Etudes ultrasonores de l'état normal des cuprates supraconducteurs à haute température critique

Mehdi Frachet

▶ **To cite this version:**

Mehdi Frachet. Etudes ultrasonores de l'état normal des cuprates supraconducteurs à haute température critique. Supraconductivité [cond-mat.supr-con]. Université Grenoble Alpes, 2019. Français. NNT : 2019GREAY063 . tel-02619767

HAL Id: tel-02619767

https://theses.hal.science/tel-02619767

Submitted on 25 May 2020

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.

Communauté
UNIVERSITÉ Grenoble Alpes

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE LA COMMUNAUTÉ UNIVERSITÉ GRENOBLE ALPES

Spécialité : **Physique de la Matière Condensée et du Rayonnement**

Arrêté ministériel : 25 mai 2016

Présentée par

Mehdi FRACHET

Thèse dirigée par
Dr. Marc-Henri JULIEN, Directeur de recherche, Laboratoire National des Champs Magnétiques Intenses, CNRS, Grenoble
et co-encadrée par
Dr. David LE BOEUF, Chargé de recherche, Laboratoire National des Champs Magnétiques Intenses, CNRS, Grenoble

préparée au sein du **Laboratoire National des Champs Magnétiques Intenses, CNRS, Grenoble**
dans **l'École Doctorale de Physique**

Études ultrasonores de l'état normal des cuprates supraconducteurs à haute température critique

Thèse soutenue publiquement le **22 Novembre 2019,**
devant le jury composé de :

Prof. Dr. Thierry KLEIN
Université Grenoble-Alpes, Institut Néel, CNRS, France, Président
Prof. Dr. Jörg SCHMALIAN
Karlsruher Institut für Technologie, Allemagne, Rapporteur
Prof. Dr. Yann GALLAIS
Université Paris Diderot, LMPQ, CNRS, France, Rapporteur
Dr. Anna E. BÖHMER
Karlsruher Institut für Technologie, Allemagne, Examinateur
Prof. Dr. Johan CHANG
Universität Zürich, LQMR, Suisse, Examinateur

Table des matières

Introduction **1**

1 Survol du diagramme de phase des cuprates **5**

1.1 Les deux limites : isolant de Mott et liquide de Fermi 6

1.1.1 Le composé parent 6

1.1.2 Composé très surdopé 10

1.2 Le pseudogap et ses instabilités 13

1.2.1 Signatures expérimentales du pseudogap 13

1.2.2 Supraconductivité 20

1.2.3 Ondes de densités de charges 22

1.2.4 Verre antiferromagnétique 32

1.3 Quelques scénarios possibles pour la supraconductivité 39

1.3.1 Un pseudogap ordonné ? 39

1.3.2 Des paires préformées ? 42

2 Technique et environnement expérimental **43**

2.1 Technique Pulse-Echo ultrasons 43

2.1.1 Principe de la mesure 43

2.1.2 Spectromètre ultrasons 46

2.1.3 Préparation des échantillons 48

2.2 Champs magnétiques intenses 54

2.2.1 Champs pulsés du LNCMI-Toulouse 54

2.2.2 Champs statiques du LNCMI-Grenoble 58

2.3 Résumé du chapitre 60

3 Éléments théoriques sur la vitesse et l'attenuation du son dans les solides **61**

3.1 Bases de la théorie élastique des solides 61

3.1.1 Définitions et loi de Hooke généralisée 62

3.1.2 Tenseur des constantes élastiques pour quelques symétries . . . 65
3.1.3 Dérivation de l'équation d'onde . . . 66
3.1.4 Et l'atténuation alors ? . . . 67
3.2 Variation normale du réseau cristallin . . . 67
3.2.1 Atténuation . . . 68
3.2.2 Constantes élastiques . . . 70
3.3 Théorie de Landau pour les ultrasons . . . 71
3.3.1 Couplage bilinéaire . . . 72
3.3.2 Transition supraconductrice . . . 74
3.4 Influence des vortex . . . 77
3.5 Couplage magnéto-acoustique des métaux : effet Alpher-Rubin . . . 80
3.6 Ultrasons dans les verres de spins . . . 84

4 Caractérisations des échantillons de LSCO 89
4.1 Transition structurale et dopage . . . 89
4.1.1 Mode acoustique c_{44} . . . 90
4.1.2 Mode acoustique $(c_{11} - c_{12})/2$ . . . 91
4.1.3 Détermination du dopage . . . 91
4.2 Transition supraconductrice . . . 93
4.2.1 Modes longitudinaux c_{11} et c_{33} . . . 93
4.2.2 Mode transverse $(c_{11} - c_{12})/2$ . . . 93
4.2.3 Dépendance en dopage . . . 95
4.3 Récapitulatif des échantillons . . . 96

5 Observation du verre antiferromagnétique de LSCO par ultrasons 97
5.1 Aspects de la littérature ultrasons dans les cuprates au Lanthane . . . 98
5.1.1 Ramollissement du réseau cristallin dans l'état normal au dessus de T_c . . . 98
5.1.2 Durcissement anormal à basse température . . . 100
5.1.3 Questions ouvertes . . . 102
5.2 Propriétés ultrasonores du verre AF . . . 103
5.2.1 Situation en champ magnétique nul . . . 103
5.2.2 Évolution en champs magnétiques intenses . . . 108
5.3 Modèle de susceptibilité dynamique . . . 121
5.3.1 Paramètres du modèle . . . 121
5.3.2 Ajustement des données expérimentales . . . 123

5.3.3 Dépendance en champ magnétique des paramètres . . . 125
5.4 Discussion . . . 127
5.5 Questions en suspens . . . 131

6 Résurgence du magnétisme de LSCO jusqu'à p^* en champs magnétiques intenses 133
6.1 Émergence du verre AF sous champ magnétique à $p \simeq 0.148$ . . . 134
6.1.1 Mode longitudinal c_{11} dans l'échantillon LSCO14 . . . 134
6.1.2 Mode transverse $(c_{11} - c_{12})/2$ dans l'échantillon désordonné LSCO15 . . . 138
6.1.3 Ajustement par le modèle de susceptibilité dynamique . . . 140
6.2 Signatures du verre antiferromagnétique jusqu'à p^* . . . 143
6.2.1 LSCO $p = 0.168$ . . . 143
6.2.2 LSCO $p = 0.174$ . . . 146
6.2.3 LSCO $p = 0.185$ . . . 149
6.2.4 LSCO $p = 0.188$ . . . 151
6.2.5 LSCO $p = 0.215$ . . . 153
6.3 Résumé de la dépendance en dopage de $\Delta v/v$ . . . 155
6.3.1 Dépendance en température . . . 155
6.3.2 Dépendance en champ magnétique . . . 157
6.3.3 Paramètres du modèle de susceptibilité dynamique . . . 161
6.4 Discussion . . . 164
6.5 Questions en suspens . . . 168

7 Ordre de charge 3D de Y-123 sondé par vitesse du son 169
7.1 Caractéristiques des échantillons de Y-123 . . . 170
7.1.1 Structure cristalline et dopage . . . 170
7.1.2 Échantillons étudiés . . . 172
7.2 Ordre de charge 3D au travers du diagramme de phase . . . 172
7.2.1 Signatures de l'ODC 3D dans la vitesse du son . . . 173
7.2.2 Diagramme de phase d'ordres en compétitions . . . 176
7.2.3 Limites de l'ODC 3D . . . 177
7.2.4 Reconstruction de la surface de Fermi . . . 181
7.3 Susceptibilité en déformation de T_c . . . 182
7.3.1 Introduction et intérêt . . . 183
7.3.2 Modèle thermodynamique et ajustement . . . 184
7.3.3 Anisotropie de la transition ODC 3D . . . 188

7.3.4 Discussion . . . 189
7.4 Résumé . . . 192

Annexes **193**

A B_{c2} dans LSCO **193**
A.1 L'exemple de LSCO12 . . . 193
A.2 Dépendance en dopage . . . 195

B Extension des mesures en champs magnétiques intenses **197**
B.1 LSCO11, mode c_{11} . . . 197
B.2 LSCO12, mode $(c_{11} - c_{12})/2$ . . . 198
B.3 LSCO16 N1, mode c_{11} . . . 199
B.4 LSCO17 N3, mode $(c_{11} - c_{12})/2$ . . . 201

C Évolution en dopage de l'atténuation dans LSCO **203**
C.1 Dépendance en température . . . 203
C.2 Dépendance en champ magnétique . . . 205

D Saut de chaleur spécifique à T_c dans Y-123 **207**

Remerciements **208**

Bibliographie **212**

Introduction

La supraconductivité est un phénomène physique spectaculaire. Découverte en 1911 par H. K. Onnes et son étudiant G. Holst dans le mercure, elle se caractérise par deux signatures qui apparaissent en dessous d'une certaine température critique, T_c. La première est l'absence totale de résistivité électrique, la seconde l'expulsion parfaite du champ magnétique. Les premiers supraconducteurs découverts sont des métaux avec des températures critiques qui atteignent difficilement 30 K. Ils sont remarquablement bien décrits par la théorie microscopique BCS [1] (d'après Bardeen, Cooper et Schrieffer) de 1957, basée sur l'interaction électron-phonon. Malgré la nécessité des basses températures, celle de l'hélium liquide, ces premiers supraconducteurs, dits conventionnels, sont aujourd'hui au cœur d'applications technologiques. On peut citer, par exemple, les bobines supraconductrices et les SQUIDs (de l'anglais Superconducting QUantum Interference Device). Les premières sont notamment à la base des aimants pour l'Imagerie par Résonance Magnétique (IRM), les seconds sont des magnétomètres d'une extrême sensibilité.

D'autres applications sont attendues mais nécessitent des supraconducteurs dont la température critique est proche de la température ambiante. L'une d'elles, parmi les plus prometteuses, est le remplacement des câbles électriques résistifs traditionnels par des câbles supraconducteurs. Cela permettrait de s'affranchir des pertes en ligne, et entrainerait donc une économie d'électricité non négligeable à l'échelle planétaire. Pour ces applications, mais également grâce à l'excitante complexité scientifique qui l'accompagne, la recherche d'une supraconductivité à température ambiante est l'une des quêtes contemporaines de la physique de la matière condensée. Cette recherche, débutée en 1911, a amené son lot de surprises. De nouvelles familles de supraconducteurs ont été découvertes : les fermions lourds, les supraconducteurs organiques, les cuprates, puis plus récemment les pnictides. Tous ont en commun une supraconductivité non conventionnelle, pas simplement décrite par la théorie BCS. Les cuprates, des oxydes de cuivre découverts en 1986 par J. G. Bednorz et K. A. Müller [2], sont pour beaucoup les plus énigmatiques et, de plus, montrent des températures critiques très élevées, jusqu'à $T_c = 138$ K dans $HgBa_2Ca_2Cu_3O_x$ (Hg-1223). La phase supraconductrice est obtenue en dopant en porteurs de charges un isolant de Mott, à priori antinomique avec une quelconque supraconductivité. Malgré un nombre

immense de travaux depuis 1986, l'apparition de la supraconductivité dans ces composés reste un mystère. Même l'état normal (*i.e.* non supraconducteur) des cuprates, point de départ classique des théories microscopiques de la supraconductivité, est d'une incroyable complexité. Il renferme notamment un pseudogap, *i.e.* l'ouverture d'un gap partiel à l'énergie de Fermi, et une phase, justement nommée métal "étrange", dont les origines respectives restent à établir. Différentes instabilités électroniques existent à l'intérieur même du pseudogap, en premier lieu la supraconductivité mais également des ordres de charges et de spins. Une méthode qui s'est révélée très prometteuse ces dernières années pour mieux comprendre cet état normal est de le sonder à basse température, en supprimant la supraconductivité par l'application d'un champ magnétique intense. Cette thèse de doctorat s'inscrit pleinement dans ce contexte en proposant une étude expérimentale, en champs intenses, de l'état normal des cuprates en mesurant vitesse et atténuation ultrasonore.

Cette sonde expérimentale a une longue histoire dans l'étude des supraconducteurs. Dès la publication de la théorie BCS [1] l'atténuation ultrasonore a permis d'une part de servir de test à cette théorie, et d'autre part à calculer le gap supraconducteur et son anisotropie dans les composés conventionnels. L'étude par l'atténuation ultrasonore du paramètre d'ordre supraconducteur s'est avérée bien plus complexe dans le cas des cuprates. La qualité cristalline moindre, la plus faible densité électronique, et surtout la complexité du diagramme de phase rendent cette mesure extrêmement compliquée. Néanmoins la vitesse du son a permis de mettre en évidence que dans ces premiers cristaux, pour $T \ll T_c$, un nombre non négligeable d'électrons étaient non appariés (voir par exemple [3]) et s'est avérée être une sonde de choix pour l'étude du réseau de vortex. Plus récemment la mesure ultrasonore, et en particulier la quantité thermodynamique qu'est la vitesse du son, a permis de grandes avancées dans notre compréhension du diagramme de phase des cuprates. La mesure de vitesse du son a été la première à indiquer la nature thermodynamique de la transition de phase vers un ordre de charge tri-dimensionnel (3D) dans $YBa_2Cu_3O_{6+\delta}$ (Y-123) [4], considéré comme le plus propre des cuprates. La même année une anomalie dans la vitesse du son a également prouvé l'existence d'une véritable transition de phase en entrant dans le pseudogap dans ce même composé [5].

Cette thèse s'intéresse majoritairement à un autre cuprate, $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ (LSCO), l'un des premiers à avoir été découvert. C'est, aujourd'hui encore, l'un des plus étudiés à cause de sa structure cristalline simple, sa grande gamme de dopage en trous accessible, et finalement la (relative) facilité avec laquelle il peut être mesuré aussi bien optiquement que par transport électrique. Dans ce composé l'on va s'intéresser à une instabilité particulière du pseudogap, le *verre antiferromagnétique*. Cet ordre électronique se caractérise par des corrélations antiferromagnétiques quasi-statiques et la nature

vitreuse de la transition associée. Nous allons voir qu'une fois la supraconductivité suffisamment fragilisée par un champ magnétique intense cette instabilité survit jusqu'à un dopage qui peut parfaitement correspondre à p^*, le dopage critique du pseudogap. Cette observation interroge quant à la nature des signatures expérimentales récemment recensées à p^*, notamment la chute du nombre de Hall et le pic de la chaleur spécifique électronique, jusqu'alors attribuées au pseudogap lui-même. Le rôle de l'ordre de charge, une instabilité universelle aux cuprates, qui renforce le verre antiferromagnétique dans LSCO, mais qui au contraire le déstabilise dans Y-123, est certainement un élément clef.

Le cas de l'ordre de charge dans Y-123 est au cœur d'une seconde partie de cette thèse. Dans Y-123, largement considéré comme le plus ordonné des cuprates, deux ordres de charges coexistent dans le diagramme de phase. Le premier est dit 2D car bi-dimensionnel, le second 3D. Ce dernier n'apparaît qu'en champ magnétique intense et n'a été découvert que très récemment [6]. La vitesse du son, sensible à la transition thermodynamique associée, permet de montrer qu'un lien très étroit existe entre ces deux (distincts) ordres de charges. Elle indique également que la version 3D est peu probablement à l'origine de la reconstruction de la surface de Fermi observée dans ce composé. La dépendance en dopage de la susceptibilité de T_c à une déformation élastique, $dT_c/d\epsilon_i$, déduite des mesures de vitesse du son, interroge également sur la nature de la compétition entre ordres de charges et supraconductivité. Un scénario dans lequel la dépendance en déformation de T_c s'expliquerait uniquement avec les ordres de charges n'est pas facilement conciliable avec les mesures expérimentales.

Le manuscrit est organisé comme suit. Le chapitre 1 introduit le diagramme de phase des cuprates, notamment le verre antiferromagnétique et l'ordre de charge, et les questions qui y sont associées. Le chapitre 2 décrit la méthode de mesure "Pulse-Echo" de la vitesse et de l'atténuation du son dans les solides en champs magnétiques intenses, mise en œuvre durant cette thèse. Ensuite, le chapitre 3, propose une description théorique de la vitesse et de l'atténuation du son dans les solides, en particulier dans les supraconducteurs et en présence de champ magnétique. Les chapitres 4, 5 et 6 concernent tous l'étude expérimentale de LSCO. Dans le premier on résume les caractéristiques des échantillons étudiés dans les deux chapitres qui suivent. Le chapitre 5 propose tout d'abord une ré-interprétation d'anomalies ultrasonores observées dans la littérature. L'utilisation de champs magnétiques plus intenses que précédemment permet de lier ces anomalies ultrasonores à la phase verre antiferromagnétique de LSCO. Ensuite le chapitre 6 propose de suivre ces anomalies dans une large gamme du diagramme de phase de LSCO. À la fin de ce manuscrit le chapitre 7 propose finalement une étude de l'ordre de charge 3D de Y-123, mais également de la susceptibilité en déformation de T_c.

Chapitre 1

Survol du diagramme de phase des cuprates

Dans les oxydes de cuivre supraconducteurs, les cuprates, la supraconductivité émerge dans un état intermédiaire entre corrélations électroniques fortes et faibles. En effet, la concentration en porteurs de charges, trous ou électrons, permet d'atteindre une supraconductivité non conventionnelle, confinée entre isolant de Mott et liquide de Fermi. La supraconductivité elle-même apparaît étroitement avec un grand nombre de phases proches en énergies, ce qui rend la description physique de cet état intermédiaire d'une extrême complexité, aussi bien expérimentalement que théoriquement [7]. L'étude du diagramme de phases de ces composés est un domaine extrêmement vivant plus de 30 ans après leur découverte et plusieurs avancées majeures ont été réalisées dans les dernières années.

Ce chapitre porte essentiellement sur les cuprates dopés en trous étudiés dans cette thèse, qui montrent une supraconductivité plus forte que leurs homologues dopés en électrons. Pour un article de revue concernant les cuprates dopés en électrons voir, par exemple, la référence [8]. Tout d'abord sont ici décrites les deux limites (relativement) bien comprises : l'isolant de Mott antiferromagnétique du composé parent et le liquide de Fermi du composé fortement sur-dopé. Ensuite la discussion porte sur l'état intermédiaire : le pseudogap et ses instabilités, c'est à dire ondes de densités, verre antiferromagnétique et supraconductivité. Enfin on aborde quelques scénarios possibles concernant l'origine de la supraconductivité dans ces matériaux. Autant que possible on prendra exemple sur les composés étudiés dans cette thèse, la discussion reste cependant générale aux cuprates dopés en trous.

1.1 Les deux limites : isolant de Mott et liquide de Fermi

En variant le dopage en porteurs de charges la physique des cuprates change radicalement. Dans le composé parent, à demi-remplissage, on trouve un isolant de Mott antiferromagnétique. Lorsque on ajoute $\backsim 30\%$ de trous dans les plans CuO_2 on trouve un comportement métallique corrélé. Ces deux limites sont maintenant bien comprises et l'objet de cette section est de les décrire succinctement.

1.1.1 Le composé parent

Tous les cuprates ont un composé parent correspondant à un dopage en porteur de charge nul. Le plus emblématique, également celui au cœur de cette thèse, est La_2CuO_4 (LCO). La structure cristalline de LCO est représenté sur la figure 1.1(a). Il s'agit d'une structurale tétragonale qui contient un plan cuivre-oxygène CuO_2 par cellule unité, élément commun à tous les cuprates, dans lesquels apparaît une supraconductivité fortement bi-dimensionnelle (2D). La structure cristalline contient également des octaèdres CuO_6 avec une distance Cu-O maximale selon l'axe (001) du cristal, perpendiculaire aux plans CuO_2. Finalement il existe des réservoirs de charges, ici les plans LaO.

Pour comprendre ce dernier terme il suffit de regarder la valence de LCO. Afin d'atteindre la neutralité électronique on s'attend à retrouver les différents ions dans la configuration La^{3+}, Cu^{2+} et O^{2-}. En substituant La^{3+} par Sr^{2+} on ajoute des trous dans les plans CuO_2 et crée ainsi $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ (LSCO). Le dopage en trous par atome de cuivre se note p, dans LSCO $p = x$. On s'attend, au moins à $p = 0$ (*i.e.* dans LCO), à trouver une configuration $3d^9$ pour l'atome de cuivre. La configuration électronique de LCO est décrite sur la figure 1.1(b). Le champ cristallin cubique lève la dégénérescence des orbitales e_g et t_{2g}. L'élongation des octaèdres CuO_6 selon l'axe (001) lève également la dégénérescence des orbitales e_g et stabilise l'orbitale $3d_{3z^2-r^2}$ au détriment de $3d_{x^2-y^2}$ [1]. Cette dernière ne contient donc qu'un seul électron (ou de manière équivalente un trou) et le composé parent est dit à demi-remplissage. Ce raisonnement (trop) simple indique qu'une seule bande électronique est présente au niveau de Fermi et la théorie des bandes prévoit un comportement métallique pour LCO.

La figure 1.2 montre la conductivité optique mesurée dans LSCO, pour $0 \leq x \leq 0.34$. L'expérience est en claire contradiction avec la prédiction de la théorie des bandes. Dans LCO la conductivité optique indique la présence d'un gap dans le spectre des excitations électroniques de $\sim$2 eV, et donc un comportement isolant. Ce dernier n'est pas prédit par la théorie des bandes car il provient des fortes corrélations électroniques. LCO est un parfait exemple de la physique de Mott [12], bien décrit par

1. Cette élongation provient d'une distorsion de Jahn-Teller qui abaisse l'énergie totale du système électronique.

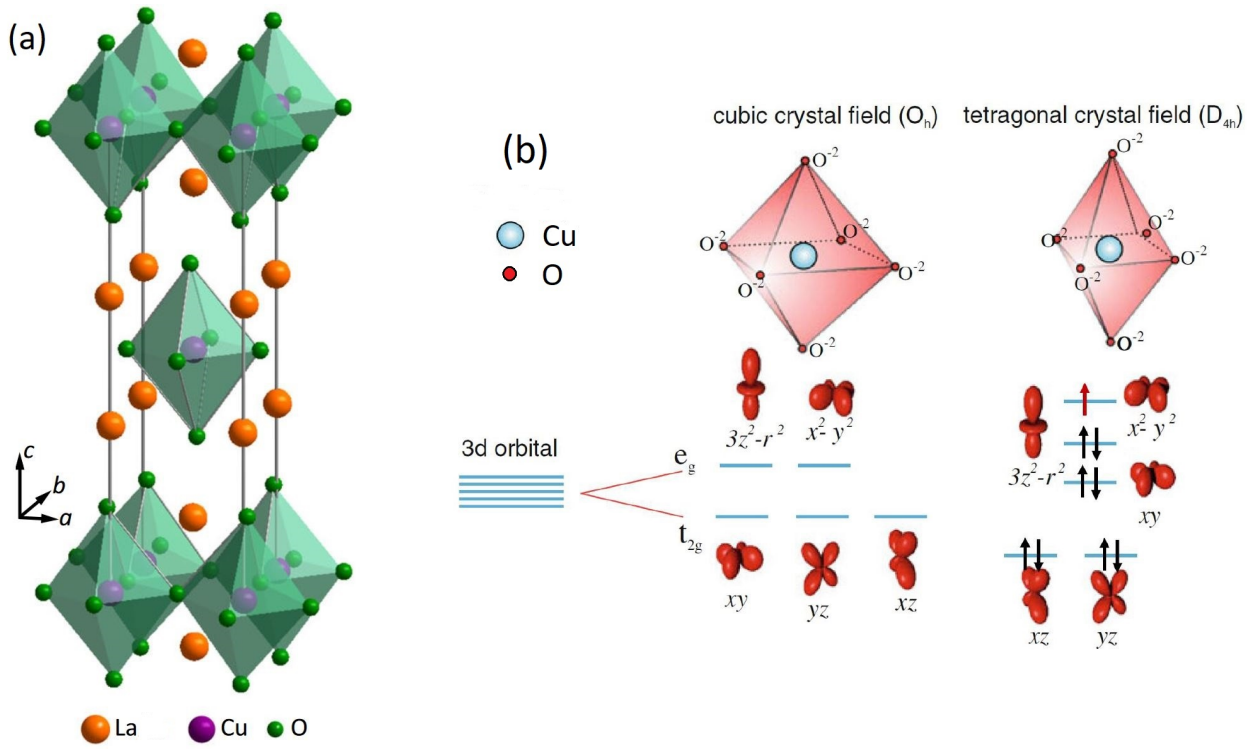

FIGURE 1.1 – **(a)** Structure cristalline tétragonale de La_2CuO_4 (LCO), reproduite d'après [9]. La cellule unité comprend un plan CuO_2 et un octaèdre CuO_6 espacés par un réservoir de charge LaO. **(b)** Spectre d'énergie dans les cas des champs cristallins cubique et tétragonal. L'élongation des octaèdres CuO_6 selon (001) lève la dégénérescence des orbitale $3d_{3z^2-r^2}$ et $3d_{x^2-y^2}$. La figure est adaptée d'après la thèse [10] et la référence mentionnée.

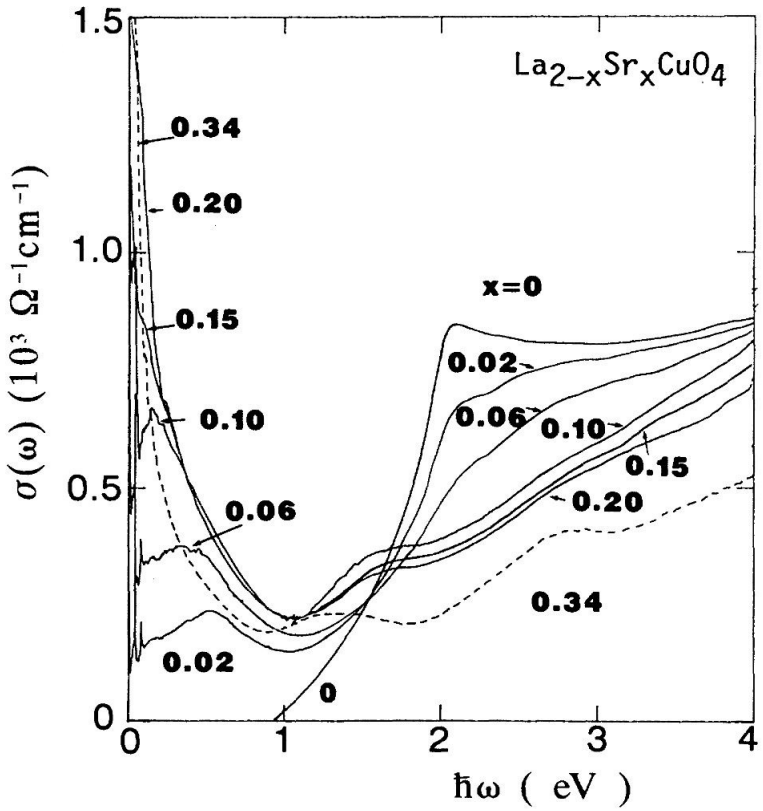

FIGURE 1.2 – Conductivité optique $\sigma(\omega)$ dans des monocristaux de $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ (LSCO) pour $0 \leq x \leq 0.34$, extrait de la référence [11]. Dans LCO un gap $\Delta \sim 2$ eV s'ouvre à l'énergie de Fermi à cause de la physique de Mott. Le dopage en trous comble ce gap, crée un minimum large dans la région de l'infrarouge moyen et un pic de Drude, synonyme de quasi-particules cohérentes, se développe.

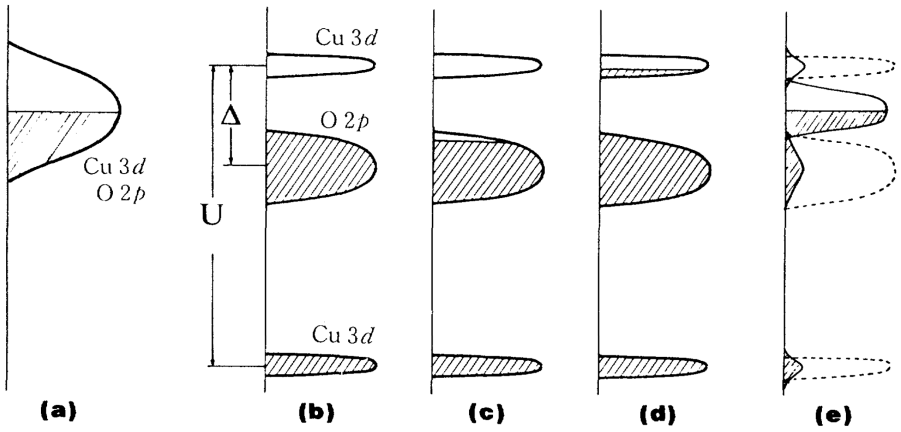

FIGURE 1.3 – Schéma des niveaux d'énergie dans les cuprates, reproduit d'après [11]. (a) Cas du métal prévu par la théorie des bandes. (b) Isolant de Mott avec un gap à transfert de charge $\Delta \neq U$ entre les bandes O $2p$ et Cu $3d$. (c, d) Cas respectifs du dopage en trous et électrons dans une image naïve. (e) Cas plus réaliste correspondant à l'étude de la référence [11] où le dopage en trous introduit des état à l'intérieur du gap Δ de caractère mixte entre O $2p$ et Cu $3d$.

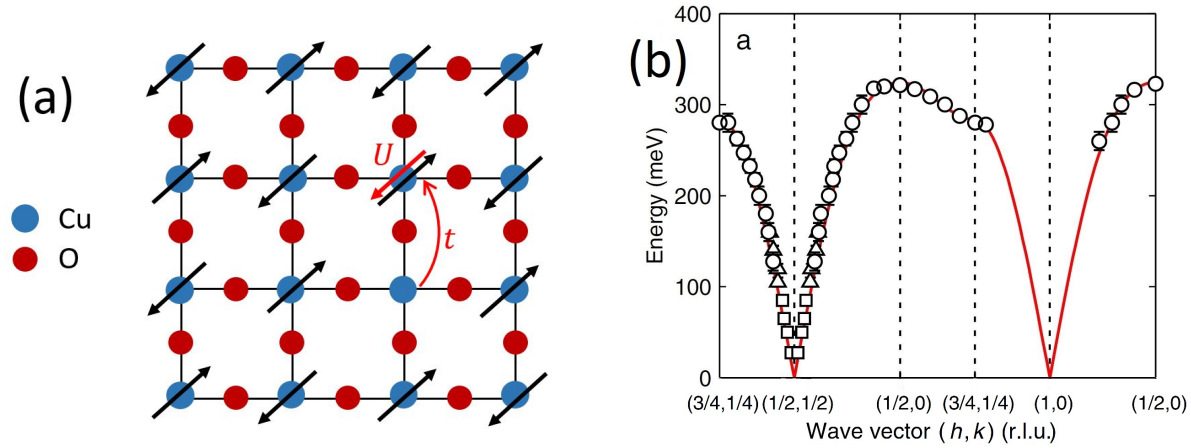

FIGURE 1.4 – **(a)** Réseau carré des plans CuO_2 à demi remplissage caractéristique du composé parent des cuprates. La forte interaction coulombienne sur site $U \gg t$ force les électrons à se localiser. Pour minimiser son énergie cinétique le système s'organise dans un motif antiferromagnétique. **(b)** Dispersion de l'onde de densité de spin mesurée par diffusion inélastique des neutrons, reproduite d'après la référence [13]. Les carrés, triangles et ronds noirs sont des données expérimentales pour des énergies incidentes de respectivement 160, 240 et 450 meV. La ligne rouge est la dispersion attendue dans un modèle de Heisenberg qui montre un bon accord avec les données expérimentales.

l'hamiltonien du Hubbard :

$$H_{hubbard} = U \sum_i n\hat{}_{\uparrow,i} n\hat{}_{\downarrow,i} - t \sum_{<ij>,\sigma} (\hat{c}^\dagger_{\sigma,i} \hat{c}_{\sigma,j} + \hat{c}^\dagger_{\sigma,j} \hat{c}_{\sigma,i}) \tag{1.1}$$

Ici U est l'énergie de répulsion coulombienne nécessaire à une double occupation d'un site du Cu^{2+}, t est le terme de saut entre deux sites voisins (énergie cinétique), $c^\dagger_{\sigma,i}$ et $c_{\sigma,i}$ respectivement les opérateurs création et annihilation d'électrons de spin σ au site i et finalement $n\hat{}_{\uparrow,i} = \hat{c}^\dagger_{\uparrow,i} \hat{c}_{\uparrow,i}$ le nombre d'occupation d'électrons de spins $\uparrow = +1/2$ au site i. C'est la forte répulsion coulombienne $U \gg t$ qui force la localisation des électrons en ouvrant un gap Δ dans le spectre des excitations électroniques. Ce dernier scinde en deux la bande $3d$ du cuivre en deux bandes de Hubbard, supérieure et inférieure. On parle d'isolant de Mott. Dans un isolant de Mott classique le gap Δ correspond à l'énergie Coulombienne sur site U. Dans LCO la situation est plus complexe puisque la bande O $2p$ de l'oxygène se trouve au milieu du gap. L'excitation de plus basse énergie correspond donc à un transfert électronique entre la bande O $2p$ et la bande de Hubbard supérieure, on parle d'isolant de Mott à transfert de charge et $\Delta \neq U$. La figure 1.3 correspond à une description schématique de ce spectre d'énergie. Cette dernière montre également que contrairement à un isolant de Mott classique l'existence d'un gap à transfert de charge crée une dissymétrie entre dopage en trous et dopage en électrons.

L'hamiltonien de Hubbard est illustré sur le réseau carré des plans CuO_2 sur la figure 1.4(a). Il y

est visible que les électrons $3d_{x^2-y^2}$ présentent un motif antiferromagnétique. En effet il est possible de minimiser l'énergie cinétique électronique t en autorisant les électrons à faire des sauts virtuels, via les orbitales O $2p_x$ et $2p_y$ entre deux atomes de Cu, vers les sites plus proches voisins. D'après le principe d'exclusion de Pauli de tels sauts ne sont autorisés que lorsque les électrons sont de spins opposés. Le gain d'énergie d'un tel processus est égal à $|J| = 4t^2/U$, l'interaction (ici antiferromagnétique) dite de super-échange entre deux spins $3d_{x^2-y^2}$. Dans LCO J peut être extrait, par exemple, des mesures de diffusion inélastique des neutrons. La figure 1.4(b) montre une telle mesure qui indique $|J| \sim 1700$ K, une valeur particulièrement importante. En résumé à demi-remplissage l'antiferromagnétisme et le caractère isolant sont tous deux dictés par les fortes corrélations électroniques.

Le dopage en trous détruit rapidement cet isolant de Mott antiferromagnétique. Dans LSCO l'ajout de seulement $\sim 2\%$ de trous est suffisant. Intuitivement ce n'est pas étonnant car l'ajout d'un trou sur le site du cuivre rompt le lien magnétique avec les quatre atomes de cuivre environnant. Ce raisonnement est néanmoins simpliste puisque les premiers trous ajoutés dans les plans CuO_2 ont un fort caractère O $2p$, comme le montre les résultats d'absorption des rayons-x [14].

1.1.2 Composé très surdopé

Lorsque suffisamment d'électrons ont été enlevés des plans CuO_2 (ou de manière équivalente suffisamment de trous ajoutés) la physique des cuprates est drastiquement différente. Cela est déjà visible sur la figure 1.2 de conductivité optique qui montre qu'avec le dopage se développe un pic de Drude, et donc un comportement métallique avec des quasi-particules cohérentes. Le dopage en trous éloigne le composé du demi remplissage, décroît les corrélations électroniques et restaure l'itinérance des électrons. En d'autres termes le rapport U/t est une fonction décroissante du dopage et il est attendu que la théorie des bandes redevienne exacte lorsque p est suffisamment important.

