé dans le canal SF est largement dominé par la fuite de polarisation. Nous nous trouvons en limite de détection.

Sur les Fig. 5.3.a-c, nous présentons les dépendances en température des intensités magnétiques normalisées,  $I_{mag,X}/I_X^{\text{NSF}}$ , pour  $\mathbf{Q} = (2,0,0)$  et  $\mathbf{Q} = (1,0,3)$  comparées à celle obtenues à  $\mathbf{Q} = (1,0,1)$  d'après les travaux de thèse de S. De Almeida-Didry. Cette quantité permet de comparer les résultats quels que soient les échantillons et les conditions de mesures. Nous reportons également le bandeau bleu déterminé d'après la Fig. 5.2.c. Pour  $\mathbf{Q} = (2,0,0)$ , nous n'observons aucun signal magnétique en dehors du bandeau. Pour  $\mathbf{Q} = (1,0,L)$ , comme d'après l'analyse de la Fig 5.2.d, aucun signal n'est observable à haute température. Puis, en dessous de  $T_{mag} \sim 210\text{K}$ , le signal commence à augmenter. Ce surcroît d'intensité correspond à l'apparition du signal magnétique. Il présente une dépendance en température caractéristique de la forme  $(1 - T/T_{mag})^{2\beta}$  avec  $2\beta$  imposé à 0,25.

Les données à  $\mathbf{Q} = (1,0,1)$  sont qualitativement similaires à celles que nous obtenons à  $\mathbf{Q} = (1,0,3)$ . Nos mesures confirment donc la persistance d'un signal magnétique dans l'échantillon Bi2212-OD87. Cependant, la faiblesse du signal d'une part et la dépendance en température de la fuite de polarisation d'autre part sont à l'origine d'une certaine incertitude sur la température  $T_{mag}$  à laquelle l'ordre magnétique s'établit. L'étude à  $\mathbf{Q} = (1,0,1)$  suggérait 170K, notre étude à  $\mathbf{Q} = (1,0,3)$  suggère 210K. En considérant l'ensemble de ces études, nous pouvons conclure que, dans l'échantillon Bi2212-OD87, l'ordre magnétique se développe sous  $T_{mag} = 190 \pm 20\text{K}$  (Fig. 5.1). Le rapport d'intensité  $I_{mag,X}/I_X^{\text{NSF}}$  associé est de l'ordre de  $5.10^{-4}$ .

## 5.2.2 L'échantillon Bi2212-OP91

Afin de confirmer la persistance de l'ordre à  $q=0$  autour du dopage optimal dans la famille de composés Bi2212 et de caractériser davantage le plateau observé dans son diagramme de phase, Fig. 5.1, nous avons étudié un nouvel échantillon Bi2212-OP91 ( $T_c = 91\text{K}$ ,  $p \sim 0.16$ ) [136]. Son dopage est intermédiaire entre celui des échantillons Bi2212-UD85 et Bi2212-OD87, c'est-à-dire entre les régimes I et II. De plus, sa masse est au moins deux fois plus importante que celles des autres échantillons Bi2212 étudiés jusqu'à maintenant pour la mise en évidence de l'ordre magnétique à  $q=0$ . Lors d'une mesure de diffusion de neutrons, plus l'échantillon est gros plus les intensités sont élevées, facilitant ainsi l'extraction du signal.

Nous avons reproduit la procédure appliquée précédemment avec la référence du rapport de flipping prise à  $\mathbf{Q} = (0,0,4)$  (Fig. 5.4.a) et le bruit de fond mesuré à  $\mathbf{Q} = (0,9,0,3)$  pour l'étude de la réflexion de Bragg  $\mathbf{Q} = (1,0,3)$  (Fig. 5.4.b). La réflexion de Bragg  $\mathbf{Q} = (0,0,4)$  n'est pas à grand vecteur d'onde  $|\mathbf{Q}|$ , comme  $\mathbf{Q} = (2,0,0)$ , mais pour l'étude de l'ordre magnétique à  $q=0$ , dans le cadre du modèle de boucles de courant, il a été établi que le signal magnétique était toujours absent sur les réflexions de Bragg du type  $\mathbf{Q} = (0,0,L)$  [17, 45, 87]. La dépendance en température de l'inverse du rapport de flipping  $a_X T$  ( $1/\text{FR}_X^0(T) = 1/\text{FR}_X^0 + a_X T$ ) à cette position présente une forte pente croissante, Fig. 5.4.c. Nous reportons à nouveau le bandeau bleu déterminé d'après les mesures de l'échantillon Bi2212-OD87 (Fig. 5.2.c). Bien que les intensités intrinsèques dans le canal SF et

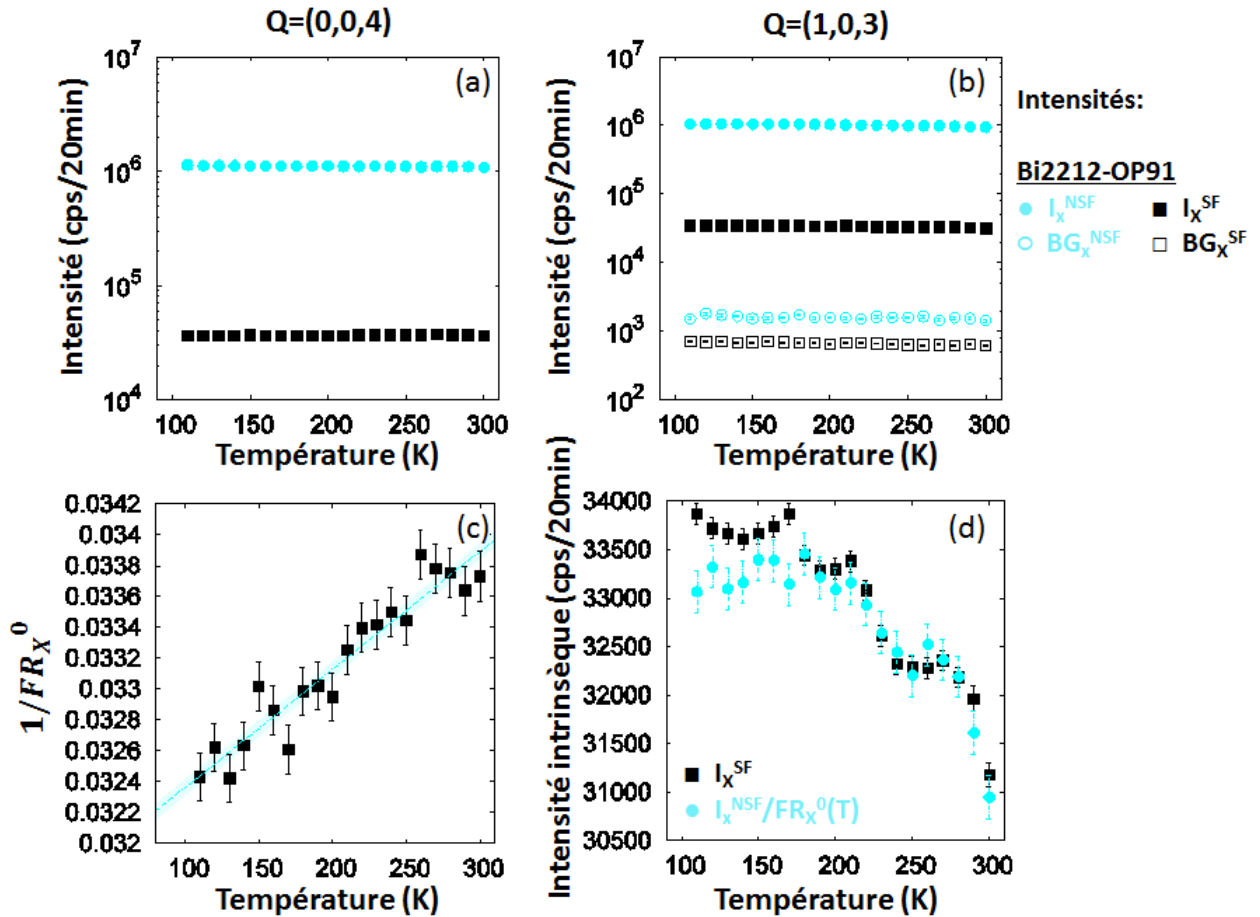


Figure 5.4: Bi2212-OP91. Mesures effectuées sur le spectromètre 4F1 avec la polarisation X. (a) Dépendances en température des intensités brutes mesurées à  $Q = (0,0,4)$ , dans les canaux NSF (symboles bleus) et SF (symboles noirs). (b) Dépendances en température des intensités brutes mesurées aux positions  $Q = (1,0,3)$  (réflexion de Bragg, symboles pleins) et  $Q = (0,9,0,3)$  (référence de bruit de fond, symboles ouverts), dans les canaux NSF (symboles bleus) et SF (symboles noirs). (c) Dépendances en température de l'inverse du rapport de flipping,  $1/FR_X^0(T)$ , à  $Q = (0,0,4)$ . (d) Dépendances en température de l'intensité de Bragg intrinsèque (bruit de fond soustrait) à  $Q = (1,0,3)$  dans les canaux SF (symboles noirs) et NSF (symboles bleus) divisée par le rapport de flipping de référence  $FR_X^0(T)$ , de manière à n'avoir aucun signal à haute température.

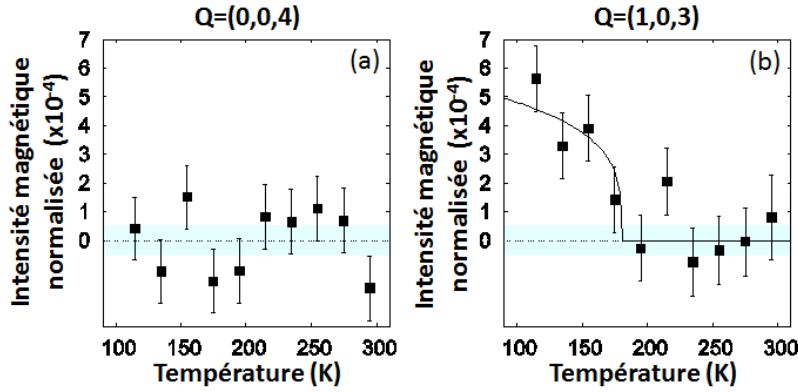


Figure 5.5: Bi2212-OP91. Mesures effectuées sur le spectromètre 4F1 avec la polarisation X. Dépendances en température de l'intensité magnétique normalisée à la position de Bragg (a)  $Q = (0,0,4)$  prise comme référence de l'inverse du rapport de flipping,  $1/FR_X^0(T)$ , et à (b)  $Q = (1,0,3)$  pour l'étude de l'ordre magnétique à  $q=0$ . Les points sont moyennés tous les 20K par rapport à la Fig. 5.4.

dans le canal NSF divisée par  $FR_X^0(T)$  présentent une évolution peu monotone, elles se superposent parfaitement à haute température, Fig. 5.4.d. Nous notons également que les intensités SF et NSF observées à  $Q = (1,0,3)$ , pour un même temps de comptage, sont de l'ordre de 10 fois plus grandes que pour l'échantillon Bi2212-OD87 (du fait de la masse échantillon plus importante). L'écart en intensité est ainsi plus visible à basse température.

Enfin, les Fig. 5.5.a-b correspondent aux dépendances en température de des intensités normalisées,  $I_{mag,X}/I_X^{NSF}$ , après moyenne des points en température, pour  $Q = (0,0,4)$  et  $Q = (1,0,3)$ . La température d'apparition de l'ordre magnétique est de  $T_{mag} \sim 180K$ , confirmant ainsi dans un échantillon de meilleure qualité la persistance de l'ordre magnétique à  $q=0$  à relativement haute température autour du dopage optimal (Fig. 5.1). De plus, le rapport  $I_{mag,X}/I_X^{NSF}$  est de l'ordre de  $5.10^{-4}$ . Les échantillons Bi2212-OP91 et Bi2212-OD87 présentent un signal magnétique du même ordre de grandeur.

De plus, dans le chapitre précédent, nous avons observé des excitations de basse énergie pour l'échantillon Y123-UD89 ( $p=0,15$ ). Dans le but de déterminer si ces excitations de basse énergie sont génériques, nous avons effectué des mesures de diffusion inélastique de neutrons polarisés avec l'échantillon Bi2212-OP91 ( $p=0,16$ ) sur le spectromètre 4F1. La famille Bi2212 ne contient pas de poudre de phase verte, la mesure est a priori libre de toute contamination.

Sur la Fig. 5.6.a, nous reportons les dépendances en température de l'intensité mesurée à  $Q = (0,9,0,0)$  pour  $E=-4meV$  dans le canal SF pour les trois polarisations X, Y et Z. La Fig. 5.6.b, quant à elle, présente la dépendance en température de l'intensité magnétique, déduite après analyse de polarisation (Eq. 2.32) et après moyenne en température pour l'échantillon Bi2212-OP91. Nous remarquons que le signal magnétique apparaît à haute température, au dessus de  $T_{mag} \sim 180K$ . A plus basses températures, l'analyse de polarisation ne semble donner aucun signal. Nous comparons cette dépendance en température de l'intensité magnétique obtenue à  $Q = (0,9,0,0)$  pour  $E=-4meV$  avec celle de l'échantillon Y123-UD89, Fig. 5.6.c (d'après le résultat de l'étude de

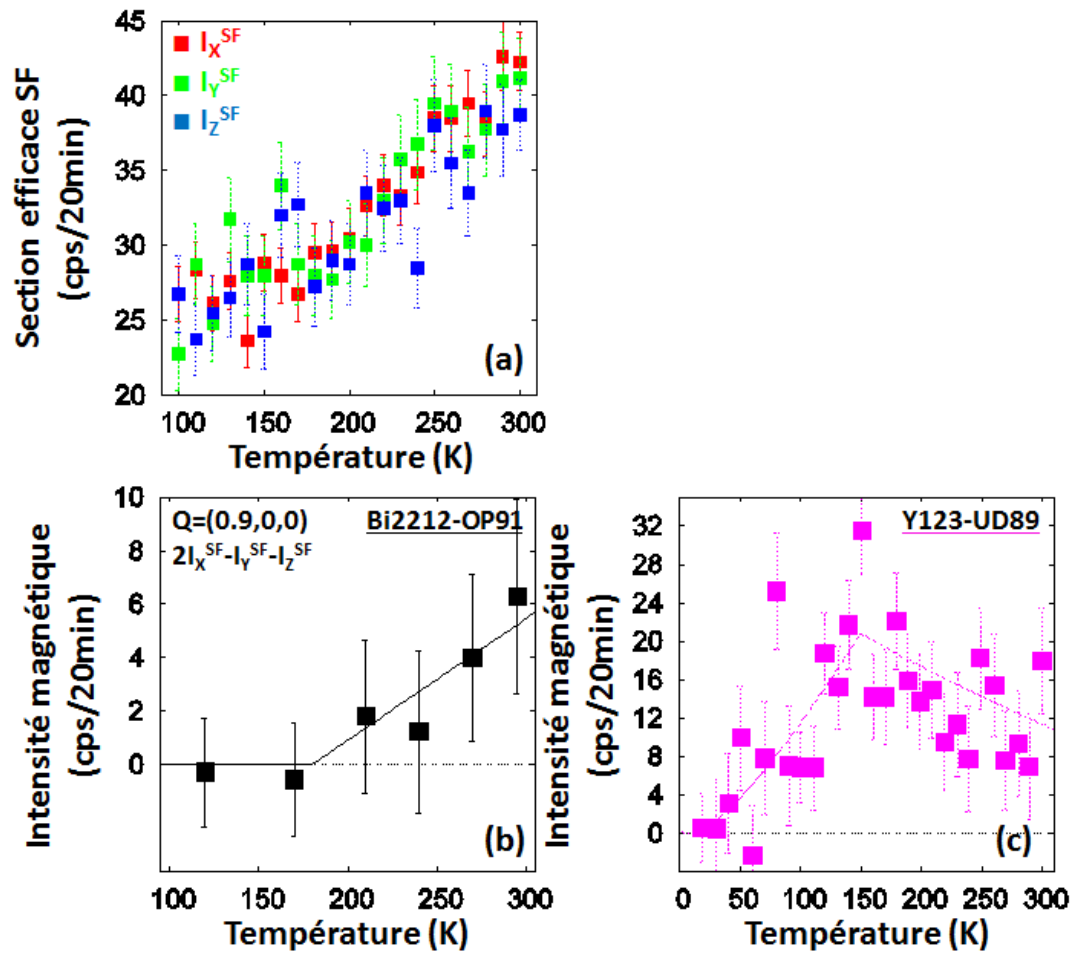


Figure 5.6: Bi2212-OP91. Mesures effectuées sur le spectromètre 4F1. (a) Dépendance en température des sections efficaces SF à  $Q = (0.9,0,0)$  ( $E=-4$ meV) pour les trois polarisations X, Y et Z. (b) Dépendance en température de l'intensité magnétique, extraite après analyse de polarisation, à  $Q = (0.9,0,0)$  ( $E=-4$ meV). Nous avons en plus moyenné les données pour faciliter l'observation du signal. (c) Nous comparons ces données à la même mesure effectuée avec l'échantillon Y123-UD89 (Chapitre 4, Fig. 4.25.d).

la Fig. 4.25.d auquel nous avons ôté la contribution de phase verte). La différence d'amplitude du signal magnétique vient du fait que les deux échantillons n'ont pas la même masse (Bi2212-OP91, 5,5g / Y123-UD89, 8g). Bien que les dépendances en température soient différentes selon le système étudié, nous confirmons qu'un signal magnétique de basse énergie existe à haute température. La nature de ces excitations et leur lien avec l'ordre magnétique à  $q=0$  restent toutefois à déterminer. Par la suite, il serait intéressant d'effectuer un suivi en fonction de  $H$  afin de vérifier les résultats de la Fig. 4.26 (pour notamment étudier la remontée à petit  $H$  du signal magnétique). De plus, les mesures dans l'état supraconducteur, avec le dispositif expérimental utilisé (bobines de Helmholtz), sont exclues pour Bi2212 du fait du risque de dépolarisation du faisceau de neutrons. L'utilisation de dispositifs tels que CRYOPAD ou MUPAD (que nous avons présentés au Chapitre 2) permettrait toutefois de résoudre ce problème, grâce à la zone de champ nul.