À suffisamment fort dopage la surface de Fermi est en effet en accord avec les calculs de structure de bandes. Cela a été tout d'abord réalisé par les mesures de Magnétorésistance Résolue en Angle (ADMR) de Hussey et collaborateurs [15] dans $Tl_2Ba_2CuO_{6+\delta}$ surdopé (Tl2201, $T_c \simeq 20$ K) qui indiquent une surface de Fermi quasi-2D centrée en (π, π), avec une densité de porteurs en accord avec l'effet Hall à basse température [16]. Ce résultat a plus tard été confirmé par Spectroscopie Photoélectrique Résolue en Angle (ARPES, de l'anglais Angle Resolved Photoemission Spectroscopy). La figure 1.5(a), reproduite d'après l'étude de Platé et collaborateurs [17], montre la surface de Fermi déduite de mesures d'ARPES toujours dans le régime sur-dopé de Tl2201 ($T_c \simeq 30$ K). C'est l'un des rares

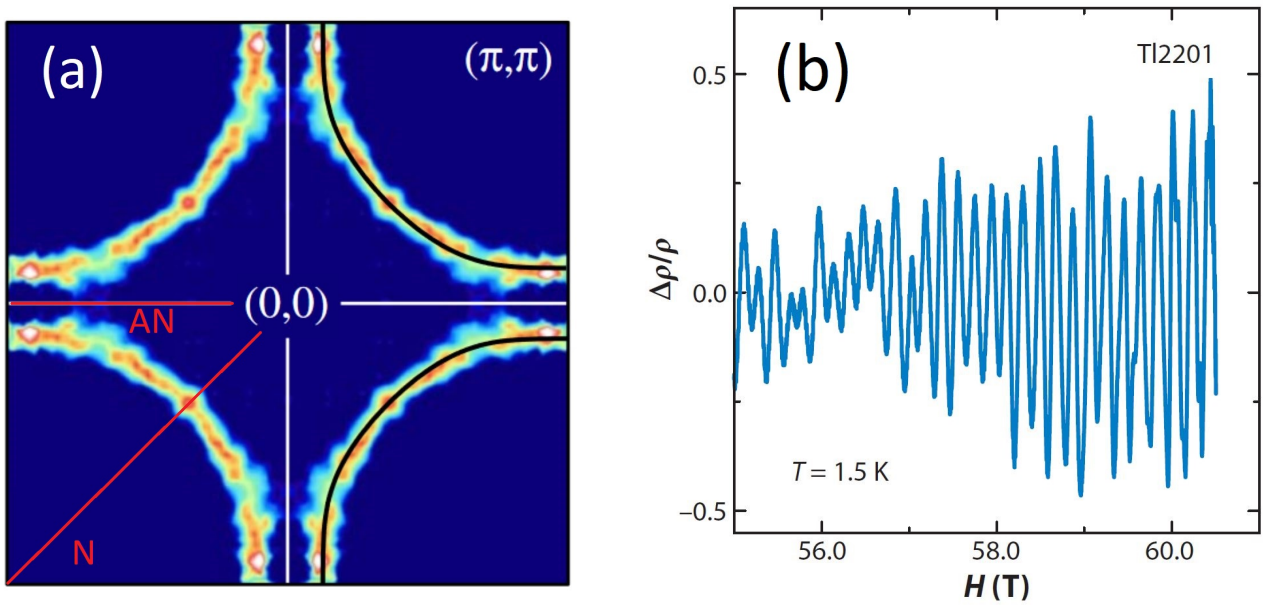

FIGURE 1.5 – **(a)** Surface de Fermi dans un échantillon sur-dopé de $Tl_2Ba_2CuO_{6+\delta}$ ($T_c \simeq 30$ K) reproduite d'après l'étude d'ARPES de la référence [17]. La surface de Fermi est un large cylindre centré en (π, π) qui contient $n = 1 + p$ trous. Les directions nodales (N) et antinodales (AN) sont indiquées par une ligne rouge. **(b)** Oscillations quantiques dans la magnétorésistance selon l'axe (001) d'un échantillon sur-dopé de Tl2201 ($T_c \simeq 10$ K, $p \simeq 0.3$) d'après l'étude [18]. Figure reproduite d'après [19]. Le nombre de quasi-particules déduit de la fréquence des oscillations quantiques est cohérent avec la surface de Fermi mesuré en ARPES.

cuprates qui peut être aisément sur-dopé pour atteindre ce régime, et qui a de plus l'avantage d'être compatible avec des mesures optiques. La surface de Fermi est un large cylindre de type trou centré autour de $k = (\pi, \pi)$ qui contient un nombre de porteurs de charges $n = 1 + p$ comme attendu [2] dans le cadre de la théorie des bandes. Cette valeur est également cohérente avec celle déduite de l'effet Shubnikov-de Haas, les oscillations quantiques dans la magnétorésistance. La fréquence des oscillations quantiques selon (001), dans un échantillon sur-dopé de Tl2201 ($T_c \simeq 10$ K, $p \simeq 0.3$), reproduites sur la figure 1.5(b), mène également par la relation de Onsager à $n = 1 + p$.

Dans ces cuprates fortement sur-dopés l'existence des quasi-particules de Landau caractéristiques d'un liquide de Fermi est également communément admise. La loi de Wiedemann-Franz qui relie conductivité thermique et électrique est vérifiée dans l'état normal de LSCO $p \simeq 0.3$ [20], Tl2201 $p \simeq 0.26$ [21] et Nd-LSCO dans une large gamme de dopage [22]. Un exemple pour Tl2201 est donné sur la figure 1.6. La vérification de la loi de Wiedemann-Franz indique strictement que les quasi-particules transportant énergie et charge sont des fermions de charge e. C'est également un critère usuel pour l'existence d'un liquide de Fermi, qui existe alors dans la région sur-dopée du diagramme

2. Cette surface de Fermi renferme donc le trou initial dans l'orbitale $3d_{x^2-y^2}$ et les p trous ajoutés par dopage.

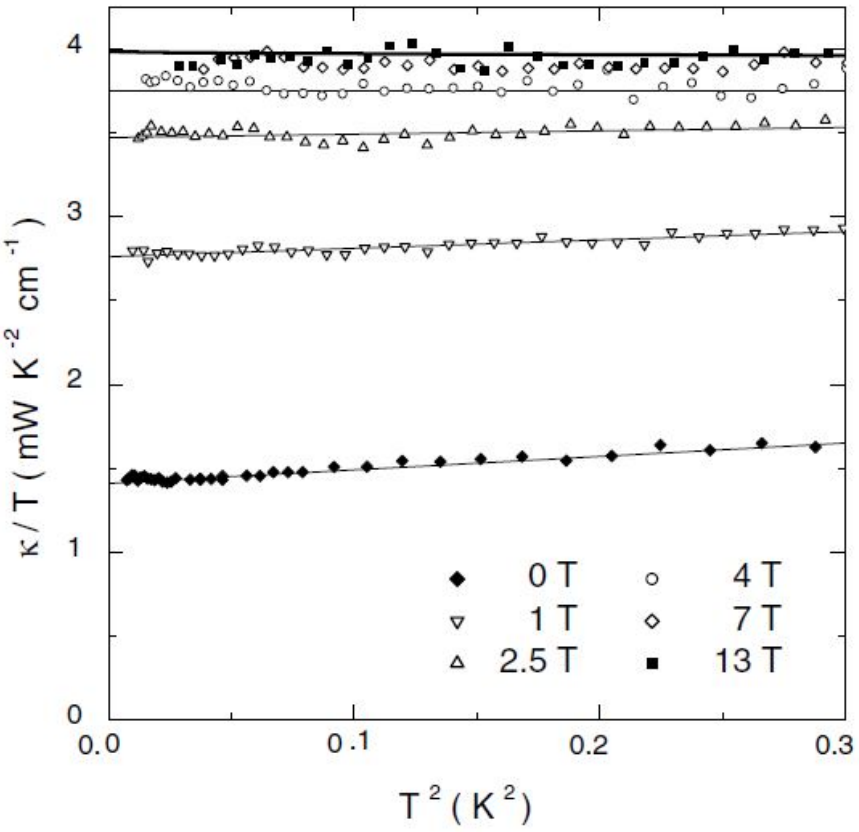

FIGURE 1.6 – Conductivité thermique κ dans Tl2201 $p \simeq 0.26$ avec un courant de chaleur dans le plan CuO_2 pour différents champs magnétiques appliqués perpendiculairement à ces plans, indiqués dans la légende. Les lignes fines sont des extrapolations linéaires afin de déterminer le terme résiduel à $T = 0$ K dû à la présence de nœuds dans le gap supraconducteur. La ligne épaisse est $L_0/\rho_{ab}(T, H = 13\text{ T})$ où $\rho_{ab}(T, H = 13\text{ T})$ et L_0 sont respectivement la résistivité dans le plan à $H = 13$ T et le nombre de Lorentz. Le bon accord avec κ/T indique que la loi de Wiedemann-Franz est vérifiée dans l'état normal. Reproduit d'après [21].

de phase des cuprates. La variation en T^2 de la résistivité électrique dans LSCO [20] et Tl2201 [21] est cohérente avec cette interprétation. Néanmoins même dans l'état sur-dopé les corrélations électroniques restent particulièrement importantes. Dans LSCO $x \simeq 0.3$ le rapport de Kadowaki Woods du coefficient A du terme T^2 de la résistivité électrique sur le carré de la chaleur spécifique électronique γ, A/γ^2, est particulièrement important, même parmi les systèmes fortement corrélés [20]. Dans Tl2201 la masse effective déduite des oscillations quantiques ($m^* = 5.2m_e$) [23] est environ quatre fois supérieure à celle attendue par les calculs de structure de bande ($m^* = 1.2m_e$) [24] et la résistivité à basse température contient un terme linéaire en T [21]. Tout cela semble indiquer que lorsqu'elle émerge du côté sur-dopé la supraconductivité naît d'un métal "conventionnel" mais avec, déjà, de très fortes corrélations électroniques.

1.2 Le pseudogap et ses instabilités

Dans la section précédente nous avons décrit ce qui est assez bien compris dans les cuprates. Il est maintenant temps de traiter ce qui l'est moins : que se passe-t-il dans l'état intermédiaire entre isolant de Mott et liquide de Fermi ?

Un diagramme de phase schématique, générique aux cuprates dopés en trous, est proposé sur la figure 1.7. Nous allons débuter par présenter, disons, la "phase" [3] la plus proéminente de ce dernier : le pseudogap. Il sera question d'en décrire les signatures physiques et de proposer, au fil de l'eau, quelques scénarios sur son origine. Ensuite nous allons détailler le zoo de phases qui naissent à l'intérieur du pseudogap, dont au tout premier lieu la phase supraconductrice. On abordera aussi bien-sûr les différentes ondes de densités de charge et le magnétisme de ces composés.

1.2.1 Signatures expérimentales du pseudogap

Directement après la découverte des cuprates il a été question d'observer le gap supraconducteur. Cette mesure s'est révélée complexe à cause de la présence de nœuds dans le gap supraconducteur mais surtout du fait de la présence d'un pseudogap à bien plus haute température [25]. Le pseudogap se définit comme l'ouverture d'un gap *partiel* à l'énergie de Fermi, *i.e.* sélectif dans l'espace réciproque. C'est l'un des phénomènes les plus excitant de la physique de la matière condensée actuelle.

RMN et Susceptibilité magnétique

Historiquement les premières évidences expérimentales d'un pseudogap dans les cuprates proviennent des mesures de Résonance Magnétique Nucléaire (RMN). Seulement deux ans après la découverte des cuprates, T. Imai et collaborateurs observent une dépendance en température anormale du taux de relaxation spin-réseau T_1 dans $YBa_2Cu_3O_{6+\delta}$ (Y-123) [26]. Peu après une étude plus large de "Knight Shift", ΔK, toujours dans Y-123, du groupe de H. Alloul, montre que cette quantité subit également une décroissance anormale qui débute pour $T \gg T_c$ [27]. Cette dernière est reproduite sur la figure 1.8(a). Les variations anormales de $1/T_1$ et ΔK sont maintenant connues pour être une propriété générique des cuprates dans la phase pseudogap et peuvent être respectivement reliées à une décroissance de la partie imaginaire de la susceptibilité dynamique de spin, $\chi''(q,\omega)$, et de la susceptibilité magnétique statique $\chi_0(q=0,\omega=0)$. Cette dernière à part ailleurs été directement observée très tôt dans LSCO par D. C. Johnston [28], et est reproduite sur la figure 1.8(b).

3. Parler de phase concernant le pseudogap est controversé. Le terme de "crossover" est pour certains plus adapté.

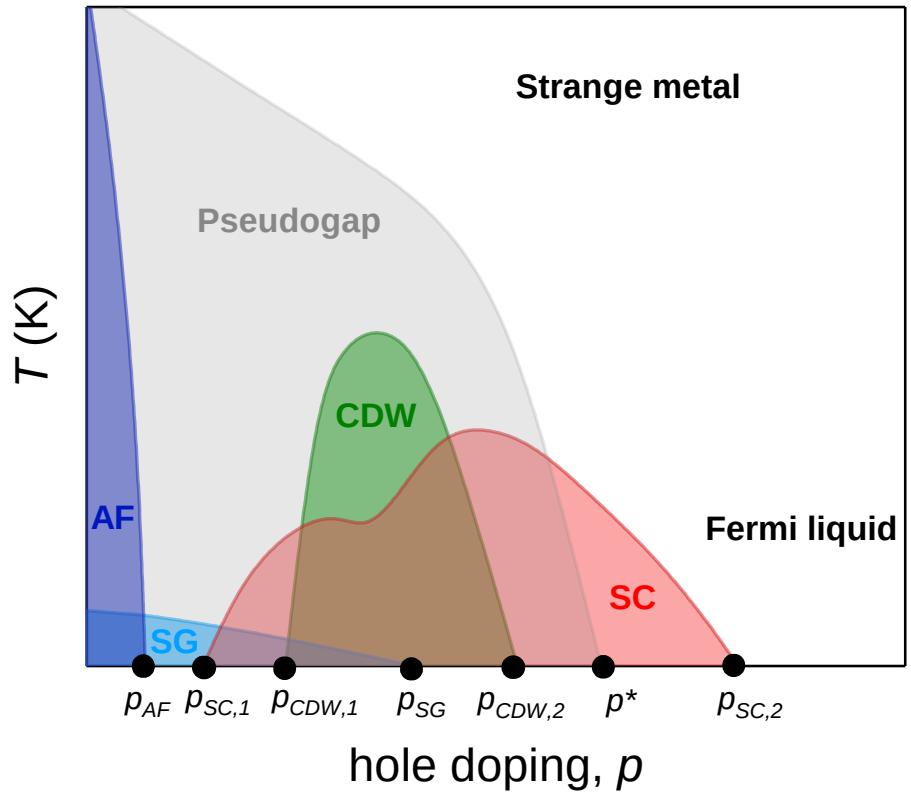

FIGURE 1.7 – Diagramme de phase schématique des cuprates dopés en trous. Les acronymes sont ceux utilisés dans la littérature (en anglais) : AF = isolant de Mott antiferromagnétique, SG = verre de spin, CDW = onde de densité de charge, SC = supraconductivité. Les points critiques des différentes phases sont représentés et nommés sur la figure. Dans certains composés, notamment LSCO, le verre de spin (plus tard renommé verre antiferromagnétique) se renforce lorsqu'il coexiste avec l'ordre de charge (voir figure 1.21). Dans Y-123, et sur ce diagramme de phase, ce n'est pas le cas.

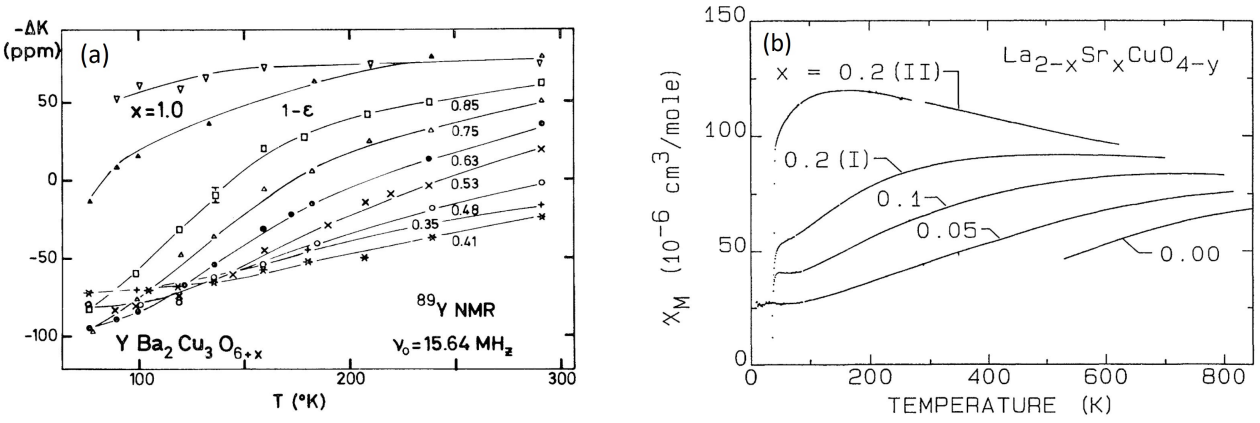

FIGURE 1.8 – (a) Dépendance en température du Knight Shift (ΔK) de RMN dans $YBa_2Cu_3O_{6+\delta}$, $0.35 < \delta < 1$, reproduit d'après [27]. En descendant en température ΔK montre une décroissance qui n'est pas attendue dans un métal conventionnel. Le dopage en trous diminue l'amplitude de la décroissance qui démarre à plus basse température. **(b)** Susceptibilité magnétique statique $\chi_0(q = 0, \omega = 0)$ dans des poudres de LSCO d'après [28]. À tous les dopages ici présent la susceptibilité diminue bien au dessus de la transition supraconductrice.

L'observation de ces différentes signatures expérimentales peut trouver diverses explications plausibles. Premièrement un tel comportement peut s'expliquer par la proximité d'une transition antiferromagnétique, comme souligné par D. C. Johnston [28]. Les données expérimentales peuvent en effet correspondre à un ordre antiferromagnétique 2D de type Heisenberg au dessus de la température de Néel [28, 29]. Ensuite la décroissance de ces différentes quantités peut tout simplement provenir d'une diminution de la susceptibilité paramagnétique de Pauli, χ^{Pauli}, via une diminution de la densité d'état [30]. Cela s'explique facilement par l'ouverture d'un gap à l'énergie de Fermi, due à une instabilité quelconque, et est alors *compatible* avec un pseudogap ordonné. Enfin comme dans le cas d'une transition supraconductrice ces signatures expérimentales sont naturellement induites par l'ouverture d'un gap de spin lors de la formation de singlets.

Spectroscopie Photoélectrique Résolue en Angle (ARPES)

La Spectroscopie Photoélectrique Résolue en Angle (ARPES) apporte des informations complémentaires sur le pseudogap. Cette technique qui repose sur l'effet photoélectrique a une résolution à la fois en $\vec{k}$ (*i.e.* une résolution en position dans l'espace réciproque) et en énergie. Avant de rentrer dans les détails il est ici utile de donner deux termes de vocabulaire spécifique. En référence à la géométrie du gap supraconducteur de type d, la direction depuis $(-\pi, 0)$ jusqu'à $(\pi, 0)$, et la direction correspondante à 90 degrés de la première zone de Brillouin s'appellent directions anti-nodales (là où le gap est le plus important). À 45 degrés des directions anti-nodales se trouvent les directions nodales où le gap supraconducteur d s'annule de manière discrète. Ces régions sont décrites sur la figure 1.5(a). L'ARPES nous apprend que le pseudogap et le gap supraconducteur diffèrent essentiellement par le fait que le pseudogap s'annule selon des segments entiers de la surface de Fermi, et non uniquement en des nœuds discrets.

Une étude dans Nd-LSCO est reproduite sur la figure 1.9. La signature du pseudogap en ARPES est l'ouverture d'un gap aux régions anti-nodales (*i.e.* autour de $(\pi, 0)$ et les points équivalents de la 1ère zone de Brillouin) de la surface de Fermi pour $T \leq T^*$. La surface de Fermi résultante comprend seulement des "arcs" déconnectés entre eux dans les régions nodales. Un exemple est donné dans LSCO sur la figure 1.10. Une telle surface de Fermi est particulièrement exotique puisqu'on s'attend classiquement à un contour fermé, et non ouvert comme le suggère les mesures d'ARPES. Une possibilité est que l'arc soit seulement une partie de la surface de Fermi, la partie restante étant d'un poids spectral trop faible pour être résolue en ARPES. Néanmoins pour $p \lesssim 0.10$ le poids spectral des régions nodales de LSCO correspond bien à la densité de porteurs de charge mobile $n \simeq p$ [31] déterminée dans les

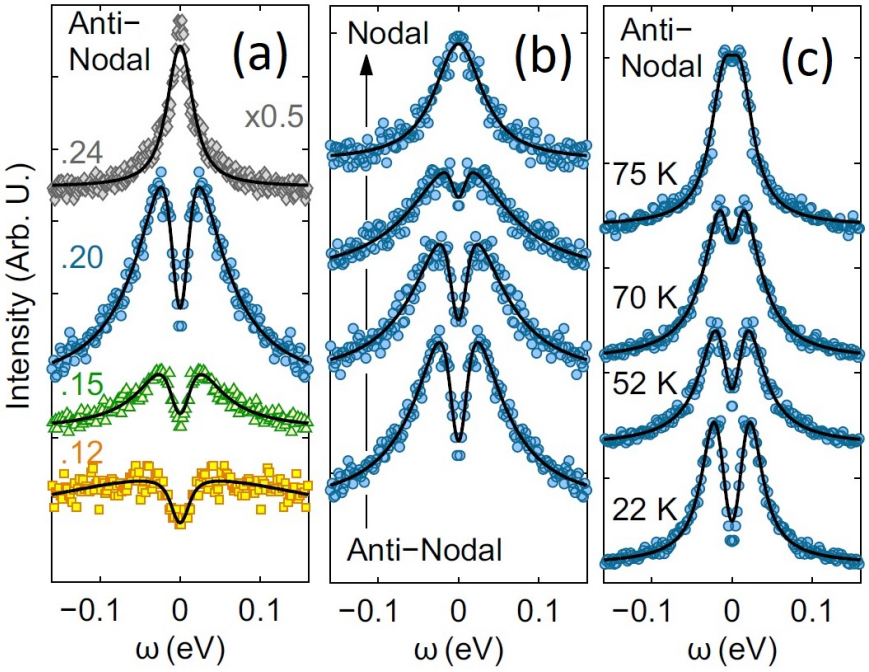

Figure 1.9 – Mesures d'ARPES dans Nd-LSCO, adaptée d'après [35]. **(a)** Dépendance en dopage des spectres mesurés dans la partie anti-nodale de la surface de Fermi $(\pi, 0)$, tous les spectres sont pris juste au dessus de $T_c(p)$. **(b)** Variation du spectre dans Nd-LSCO $p = 0.20$ depuis la région anti-nodale jusqu'à la région nodale (π, π), toujours juste au dessus de T_c. **(c)** Dépendance en température du spectre dans la région anti-nodale dans Nd-LSCO $p = 0.20$.

mesures d'effet Hall [32].

Dans les régions "pseudogappés" de la surface de Fermi (*i.e.* les anti-noeuds) le pseudogap s'ouvre à T^* mais un pic de cohérence n'apparaît que pour $T < T_c$ [33]. Dans la même veine que l'interprétation des mesures de susceptibilité magnétique en terme de formation de singlets de spins, une lecture naïve des mesures d'ARPES peut être que les paires de Cooper se forment à T^* mais qu'une cohérence globale de phase (et donc la supraconductivité) n'apparaît que pour $T < T_c$. On parle de paires "pré-formées". Pour $T < T_c$ il est en effet difficile de distinguer par ARPES le pseudogap du gap supraconducteur. Les deux ont la même symétrie et une amplitude comparable. Néanmoins une analyse fine des données a permis de séparer les deux [34]. Une distinction claire, dans l'espace réel, est également visible dans les mesures de microscopie à effet tunnel [30]. Ces observations vont à l'encontre de l'interprétation en terme de paires pré-formées.

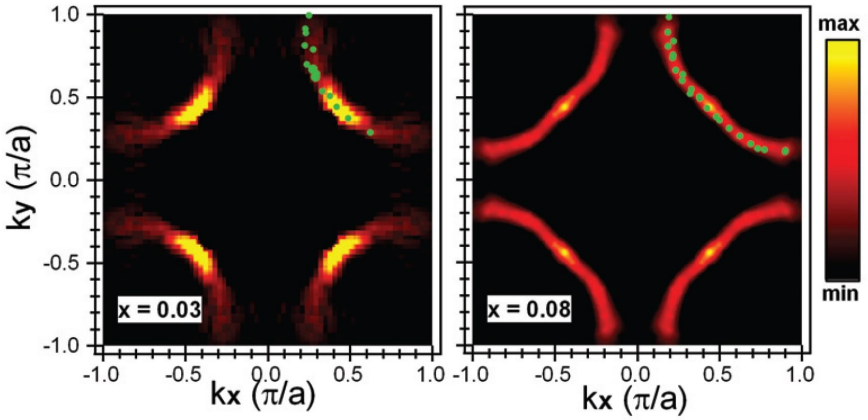

Figure 1.10 – Arcs de Fermi observés en ARPES dans LSCO, adapté d'après la référence [36]. Le dopage (x) est indiqué dans le coin inférieur gauche de chaque panneau. La légende renseigne l'intensité du signal ARPES à $k = k_F$. Pour l'échantillon $x = 0.03$ la mesure est effectuée à $T = 20$ K, pour $x = 0.08$ à $T = 12$ K.

Transport électrique et thermique

Les mesures de transport, aussi bien électrique que thermique, montrent des anomalies à T^* qui sont usuellement utilisées pour définir le régime d'existence du pseudogap dans les cuprates. Commençons par la résistivité électrique. Son comportement est singulier dans les cuprates. Dans la partie métallique du diagramme de phase (*i.e.* en dehors de la phase isolant de Mott, voir figure 1.7) la résistivité des cuprates montre, à suffisamment haute température, un comportement linéaire en température. Une telle variation peut être observée, sur une échelle de température donnée, dans des métaux conventionnels [25]. Ce qui est frappant dans les cuprates est que cette résistivité linéaire en température semble sans fin. Dans un métal conventionnel la résistivité sature à haute température lorsque le libre parcours moyen des électrons, l, devient de l'ordre de la distance inter-atomique, a_0. Au delà de la limite $l \sim a_0$ parler de transport cohérent des quasi-particules n'a plus de sens, et on peut donc définir une conductivité minimale pour un comportement métallique [37]. Cela a d'abord été mis en avant par Ioffe, Regel et Mott, on parle donc de limite MIR. Il apparaît que dans les cuprates cette limite est violée, on parle de métal "étrange" (voir figure 1.7). Ce comportement est facilement observable dans LSCO qui peut être mesuré à suffisamment haute température [29, 38], les mesures expérimentales sont reproduites sur la figure 1.11. En descendant en température la résistivité dévie de cette dépendance linéaire à une température qui, dans des barres d'erreurs conséquentes, semble correspondre à T^* déterminée par l'ouverture d'un gap anti-nodal par ARPES. Par rapport à cette dépendance linéaire la résistivité dans le plan peut augmenter (comme c'est le cas dans LSCO par exemple, voir [39]) ou bien diminuer (un exemple est Y-123, voir [40]). Ces différences viennent du fait que deux des propriétés du pseudogap contribuent, avec des signes opposés, dans la résistivité électrique pour $T < T^*$: une perte

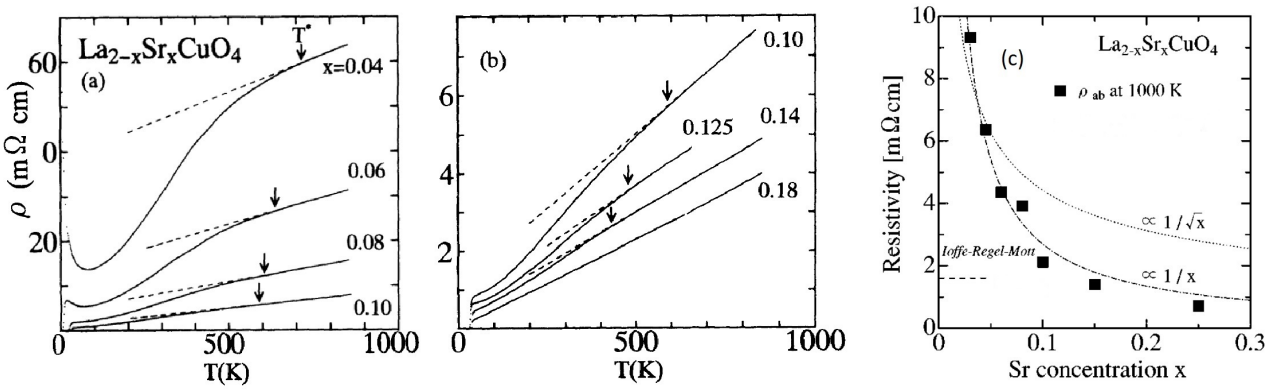

FIGURE 1.11 – **(a, b)** Mesures de résistivité sur polycristaux de LSCO pour $0.04 < x < 0.18$ comme indiqué, reproduit d'après [29]. À haute température la résistivité est linéaire et ne sature pas. Elle dévie de cette dépendance pour $T = T^*$. **(c)** Comparaison entre la résistivité dans le plan $\rho_{ab}(T = 1000K)$ de LSCO et la limite MRI $l \sim a_0$. Pour $x < 0.1$ elle est clairement violée. Figure adaptée d'après Takenaka et collaborateurs [38].

de densité de porteurs et une diminution de la diffusion inélastique. Dans la limite $T \longrightarrow 0$ où seul la perte de densité de porteur est signifiante c'est bien toujours une augmentation de $\rho(T)$ qui est observé.

L'effet Hall a récemment permit de mettre en évidence la perte de porteurs qui se produit à la transition vers le pseudogap. Depuis longtemps il n'y a aucun doute que la concentration en porteurs de charge n varie de $n = p$ à bas dopage (proche de l'isolant de Mott et sa zone de Brillouin antiferromagnétique) à $n = 1 + p$ à haut dopage (dans l'état liquide de Fermi). Ce qui a été montré récemment par le groupe de L. Taillefer est que dans la limite $T \longrightarrow 0$ et en l'absence de supraconductivité (due à l'application de forts champs magnétiques) cette perte de porteurs se produit précisément à p^*, tout d'abord dans Y-123 [41], puis dans Nd-LSCO [42]. La variation du nombre de Hall est reproduite sur la figure 1.12(a). Ce résultat donne du crédit à la vision du pseudogap comme une véritable phase, c'est à dire ordonné. Un ordre antiferromagnétique réduit naturellement le nombre de porteurs à $n = p$. Un candidat qui se détache actuellement pour expliquer les données d'effet Hall mais également la forme de la surface de Fermi est un ordre antiferromagnétique spiral [43]. Une question importante que doit soulever ces résultats est la suivante : ce changement du nombre de porteurs est-il une propriété de l'état fondamental à fort champ magnétique sondé expérimentalement ou bien une propriété de l'état fondamental à $H = 0$ T qui est seulement masquée par la supraconductivité ? Les mesures ultrasonores dans LSCO présentées plus tard permettent de douter de cette dernière possibilité.

Une nouvelle signature du pseudogap est également apparue récemment dans les mesures de transport thermique et plus spécifiquement d'effet Nernst. Ce coefficient de transport thermique correspond

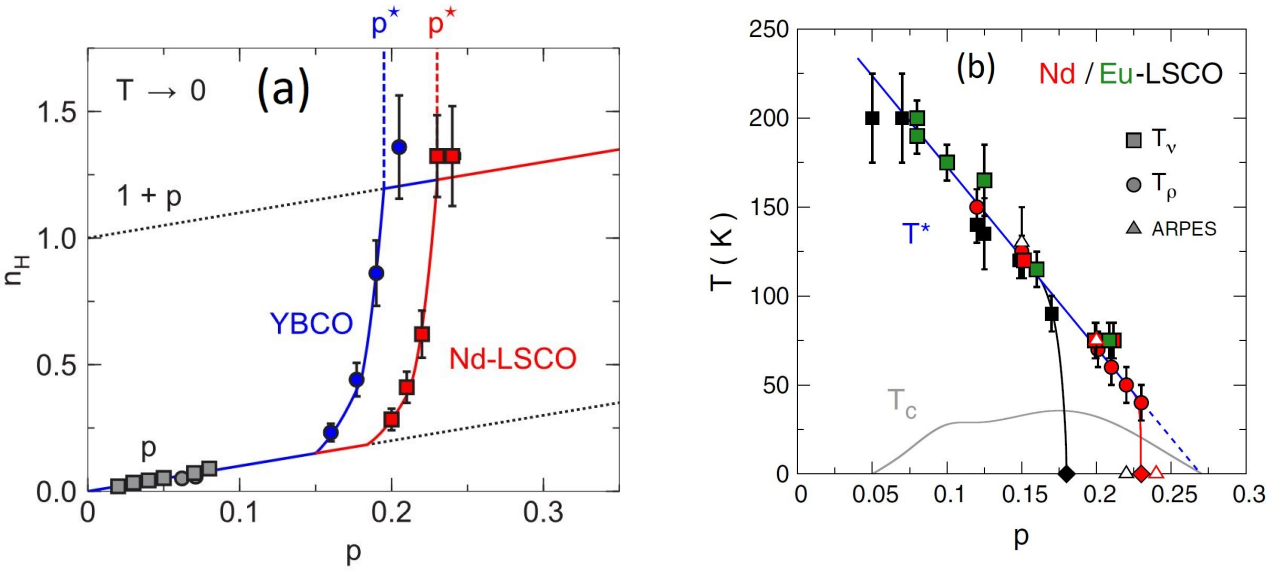

FIGURE 1.12 – **(a)** Nombre de Hall n_H en fonction du dopage en trous p dans Y-123 (ronds bleus) et Nd-LSCO (carrés rouges). n_H est déterminé dans l'état normal et la limite $T \to 0$ en appliquant des champs intenses. Les lignes pointillées noires correspondent à $n_H = p$ et $n_H = 1+p$ comme indiqué sur la figure. Les lignes pointillées verticales indiquent p^* pour chaque composé. Les carrés et ronds gris correspondent respectivement à LSCO et Y-123. La figure est extraite de la référence [42]. **(b)** Comparaison entre les différentes signatures attribuées au pseudogap dans la résistivité électrique (ronds), l'effet Nernst (carrés) et l'ARPES (triangles). Les différentes couleurs réfèrent à Nd-LSCO, Eu-LSCO et LSCO comme indiqué sur la figure. La ligne grise est une guide à l'oeil qui indique la T_c supraconductrice dans LSCO. Il est notable que les différents composés montrent des valeurs de T^* similaires, indifféremment des différentes structures cristallines et niveaux de désordre, mais des valeurs de p^* distinctes. Figure reproduite d'après [44].

à l'apparition d'un voltage transverse en présence d'un courant de chaleur et d'un champ magnétique appliqué perpendiculaire. L'apparition d'un important effet Nernst dans les cuprates LSCO et Bi-2201 pour $T \gg T_c$ a tout d'abord été interprétée par le groupe de N. P. Ong comme étant dû à la présence d'excitations de type vortex [45, 46], et donc d'importantes fluctuations supraconductrices. Néanmoins de nouvelles mesures par le groupe de L. Taillefer ont menées à une interprétation différente en terme de deux composantes : une première venant des quasi-particules sensibles au pseudogap, et une seconde venant des fluctuations supraconductrices. Cette distinction en deux composantes est particulièrement évidente dans Y-123 où les deux ont des signes différents, contrairement aux composés LSCO et Bi-2201 des premières mesures [44]. Le signal provenant des quasi-particules dévie d'un comportement essentiellement neutre à haute température en dessous de T^*. Dans Nd-LSCO où une comparaison entre résistivité électrique, effet Nernst et ARPES est possible les différentes signatures associées au pseudogap semblent correspondre [4] [44]. La comparaison est reproduite sur la figure 1.12(b).

En résumé, les signatures expérimentales attribuées au pseudogap sont :

1. Ouverture d'un gap aux anti-noeuds $(\pm\pi, 0)$ et $(0, \pm\pi)$ de la surface de Fermi.
2. Perte de porteurs de charge depuis $n = 1 + p$ à $n = p$.
3. Diminution de la diffusion inélastique des électrons.
4. Diminution des susceptibilités magnétiques statiques et dynamiques.

1.2.2 Supraconductivité

Dans les cuprates la supraconductivité émerge à un dopage universel $p_{SC,1} \sim 0.05$ (voir figure 1.7), *i.e.* à l'intérieur du pseudogap. C'est la principale motivation, mais loin d'être l'unique, pour l'étude de ces composés. La température critique supraconductrice a une dépendance en dopage bien représentée par un dôme, avec une T_c maximale proche d'un dopage dit "optimal" $p_{opt} \sim 0.16$ [5]. Cette dépendance parabolique est relativement bien décrite par la formule empirique dite de J. L. Tallon [47] :

$$T_c(p)/T_{c,max} = 1 - 82.6(p - 0.16)^2 \tag{1.2}$$

La température critique maximale à pression ambiante, $T_{c,max}$, varie fortement dans les différentes familles de cuprates, de la dizaine de Kelvins (par exemple $T_{c,max} = 38$ K dans LSCO) jusqu'à 138 K dans $HgBa_2Ca_2Cu_3O_x$ (Hg-1223). Dans une même famille de cuprate $T_{c,max}$ a une dépendance non monotonique avec le nombre de plans CuO_2 par cellule unité, n, et montre un maximum pour $n = 3$

4. Dans des barres d'erreurs conséquentes.
5. Pour $p < p_{opt}$ on parle de composés sous-dopés, au contraire pour $p > p_{opt}$ de composés sur-dopés.