### 5.3 Deux cas limites, les échantillons Bi2212-UD85 et Bi2212-OD70

Nous avons ré-analysé les mesures de diffusion de neutrons polarisés effectuées durant la thèse de S. De Almeida-Didry, afin de caractériser davantage l'ordre magnétique à  $q=0$  observé. Nous étudierons l'évolution du signal magnétique en fonction de  $\mathbf{Q} = (1,0,L)$ . De plus, pour une réflexion de Bragg donnée, nous procéderons à une analyse complète de polarisation. Ces mesures ont été effectuées avec l'échantillon sous-dopé Bi2212-UD85 ( $p \sim 0,135$ ) et l'échantillon sur-dopé Bi2212-OD70 ( $p \sim 0,22$ ).

Pour chaque échantillon, la référence de l'inverse du rapport de flipping a été mesurée à  $\mathbf{Q} = (2,0,0)$  dont les données brutes sont présentées sur la Fig. 5.7.a. Nous présentons sur la Fig. 5.7.b les intensités brutes mesurées à  $\mathbf{Q} = (0.9,0,3)$  et  $\mathbf{Q} = (1,0,3)$  pour l'échantillon Bi2212-UD85. L'inverse du rapport de flipping de référence  $1/FR_X^0$  apparaît en outre indépendant de la température pour les deux échantillons Bi2212-UD85 et Bi2212-OD70, Fig. 5.7.c. Enfin, la Fig. 5.7.d présentant l'intensité intrinsèque dans le canal SF et celle dans le canal NSF divisée par  $FR_X^0$  suggère une intensité magnétique relativement élevée pour l'échantillon Bi2212-UD85, en comparaison aux études précédentes menées dans les échantillons Bi2212-OD87 et Bi2212-OP91.

Les Fig. 5.8.a-e montrent les dépendances en température de l'intensité magnétique normalisée,  $I_{mag,\alpha}/I_{\alpha}^{NSF}$ , pour la polarisation X mesurée aux réflexions de Bragg  $\mathbf{Q} = (2,0,0)$  et  $\mathbf{Q} = (1,0,L)$  pour des valeurs croissantes et impaires de  $L$ . Les données pour les échantillons Bi2212-UD85 et Bi2212-OD70 sont superposées sur chaque figure. Cette comparaison directe entre les deux échantillons est permise puisque les rapports de flipping pour chaque échantillon sont essentiellement indépendants de la température dans les deux cas et réduits à un simple décalage lorsque nous comparons les deux échantillons. Pour l'échantillon Bi2212-OD70, l'intensité magnétique est nulle dans la barre d'erreur, quelle que soit la valeur de  $L$ , ce qui confirme qu'aucun signal magnétique n'est détecté par diffusion de neutrons polarisés dans cet échantillon [34]. Au contraire, pour Bi2212-UD85, un signal magnétique apparaît en-dessous de  $T_{mag} \sim 230K$  à  $L = 1$  et 3. Pour des valeurs de  $L$  plus élevées ( $L = 5$  et 7), aucun signal magnétique n'est mesurable. Les recherches d'un signal magnétique à des valeurs de  $L$  entières paires ou pour des valeurs non en-



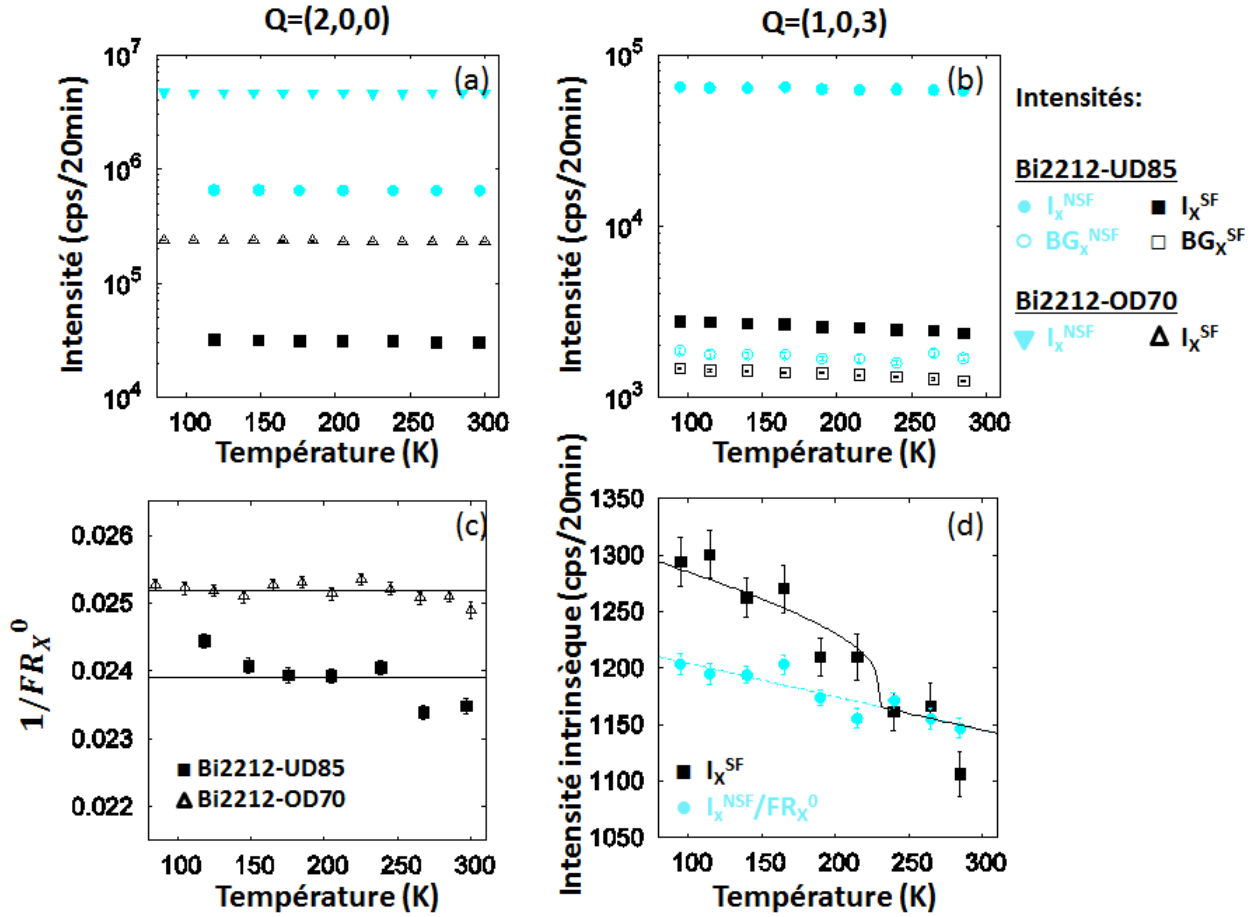


Figure 5.7: Bi2212-UD85 et Bi2212-OD70. Mesures effectuées sur le spectromètre 4F1 avec la polarisation X. (a) Dépendances en température des intensités brutes mesurées à  $Q = (2,0,0)$ , pour Bi2212-UD85 dans les canaux NSF (ronds bleus) et SF (carrés noirs) et pour Bi2212-OD70 dans les canaux NSF (triangles bleus) et SF (triangles noirs). (b) Dépendances en température des intensités brutes mesurées aux positions  $Q = (1,0,1)$  (réflexion de Bragg, symboles pleins) et  $Q = (0.9,0,1)$  (référence de bruit de fond, symboles ouverts), dans les canaux NSF (symboles bleus) et SF (symboles noirs) pour Bi2212-UD85. (c) Dépendances en température de l'inverse du rapport de flipping,  $1/FR_X^0(T)$ , à  $Q = (2,0,0)$  pour Bi2212-UD85 (carrés) et pour Bi2212-OD70 (triangles). (d) Dépendances en température de l'intensité de Bragg intrinsèque (bruit de fond soustrait) à  $Q = (1,0,1)$  dans les canaux SF (symboles noirs) et NSF (symboles bleus) divisée par le rapport de flipping de référence  $FR_X^0(T)$ , de manière à n'avoir aucun signal à haute température, pour Bi2212-UD85.

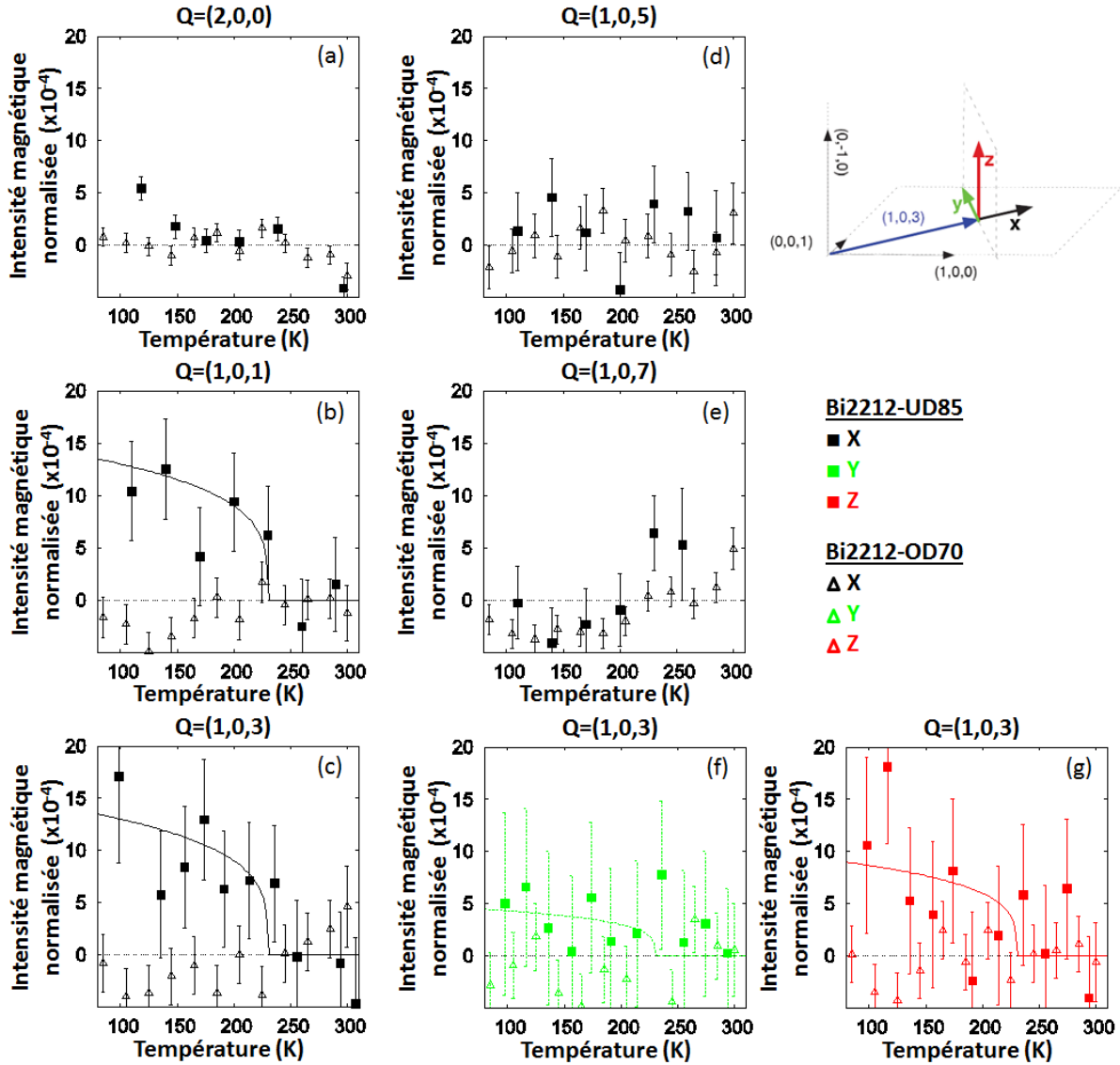


Figure 5.8: Bi2212-UD85 (carrés) et Bi2212-OD70 (triangles). Dépendances en température de l'intensité magnétique normalisée pour la polarisation X à la position de Bragg (a)  $Q = (2,0,0)$  prise comme référence de l'inverse du rapport de flipping  $1/FR_X^0$  et aux positions de Bragg (b)-(e)  $Q = (1,0,L)$  pour l'étude de l'ordre magnétique à  $q=0$ . (b)  $L=1$ , (c)  $L=3$ , (d)  $L=5$ , (e)  $L=7$ . (f)-(g) Dépendances en température de l'intensité magnétique normalisée à  $Q = (1,0,3)$  pour les polarisations Y (f) et Z (g). Le schéma en haut à droite explicite les directions X, Y et Z pour l'analyse de polarisation.

tières ont été infructueuses [34]. Ce résultat confirme que l'ordre magnétique préserve l'invariance par translation et présente des corrélations 3D.

Une analyse de polarisation complète a été menée à  $\mathbf{Q} = (1,0,3)$  pour les deux échantillons. Les Fig. 5.8.c, f et g montrent respectivement les résultats pour les polarisations X, Y et Z. Nous travaillons dans le plan de diffusion  $[1,0,0]/[0,0,1]$  sur le spectromètre trois-axes 4F1, les trois directions de polarisation X, Y et Z (Chapitre 2 et schéma de la Fig. 5.8) correspondent, respectivement, à la direction le long du vecteur d'onde  $\mathbf{Q}$  dans le plan de diffusion, à la direction perpendiculaire à  $\mathbf{Q}$  dans le plan de diffusion et à la direction perpendiculaire au plan de diffusion. Pour l'échantillon Bi2212-OD70 l'intensité magnétique reste sans effet, c'est à dire qu'il n'y a pas de variation en température indiquant l'apparition d'un quelconque signal magnétique dans la gamme de température étudiée, ceci quelle que soit la polarisation. Par opposition, pour l'échantillon Bi2212-UD85, l'intensité augmente sous  $T_{mag} \sim 230\text{K}$  pour toutes les polarisations. Les résultats pour la polarisation Z présentent une dépendance en température similaire à la polarisation X alors que pour la polarisation Y l'intensité magnétique apparaît faible et quasi-indépendante de la température. L'intensité magnétique dépend donc de la polarisation. Pour la polarisation X, le rapport  $I_{mag,X}/I_X^{\text{NSF}}$  est de l'ordre de  $15.10^{-4}$ . De plus, nous pouvons estimer que 3/4 de cette intensité magnétique totale apparaît pour la polarisation Z et 1/4 pour la polarisation Y. La règle de somme (donnée par l'Eq. 2.32) est bien vérifiée et le rapport entre  $I_{mag,Z}$  et  $I_{mag,Y}$  est de  $R \geq 3$ . Nous reprenons les Eq. 2.35, 2.36 et 2.37 donnant les intensités magnétiques en fonction des composantes du moment magnétique ( $M_{ab}^2$  et  $M_c^2$ ):

$$I_{mag,X} = I_{mag,Y} + I_{mag,Z} \quad (5.1)$$

$$I_{mag,Y} \propto \frac{1}{2} M_{ab}^2 \quad (5.2)$$

$$I_{mag,Z} \propto (1 - q_l^2) M_c^2 + \frac{q_l^2}{2} M_{ab}^2 \quad (5.3)$$

où  $q_l = \frac{2\pi}{c} L / |\mathbf{Q}|$ .

$$\text{Ainsi, } R = I_{mag,Z} / I_{mag,Y} = \frac{(1 - q_l^2) M_c^2 + \frac{q_l^2}{2} M_{ab}^2}{\frac{1}{2} M_{ab}^2} = 2(1 - q_l^2) \frac{M_c^2}{M_{ab}^2} + q_l^2.$$

De plus, par définition (Eq.1.1) l'inclinaison du moment magnétique par rapport à l'axe c,  $\theta$ , est donné par  $\tan(\theta) = M_{ab}/M_c$ . Nous avons donc  $\tan(\theta) = \sqrt{\frac{2(1 - q_l^2)}{R - q_l^2}}$ . Pour  $L=3$ ,  $R \geq 3$  et  $q_l^2=0,12$ , l'analyse de polarisation complète effectuée avec l'échantillon Bi2212-UD85 permet une estimation de l'angle  $\theta = 20^\circ \pm 20^\circ$ .

La diffusion de neutrons polarisés dans la famille Bi2212 a prouvé l'existence d'un ordre magnétique à  $q=0$  dans la phase de pseudo-gap. L'ordre magnétique avait été observé sur la réflexion de Bragg  $\mathbf{Q} = (1,0,1)$  pour deux échantillons, Bi2212-UD85 et Bi2212-OD87 [34]. Nous avons confirmé cette observation sur la réflexion de Bragg  $\mathbf{Q} = (1,0,3)$  dans trois échantillons, Bi2212-UD85, Bi2212-OP91 et Bi2212-OD87. De plus, l'analyse de polarisation complète effectuée avec l'échantillon Bi2212-UD85 permet une estimation de l'inclinaison du moment magnétique par rapport à l'axe c,  $\theta = 20 \pm 20^\circ$ . Cet angle est sensiblement inférieur à la valeur  $\theta = 45 \pm 20^\circ$  trouvée

pour le système bicouche Y123 [30] et les systèmes monocouches Hg1201 et La214 [36, 37, 108]. Toutefois, nous pouvons conclure que l'existence de l'inclinaison du moment magnétique par rapport à l'axe  $c$  est une propriété générique des cuprates.

## 5.4 Calibration des intensités pour la famille Bi2212

Pour quantifier le signal magnétique associé à l'ordre magnétique à  $q=0$ , nous avons développé une procédure de calibration en unités absolues (barn) des intensités observées dans les composés Bi2212. L'élément clé de cette méthode réside dans la détermination du facteur de conversion entre les intensités mesurées et le facteur de structure nucléaire donné par l'Eq. 2.7.