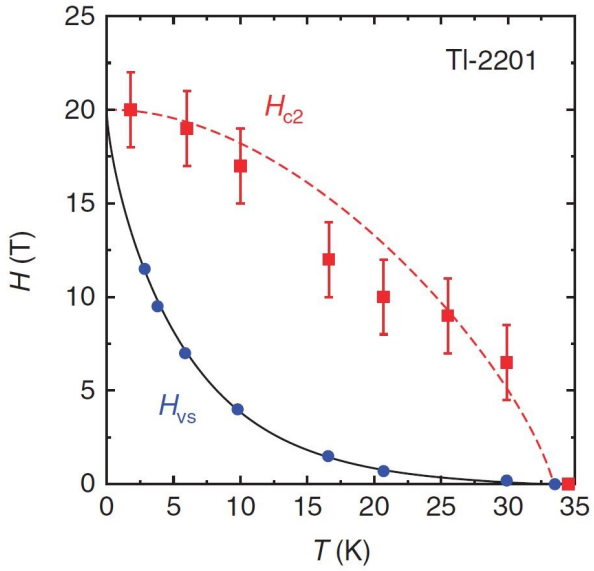

FIGURE 1.13 – Diagramme de phase $H(T)$ de Tl2201 d'après les mesures de conductivité thermique de la référence [49]. H_{c2} marque l'apparition d'une saturation dans la conductivité thermique $\kappa(H)$. H_{vs} est le champ d'irréversibilité associé à la fusion du réseau de vortex, déterminé par l'apparition d'une résistance non nulle.

[48]. Des déviations de la formule 1.2 sont évidentes proches de $p \simeq 0.12$ où une onde de densité de charge est en compétition avec la supraconductivité. C'est l'objet de la section 1.2.3. Dans la partie sur-dopé la supraconductivité disparaît à $p_{SC,2} \sim 0.25 - 0.30$ en l'absence du pseudogap, comme schématisé sur la figure 1.7 [6].

Les cuprates sont des supraconducteurs de type II. En effet le rapport de Ginzburg-Landau $\kappa = \lambda/\xi$ de la longueur de pénétration de London λ sur la longueur de cohérence des paires de Cooper ξ est supérieur à $1/\sqrt{2}$. Cela signifie que les cuprates laissent pénétrer, pour $H \geq H_{c1}$, des vortex de champ magnétique en leur sein. En augmentant le champ magnétique appliqué, H, de plus en plus de vortex se trouvent à l'intérieur du supraconducteur jusqu'à H_{c2} le champ critique supérieur nécessaire pour qu'ils se superposent et donc la destruction de la supraconductivité. Pour $H_{c1} \leq H \leq H_{c2}$, c'est à dire en présence de vortex, on parle d'état mixte. Dans les cuprates cet état mixte est particulièrement développé, *i.e.* $H_{c1} \ll H_{c2}$, on dit qu'ils sont "fortement" de type II. Cela est dû à la faible valeur de la longueur de cohérence des paires de Cooper ξ qui induit un grand H_{c2}, et à l'importante longueur de pénétration de London λ qui induit un faible H_{c1}.

La spécificité des cuprates, par rapport à d'autres supraconducteurs de type II, est la proéminence d'une phase liquide de vortex dans leur diagramme de phase, due à une faible densité superfluide et un caractère fortement 2D [50]. Cela est d'importance puisque la ligne $H_{c2}(T)$ du diagramme de phase

6. La nature générique de cette affirmation est cependant mise en doute par le cas de Bi-2201 où $p_{SC,2} \sim p^*$.

des cuprates ne marque donc plus une transition de phase bien déterminée mais plutôt un "cross-over". Cela explique pourquoi cette grandeur est encore très discutée dans de nombreux cuprates. Les premières mesures directes de $H_{c2}(T)$ ont été récemment réalisées par conductivité thermique dans Y-123 et Tl2201 [49]. L'exemple de Tl2201 est donné sur la figure 1.13. La valeur de $H_{c2}(0)$ mesuré par conductivité thermique coïncide avec l'extrapolation de la ligne de fusion du réseau de vortex, $H_{vs}(T)$, et semble donc indiquer qu'aucune phase liquide de vortex n'existe à $T = 0$ K. Dans cette interprétation à dopage optimal dans Y-123 on obtient $H_{c2} \simeq 150$ T. Cette énorme valeur de champ magnétique, inatteignable de manière non destructive actuellement, est une des difficultés principales de l'étude des cuprates et motive l'étude de cuprates comme LSCO, qui ont des $H_{c2}(0)$ plus modestes.

La supraconductivité dans les cuprates est dite non conventionnelle. Cette terminologie vient de plusieurs raisons. Tout d'abord contrairement aux supraconducteurs BCS classiques au moins une seconde brisure de symétrie apparaît à T_c, en plus de celle de la symétrie de jauge $U(1)$ [51]. Ensuite la symétrie du gap, et donc de la fonction d'onde de paire, ne correspond pas au cas classique s isotrope attendu dans le cadre de la théorie BCS avec un mécanisme d'appariement électron-phonon. Il est maintenant clairement établi que la symétrie du gap supraconducteur Δ des cuprates est, au moins en majorité, de type d anisotrope. Le gap est décrit par la relation $\Delta(k) = \Delta_0 \cos(k_x a) \cos(k_y a)$, où $\vec{k} = (k_x, k_y)$ est le vecteur d'onde dans l'espace réciproque et a le pas du réseau. Δ s'annule donc selon les diagonales de la surface de Fermi, appelées en conséquence directions nodales. Une telle symétrie semble indiquer que l'interaction donnant naissance à la formation des paires de Cooper n'est pas le couplage électron-phonon [52]. La première mesure directe de l'anisotropie angulaire du gap est venue des mesures d'ARPES de Z.-X. Shen et collaborateurs [53] sur Bi-2212. De nombreuses autres sondes expérimentales indiquent la présence de nœuds dans le gap : les longueurs de pénétrations $\lambda(T)$ sont linéaires en T à suffisamment basse température dans les composés les moins désordonnées [54] [7], la densité d'état proche de l'énergie de Fermi extraite des mesures de microscopie à effet tunnel a une forme en "V" [55], la conductivité thermique a un terme résiduel à $T = 0$ K (voir par exemple la figure 1.6) [56], les impuretés non-magnétiques réduisent drastiquement T_c [57].

1.2.3 Ondes de densités de charges

Une des propriétés, qui apparaît maintenant universelle aux cuprates dopés en trous, est l'émergence d'onde(s) de densité(s) de charge(s) (ODC) à l'intérieur du pseudogap. Au delà de ce constat d'universalité des différences existent entre les ODC des différentes familles de cuprates.

7. Une variation en T^2 est attendue pour un supraconducteur s-wave en présence de désordre.

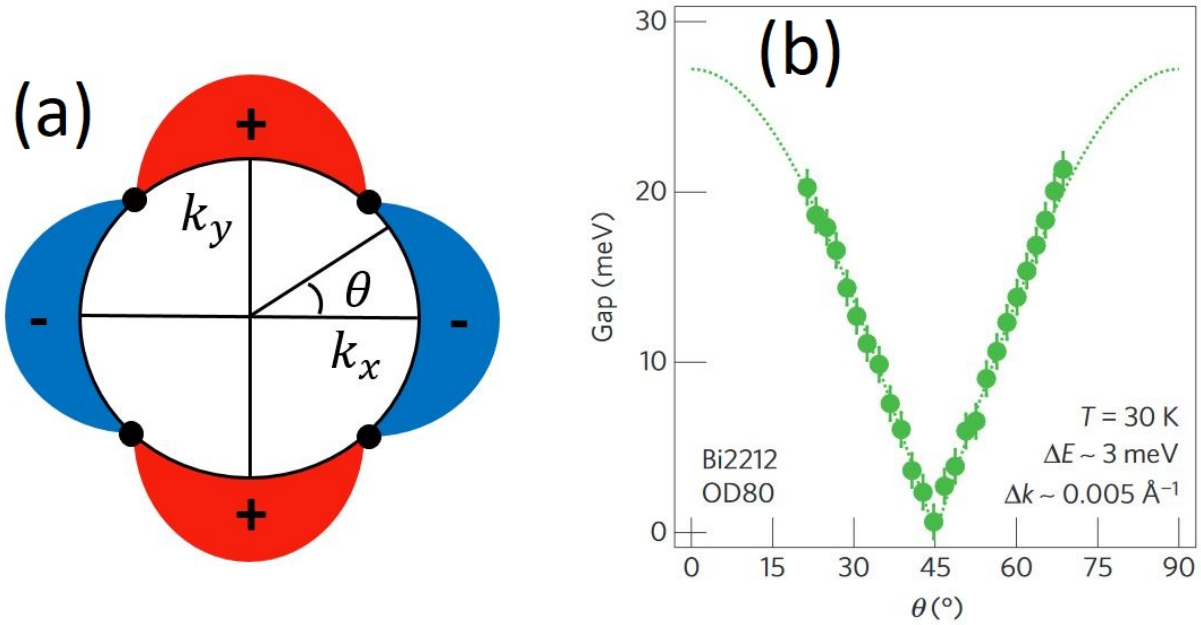

FIGURE 1.14 – **(a)** Schéma du gap d-wave anisotrope des cuprates. Les couleurs indiquent le signe de la fonction d'onde. Celle-ci, et donc le gap, s'annule le long des diagonales de la surface de Fermi. L'angle θ correspond à l'angle entre $(k_x, 0)$ et une certaine direction de la surface de Fermi. Les directions nodales correspondent à $\theta = 45°[\pi/2]$. **(b)** Variation du gap mesurée en ARPES à haute résolution dans Bi-2212, d'après la référence [58], selon l'angle θ. La dépendance angulaire est totalement compatible avec un gap de symétrie d, néanmoins l'ARPES n'étant pas sensible à la phase du paramètre d'ordre cette mesure seule ne peut pas exclure un gap s-wave très anisotrope.

Ordre de "stripes" dans les cuprates au lanthane

Depuis plus de 20 ans l'existence de modulations statiques de la charge électronique dans les cuprates est connue. Cela a tout d'abord été réalisée par la découverte d'un ordre de "stripes" (en français : ordre à rayures) dans Nd-LSCO [59], c'est à dire l'observation de modulations unidirectionnelles statiques de la charge et du spin électronique avec des vecteurs d'ondes colinéaires. Déclenchée essentiellement [8] par la découverte de ce même ordre de stripes dans le nickelate La_2NiO_4, un composé isostructural à LSCO mais qui reste isolant même dopé, cette découverte n'a rien d'étonnant théoriquement puisque des stripes sont effectivement obtenues dans le modèle de Hubbard au delà du demi-remplissage, comme montré par l'étude pionnière de Zaanen et Gunnarsson [61]. Expérimentalement J. M. Tranquada et collaborateurs [59, 62] ont trouvé simultanément par mesures de diffractions des neutrons les modulations de spin et de charge [9] électronique avec des vecteurs d'ondes simplement reliés par $\delta_{charge} = 2\delta_{spin}$. Les résultats sont reproduits sur la figure 1.15. La structure microscopique probable est visible sur la figure 1.16(a) : les spins s'ordonnent antiferromagnétiquement entre les différents sites du cuivre des plans CuO_2 et les trous mobiles s'agrègent le long de "rivières" de charges espacées d'une période $4a$. Puisque la modulation observée en neutrons (cf. figure 1.15) court le long des deux directions du plan les stripes dans deux plans CuO_2 adjacents doivent être orthogonales entre-elles pour produire le motif observé en diffraction.

Découvert initialement à un dopage de $p = 0.12$ cet ordre a dès lors été une explication naturelle à la dépression de T_c observée autour de ce dopage. Le diagramme de phase de LBCO, reproduit d'après Hücker et collaborateurs [63], est en ce sens très instructif. En allant vers les basses températures c'est tout d'abord l'ODC qui apparaît à une température similaire à celle de la transition structurale LTO-LTT de ce système, du moins pour $p < 0.15$. Ensuite l'onde de densité de spin (ODS) apparaît à son tour, avec une dépendance en dopage très semblable à celle de l'ODC, *i.e.* avec une température caractéristique maximale proche de $p \simeq 1/8$. L'incommensurabilité des ondes de spins et charges suit également la même dépendance en dopage, une autre claire indication que les deux sont intimement liées microscopiquement [64]. La modulation de spin est donc déclenchée par celle de charge, elle même provoquée et/ou aidée par la transition structurale LTO-LTT [10]. Proche de $p = 1/8$ la température critique supraconductrice est drastiquement réduite dans LBCO et les longueurs de corrélations associées aux ondes de densités sont maximales [64]. Du fait du lien fort entre structure LTT et stripes, ces dernières ont longtemps été cantonnées à un rôle secondaire dans la physique des cuprates, cette

8. mais pas uniquement : même avant le découverte de stripes dans les nickelates des fluctuations dynamiques de charge était connues dans LSCO (voir *e.g.* [60]).

9. Comme les neutrons n'ont pas de charges l'ODC a été indirectement détectée via la distorsion du réseau associée.

10. Le champ cristallin de la phase LTT permet de fixer des stripes dynamiques [59].

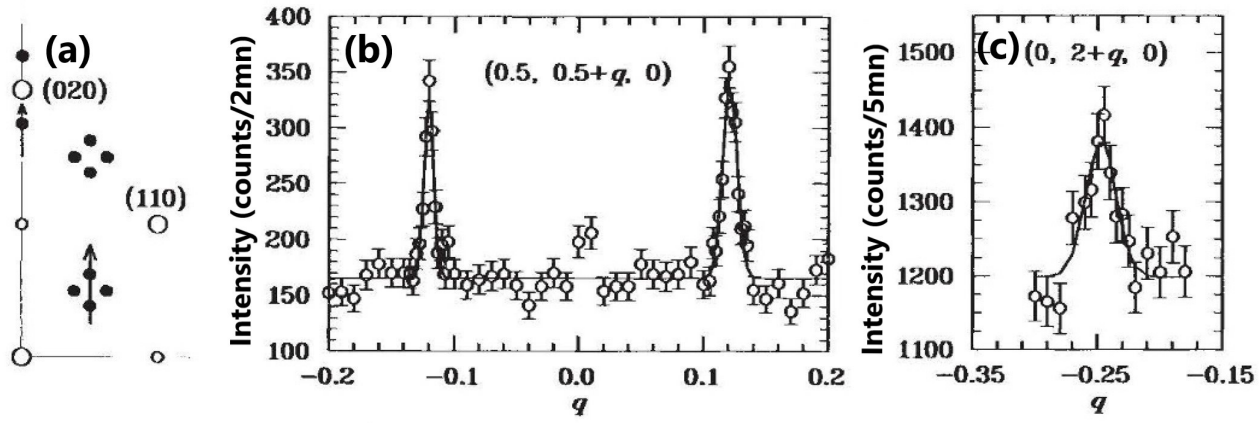

FIGURE 1.15 – Première observation expérimentale d'un ordre de stripes dans Nd-LSCO $p = 0.12$, figure adaptée de [59]. **(a)** Carte de l'espace réciproque : les ronds vides indiquent les pics de Bragg associés à la structure LTT. Les ronds pleins indiquent les pics associés aux modulations de spins et charges électronique. Scan dans le plan $(hk0)$: **(b)** selon $(1/2, 1/2 + q)$ deux pics sont résolus en $(1/2, 1/2 \pm \delta_{spin}, 0)$, associés à une modulation unidirectionnelle du spin électronique, **(c)** selon $(0, 2 + q)$ un pic est résolu en $(0, 2 - 2\delta_{spin}, 0)$ dû à la modulation du réseau associée à une onde de densité de charge unidirectionnelle. L'intensité de ce pic est plus petite que celle du pic de Bragg en $(0, 2, 0)$ d'un facteur $\sim 10^6$.

structure existant uniquement dans les cuprates au lanthane, et eux même ayant des températures critiques particulièrement faibles.

Néanmoins l'effet de la pression hydrostatique va à contre courant de cette interprétation. En effet Hücker et collaborateurs ont également montrés que dans LBCO $p = 1/8$, au delà d'une pression critique $p_c \simeq 1.8$ GPa, il y a toujours présence de l'ordre de charge associé aux stripes en absence de la structure LTT [66], comme visible sur la figure 1.17(a). Cela semble indiquer que les stripes sont originaires de corrélations électroniques plutôt que structurales et que la structure LTT est une conséquence de cet ordre plutôt que son origine. L'effet du champ magnétique a également été investigué [64, 67]. L'exemple de LBCO d'après l'étude [64] est montré sur la figure 1.17(b). Aux dopages et températures où l'ODC coexiste avec la supraconductivité le pic de diffraction associé croît en champ magnétique $H \parallel c$. Cet effet, minimal proche de $p = 1/8$ dans LBCO où la supraconductivité est très faible, s'explique naturellement par une compétition entre celle-ci et les stripes. Cette interprétation est renforcée par l'observation d'une saturation de l'amplitude du signal mesuré en rayons-x pour $T < T_c$ [64]. Le même comportement en champ magnétique existe pour l'ODS [68, 69].

Dans ce contexte LSCO est un composé particulièrement intéressant. Il se distingue par plusieurs aspects des autres membres de la famille des cuprates au lanthane. Tout d'abord la structure LTT dans laquelle se développe les stripes dans (Nd, Eu)-LSCO et LBCO n'existe pas dans LSCO. Cette

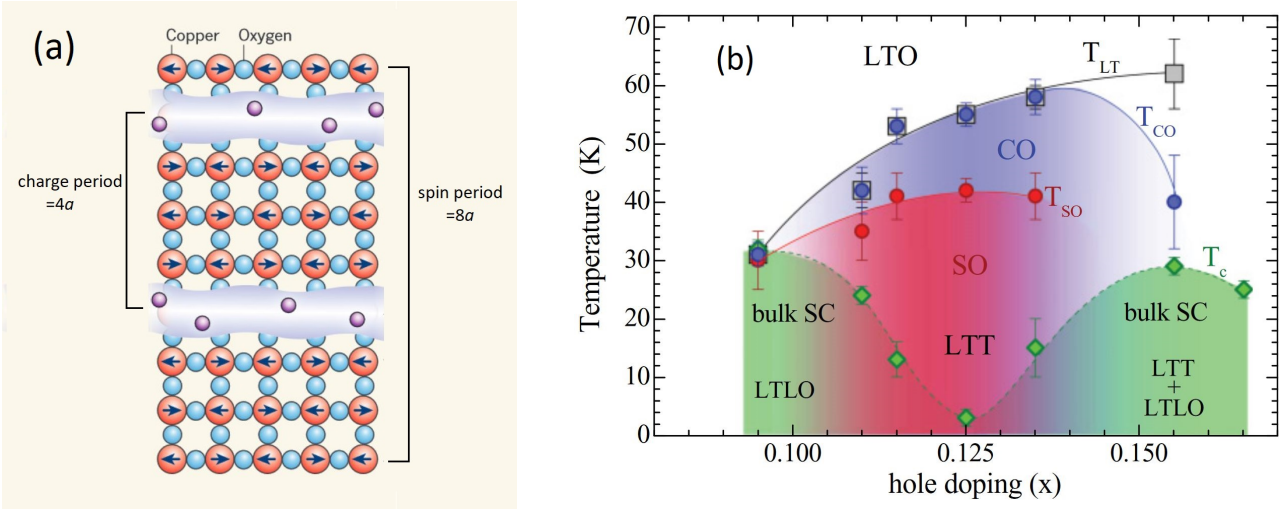

FIGURE 1.16 – **(a)** Structure microscopique probable de l'ordre de stripes, adaptée d'après [65]. Comme dans le composé parent les spins $3d$ du cuivre s'ordonnent antiferromagnétiquement. Les trous mobiles se concentrent le long de "stripes" espacées d'une periode $4a$. La périodicité double de l'ordre de spin par rapport à celui de charge mène à $\delta_{charge} = 2\delta_{spin}$ dans l'espace réciproque. **(b)** Diagramme de phases température-dopage de LBCO, reproduit d'après l'étude [63] de rayons-x, neutrons et aimantation. ODC et ODS sont renforcées proche de $p = 1/8$ où la supraconductivité est fortement réduite.

première affirmation a jusqu'à peu été controversée, essentiellement à cause de mesures d'ultrasons interprétées en terme d'existence *locale* de la phase LTT [70]. Le chapitre 5 discute ces résultats et montre en étendant les mesures en champs magnétiques intenses que l'interprétation précédente en terme d'instabilité structurale ne tient pas. Ensuite la dépression de T_c proche de $p = 1/8$ dans LSCO est bien moins marquée que dans les autres composés tels (Nd, Eu)-LSCO et LBCO. Enfin l'ordre de charge, découvert que très récemment, est bien plus subtile que dans LBCO par exemple avec des longueurs de corrélations dans le plan pratiquement un ordre de grandeur plus faible [64, 71]. En dépit de ces différences notables il est maintenant établi qu'ODC [71, 72] et ODS (voir, *e.g.*,[69, 73]) coexistent dans le diagramme de phase de LSCO avec une incommensurabilité $\delta_{charge} = 2\delta_{spin}$ typique d'un ordre de stripes. LSCO est donc le cuprate parfait pour faire le lien entre les composés au lanthane, où l'existence de stripes est bien établi, et d'autres cuprates où l'existence de stripes est incertaine.

Imagerie dans l'espace réelle par STM

À la suite de la découverte des stripes les mesures de microscopie à effet tunnel (en anglais, Scanning Tunneling Microscope, STM) ont mis en évidence l'existence d'une onde de densité de charge dans une autre famille de cuprate, ceux basés au bismuth, et en tout premier lieu $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ (Bi-2212). En 2002 J. Hoffman et collaborateurs [74] observent dans un échantillon légèrement sur-dopé

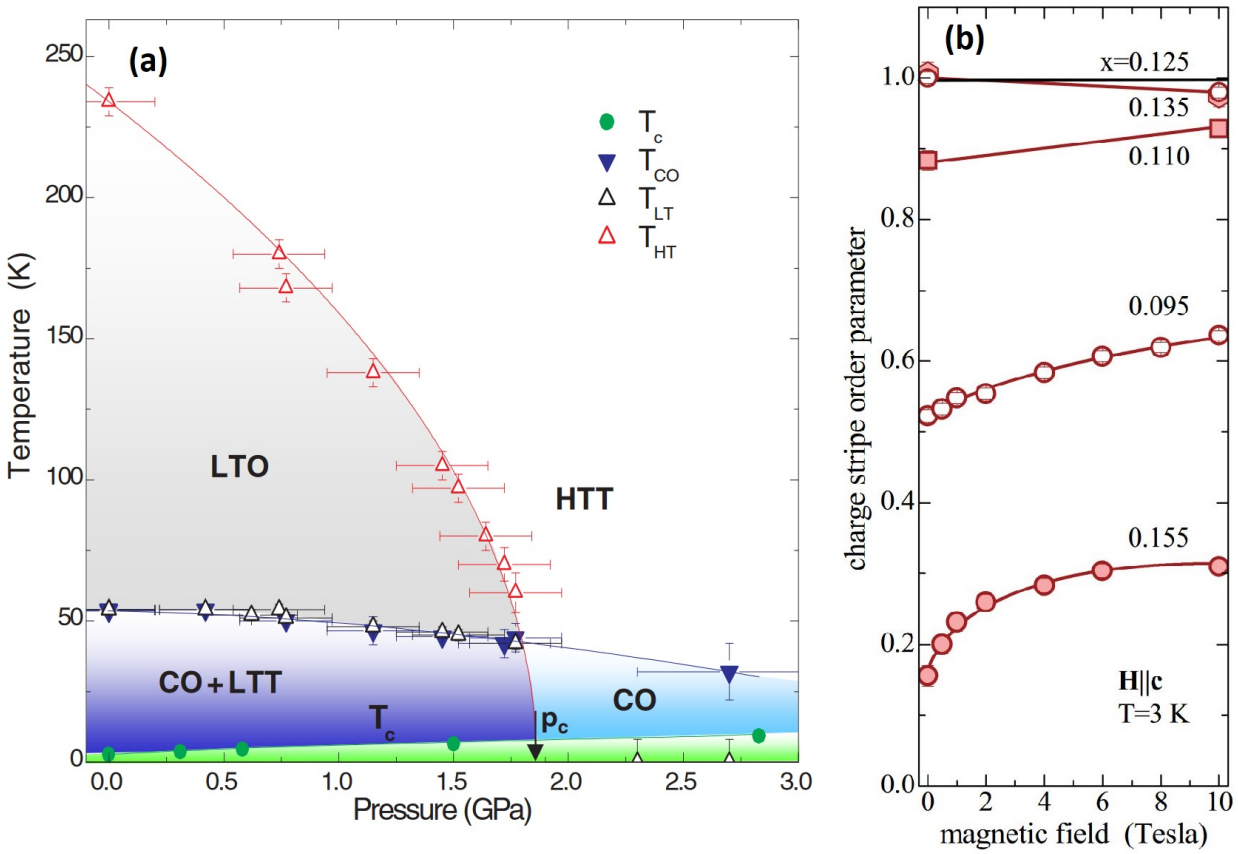

Figure 1.17 – Effet de la pression hydrostatique et du champ magnétique sur les stripes de LBCO. **(a)** Diagramme de phases température-pression de LBCO $p = 0.125$. Au delà d'une pression critique $p_c \simeq 1.8$ GPa les structures cristallines LTT et LTO n'existent plus mais l'ordre de charge associé aux stripes existe lui toujours. Figure adaptée d'après [66]. **(b)** Dépendance en champ magnétique du paramètre d'ordre de l'ODC extrait des mesures de rayons-x dans LBCO $0.095 < p < 0.155$. Plus le paramètre d'ordre des stripes est faible plus la force de la supraconductivité est grande et l'effet du champ magnétique important. Figure extraite de [64].

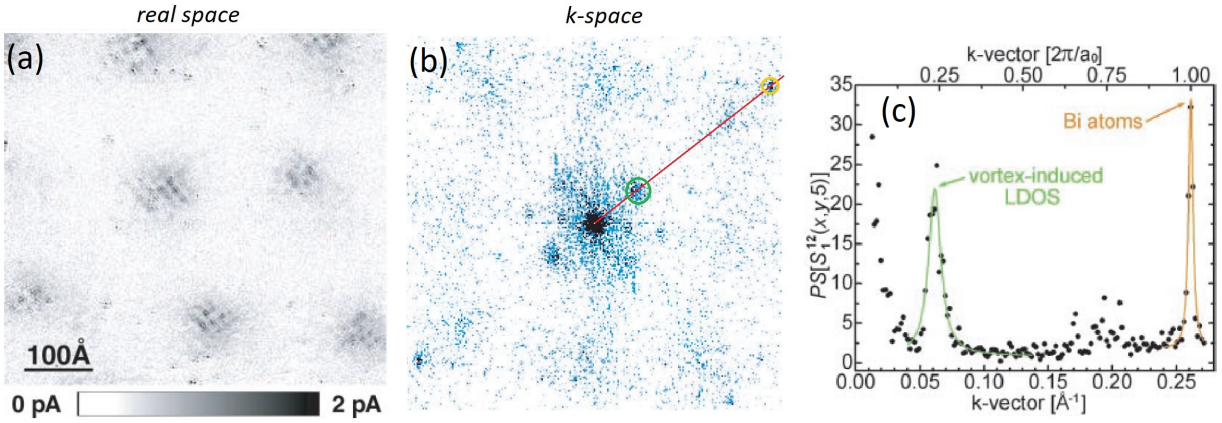

FIGURE 1.18 – Observation d'une modulation de la densité d'état locale dans Bi-2212 par STM. **(a)** Carte spectroscopique dans l'espace réel de la surface d'un échantillon de Bi-2212 ($T_c = 89$ K) montrant la densité d'état locale (LDOS) induite par un champ magnétique de $H = 5$ T $\parallel c$, $S_1^{12}(x, y, 5)$. Les sept zones foncées indiquent la présence de vortex. Autour de chaque vortex une sur-modulation est visible. **(b)** Analyse dans l'espace réciproque, montrant $PS[S_1^{12}(x, y, 5)] = TF[S_1^{12}(x, y, 5)^2]$. Au centre de l'image, *i.e.* à $k = 0$, se trouve le pic dû aux impuretés, à grande longueur d'onde. En suivant le ligne rouge selon k_x on trouve la modulation de la densité d'état induite par le champ magnétique autour des vortex (rond vert) et la sur-modulation due à la superstructure des atomes de Bi (rond jaune). **(c)** Coupe de $PS[S_1^{12}(x, y, 5)]$ selon la ligne rouge précédente. La modulation de la LDOS induite au niveau des vortex se trouve à $k = 0.25$ $[2\pi/a]$ r.l.u. indiquant une période de $4a$ dans l'espace réel.

($T_c \simeq 89$ K), en présence d'un champ magnétique $H \parallel c$, une modulation de la densité électronique locale (LDOS, de l'anglais local density of states) autour des vortex, dans une région désignée halo bien plus grande que la taille du cœur de vortex ξ. La modulation apparaît en soustrayant la conductance différentielle dI/dV à $H = 0$ T de celle à $H = 5$ T, sous la forme d'un "checkerboard" (modulation en damier) visible sur la figure 1.18(a). L'analyse dans l'espace réciproque (voir 1.18(b)) indique une périodicité $4a$, *i.e.* proche de celle des stripes de charge observée auparavant dans les composés au lanthane à $p \sim 1/8$.

Comme la modulation est obtenue en intégrant sur une gamme d'énergie finie (de ∼12 meV en l'occurence) ce résultat seul n'indique pas la présence d'une onde de densité de charge. Néanmoins quasiment simultanément C. Howald et collaborateurs publient une étude complémentaire, toujours de STM, montrant que les états de quasi-particules impliqués dans cette densité d'état à $k = \pm 1/4$ $[2\pi/a]$ dispersent peu, ce qui naturellement amène à conclure que c'est bien une onde de densité de charge qui est à l'origine de cette signature [75, 76]. L'observation d'une forte anisotropie indique un caractère uni-axial reminiscent d'un ordre de stripes. De plus cette dernière étude montre que cette ODC existe à champ magnétique nul.

Plus tard des modulations similaires ont été observées dans Bi-2201 [77] et un cuprate moins désordonné, $Ca_{2-x}Na_xCuO_2Cl_2$ [78]. De manière intéressante la modulation apparaît à T^* dans Bi-2201, indiquant dans ce composé un lien entre pseudogap et onde de densité de charge, et la dépendance en dopage du vecteur d'onde de l'ODC semble indiquer que ce dernier permet de connecter entre elles les pointes des arcs de Fermi [79]. Dans leur ensemble ces résultats de STM sont d'importance puisqu'ils indiquent que l'ODC, et potentiellement les stripes, ne sont pas une anomalie des cuprates à base température critique, et également qu'une forte compétition existe au niveau microscopique entre onde de densité de charge et supraconductivité malgré une apparente coexistence.

Ondes de densités de charges 2D et 3D de Y-123

La récente histoire d'onde de densité de charge dans Y-123 commence avec l'observation d'oscillations quantiques dans la résistance de Hall, R_{xy}, d'un échantillon $YBa_2Cu_3O_{6.5}$ de dopage $p = 0.108$ mesuré en champs magnétiques pulsés [80]. Cette mesure, issue d'une collaboration entre le groupe de L. Taillefer (Université de Sherbrooke, Canada) et celui de C. Proust (LNCMI-T, France), est reproduite sur la figure 1.19. La fréquence très lente des oscillations quantiques renvoie à la présence de petites poches dans la surface de Fermi, représentants seulement quelques pourcents de la surface de la 1ère zone de Brillouin, en contraste avec l'unique (et grande) poche de trous qui est observée dans le régime très surdopé de Tl2201 (figure 1.5). Dans la continuité des mesures par le même groupe, et D. LeBoeuf en particulier [81], montrent que l'effet Hall dans l'état normal de $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ (Y-123, $p = 0.10, 0.12$) et le composé stœchiométrique $YBa_2Cu_4O_8$ (Y-124, $p = 0.14$) est négatif, indiquant que les oscillations quantiques proviennent de poches d'électrons. Des oscillations similaires sont observées moins d'un an plus tard dans Y-124 [82]. Ces résultats, inattendus dans les calculs de structures de bandes, suggèrent très fortement une brisure de symétrie et une reconstruction de la surface de Fermi associée.

La découverte de cette brisure de symétrie est venue des mesures de RMN du groupe de Marc-Henri Julien, en particulier T. Wu [6]. Ce qui a été observé par RMN est un dédoublement des raies Cu2F, *i.e.* celles des cuivres dans les plans CuO_2 se trouvant sous les chaînes Cu-O remplies en oxygène, d'un échantillon de Y-123 $p = 0.108$. Cette signature qui n'apparaît qu'au dessus d'un champ magnétique seuil, $H \geq H_{co} \parallel c$, et en dessous d'une certaine température critique $T_{co} < T_c$, a été directement reliée à une modulation unidirectionnelle, statique de la charge électronique. Cette première onde de densité de charge est appelée ODC 3D dans la suite.

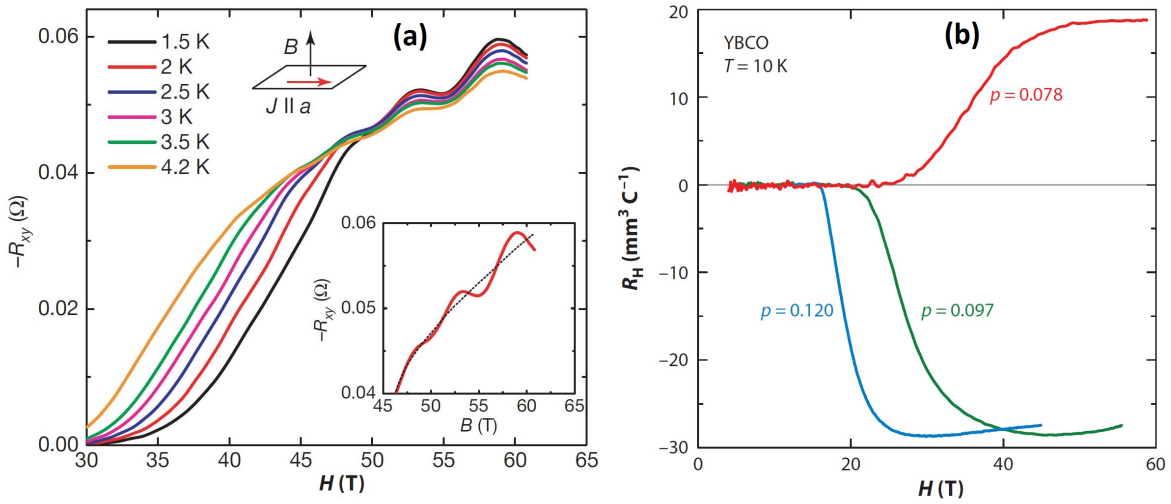

Figure 1.19 – Oscillations quantiques et reconstruction de la surface de Fermi dans Y-123. (a) Résistance de Hall R_{xy} (ou de manière équivalente R_H) en fonction du champ magnétique dans Y-123 $p = 0.108$. Des oscillations quantiques de fréquence $F = 1/530$ T^{-1} sont clairement résolues de 1.5 K jusqu'à 4.2 K. Figure reproduite d'après [80]. **(b)** Résistance de Hall en fonction du champ magnétique dans trois échantillon de Y-123 0.078, $p = 0.097$, 0.120. Pour les deux derniers dopages, une fois l'état normal atteint R_H est négatif alors qu'il est positif pour $p = 0.078$. Figure adaptée de [83] sur le modèle de [19].

Les mesures de rayons-x motivées par cette découverte ont mis en évidence l'existence d'une seconde onde de densité de charge, distincte de celle vue auparavant en RMN, qui apparaît en dessous de $T_{co,2D} > T_c$ et en l'absence de champ magnétique [84, 85]. Pour se référer à cette dernière on parle d'ODC 2D. Les études de rayons-x ont montré que cette ODC 2D se caractérise par deux vecteurs d'ondes dans le plan très proches, orthogonaux entre eux et tous deux incommensurables avec le réseau. Plus spécifiquement : $(\delta_a, 0, 1/2)$ et $(0, \delta_b, 1/2)$. Au delà du caractère bi-axial de cette ODC la modulation est très similaire à l'ODC 3D, une claire indication du lien entre les deux. L'amplitude du pic quasi-élastique est maximale proche de $l = 0.5$, indiquant qu'entre deux plans CuO_2 adjacents la modulation de charge est en opposition de phase. Les longueurs de corrélations extraites montrent le caractère fortement 2D, au maximum de $\xi_{ab} = 70$Å dans le plan, alors qu'elles atteignent difficilement un pas de réseau selon l'axe c. La dépendance en température [86] de l'intensité du pic de rayons-x indique une forte compétition entre supraconductivité et ODC 2D [85, 86]. L'intensité croît pour $T_c < T < T_{co,2D}$ et décroit ou sature pour $T < T_c$, lorsqu'un champ magnétique $H \parallel c$ permet d'augmenter l'intensité vue par rayons-x au détriment de la supraconductivité. Cet aspect de compétition est mis en lumière sur la figure 1.20. Des mesures systématiques de diffraction des rayons-x [86] et de rayons-x résonnants [87] ont permis de montrer que l'ODC 2D existe pour $0.08 < p < 0.16$.