Dans la plupart des cuprates, le facteur de structure nucléaire peut être simplement calculé puisque toutes les positions atomiques sont connues, comme c'est le cas par exemple du système Y123. En revanche, dans le cas du système Bi2212, la modulation incommensurable des plans BiO par rapport aux plans  $\text{CuO}_2$  rend la détermination du facteur de structure plus difficile [130, 131]. Pour s'affranchir de ce problème, nous pouvons mesurer la section efficace par maille élémentaire au lieu de la calculer. Nous mesurons ainsi l'intensité à des positions de Bragg dans un échantillon de la famille Y123 où le facteur de structure est calculé pour obtenir une référence, puis nous effectuons des mesures dans un échantillon de la famille Bi2212. Cette calibration se fait donc en deux étapes. Les mesures se font sur le même instrument et dans les mêmes conditions expérimentales. Afin de conserver des conditions de résolution comparables, le choix d'un échantillon de référence ayant une mosaïque similaire à celle de l'échantillon de Bi2212 étudié est important.

### 5.4.1 1<sup>ère</sup> étape: échantillons de référence

Nous avons dans un premier temps étudié un échantillon sur-dopé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  ( $V = 3 \text{ cm}^3$ , mosaïque=1,3°). L'échantillon est aligné dans le plan de diffusion  $[1,0,0]/[0,0,1]$  sur le diffractomètre thermique 3T1. La longueur d'onde incidente est de  $2.662 \text{ \AA}^{-1}$  et un filtre graphite pyrolytique est placé avant l'échantillon. Dans le cas des composés Y123, les réflexions de Bragg sont fortes, nous avons donc utilisé un atténuateur (une plaque de 5mm d'épaisseur de plexi-glass dont le facteur d'atténuation est à prendre en compte dans la valeur de l'intensité mesurée, il est de l'ordre de  $\sim 30$  dans notre cas). Le temps de comptage est de 2,5s.

Dans le Tab. 5.1 sont reportées, pour chaque position  $\mathbf{Q} = (0,0,L)$  étudiée dans l'échantillon  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ , la valeur de l'intensité mesurée  $I_0$  (d'après la Fig. 5.9.a), la valeur de  $R_0$  donnée par la résolution (Eq. 2.23 du Chapitre 2) et la valeur du facteur de structure nucléaire  $|F_N|^2$  calculé d'après l'Eq. 2.8. D'après les Eq. 2.22 et 2.7,

$$I_0 \propto R_0 |F_N|^2 \quad (5.4)$$

La valeur de  $R_0$  dépend de la mosaïque de l'échantillon et du vecteur d'onde considéré. Pour le calcul du facteur de structure en barn, le schéma de la structure cristalline des composés Y123 présenté dans le Chapitre 2 et la Ref. [160] nous fournissent les éléments comme les longueurs

de diffusion pour chaque atome ou encore la position des atomes dans la maille élémentaire. Par exemple, pour  $\mathbf{Q} = (0,0,4)$ , nous obtenons 5,7 barns pour l'échantillon  $YBa_2Cu_3O_7$  (sur-dopé) et 8,8 barns pour  $YBa_2Cu_3O_6$  (non-dopé). Nous retrouvons la moyenne de ces deux valeurs, 7 barns, estimée par Fauqué et al [30] pour un échantillon de dopage intermédiaire (sous-dopé).

Table 5.1: Intensité mesurée à  $\mathbf{Q} = (0,0,L)$ , résolution et facteur de structure nucléaire pour l'échantillon  $YBa_2Cu_3O_7$

$(0,0,L)$	$I_0$ (t=2,5s / atténuation $\sim 30$ )	$R_0$	$ F_N ^2$ (barns) calculé
(0,0,8)	8196	0,33	15,8
(0,0,7)	2502	0,45	2,8
(0,0,6)	20685	0,65	24,0
(0,0,5)	12195	0,95	14,6
(0,0,4)	10141	1,41	5,7
(0,0,3)	5769	2,08	1,9
(0,0,2)	2353	3,08	0,4

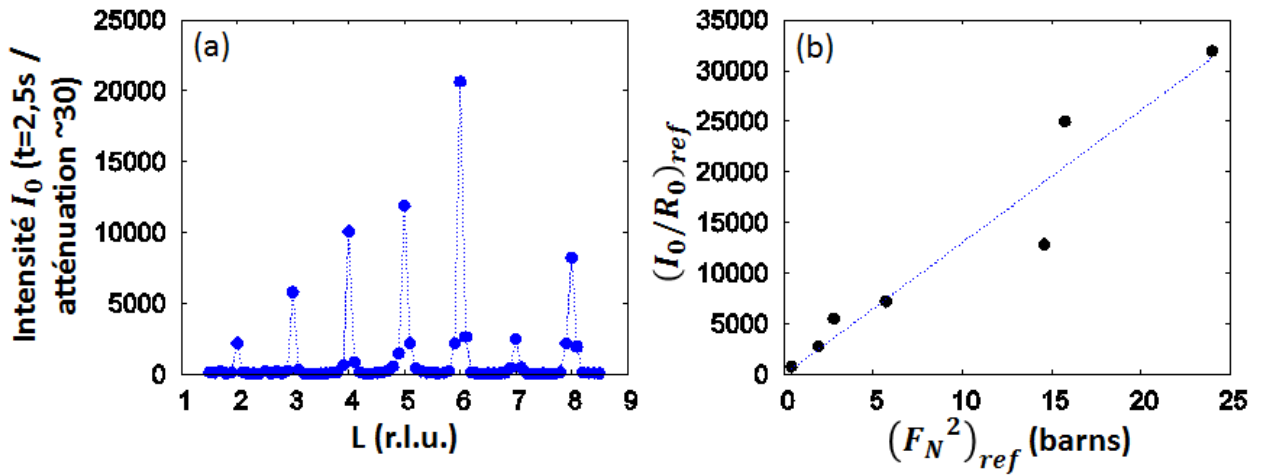


Figure 5.9: Mesures effectuées sur le diffractomètre 3T1. (a) Intensités mesurées,  $I_0$ , à  $\mathbf{Q} = (0,0,L)$  avec un échantillon de référence,  $YBa_2Cu_3O_7$ , pour un temps de comptage de 2,5s avec un facteur d'atténuation de  $\sim 30$ . (b) Rapport des intensités sur la valeur de la résolution,  $(I_0/R_0)_{ref}$ , en fonction du facteur de structure nucléaire,  $(|F_N|^2)_{ref}$ , calculé en barns. L'ajustement de ces points avec une droite nous donne le facteur de conversion pour la calibration des intensités des composés Bi2212.

L'intensité de Bragg mesurée est ensuite comparée à la section efficace nucléaire convoluée à la fonction de résolution. Un facteur de conversion entre un nombre de comptage par seconde et une intensité en barn multipliée par  $N$  le nombre de mailles élémentaires de l'échantillon est ainsi obtenu. En pratique, nous traçons l'intensité  $I_0$  divisée par  $R_0$  en fonction du facteur de structure calculé  $|F_N|^2$ , Fig. 5.5.b. En ajustant ces points avec une droite, nous pouvons extraire une pente qui correspond à notre facteur de conversion,  $\frac{(I_0/R_0)_{ref}}{(|F_N|^2)_{ref}}$  de l'ordre de 20 cps/s/barns.

Dans le but de valider cette procédure, un deuxième échantillon de composition  $YBa_2Cu_3O_{6.6}$  ( $V = 1,7cm^3$ , mosaïque= $1,3^\circ$ ) a été mesuré. Nous avons procédé de la même manière et nous avons obtenu une valeur de pente similaire. Cela nous permet d'avoir un facteur de conversion moyen.

### 5.4.2 2<sup>ème</sup> étape: échantillons à calibrer

Pour obtenir le facteur de structure nucléaire des échantillons à calibrer, il est nécessaire de mesurer quelques intensités de Bragg et d'appliquer le facteur de conversion déterminé précédemment. Il est important de tenir compte du rapport des masses des échantillons considérés et donc de bien connaître le volume de chaque échantillon. Dans notre cas, il faut tenir compte de la masse de phase verte présente dans nos échantillons de la famille Y123 et des valeurs de volume effectifs des échantillons de la famille Bi2212 données dans le Chapitre 2. Nous obtenons donc le facteur de structure nucléaire des échantillons à calibrer par la formule suivante:

$$(|F_N|^2)_{cal} = \frac{(I_0/R_0)_{cal}}{(I_0/R_0)_{ref}} \times (|F_N|^2)_{ref} \times \frac{m_{ref}}{m_{cal}} \quad (5.5)$$

Nous avons mesuré dans les mêmes conditions (mais sans atténuateur) quelques réflexions de Bragg dans un échantillon Bi2212-UD85 ( $V \simeq 0,05cm^3$ , mosaïque= $1,3^\circ$ ). Comme cette procédure repose sur une connaissance précise du volume de l'échantillon, nous avons utilisé un second échantillon de la famille Bi2212 pour vérifier notre calibration. Cet échantillon est un petit cristal ( $V = 0,05cm^3$ , mosaïque= $0,8^\circ$ ) provenant de l'ensemble d'échantillons co-alignés Bi2212-OD70.

Les Tab. 5.2 et 5.3 donnent les valeurs des intensités mesurées  $I_0$ , de la résolution  $R_0$  et du facteur de structure nucléaire  $|F_N|^2$  obtenu d'après l'Eq. 5.5. Pour les deux échantillons, les facteurs de structure nucléaires sont similaires, à 10 % près. Pour notre calibration des intensités en unités absolues, nous considérerons les valeurs obtenues pour l'échantillon Bi2212-OD70 dont le volume est mieux connu.

Table 5.2: Intensité mesurée à  $Q = (H,0,L)$ , résolution et facteur de structure nucléaire pour l'échantillon Bi2212-UD85

(H,0,L)	$I_0$ (t=2,5s)	$R_0$	$ F_N ^2$ (barns) déduit
(2,0,0)	28332	0,87	69,1
(1,0,1)	1485	2,33	1,4
(1,0,3)	654	2,13	0,7
(1,0,5)	1553	1,83	1,8
(1,0,7)	3058	1,52	4,3
(0,0,20)	2384	0,49	10,3
(0,0,16)	4920	0,83	12,6
(0,0,12)	16490	1,47	23,8
(0,0,8)	16209	2,65	13
(0,0,4)	975	5,06	0,4

Table 5.3: Intensité mesurée à  $Q = (H,0,L)$ , résolution et facteur de structure nucléaire pour l'échantillon Bi2212-OD70

(H,0,L)	$I_0$ (t=2,5s)	$R_0$	$ F_N ^2$ (barns) déduit
(2,0,0)	70888	2,59	55,6
(1,0,1)	4062	7,14	1,2
(1,0,3)	2052	6,51	0,6
(1,0,5)	5289	5,54	1,9
(1,0,7)	12245	4,56	5,5
(0,0,20)	19310	1,49	26,3
(0,0,16)	28834	2,45	23,9
(0,0,12)	46830	4,36	21,9
(0,0,8)	37500	8,13	9,4
(0,0,4)	2061	16,52	0,3

D'après les mesures de diffusion de neutrons polarisés présentées dans les sections précédentes, nous avons déterminé à chaque fois le rapport entre l'intensité magnétique et l'intensité nucléaire  $I_{mag}/I^{NSF}$ . En multipliant ce rapport par le facteur de structure nucléaire  $|F_N|^2$ , nous obtenons l'intensité magnétique en unités absolues. Pour l'échantillon Bi2212-UD85, le rapport  $I_{mag,X}/I_X^{NSF} \sim 15 \cdot 10^{-4}$  à  $Q = (1,0,L)$ . Nous en déduisons  $I_{mag,X} \sim 1,8$  mbarns à  $Q = (1,0,1)$  et  $I_{mag,X} \sim 0,9$  mbarns à  $Q = (1,0,3)$ . Pour les échantillons Bi2212-OD87 et Bi2212-OP91, ce rapport est trois fois plus petit, soit de l'ordre de  $5 \cdot 10^{-4}$ . Par conséquent,  $I_{mag,X} \sim 0,6 \pm 0,3$  mbarns à  $Q = (1,0,1)$  et  $I_{mag,X} \sim 0,3 \pm 0,1$  mbarns à  $Q = (1,0,3)$ .

## 5.5 Évolution de la température d'ordre $T_{mag}$ et de l'intensité magnétique $I_{mag}$ en fonction du dopage

Pour chaque échantillon, nous avons donc déterminé par diffusion de neutrons la température  $T_{mag}$  d'apparition de l'ordre magnétique à  $q=0$  et l'intensité  $I_{mag}$  associée. La Fig. 5.10.a présente ces quantités en fonction du dopage, non seulement pour la famille Bi2212 (Chapitre 5), mais aussi pour la famille Y123 ([30, 32, 33] et Chapitre 4).

Pour la famille Bi2212, nous retrouvons l'évolution en dopage de la température  $T_{mag}$  présentée sur la Fig. 5.1 et pour la famille Y123, celle donnée sur la Fig. 4.23. Dans le régime sous-dopé (régime I du diagramme Fig. 5.1), la température  $T_{mag}$  diminue. L'ordre magnétique à  $q=0$  est encore présent autour du dopage optimal ( $p=0,16$ , régime II du diagramme Fig. 5.1) et il apparaît à relativement haute température. Pour la famille Bi2212, la température  $T_{mag}$  reste élevée sur une gamme en dopage plus large que pour la famille Y123. Sur cette même figure, nous reportons également les températures  $T^*$  déterminées par les mesures d'ARPES [42], de résistivité [38, 39] et de spectroscopie Raman électronique ERS [27] pour la famille Bi2212. Bien que les valeurs des températures sont légèrement différentes, le plateau pour la famille Bi2212 est observé par les dif-



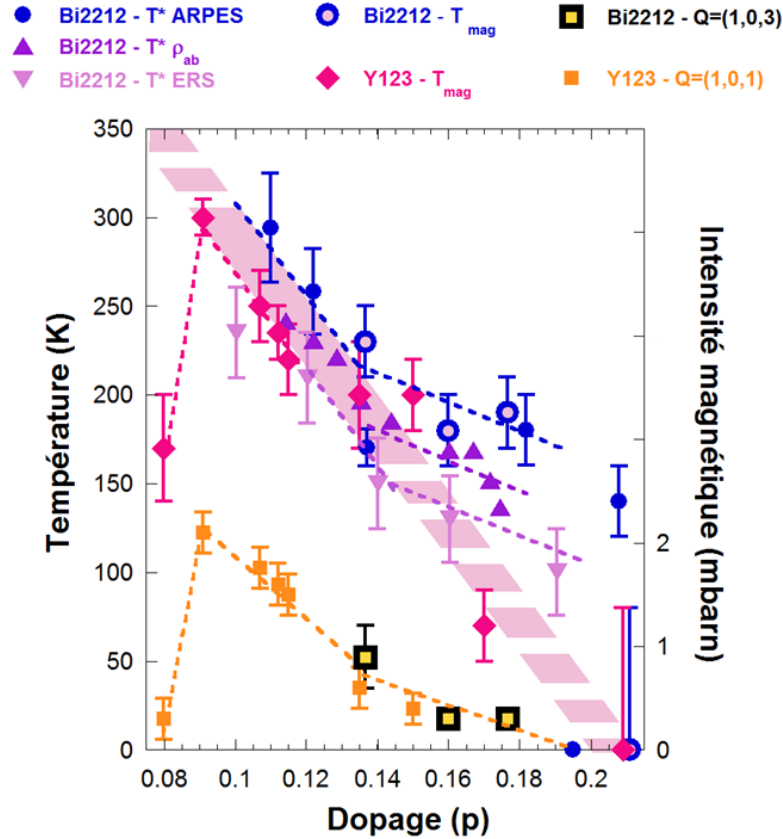


Figure 5.10: (a) Évolution de la température  $T_{mag}$  (en K) et de l'intensité magnétique  $I_{mag}$  (en mbarn) en fonction du dopage  $p$ ; pour Bi2212 (mesures de diffusion de neutrons étudiées dans ce chapitre), mais aussi pour la famille Y123 (mesures de diffusion de neutrons [30, 32, 33] et Chapitre 4). Les températures  $T^*$  déterminées pour la famille Bi2212 par les mesures d'ARPES [42], de résistivité [38, 39] et de spectroscopie Raman électronique ERS [27] sont également présentées.

férentes techniques de mesure.

Alors que  $T_{mag}$  diminue faiblement en passant du régime I au régime II, l'intensité  $I_{mag}$  est fortement réduite. En passant de l'échantillon Bi2212-UD85 ( $p \sim 0,135$ ,  $T_{mag} \sim 230\text{K}$ ,  $I_{mag} \sim 15 \cdot 10^{-4}$ ) aux échantillons Bi2212-OP91 ( $p \sim 0,16$ ,  $T_{mag} \sim 180\text{K}$ ,  $I_{mag} \sim 5 \cdot 10^{-4}$ ) et Bi2212-OD87 ( $p \sim 0,18$ ,  $T_{mag} \sim 190\text{K}$ ,  $I_{mag} \sim 5 \cdot 10^{-4}$ ), l'intensité magnétique est réduite d'un facteur 3. Grâce à la calibration en unités absolues, les intensités magnétiques pour le système Bi2212 peuvent être comparées avec celles du système Y123. Par exemple, nous pouvons considérer la valeur de l'intensité magnétique à  $\mathbf{Q}=(1,0,L)$  avec  $L=3$  pour la famille Bi2212 ( $|\mathbf{Q}| = 1.75\text{\AA}^{-1}$ ), et avec  $L=1$  pour la famille Y123 ( $|\mathbf{Q}| = 1.71\text{\AA}^{-1}$ ), pour lesquelles les modules des vecteurs d'onde sont proches. La dépendance en dopage de l'intensité magnétique  $I_{mag}$  semble également présenter une pente différente entre régime I et régime II.

Comment les dépendances en dopage de  $T_{mag}$  et  $I_{mag}$  sont-elles liées? Sur la Fig. 5.11, nous reprenons et comparons ces deux quantités pour les deux systèmes Bi2212 et Y123. Dans le régime sous-dopé (régime I),  $I_{mag}$  apparaît proportionnelle à  $T_{mag}$ , alors qu'à l'approche du dopage optimal (régime II) cette relation n'est plus vérifiée.

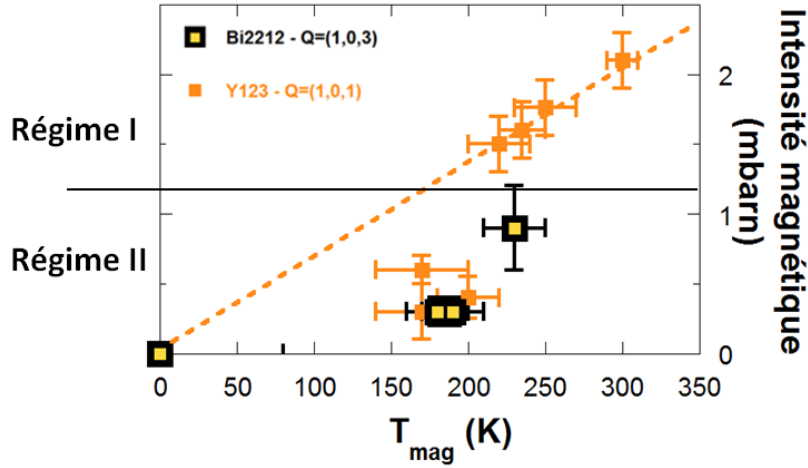


Figure 5.11: Évolution de l'intensité magnétique (en mbarn) en fonction de  $T_{mag}$  (en K) pour Bi2212 à  $Q = (1,0,3)$  (carrés jaunes et noirs) et pour Y123 à  $Q = (1,0,1)$  (carrés oranges).

Lorsqu'il s'agit d'un ordre magnétique à longue portée dans un système homogène, l'intensité d'une réflexion de Bragg magnétique est proportionnelle à  $|\mathbf{M}|^2$  (Eq. 2.18), le carré du moment ordonné. Dans une approche de champ moyen, il est également prévu que la température d'apparition de l'ordre soit liée à  $|\mathbf{M}|^2$ . Ainsi, nous pouvons nous attendre à ce que l'intensité magnétique soit proportionnelle à  $T_{mag}$  lorsque nous faisons varier le dopage dans le cas d'un ordre magnétique longue portée uniforme (régime I Fig. 5.11).

Cette relation de proportionnalité entre l'intensité magnétique et la température d'ordre peut être brisée (régime II Fig. 5.11) lorsque la longueur de corrélation magnétique diminue, ce qui implique une redistribution de l'intensité magnétique dans l'espace réciproque autour du pic de Bragg magnétique. Nous avons justement montré des longueurs de corrélation finies pour la famille Y123 autour du dopage optimal (Chapitre 4). Par analogie, nous supposons qu'il se produit le même phénomène pour la famille Bi2212. La réduction des longueurs de corrélation magnétique dans le plan et hors du plan, respectivement  $\xi_{ab}$  et  $\xi_c$ , explique donc l'absence de proportionnalité entre  $T_{mag}$  et  $I_{mag}$  autour du dopage optimal.

Un comportement comparable a déjà été observé dans le contexte de l'ordre antiferromagnétique des spins du Cu à très faible dopage dans les cuprates. En effet, dans les systèmes Y123 [161] et La214 [162–164], la température de Néel ne suit pas  $|\mathbf{M}|^2$  en fonction du dopage. Cette relation n'est plus respectée également lorsque le système devient hétérogène et que l'ordre magnétique n'occupe qu'une fraction réduite de l'échantillon.

De plus, il est intéressant de remarquer que les mesures Raman mettent en évidence deux échelles d'énergie dans le régime sous-dopé (régime I) des cuprates [27]. Au dopage optimal et dans le régime sur-dopé (régime II), la réponse Raman présente un maximum d'intensité à l'énergie correspondant à l'énergie des paires de Cooper. Lorsque l'on passe dans le régime sous-dopé, l'énergie du maximum d'intensité de la réponse Raman dans le canal  $B_{2g}$  (régions nodales) diminue. Cette évolution en dopage de l'énergie du maximum suit l'évolution de  $T_c$  en dopage. Dans cette même

gamme de dopage, l'énergie du maximum d'intensité de la réponse dans le canal  $B_{1g}$  (régions anti-nodales) augmente. Ces deux échelles d'énergie (la première est associée à la pente du gap dans la région nodale, la seconde à l'amplitude du gap dans la région anti-nodale) suggèrent la présence de deux comportements distincts, attribuée à l'existence de deux gaps distincts dans ces systèmes. Les mesures d'ARPES [42] dans le régime sous dopé du système Bi2212 reportent l'ouverture d'un gap dans la région nodale en dessous de  $T_c$ . Ce gap s'ajouterait donc au pseudo-gap s'ouvrant au-dessus de  $T_c$  dans la phase de pseudo-gap. Cependant, les résultats de spectroscopie Raman ont été interprétés à l'aide d'un seul gap, en considérant une perte de cohérence du pic de quasiparticule dans les régions antinodales [165]. Quoi qu'il en soit, l'évolution en fonction du dopage des résultats obtenus dans le canal  $B_{1g}$  est en accord avec l'évolution de la température  $T_{mag}$  déterminée par diffusion de neutrons. Nous pouvons donc supposer que l'ordre magnétique à  $q=0$  est lié à la physique des régions anti-nodales de la surface de Fermi et pourrait être associé à l'ouverture du pseudo-gap.

## 5.6 Évolution du signal magnétique en fonction de $Q = (1,0,L)$

Nous avons également étudié l'évolution du signal magnétique en fonction de  $Q = (1,0,L)$ . Les Fig. 5.12.a-b présentent la dépendance de ce signal en fonction de  $|Q_L| = \frac{2\pi}{c}L$ , pour plusieurs familles d'échantillons: les systèmes bicouches Bi2212 (présente étude) et Y123 [30–33] et les systèmes monocouches Hg1201 [35] et La214 [37]. L'intensité magnétique présente une décroissance qui peut être ajustée par une fonction d'essai, ici, une lorentzienne au carré de la forme  $(\frac{1}{1+(|Q_L|/\Delta|Q_L|)^2})^2$  quel que soit le système (à un facteur de renormalisation près), suggérant une origine magnétique commune et universelle.

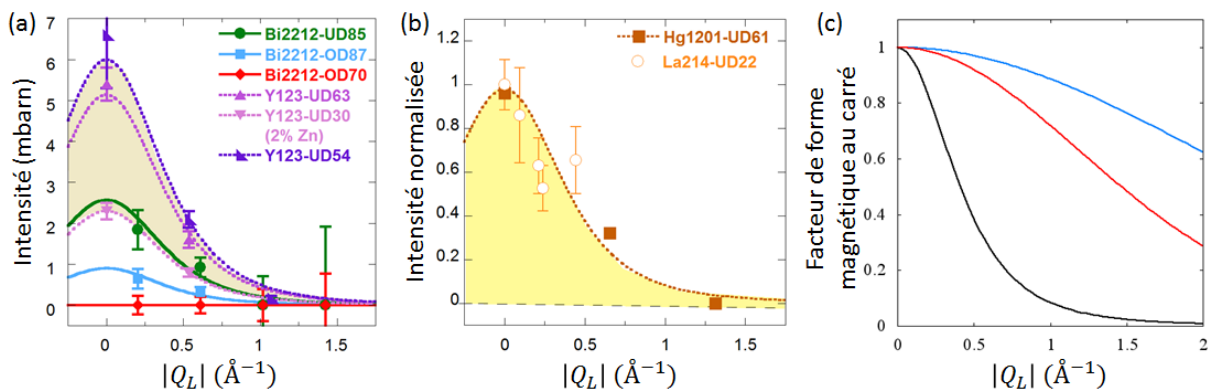


Figure 5.12: (a) Évolution de l'intensité magnétique en fonction de  $|Q_L| = \frac{2\pi}{c}L$  dans deux systèmes bicouches Y123 et Bi2212. (b) Évolution de l'intensité magnétique normalisée en fonction de  $|Q_L|$  dans deux systèmes monocouches Hg1201 et La214. (c) Facteur de forme magnétique au carré du cuivre (ligne bleue) et de l'oxygène (ligne rouge) en comparaison à l'évolution de l'intensité de l'ordre à  $q=0$  (ligne noire) en fonction de  $|Q_L|$ . Cette dépendance suit la forme d'une fonction lorentzienne au carré. Il s'agit d'une fonction d'essai, sans signification physique particulière. Les trois courbes sont normalisées à  $|Q_L|=0$ .

Dans le Chapitre 3, nous avons calculé l'intensité magnétique attendue pour différentes configurations des plans au sein de la bicouche (Fig. 3.8), ceci dans le cadre du modèle de boucles de courant pour un échantillon démâclé. Notamment, nous avons considéré le cas où les plans sont en phase et le cas où la résultante des deux anapoles pointe le long de  $b$ . Sur les Fig. 5.12.a-b, les échantillons considérés sont essentiellement mâclés. Dans ce cas, l'intensité magnétique est égale à  $|2M_c \sin(2\pi x_0)|^2 |2\cos(\pi \frac{d}{c} L)|^2$  lorsque les plans sont en phase et  $2|2M_c \sin(2\pi x_0)|^2$  lorsque la résultante est le long de  $b$ . L'intensité est 4 fois plus faible pour un système monocouche par rapport à un système bicouche dans le premier cas (avec  $L=0$ ) et 2 dans l'autre. Expérimentalement, pour des températures  $T_{mag}$  équivalentes dans le régime sous dopé, l'intensité pour un système monocouche observée est seulement 2 fois plus petite que celle d'un système bicouche [35]. Nous sélectionnons ainsi le modèle pour lequel la résultante des deux anapoles point le long de  $b$  (en accord avec l'étude de l'anisotropie).

Aussi, sur la Fig. 5.12.c nous reportons, en plus de la décroissance observée en fonction de  $Q_L$ , le facteur de forme magnétique au carré des atomes de cuivre (ligne bleue) et d'oxygène (ligne rouge) comme déterminés dans les chapitres précédents. La dépendance en  $L$  de l'intensité magnétique mesurée dans les différentes familles de cuprates est très différente, elle présente un caractère unique et ne correspond pas à ces deux facteurs de forme magnétique connus. Une décroissance rapide de l'intensité magnétique à grand vecteur d'onde  $Q$  indique un motif étendu dans l'espace réel. Un facteur de forme atomique n'est pas suffisant pour décrire cette évolution. La forte décroissance en  $L$  suggère une élongation du motif magnétique le long de l'axe  $c$ .

De plus, sur la Fig. 5.12.a, nous montrons à nouveau (comme sur la Fig. 5.11) la décroissance (mais aussi la persistance) de l'intensité magnétique au voisinage du dopage optimal dans le cas de la famille Bi2212 (régime II du diagramme de phase Fig. 5.1). Le dopage de l'échantillon Bi2212-OD87 ( $p \sim 0,18$ ) est proche du point critique quantique ( $p \sim 0,2$ ), la phase de pseudo-gap devrait disparaître et de fortes fluctuations devraient être présentes. Comme il s'agit d'un matériau plutôt désordonné, nous pouvons supposer qu'un désordre pourrait geler les fluctuations critiques à haute température autour du point critique quantique. Dans ce scénario, le désordre intrinsèque d'une famille de cuprates donnée pourrait permettre à des domaines de taille finie de survivre à haute température autour du dopage optimal. Dans le modèle de boucles de courants, des fluctuations quantiques sont mises en jeu [88, 92]. L'existence d'un désordre dans Bi2212-OD87 bloquerait les fluctuations critiques associées à l'ordre de boucles de courant, permettant à l'ordre magnétique de survivre.

Enfin, si nous comparons les deux systèmes bicouches Y123 et Bi2212 dans le régime sous-dopé (régime I du diagramme de phase Fig. 5.1), nous remarquons que les intensités sont de l'ordre de deux fois plus faibles dans le cas de la famille Bi2212 (Fig. 5.12.a). Cela suggère l'existence d'effets spécifiques à chaque système. Si nous considérons le cas de l'échantillon sous-dopé substitué au zinc Y123-UD30 (Zn 2%) [33]: alors que la substitution au Zn est connu pour préserver le dopage ( $T_{mag}$  reste inchangée), l'intensité magnétique diminue d'un facteur  $\sim 2$  par rapport à un échantillon sans Zn [32]. Cette intensité est d'ailleurs comparable à celle mesurée dans l'échantillon Bi2212-UD85. L'atome de Zn induit un défaut qui réduit probablement la fraction

de volume de l'échantillon occupé par l'ordre magnétique à  $q=0$ . Par analogie, la présence d'un défaut plus important dans Bi2212 peut expliquer pourquoi l'intensité magnétique est plus faible dans Bi2212 que dans Y123 pour une température  $T_{mag}$  donnée. Dans le régime I, le désordre détruirait l'ordre. Par opposition, dans le régime II, le désordre pourrait stabiliser localement l'ordre magnétique à  $q=0$ . Un désordre plus important pourrait également expliquer pourquoi l'ordre magnétique à  $q=0$  persiste sur une plus large gamme de dopage pour la famille Bi2212 que pour la famille Y123 (pour laquelle la dépendance en dopage de  $T_{mag}$  est plus abrupt, Fig. 1.6 et 5.10).

## 5.7 Régime sous-dopé de la famille Pb-Bi2201

Dans le but de confirmer son universalité, nous avons étudié pour la première fois l'ordre magnétique à  $q=0$  dans une autre famille de cuprates à base de Bi, possédant un seul plan  $CuO_2$  et dopé au Pb. Notamment, nous avons pu effectuer nos mesures sur un échantillon sous-dopé Pb-Bi2201-UD5 ( $T_c = 5K$ ,  $p=0,14$ ), en collaboration avec l'équipe japonaise du Professeur M. Fujita. L'échantillon a été aligné dans le plan de diffusion  $[1,0,0]/[0,0,1]$  sur le spectromètre 4F1.

Nous nous sommes intéressés à la réflexion de Bragg  $\mathbf{Q} = (1,0,1)$ . Suivant le même principe que pour les autres échantillons étudiés précédemment, nous avons mesuré, pour la polarisation X, les dépendances en température des intensités dans les canaux NSF et SF à  $\mathbf{Q} = (0,0,8)$  (référence de rapport de flipping), Fig. 5.13.a, ainsi qu'aux positions  $\mathbf{Q} = (1,0,1)$  (réflexion de Bragg considérée pour l'étude de l'ordre magnétique à  $q=0$ ) et  $\mathbf{Q} = (0,9,0,1)$  (bruit de fond), Fig. 5.13.b. La dépendance en température de l'inverse du rapport de flipping,  $1/FR_X^0(T)$ , à  $\mathbf{Q} = (0,0,8)$  est donnée dans la Fig. 5.13.c. Nous observons une pente croissante. Enfin, la Fig. 5.13.d donne les dépendances en température des intensités de Bragg intrinsèques à  $\mathbf{Q} = (1,0,1)$  dans les canaux SF et NSF divisée par le rapport de flipping de référence  $FR_X^0(T)$ . Les deux courbes semblent se superposer en température, aucun surcroît d'intensité à basse température n'est observable. Les Fig. 5.14.a-b, quant à elles, donnent les intensités magnétiques normalisées  $I_{mag,X}/I_X^{NSF}$  pour les positions de Bragg  $\mathbf{Q} = (0,0,8)$  et  $\mathbf{Q} = (1,0,1)$ , confirmant qu'aucun ordre magnétique n'est observable sur la réflexion de Bragg  $\mathbf{Q} = (1,0,1)$ , avec la méthode standard.