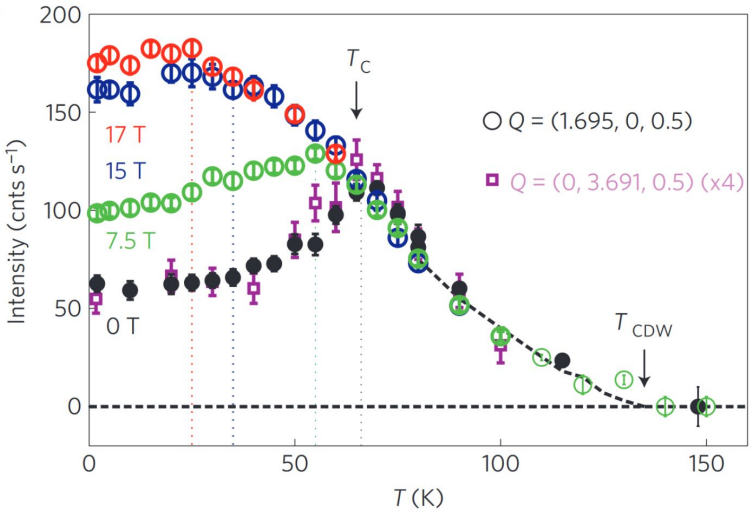

FIGURE 1.20 – Compétition entre ordre de charge 2D et supraconductivité. Intensité vue par rayons-x durs au vecteur d'onde de l'ODC 2D en fonction de la température dans un échantillon de $YBa_2Cu_3O_{6.67}$. Figure reproduite d'après [85]. Pour $T < T_c$ l'intensité, qui diminue en champ magnétique nul, peut être renforcée par l'application de $H \parallel c$.

En 2013 des mesures de vitesse du son par D. LeBoeuf montrent que cette quantité est sensible à l'établissement de l'onde de densité de charge vue à haut champ [4], l'ODC 3D, indiquant la nature thermodynamique de cette transition de phase. Cette signature en vitesse du son établit un critère pour suivre l'évolution de cette ODC 3D induite par le champ magnétique dans l'ensemble du diagramme de phase de Y-123. C'est l'objet de la publication [88] et du chapitre 7 de cette thèse. Cette étude a permis notamment de montrer que le dopage critique supérieur de cet ordre est bien distinct de p^*, ce qui va a l'encontre d'un pseudogap associé à des fluctations d'ordre de charge [89, 90]. Des mesures récentes de rayons-x en champs magnétiques intenses [91, 92] confirment la nature uni-axiale de cet ODC 3D, avec un vecteur d'onde incommensurable selon $(0, \pm\delta, 1)$. Le fait que ce dernier soit centré en $l = 1$, contrairement à l'ODC 2D, implique que l'onde est en phase entre les différents plans CuO_2 sur ξ_l. Ces dernières montrent également la nature tri-dimensionnelle (3D) de cet ordre avec des longueurs de corrélations allant jusqu'à $\xi_l \sim 60$Å selon l'axe c et $\xi_k > 200$Å dans le plan (pour $T = 10$ K et $H \simeq 25$ T). Des mesures encore plus récentes indiquent que le champ magnétique n'est pas le seul moyen de déclencher cette ODC 3D. La pression uni-axiale selon l'axe a permet d'induire une onde de densité de charge qui semble similaire [93].

Jusqu'à maintenant cet ODC 3D a été observée uniquement dans Y-123, malgré la présence d'oscillations quantiques dans $HgBa_2CuO_{6+\delta}$ (Hg-1201) sous-dopé à une fréquence similaire à Y-123 [94]. Puisque l'existence de l'ODC 2D a bien été confirmée dans Hg-1201 une possibilité pour expliquer cela est que l'ODC 2D est suffisante pour reconstruire la surface de Fermi [88].

1.2.4 Verre antiferromagnétique

Au delà de p_{AF}, *i.e.* en dehors de l'état de Néel du composé parent (voir figure 1.7), le magnétisme survit dans les cuprates au lanthane et Y-123, sous la forme d'un *verre antiferromagnétique*. L'objet de cette section est de motiver ce dernier terme mais également de montrer les similarités et les différences qui existent au regard du magnétisme de ces deux familles.

Pics quasi-statiques incommensurables vus par neutrons

Les mesures de diffraction de neutrons indiquent, à suffisamment basse température, la formation de pics dans la région quasi-élastique ($E \lesssim 1$ meV) à des vecteurs d'ondes incommensurables, proche du vecteur antiferromagnétique, aussi bien dans Y-123 [95, 96] que dans les cuprates au lanthane (pour LSCO voir les références [97–99]). Cette observation a mené à l'utilisation du terme d'*"onde de densité de spin incommensurable"* dans ces composés. La dépendance en dopage de la température à laquelle ces pics quasi-statiques apparaissent dans LSCO, $T_{neutron}$, est résumée sur la figure 1.21 : depuis le composé parent elle décroît jusqu'à $p \sim 0.10$ puis connaît une forte augmentation à $p \sim 0.115 - 0.12$ avant de s'annuler à $p_{SG} \simeq 0.135$. L'augmentation de $T_{neutron}$ proche de $p \sim 0.115 - 0.12$ semble liée à l'ordre de charge 2D qui voit lui aussi sa température seuil être maximale au même dopage. Dans Y-123 l'ordre de charge semble, au contraire, être en compétition avec ces corrélations AF, qui disparaissent à un dopage de $p_{SG} \simeq 0.08$ [87].

Plus spécifiquement dans Y-123 on observe par diffraction de neutrons deux pics quasi-statiques incommensurables en $(\pi/2 \pm \delta_{spin}, \pi/2)$. Il existe donc une modulation uni-axiale du spin électronique selon l'axe a, au moins dans les échantillons démaclés, un caractère rappelant l'ordre de stripes [95]. Dans LSCO la situation est légèrement plus complexe. L'exemple de LSCO $p = 0.12$ est décrit sur la figure 1.22(a). Quatre pics en $(\pi/2, \pi/2 \pm \delta_{spin})$ et $(\pi/2 \pm \delta_{spin}, \pi/2)$, c'est à dire autour du vecteur antiferromagnétique, apparaissent pour $T \simeq 30$ K, ce qui, pour ce dopage, correspond à T_c. Nous verrons qu'il s'agit là d'une coïncidence. Le vecteur de propagation subit une rotation de $\pi/4$ en fonction du dopage. Pour $0.02 < p < 0.05$, lorsque des corrélations incommensurables quasi-statiques existent en l'absence de supraconductivité, la modulation est diagonale, à 45 degrés des liaisons Cu-O. Dans l'état supraconducteur (et donc dans l'exemple de $p = 0.12$) la modulation est, comme dans Y-123, alignée selon les liaisons Cu-O [98], mais est cette fois bi-axiale (selon a *et* b). Ce caractère bi-axial pourrait être dû à la nature maclée des échantillons de LSCO.

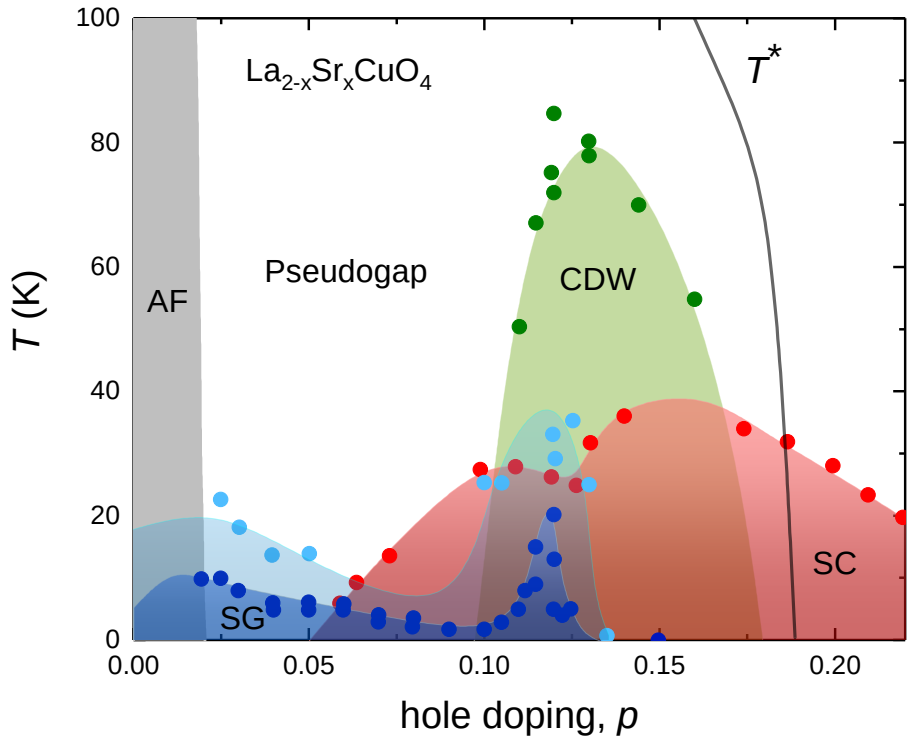

FIGURE 1.21 – Diagramme de phase température - dopage de LSCO. Les ronds verts indiquent la température seuil de l'ODC 2D déterminée par mesures de rayons-x [71, 72]. Ceux en rouge indiquent T_c vue par susceptibilité magnétique [97]. Les ronds bleus foncés indiquent T_f qui marque le gel des fluctuations de spins à la fréquence des mesures de RMN, NQR et μSR ([100] et références mentionnées). Enfin les ronds bleus clairs montrent $T_{neutrons}$, température en dessous de laquelle des corrélations AF quasi-statiques incommensurables sont vues par diffraction des neutrons [71, 101]. Le gel de spin et les corrélations AF sont les deux signatures du développement d'un "verre antiferromagnétique". La différence entre T_f et $T_{neutrons}$ provient de la différence de la fréquence des sondes et du comportement très graduel du gel de spin. La ligne noire indique T^*, la température caractéristique du pseudogap, qui s'annule à $p^* \simeq 0.19$.

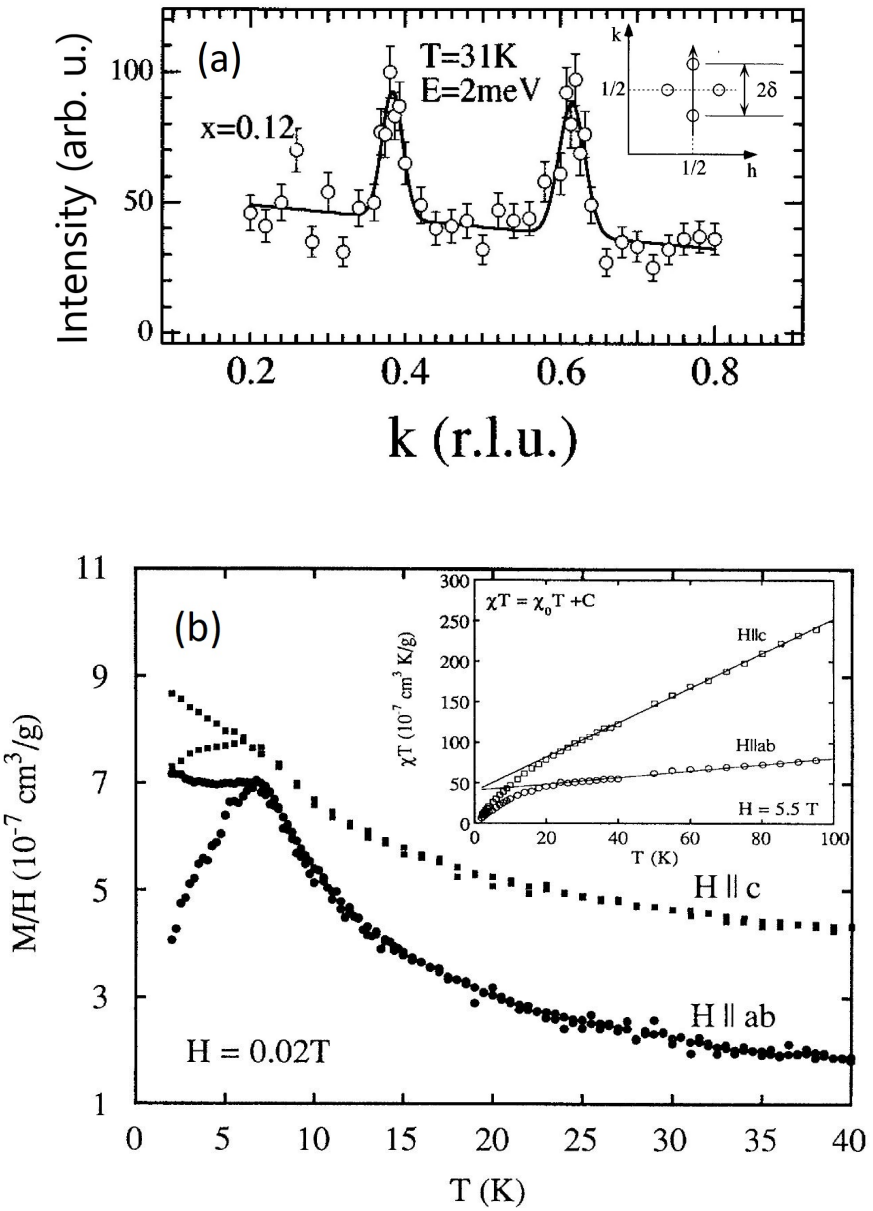

FIGURE 1.22 – Verre antiferromagnétique dans LSCO. (a) Coupe selon $(\pi/2, \pi/2+k, 0)$, comme indiqué dans l'insert, avec les notations dans la phase tétragonale à haute température (HTT) de $La_{1.88}Sr_{0.12}CuO_4$. La ligne pleine est un ajustement avec deux gaussiennes et un background linéaire. Il montre un bon accord avec les données expérimentales qui présentent deux pics en $k = \pm\delta_{spin} \simeq \pm p$ (voir texte principal). La température est de $T = 31$ K, l'énergie des excitations sondées de 2 meV. Figure adaptée de [97]. **(b)** Susceptibilité magnétique, χ, en fonction de la température dans un échantillon de $La_{1.96}Sr_{0.04}CuO_4$. Le champ magnétique appliqué est de $H = 0.02$ T, dans les géométries indiquées. Les données sont décalées pour clarté. La susceptibilité est irréversible pour $T < T_g$. Un pic est évident dans les données refroidies *en l'absence* de champ magnétique appliqué. Insert : χT en fonction de la température, démontrant la forme de Curie pour $T > T_g$. Figure reproduite d'après [102].

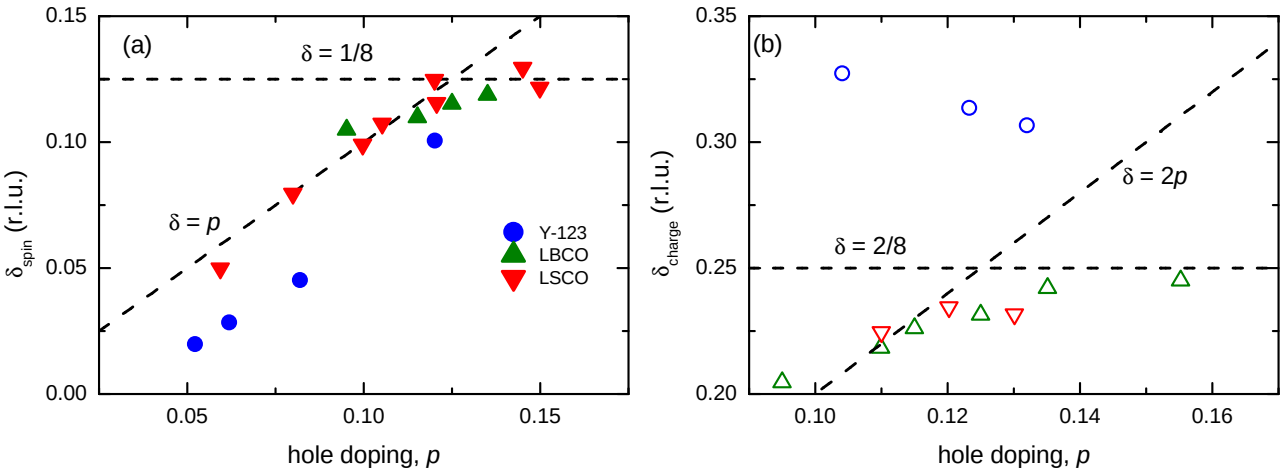

FIGURE 1.23 – Incommensurabilité des ondes de densités de charges et de spins dans LSCO, LBCO et Y-123 en fonction du dopage. Les valeurs sont extraites de [71] et des références qui y sont mentionnées. **(a)** δ_{spin} en fonction du dopage : la relation $\delta_{spin} \simeq p$ n'est vérifiée que pour LSCO et LBCO jusqu'à $p \simeq 0.12$. **(b)** δ_{charge} en fonction du dopage. Alors que la relation $\delta_{charge} = 2\delta_{spin}$, caractéristique d'un ordre de stripes, semble vérifiée pour LBCO et LSCO, dans Y-123 δ_{charge} diminue en fonction du dopage. Cette diminution, qui existe aussi dans Bi-2201, pourrait provenir de la surface de Fermi [79].

L'incommensurabilité δ_{spin} est différente dans Y-123 et LSCO, comme cela est visible sur la figure 1.23. Dans LSCO cette dernière suit la relation $\delta_{spin} \simeq p$ jusqu'à $p \sim 0.12$ et sature à plus haut dopage [98]. Dans Y-123 $\delta_{spin} < p$ à tous les dopages [95]. La comparaison avec l'incommensurabilité de l'ordre de charge (2D) montre que la relation $\delta_{charge} = 2\delta_{spin}$, caractéristique d'un ordre de stripes, est (vraisemblablement) vérifiée dans LSCO mais ne l'est pas dans Y-123.

Comportement vitreux

Le terme d'onde de densité de spin est réducteur, aussi bien pour Y-123 que LSCO, car un comportement vitreux est clairement observé dans les différentes sondes expérimentales :

1. Les valeurs de $1/T_1$ sont distribuées sur plusieurs ordres de grandeurs, aussi bien dans Y-123 [103] que LSCO [104]. Cela indique que le temps de corrélation spin-spin est lui même particulièrement inhomogène.

2. La température déduite des mesures de neutrons augmente avec l'énergie de transfert, $\hbar\omega$ [105] : $T_{neutron}$ indique donc seulement la température en dessous de laquelle il existe des fluctuations de spins avec un temps de corrélation supérieur à ~ 10 picosecondes.

3. Les mesures de susceptibilité magnétique dans LSCO $0.02 < p < 0.05$ montrent une aimantation rémanente, de l'irréversibilité et un comportement en lois d'échelles [102, 106] comme dans les verres de spins canoniques tels CuMn (pour une revue voir [107]). Un exemple est visible dans le cas de LSCO $p = 0.04$ sur la figure 1.22(b) : on peut y observer l'irréversibilité qui apparaît dans l'état gelé, *i.e.* pour $T < T_{\mathrm{g}}$.

En résumé, on n'a donc pas ici présence d'une transition de phase bien marquée vers un état antiferromagnétique (AF) mais bien un gel très graduel des fluctuations de spins, dans un motif AF. Cela explique la différence de température entre les mesures de neutrons et celles de RMN, NQR et μSR (voir figure 1.21). Alors que les neutrons voient une réponse statique dès lors que le temps de corrélation des fluctuations de spins excède ~ 10 picosecondes, pour les mesures de RMN, NQR et μSR ce temps de corrélation doit dépasser ~ 1 microseconde pour considérer les spins comme statiques. Ni le terme "onde de densité de spin", ni celui de "verre de spin" n'est donc adapté : on parlera dans la suite de "verre antiferromagnétique".

Augmentation des corrélations antiferromagnétiques sous champ magnétique

Au delà d'un certain dopage critique p_{SG} (voir figure 1.7) un gap de spin, Δ_{spin}, s'ouvre [108]. Proche du dopage optimal dans LSCO $\Delta_{spin} \simeq 7$ meV [109]. En conséquence il n'y a plus de réponse statique en champ magnétique nul, même avec la fenêtre d'intégration finie en énergie des mesures quasi-élastiques de neutrons. Néanmoins de nombreuses études ont montré que la réponse magnétique, aussi bien dynamique, pour $p > p_{SG}$, que statique, pour $p < p_{SG}$, peut être augmentée par l'application d'un champ magnétique $H \parallel c$.

Plus spécifiquement ce qui a été montré, pour $p \simeq 0.10-0.12$, est que l'antiferromagnétisme statique présent en champ nul dans LSCO est renforcé par l'application d'un champ magnétique [105, 110, 111], au détriment de la supraconductivité. L'effet du champ magnétique est donc faible lorsque la supraconductivité est fortement affaiblie par le verre AF et/ou l'ordre de charge [69]. Les mesures de diffraction des neutrons [95] et de RMN [103] indiquent que, dans Y-123 également, le verre AF est renforcé par le champ magnétique autour de ce dopage. La réponse dynamique semble alors très peu modifiée par le champ magnétique [105].

En l'absence de corrélations AF statiques en champ nul, pour $p > p_{SG}$, la réponse dynamique peut être fortement renforcée. Encore une fois ce constat semble générique aux composés au lanthane et à

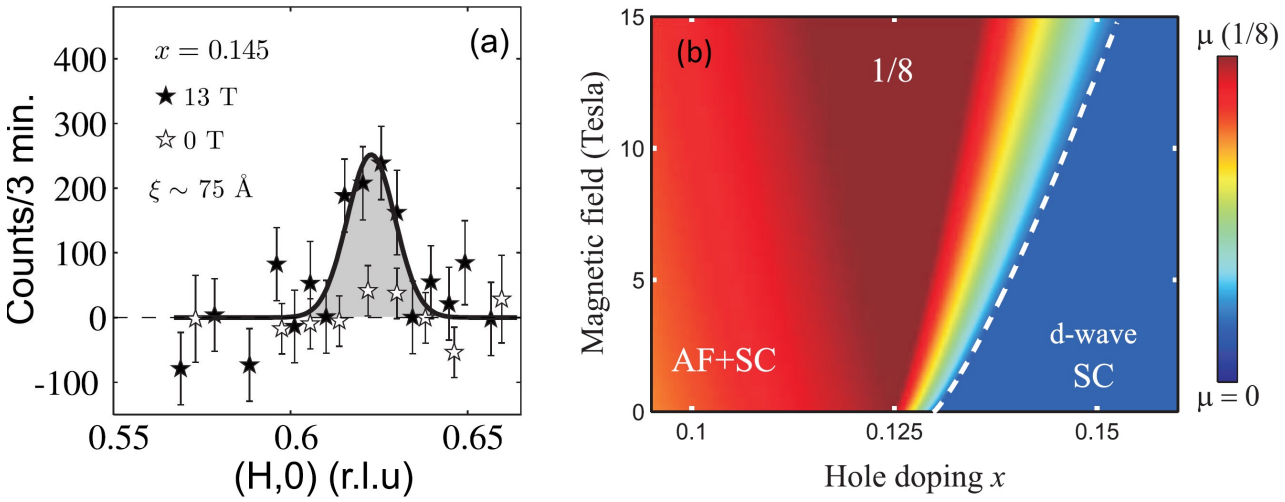

Figure 1.24 – Corrélations antiferromagnétiques quasi-statiques induites par le champ magnétique dans $La_{1.855}Sr_{0.145}CuO_4$. Figures reproduites d'après [69]. **(a)** Réponse quasi-statique induite par un champ magnétique $H = 13$ T $\parallel c$ en $(\pi/2 + \delta_{spin}, \pi/2, 0)$. La longueur de corrélation dans le plan déduite de la largeur à mi-hauteur est de $\xi \sim 75$Å. **(b)** Interprétation générale du magnétisme des cuprates au lanthane, autour de $p \sim 1/8$, déduite de cette étude. Le moment ordonné, μ, est maximal pour $p = 1/8$ où l'effet du champ magnétique est le plus faible. En champ magnétique nul la phase AF se termine à un point critique, proche de $p_{SG} = 0.135$ dans LSCO. L'application d'un champ, en jouant avec la compétition avec la supraconductivité, permet de déplacer p_{SG} à plus haut dopage.

Y-123. Dans LSCO les mesures de neutrons ont permis de montrer que des corrélations dynamiques à $\hbar\omega < \Delta_{spin}$, auparavant gappées, peuvent être induites par l'application de champ magnétique $H \parallel c$ autour des cœurs de vortex [112]. Une interprétation similaire a été faite à partir des mesures de RMN de Mitrović et collaborateurs dans Y-123 proche du dopage optimal [113, 114].

Finalement il est aussi possible d'induire des corrélations AF statiques seulement par l'application d'un champ magnétique. Jusqu'à présent cela a été montré uniquement dans LSCO, $p \simeq 0.145$, par diffraction des neutrons [69, 115]. Les résultats obtenus par J. Chang et collaborateurs sur un échantillon de LSCO, $p = 0.145$, sont reproduits sur la figure 1.24(a). À ce dopage, et au dessus d'un champ magnétique seuil d'environ 5 T, une réponse magnétique statique est induite au vecteur incommensurable. Puisque l'intensité du pic vu par neutron est proportionnelle au moment magnétique ordonné au carré, μ^2, les données de neutrons traduisent une augmentation de μ sous champ magnétique. On peut donc présupposer que, pour $p > p_{SG}$, le champ magnétique, en induisant un moment ordonné, permette d'étendre le verre AF en déplaçant p_{SG}. Des calculs théoriques [116] dans un modèle de coexistence microscopique entre supraconductivité et antiferromagnétisme permettent de reproduire l'augmentation de l'intensité de diffraction des neutrons en fonction du champ. p_{SG} peut alors être un

point critique quantique qui se déplace avec le champ magnétique à cause d'une compétition féroce avec la supraconductivité [117]. L'ensemble de ces résultats motive l'étude dans LSCO, à plus haut champ et sur une gamme de dopage plus large, proposée dans cette thèse.

Lien avec le pseudogap et caractère générique ?

La phase verre AF décrite ici, souvent simplement nommée "onde de densité de spin" ou "verre de spin", est parfois considérée comme un épiphénomène qui n'a pas grande influence dans le diagramme de phases des cuprates. Depuis longtemps, l'ajout d'impuretés, magnétiques ou non, est connu pour affecter fortement de tels ordres (dans LSCO voir, par exemple, [118, 119]). Cela, et la propension aux stripes, a mené à la croyance que le gel AF graduel de spins est une particularité de la famille La-214, où le processus même de dopage induit un désordre important. Dans ce cadre, l'observation d'un verre AF dans Y-123 est étonnante. Y-123 est le premier cuprate où des oscillations quantiques ont été observées, et est donc considéré comme particulièrement ordonné. Néanmoins, en s'éloignant de $p \simeq 0.11$ (Ortho-II) le niveau d'ordre de Y-123 décroît rapidement [120]. Une autre observation interroge sur le rôle du désordre : la température de gel de spins, mesurée par RMN ou μSR par exemple, $T_{\rm f}$, n'augmente pas avec le niveau de désordre, comme l'on s'y attendrai naïvement. Par exemple $T_{\rm f}$ est similaire dans Y-123 ou le même composé où l'yttrium est partiellement substitué par du calcium, Ca-Y-123, impliquant pourtant un niveau de désordre plus important [121, 122]. Dans la famille La-214 $T_{\rm f}$ est à dopage similaire, plus faible, que dans Bi-2212 ou Y-123, malgré un désordre plus important [118]. Il faut néanmoins noter qu'on compare ici des composés qui ont des nombres de plans CuO_2 par cellule unité différents, et donc différents couplages (magnétiques) inter-plans. En résumé tout cela n'indique *pas* que le désordre n'a aucun rôle, mais visiblement pas le premier, et il est possible que le verre AF soit intrinsèque à la physique des cuprates.

La nature générique, ou non, du verre AF dans le diagramme de phases des cuprates est également importante. Comme décrit ici un verre AF a été observé dans Y-123 et la famille La-214. Au delà de ces familles un état verre de spins a été observé dans un autre cuprate dopé en trous, $Ca_{2-x}Na_xCuO_2Cl_2$ [123]. Des recherches pour une telle phase ont également été menées dans la famille des cuprates au bismuth. Dans le système bi-plan $Bi_{2.1}Sr_{1.9}Ca_{1-x}Y_xCu_2O_{8+\delta}$ (Bi-2212) un gel de spins a été observé par μSR [118]. Dans les composés mono-plan Bi-2201 la plupart des mesures, essentiellement par μSR, indiquent l'absence de corrélations *statiques* à basses températures [124–126]. Néanmoins dans $Bi_{2.4}Sr_{1.6}CuO_{6+\delta}$, $p \sim 0.06$, des mesures de SQUID indiquent un gel de spins à $T_{\rm g} \simeq 3$ K, lorsque des corrélations *dynamiques* AF diagonales sont observées à plus haute température par diffraction

des neutrons [127], similaire au cas de LSCO $0.02 < p < 0.05$. Tout cela ne permet pas de conclure qu'un gel de spin, dans un motif AF, est un résultat générique aux cuprates (sous-)dopés en trous, mais écarte clairement l'idée que c'est un phénomène restreint.

Le lien entre verre AF et pseudogap reste à déterminer. C. Panagopoulos et collaborateurs ont montrés qu'en ajoutant des impuretés de zinc dans LSCO le verre AF semble se terminer au point critique du pseudogap p^* [118]. La situation est incertaine en l'absence de zinc, le chapitre 6 sera l'occasion d'éclaircir ce point. Dans le composé proche Nd-LSCO, les mesures de J. Tranquada et collaborateurs [62] montrent également qu'alors le dopage critique du verre AF s'extrapole à p^*. Cela n'indique pas, bien-sûr, que pseudogap et verre AF ont même origine, les deux ayant des échelles d'énergie très différentes. Néanmoins cela semble indiquer qu'un lien, sûrement indirect, existe entre les deux et peut apporter des informations sur le pseudogap.

1.3 Quelques scénarios possibles pour la supraconductivité

Le pseudogap occupe une large partie du diagramme de phase des cuprates dopés en trous. Dans tous les scénarios possibles pour expliquer la supraconductivité dans ces matériaux il n'est donc pas étonnant que le pseudogap joue un rôle central. Concernant ce dernier la question la plus brulante actuellement est de savoir s'il est ordonné, *i.e.* avec une brisure de symétrie associée, ou non. Pour conclure ce chapitre nous allons donc discuter succinctement de quelques uns des scénarios envisageables.

1.3.1 Un pseudogap ordonné ?

Sur la figure 1.25 on compare le diagramme de phase des cuprates, en l'occurance celui de Y-123, et celui d'un autre supraconducteur non conventionnel de la famille des pnictides, $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$ (Co-Ba122). Dans le pnictide une onde de densité de spin (ODS) est affaiblie en fonction du dopage en électrons, x, et disparaît à l'intérieur du dôme supraconducteur. Dans le composé cousin, dopé en trous, $Ba(Fe_{1-x}P_x)_2As_2$ (P-Ba122), qui partage un diagramme de phase qualitativement similaire, nombres de signatures expérimentales indiquent que cette transition de phase se termine sous le dôme supraconducteur à un point critique quantique (QCP, de l'anglais Quantum Critical Point). Alors l'explication qui fait le plus de sens est que ce sont les fluctuations quantiques associées à ce QCP qui sont responsables pour l'appariement en paires de Cooper. La ressemblance entre les deux diagrammes de phases de Y-123 et Co-Ba122 est frappante. Par analogie ce qui semble jouer le rôle de l'ODS dans les cuprates est le pseudogap. Ce dernier semble, dans Y-123 et de nombreux autres cuprates, se terminer proche du dopage optimal pour la supraconductivité. Par analogie le pseudogap *doit* alors être un

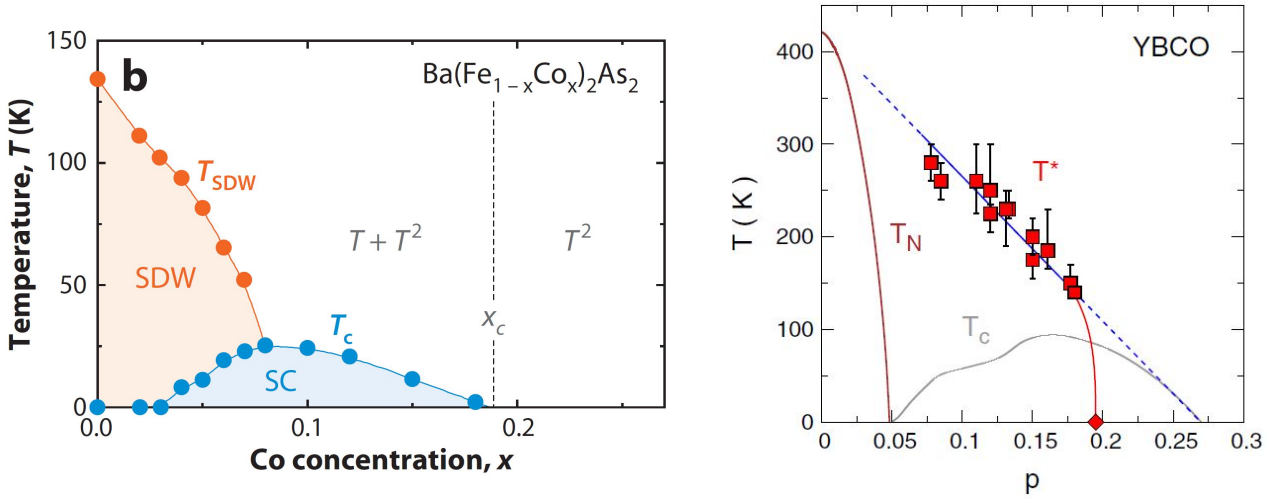

FIGURE 1.25 – Diagramme de phase température - dopage de **(a)** $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$, un pnictide dopé en électrons. Le dôme supraconducteur apparaît autour d'un supposé QCP associé à la disparition d'une ODS. Figure reproduite d'après [128]. **(b)** Y-123. Le pseudogap semble jouer le rôle de l'ODS par analogie avec le pnictide. Figure reproduite d'après [44].

état ordonné. Une multitude d'ordres différents ont été proposés jusqu'à présent, incluant des ordres de boucles de courants [129, 130], un ordre nématique [131] ou encore un ordre de charge fluctuant [89, 90].

Au delà de cette simple analogie quelques arguments expérimentaux vont dans le sens d'un pseudogap ordonné. Premièrement de nombreuses brisures de symétries de rotation et/ou de renversement du temps ont été observées proche de T^* (voir, par exemple, [130, 132–134]). Paradoxalement le fait que de nombreuses symétries différentes soient brisées rend la situation complexe. Alors qu'une brisure de symétrie par renversement du temps est cohérente avec un scénario AF, la brisure de symétrie C_4 elle semble indiquer un ordre nématique. Un second argument en faveur d'un pseudogap ordonné est l'existence même d'un *dôme* supraconducteur. Un moyen de comprendre simplement l'existence d'un tel dôme est l'existence d'une compétition entre supraconductivité et un ordre quelconque, disons le pseudogap, dans la partie sous-dopé du diagramme de phase. Cela explique alors pourquoi le pseudogap frappe le dôme supraconducteur à dopage optimal. La figure 1.26 montre un résultat expérimental dans LSCO qui va clairement dans ce sens. En substituant du cuivre pour du zinc dans LSCO, fragilisant ainsi la phase supraconductrice, le dôme se concentre de plus en plus autour de p^*. Ce résultat a également été obtenu dans Y-123, aussi bien en utilisant un champ magnétique [49] que des impuretés de zinc [135]. Finalement un dernier argument présenté ici pour un pseudogap ordonné est l'observation d'une transition de phase thermodynamique par Shekter et collaborateurs à T^* en utilisant des ultrasons résonnants (RUS, de l'anglais Resonants Ultrasound Spectroscopy) [5]. Dans cette étude est reporté un changement de pente dans la fréquence de résonance RUS (et donc d'une combinaison de

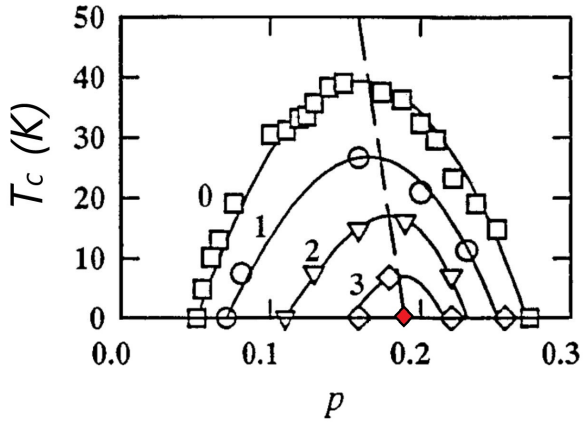

FIGURE 1.26 – Evolution du dôme supraconducteur dans $La_{2-x}Sr_xCu_{1-y}Zn_yO_4$ en ajoutant des impuretés de Zn, d'après [135]. Le diamant rouge indique p^*.

constantes élastiques) et un pic d'atténuation, tous deux attribués au pseudogap, qui coïncident également avec l'apparition de l'ordre magnétique observé par diffraction des neutrons [130]. Néanmoins ce résultat repose sur seulement deux échantillons de Y-123 et est controversé puisque, entre autres, aucune anomalie associée n'a été observée pour l'heure en chaleur spécifique [136]. Il a été proposé, pour l'échantillon le plus dopé, que les anomalies ultrasonores soient dues à une relaxation des oxygènes dans les chaines CuO [136]. Aucune évidence pour une telle transition de phase n'a été observée durant cette thèse pour les différentes constantes élastiques mesurées au travers de p^* dans LSCO et Y-123.

Criticalité quantique ?

Dans certains, mais pas tous, les scénarios d'un pseudogap ordonné, celui-ci se termine à un QCP situé sous le dôme supraconducteur. Dans certains supraconducteurs non conventionnels un tel QCP sous le dôme supraconducteur ne fait guère de doute. Un parfait exemple est le pnictide mentionné ci-dessus P-Ba122 [137]. Dans ce contexte des signatures de criticalité quantique sont recherchés depuis longtemps dans les cuprates. Un résultat récent particulièrement intéressant est l'observation d'une divergence, du moins un pic étroit, de la chaleur spécifique électronique, C_{el}, à basse température et précisément à p^* dans Nd-LSCO et Eu-LSCO [138]. En diminuant la température vers le zero absolu au dessus d'un QCP la masse effective électronique diverge, l'énergie cinétique des électrons tend à s'annuler [139]. Un pic dans C_{el} à basse température est alors une claire indication d'un QCP. En parallèle est attendu un comportement singulier des quantités thermodynamiques. La variation attendue pour la chaleur spécifique, $C_{el} \propto T\log(T)$, a également été observée dans cette même étude. Le comportement "étrange" de la résistivité électrique est également souvent mentionné pour motiver la présence d'un QCP à p^*. Dans de nombreux systèmes où l'existence d'un QCP ne fait plus de doutes la résistivité électrique montre un comportement linéaire en T dans la limite $T \to 0$. Ce comportement

est observé dans de nombreux fermions lourds, supraconducteurs organiques et pnictides proche de la disparition de l'ordre AF sous le dôme supraconducteur.

Malgré ces arguments en faveur d'un pseudogap ordonné se terminant en un QCP à p^* d'autres observations permettent de douter de son existence. Tout d'abord il est utile de rappeler que même s'il existe un QCP précisément à p^* cela ne signifie pas que le pseudogap lui même est ordonné. Comme nous l'avons décrit précédemment, dans certains composés, incluant Nd-LSCO, un verre AF semble se terminer à p^*. C'est une explication alternative crédible pour expliquer les mesures de chaleur spécifique. Nous reviendrons sur ce point dans le chapitre 6. Ensuite concernant les évidences de criticalité quantique elles mêmes. La comparaison avec un système comme P-Ba122, où un QCP existe bel et bien, montre que le cas des cuprates est particulièrement atypique [137]. Dans le diagramme de phases des cuprates, en partant de la région fortement sur-dopé, la résistivité linéaire en T est observée dès lors que $p < p_{SC,2}$, *i.e.* en atteignant la phase supraconductrice, et non à et/ou proche de p^* [128]. Le cas de LSCO est frappant, une résistivité linéaire en T est observée sur une gamme de dopage très large [140]. Si un QCP existe à p^* il ne semble donc pas conventionnel. Concernant le pic de C_{el} à p^*, jusqu'à présent ce dernier a été uniquement observé dans (Nd, Eu)-LSCO et il reste donc à déterminer si c'est une propriété générique des cuprates. Finalement une longueur caractéristique divergente à p^*, attendue pour un QCP, est toujours manquante.

1.3.2 Des paires préformées ?

Dans certains modèles du pseudogap celui-ci ne brise aucune symétrie. Les symétries brisées observées expérimentalement proche de T^* sont alors de simples instabilités du pseudogap. Une des premières idées pour le pseudogap a été que celui-ci est un précurseur de la phase supraconductrice, avec la formation de paires de Cooper à T^* mais une cohérence de phase macroscopique, et donc une supraconductivité, uniquement à T_c [30]. Plusieurs sondes semblent indiquer des fluctuations supraconductrices pour $T \gg T_c$. C'est le cas des mesures d'effet Nernst [45, 46] mais également, par exemple, des mesures thermodynamiques de torque et d'aimantation [141]. L'évolution très graduelle entre le pseudogap et le gap supraconducteur vue notamment par ARPES va également dans ce sens. Le cas de Bi-2201 où p^* semble se trouver proche de $p_{SC,2}$ est un autre argument en faveur d'un pseudogap précurseur de la supraconductivité. La diminution des susceptibilités statiques et dynamiques pour $T \gg T_c$ peut également être une indication que des singlets de spins sont formés bien avant l'apparition de la supraconductivité. L'argument le plus évident en défaveur d'un tel scénario est la disparition du pseudogap à l'intérieur même de la phase supraconductrice observée dans de nombreux composés.

Chapitre 2

Technique et environnement expérimental

Ce chapitre est organisé en deux parties. Dans une première partie on décrit la technique expérimentale utilisée dans cette thèse : la méthode ultrasonore "Pulse-Echo". Cette méthode permet de mesurer les constantes élastiques et l'atténuation d'un solide. Une description théorique de ces grandeurs est proposée dans le chapitre 3. Dans une seconde partie nous présenterons les environnements extrêmes des champs magnétiques intenses statiques (du site Grenoblois du LNCMI) et pulsés (du site Toulousain du LNCMI) nécessaires à la plupart des mesures de cette thèse.

2.1 Technique Pulse-Echo ultrasons

L'objet de cette partie est de décrire la technique expérimentale utilisée. De nombreuses méthodes très différentes existent pour mesurer la vitesse et l'atténuation d'ondes acoustiques. Dans le cas des solides on peut citer par exemple la "Resonant Ultrasound Spectroscopy" (RUS), la "Vibrating Reed Technique" ou encore la méthode "Pulse-Echo" utilisée dans cette thèse. Chaque technique a ses avantages et inconvénients en termes de contraintes sur la géométrie des échantillons, de précisions relative et absolue, de gamme de fréquence, etc. Une description des différentes méthodes est donnée dans la référence [142]. On n'abordera ici la méthode Pulse-Echo que de manière très succincte. Une description plus complète est disponible dans la thèse [143]. Une présentation détaillée de la mesure d'atténuation et des situations expérimentales à éviter se trouve dans [144].

2.1.1 Principe de la mesure

Le principe de base de la méthode Pulse-Echo est décrit sur la figure 2.1. Cette méthode ne permet qu'une mesure *relative* de l'atténuation et de la vitesse ultrasonore. Un cristal piézoélectrique, aussi appelé transducteur, collé à l'échantillon est excité électriquement afin de créer une onde acoustique qui se propage dans l'échantillon à une fréquence imposée f. La propagation se fait selon la direction du

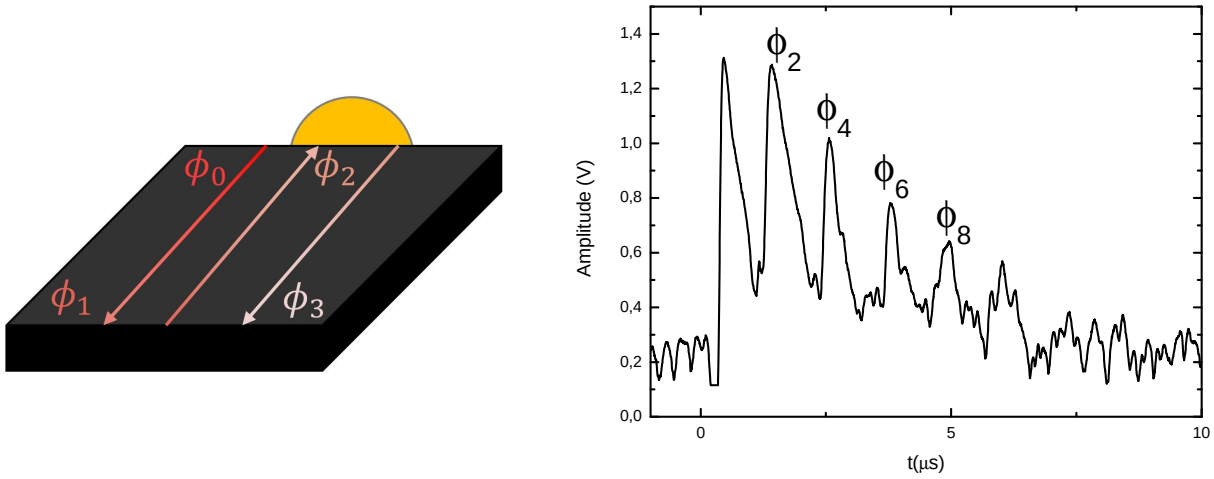

Figure 2.1 – **Gauche :** Schéma de principe d'une mesure Pulse-Echo avec un seul transducteur. La forme noire représente l'échantillon, le rond doré un transducteur. Le dégradé de couleur montre la perte d'amplitude de l'onde acoustique causée par l'atténuation du solide. ϕ_n correspond à la phase de l'onde acoustique du nième écho. **Droite :** Motif d'échos successifs obtenus expérimentalement sur un échantillon de LSCO, $p = 0.188$, pour une fréquence de 166 MHz. Le premier pic, proche de t=0, correspond à l'excitation électrique du transducteur et n'est donc pas un écho. L'indexation des échos est cohérente avec le schéma de gauche. La décroissance linéaire (et non pas exponentielle) de l'amplitude des échos provient de l'utilisation d'un amplificateur logarithmique (*cf.* 2.1.2).

vecteur d'onde $\vec{k}$ perpendiculaire à la surface du transducteur, avec une polarisation $\vec{e}$ caractéristique du transducteur utilisé et de son emplacement sur l'échantillon. L'onde est réfléchie sur les surfaces planes de l'échantillon et effectue des allers-retours dans l'échantillon dont le nombre dépend, notamment, de l'atténuation ultrasonore du matériau. Le piézoélectrique peut servir à la fois d'émetteur et de récepteur, et c'est ce qui a été fait dans la plupart des mesures de cette thèse.

La principale originalité de la méthode Pulse-Echo est qu'elle ne requiert pas l'établissement d'une onde acoustique stationnaire dans l'échantillon. Le transducteur n'est excité par un signal sinusoïdal de pulsation $\omega = 2\pi f$ que pendant un temps court, typiquement 100 ns. C'est le "*pulse*". Durant la propagation de l'onde acoustique dans l'échantillon cette dernière acquiert une phase qui dépend du chemin parcouru. L'onde est essentiellement plane, bien que nous allons voir qu'en pratique ce n'est pas parfaitement réalisé. Notons $A(t, \omega)$ l'onde mécanique produite par le transducteur :

$$A(t, \omega) = A_0(\omega) e^{i\omega t} \tag{2.1}$$

Après avoir parcouru une distance x dans l'échantillon l'onde acoustique s'écrit :

$$A(t', \omega) = A_0(\omega) e^{i(\omega t' - kx)} e^{-\frac{1}{2}\alpha t'} \tag{2.2}$$

α est le coefficient d'atténuation, ici exprimé en s^{-1}, qui mesure la perte d'amplitude de l'onde acous-

tique dans le solide. Le facteur 1/2 vient du fait que l'atténuation mesure une perte d'énergie de l'onde acoustique, qui est proportionnelle au carré de son amplitude. La phase acoustique de l'onde après avoir parcouru n fois la longueur de l'échantillon L_0 est :

$$\phi_n = nkL_0 = n\frac{\omega}{v}L_0 \tag{2.3}$$

v étant la vitesse du son dans le solide. La différentiation de cette dernière relation donne la relation de principe de la mesure :

$$\frac{d\phi_n}{\phi_n} = \frac{d\omega}{\omega} - \frac{dv}{v} + \frac{dL_0}{L_0} \tag{2.4}$$

Dans cette dernière formule le terme dL_0/L_0, qui correspond à la variation de longueur de l'échantillon (la dilation thermique dans le cas de mesure en température ou bien la magnétostriction pour une mesure en champ magnétique), est généralement négligeable. Uniquement dans ce cas cette relation a deux implications. La première est que lorsque la fréquence d'excitation est fixe alors la variation relative de vitesse est directement proportionnelle à la variation relative de la phase acoustique : $\Delta v/v = -\Delta\phi_n/\phi_n$. C'est ce principe qui est utilisé lors des mesures en champs magnétiques pulsés. Si, au contraire, on laisse fixe la phase de l'onde acoustique en ajustant la fréquence d'excitation alors la variation relative de vitesse est directement égale à celle de la fréquence d'excitation : $\Delta v/v = \Delta\omega/\omega$. Cette dernière méthode nécessite donc de faire varier continument la fréquence d'excitation par l'intermédiaire d'une boucle de rétroaction PID (Proportionnelle Intégrale Dérivée), elle est dite de *"Phase Lock"*. Les temps d'itérations relativement long de ces boucles PID rend cette technique inadaptée pour les mesures en champs pulsés mais parfaitement utilisable en champs statiques. C'est cette dernière méthode qui est mise en pratique sur le spectromètre ultrasons utilisé à Grenoble durant cette thèse.

Le coefficient d'atténuation, α, quant à elle peut être directement extraite du motif d'échos. Un ajustement exponentiel de ce dernier donne directement α. Sur la figure 2.1 cette décroissance est linéaire à cause de l'utilisation d'un amplificateur logarithmique. On peut également se concentrer sur un écho donné et mesurer son amplitude en fonction d'un autre paramètre (température, champ magnétique...) pour extraire la variation de l'atténuation. On verra par la suite que dans tous les cas une mesure absolue de l'atténuation n'est pas possible, on peut seulement extraire de manière fiable une variation d'atténuation.

2.1.2 Spectromètre ultrasons

Dans la sous-partie 2.1.1 nous avons décrit le principe général de la mesure Pulse-Echo. Le but ici est de décrire les détails de l'électronique nécessaire pour mettre en œuvre la mesure. Comme indiqué ci-dessus deux méthodes légèrement différentes ont été utilisées durant cette thèse suivant que les mesures soient effectuées en champs magnétiques pulsés à Toulouse ou bien en champs statiques ou nul à Grenoble. Les spectromètres ultrasons correspondants sont donc également légèrement différents. Ici le choix est fait de décrire le spectromètre ultrasons utilisé en champs pulsés.

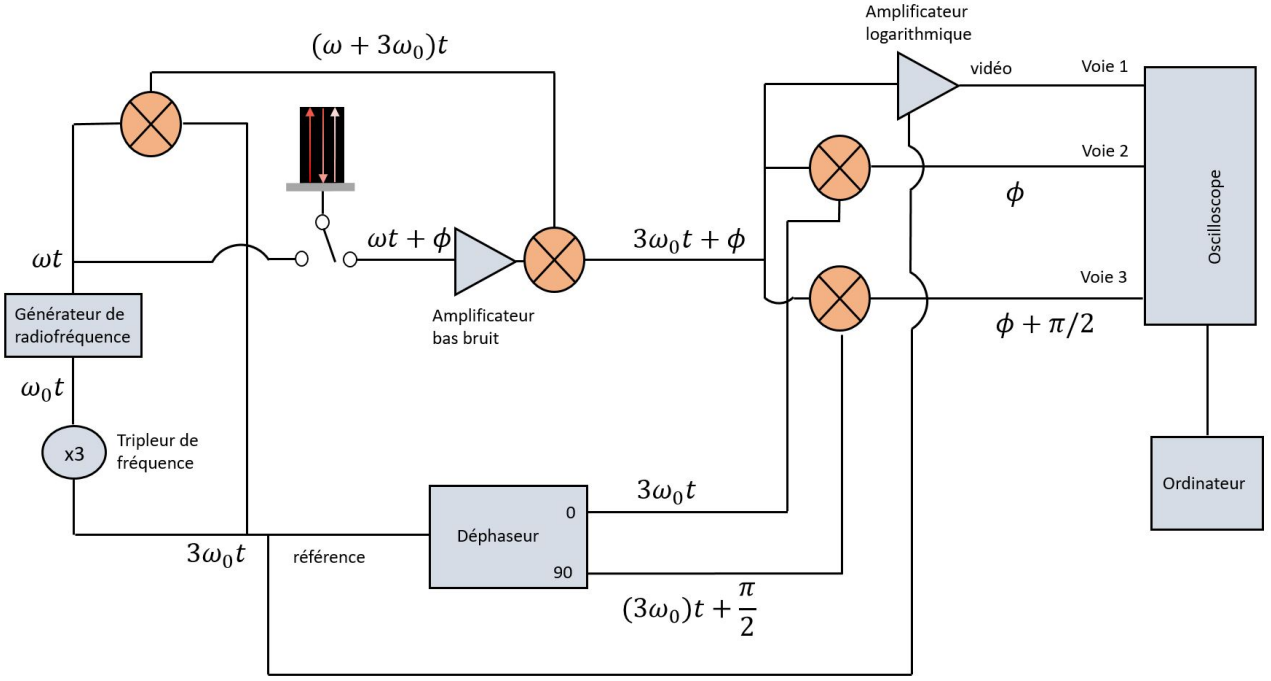

Figure 2.2 – Schéma de principe simplifié du spectromètre ultrasons du LNCMI-T. La fonction des différents élements gris est indiqué directement sur la figure. Les ronds oranges barrés symbolisent deux éléments au moins : un mixeur et un filtre. La phase des différents signaux électriques est indiqué sur la figure. Tous les éléments se trouvent dans le spectromètre ultrasons, exception faite de l'échantillon, en noir, et du transducteur collé dessus, en gris. Une description détaillée se trouve dans le texte principal.

La figure 2.2 présente le schéma de principe de ce spectromètre ultrasons. Avant de rentrer dans les détails de son fonctionnement il est nécessaire d'en décrire le composant le plus important : le mixeur. Un mixeur est un composant électronique servant à multiplier deux signaux de pulsation donnée. Prenons deux signaux A et B déphasé de ϕ :

$$A(t) = A_0 \sin(\omega_A t + \phi) \tag{2.5}$$

$$B(t) = B_0 \sin(\omega_B t) \tag{2.6}$$

Un mixeur idéal multiplie ces deux signaux :

$$AB(t) = \frac{1}{2}A_0B_0[\cos((\omega_A - \omega_B)t + \phi) - \cos((\omega_A + \omega_B)t + \phi)] \tag{2.7}$$

On obtient donc en sortie un signal a deux composantes de fréquences différentes. La première a une fréquence qui est la différence de celles des deux signaux entrants, la seconde leur somme. L'utilisation de filtres permet d'isoler une seule composante. Le système combiné mixeur et filtre permet donc d'ajuster la fréquence d'un signal, par exemple pour le faire correspondre à une certaine bande passante. Ce système est symbolisé par le rond orange barré sur la figure 2.2.

Décrivons maintenant le fonctionnement du spectromètre ultrasons. Un schéma de principe simplifié se trouve sur la figure 2.2. À gauche on trouve le générateur de signal radiofréquence qui fournit deux signaux : un signal de référence à ω_0 et un signal à la pulsation ω. Le signal à ω_0 correspond à une fréquence de 10 MHz et passe par un tripleur de fréquence pour devenir $3\omega_0 = 30$ MHz. L'utilisation de ce signal de référence est nécessaire car de nombreux éléments du spectromètre (amplificateur logarithmique, mixeurs, filtres, etc.) ont une bande passante autour de 30 MHz. La pulsation ω elle correspond à la fréquence de l'onde acoustique qui traverse l'échantillon, et est typiquement comprise entre 10 MHz et 500 MHz.

Le signal électrique à ω excite le transducteur collé sur l'échantillon pendant une durée donnée, grâce à un commutateur (voir figure 2.2). Typiquement c'est environ 100 ns. Après ce temps d'excitation le commutateur passe en position de réception. Le signal, c'est à dire l'excitation et les échos successifs, passe alors par un amplificateur bas bruit. Ce signal a maintenant une phase de $\omega t + \phi$, où ϕ est la phase acquise durant le trajet dans l'échantillon (*cf.* 2.1.1).

Il faut maintenant modifier cette pulsation ω pour se rapprocher de la fréquence optimale du spectromètre $3\omega_0$. Pour cela le signal à $\omega t + \phi$ est multiplié avec un second à $(\omega + 3\omega_0)t$. On obtient alors un signal à deux composantes : le premier à $(2\omega + 3\omega_0)t + \phi$ et le second à $3\omega_0 t + \phi$. Seul le second nous intéresse, on filtre donc le premier à l'aide d'un filtre passe bas. Le signal maintenant obtenu est à la bonne fréquence pour être traité par l'amplificateur logarithmique. Ce signal passe donc par ce dernier. À la sortie vidéo de celui-ci, après une démodulation à $3\omega_0$, on obtient le motif d'échos (voir par exemple la figure 2.1) qui est affiché sur une première entrée de l'oscilloscope. En enregistrant ce motif d'échos on a directement accès à une valeur d'atténuation.

On est maintenant rendu avec un signal à $3\omega_0 t + \phi$, duquel l'on veut extraire simplement ϕ pour connaître la variation de vitesse du son dans notre solide. L'idée pour connaître ϕ va être maintenant d'extraire deux signaux : $Q = \cos\phi$ et $I = \sin\phi$. Sans perdre en généralité supposons que tous les signaux dont nous parlions jusqu'à présent étaient des sinus d'amplitude 1.

En multipliant le signal $\sin(3\omega_0 t + \phi)$ avec le $\sin(3\omega_0 t)$ qui sort du tripleur de fréquence on obtient :

$\frac{1}{2}[\cos(\phi) - \cos(6\omega_0 t + \phi)]$. Il n'y a plus qu'à utiliser un filtre passe bas pour extraire le signal Q. Pour extraire le signal I on procède de la même manière mais cette fois en utilisant un signal $\cos(3\omega_0 t)$ et non $\sin(3\omega_0 t)$. Il est obtenu par l'intermédaire d'un déphaseur "$\pi/2$" et du $\sin(3\omega_0 t)$ de référence comme indiqué sur la figure 2.2.

Finalement le signal est affiché à l'aide d'un oscillospe. On acquiert donc : le motif d'échos, Q et I en fonction du temps. Pendant un tir de champ magnétique pulsé à Toulouse (voir 2.2.1) l'ensemble de ces données est stocké temporairement dans la mémoire de l'oscilloscope. Juste après le tir les données sont transférées de l'oscilloscope à un ordinateur, qui sert également à traiter les données. Pour extraire ϕ et donc la variation relative de vitesse du son il n'y a plus qu'à faire l'opération $\phi = \arctan(I/Q)$.

2.1.3 Préparation des échantillons

La mise en oeuvre expérimentale de la technique pulse-écho est très contraignante en terme de préparation et de géométrie d'échantillons. L'objet ici est de décrire les différents éléments (transducteur, colle, etc.) et les techniques (orientation, découpe, etc.) nécessaires pour préparer les échantillons.

Orientation et découpe

L'ensemble des échantillons mesurés dans cette thèse ont été synthétisés en utilisant des fours à image, par méthode de fusion de zone. Les échantillons de YBCO ont été synthétisés par J. Porras et T. Loew au Max Planck Institute de Stuttgart (MPI, Allemagne). Les échantillons de LSCO eux proviennent soit de S. Ono (Central Research Institute of Electric Power Industry, Japon) ou de M. Momono (Faculty of Science, Hokkaido University, Japon) et T. Kurosawa (Muroran Institute of Technology, Japon).

Afin d'étudier des modes acoustiques bien définis (le concept sera introduit en 3.1), et d'appliquer le champ magnétique selon un axe particulier, il est nécessaire d'orienter l'échantillon. Cette première étape indispensable a été effectué avec l'aide de J. Debray à l'institut Néel de Grenoble pour tous les échantillons de LSCO de cette thèse. Concernant les échantillons de YBCO ces derniers ont été fournis orientés.

Pour l'orientation des échantillons de LSCO nous avons suivi le protocole suivant. L'échantillon est fixé sur un porte-échantillon goniométrique. L'ensemble se trouve tout d'abord à l'intérieur d'un diffractomètre Laue en géométrie de retrodiffusion. L'indexation numérique de clichés de Laue permet

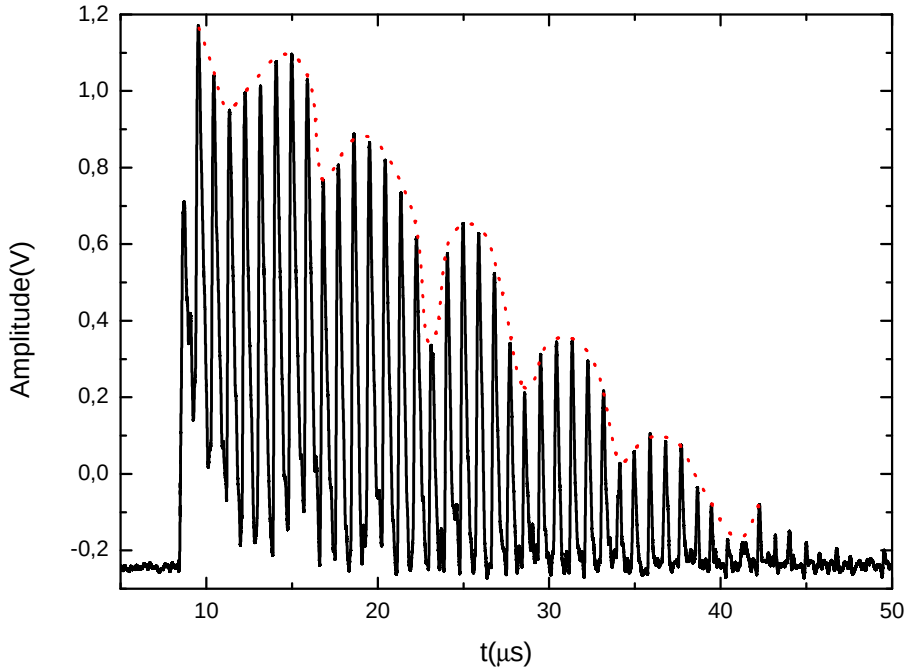

FIGURE 2.3 – Observations de motifs d'interférences dans le cas de faces légèrement désorientées. L'effet est mieux observé sur un échantillon présentant un grand nombre d'échos, ici un échantillon du fermion lourd URhGe. La ligne pointillé rouge est un guide à l'œil pour mieux mettre en évidence le phénomène.

de connaître l'orientation de l'échantillon. Une correction d'angle est appliqué au porte-échantillon goniométrique, compatible également avec une scie à fil, de manière à découper l'échantillon selon un plan cristallographique déterminé. La vitesse de découpe de la scie à fil dépend de nombreux facteurs, elle est ajusté de manière à être assez lente, afin de ne pas appliquer une contrainte trop forte à l'échantillon. Après l'ensemble de ces étapes on obtient un échantillon découpé selon des axes cristallographiques bien définis, permettant d'accéder à un ensemble de modes acoustiques. La précision sur l'orientation est de l'ordre du degré, essentiellement grâce à la compatibilité du porte-échantillon entre le diffractomètre Laue et la scie à fil.

Géométrie et surfaces de l'échantillon

Afin que l'onde acoustique soit bien réfléchie aux interfaces de l'échantillon il est nécessaire de les polir. En effet la longueur d'onde λ de l'onde acoustique doit être grande devant la taille des défauts de surface pour éviter toute diffusion aux extrémités. Pour une fréquence de 100 MHz et une vitesse typique dans un solide de $v = 5$ km/s, la longueur d'onde est de $\lambda = 50$ μm. En pratique le polissage est une étape très fastidieuse effectuée à la main avec des papier d'alumine Al_2O_3 de taille de grains de plus en plus faible. La taille du dernier grain utilisé est de 0.3 μm.

Lors de cette étape de polissage il est nécessaire de corriger la géométrie de l'échantillon. De nombreux problèmes peuvent survenir si cette dernière n'est pas contrôlée.

Tout d'abord il est nécessaire que les faces sur lesquelles se réfléchit l'onde acoustique soient bien parallèles entre elles. Une désorientation entre deux faces normalement parallèles entraîne (au moins) deux problèmes. Le premier est l'apparition d'un phénomène d'interférences. En effet différents faisceaux de l'onde acoustique vont parcourir différentes longueurs dans l'échantillon. Il en résulte différentes phases acoustiques pour ces différents faisceaux et des interférences constructives et destructives entre eux en fonction de la longueur parcourue (donc du temps) et de la fréquence. Le motif d'échos observé expérimentalement présente une surmodulation. Ce phénomène est visible sur la figure 2.3. Le deuxième problème provient du fait que dans le cas de faces désorientées un faisceau de l'onde acoustique ne va pas revenir exactement au même endroit après une réflexion sur la face opposée de l'échantillon. Pour ces deux raisons un mauvais parallélisme induit donc un terme supplémentaire d'atténuation.

Un autre effet géométrique est plus difficilement évitable. Pour le comprendre il faut considérer que l'onde acoustique a une composante sphérique (nous verrons plus tard pourquoi). Au fur et à mesure de sa propagation dans l'échantillon elle s'étale donc dans l'espace. Quand elle revient au niveau du transducteur cet étalement provoque une atténuation mesurée plus grande que celle intrinsèque au matériau. Cet étalement de l'onde acoustique provoque également un autre effet bien plus préjudiciable. L'onde peut éventuellement se réfléchir sur les surfaces latérales de l'échantillon, à la manière de photons dans une fibre optique, comme visible sur la figure 2.4. Les différents faisceaux parcourent alors des distances différentes et interfèrent comme dans le cas précédent du défaut de parallélisme. Cet effet a été calculé pour des géométries simples [144] et peut être très important. Il faut donc veiller à avoir l'onde la plus plane possible, nous en discuterons dans la suite.

Suite à une étape de polissage rondement menée on obtient un échantillon typiquement sous la forme d'un parallélépipède rectangle avec des faces bien parallèles et avec une rugosité de surface de l'ordre de 0.3 μm. La taille de l'échantillon ne va maintenant plus varier. Cette taille est critique. Pour que la mesure soit possible plusieurs conditions doivent être remplies.

Tout d'abord il existe une longueur critique sur laquelle l'onde acoustique doit se propager le long de l'échantillon avant d'être réfléchie. En effet si cette longueur est trop courte alors les différents échos se recouvrent et toute mesure de vitesse et d'atténuation est impossible. En d'autres termes il est nécessaire que la largeur temporelle d'un écho soit inférieure à l'intervalle de temps entre deux échos. Cette condition est remplie lorsque :

$$\frac{2L}{v} > \Delta t \tag{2.8}$$

Ici v est la vitesse du son dans le solide, L la longueur de l'échantillon dans l'axe mesuré et Δt la largeur

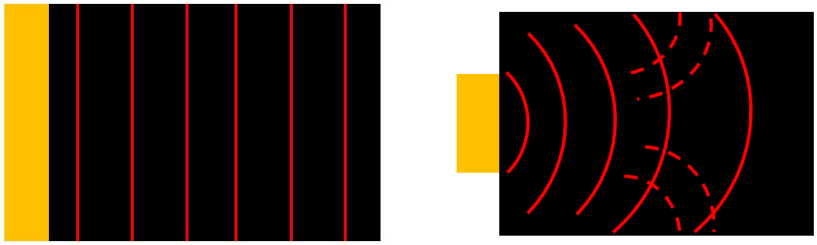

Figure 2.4 – Mise en évidence de l'effet de diffraction. Le transducteur est en jaune, l'échantillon en noir. Les lignes ou courbes rouges représentent le front de l'onde acoustique. **Gauche :** Cas d'un transducteur de géométrie adaptée, l'onde émise est bien plane. **Droite :** Cas d'un transducteur trop petit, le transducteur se comporte comme un émetteur d'onde sphérique. Cela entraîne des effets d'interférences et rend impossible la mesure d'atténuation absolue (voir texte).

temporelle d'un écho. Le terme de gauche correspond au temps entre 2 échos, le facteur 2 provient du fait que l'onde doit traverser deux fois l'échantillon avant de rencontrer à nouveau le transducteur. Pour une vitesse de 5 km/s et en considérant que $\Delta t = 100$ ns, la largeur temporelle du signal d'excitation, on obtient une longueur minimale de $L = 250$ μm. En pratique cette longueur de propagation minimale est plutôt de l'ordre de $L \simeq 1$ mm car la largeur temporelle d'un écho est supérieure à celle du signal d'excitation (ce point sera expliqué par la suite, voir figure 2.5).

Les longueurs perpendiculaires à la direction de propagation sont également importantes. La surface du transducteur doit correspondre approximativement à celle de la surface sur laquelle il est collé, comme indiqué sur la figure de gauche 2.4. Si le transducteur a une surface trop importante le couplage transducteur/échantillon sera mauvais. L'onde acoustique produite par le transducteur ne sera pas transmisse efficacement à l'échantillon. Si au contraire le transducteur est petit par rapport à la surface de l'échantillon alors des effets de diffraction vont apparaître (*cf.* figure 2.4). Le transducteur peut alors être considéré comme une source ponctuelle d'onde sphérique. Comme précédemment décrit cela va modifier l'atténuation. En pratique néanmoins il arrive qu'une seule partie de l'échantillon soit capable de transmettre l'onde acoustique [1], il est alors indispensable de coller le transducteur sur une partie de la surface correspondante en s'accommodant de cet effet de diffraction.

En résumé la préparation des échantillons est une étape clef. Il est nécessaire que :

1. La longueur de propagation dans l'échantillon soit supérieure à $L \simeq 1$ mm.
2. La surface du transducteur soit de l'ordre de celle de l'échantillon sur laquelle il est collé.
3. Les surfaces soient polies jusqu'à une rugosité $\ll 50$ μm.
4. Les surfaces sur lesquelles les échos se réfléchissent soient parallèles entre elles.

1. La présence de défauts cristallins, parois de domaines, fissures, dans certaines parties d'un échantillon est rédhibitoire au signal ultrasons. On colle alors le transducteur de manière à éviter autant que possible ces zones.

Si une des conditions n'est pas respectée la qualité du signal est dégradée et des sources d'atténuations extrinsèques au matériau apparaissent : l'atténuation absolue n'est plus fiable. Cependant ces phénomènes ne dépendent pas de la température (du moins à basse température) et une mesure de l'atténuation *relative* intrinsèque au solide étudié est toujours possible.

Transducteur et collage

La dernière étape de préparation de l'échantillon est le collage d'un transducteur. C'est une étape rapide mais certainement la plus critique, et qui contient une part de chance. Il est temps de décrire rapidement les transducteurs puis le collage qui permet de faire le lien avec l'échantillon.

Tout d'abord concernant le transducteur. Il est généralement obtenu à partir d'un solide piézoélectrique qui convertit une excitation mécanique en excitation électrique, et vice versa. Les deux matériaux les plus courants sont le quartz, et $LiNbO_3$ utilisé dans cette thèse. Le solide piézoélectrique est découpé selon une orientation donnée pour émettre une onde longitudinale ($\vec{k} \parallel \vec{e}$) ou bien transverse ($\vec{k} \perp \vec{e}$). Un transducteur "X-cut" produit une onde quasi-longitudinale, un "Y-cut" une onde transverse. Il existe aussi d'autres transducteurs qui tirent profit de l'effet de magnétostriction.

Le transducteur est un système résonant. Sa fréquence fondamentale dépend de son épaisseur. En appliquant des conditions périodiques aux bords on s'aperçoit que $\lambda/2 = e$ où λ est la longueur d'onde à la fréquence de résonance f_0 et e l'épaisseur du transducteur. Expérimentalement les transducteurs utilisés sont cylindriques, pour pouvoir appliquer ces conditions aux bords il est donc nécessaire que le diamètre du transducteur soit grand devant son épaisseur. C'est le cas en pratique : le diamètre typique est de 2 mm pour une épaisseur de 0.2 mm. C'est aussi cette géométrie qui permet de produire une onde quasi-plane. Il est aussi possible de travailler aux harmoniques impairs de la fréquence de résonance : $3f_0, 5f_0, 7f_0$... Cela nécessite un traitement particulier de la surface des transducteurs appelé "Overtone Polish". Les transducteurs commerciaux utilisés dans cette thèse ont subi ce traitement.

Lorsque l'onde acoustique atteint le transducteur ce dernier convertit alors une partie de l'énergie acoustique en énergie électrique. Plus la constante de couplage électromécanique du transducteur est forte plus cette conversion est importante. Ce phénomène produit une atténuation indésirable de l'onde acoustique. Le choix de $LiNbO_3$ repose entre autres sur le fait que cette constante de couplage est faible.