Une situation comparable a été rencontrée lors de l'étude d'un échantillon à faible dopage ( $p \sim 0,085$ ) de la famille La214 [37]. Cela peut être dû à la présence d'un ordre magnétique à courte portée. La courte portée de l'ordre signifie que l'intensité magnétique est redistribuée dans l'espace réciproque, rendant sa détection sur les réflexions de Bragg impossible même avec la technique de diffusion de neutrons polarisés. Dans le but de mettre en évidence un signal magnétique plus large en  $\mathbf{Q}$ , nous effectuons donc nos mesures légèrement en dehors de la position de Bragg. Lorsque le signal magnétique semble être à courte portée, et plus particulièrement 2D, le signal magnétique peut être recherché à  $\mathbf{Q} = (1,0,L)$  pour une valeur de L quelconque. En s'éloignant des valeurs de L impaires, nous nous affranchissons de la fuite de polarisation due aux réflexions de Bragg nucléaires. Un signal de faible intensité peut dès lors être détecté plus facilement. Cependant, avec un échantillon qui comporte des défauts d'empilement des plans  $CuO_2$  le long

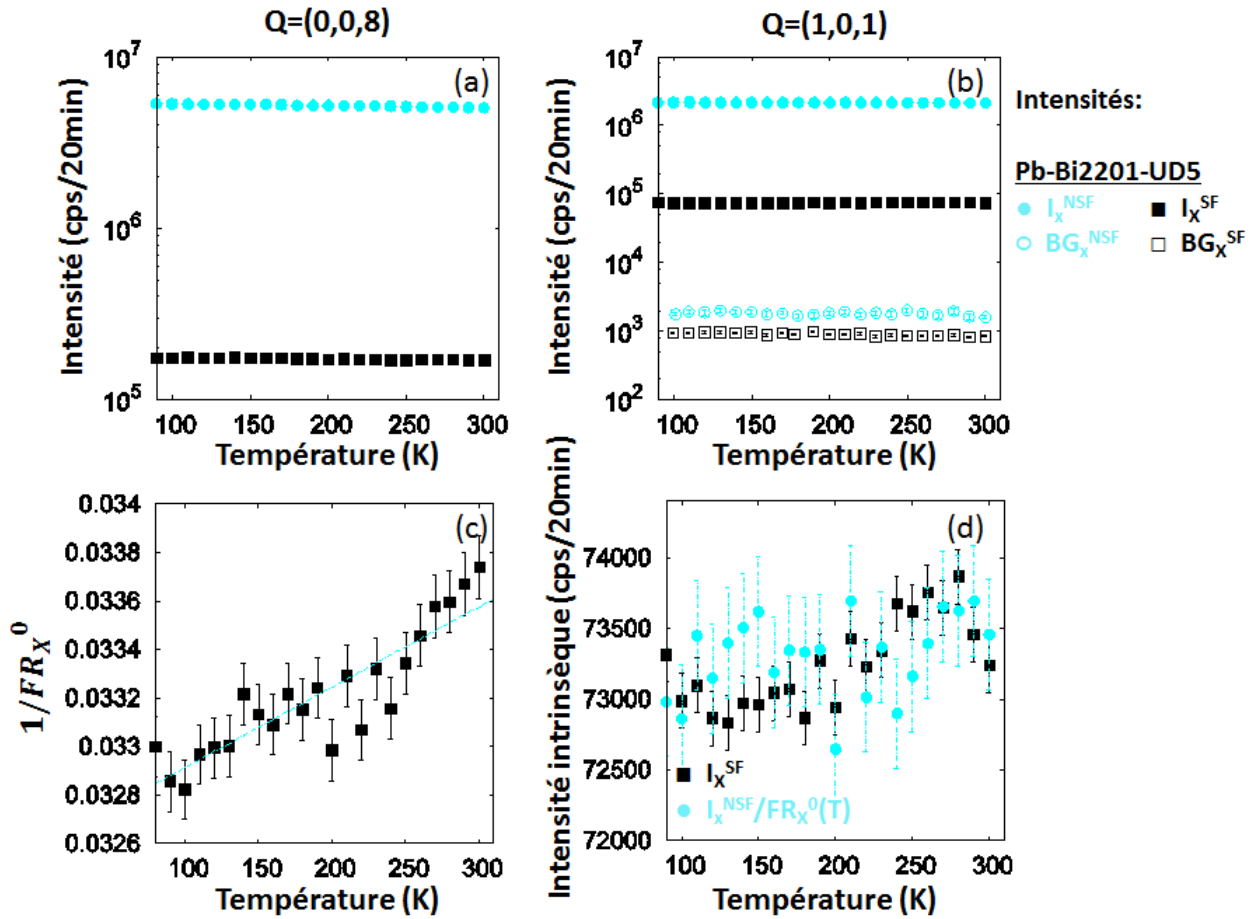


Figure 5.13: Pb-Bi2201-UD5. Mesures effectuées sur le spectromètre 4F1 avec la polarisation X. (a) Dépendances en température des intensités brutes mesurées à  $Q = (0,0,8)$ , dans les canaux NSF (symboles bleus) et SF (symboles noirs). (b) Dépendances en température des intensités brutes mesurées aux positions  $Q = (1,0,1)$  (réflexion de Bragg, symboles pleins) et  $Q = (0,9,0,1)$  (référence de bruit de fond, symboles ouverts), dans les canaux NSF (symboles bleus) et SF (symboles noirs). (c) Dépendances en température de l'inverse du rapport de flipping,  $1/FR_X^0(T)$ , à  $Q = (0,0,8)$ . (d) Dépendances en température de l'intensité de Bragg intrinsèque (bruit de fond soustrait) à  $Q = (1,0,1)$  dans les canaux SF (symboles noirs) et NSF (symboles bleus) divisée par le rapport de flipping de référence  $FR_X^0(T)$ , de manière à n'avoir aucun signal à haute température.

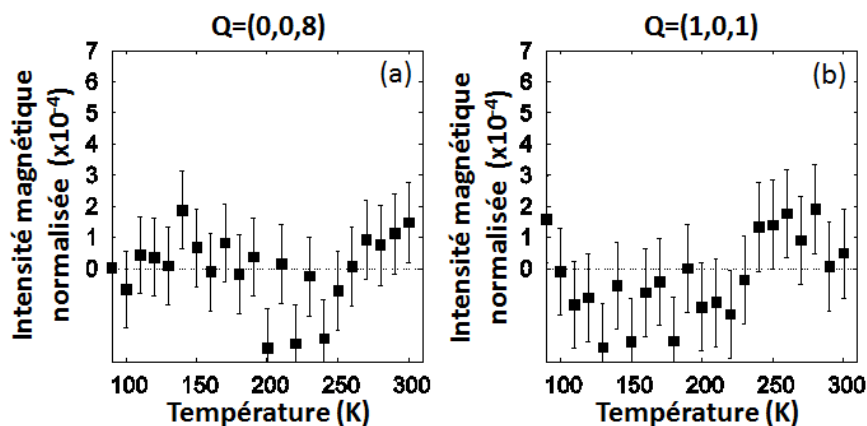


Figure 5.14: Pb-Bi2201-UD5. Mesures effectuées sur le spectromètre 4F1 avec la polarisation X. Dépendances en température de l'intensité magnétique normalisée à la position de Bragg (a)  $Q = (0,0,8)$  prise comme référence de l'inverse du rapport de flipping,  $1/FR_X^0(T)$ , et à (b)  $Q = (1,0,1)$  pour l'étude de l'ordre magnétique à  $q=0$ .

de l'axe c, le signal nucléaire mesuré autour des positions de Bragg apparaît plus étendu. Il subsiste donc une trace des réflexions de Bragg même pour des valeurs de L quelconques (ligne rouge Fig.5.15.a). La Fig. 5.15.b, qui présente une coupe en L entre  $Q = (1,0,-1)$  et  $Q = (1,0,1)$  dans le canal SF, permet de déterminer la position la plus adéquate pour notre étude. Nous remarquons des valeurs d'intensité non négligeables autour de  $L=0$  qui peuvent avoir plusieurs origines, comme des pics parasites, signature du mauvais empilement des plans BiO via la divergence verticale du faisceau de neutrons ou encore de la diffusion multiple. La position la plus propre, c'est-à-dire là où l'intensité est la plus basse, se trouve à  $L=0,6$ . Nous choisissons donc de travailler à  $Q = (1,0,0.6)$ .

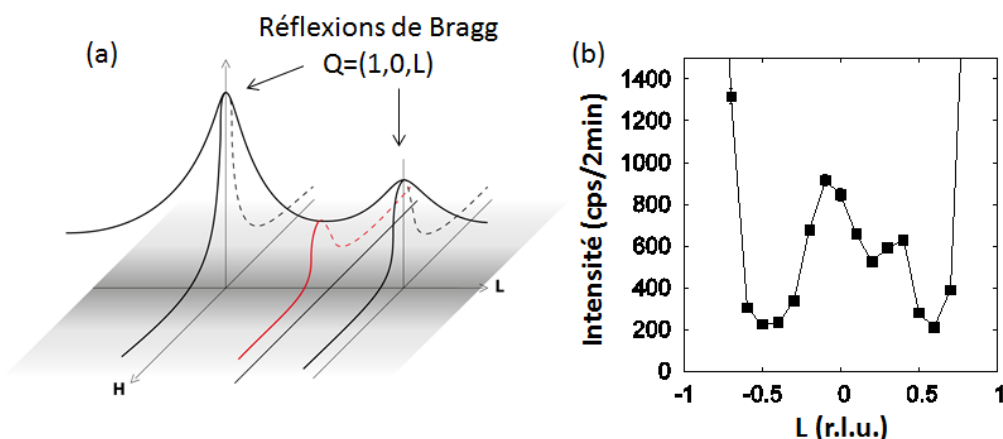


Figure 5.15: (a) Vue schématique des intensités autour de deux réflexions de Bragg (lignes noires) selon deux directions de l'espace réciproque, H et L. La ligne rouge symbolise une coupe en H pour une valeur de L quelconque. Lorsque les réflexions de Bragg sont larges, elles se recouvrent et il en subsiste une trace pour une valeur de L non entière. (b) Mesures effectuées sur le spectromètre 4F1 avec la polarisation X. Dépendance en L de l'intensité SF entre  $Q = (1,0,-1)$  et  $Q = (1,0,1)$ , à  $T=10K$ .



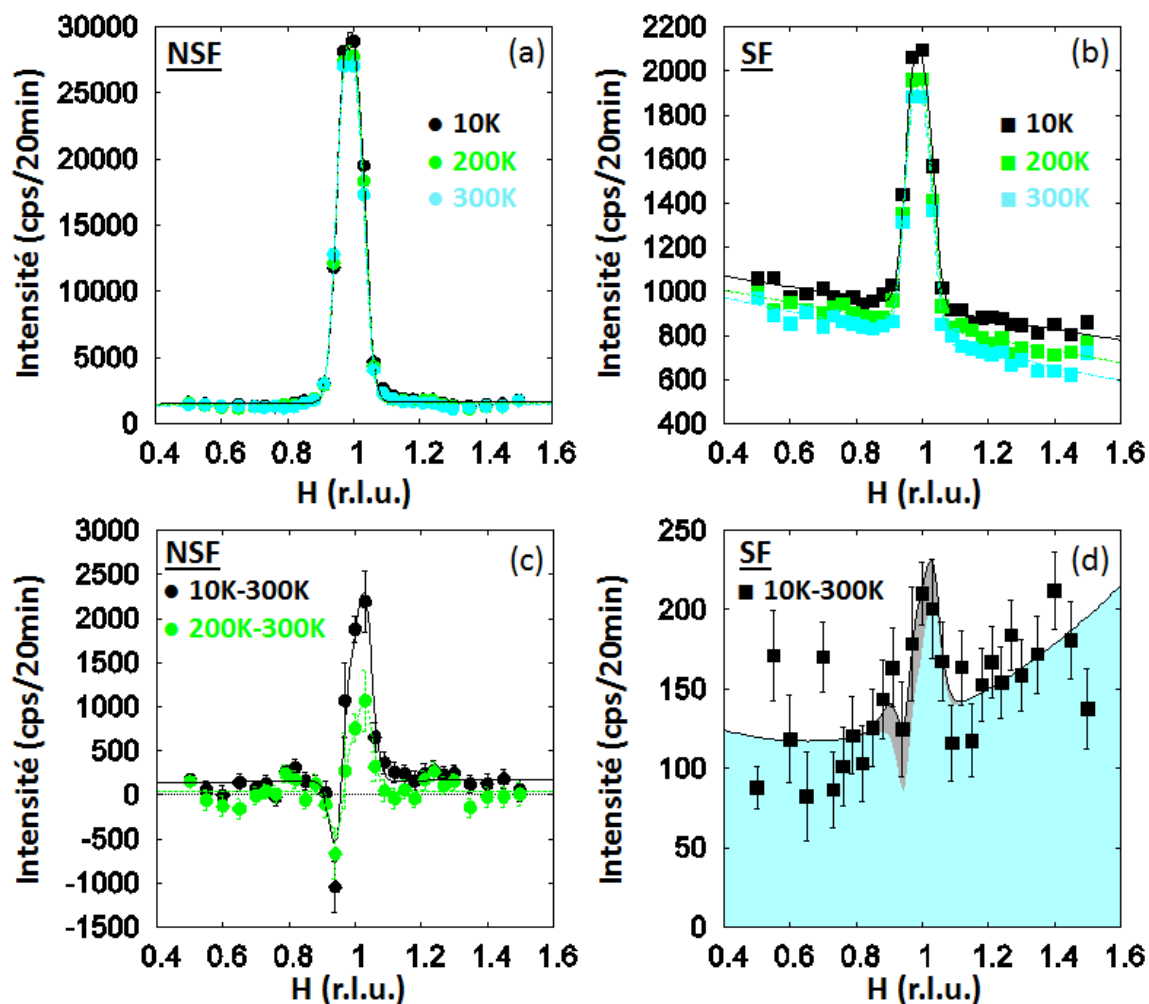


Figure 5.16: Pb-Bi2201-UD5. Mesures effectuées sur le spectromètre 4F1 avec la polarisation X. Dépendance en H autour de  $Q = (1,0,0.6)$  (a) de l'intensité NSF à 10K (points noirs), 200K (points verts) et 300K (points bleus); (b) de l'intensité SF à 10K (carrés noirs), 200K (carrés verts) et 300K (carrés bleus); (c) de la différence des intensités NSF 10-300K (points noirs) et 200-300K (points verts); (d) de la différence des intensités SF 10-300K (carrés noirs). La partie bleutée symbolise l'ensemble bruit de fond et fuite de polarisation.

Comme nous avons supposé que l'ordre magnétique était à courte portée, nous cherchons à déterminer sa longueur de corrélation. Pour pouvoir déterminer la largeur en  $Q$  de notre signal magnétique, nous avons réalisé des coupes en  $H$  autour de la position  $Q = (1,0,0.6)$ , à la fois dans les canaux SF et NSF, à trois températures: 10K, 200K et 300K, Fig. 5.16.a-b. Nous avons ajusté toutes les courbes avec des fonctions gaussiennes, de la forme  $e^{-4 \ln 2 (\frac{H-H_0}{\Delta H})^2}$ , apparaissant sur un bruit de fond en pente. Les pics sont légèrement décentrés vers  $H_0=0,97$ . Les Fig. 5.16.c-d présentent les différences en température de ces coupes. Pour le canal NSF, Fig. 5.16.c, nous observons une forme dite en S pour les deux différences 10-300K et 200-300K, elle provient du fait que les paramètres de maille se contractent sensiblement en température, ce qui déplace les pics de Bragg nucléaires en température. Pour le canal SF, nous reportons sur la Fig. 5.16.d la différence 10-300K seulement, pour plus de visibilité. D'après l'Eq.2.42, l'intensité mesurée dans le canal SF est la somme de l'intensité magnétique, de la fuite de polarisation donnée par l'étude du canal NSF et d'un bruit de fond (de forme polynomiale):

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega}\right)_{SF}^{NSF}(T-300K) = I_{mag,X}(T-300K) + \frac{I_X^{NSF}(T-300K)}{FR_X^0(T-300K)} + (aH^2 + bH + c) \quad (5.6)$$

Nous pouvons donc déterminer tout ce qui ne contribue pas à l'intensité magnétique. L'aire bleutée sur la Fig. 5.16.d symbolise la somme de la fuite de polarisation  $\left(\frac{I_X^{NSF}(T-300K)}{FR_X^0(T-300K)}\right)$ , donnant la forme en S et du bruit de fond polynomial  $(aH^2 + bH + c)$ . La quantité  $1/FR_X^0(T-300K)$  est égale à  $1/FR_X^0 + a_X(T-300K)$  où  $a_X(T-300K)$  est donné par la dépendance en température de l'inverse du rapport de flipping mesurée à  $Q = (0,0,8)$  (Fig. 5.13.c) et  $FR_X^0 = 25,5$  choisi pour qu'à  $T=300K$  il n'y ait pas de signal magnétique. En soustrayant cette somme de bruit de fond et de fuite de polarisation, nous obtenons les carrés noirs de la Fig. 5.17. Nous appliquons la même procédure pour la différence 200-300K (carrés verts). Un signal magnétique est présent à basse température, alors qu'à 200K le signal est très faible voire nul dans la barre d'erreur. Nous pouvons ajuster le signal présent à basse température (10K) par une gaussienne. Nous obtenons une gaussienne dont la pleine largeur à mi-hauteur est de 0,13 r.l.u. Nous parvenons donc à estimer la longueur de corrélation dans le plan  $\xi_a = a/\pi\sqrt{0.13^2 - 0.06^2} = 10\text{\AA}$ , où  $a=3,7\text{\AA}$  est le paramètre de maille et 0,06 r.l.u. correspond à la largeur de la résolution (donnée par les coupes en  $H$  dans le canal NSF, Fig. 5.16.a). La longueur de corrélation dans le plan est finie. De plus, l'intensité magnétique extraite est de  $I_{mag,X} \sim 50\text{coups}/20\text{min}$ . Nous retrouvons le léger décalage du pic vers  $H_0=0,97$  comme observé sur les données brutes.

Enfin, nous nous intéressons à la dépendance en température de ce signal magnétique. La Fig. 5.18 présente les résultats de nos mesures effectuées à  $Q = (1,0,0.6)$  dans le canal SF (carrés noirs) et dans le canal NSF divisée par le rapport de flipping de référence  $FR_X^0(T)$  (points bleus). Les deux dépendances sont normalisées de manière à ce qu'il n'y ait pas de signal magnétique à haute température. Les courbes noires correspondent à plusieurs ajustements possibles avec des fonctions de type paramètre d'ordre. Nous mettons ainsi en évidence un signal magnétique qui se développe sous  $T_{mag} = 200K \pm 30K$ . L'intensité magnétique  $I_{mag,X}$  est de l'ordre  $\sim 50$  coups pour un temps de comptage de l'ordre  $\sim 20\text{min}$ .

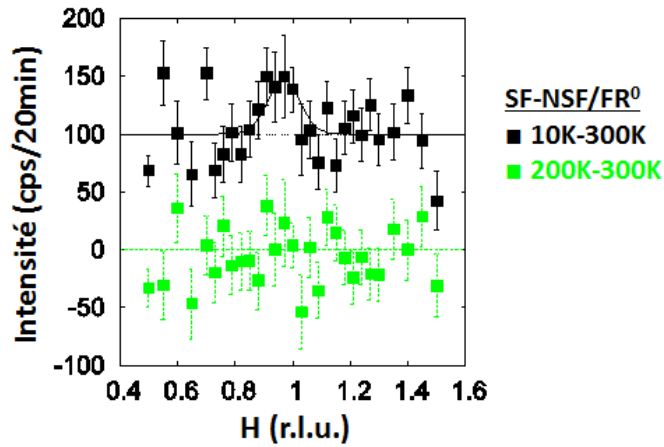


Figure 5.17: Pb-Bi2201-UD5. Mesures effectuées sur le spectromètre 4F1 avec la polarisation X. Dépendance en H autour de  $Q = (1,0,0.6)$  de la différence des intensités SF 10-300K (carrés noirs) et 200-300K (carrés verts), fuite de polarisation et bruit de fond soustraits. Le résultat (10K-300K) est décalé de +100coups pour une meilleure visibilité.