Finalement concernant ces transducteurs, ils peuvent continuer d'osciller bien après le signal d'excitation. C'est le phénomène de "*ringing*". L'élargissement du pic d'excitation (voir figure 2.1) peut empiéter sur les premiers échos enregistrés. Le ringing ajoute un background au motif d'échos, indépendant de la température lorsqu'elle est suffisamment faible. Une méthode possible pour réduire cet effet

indésirable est d'augmenter le facteur de qualité Q du transducteur, et donc d'affiner sa résonance, en l'alourdissant.

Le transducteur doit être solidaire de l'échantillon. Le choix de la colle est primordial. Si l'on veut transmettre une onde transverse cette colle doit être solide (une onde transverse ne se propage pas dans les liquides, *cf.* section 3.1) à la température d'intérêt. La principale difficulté est de conserver un bon couplage entre l'échantillon et le transducteur jusqu'aux plus basses températures. La colle a un coefficient de dilatation thermique différent de celui du transducteur et de manière plus critique de celui de l'échantillon. Lors d'un cycle thermique des contraintes s'appliquent, il n'est pas rare qu'après plusieurs cycles un collage casse et/ou que le signal ultrasonore se détériore. En pratique plusieurs stratégies sont possibles pour maximiser ses chances d'avoir un collage (relativement) robuste :

— Utiliser une colle liquide à température ambiante (ou juste au dessus) qui se solidifie à plus basse température. Le but ici est de minimiser la plage de température sur laquelle les efforts s'appliquent et d'avoir un collage non permanent, pratique à retirer. De nombreuses solutions existent, par exemple : Phenyl Salicylate (Salol), Phenyl Benzoate, graisse à vide,... [2]

— Utiliser une colle très dure. L'idée est que la colle ne casse pas malgré les contractions thermiques. C'est cette stratégie que nous avons suivis pour les mesures de cette thèse. Nous avons utilisé de l'époxy bicomposante de la marque UHU®. Retirer le transducteur est moins pratique que dans le cas précédent mais toujours possible en utilisant de l'acétone.

La couche de colle entre le transducteur et l'échantillon doit être la plus fine et homogène possible. Cela dans le but d'optimiser la qualité du couplage entre échantillon et transducteur. La figure 2.5 montre l'influence de la colle dans la propagation de l'onde acoustique. Le transducteur, la couche de colle et le matériau ont tous trois une impédance acoustique donnée. Il y a donc des probabilités de réflexions et de transmission finies aux différentes interfaces. Comme mis en évidence sur la figure 2.5 pour un même écho il y a une multitude de chemins différents possibles, plus ou moins longs. Cela implique une déformation de la forme de l'écho et rend sa largeur temporelle plus importante que celle du signal d'excitation [3]. Pour minimiser ce problème il est important que l'impédance acoustique du solide soit bien différente de celle de la colle et du transducteur et la couche de colle la plus fine possible.

2. Et d'autres plus originales : Miel, et même "nose grease"...

3. C'est une des raisons pour laquelle la longueur minimale de propagation n'est pas 0.25 mm mais bien environ 1 mm pour pouvoir distinguer les échos entre eux.

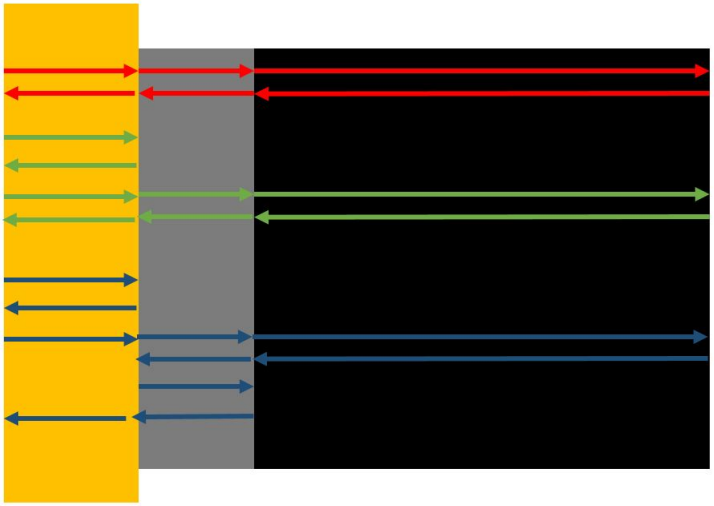

Figure 2.5 – Mise en évidence des effets d'impédances acoustiques finies. Les différents éléments sont similaires à la figure 2.4. La rectangle gris représente la couche de colle. Les trois chemins rouge, vert et bleu de l'onde acoustique représentent tous le premier écho. Le chemin rouge est le plus direct possible, le vert contient une réflexion supplémentaire dans le transducteur, le bleu deux réflexions supplémentaires : une dans le transducteur et une dans la couche de colle. Ces différents chemins correspondent à des temps différents, et donc élargissent temporellement le premier écho.

2.2 Champs magnétiques intenses

La méthode Pulse-Echo tout juste décrite a l'immense avantage d'être compatible avec les environnements des champs magnétiques intenses, statiques et pulsés. Cette section aborde ces environnements nécessaires aux mesures de cette thèse. Nous décrirons en particulier les difficultés et contraintes des mesures en champs magnétiques pulsés. L'environnement des champs statiques, moins contraignant, sera moins développé.

2.2.1 Champs pulsés du LNCMI-Toulouse

Lorsque l'on veut atteindre des champs magnétiques supérieurs à 45 T de manière non destructive la seule solution possible est celle des champs pulsés. Cette technique permet d'atteindre des champs de l'ordre de 100 T sur des impulsions de l'ordre de 100 ms avec une durée proche du champ maximal beaucoup plus faible. L'utilisation d'une telle technique nécessite donc que la physique, et la mesure expérimentale, se passent sur des échelles de temps plus petites que ~ 1 ms.

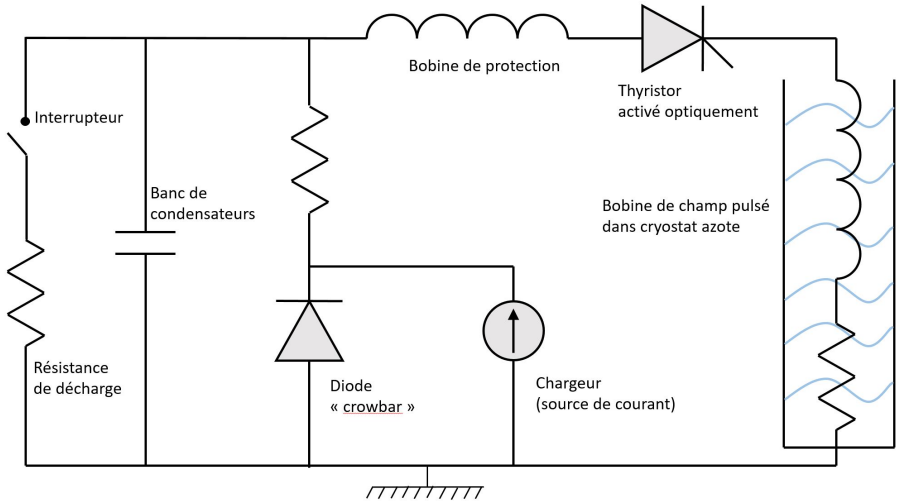

Figure 2.6 – Schéma de principe simplifié de la production de champs pulsés au LNCMI-Toulouse. La bobine de champ magnétique pulsé se trouve plongée dans de l'azote liquide (vagues bleues). Une description de la méthode de production des champs pulsés se trouve dans le texte principal.

Production du champ magnétique

Toutes les mesures effectuées en champs pulsés présentées dans ce manuscrit ont été faites sur les installations du LNCMI-Toulouse. Le principe de production est celui des champs magnétiques pulsés dit "crowbar" [145]. Un schéma de principe simplifié est proposé sur la figure 2.6. Une source de courant continue permet de charger un banc de condensateurs de capacité totale $C \simeq 48$ mF jusqu'à une tension maximale de 24 kV. Plusieurs chargeurs sont disponibles, deux différents ont été utilisés pour les mesures de ce manuscrit, un premier permettant d'emmagasiner 14 MJ d'énergie électrique, le second 6 MJ. Une fois que le banc de condensateurs est chargé à la tension désirée, un signal optique est envoyé à un thyristor ce qui permet aux condensateur de se décharger brusquement dans la bobine de production du champ magnétique. Le champ magnétique produit durant la décharge est proportionnel courant électrique, il est maximal à $T/4$, où $T = 2\pi\sqrt{LC}$ est la période propre du circuit RLC. À ce moment précis la tension aux bornes de la bobine $U_L = L\ dI/dT$ s'inverse, les diodes de puissance "crowbar" commencent à conduire et court-circuitent les condensateurs. Le champ magnétique décroit alors de manière exponentielle avec une constante de temps $\tau = L/R$ avec L l'inductance de la bobine et R sa résistance.

Pour une décroissance lente (et donc une mesure de meilleure qualité) cette résistance doit être la plus faible possible. C'est en partie pour cela que la bobine, principalement constitué d'un alliage cuivre-argent, est plongé dans l'azote liquide. Une autre raison vient du fait qu'au cours d'un pulse de champ magnétique la bobine se réchauffe à cause de l'effet Joule, elle passe de 77 K avant le pulse à $\simeq 300$ K après. Les matériaux renforçants mécaniquement la bobine (stycast® et fibre de Zylon) sont conçus pour des températures < 400 K, il y a donc tout intérêt à commencer avec une bobine froide

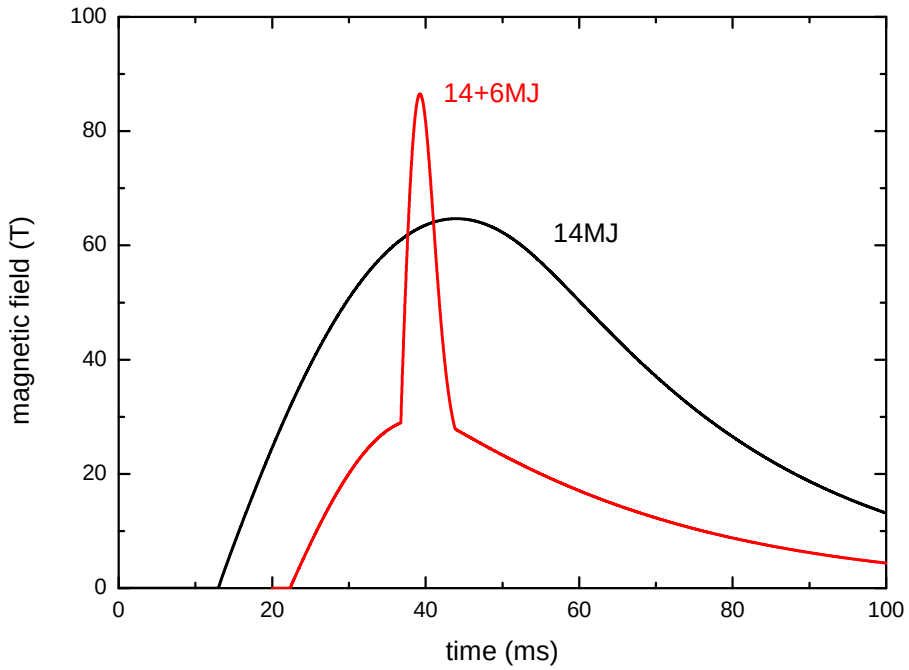

Figure 2.7 – Champ magnétique en fonction du temps pour les deux types principaux de bobine utilisés au LNCMI-T durant cette thèse. En noir l'allure du champ délivrée par une bobine 70 T refroidissement rapide, en rouge pour une expérience 90 T. La "bobine 90 T" est en fait un assemblage de deux bobines, chacune reliée à un générateur différent, synchronisés entre eux. Ces données sont extraites durant une véritable expérience et non un test de la bobine. L'axe des abscisses est ajusté arbitrairement.

avant le tir. Ce renforcement mécanique est là pour empêcher la bobine d'exploser durant le pulse, lorsqu'elle est soumise à des efforts très importants à cause de la force de Lorentz.

Différents types de mesures effectuées

Principalement deux types de mesures ont été effectuées sur les bobines résistives du LNCMI-T. Le premier type de mesure utilise les "bobines 70 T" à refroidissement rapide. Ces bobines ont en leur sein des canaux permettant de laisser passer l'azote liquide pour un refroidissement rapide de la bobine après le tir. En pratique il est possible de faire un pulse de champ magnétique, et donc une mesure, toutes les heures avec une telle bobine, à un champ maximal utilisateur de 70 T. Le second type de mesure utilise les "bobines 90 T" qui permettent donc d'atteindre des champs encore plus intenses, avec l'inconvénient que ces bobines ne sont pas encore équipées de canaux à refroidissement rapide, il y a donc un temps de latence entre deux tirs d'environ 2,5 h. Ces dernières sont en fait l'assemblage de deux bobines, une interne et une externe. Chaque bobine est reliée à un banc de condensateur différent, alimenté par un chargeur différent, le tout étant parfaitement synchronisé. L'allure du champ magnétique délivrée par ces deux types de bobines est présentée sur la figure 2.7. On peut clairement y voir

que la durée d'impulsion et le temps passé à fort champ est bien plus important avec la bobine 70 T. Si la physique ne nécessite pas $B > 70$ T il est donc bien plus confortable de travailler avec cette bobine.

Mesure du champ magnétique

Un ingrédient essentiel d'une mesure en champ magnétique pulsé est la détermination du champ magnétique, à l'emplacement de l'échantillon, durant le pulse. Pour connaître cela nous avons utilisé la méthode classique : la bobine *"pick-up"*. Une bobine de N spires (en pratique $N \sim 10$) de surface S est placée à une distance connue de l'échantillon, les spires étant perpendiculaires au champ magnétique.

Durant le pulse le champ magnétique induit une tension aux bornes de la bobine, égale à la force électromotrice e. C'est la loi de l'induction de Faraday :

$$e = -d\phi/dt = -N \times S \times dB/dt \tag{2.9}$$

Avec ϕ le flux et B l'induction magnétique. En intégrant la tension aux bornes de la bobine on remonte donc directement à l'allure du champ magnétique $B(\mathrm{t})$. Cette technique nécessite une calibration de la bobine *pick-up* pour connaître son facteur géométrique $N \times S$.

Précautions nécessaires

Plusieurs précautions sont à prendre lors d'une mesure en champ magnétique pulsé :

— Tout d'abord le principe de mesure par une bobine *"pick-up"* nous met en garde. Lors d'un pulse une tension induite apparaît aux bornes de toute boucle conductrice perpendiculaire au champ magnétique. Ces tensions induites sont sources de bruit électrique sur la mesure. En pratique tous les fils sur la canne de mesure sont donc torsadés finement afin que chaque tension induite sur une boucle s'annule avec la suivante.

— Ensuite un champ magnétique variable induit des courants de Foucault dans un matériau conducteur. Ces courants provoquent un échauffement par effet Joule et sont donc à proscrire pour toute mesure à basse température. La seule manière de s'en affranchir est de bannir tout matériau conducteur sur la canne expérimentale (du moins à proximité de l'échantillon).

Difficultés inhérentes

Malgré toutes les précautions possibles il reste des difficultés inhérentes aux mesures en champs magnétiques pulsés :

— Le temps disponible pour la mesure est court. La durée totale du pulse est de plusieurs centaines de millisecondes, ce qui peut paraître assez confortable mais le dB/dt a une forte dépendance au cours du pulse (voir figure 2.7). La situation la plus critique est celle d'une mesure 90 T lorsque la bobine interne (responsable du pic fin sur la figure 2.7) entre en jeu, c'est à dire lorsque $B \simeq 35$ T. Le dB/dt est alors maximal et la différence de champ magnétique entre deux points expérimentaux consécutifs l'est également. Sur les mesures 90 T en champs pulsés présentées dans ce manuscrit on acquiert généralement à une fréquence de $f \sim 70$ KHz, soit un point expérimental toutes les ~ 15 μs. On en déduit que l'écart de champ entre deux points expérimentaux consécutifs est alors de l'ordre de 0.6 T. Cette valeur rend tout moyennage pratiquement impossible, surtout si le signal a alors une forte dépendance en champ, *i.e.* la physique est autour 35 T.

— Pour atteindre des champs toujours plus intenses il est nécessaire de se restreindre à des bobines de diamètres limités. L'environnement disponible au final pour l'expérimentateur sur sa canne de mesure, donc après insertion du cryostat hélium dans la bobine, est très restreint. Cette contrainte est bien plus importante lors des mesures 90 T que 70 T. Tout les détails sont alors déterminants, notamment la taille des échantillons. Pour une expérience d'ultrasons sur une bobine 90 T la taille disponible pour l'échantillon est d'environ 8 mm $\times$ 1.5 mm $\times$ 3 mm.

— Enfin le dernier point abordé ici est celui des vibrations mécaniques produites lors d'un pulse. Ces vibrations induisent du bruit sur les mesures. Pour s'en affranchir on essaie au maximum de découpler le cryostat hélium, qui contient la canne de mesure, du cryostat azote, qui contient la bobine. On ne peut toutefois au mieux que réduire ces vibrations.

2.2.2 Champs statiques du LNCMI-Grenoble

Un certain nombre de mesures présentées dans la suite de ce manuscrit utilisent les champs magnétiques intenses statiques du LNCMI-G. Bien que la production des ces champs statiques est plus exigeante en terme d'infrastructure nous allons voir que d'un point vue expérimental c'est un environnement moins contraignant.

Production

On produit des champs magnétiques de manière statique en utilisant des bobines résistives et/ou supraconductrices. En utilisant un assemblage de bobines supraconductrice et résistive on peut aujourd'hui atteindre 45 T (bobine hybrique du National High Magnetic Field Laboratory de Tallahassee,

Figure 2.8 – Caisse contenant un aimant résistif du LNCMI-G. Un blindage épais de 10 cm en acier inoxydable permet de résister aux efforts mécaniques très importants dus à la force de Lorentz qui s'exercent sur l'aimant.

États Unis). Jusqu'à $B \simeq 37$ T il est possible d'utiliser des bobines purement résistives.

C'est cela qui est utilisé au LNCMI de Grenoble, et a été employé pour les mesures en champs magnétiques statiques $B > 20$ T de ce manuscrit. La production de champs statiques est bien plus coûteuse que celle des champs pulsés : elle demande plus d'infrastructures et consomme bien plus d'électricité. Au LNCMI-G les électro-aimants reposent sur deux technologies : les *"bitters"* et les *"hélices"*. Pour produire ces champs magnétiques statiques très intenses il est nécessaire d'envoyer des courants de l'ordre de 20 000 Ampères dans les bobines. Comme pour les bobines de champs pulsés cela produit des efforts mécaniques très intenses, mais d'un tout autre ordre de grandeur. Il y a donc un effort de conception et de réalisation très important pour limiter ces efforts et les gérer au mieux. Cela nécessite en particulier d'enfermer les aimants dans de grandes caisses conçus pour résister à de telles forces (voir figure 2.8). Une autre difficulté majeure est l'effet Joule colossal qu'engendre ce courant électrique. Les aimants, bitters et polyhélices, sont donc refroidis en permanence par de l'eau [4] envoyé à des débits de l'ordre de 1000 m^3/h, qui passe par des petits canaux dans les aimants. Pour un tel débit l'eau arrive à des pressions de l'ordre de 200 Bars. L'eau (plus) chaude à la sortie du circuit hydraulique est rejetée dans une rivière voisine.

Un autre aspect est la puissance électrique nécessaire pour atteindre de tels courants. Les aimants

4. Déminéralisé pour éviter les courts-circuits.

sont alimentés avec une puissance maximale de 24 MW. Le courant alternatif fourni par EDF est converti en courant continu par l'intermédiaire de 4 convertisseurs AC/DC de 6 MW chacun.

Précautions et difficultés

Les difficultés liées aux champs statiques sont essentiellement les mêmes que pour les champs pulsés, mais moins critiques. Le dB/dt étant moins important, mais bien présent (lors des rampes en champ magnétique), il est toujours nécessaire de torsader tous les fils de mesures afin d'éviter les tensions induites. Les courants de Foucault sont aussi moins importants. La difficulté liée au temps d'acquisition du signal n'existe plus, mais celle du diamètre restreint est toujours présente. Le diamètre disponible à température ambiante (sans cryostat, etc.) et pour une mesure à 35 T au LNCMI-G est de 34 mm. Comme en champs pulsés des vibrations mécaniques existent, ici dues aux fonctionnement des pompes hydrauliques, qui peuvent provoquer, dans une moindre mesure, un bruit sur la mesure. Une dernière difficulté, nouvelle par rapport aux mesures en champs pulsés, provient du coût de l'électricité. Au LNCMI-G les mesures en champs résistifs intenses sont réalisées de nuit, afin de réduire la facture électrique dont le coût est prohibitif en heures pleines.

2.3 Résumé du chapitre

Dans ce chapitre nous avons décrit les éléments très spécifiques aux mesures présentées dans ce manuscrit : la méthode Pulse-Echo en ultrasons et les champs magnétique intenses.

La méthode expérimentale permet d'acquérir deux quantités : vitesse et atténuation du son dans un solide. Cette méthode permet d'obtenir des valeurs relatives avec une grande précision mais n'est pas conçue pour une mesure absolue. C'est une technique qui nécessite un grand effort de préparation des échantillons, un grand nombre d'étapes critiques sont nécessaires avant toute mesure : orientation, découpe, polissage et collage.

Cette technique est parfaitement compatible avec les champs magnétiques intenses statiques mais également pulsés. Ces environnements extrêmes entrainent un certain nombre de contraintes, de manière plus critique pour les champs pulsés. L'espace disponible pour l'échantillon est restreint, les cannes de mesures sont conçues pour ne pas souffrir des courants de Foucaults et des tensions induites par les champs intenses.

Chapitre 3

Éléments théoriques sur la vitesse et l'attenuation du son dans les solides

Ce chapitre a pour objectif de donner tous les éléments nécessaires à la compréhension et l'interprétation des données présentées dans la suite de ce manuscrit. Les différentes sections vont donc présenter des résultats théoriques de calculs de vitesse et d'atténuation du son dans les solides.

La première section va tout d'abord permettre de comprendre ce qu'est une constante élastique, on y abordera les bases de la théorie élastique des solides. Ensuite seront décrites les variations *normales* en température attendues pour les constantes élastiques et l'atténuation du son, *i.e.* en l'absence de transitions de phases. Pour aller au delà de cette variation normale l'impact d'une transition de phase du second ordre sur les constantes élastiques sera abordée dans le cadre du modèle de Landau. Comme les mesures présentées dans ce manuscrit concernent des supraconducteurs de type II on décrira ensuite l'influence des vortex aussi bien sur la vitesse que l'atténuation du son. Dans les métaux plus conventionnels l'effet du champ magnétique est bien décrit par l'effet Alpher-Rubin qui sera alors discuté afin notamment de modéliser les données obtenues dans l'état normal, non supraconducteur. Pour terminer on définira un modèle de vitesse et atténuation du son dans les verres de spins classiques, il se montrera utile pour décrire les mesures ultrasons dans LSCO.

3.1 Bases de la théorie élastique des solides

Nous allons commencer par les bases de la théorie élastique des solides, *i.e.* l'étude de la propagation d'une onde acoustique dans un solide dans la limite des faibles déformations. Une description plus complète du sujet est donnée dans [146], de bonnes introductions se trouvent dans [143] et [147].

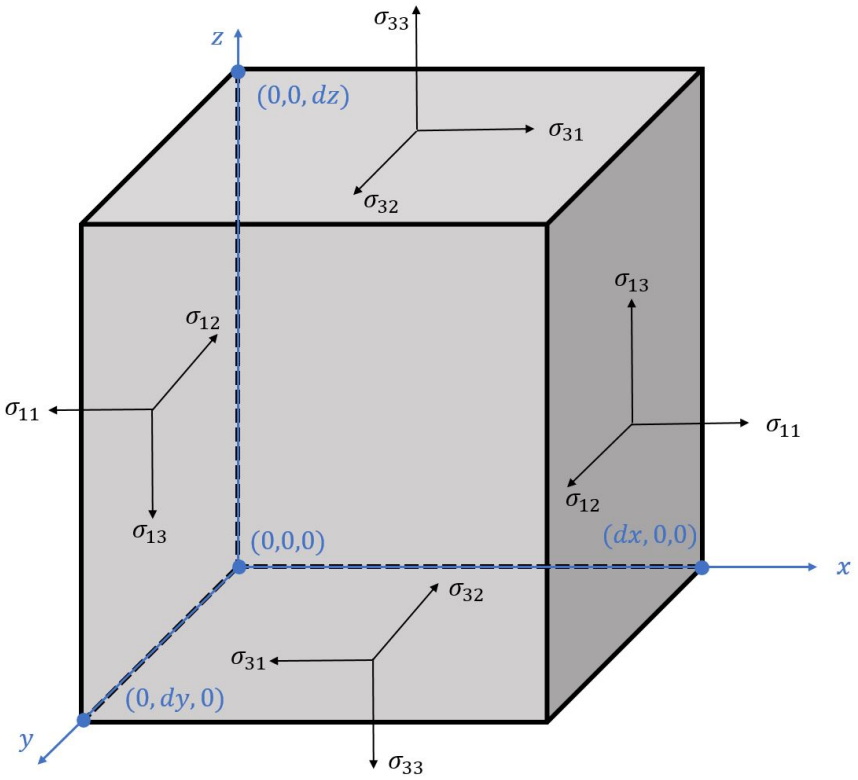

Figure 3.1 – Éléments de volume infinitésimal (dx, dy, dz) solide. Le repère en bleu est orthogonal. Les σ_{ij} indiquent les différents élements du tenseur de contraintes (voir texte). Les contraintes appliquées sur les plans perpendiculaires à l'axe y sont omises pour la clarté du schéma.

3.1.1 Définitions et loi de Hooke généralisée

Dans les fluides une onde acoustique ne peut qu'être longitudinale, elle provoque une modulation de la densité volumique. Un solide, lui, peut également transmettre une onde acoustique longitudinale. Néanmoins il se distingue du fluide par sa rigidité, qui permet la transmission d'une onde transverse. Une onde purement transverse ne change pas le volume du solide, ne module pas sa densité mais change sa forme.

Considérons l'élément de volume infinitésimal (dx, dy, dz) solide de la figure 3.1. En toute généralité cet élement de volume peut-être soumis à une force $\vec{F}$ par unité de volume, la gravité par exemple. Il est également contenu dans un environnement. Les éléments de solide qui l'entoure peuvent exercer sur ce dernier des contraintes, *i.e.* des forces par unité de surface. Sur chaque surface de notre volume infinitésimal on peut donc définir des contraintes. Dans le cas d'un fluide la contrainte d'une surface ne pourrait qu'être perpendiculaire à celle-ci. Ici avec notre solide on peut définir trois contraintes par surface, chacune dirigée selon un des trois axes de notre repère (xyz). Les contraintes du type σ_{ii} sont

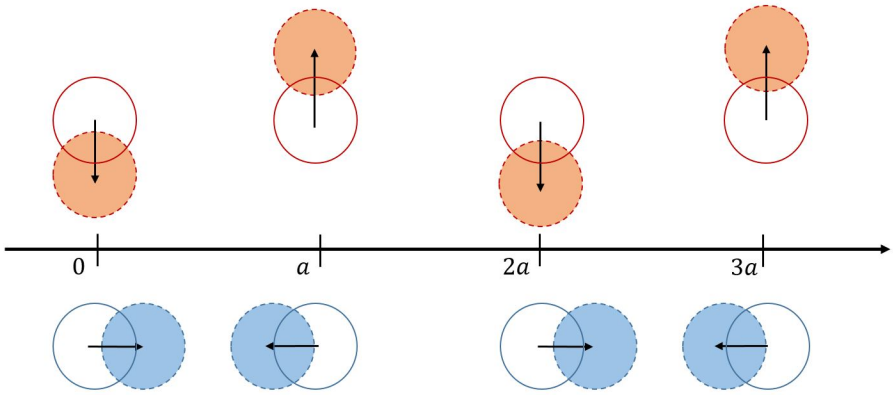

FIGURE 3.2 – Déplacement périodique dans le cas d'une chaine 1D. Au repos les ions sont espacés de a, une onde acoustique provoque un déplacement de leur position d'équilibre. **Haut :** Onde transverse, la polarisation de l'onde est perpendiculaire à sa propagation. **Bas :** Onde longitudinale, la polarisation de l'onde est parallèle à sa propagation.

définies telles que lorsque positives elles provoquent une extension du solide [1]. On note $\vec{r}$ le vecteur position :

$$\vec{r} = (x, y, z) \tag{3.1}$$

σ_{ij} est la contrainte exercée sur la surface perpendiculaire à l'axe r_i dans la direction donnée par r_j. Le tenseur σ_{ij} qui contient 9 éléments est le tenseur des contraintes du solide. Comme le solide n'est pas en rotation ce nombre se réduit à 6, le tenseur devient symétrique σ_{ij}=σ_{ji}.

Appliquons maintenant la seconde loi de Newton sur le volume infinitésimal. On obtient [2] selon l'axe j :

$$F_j + \sum_i \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial r_i} = \rho \frac{\partial^2 u_j}{\partial t^2} \tag{3.2}$$

F_j est la composante j de la force par unité de volume $\vec{F}$ précédemment définie. u_j est la composante j d'un champ de vecteurs $\vec{u}(\vec{r})$ qui indique le déplacement d'un élément de volume du solide. ρ est la densité volumique du solide en question.

Avant de continuer revenons quelques instants sur la définition de $\vec{u}(\vec{r})$. Si cette grandeur ne dépend pas de la position on a une simple translation du solide, et aucune onde acoustique dans le solide. Dans le cas d'un solide cristallin les positions des ions sont discrètes, périodiques, et $\vec{u}(\vec{r})$ donne le déplacement de ces ions par rapport à leur position d'équilibre. Si ce déplacement est modulé périodiquement on

1. Une pression sur le solide hydrostatique est donc $P = -\sum_{ij} \sigma_{ij}\delta_{ij}$, avec δ le symbole de Kronecker.
2. Pour les étapes de calculs voir par exemple [146].

parle d'onde acoustique. Sur la figure 3.2 on montre le cas simple d'une chaine 1D. Si $\vec{u}(\vec{r})$ est selon la direction de propagation (ici la direction de la chaine) on parlera d'onde longitudinale, si $\vec{u}(\vec{r})$ y est perpendiculaire d'onde transverse. On sait donc maintenant en particulier que pour avoir une onde acoustique au coeur du solide il faut impérativement que le déplacement dépende de la position dans le solide. On définit donc la déformation comme étant :

$$\epsilon_{ij} = \frac{1}{2}\left(\frac{\partial u_j}{\partial r_i} + \frac{\partial u_i}{\partial r_j}\right) + \mathcal{O}(2) \tag{3.3}$$

Les ϵ_{ij} forment donc un tenseur symétrique $\epsilon_{ij} = \epsilon_{ji}$, avec 6 éléments distincts. La déformation est donc une grandeur sans unité. À faible déformation et dans la limite élastique [3], déformations et contraintes sont reliées par la loi de Hooke généralisée :

$$\sigma_{ij} = \sum_{kl} c_{ijkl}\epsilon_{kl} \tag{3.4}$$

On peut également inverser la relation,

$$\epsilon_{ij} = \sum_{kl} s_{ijkl}\sigma_{kl} \tag{3.5}$$

Les coefficients c_{ijkl} et s_{ijkl} forment respectivement les tenseurs des constantes élastiques et de compliances du solide : C et S. Les deux sont simplement reliés par $C = S^{-1}$. La relation 3.4 est très similaire à la force de rappel d'un ressort "$F = -kx$" [4]. Si on poursuit l'analogie avec le ressort c_{ijkl} a le rôle de constante de raideur du solide. Le tenseur de constantes élastiques contient à priori $3^4 = 81$ éléments distincts, homogènes à une pression, typiquement de l'ordre d'une centaine de GPa. Comme le tenseur des contraintes et celui des déformations sont tous deux symétriques, et avec d'autres arguments simples, on montre que le tenseur des constantes élastiques suit des règles de commutations :

$$c_{ijkl} = c_{jikl}, \quad c_{ijkl} = c_{ijlk}, \qquad c_{ijkl} = c_{klij}$$

Il n'y a donc en pratique que seulement 21 termes distincts. Dans la suite on utilisera les notations de Voigt qui permettent d'alléger cette relation :

$$\sigma_{11} = \sigma_1, \quad \sigma_{22} = \sigma_2, \quad \sigma_{33} = \sigma_3,$$

$$\sigma_{23} = \sigma_{32} = \sigma_4, \quad \sigma_{31} = \sigma_{13} = \sigma_5, \quad \sigma_{12} = \sigma_{21} = \sigma_6,$$

et,

$$\epsilon_{11} = \epsilon_1, \quad \epsilon_{22} = \epsilon_2, \quad \epsilon_{33} = \epsilon_3,$$

$$\epsilon_{23} = \epsilon_{32} = \frac{1}{2}\epsilon_4, \quad \epsilon_{31} = \epsilon_{13} = \frac{1}{2}\epsilon_5, \quad \epsilon_{12} = \epsilon_{21} = \frac{1}{2}\epsilon_6,$$

3. En pratique on sort généralement de la limite élastique avant celle des faibles déformations.
4. Ici la force est proportionnelle à un déplacement, pas une déformation.

Les coefficients $\frac{1}{2}$ sont là pour éviter de compter deux fois les termes diagonaux. Les termes de 1 à 3 correspondent à des compressions, ceux de 4 à 6 à du cisaillement. Par exemple un changement du volume V du solide est uniquement relié aux termes 1 à 3 : $(dV/V) = \epsilon_1 + \epsilon_2 + \epsilon_3 = \mathrm{div}(\epsilon)$. Cette notation abaisse le rang du tenseur mais augmente sa dimension de 3 à 6. La loi de Hooke généralisée réécrite avec ces notations est :

$$\sigma_m = \sum_n c_{mn}\epsilon_n \tag{3.6}$$

Avec $c_{mn} = c_{nm}$. Les termes diagonaux du type c_{ii} correspondent à des modes élastiques purement longitudinaux, les termes hors diagonale $c_{ij} \quad (i \neq j)$ à des modes purement transverses.

3.1.2 Tenseur des constantes élastiques pour quelques symétries

Nous avons vu qu'en théorie le tenseur des constantes élastiques contient 21 termes distincts. Néanmoins la définition des contraintes et déformations dépend des axes du repère choisi. Si un axe cristallin donné possède une rotation $(2\pi/n)$ alors les déformations et contraintes sont également inaltérées par cette rotation. Il en va bien sûr de même pour les constantes élastiques. En pratique la symétrie cristalline abaisse donc le nombre de termes distincts et en annule certains. Deux symétries sont particulièrement importantes pour la suite.

Tout d'abord la symétrie orthorhombique qui correspond à YBCO ou bien LSCO à assez basse température et dopage. Cette symétrie possède des axes de rotations $(2\pi/3)$ selon les trois axes principaux. En conséquence il n'y a plus que 9 constantes élastiques indépendantes :

$$c_{ij}^{ortho} = \begin{pmatrix} c_{11} & c_{12} & c_{13} & 0 & 0 & 0 \\ c_{12} & c_{22} & c_{23} & 0 & 0 & 0 \\ c_{13} & c_{23} & c_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & c_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & c_{55} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & c_{66} \end{pmatrix} \tag{3.7}$$

Le deuxième cas qui nous intéresse tout particulièrement est celui de la symétrie tétragonale qui correspond à LSCO à assez haute température et/ou dopage. Ce système est plus symétrique que le précédent, et peut se déduire de ce dernier en considérant que maintenant nous avons deux axes équivalents. Pour un système tétragonale il n'y a plus que 6 constantes élastiques indépendantes :

$$c_{ij}^{tetra} = \begin{pmatrix} c_{11} & c_{12} & c_{13} & 0 & 0 & 0 \\ c_{12} & c_{11} & c_{13} & 0 & 0 & 0 \\ c_{13} & c_{13} & c_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & c_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & c_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & c_{66} \end{pmatrix} \tag{3.8}$$

Dans des systèmes encore plus symétriques le nombre de constantes élastiques distinctes chute. Pour un système cubique qui contient 3 axes de rotations $(2\pi/4)$ on a seulement trois constantes élastiques distinctes. Finalement dans le cas d'un solide parfaitement isotrope il n'y a plus que 2 constantes élastiques, ce sont les constantes de Lamé λ et μ.

3.1.3 Dérivation de l'équation d'onde

Remplacer l'équation 3.6 dans 3.2, en considérant une propagation libre (i.e. $\vec{F} = \vec{0}$), donne l'équation d'onde du solide :

$$\sum_{jkl} c_{ijkl} \frac{\partial^2 u_l}{\partial r_j \partial r_k} = \rho \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} \tag{3.9}$$

Les solutions de cette équation sont du type,

$$\vec{u}(\vec{r}, t) = u_0 e^{i(\omega t - \vec{k}.\vec{r})} \hat{e} \tag{3.10}$$

Ce sont bien des ondes acoustiques, avec une polarisation donnée par le vecteur unitaire $\hat{e}$, une propagation par $\vec{k}$ et une amplitude par u_0. Remplacer 3.10 dans 3.9 donne :

$$\sum_{jkl} \left(c_{ijkl} k_j k_k \right) e_l = \rho \omega^2 e_i \tag{3.11}$$

En factorisant la relation 3.11 on arrive à une équation aux valeurs propres,

$$\sum_{jkl} \left(c_{ijkl} k_j k_k - \rho \omega^2 \delta_{il} \right) e_l = 0 \tag{3.12}$$

Cette dernière relation est très importante car elle montre le lien entre vitesse du son d'un mode acoustique $(ijkl)$ donné (notée ici simplement v) et la constante élastique c_{ijkl} correspondante :

$$c_{ijkl} = \rho v^2 \tag{3.13}$$

Ce n'est pas directement v qui nous intéresse mais plutôt sa variation relative $\Delta v / v$. On a, en considérant que la densité du solide est constante, que :

$$\frac{\Delta c_{ijkl}}{c_{ijkl}} = 2 \frac{\Delta v}{v} \tag{3.14}$$

Cela fait le lien entre la section 2.1.1 qui montre comment mesurer la variation relative de vitesse ultrasonore et ce chapitre qui aborde les constantes élastiques des solides.

L'équation 3.12, pour une direction de propagation donnée, admet 3 solutions qui représentent chacune un mode propre de vibration du cristal. Les vecteurs propres donnent la polarisation de l'onde acoustique. Ils sont orthogonaux entre eux, un seul correspond à une onde longitudinale, les deux autres à des ondes transverses. Les valeurs propres indiquent la vitesse de l'onde, *i.e.* la vitesse du son. La version quantifiée de cette équation a pour solution les bandes de dispersions des phonons dans l'approximation harmonique [5].

3.1.4 Et l'atténuation alors ?

Jusqu'à présent la discussion a omis l'atténuation. L'amplitude de l'onde acoustique est exponentiellement décroissante durant sa propagation dans le solide. Une manière d'adapter la solution 3.10 est d'introduire un vecteur d'onde complexe,

$$\vec{k}.\vec{r} \rightarrow \vec{k}.\vec{r} + \frac{1}{2}\alpha\hat{k}.\vec{r} \tag{3.15}$$

Le facteur 1/2 vient du fait que l'atténuation est définie comme étant une perte d'énergie de l'onde, et non directement d'amplitude. L'équation 3.10 devient :

$$\vec{u}(\vec{r},t) = u_0 e^{-1/2\alpha\hat{k}.\vec{r}} e^{i(\omega t - \vec{k}.\vec{r})}\hat{e} \tag{3.16}$$

Pour obtenir autre chose que $\alpha = 0$ il est nécessaire d'introduire un terme d'amortissement dans l'équation d'onde 3.9. Sous un certain nombre d'hypothèses décrites dans [143] et les références données, on peut alors directement calculer l'atténuation grâce à la partie complexe de ce terme d'amortissement. Puisque ce n'est pas ce type de calcul d'atténuation qui sera utile pour interpréter les données présentées dans ce manuscrit la discussion s'arrête ici. Le lecteur intéressé peut se référer à [143].

3.2 Variation normale du réseau cristallin

L'objet de cette partie est de décrire la composante normale attendue lorsque l'on mesure atténuation et constante élastique dans un métal. Dans le cas des constantes élastiques nous verrons que la distinction métal/isolant n'a pas lieu d'être. Par composante normale l'on entend ici la variation due uniquement au réseau cristallin, *en l'absence de transitions de phases* (par exemple une transition structurale). Ce travail permettra par la suite d'extraire des mesures la composante électronique de la

5. Ici on ne trouve que les trois bandes acoustiques, *i.e.* $\omega = 0$ pour $k = 0$.

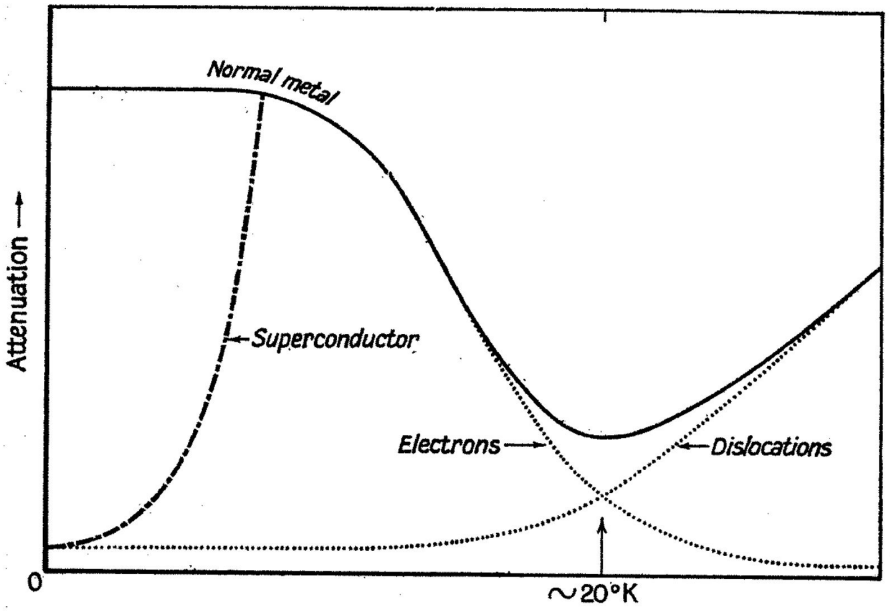

FIGURE 3.3 – Schéma de la variation classique de l'atténuation du son dans un métal, reproduit d'après la référence [146]. Pour $T \gtrsim 20$ K l'atténuation est dominée par l'interaction entre l'onde acoustique et les dislocations du cristal, qui ont un comportement activé. Pour $T \lesssim 20$ K l'interaction de l'onde acoustique avec les électrons libres est prédominante, l'atténuation augmente alors comme la conductivité électronique. La composante électronique est perdue dans le cas d'une transition supraconductrice *conventionnelle*.

vitesse et l'atténuation ultrasonore qui est le sujet des mesures effectuées.

3.2.1 Atténuation

La variation typique de l'atténuation est présentée schématiquement sur la figure 3.3. À haute température l'atténuation est principalement due aux dislocations du cristal. Ces dislocations sont des imperfections du réseau cristallins qui s'étendent sur des distances de plusieurs centaines d'atomes. Elles peuvent être au niveau des joints de grains dans le cas des polycristaux ou bien sous forme de boucles autour des impuretés. À suffisamment basse température, typiquement en dessous de 20 K, ces dislocations reposent dans la configuration de plus basse énergie et l'atténuation qui en résulte est indépendante de la température [148]. À plus haute température l'énergie thermique permet de déplacer les dislocations, il en résulte des phénomènes de relaxations[6]. Pour des températures encore supérieures le comportement est différent et contient, notamment, une composante exponentielle activée, où l'énergie d'activation est liée à l'énergie de liaison des impuretés.

À suffisamment basse température, typiquement en dessous de 20 K, l'atténuation ultrasonore est due uniquement aux électrons de conduction. Les calculs de cette contribution sont à classer en deux

6. Et donc une atténuation qui présente un pic en fréquence et température

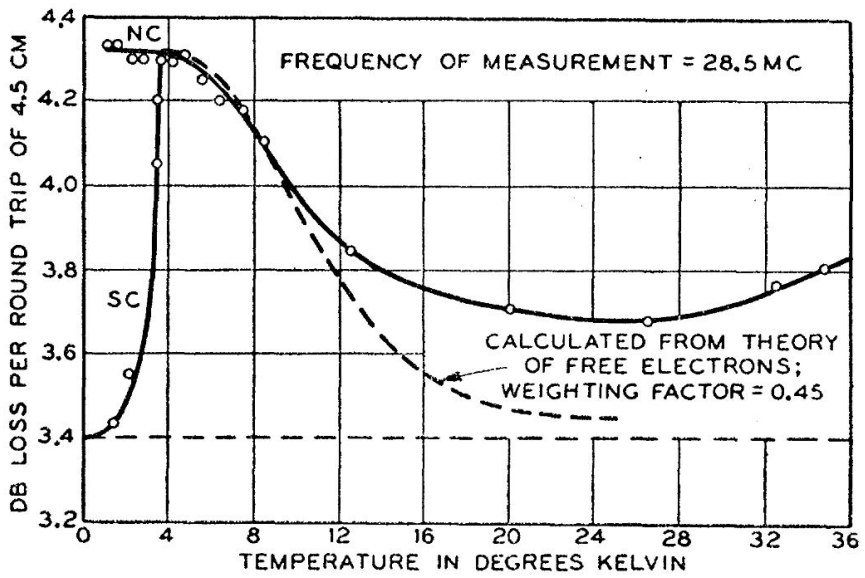

FIGURE 3.4 – Attenuation ultrasonore de Sn à basse température, figure reproduite depuis [149]. Un modèle d'électrons libres sans interactions décrit relativement bien l'atténuation à basse température. Au delà d'environ $T = 10$ K le mouvement thermique des dislocations provoque une déviation de la composante électronique.

classes principales : les calculs dans la limite hydrodynamique et ceux dans la limite quantique. Dans la limite hydrodynamique, la plus adaptée ici, on considère qu'il y a un nombre très conséquent de collisions entre phonons et électrons sur une longueur d'onde acoustique, *i.e.* $ql \ll 1$. Avec l le libre parcours moyen des électrons de conductions et $q = 2\pi/\lambda$ [7] le vecteur d'onde acoustique. On peut alors considérer les électrons de conduction comme un fluide visqueux. Dans les cuprates on ne sort pas de cette limite à moins d'utiliser des fréquences de l'ordre du térahertz. La viscosité est ici la viscosité dynamique définie comme la constante de proportionnalité qui relie contrainte et dérivée temporelle de la déformation. De manière similaire à l'équation 3.4 on a donc :

$$\sigma_{ij} = \sum_{kl} \eta_{ijkl} \frac{\partial \epsilon_{kl}}{\partial t} \tag{3.17}$$

Des calculs simples sont possibles dans un modèle d'électrons libres sans interactions. W. P. Mason a montré que [149] :

$$\alpha_L = \frac{\omega^2}{6\rho v_L^3} N m l v_F \tag{3.18}$$

$$\alpha_T = \frac{\omega^2}{8\rho v_T^3} N m l v_F \tag{3.19}$$

Ici α_L et α_T sont respectivements l'atténuation longitudinale et transverse, exprimées en [nepers/cm] [8]. N est le nombre d'électrons de conduction, m leur masse, l le libre parcours moyen, v_F la vitesse de

7. $\lambda \simeq 50\mu m$ pour une onde acoustique de fréquence 100MHz dans un solide.
8. 1 [Neper/cm] = 1/8.69 [dB/cm]

Fermi, v_L et v_T les vitesses d'ondes longitudinales et transverses respectivement. Ce modèle très simple permet néanmoins de reproduire de manière satisfaisante les observations faites dans les métaux, un exemple est donnée pour Sn sur la figure 3.4. Dans les deux formules ci-dessus seul l a une dépendance en température lorsque celle-ci est faible. Cela indique qu'à basse température l'atténuation varie comme la conductivité électrique σ. On peut également remarquer la variation en ω^2 de l'atténuation.

3.2.2 Constantes élastiques

Les constantes élastiques ont également un comportement classique en l'absence de transitions de phases. Ce comportement est aussi bien valable pour un métal que pour un isolant. Dans un solide cristallin les atomes sont régulièrement espacés d'une distance qui correspond au minimum du potentiel anharmonique. Une contrainte, tout comme l'agitation thermique, permet de faire varier cette distance d'équilibre entre atomes, de se déplacer légèrement hors du minimum du potentiel anharmonique. À mesure que la température diminue, que l'énergie thermique décroit, la distance d'équilibre inter-atomique est de mieux en mieux définie, le réseau cristallin de plus en plus rigide. Cela signifie que lorsque l'on baisse la température d'un solide il faut une contrainte de plus en plus importante pour produire une même déformation, *i.e.* les constantes élastiques (et donc la vitesse du son) augmentent.

C'est effectivement ce qui est observé expérimentalement dans n'importe quel solide, dès lors que d'autres phénomènes [9] ne viennent s'ajouter. Pour pouvoir retrouver par le calcul cette variation il est nécessaire de prendre en compte l'anharmonicité du réseau, l'interaction phonon-phonon. D'après les calculs dans la limite quasi-harmonique [142] on s'attend à une variation linéaire, $c_{ij} \propto -T$, à haute température, une autre en $-T^4$ à basse température et une saturation proche de $T = 0\,\mathrm{K}$. En pratique ces calculs sont peu utiles pour extraire la composante normale de la variation des constantes élastiques. Pour extraire cette composante il est courant d'ajuster une courbe empirique sur la dépendance en température de la vitesse du son. Cet ajustement doit être réalisé sur une gamme de température où aucune anomalie n'est observée. On trouve essentiellement deux types de courbes d'ajustement dans la littérature. La première est un polynôme purement empirique (pour un exemple dans LSCO voir par exemple [150]). La seconde est donnée par Y. P. Varshni [151] :

$$c_0(T) = a - \frac{b}{e^{c/T} + 1} \tag{3.20}$$

Dans la formule 3.20 a, b et c sont des paramètres ajustables. Cette formule reproduit bien la variation normale des constantes élastiques dans un grand nombre de composés métalliques et isolants. Elle a

9. Par exemple des relaxations ou transitions de phases de nature électronique, structurales, magnétiques...

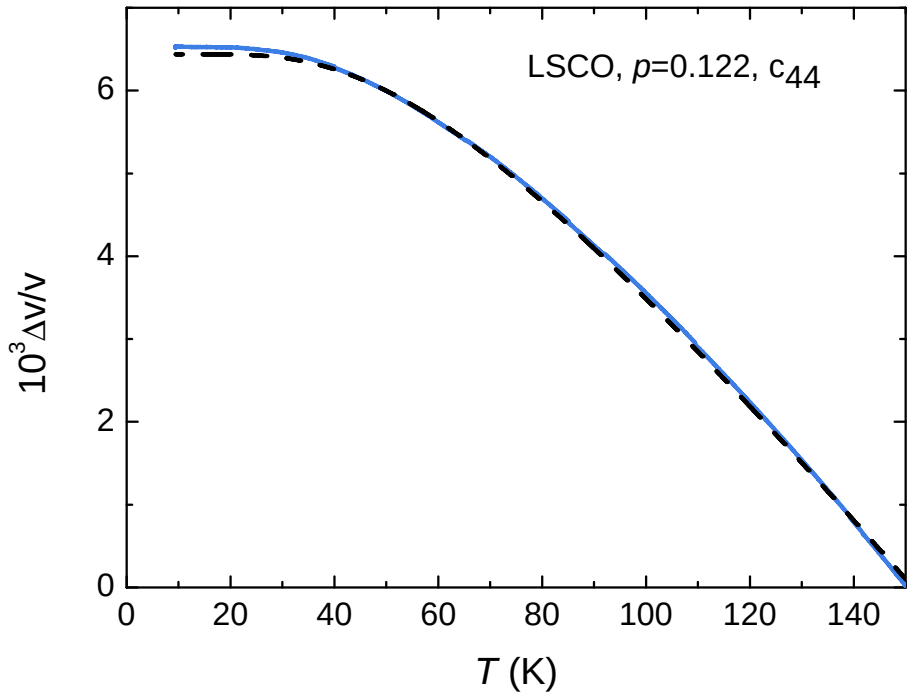

Figure 3.5 – Variation relative de la vitesse du son due uniquement au réseau cristallin, pour $T < 150$ K. La ligne pleine bleue correspond à des données expérimentales sur un échantillon de LSCO, $p = 0.122$, dans le mode acoustique c_{44}. La ligne noire pointillée est un ajustement avec la formule 3.20. Les paramètres libres sont ici : $a \simeq 6.4 \times 10^{-3}$, $b \simeq 1.4 \times 10^{-2}$, $c \simeq 174$ K.

également une justification théorique puisqu'elle peut être dérivée en utilisant un modèle de Einstein où les atomes sont des oscillateurs harmoniques vibrant à une même fréquence. La figure 3.5 montre que dans le cas de LSCO cette formule reproduit bien les mesures expérimentales lorsque aucune anomalie structurale ou électronique n'est observée.

3.3 Théorie de Landau pour les ultrasons

Maintenant que nous connaissons la variation normale de l'atténuation et des constantes élastiques il est nécessaire d'aller au delà. Cette section va permettre de comprendre le comportement des constantes élastiques dans le cas d'une transition de phase du second ordre, en particulier celui de la transition supraconductrice. On va pour cela tirer partie de la nature thermodynamique des constantes élastiques en utilisant la description des transitions de phases de Lev Landau. L'atténuation, elle, est une grandeur de transport, hors équilibre, et nous n'en parlerons donc pas dans cette partie.

Un système physique, à l'équilibre thermodynamique, se trouve toujours dans l'état de plus basse

énergie. Cet état de plus basse énergie se caractérise par un minimum de l'énergie libre, F. Pour minimiser cette dernière un système physique peut briser spontanément une symétrie. On entre alors dans une nouvelle phase, plus ordonnée, caractérisée par un paramètre d'ordre Q. En présence d'une déformation ϵ_Γ, où Γ est un indice de symétrie, l'énergie libre se développe en toute généralité selon :

$$F = F_0 + \sum_n \alpha_{2n} Q^{2n} + \sum_{kl} \beta_{kl} \epsilon_\Gamma^k Q^l + \sum_n \gamma_{2n} (\nabla Q)^{2n} \tag{3.21}$$

Le premier terme F_0 correspond ici aux termes d'énergies libres qui ne sont pas couplés au paramètre d'ordre Q. Il contient notamment un terme élastique $1/2 c_0 \epsilon_\Gamma^2$, où c_0 est la constante élastique du réseau cristallin de la section 3.2.2. Le second terme est un terme classique qui, en l'absence de couplage déformation-paramètre d'ordre, doit être négatif pour que spontanément le système choisisse de briser une symétrie. Le troisième terme renseigne sur les couplages possibles entre le paramètre d'ordre et la déformation. La déformation ϵ_Γ a une symétrie particulière et correspond à l'onde acoustique qui se propage dans le solide. Chacun des coefficients α_{2n}, β_{kl} et γ_{2n} est nul si le terme associé n'est pas autorisé par symétrie. En particulier, pour avoir $\beta_{kl} \neq 0$, le produit $\epsilon_\Gamma^k Q^l$ doit être scalaire. Le dernier terme rend compte des fluctuations spatiales du paramètre d'ordre, et n'est donc important que pour une transition de phase du premier ordre. Nous allons donc négliger ce dernier terme dans la suite. Par souci d'allégement des notations l'indice Γ de symétrie sera aussi omis.

Dans cette partie on va considérer que le paramètre d'ordre suit instantanément la déformation. Cette approximation est valide lorsque le taux de relaxation τ du paramètre d'ordre est faible devant le temps de caractéristique de la déformation ω^{-1}, *i.e.* $\omega\tau \ll 1$. Lorsque cette approximation n'est plus valide des effets de relaxations peuvent apparaître. Ces derniers peuvent être bien-sûr important pour l'atténuation, mais également pour la vitesse du son. Des effets de relaxations apparaissent notamment lorsque les ultrasons sont mesurés dans des verres de spins, ce sera l'objet de la section 3.6.

3.3.1 Couplage bilinéaire

Commençons par étudier le couplage le plus simple possible entre paramètre d'ordre et déformation : le couplage bilinéaire $g\epsilon Q$. Ce couplage est important pour l'interprétation des données présentées dans les chapitres 5 et 6 de ce manuscrit. Ce cas est traité dans [142, 152], et de manière très claire dans la thèse [153].

L'énergie libre étudiée ici se réduit simplement à :

$$F = F_0 + \frac{1}{2} c_0 \epsilon^2 + \frac{a(T)}{2} Q^2 + \frac{b}{4} Q^4 - g\epsilon Q \tag{3.22}$$

Le terme d'énergie élastique $1/2c_0\epsilon^2$ a été sorti de F_0 par clarté. Le coefficient a dépend de la température : $a(T) = a_0(T - T_0)$ avec $a_0 > 0$. Ce paramètre est l'inverse de la susceptibilité associée à cette transition de phase : $a(T) = (\chi_Q)^{-1}$. T_0 est la température critique de la transition de phase associée au paramètre d'ordre Q. χ_Q et T_0 sont des caractéristiques du système *en l'absence de couplage paramètre d'ordre-déformation* (*i.e.* lorsque $g = 0$). Si Q est un paramètre d'ordre électronique alors g est le couplage électron-phonon. b est indépendant de la température, dans la suite $b > 0$, ce qui correspond à une transition de phase continue.

À l'équilibre thermodynamique on a $\dfrac{\partial F}{\partial \epsilon} = \dfrac{\partial F}{\partial Q} = 0$. On peut en déduire que :

$$\epsilon = \frac{g}{c_0} Q \tag{3.23}$$

$$\left(\chi_Q^{-1} - g^2/c_0\right) Q + bQ^3 = 0 \tag{3.24}$$

D'après 3.23 la déformation et le paramètre d'ordre sont directement proportionnels, c'est un résultat spécifique à ce couplage simple. D'après 3.24 on peut définir une susceptibilité renormalisée par g [153] :

$$\tilde{\chi_Q} = \left(\chi_Q^{-1} - g^2/c_0\right)^{-1} \tag{3.25}$$

$\tilde{\chi_Q}$ diverge pour $\tilde{T_0} = T_0 + g^2/(a_0 c_0)$ définissant la température de transition renormalisée par le couplage g. Cette température est toujours supérieure à T_0, le couplage paramètre d'ordre - déformation augmente la température de transition. De l'équation 3.24 on peut aussi déduire le comportement du paramètre d'ordre au dessus et en dessous de $\tilde{T_0}$:

$$Q = 0, \qquad T > \tilde{T_0} \tag{3.26}$$

$$Q^2 = \frac{\tilde{\chi_Q}^{-1}}{b}, \qquad T < \tilde{T_0} \tag{3.27}$$

En toute généralité la constante élastique c est reliée à la dérivée seconde de l'énergie libre par rapport à la déformation ϵ [154]. Cela peut être déduit de la formule 3.4 en se rappelant que déformation et contrainte sont des grandeurs thermodynamiques conjuguées :

$$c = \frac{d^2F}{d\epsilon^2} = \frac{\partial^2 F}{\partial \epsilon^2} - \left(\frac{\partial^2 F}{\partial \epsilon \partial Q}\right)^2 \left(\frac{\partial^2 F}{\partial Q^2}\right)^{-1} \tag{3.28}$$

Cette formule peut être généralisée dans le cas d'une coexistence de plusieurs paramètres d'ordres. Dans le cas présent on obtient avec l'expansion 3.22 et la dépendance du paramètre d'ordre 3.26 et 3.27 :

$$c = c_0 - g^2 \chi_Q, \qquad T > \tilde{T}_0 \tag{3.29}$$

$$c = c_0 - \frac{g^2}{3g^2/c_0 - 2\chi_Q^{-1}}, \qquad T < \tilde{T}_0 \tag{3.30}$$

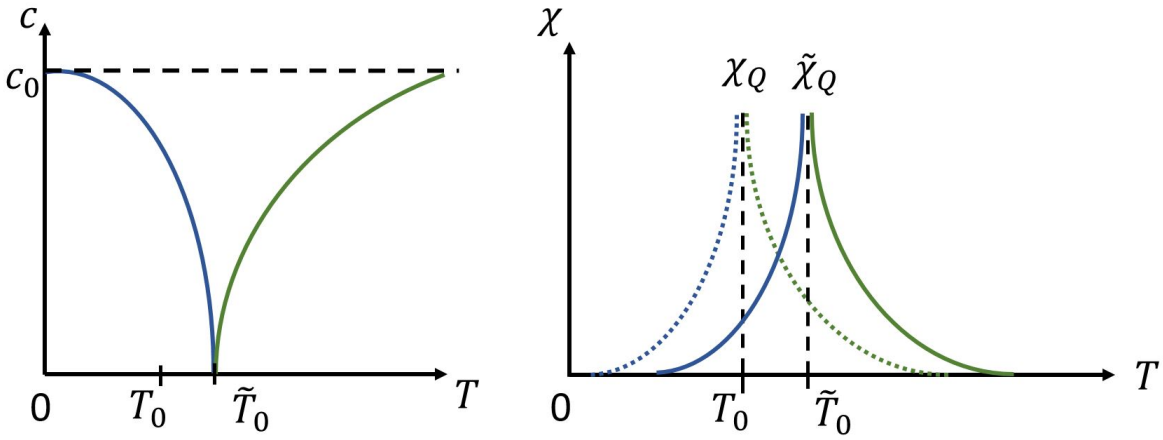

FIGURE 3.6 – Schéma d'une transition thermodynamique avec couplage bilinéaire déformation-paramètre d'ordre. En vert la dépendance en température au dessus de la température critique renormalisée par g, en bleue en dessous. Figure adaptée d'après la thèse [153]. **Gauche :** La dépendance en température de la constante élastique c montre un ramollissement complet à $T = \tilde{T}_0$. Le mode élastique associé est le mode mou de la transition. Pour $T > \tilde{T}_0$ (trait vert plein) c est directement proportionnel à la susceptibilité non renormalisée χ_Q. **Droite :** La susceptibilité χ_Q qui diverge à T_0 est renormalisée par le couplage électron-phonon et diverge à une température $\tilde{T}_0 > T_0$, définissant une température de transition renormalisée.

La dépendance en température schématique du paramètre d'ordre et celles des susceptibilités χ_Q et $\tilde{\chi_Q}$ sont présentées sur la figure 3.6. Un ramollissement complet du réseau se produit dans la phase désordonnée, la constante élastique suit alors l'opposé de la susceptibilité χ_Q. Pour $T < \tilde{T}_0$ le réseau durcit à nouveau pour retrouver la valeur c_0 lorsque (éventuellement) la susceptibilité χ_Q redevient nulle. Si Q est un paramètre d'ordre électronique alors se pose la question de la nature d'une telle transition. Si c'est la susceptibilité électronique qui est l'origine du ramollissement complet de la constante élastique c alors on a une transition électronique, dans le cas inverse on a une transition structurale. Ce type de couplage a été largement discuté par A. Böhmer dans le cas des pnictides pour expliquer la transition nématique vue dans ces composés [153].

3.3.2 Transition supraconductrice

Pour une onde longitudinale et un paramètre d'ordre complexe le cas précédent du couplage bilinéaire n'est pas autorisé. Le terme de couplage doit être scalaire, un paramètre d'ordre complexe doit

donc forcément être de puissance paire. D'autres couplages sont possibles et observés expérimentalement. Nous allons maintenant décrire ces derniers et les informations qu'on peut en extraire. Q n'est donc plus un paramètre d'ordre quelconque mais le paramètre d'ordre complexe de la phase supraconductrice. Des descriptions plus complètes sont disponibles dans les références [152] et [142].

Couplage quadratique

Dans le cas d'une onde longitudinale le couplage le plus simple possible est du type $h\epsilon Q^2$. Maintenant Q est le paramètre d'ordre complexe supraconducteur, ϵ une déformation longitudinale et h un paramètre de couplage d'ordre supérieur au g du paragraphe précédent.

L'énergie libre étudiée se réduit à :

$$F = F_0 + \frac{1}{2}c_0\epsilon^2 + \frac{a(T)}{2}Q^2 + \frac{b}{4}Q^4 - h\epsilon Q^2 \tag{3.31}$$

Une analyse similaire à celle que nous avons effectués pour le couplage bilinéaire montre que ce couplage quadratique induit un saut dans les constantes élastiques à la transition supraconductrice $\Delta c(T = T_c)$ [10] :

$$c = c_0, \qquad T > T_\mathrm{c} \tag{3.32}$$

$$c = c_0 - 2\frac{h^2}{b}, \qquad T < T_\mathrm{c} \tag{3.33}$$

Ce saut est proportionnel au carré du coefficient de couplage h. Il est également relié à celui de la chaleur spécifique à la transition supraconductrice par la relation d'Ehrenfest [11] :

$$\Delta c(T_\mathrm{c}) = -\frac{\Delta C_p(T_\mathrm{c})}{V_{mol}T_\mathrm{c}}\left(\frac{dT_\mathrm{c}}{d\epsilon}\right)^2 \tag{3.34}$$

$\Delta C_p(T_c) > 0$ est le saut de chaleur spécifique à T_c, V_{mol} est le volume molaire. C'est donc bien un saut négatif qui est attendu comme sur la figure 3.7. Cette relation indique également qu'en connaissant le saut de chaleur spécifique à T_c on peut extraire du saut de vitesse du son la susceptibilité, en norme, de la température supraconductrice en déformation $|\frac{dT_c}{d\epsilon}|$. On utilise ce principe dans le chapitre 7. Cette susceptibilité est très anisotrope dans les cuprates, des valeurs typiques sont comprises entre $10^{-3} > \Delta c(T_\mathrm{c})/c > 10^{-6}$.

10. Pour les étapes de calculs voir par exemple [142].
11. Une démonstration simple est possible dans un modèle à deux fluides, voir [150].

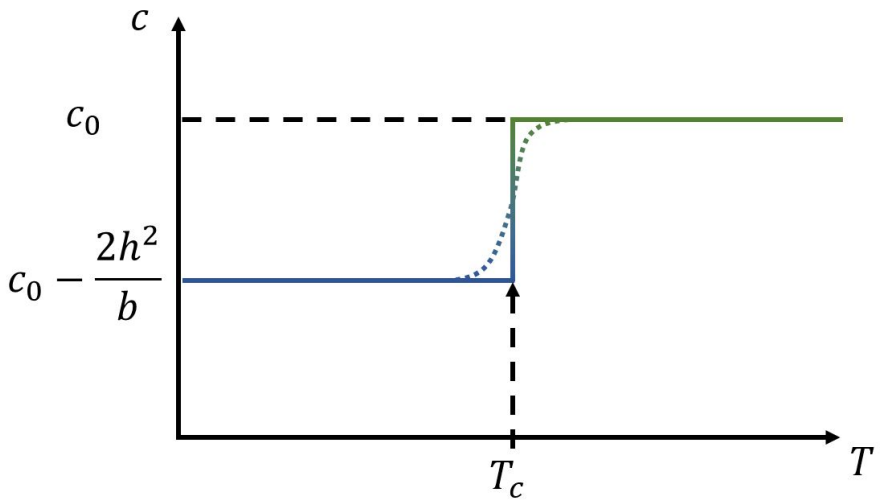

FIGURE 3.7 – Schéma de la discontinuité de la constante élastique dans le cas du couplage quadratique $h\epsilon Q^2$. Ce terme, autorisé par symétrie dans le cas d'une onde longitudinale, ne l'ai pas, au moins pour un paramètre d'ordre à une seule composante, dans le cas d'une onde transverse. L'amplitude du saut est de $2h^2/b$. Le calcul théorique donne la ligne pleine. En pratique cette discontinuité est arrondie par les inhomogénéités de dopage et l'effet des fluctuations [70, 155], et on obtient le comportement de la ligne pointillée.

Couplage bi-quadratique

Le couplage quadratique seul ne suffit pas à décrire convenablement les données expérimentales de constantes élastiques à la transition supraconductrice. Le prochain terme à ajouter est le couplage bi-quadratique $h'\epsilon^2 Q^2$. Ce terme est autorisé dans le cas d'une onde longitudinale ou transverse.

On écrit donc maintenant l'énergie libre :

$$F = F_0 + \frac{1}{2}c_0\epsilon^2 + \frac{a(T)}{2}Q^2 + \frac{b}{4}Q^4 - h\epsilon Q^2 + h'\epsilon^2 Q^2 \tag{3.35}$$

Dès lors que ce nouveau terme est non nul la constante élastique présente une pente pour $T < T_c$. Le signe de celle-ci dépend du signe de h'. Dans les cuprates on trouve expérimentalement que le réseau durcit dans l'état supraconducteur et donc $h' > 0$. Un schéma est présenté sur la figure 3.8. La situation est inverse dans les supraconducteurs conventionnels [156] [12].

Couplage quadratique-quartique

L'ajout d'un terme $h''\epsilon^2 Q^4$ à l'expansion 3.35 permet, finalement, de rendre compte du comportement des constantes élastiques à la transition supraconductrice. Comme le précédent, ce terme est

12. Ce constat semble général mais est limité à la connaissance de la littérature de l'auteur et à la diversité des composés mesurés en vitesse du son.

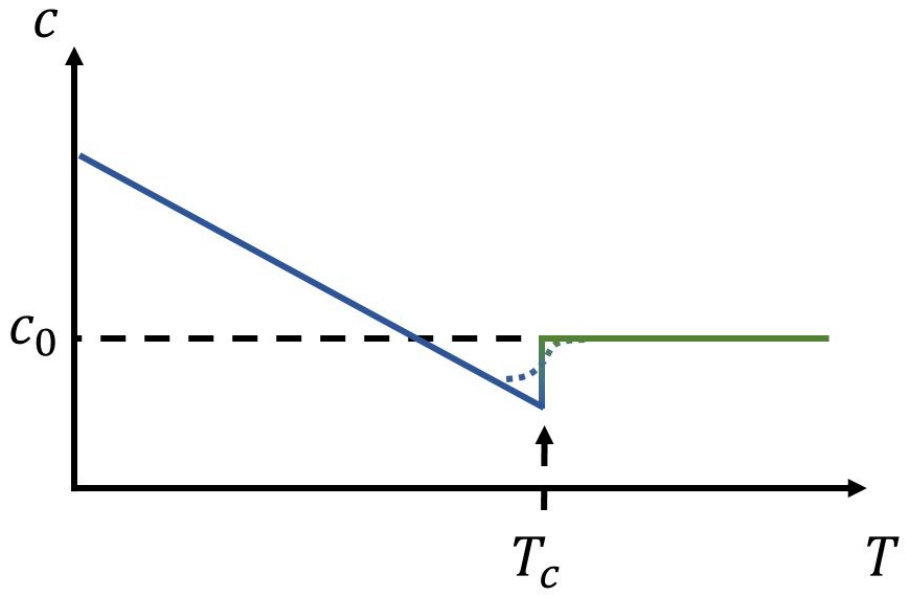

Figure 3.8 – Schéma du comportement de la constante élastique avec couplage quadratique et bi-quadratique. La valeur de la pente sous T_c est reliée au coefficient h'. Cette valeur est positive dans les cuprates, négative dans les supraconducteurs conventionnels. La ligne pointillée montre un comportement plus proche des résultats expérimentaux, quand fluctuations du paramètre d'ordre et inhomogénéité de dopages sont prises en compte.

autorisé quelque-soit la symétrie du mode acoustique, donc aussi bien pour une onde longitudinale que transverse. Finalement on utilise donc l'expansion :

$$F = F_0 + \frac{1}{2}c_0\epsilon^2 + \frac{a(T)}{2}Q^2 + \frac{b}{4}Q^4 - h\epsilon Q^2 + h'\epsilon^2 Q^2 + h''\epsilon^2 Q^4 \tag{3.36}$$

Le terme quadratique-quartique ajoute une courbure pour $T < T_c$. Cette dernière a une dépendance complexe selon la valeur de h''. La figure 3.9 montre qu'avec l'ensemble de ces termes il est possible de reproduire convenablement la variation de vitesse du son mesurée à la transition supraconductrice.

3.4 Influence des vortex

Dans les supraconducteurs de type II, le réseau de vortex, de part son couplage au réseau cristallin via les impuretés, peut induire de larges anomalies dans les quantités ultrasonores. Cette section propose de décrire ces anomalies dans le cadre du modèle TAFF (de l'anglais "Thermally Assisted Flux Flow", dont une traduction non littérale pourrait être : désancrage de vortex assisté thermiquement) qui les reproduit remarquablement bien.