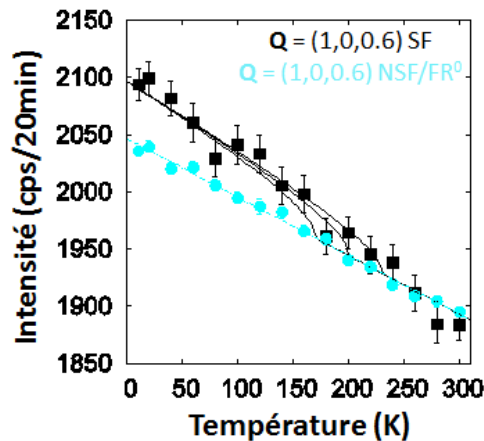


Figure 5.18: Pb-Bi2201-UD5. Mesures effectuées sur le spectromètre 4F1 avec la polarisation X. Dépendances en température à  $Q = (1,0,0.6)$  de l'intensité SF (carrés noirs), de l'intensité  $NSF/FR_X^0(T)$  (points bleus). Les deux dépendances sont normalisées de manière à ce qu'il n'y ait pas de signal magnétique à haute température (300K). Les courbes noires correspondent à plusieurs ajustements possibles avec des fonctions de type paramètre d'ordre.

Pour conclure, les analyses des dépendances en  $H$  et en température que nous venons de présenter sont cohérentes. Un signal magnétique, du même ordre de grandeur dans les deux cas, apparaît sous  $T_{mag} = 200\text{K} \pm 30\text{K}$  à  $\mathbf{Q} = (1,0,0,6)$ . En outre, la longueur de corrélation dans le plan est finie,  $\xi_a \sim 3a$ . Nous avons donc mis en évidence un ordre magnétique à  $q=0$  à courte portée dans l'échantillon Pb-Bi2201-UD5 ( $p \sim 0,14$ ), comme observé pour la famille La214 à faible dopage ( $p \sim 0,085$ ) [37].

## 5.8 Diagramme de phase de la famille Pb-Bi2201

La Fig. 5.19 présente le diagramme de phase de la famille Pb-Bi2201 (comparée à la famille La-Bi2201), extrait des travaux de K. Kudo et al [137]. Les températures  $T^*$  (symboles triangulaires) ont été déterminées par des mesures de résistivité [166]. Le point rouge correspond à la température  $T_{mag} \sim 200\text{K}$  déterminée par nos mesures de diffusion de neutrons polarisés avec l'échantillon Pb-Bi2201-UD5.  $T_{mag}$  semble tout à fait compatible avec la dépendance en dopage de  $T^*$  (zone grisée). Pour cet échantillon, l'ordre magnétique à  $q=0$  est à courte portée.

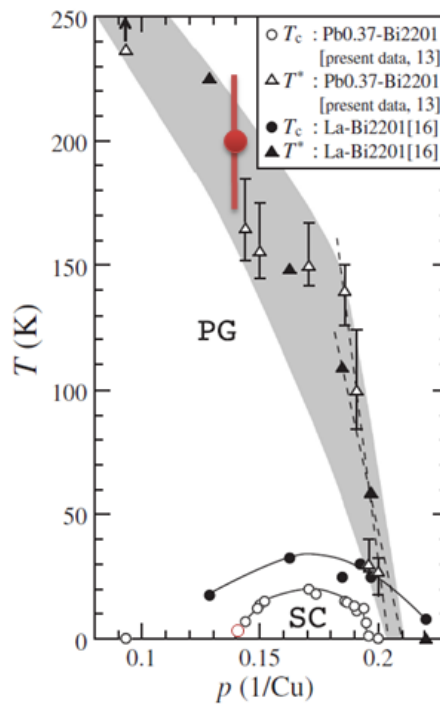


Figure 5.19: Diagramme de phase de la famille Pb-Bi2201 (comparée à la famille La-Bi2201), d'après [137]. Les températures  $T^*$  ont été déterminées par des mesures de résistivité [166]. Le point rouge correspond à la température  $T_{mag} \sim 200\text{K}$  déterminée par nos mesures de diffusion de neutrons polarisés avec l'échantillon Pb-Bi2201-UD5.

Pour la famille Pb-Bi2201, un effet Kerr a été reporté [51], dont la température  $T_K$  correspond à  $T^*(=T_{mag})$ , contrairement à la famille Y123 où elles sont différentes. Un modèle de boucles de courants reliant les cuivre du plan et les oxygènes apicaux semble être compatible avec l'effet Kerr [143]. Toutefois, dans un tel modèle, le moment magnétique est fixe géométriquement, ce qui

n'est pas en accord avec les dépendances en température distinctes des deux composantes du moment que nous avons reportées pour la famille Y123 (Chapitre 4). Quelle que soit l'interprétation théorique, le fait que  $T_K$  et  $T_{mag}$  semblent coïncider (pour la famille Pb-Bi2201) indique un possible lien entre l'ordre magnétique à  $q=0$  et l'effet Kerr.

En outre, des mesures STM dans la famille Pb-Bi2201 ont mis en évidence un ordre de charge [66]. Des mesures de rayons X, STM et ARPES dans la famille Bi2201 [65], toutes combinées, indiquent également un ordre de charge, présent en surface et en volume. Cet ordre de charge semble apparaître juste en dessous de  $T^*$  déterminée par des mesures RMN du Knight Shift pour cette famille [65]. Pour la famille Y123, il est établi que l'ordre de charge apparaît bien en dessous de l'apparition du pseudo-gap.

Dans les systèmes monocouches à base de Bi, autour de  $T^*$ , nous aurions un effet Kerr et un ordre de charge en plus de l'ordre magnétique à  $q=0$  à courte portée. Pour les autres familles dans le régime sous-dopé, l'ordre magnétique à  $q=0$  est à longue portée et l'effet Kerr et l'ordre de charge apparaissent à des températures bien plus basses. Ainsi, la proximité avec d'autres états pourrait affaiblir la portée de l'ordre magnétique à  $q=0$  dans le régime sous-dopé de la famille Pb-Bi2201.

Comme pour la famille La214, l'ordre magnétique à  $q=0$  est à courte portée, et de manière surprenante, pour les deux familles les températures critiques  $T_c$  sont très basses. Dans le cas de La214, il a été proposé que des boucles de courant soient confinées à l'intérieur d'un motif de type stripes (Fig. 1.12.d). Nous pouvons nous demander si c'est le cas également pour la famille Pb-Bi2201. Quelle est la nature de la dynamique de spin dans Bi2201? Y-a-t-il une réponse incommensurable comme dans La214? Des fluctuations antiferromagnétiques de spin incommensurables ont été mesurées dans la famille Bi2201 [167], comparables à celles de la famille La214. Toutefois, contrairement à la famille La214 pour laquelle il y a des modulations de charge et de spin pour lesquelles  $q_{CDW} = 2q_{SDW}$ , dans le cas de la famille Bi2201, une telle relation n'est pas observée [167]. Cela suggère un modèle différent pour la famille Bi2201.

## 5.9 Conclusion

Par rapport à la famille Y123, la famille Bi2212 présente un diagramme de phase avec un plateau large autour du dopage optimal. Ceci peut être expliqué par la présence de désordre plus important pour cette famille qui gèlerait les fluctuations présentes autour du point critique quantique et permettrait à l'ordre magnétique à  $q=0$  de survivre. Dans tous les cas,  $T_{mag}$  demeure élevée mais l'intensité magnétique diminue. Comme démontré dans le Chapitre 4, cela implique la diminution des longueurs de corrélation. Une faible réduction de la longueur de corrélation est en fait difficile à observer directement. En effet, la résolution de l'appareil (spectromètre 4F1) est choisie moins bonne afin de maximiser l'intensité des neutrons diffusés. En revanche, une forte réduction des longueurs de corrélation peut être observée directement. Par exemple, cela a été démontré dans un échantillon sous-dopé de la famille La214, où l'ordre magnétique à  $q=0$  apparaît 2D et  $\xi_a \sim 2 - 3a$ , mais aussi dans notre étude de l'échantillon Pb-Bi2201-UD5 où  $\xi_a \sim 3a$ . Dans ce cas, la proximité avec une instabilité électronique pourrait expliquer la courte portée de l'ordre. Le

nombre de couches  $\text{CuO}_2$  ne semble pas influencer sur la portée de l'ordre puisque pour le système monocouche Hg1201 un ordre à longue portée (3D) a été mis en évidence. Pour les familles Y123 et Bi2212, l'ordre est aussi 3D alors que pour les familles La214 et Pb-Bi2201, il est 2D. Ainsi, les interactions le long de l'axe  $c$  pourraient stabiliser l'ordre magnétique. Grâce à l'étude de la famille Bi2212, nous avons également généralisé l'observation de l'inclinaison du moment magnétique et d'une forte décroissance de l'intensité magnétique en fonction de  $L$ . L'inclinaison du moment magnétique est légèrement inférieure à celle reportée pour les autres familles ( $20^\circ \pm 20^\circ$  comparé à  $45^\circ \pm 20^\circ$ ). Ceci pourrait être simplement dû à une moins bonne statistique, nous nous trouvons en limite de détection. En effet, l'intensité magnétique est fortement réduite à l'approche du point critique quantique. Cette intensité est d'autant plus réduite en fonction de  $L$ . La dépendance en  $L$  de l'intensité magnétique étudiée dans des systèmes monocouches et bicouches est la même, cette évolution est générique. L'amplitude quant à elle varie notamment en fonction du nombre de plans  $\text{CuO}_2$ . Le facteur de structure déterminé au Chapitre 3 lors de l'étude de l'anisotropie est compatible avec ces observations.

# Conclusion générale

De toutes les familles de cuprates, le système bicouche  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  est le plus étudié. Plus particulièrement, pour la composition  $YBa_2Cu_3O_{6.6}$ , un grand nombre d'observations expérimentales ont été reportées. L'ordre magnétique à  $q=0$  est à longue portée et 3D. Il brise la symétrie par renversement du temps, indiquant une transition de phase. De plus, une nette anisotropie a-b du facteur de structure de l'ordre magnétique à  $q=0$  est observée (la symétrie de rotation d'ordre 4 est brisée). Enfin, l'ordre magnétique à  $q=0$  apparaissant à  $T_{mag}(=T^*)$  est caractérisé par un moment magnétique incliné par rapport à l'axe c. De plus, la dynamique de spin permet de sonder les changements de propriétés électroniques du système. A la température  $T^*$ , des fluctuations antiferromagnétiques de basse énergie se développent. Une augmentation encore plus forte de ce signal est observée sous  $T_c$ , c'est le pic de résonance.

Parallèlement, pour le système monocouche  $HgBa_2CuO_{4+x}$ , l'ordre magnétique à  $q=0$  est également longue portée 3D. En revanche, dans le régime sous-dopé, aucun pic de résonance n'a été observé dans la phase supraconductrice. Dans ce cas, la réponse magnétique est dominé par la formation du pseudo-gap. De plus, des excitations magnétiques peu dispersives (associées à l'ordre à  $q=0$  et différentes des fluctuations antiferromagnétiques) ont été reportées dans ces matériaux. Elles semblent spécifiques à cette famille.

A l'approche du dopage optimal, pour deux systèmes bicouches  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  et  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+x}$ , la persistance de l'ordre magnétique à  $q=0$  à des valeurs de  $T_{mag}$  relativement élevées a été révélée, donnant lieu à un plateau (plus large pour la famille  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  que pour la famille  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+x}$ ). Cet effet est en plus accompagné de la forte réduction de l'intensité magnétique. Cette faible intensité est interprétée comme une redistribution de l'intensité magnétique dans l'espace réciproque associée à des longueurs de corrélations magnétiques finies. L'ordre magnétique présente des domaines de taille finie dans l'espace réel, confirmant ainsi la courte portée de cet ordre à l'approche du point critique quantique. L'ordre magnétique à  $q=0$  s'affaiblit à mesure que le dopage augmente jusqu'à disparaître totalement autour du point critique quantique ( $p \sim 0,2$ ).

Également, pour un système monocouche  $Pb_{0.55}Bi_{1.5}Sr_{1.6}La_{0.4}CuO_{6+x}$ , l'ordre est à courte portée, dans le régime sous-dopé, de manière comparable au système monocouche  $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ .

Globalement, la compétition avec d'autres états (notamment supraconductivité et ordre de charge) mais aussi le désordre des matériaux et les fluctuations liées au point critique quantique doivent être pris en considération pour expliquer la courte portée de l'ordre.

En tout cas, quelle que soit la portée de l'ordre magnétique à  $q=0$ , l'universalité et le caractère générique de cet ordre magnétique à  $q=0$  dans les cuprates sont établis.



De plus, le motif magnétique responsable de la diffusion de neutrons a davantage été identifié.

D'une part, la dépendance en fonction du vecteur d'onde et plus particulièrement en fonction de  $\mathbf{Q} = (1,0,L)$ , positions auxquelles l'ordre est observé, a été déterminée. Une décroissance rapide unique a été reportée, au sens où elle présente la même forme quelle que soit la famille d'échantillon, mais aussi puisqu'elle ne suit pas un facteur de forme magnétique atomique simple (ni celui du cuivre, ni celui de l'oxygène).

D'autre part, l'observation d'un moment magnétique incliné au sein de la maille élémentaire pour la famille Bi2212 a été généralisée. L'ordre de grandeur de l'angle d'inclinaison (à basse température) est le même quelle que soit la famille de cuprates considérée. L'existence de cette inclinaison pour la famille Y123 au niveau du dopage optimal a en plus été vérifiée. Non seulement elle existe quelle que soit la valeur de  $L$ , mais elle présente une dépendance en température particulière selon deux composantes: dans le plan et perpendiculaire au plan. A basse température, les deux composantes sont présentes, donnant lieu à un moment magnétique incliné. La nouveauté ici réside dans le fait que seule la composante perpendiculaire au plan subsiste à haute température (au-dessus de la température  $T_{mag}$ ). On retrouve ainsi une réponse Ising le long de l'axe  $c$  à haute température.

Enfin, l'étude de l'ordre magnétique à  $q=0$  dans la phase supraconductrice révèle que le signal magnétique sur la réflexion de Bragg augmente. En se plaçant légèrement en dehors de celle-ci, un signal magnétique important apparaît également à basse température. Du fait de la compétition avec la supraconductivité une réduction de l'intensité associée à l'ordre magnétique à  $q=0$  aurait été attendue. Le surcroît d'intensité observé pourrait provenir de l'augmentation de signal distribué dans l'espace réciproque. Aussi, des excitations de basse énergie associées à ce phénomène sont présentes, elles restent encore à être clairement identifiées.

Tout modèle ayant les symétries (invariance par translation, brisure par renversement du temps et brisure par rotation) et les caractéristiques du motif magnétique énoncées précédemment peuvent convenir. A ce jour, seul le modèle de boucles de courant proposé par C. M. Varma semble en adéquation avec nos mesures. La composante magnétique dans le plan proviendrait de la superposition quantique des quatre états de boucles possibles et une réponse Ising le long de l'axe  $c$  pourrait en fait être retrouvée à haute température (au dessus de  $T_{mag}$ ) une fois que les fluctuations thermiques domineraient les effets quantiques. De plus, pour les systèmes bicouches, un modèle où la résultante des deux anapoles (paramètre d'ordre des boucles) au sein du biplan pointe le long de l'axe  $b$  est compatible avec les mesures de diffusion de neutrons.

# Bibliographie

- [1] K. ONNES. *Leiden Comm.*, (1911), 1206–1226.
- [2] J. BEDNORZ and K. MULLER, POSSIBLE HIGH-TC SUPERCONDUCTIVITY IN THE BA-LA-CU-O SYSTEM. *ZEITSCHRIFT FUR PHYSIK B-CONDENSED MATTER*, 64 (1986) 2, 189–193.
- [3] Y. KAMIHARA ET AL., Iron-based layered superconductor La[O<sub>1-x</sub>F<sub>x</sub>]FeAs (x=0.05-0.12) with T<sub>c</sub>=26 K. *JOURNAL OF THE AMERICAN CHEMICAL SOCIETY*, 130 (2008) 11, 3296+.
- [4] A. DROZDOV, M. EREMETS and I. TROYAN, Conventional superconductivity at 190K at high pressures. *arXiv:1412.0460*, (2014).
- [5] J. BARDEEN, L. COOPER and J. SCHRIEFFER, THEORY OF SUPERCONDUCTIVITY. *PHYSICAL REVIEW*, 108 (1957) 5, 1175–1204.
- [6] J. GARLAND, ISOTOPE EFFECT IN SUPERCONDUCTIVITY. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 11 (1963) 3, 114–&.
- [7] S. BUD'KO ET AL., Boron isotope effect in superconducting MgB<sub>2</sub>. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 86 (2001) 9, 1877–1880.
- [8] P. LEE, N. NAGAOSA and X. WEN, Doping a Mott insulator: Physics of high-temperature superconductivity. *Reviews of Modern Physics*, 78 (2006), 17–85.
- [9] F. ZHANG ET AL., A renormalised Hamiltonian approach to a resonant valence bond wavefunction. *Supercond. Sci. Technol.*, 1 (1988), 36–46.
- [10] N. HUSSEY ET AL., A coherent three-dimensional Fermi surface in a high-transition-temperature superconductor. *NATURE*, 425 (2003) 6960, 814–817.
- [11] M. PLATE ET AL., Fermi surface and quasiparticle excitations of overdoped Tl<sub>2</sub>Ba<sub>2</sub>CuO<sub>6+δ</sub>. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 95 (2005) 7.
- [12] M. ABDEL-JAWAD ET AL., Anisotropic scattering and anomalous normal-state transport in a high-temperature superconductor. *NATURE PHYSICS*, 2 (2006) 12, 821–825.

- [13] W. HARDY ET AL., PRECISION-MEASUREMENTS OF THE TEMPERATURE-DEPENDENCE OF LAMBDA IN YBA<sub>2</sub>CU<sub>3</sub>O<sub>6.95</sub> - STRONG EVIDENCE FOR NODES IN THE GAP FUNCTION. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 70 (1993) 25, 3999–4002.
- [14] Z. SHEN ET AL., ANOMALOUSLY LARGE GAP ANISOTROPY IN THE A-B PLANE OF BI<sub>2</sub>SR<sub>2</sub>CACU<sub>2</sub>O<sub>8+DELTA</sub>. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 70 (1993) 10, 1553–1556.
- [15] H. AUBIN ET AL., Angular position of nodes in the superconducting gap of YBCO. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 78 (1997) 13, 2624–2627.
- [16] C. TSUEI and J. KIRTLEY, Pairing symmetry in cuprate superconductors. *REVIEWS OF MODERN PHYSICS*, 72 (2000) 4, 969–1016.
- [17] C. VARMA, Non-Fermi-liquid states and pairing instability of a general model of copper oxide metals. *PHYSICAL REVIEW B*, 55 (1997) 21, 14554–14580.
- [18] C. RENNER ET AL., Pseudogap precursor of the superconducting gap in under- and over-doped Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8+delta</sub>. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 80 (1998) 1, 149–152.
- [19] N. BERGEAL ET AL., Pairing fluctuations in the pseudogap state of copper-oxide superconductors probed by the Josephson effect. *NATURE PHYSICS*, 4 (2008) 8, 608–611.
- [20] J. TALLON and J. LORAM, The doping dependence of T\* - what is the real high-T-c phase diagram? *PHYSICA C*, 349 (2001) 1-2, 53–68.
- [21] J. TALLON ET AL., The phase diagram of high-T-c superconductors. *PHYSICA C - SUPERCONDUCTIVITY AND ITS APPLICATIONS*, 415 (2004) 1-2, 9–14. 7th International Conference on Materials and Mechanisms of Superconductive and High Temperature Superconductors, Rio de Janeiro, BRAZIL, MAY 25-30, 2003.
- [22] D. M. BROUN, What lies beneath the dome? *NATURE PHYSICS*, 4 (2008) 3, 170–172.
- [23] H. ALLOUL, T. OHNO and P. MENDELS, Y-89 NMR EVIDENCE FOR A FERMI-LIQUID BEHAVIOR IN YBA<sub>2</sub>CU<sub>3</sub>O<sub>6+X</sub>. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 63 (1989) 16, 1700–1703.
- [24] M. TAKIGAWA ET AL., CU AND O NMR-STUDIES OF THE MAGNETIC-PROPERTIES OF YBA<sub>2</sub>CU<sub>3</sub>O<sub>6.63</sub>(TC=62K). *PHYSICAL REVIEW B*, 43 (1991) 1, A, 247–257.
- [25] T. ITO, K. TAKENAKA and S. UCHIDA, SYSTEMATIC DEVIATION FROM T-LINEAR BEHAVIOR IN THE INPLANE RESISTIVITY OF YBA<sub>2</sub>CU<sub>3</sub>O<sub>7-Y</sub> - EVIDENCE FOR DOMINANT SPIN SCATTERING. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 70 (1993) 25, 3995–3998.
- [26] M. NORMAN ET AL., Destruction of the Fermi surface in underdoped high-Tc superconductors. *Nature*, 392 (1998), 157–160.
- [27] A. SACUTO ET AL., Electronic Raman scattering in copper oxide superconductors: Understanding the phase diagram. *COMPTES RENDUS PHYSIQUE*, 12 (2011) 5-6, 480–501.

- [28] H. DING ET AL., Spectroscopic evidence for a pseudogap in the normal state of underdoped high-T-c superconductors. *NATURE*, 382 (1996) 6586, 51–54.
- [29] J. LORAM ET AL., ELECTRONIC SPECIFIC-HEAT OF  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  FROM 1.8 TO 300-K. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 71 (1993) 11, 1740–1743.
- [30] B. FAUQUE ET AL., Magnetic order in the pseudogap phase of high-T-C superconductors. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 96 (2006) 19.
- [31] Y. SIDIS ET AL., Search for the existence of circulating currents in high-T-c superconductors using the polarized neutron scattering technique. *PHYSICA B-CONDENSED MATTER*, 397 (2007) 1-2, 1–6. 6th International Workshop on Polarised Neutrons in Condensed Matter Investigations, Berlin Brandenburg Acad Sci, Berlin, GERMANY, SEP 25-28, 2006.
- [32] H. A. MOOK ET AL., Observation of magnetic order in a superconducting  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$  single crystal using polarized neutron scattering. *PHYSICAL REVIEW B*, 78 (2008) 2.
- [33] V. BALEDENT ET AL., Evidence for competing magnetic instabilities in underdoped  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ . *PHYSICAL REVIEW B*, 83 (2011) 10.
- [34] S. DE ALMEIDA-DIDRY ET AL., Evidence for intra-unit-cell magnetic order in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ . *PHYSICAL REVIEW B*, 86 (2012) 2.
- [35] Y. LI ET AL., Unusual magnetic order in the pseudogap region of the superconductor  $\text{HgBa}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ . *NATURE*, 455 (2008) 7211, 372–375.
- [36] Y. LI ET AL., Magnetic order in the pseudogap phase of  $\text{HgBa}_2\text{CuO}_{4+\delta}$  studied by spin-polarized neutron diffraction. *PHYSICAL REVIEW B*, 84 (2011) 22.
- [37] V. BALEDENT ET AL., Two-Dimensional Orbital-Like Magnetic Order in the High-Temperature  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  Superconductor. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 105 (2010) 2.
- [38] H. RAFFY ET AL., c-axis resistivity of  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$  thin films at various oxygen doping: Phase diagram and scaling law. *PHYSICA C-SUPERCONDUCTIVITY AND ITS APPLICATIONS*, 460 (2007) 2, 851–853. 8th International Conference on Materials and Mechanisms of Superconductivity and High Temperature Superconductors, Dresden, GERMANY, JUL 09-14, 2006.
- [39] Z. KONSTANTINOVIC, Z. LI and H. RAFFY, Temperature dependence of the resistivity of oxygen controlled  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  thin films: pseudogap effect. *PHYSICA B-CONDENSED MATTER*, 259-61 (1999), 567–568. International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES 98), PARIS, FRANCE, JUL 15-18, 1998.
- [40] K. ISHIDA ET AL., Pseudogap behavior in single-crystal  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  probed by Cu NMR. *PHYSICAL REVIEW B*, 58 (1998) 10, R5960–R5963.

- [41] R. DIPASUPIL ET AL., Energy gap evolution in the tunneling spectra of  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ . *JOURNAL OF THE PHYSICAL SOCIETY OF JAPAN*, 71 (2002) 6, 1535–1540.
- [42] I. M. VISHIK ET AL., Phase competition in trisected superconducting dome. *PROCEEDINGS OF THE NATIONAL ACADEMY OF SCIENCES OF THE UNITED STATES OF AMERICA*, 109 (2012) 45, 18332–18337.
- [43] A. SHEKHTER ET AL., Bounding the pseudogap with a line of phase transitions in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ . *NATURE*, 498 (2013) 7452, 75–77.
- [44] A. KAMINSKI ET AL., Spontaneous breaking of time-reversal symmetry in the pseudogap state of a high-T-c superconductor. *NATURE*, 416 (2002) 6881, 610–613.
- [45] M. SIMON and C. VARMA, Detection and implications of a time-reversal breaking state in underdoped cuprates. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 89 (2002) 24.
- [46] R. DAOU ET AL., Broken rotational symmetry in the pseudogap phase of a high-T-c superconductor. *NATURE*, 463 (2010) 7280, 519–522.
- [47] C. M. VARMA, V. M. YAKOVENKO and A. KAPITULNIK, Violation of Onsager reciprocity in underdoped cuprates? *arXiv:1007.1215*, (2010).
- [48] B. LERIDON ET AL., Thermodynamic signature of a phase transition in the pseudogap phase of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$  high-T-C superconductor. *EPL*, 87 (2009) 1.
- [49] M. S. GRONSLETH ET AL., Thermodynamic properties near the onset of loop-current order in high-T-c superconducting cuprates. *PHYSICAL REVIEW B*, 79 (2009) 9.
- [50] J. XIA ET AL., Polar Kerr-effect measurements of the high-temperature  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  superconductor: Evidence for broken symmetry near the pseudogap temperature. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 100 (2008) 12.
- [51] R.-H. HE ET AL., From a Single-Band Metal to a High-Temperature Superconductor via Two Thermal Phase Transitions. *SCIENCE*, 331 (2011) 6024, 1579–1583.
- [52] J. SONIER ET AL., Anomalous weak magnetism in superconducting  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ . *SCIENCE*, 292 (2001) 5522, 1692–1695.
- [53] J. SONIER ET AL., Correlations between charge ordering and local magnetic fields in overdoped  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ . *PHYSICAL REVIEW B*, 66 (2002) 13.
- [54] G. J. MACDOUGALL ET AL., Absence of broken time-reversal symmetry in the pseudogap state of the high temperature  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  superconductor from muon-spin-relaxation measurements. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 101 (2008) 1.

- [55] S. STRAESSLE ET AL., Absence of Orbital Currents in Superconducting YBa<sub>2</sub>Cu<sub>4</sub>O<sub>8</sub> Using a Zeeman-Perturbed Nuclear-Quadrupole-Resonance Technique. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 106 (2011) 9.
- [56] S. LEDERER and S. A. KIVELSON, Observable NMR signal from circulating current order in YBCO. *PHYSICAL REVIEW B*, 85 (2012) 15.
- [57] J. TRANQUADA ET AL., EVIDENCE FOR STRIPE CORRELATIONS OF SPINS AND HOLES IN COPPER-OXIDE SUPERCONDUCTORS. *NATURE*, 375 (1995) 6532, 561–563.
- [58] J. M. TRANQUADA, *TREATISE OF HIGH TEMPERATURE SUPERCONDUCTIVITY*, (edited by J. Robert Schrieffer 2007).
- [59] D. HAUG ET AL., Neutron scattering study of the magnetic phase diagram of underdoped YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6+x</sub>. *NEW JOURNAL OF PHYSICS*, 12 (2010).
- [60] T. WU ET AL., Magnetic-field-induced charge-stripe order in the high-temperature superconductor YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub>. *NATURE*, 477 (2011) 7363, 191–194.
- [61] G. GHIRINGHELLI ET AL., Long-Range Incommensurate Charge Fluctuations in (Y,Nd)Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6+x</sub>. *SCIENCE*, 337 (2012) 6096, 821–825.
- [62] J. CHANG ET AL., Direct observation of competition between superconductivity and charge density wave order in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6.67</sub>. *NATURE PHYSICS*, 8 (2012) 12, 871–876.
- [63] J. HOFFMAN ET AL., A four unit cell periodic pattern of quasi-particle states surrounding vortex cores in Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8+delta</sub>. *SCIENCE*, 295 (2002) 5554, 466–469.
- [64] Y. KOHSAKA ET AL., An intrinsic bond-centered electronic glass with unidirectional domains in underdoped cuprates. *SCIENCE*, 315 (2007) 5817, 1380–1385.
- [65] R. COMIN ET AL., Charge Order Driven by Fermi-Arc Instability in Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2-x</sub>LaxCuO<sub>6+delta</sub>. *SCIENCE*, 343 (2014) 6169, 390–392.
- [66] W. D. WISE ET AL., Charge-density-wave origin of cuprate checkerboard visualized by scanning tunnelling microscopy. *NATURE PHYSICS*, 4 (2008) 9, 696–699.
- [67] N. DOIRON-LEYRAUD ET AL., Hall, Seebeck, and Nernst Coefficients of Underdoped HgBa<sub>2</sub>CuO<sub>4+delta</sub> : Fermi-Surface Reconstruction in an Archetypal Cuprate Superconductor. *PHYSICAL REVIEW X*, 3 (2013) 2.
- [68] N. BARISIC ET AL., Universal quantum oscillations in the underdoped cuprate superconductors. *NATURE PHYSICS*, 9 (2013) 12, 761–764.
- [69] E. H. DA SILVA NETO ET AL., Ubiquitous Interplay Between Charge Ordering and High-Temperature Superconductivity in Cuprates. *SCIENCE*, 343 (2014) 6169, 393–396.

- [70] E. BLACKBURN ET AL., X-Ray Diffraction Observations of a Charge-Density-Wave Order in Superconducting Ortho-II YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6.54</sub> Single Crystals in Zero Magnetic Field. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 110 (2013) 13.
- [71] A. J. ACHKAR ET AL., Distinct Charge Orders in the Planes and Chains of Ortho-III-Ordered YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6+δ</sub> Superconductors Identified by Resonant Elastic X-ray Scattering. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 109 (2012) 16.
- [72] S. BLANCO-CANOSA ET AL., Momentum-Dependent Charge Correlations in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6+δ</sub> Superconductors Probed by Resonant X-Ray Scattering: Evidence for Three Competing Phases. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 110 (2013) 18.
- [73] M. J. LAWLER ET AL., Intra-unit-cell electronic nematicity of the high-T<sub>c</sub> copper-oxide pseudogap states. *NATURE*, 466 (2010) 7304, 347–351.
- [74] T. WU ET AL., Emergence of charge order from the vortex state of a high-temperature superconductor. *NATURE COMMUNICATIONS*, 4 (2013).
- [75] D. LEBOEUF ET AL., Thermodynamic phase diagram of static charge order in underdoped YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub>. *NATURE PHYSICS*, 9 (2013) 2, 79–83.
- [76] S. E. SEBASTIAN, N. HARRISON and G. G. LONZARICH, Towards resolution of the Fermi surface in underdoped high-T<sub>c</sub> superconductors. *REPORTS ON PROGRESS IN PHYSICS*, 75 (2012) 10.
- [77] N. HARRISON and S. E. SEBASTIAN, Fermi surface reconstruction from bilayer charge ordering in the underdoped high temperature superconductor YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6+x</sub>. *NEW JOURNAL OF PHYSICS*, 14 (2012).
- [78] J. CHANG ET AL., Nernst and Seebeck Coefficients of the Cuprate Superconductor YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6.67</sub>: A Study of Fermi Surface Reconstruction. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 104 (2010) 5.
- [79] J. CHANG ET AL., Nernst effect in the cuprate superconductor YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub>: Broken rotational and translational symmetries. *PHYSICAL REVIEW B*, 84 (2011) 1.
- [80] S. M. HAYDEN ET AL., The structure of the high energy spin excitations in a high transition temperature superconductor. *Nature*, 429 (2004), 531–534.
- [81] S. PAILHES ET AL., Doping dependence of bilayer resonant spin excitations in (Y,Ca)Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6+x</sub>. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 96 (2006) 25.
- [82] J. ROSSATMIGNOD ET AL., INVESTIGATION OF THE SPIN DYNAMICS IN YBA<sub>2</sub>CU<sub>3</sub>O<sub>6+X</sub> BY INELASTIC NEUTRON-SCATTERING. *PHYSICA B*, 169 (1991) 1-4, 58–65. 19TH INTERNATIONAL CONF ON LOW TEMPERATURE PHYSICS (LT-19), BRIGHTON, ENGLAND, AUG 16-22, 1990.



- [83] G. YU ET AL., A universal relationship between magnetic resonance and superconducting gap in unconventional superconductors. *NATURE PHYSICS*, 5 (2009) 12, 873–875.
- [84] V. HINKOV ET AL., Spin dynamics in the pseudogap state of a high-temperature superconductor. *NATURE PHYSICS*, 3 (2007) 11, 780–785.
- [85] C. VARMA, HIGH-TEMPERATURE SUPERCONDUCTIVITY Mind the pseudogap. *NATURE*, 468 (2010) 7321, 184–185.
- [86] C. VARMA, Pseudogap phase and the quantum-critical point in copper-oxide metals. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 83 (1999) 17, 3538–3541.
- [87] C. VARMA, Theory of the pseudogap state of the cuprates. *PHYSICAL REVIEW B*, 73 (2006) 15.
- [88] Y. HE and C. M. VARMA, Collective Modes in the Loop Ordered Phase of Cuprate Superconductors. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 106 (2011) 14.
- [89] S. CHAKRAVARTY ET AL., Hidden order in the cuprates. *PHYSICAL REVIEW B*, 63 (2001) 9.
- [90] M. H. FISCHER and E.-A. KIM, Mean-field analysis of intra-unit-cell order in the Emery model of the CuO<sub>2</sub> plane. *PHYSICAL REVIEW B*, 84 (2011) 14.
- [91] J. ASHKIN and E. TELLER, Statistics of Two-Dimensional Lattices with Four Components. *Physical Review*, 64 (1943), 178–184.
- [92] Y. HE and C. M. VARMA, Theory of polarized neutron scattering in the loop-ordered phase of cuprates. *PHYSICAL REVIEW B*, 86 (2012) 3.
- [93] Y. HE and C. M. VARMA, Collective modes in the loop-current-ordered phase of cuprates. *PHYSICAL REVIEW B*, 85 (2012) 15.
- [94] C. M. VARMA, Pseudogap in cuprates in the loop-current ordered state. *JOURNAL OF PHYSICS-CONDENSED MATTER*, 26 (2014) 50.
- [95] M. GREITER and R. THOMALE, No evidence for spontaneous orbital currents in numerical studies of three-band models for the CuO planes of high temperature superconductors. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 99 (2007) 2.
- [96] R. THOMALE and M. GREITER, Numerical analysis of three-band models for CuO planes as candidates for a spontaneous T-violating orbital current phase. *PHYSICAL REVIEW B*, 77 (2008) 9.
- [97] C. WEBER ET AL., Orbital Currents in Extended Hubbard Models of High-T<sub>c</sub> Cuprate Superconductors. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 102 (2009) 1.

- [98] C. WEBER, T. GIAMARCHI and C. M. VARMA, Phase Diagram of a Three-Orbital Model for High-T-c Cuprate Superconductors. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 112 (2014) 11.
- [99] D. F. AGTERBERG, D. S. MELCHERT and M. K. KASHYAP, Emergent loop current order from pair density wave superconductivity. *PHYSICAL REVIEW B*, 91 (2015) 5.
- [100] Y. WANG and A. CHUBUKOV, Charge-density-wave order with momentum (2Q,0) and (0,2Q) within the spin-fermion model: Continuous and discrete symmetry breaking, preemptive composite order, and relation to pseudogap in hole-doped cuprates. *PHYSICAL REVIEW B*, 90 (2014) 3.
- [101] K. B. EFETOV, H. MEIER and C. PEPIN, Pseudogap state near a quantum critical point. *NATURE PHYSICS*, 9 (2013) 7, 442–446.
- [102] T. KLOSS, X. MONTIEL and C. PEPIN, SU(2) symmetry in a realistic spin-fermion model for cuprate superconductors. *PHYSICAL REVIEW B*, 91 (2015) 20.
- [103] V. S. DE CARVALHO ET AL., Strong competition between Theta(II)-loop-current order and d-wave charge order along the diagonal direction in a two-dimensional hot spot model. *PHYSICAL REVIEW B*, 92 (2015) 7.
- [104] N. BULUT and D. SCALAPINO, d(x<sup>2</sup>-y<sup>2</sup>) symmetry and the pairing mechanism. *PHYSICAL REVIEW B*, 54 (1996) 21, 14971–14973.
- [105] P. MONTHOUX, D. PINES and G. G. LONZARICH, Superconductivity without phonons. *NATURE*, 450 (2007) 7173, 1177–1183.
- [106] V. AJI, A. SHEKHTER and C. M. VARMA, Theory of the coupling of quantum-critical fluctuations to fermions and d-wave superconductivity in cuprates. *PHYSICAL REVIEW B*, 81 (2010) 6.
- [107] Y. ANDO ET AL., Electronic phase diagram of high-T-c cuprate superconductors from a mapping of the in-plane resistivity curvature. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 93 (2004) 26.
- [108] P. BOURGES and Y. SIDIS, Novel magnetic order in the pseudogap state of high-T-c copper oxides superconductors. *COMPTES RENDUS PHYSIQUE*, 12 (2011) 5-6, 461–479.
- [109] Y. LI ET AL., Two Ising-like magnetic excitations in a single-layer cuprate superconductor. *NATURE PHYSICS*, 8 (2012) 5, 404–410.
- [110] Y. LI ET AL., Hidden magnetic excitation in the pseudogap phase of a high-T-c superconductor. *NATURE*, 468 (2010) 7321, 283–285.
- [111] S. DI MATTEO and M. R. NORMAN, Orbital currents, anapoles, and magnetic quadrupoles in CuO. *PHYSICAL REVIEW B*, 85 (2012) 23.

- [112] A. S. MOSKVIN, Pseudogap Phase in Cuprates: Oxygen Orbital Moments Instead of Circulating Currents. *JETP LETTERS*, 96 (2012) 6, 385–390.
- [113] S. W. LOVESEY, D. D. KHALYAVIN and U. STAUB, Ferro-type order of magneto-electric quadrupoles as an order-parameter for the pseudo-gap phase of a cuprate superconductor. *JOURNAL OF PHYSICS-CONDENSED MATTER*, 27 (2015) 29.
- [114] S. W. LOVESEY, *THEORY OF NEUTRON SCATTERING*, (Oxford Science Publications 1984).
- [115] G. L. SQUIRES, *THERMAL NEUTRON SCATTERING*, (Cambridge University Press 1978).
- [116] M. COOPER and R. NATHANS, RESOLUTION FUNCTION IN NEUTRON DIFFRACTOMETRY .I. RESOLUTION FUNCTION OF A NEUTRON DIFFRACTOMETER AND ITS APPLICATION TO PHONON MEASUREMENTS. *ACTA CRYSTALLOGRAPHICA*, 23 (1967) 3, 357–&.
- [117] B. DORNER, NORMALIZATION OF RESOLUTION FUNCTION FOR INELASTIC NEUTRON-SCATTERING AND ITS APPLICATION. *ACTA CRYSTALLOGRAPHICA SECTION A-CRYSTAL PHYSICS DIFFRACTION THEORETICAL AND GENERAL CRYSTALLOGRAPHY*, A-28 (1972).
- [118] V. BALEDENT (2010) Parametre d'ordre magnetique dans la phase de pseudogap des oxydes de cuivre supraconducteurs a haute temperature critique. Ph.D. thesis, Universite Paris XI.
- [119] F. TASSET, ZERO-FIELD NEUTRON POLARIMETRY. *PHYSICA B*, 156 (1989), 627–630.
- [120] J. R. STEWART ET AL., Disordered materials studied using neutron polarization analysis on the multi-detector spectrometer, D7. *JOURNAL OF APPLIED CRYSTALLOGRAPHY*, 42 (2009), 69–84.
- [121] G. EHLERS ET AL., Generalization of the classical xyz-polarization analysis technique to out-of-plane and inelastic scattering. *REVIEW OF SCIENTIFIC INSTRUMENTS*, 84 (2013) 9.
- [122] LAMP. <http://www.ill.eu/instruments-support/computing-for-science/cs-software/all-software/lamp/>.
- [123] M. PRESLAND ET AL., GENERAL TRENDS IN OXYGEN STOICHIOMETRY EFFECTS ON TC IN BI AND TL SUPERCONDUCTORS. *PHYSICA C*, 176 (1991) 1-3, 95–105.
- [124] R. LIANG, D. A. BONN and W. N. HARDY, Evaluation of CuO<sub>2</sub> plane hole doping in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6+x</sub> single crystals. *PHYSICAL REVIEW B*, 73 (2006) 18.
- [125] P. BOURGES ET AL., The spin excitation spectrum in superconducting YBa(2)Cu(3)O(6.85). *SCIENCE*, 288 (2000) 5469, 1234–1237.
- [126] S. PAILHES ET AL., Resonant magnetic excitations at high energy in superconducting YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6.85</sub>. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 93 (2004) 16.

- [127] L. MANGIN-THRO ET AL., Intra-unit-cell magnetic correlations near optimal doping in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$ . *NATURE COMMUNICATIONS*, 6 (2015).
- [128] L. PINTSCHOVIVUS ET AL., Pronounced in-plane anisotropy of phonon anomalies in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$ . *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 89 (2002) 3.
- [129] P. BOURGES ET AL., Inelastic-neutron-scattering study of antiferromagnetic fluctuations in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.97}$ . *PHYSICAL REVIEW B*, 53 (1996) 2, 876–885.
- [130] J. ETRILLARD, P. BOURGES and C. LIN, Incommensurate composite structure of the superconductor  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ . *PHYSICAL REVIEW B*, 62 (2000) 1, 150–153.
- [131] J. PEREZ-MATO ET AL., Competition between composite and modulated configurations in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  and its relation to oxygen stoichiometry. *PHYSICAL REVIEW B*, 67 (2003) 2.
- [132] L. MANGIN-THRO ET AL., Characterization of the intra-unit-cell magnetic order in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ . *PHYSICAL REVIEW B*, 89 (2014) 9.
- [133] S. DE ALMEIDA-DIDRY ET AL., Investigations for the growth of large underdoped  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  single crystals. *JOURNAL OF CRYSTAL GROWTH*, 312 (2010) 3, 466–470.
- [134] B. FAUQUE ET AL., Dispersion of the odd magnetic resonant mode in near-optimally doped  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ . *PHYSICAL REVIEW B*, 76 (2007) 21.
- [135] L. CAPOGNA ET AL., Odd and even magnetic resonant modes in highly overdoped  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ . *PHYSICAL REVIEW B*, 75 (2007) 6.
- [136] G. XU ET AL., Testing the itinerancy of spin dynamics in superconducting  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ . *NATURE PHYSICS*, 5 (2009) 9, 642–646.
- [137] K. KUDO ET AL., Narrow Carrier Concentration Range of Superconductivity and Critical Point of Pseudogap Formation Temperature in Pb-Substituted  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_{6+\delta}$ . *JOURNAL OF THE PHYSICAL SOCIETY OF JAPAN*, 78 (2009) 8.
- [138] M. K. CHAN ET AL., Commensurate antiferromagnetic fluctuations as a signature of the pseudogap in a model cuprate. *arXiv:1402.4517*, (2014).
- [139] C. MICHEL and B. RAVEAU, THE OXIDES  $\text{A}_2\text{BACuO}_5$  (A=Y,SM,EU,GD,DY,HO,ER,YB). *JOURNAL OF SOLID STATE CHEMISTRY*, 43 (1982) 1, 73–80.
- [140] T. CHATTOPADHYAY ET AL., EVIDENCE FOR THE ANTIFERROMAGNETIC ORDERING OF THE GREEN PHASE  $\text{Y}_2\text{BACuO}_5$ . *EUROPHYSICS LETTERS*, 8 (1989) 7, 685–689.
- [141] S. SHAMOTO ET AL., NEUTRON-SCATTERING STUDY OF ANTIFERROMAGNETISM IN  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.15}$ . *PHYSICAL REVIEW B*, 48 (1993) 18, 13817–13825.

- [142] A. J. DIANOUX and G. LANDER (2002) Neutron data booklet.
- [143] V. M. YAKOVENKO, Tilted loop currents in cuprate superconductors. *PHYSICA B-CONDENSED MATTER*, 460 (2015) SI, 159–164.
- [144] J. FORSYTH, P. BROWN and B. WANKLYN, Magnetism in cupric oxide. *J. Phys. C: Solid State Phys.*, 21 (1988), 2917–2929.
- [145] Y. ANDO ET AL., Electrical resistivity Anisotropy from self-organized one dimensionality in high-temperature superconductors. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 88 (2002) 13.
- [146] W. TABIS ET AL., Charge order and its connection with Fermi-liquid charge transport in a pristine high-T-c cuprate. *NATURE COMMUNICATIONS*, 5 (2014).
- [147] G. YU ET AL., Magnetic resonance in the model high-temperature superconductor  $\text{HgBa}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ . *PHYSICAL REVIEW B*, 81 (2010) 6.
- [148] M. FUJITA ET AL., Progress in Neutron Scattering Studies of Spin Excitations in High-T-c Cuprates. *JOURNAL OF THE PHYSICAL SOCIETY OF JAPAN*, 81 (2012) 1.
- [149] A. M. MOUNCE ET AL., Absence of Static Loop-Current Magnetism at the Apical Oxygen Site in  $\text{HgBa}_2\text{CuO}_{4+\delta}$  from NMR. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 111 (2013) 18.
- [150] T. WU ET AL., Incipient charge order observed by NMR in the normal state of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ . *NATURE COMMUNICATIONS*, 6 (2015).
- [151] V. AJI and C. M. VARMA, Spin order accompanying loop-current order in cuprate superconductors. *PHYSICAL REVIEW B*, 75 (2007) 22.
- [152] H. ALLOUL ET AL., Defects in correlated metals and superconductors. *REVIEWS OF MODERN PHYSICS*, 81 (2009) 1, 45–108.
- [153] S. BLANCO-CANOSA ET AL., Resonant x-ray scattering study of charge-density wave correlations in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ . *PHYSICAL REVIEW B*, 90 (2014) 5.
- [154] J. COOPER ET AL., Pseudogap in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$  is not bounded by a line of phase transitions: Thermodynamic evidence. *Physical Review B*, 89 (2014) 20, 201104.
- [155] F. DUNSTETTER, V. PLAKHTI and J. SCHWEIZER, The magnetic structure of beta oxygen: a neutron polarisation study. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 72 (1988), 258–266.
- [156] S. BENHABIB ET AL., Collapse of the Normal-State Pseudogap at a Lifshitz Transition in the  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  Cuprate Superconductor. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 114 (2015) 14.

- [157] I. ZELJKOVIC ET AL., Imaging the Impact of Single Oxygen Atoms on Superconducting  $\text{Bi}_{2+y}\text{Sr}_{2-y}\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ . *SCIENCE*, 337 (2012) 6092, 320–323.
- [158] Y. SIDIS and P. BOURGES, Evidence for Intra-Unit-Cell magnetic order in the pseudo-gap state of high-T-c cuprates. In *10TH INTERNATIONAL CONFERENCE ON MATERIALS AND MECHANISMS OF SUPERCONDUCTIVITY (M2S-X)*, *Journal of Physics Conference Series*, vol. 449 (2013).
- [159] J. TALLON ET AL., Coexistence of the superconducting energy gap and pseudogap above and below the transition temperature of cuprate superconductors. *Physical Review B*, 87 (2013) 14, 140508.
- [160] J. JORGENSEN ET AL., STRUCTURAL-PROPERTIES OF OXYGEN-DEFICIENT  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\Delta}$ . *PHYSICAL REVIEW B*, 41 (1990) 4, 1863–1877.
- [161] J. ROSSATMIGNOD ET AL., ANTIFERROMAGNETIC ORDERING AND PHASE-DIAGRAM OF  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\chi}$ . *JOURNAL DE PHYSIQUE*, 49 (1988) C-8, 3, 2119–2124.
- [162] B. YANG ET AL., SEARCH FOR MAGNETIC SCATTERING IN  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ . *JOURNAL OF THE PHYSICAL SOCIETY OF JAPAN*, 56 (1987) 7, 2283–2286.
- [163] T. FRELTOFT ET AL., ANTIFERROMAGNETISM AND OXYGEN DEFICIENCY IN SINGLE-CRYSTAL  $\text{La}_2\text{CuO}_{4-\Delta}$ . *PHYSICAL REVIEW B*, 36 (1987) 1, 826–828.
- [164] K. YAMADA ET AL., THE EFFECT OF THE HEAT-TREATMENTS ON THE ANTIFERROMAGNETISM IN  $\text{La}_2\text{CuO}_{4-\Delta}$  SINGLE-CRYSTALS. *SOLID STATE COMMUNICATIONS*, 64 (1987) 5, 753–756.
- [165] S. BLANC ET AL., Loss of antinodal coherence with a single d-wave superconducting gap leads to two energy scales for underdoped cuprate superconductors. *PHYSICAL REVIEW B*, 82 (2010) 14.
- [166] K. KUDO ET AL., Two kinds of pseudogaps in  $\text{Bi}_{1.79}\text{Pb}_{0.37}\text{Sr}_{1.86}\text{CuO}_{6+\Delta}$  studied by the out-of-plane resistivity in magnetic fields. *JOURNAL OF THE PHYSICAL SOCIETY OF JAPAN*, 75 (2006) 12.
- [167] M. ENOKI ET AL., Spin-Stripe Density Varies Linearly With the Hole Content in Single-Layer  $\text{Bi}_{(2+x)}\text{Sr}_{(2-x)}\text{CuO}_{(6+\Delta)}$  Cuprate Superconductors. *Physical Review Letters*, 110 (2013) 1, 017004.

**Titre** : Ordre magnétique à  $q=0$  dans les cuprates supraconducteurs à haute température critique

**Mots-clés** : supraconductivité, cuprates, pseudo-gap, diffusion de neutrons

**Résumé** : Cette thèse a pour motivation l'étude de l'ordre magnétique à  $q=0$  dans les cuprates supraconducteurs à haute température critique. Cet ordre a déjà été reporté dans quatre familles de cuprates grâce à la diffusion de neutrons polarisés. Il est établi, sur une large gamme de dopage en trous, que cet ordre se développe à partir d'une température  $T_{mag}$  comparable à la température d'apparition de la phase de pseudo-gap  $T^*$ . Ces observations sont compatibles avec un modèle de boucles de courant, qui induisent des moments magnétiques orbitaux. Les symétries mises en jeu sont la brisure par renversement du temps et l'invariance par translation. D'un point de vue expérimental, il s'agit non seulement de vérifier systématiquement l'existence de cet ordre magnétique, mais également de saisir sa nature. Nous nous sommes particulièrement intéressés à l'étude de deux systèmes bicouches,  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  et  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+x}$ . Dans un premier temps, nous avons montré la persistance de l'ordre magnétique à  $q=0$  pour une valeur de  $T_{mag}$  relativement élevée, dans des échantillons proches du dopage optimal. Toutefois, l'intensité magnétique associée est fortement réduite. Nous avons montré que ceci était en fait dû à la présence de domaines de taille finie, l'ordre est à courte portée. Aussi, nous avons déterminé le facteur de structure le long de l'axe  $c$ , il présente une décroissance rapide unique. Dans le cadre des boucles de courant, une possible modélisation consisterait en une résultante de deux anapoles pointant le long de  $b^*$  au sein de la bicouche. D'autre part, nous avons confirmé l'existence d'un moment magnétique incliné sous  $T_{mag}$ . Nous avons cependant mis en évidence un caractère Ising le long de l'axe  $c$  à haute température. Enfin, nous avons prouvé que le signal associé à l'ordre magnétique à  $q=0$  continue d'augmenter dans l'état supraconducteur.

**Title** : Intra-unit-cell magnetic order in cuprate high temperature superconductors

**Keywords** : superconductivity, cuprates, pseudo-gap, neutron scattering

**Abstract** : This work is motivated by the study of the intra-unit-cell magnetic order in cuprate high temperature superconductors. It has been already reported in four cuprate families by using polarized neutron scattering, and it is well documented in a wide hole doping range. This order develops below  $T_{mag}$ , which matches the pseudo-gap temperature  $T^*$ . This magnetic phase could be induced by the staggered orbital magnetism within the unit cell as proposed in the loop current model. This intra-unit-cell magnetic order indicates that time reversal symmetry is broken, but translation invariance is preserved. Experimentally, the goal is not only to systematically verify the existence of this intra-unit-cell magnetic order, but also to seize its nature. We particularly focused on two bilayer systems,  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$  and  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+x}$ . First, we revealed the persistence of the intra-unit-cell magnetic order at relatively high  $T_{mag}$ , near optimal doping. Compared to samples with a lower hole doping level, the magnetic intensity is strongly reduced. We demonstrated that this is due to finite magnetic correlation lengths. Moreover, we determined the associated magnetic structure factor along  $c$ , which displays a unique sharp decreasing. It is consistent with a model in which the sum of two anapoles within the bilayer is pointing along  $b^*$ . Besides, below  $T_{mag}$ , we confirmed the existence of a tilt of the magnetic moment. However, we showed that at high temperature an Ising-like response along the  $c$ -axis is recovered. Finally, we proved that the magnetic signal associated to the intra-unit-cell magnetic order is still increasing in the superconducting state.