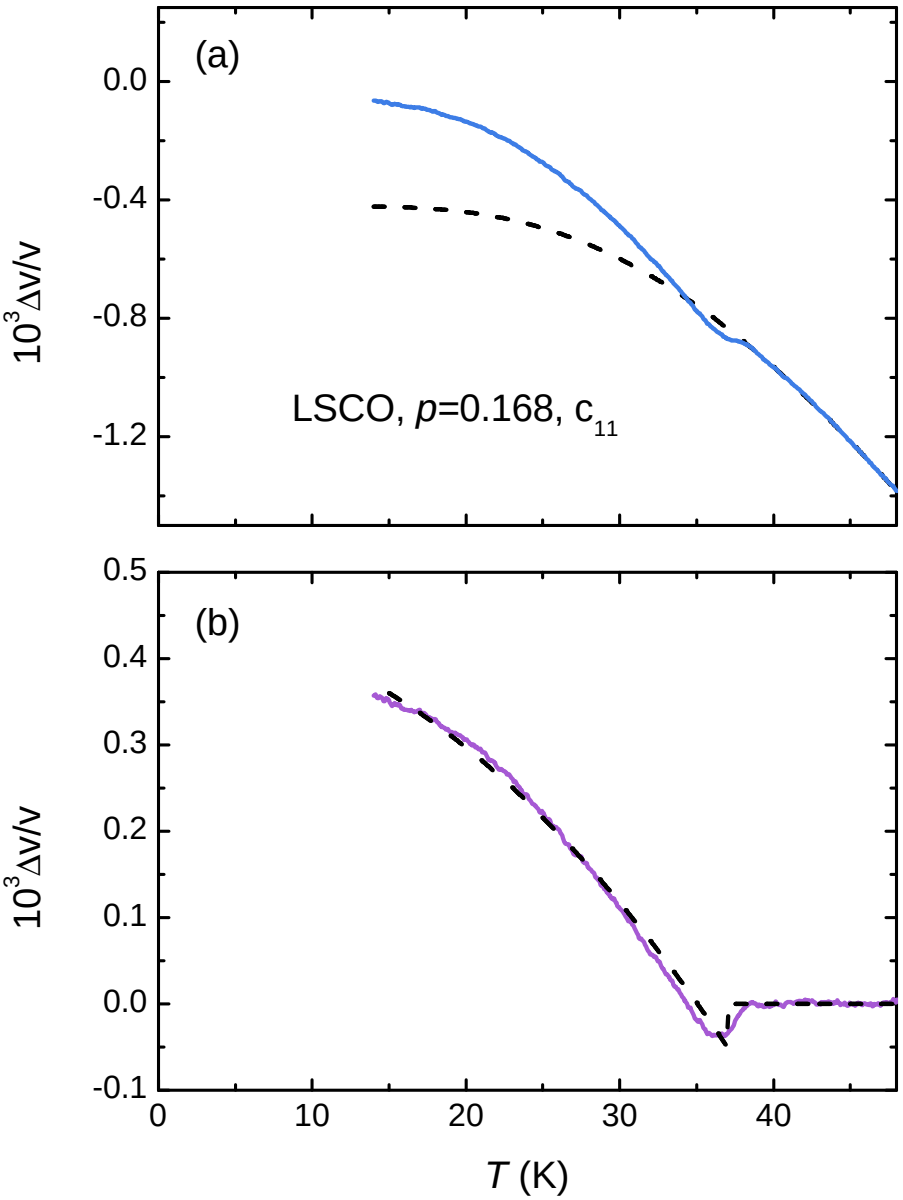

FIGURE 3.9 – Comportement du mode longitudinal c_{11} (notation dans la phase HTT) à la transition supraconductrice dans LSCO, $p = 0.168$. (a) La ligne bleue pleine correspond à la variation relative de vitesse du son mesurée, la ligne pointillée noire à un ajustement selon la formule 3.20. Les deux sont confondues au dessus de la T_c supraconductrice lorsque seul le réseau contribue. La différence des deux en dessous de T_c permet d'extraire la composante supraconductrice. **(b)** La contribution supraconductrice à la variation de vitesse du son est tracée selon la ligne violette pleine. La ligne noire pointillée correspond à un ajustement thermodynamique selon l'expansion de Landau 3.36. Les deux sont en bon accord. Les différences notables autour de T_c proviennent de l'inhomogénéité de dopage et des fluctuations supraconductrices.

Le modèle TAFF a été initialement utilisé dans les supraconducteurs à haute température critique pour expliquer l'élargissement de la transition supraconductrice vu dans l'aimantation en présence de champ magnétique [157]. Ce modèle décrit l'interaction entre le réseau cristallin et celui des vortex via une équation de diffusion. Les vortex ancrés au réseau cristallin par les impuretés suivent sa déformation, due par exemple à la propagation d'une onde acoustique, avec un taux de relaxation $\Gamma(T, H)$. Ce taux de relaxation phénoménologique peut être extrait des mesures de transport électrique où le mouvement des vortex dans le régime TAFF produit une résistivité non nulle. J. Pankert et collaborateurs ont calculé les quantités ultrasonores dans le cadre de ce modèle [158, 159]. La vitesse du son et l'atténuation, respectivement $v(H,T)$ et $\alpha(H,T)$, peuvent être décomposées en deux termes :

$$\rho v(H,T)^2 = c_{ij}^c(H,T) + \Delta c^v(H,T) \tag{3.37}$$

$$\alpha(H,T) = \alpha^c(H,T) + \Delta\alpha^v(H,T) \tag{3.38}$$

Ici ρ est la densité volumique du cristal, c_{ij}^c et α^c sont respectivement la constante élastique et l'atténuation du réseau cristallin seul, *i.e.* en l'absence de vortex, et Δc^v et $\Delta\alpha^v$ sont les contributions du réseau de vortex. En faisant l'hypothèse d'un réseau de vortex triangulaire il y a seulement trois constantes élastiques possibles : c_{11}^v, c_{44}^v et c_{66}^v qui sont respectivement associées à des modes de compression, inclinaison et cisaillement. Lorsque les longueurs de pénétrations sont assez importantes, ce qui est le cas dans les cuprates, ces trois constantes élastiques admettent des dépendances simples en champ magnétique dans la limite $2H_{c1} < H \ll H_{c2}$:

$$c_{66}^v \ll c_{11}^v \simeq c_{44}^v \simeq H^2/\mu_0 \tag{3.39}$$

Avec μ_0 la perméabilité du vide. Le module de cisaillement c_{66}^v est typiquement $\sim 10^3$ fois inférieur aux deux autres, en dessous de notre limite de détection. Lorsque la polarisation de l'onde acoustique est parallèle aux vortex, *i.e.* $\hat{e} \parallel \vec{H}$, la déformation ne perturbe pas le réseau de vortex :

$$\Delta c^v = \Delta\alpha^v = 0 \tag{3.40}$$

Lorsque, au contraire, $\hat{e} \perp \vec{H}$:

$$\Delta c^v = c_{ii}^v \frac{\omega^2}{\omega^2 + (c_{ii}^v \Gamma k^2)^2} \tag{3.41}$$

$$\Delta\alpha^v = \frac{\omega^2}{2\rho v^3} c_{ii}^v \frac{c_{ii}^v \Gamma k^2}{\omega^2 + (c_{ii}^v \Gamma k^2)^2} \tag{3.42}$$

Ici $k = 2\pi/\lambda$ est le vecteur d'onde acoustique. Les dépendances en champ magnétique et température de Δc^v et $\Delta\alpha^v$ sont déterminées par celles de $\Gamma(H,T)$ et $c^v_{ii}(H)$. En prenant en compte ces dépendances les équations 3.41 et 3.42 prédisent, à la température $T_{US}(H,\omega)$ de désancrage du réseau de vortex, une discontinuité dans la vitesse du son, dont l'amplitude est égale à $c^v_{ii}(H)$, et un pic d'atténuation. Ces deux signatures sont bien observées expérimentalement, et peuvent être remarquablement bien ajustées par les prédictions théoriques sans paramètre libre [159, 160]. La figure 3.10 montre l'exemple de LSCO, $p = 0.168$, dans le mode longitudinal c_{11} avec $H \parallel c$ qui sonde le mode de compression du réseau de vortex c^v_{11}. Dans cet exemple $T_{US}(30\ \mathrm{T}, 108\ \mathrm{MHz}) \simeq 8$ K. En augmentant le champ magnétique T_{US} diminue et l'amplitude des anomalies, aussi bien dans l'atténuation que la vitesse du son, se renforcent.

Pour $T > T_{US}$ le réseau de vortex peut être décrit comme pratiquement indépendant du réseau cristallin et les quantités ultrasonores n'en dépendent donc plus. De la même manière que l'agitation thermique, l'énergie apportée par l'onde acoustique permet d'aider au désancrage du réseau de vortex. En conséquence la température T_{US} diminue lorsque ω augmente. C'est uniquement dans la limite $\omega \longrightarrow 0$, pas sondée expérimentalement, que le désancrage au réseau cristallin correspond à la fonte du réseau de vortex. De nombreuses informations peuvent être extraites des mesures ultrasonores, en particulier lorsqu'elles sont réalisées sur des monocristaux [160, 161].

En résumé les ultrasons ne sont *pas* sensibles à la fonte du réseau de vortex, mais à son désancrage du réseau cristallin. Les mesures expérimentales sont en accord qualitatif et quantitatif avec le modèle TAFF. La température extraite des mesures ultrasonores est plus faible que la température à laquelle le réseau de vortex devient liquide, et ce d'autant plus que la fréquence d'excitation est importante. De plus, certaines configurations relatives de l'onde acoustique et du champ magnétique permettent de s'affranchir de cette contribution. Elle est totalement nulle lorsque $\hat{e} \parallel \vec{H}$ et très faible, en dessous de la sensibilité de la mesure, lorsque l'on sonde le module de cisaillement c^v_{66}.

3.5 Couplage magnéto-acoustique des métaux : effet Alpher-Rubin

Dans un solide les ondes acoustiques produisent une déformation périodique du réseau cristallin. Dans le cas d'un métal, si les électrons sont suffisamment liés au réseau ils subissent la même déformation. En présence d'un champ magnétique ce déplacement induit une force de Lorentz, perpendiculaire

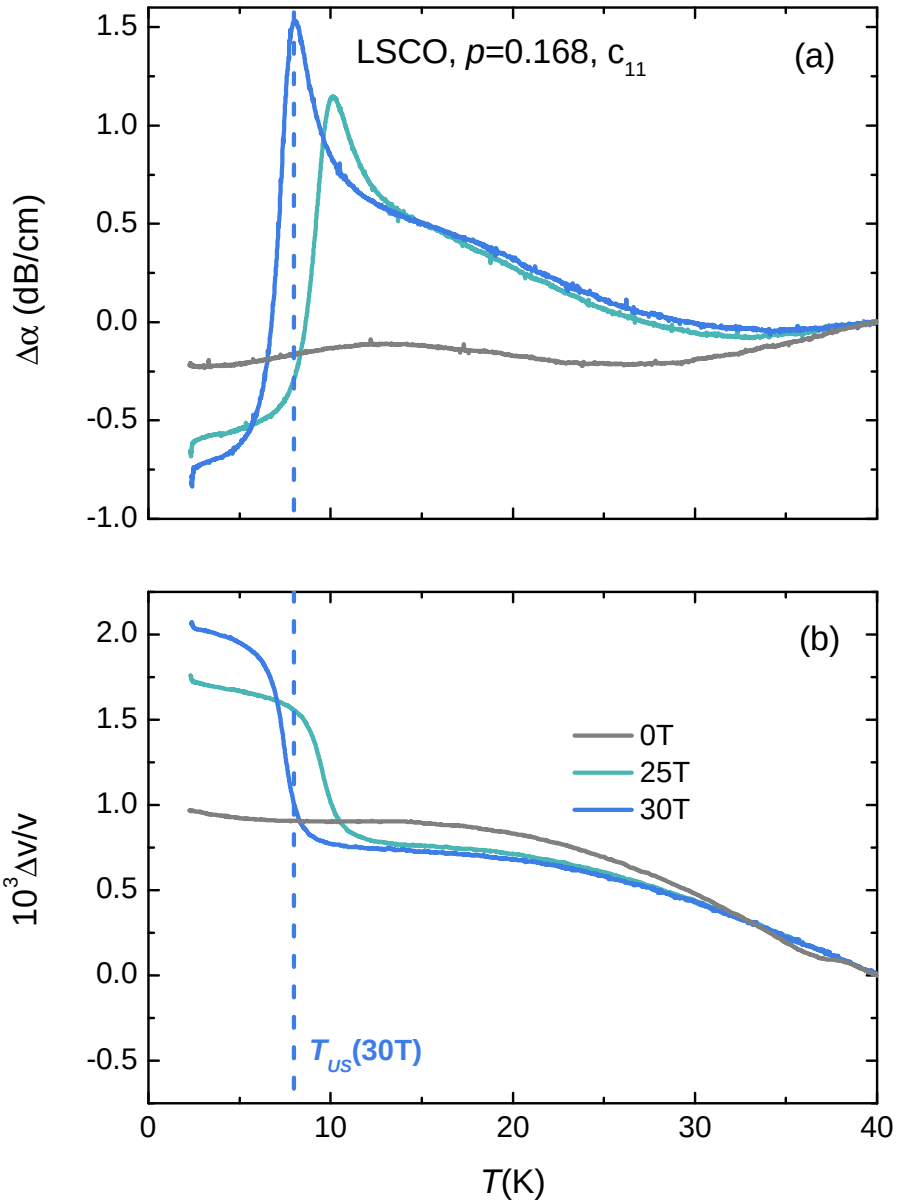

FIGURE 3.10 – Signatures expérimentales du désancrage du réseau de vortex dans un échantillon de LSCO $p = 0.168$**.** La configuration est la suivante : $\vec{H} \parallel c$, $\hat{e} \parallel \vec{k} \perp vecH$. Le mode acoustique mesuré est c_{11}, la fréquence de 108MHz. **(a)** Variation d'atténuation en fonction de la température. Un pic apparaît en champ magnétique pour $T = T_{US}(H, \omega)$. Son amplitude augmente avec le champ magnétique. **(b)** À la même température la vitesse du son montre une discontinuité. Pour $T < T_{US}(H, \omega)$ le réseau de vortex contribue à la vitesse du son mesurée. Le pic dans l'atténuation correspond au point d'inflexion dans la vitesse du son (ligne verticale pointillée). T_{US} diminue avec le champ magnétique, et la fréquence de mesure.

à la fois à la polarisation de l'onde acoustique et au champ magnétique. Dans le cas où la résistivité électrique est finie, *i.e.* en l'absence de supraconductivité, ce phénomène induit de la dissipation et donc une augmentation de l'atténuation et de la vitesse ultrasonore. Dans le cas des solides ce résultat a été démontré par R. A. Alpher et R. J. Rubin [162], on parle donc d'effet Alpher-Rubin.

Dans le cas où $ql < 1$, c'est à dire lorsque la longueur d'onde ultrasonore $\lambda = 2\pi/q$ est plus grande que le libre parcours moyen des électrons l, on trouve les dépendances suivantes :

$$\frac{\Delta v}{v} = \frac{\mu}{8\pi\rho v^2}\frac{1}{1+\beta^2}H^2 f(\theta) \tag{3.43}$$

$$\Delta\alpha = \frac{1}{4\pi\epsilon_0}\frac{\sigma\mu^2}{2\rho v c^2}\frac{\beta^2}{1+\beta^2}H^2 f(\theta) \tag{3.44}$$

Avec,

$$\beta = \frac{fc^2}{2\mu\sigma v^2}4\pi\epsilon_0 \tag{3.45}$$

Dans les formules ci dessus f est la fréquence de l'onde acoustique, c est la vitesse de la lumière, μ la perméabilité, σ la conductivité électrique dc, v la vitesse du son, H le champ magnétique appliqué, ϵ_0 la permittivité du vide et ρ la densité volumique du solide. Dans la littérature on peut trouver différentes définitions de β, menant à des versions des équations 3.43 et 3.44 légèrement modifiées. Néanmoins β est toujours associé au ratio de l'épaisseur de peau, δ, sur la longueur d'onde ultrasonore λ. Lorsque $\beta \ll 1$, c'est à dire lorsque la fréquence est suffisamment faible, l'atténuation est proportionnelle à f^2. Au contraire, lorsque $\beta \gg 1$, α est indépendante de f.

Dans les équations ci-dessus $f(\theta) = \sin^2(\theta)$ pour une onde longitudinale et $f(\theta) = \cos^2(\theta)$ pour une onde transverse. θ étant l'angle entre la direction du champ magnétique et la direction de propagation de l'onde acoustique. Cela signifie en particulier qu'aucune contribution par l'effet Alpher-Rubin n'est attendue pour une onde transverse lorsque $H \perp q$.

L'effet Alpher-Rubin décrit particulièrement bien les données de vitesse et d'atténuation du son dans les métaux "classique" [163–165], mais également celles des cuprates dans l'état métallique. Un exemple est donné sur la figure 3.11, où la vitesse et l'atténuation du son à $T = 60$ K $> T_c$, dans LSCO $p = 0.148$, peuvent être remarquablement bien reproduites par l'effet Alpher-Rubin, sans aucun paramètre ajustable. Pour des températures plus faibles, plus proche de T_c, l'écart entre données expérimentales et l'effet Alpher-Rubin calculé (pas renseigné sur la figure 3.11) est de plus en plus important. Ce qui ressort également de cette figure est que l'effet est relativement faible.

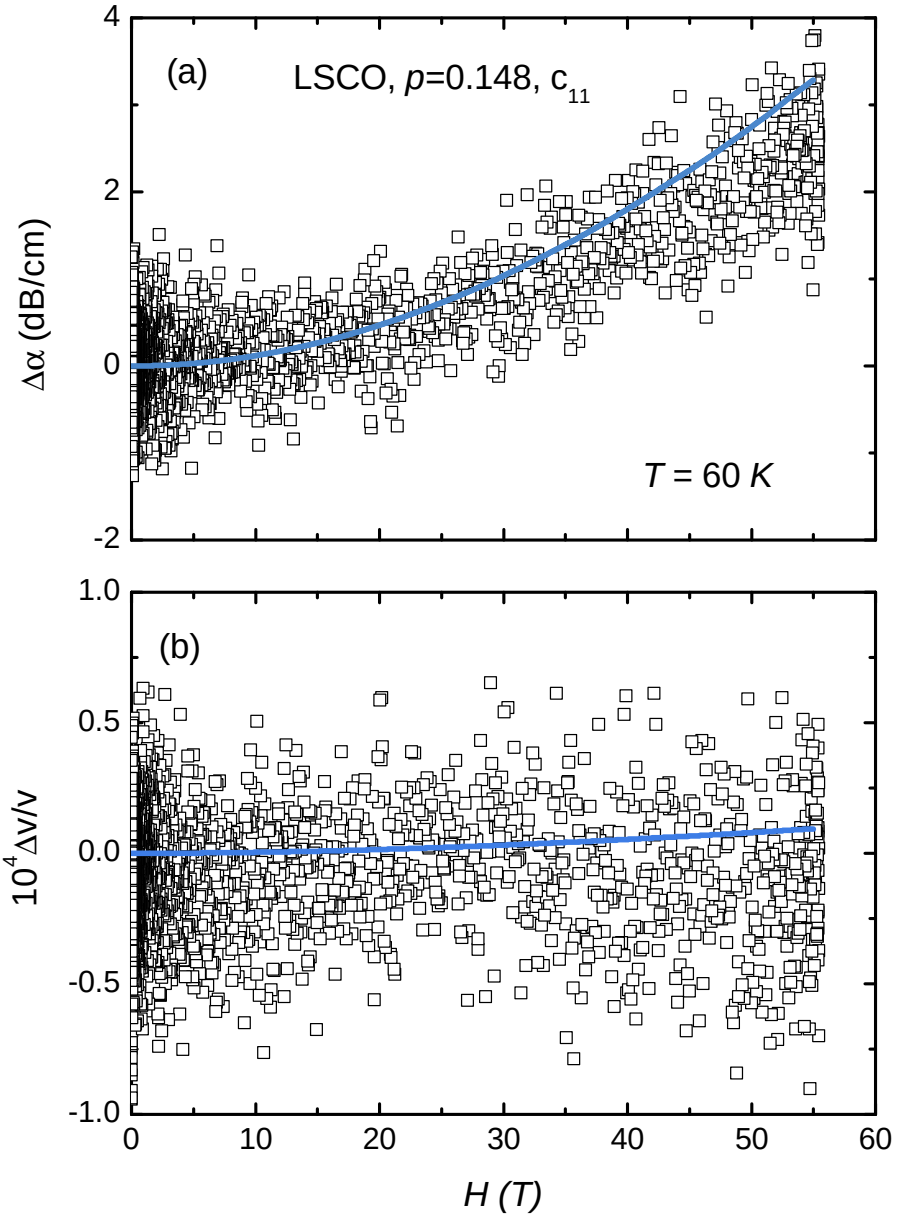

FIGURE 3.11 – Effet Alpher-Rubin dans LSCO, $p = 0.148$, pour $T = 60$ K. (a) La variation d'atténuation en champ magnétique pulsé (carré noir vide) est bien reproduite par l'effet Alpher-Rubin calculé (ligne bleue). **(b)** La même comparaison est possible pour la variation relative de vitesse du son, bien qu'alors le niveau de bruit est plus important que le (faible) signal attendu. Pour modéliser l'effet Alpher-Rubin on utilise les données de magnétorésistance de la référence [39] sur un échantillon de LSCO de dopage voisin, $p = 0.143$.

3.6 Ultrasons dans les verres de spins

Pour terminer ce chapitre il reste à discuter la réponse ultrasonore attendue dans un verre de spin. De nombreuses mesures d'ultrasons, aussi bien en vitesse du son qu'en atténuation, ont été réalisées dans des verres de spins aussi bien métalliques qu'isolants. La gamme de fréquence utilisée permet de sonder la dynamique du verre de spin, lorsque cela n'est généralement pas possible dans les mesures plus "classique" de susceptibilité magnétique.

La réponse obtenue en ultrasons est toujours qualitativement similaire, quelque soit la nature métallique ou isolante du composé particulier. Dans le composé $(CoF_2)_{0.5}(BaF_2)_{0.2}(NaPO_3)_{0.3}$, un isolant montrant une transition verre de spin, vitesse du son, atténuation et susceptibilité magnétique ont toutes trois été mesurées par P. Doussineau et collaborateurs permettant d'intéressantes comparaisons [166]. La figure 3.12 montre parallèlement la partie réelle de la susceptibilité magnétique, χ', et l'*opposé* de la variation relative de vitesse du son, $-\Delta v/v$. χ' montre un maximum qui existe dans tous les verres de spins et dont la température est généralement considérée comme la véritable température de gel [107], T_g. Parallèlement $-\Delta v/v$ montre un maximum à une température très proche, mais ici légèrement supérieure. Un comportement très similaire a par exemple été observé dans les verres de spins métalliques CuMn [167] et $Fe_{59}Ni_{21}Cr_{20}$ [168]. De manière très intéressante la figure 3.12 montre que pour $T > T_g$: $\chi' \propto -\Delta v/v$. Cette relation de proportionnalité et des travaux théoriques précédent (voir par exemple [169]) ont conduit P. Doussineau et collaborateurs à développer un modèle simple pour décrire vitesse et atténuation dans les verres de spins, proche de la température de gel [166]. Dans ce modèle vitesse et atténuation du son sont définies en terme d'une constante élastique complexe, c :

$$\Delta v/v = \frac{1}{2}\mathrm{Re}(\Delta c/c) \tag{3.46}$$

et,

$$\Delta\alpha = \frac{\omega}{v}\mathrm{Im}(\Delta c/c)\frac{10}{\ln(10)} \tag{3.47}$$

La constante élastique complexe est elle même directement proportionnelle à une susceptibilité dynamique $\chi(\omega, T)$:

$$c(\omega, T) = c_0(T)[1 - g^2\chi(\omega, T)] \tag{3.48}$$

Avec,

$$\chi(\omega, T) \propto \int_0^\infty \frac{\chi(0, T)}{1 + i\omega\tau(T)}\,\frac{\mathrm{d}\tau}{\tau} \tag{3.49}$$

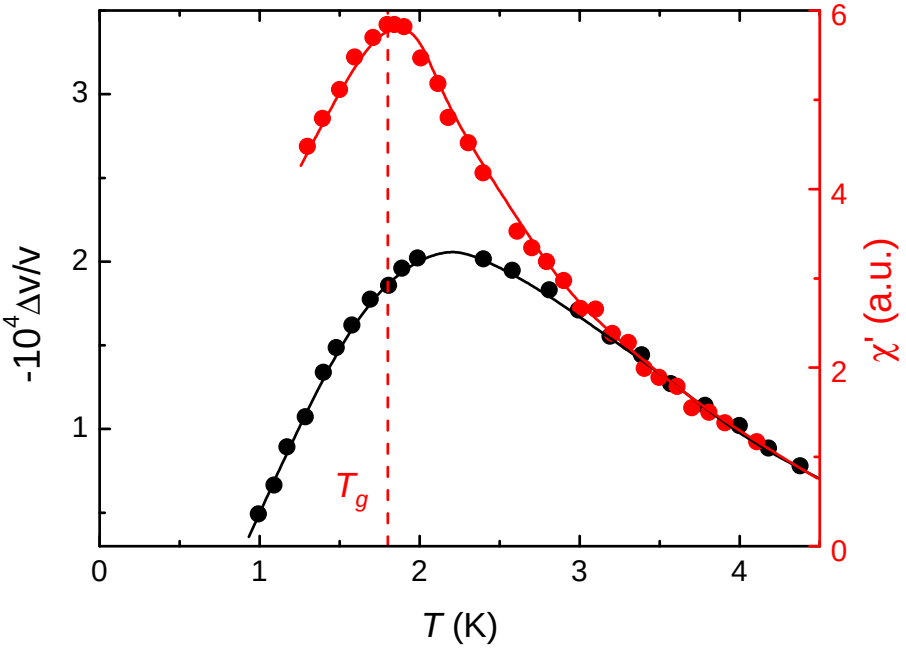

FIGURE 3.12 – Comparaison entre la vitesse du son et la partie réelle de la susceptibilité magnétique, χ', dans $(CoF_2)_{0.5}(BaF_2)_{0.2}(NaPO_3)_{0.3}$, d'après [166]. La ligne rouge verticale pointillée indique $T_g \simeq 1.8$ K déterminée par le maximum de χ' (mesurée à une fréquence de ~ 100 Hz). Pour $T > T_g$ on trouve que $\Delta v/v \propto -\chi'$. Lorsque $T \lesssim T_g$ la relation de proportionnalité n'est plus valide et on observe un large minimum (resp. maximum) dans $\Delta v/v$ (resp. $-\Delta v/v$). Les lignes sont des guides à l'œil.

Dans les équations ci-dessus $c_0(T)$ est la variation classique de constante élastique dans n'importe quel solide due à l'interaction phonon-phonon discutée en 3.2.2, g est le couplage spin-phonon et $\tau(T)$ est le temps de relaxation des fluctuations de spins qui augmente lorsque la température diminue. L'équation 3.48 indique que la constante élastique complexe est directement proportionnelle la susceptibilité dynamique, également complexe. Lorsque $T \gg T_g$, c'est à dire $\omega\tau \ll 1$, on a $\chi(\omega, T) \to \chi(0, T)$. Cela permet de rendre compte de l'observation expérimentale de la figure 3.12. Lorsque, au contraire, $\omega\tau \gtrsim 1$, la constante élastique complexe n'est plus proportionnelle à la susceptibilité statique et des effets de relaxations apparaissent. Un minimum dans la vitesse du son et un pic dans l'atténuation se produisent alors, tous deux à une température proche de T_g, exactement comme observé expérimentalement (voir figure 3.13). La relation 3.48 n'est pas très exotique, elle rappelle le résultat du couplage bilinéaire dans un modèle de Landau (voir 3.3.1). Une relation de proportionnalité est également obtenue dans différents systèmes physiques en présence de gap, mais c'est alors une susceptibilité en déformation et non magnétique dont il est question [13] [142].

Ce modèle simple permet de reproduire remarquablement bien les données expérimentales dans

13. exemple : ions magnétiques en présence d'effet Zeeman, assemblée de dimer de spins avec un gap singlet-triplet ...

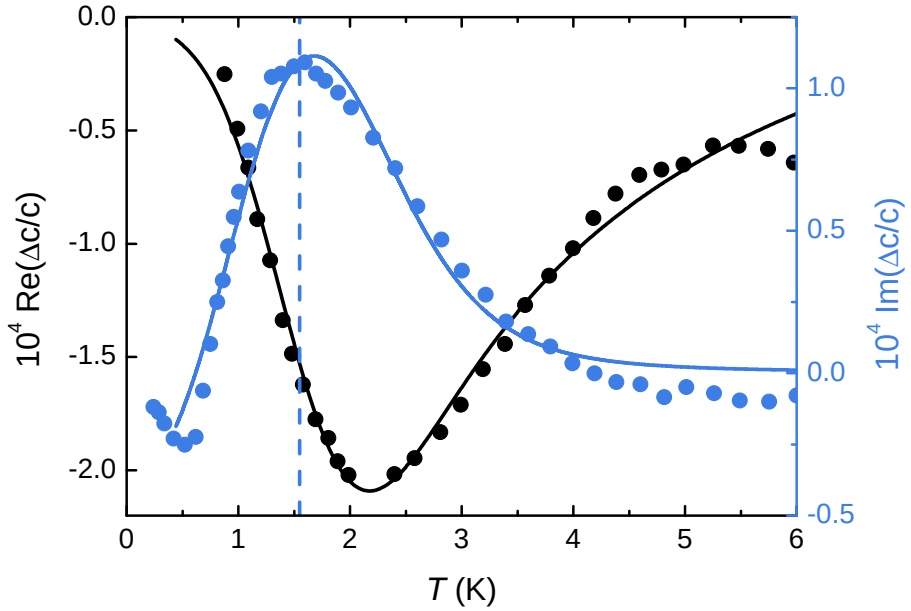

FIGURE 3.13 – Comportement de la vitesse et l'atténuation du son dans le verre de spin isolant $(\mathbf{CoF_2})_{0.5}(\mathbf{BaF_2})_{0.2}(\mathbf{NaPO_3})_{0.3}$, adapté d'après [166]. La fréquence de mesure est de 90 MHz. Proche de T_g la variation relative de vitesse du son, $\Delta v/v \propto \mathrm{Re}(\Delta c/c)$, montre un minimum large et la variation d'atténuation, $\Delta\alpha \propto \mathrm{Im}(\Delta c/c)$, un pic. Les lignes sont des ajustements par le modèle de susceptibilité dynamique. La ligne pointillée verticale indique la position du maximum dans l'atténuation, légèrement différente de celle du minimum dans la vitesse du son.

les verres de spins (voir [166] et figure 3.13), dans lesquels une distribution de τ est généralement utilisée indépendamment du modèle spécifique [166, 170, 171]. Afin d'ajuster les données ultrasonores dans la phase verre antiferromagnétique de LSCO décrites dans ce manuscrit on utilise ce modèle de susceptibilité dynamique avec un τ qui diverge exponentiellement lorsque $T \longrightarrow 0$:

$$\tau = \tau_\infty \exp(E_0/k_B T) \tag{3.50}$$

Et une distribution gaussienne de E_0,

$$\int_0^\infty e^{-(E_0-x)^2/2\Delta E_0^2} dx \tag{3.51}$$

Avec E_0 une échelle d'énergie caractérisant les fluctuations de spins et τ_∞ le temps de relaxation lorsque $T \gg T_g$. Avec ces formules, justifiées dans les chapitres appropriés, on obtient par le modèle de susceptibilité dynamique les variations de vitesse du son et atténuation tracées sur la figure 3.14. Ce qui est apparent ici est le rôle de la distribution. Elle permet de rendre compte de la largeur des minimums (resp. maximums) dans la vitesse du son (resp. l'atténuation) observée expérimentalement. En absence de distribution la position du maximum dans l'atténuation est considérée comme la température de gel "à la fréquence de mesure". Cette dernière est alors entièrement déterminée par la fréquence et la valeur de E_0. Néanmoins l'ajout d'une distribution modifie (légèrement) la position du maximum.

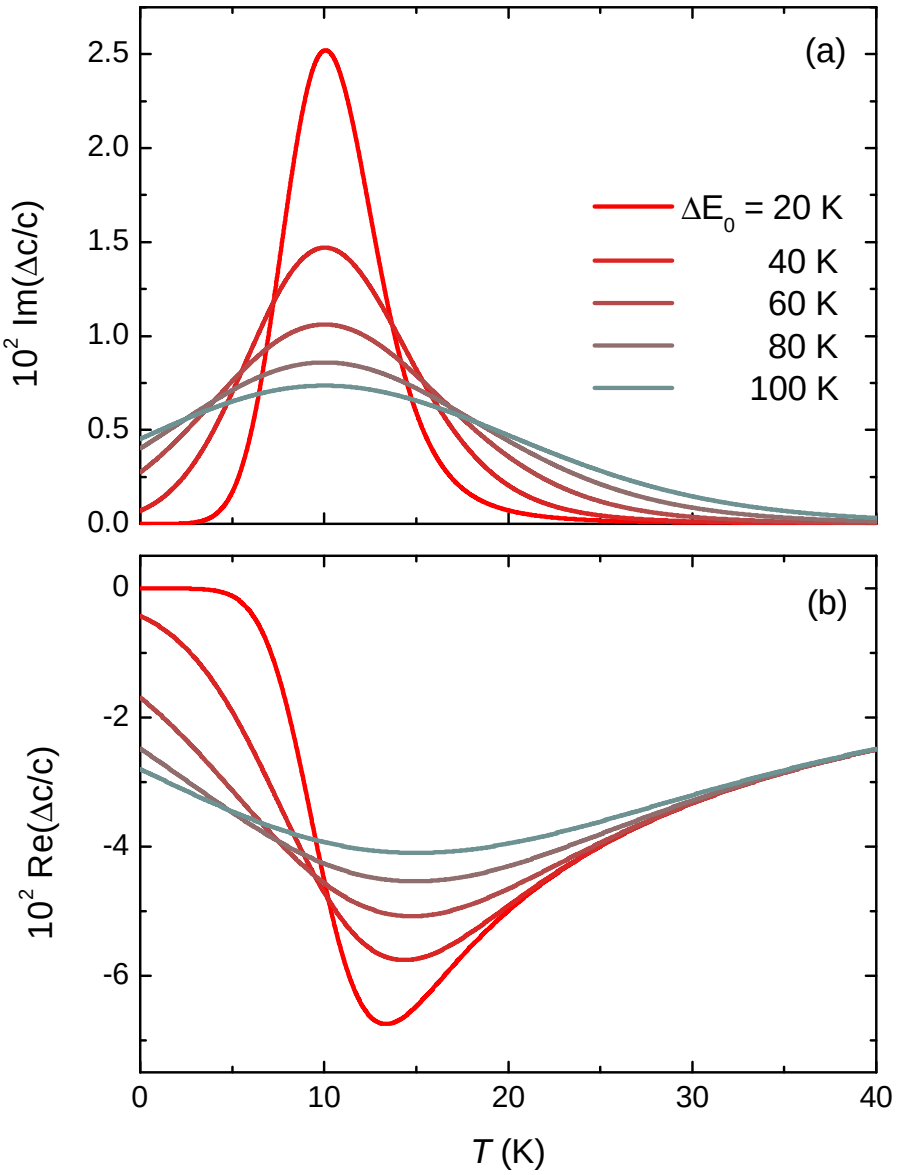

Figure 3.14 – Variation de la constante élastique complexe dans le modèle de susceptibilité dynamique, proche de la température de gel. (a) Partie imaginaire ($\propto \alpha$) et **(b)** réelle ($\propto \Delta v/v$) de la constante élastique en fonction de la température pour différentes valeurs de la distribution ΔE_0. Pour tracer ces courbes on utilise : $\tau_\infty = e^{-30}$ s, $E_0 = 100$ K, $f = 100$ MHz et $\chi(0,T) = 1/T$. L'ajout d'une distribution permet de rendre compte de la largeur du minimum (resp. maximum) de la vitesse du son (resp. atténuation). L'ajout d'une distribution ΔE_0 a un (faible) impact sur, entre autre, la position du maximum d'atténuation.

Chapitre 4

Caractérisations des échantillons de LSCO

Ce chapitre présente les méthodes utilisées pour déterminer le dopage en trous, p, et la température critique supraconductrice, T_c, des échantillons de LSCO de cette thèse. Les mesures ultrasonores de ces échantillons sont présentées dans les deux chapitres qui suivent. Un tableau résumant l'ensemble des échantillons se trouve à la fin de ce chapitre.

4.1 Transition structurale et dopage

Dans LSCO, pour $p < 0.21$, une détermination du dopage en trous en utilisant la température de transition structurale HTT-LTO, T_s, est plus fiable qu'en utilisant la température critique supraconductrice T_c. En effet cette dernière peut fortement varier à cause des inhomogénéités et impuretés chimiques [135]. De plus, dans LSCO, T_s a une dépendance en dopage monotone contrairement à T_c et, finalement, sa variation est plus importante (avec le dopage).

Pour déterminer T_s dans les échantillons de LSCO on se base ici sur les anomalies de vitesse du son associées. Suivant la géométrie des échantillons la vitesse du son a été mesurée au travers de T_s soit dans le mode acoustique c_{44}, soit dans le mode $(c_{11} - c_{12})/2$ (voir table 5.1 pour une définition de ces modes transverses). Ces modes acoustiques montrent tous deux une anomalie différente à la transition structurale HTT-LTO. Dans la suite on explicite le critère utilisé pour définir T_s dans chacun de ces modes. Lorsque la mesure a été possible dans les deux modes au sein d'un même échantillon on obtient (dans les barres d'erreurs) la même valeur de T_s. La méthode pour obtenir le dopage à partir de T_s est également décrite.

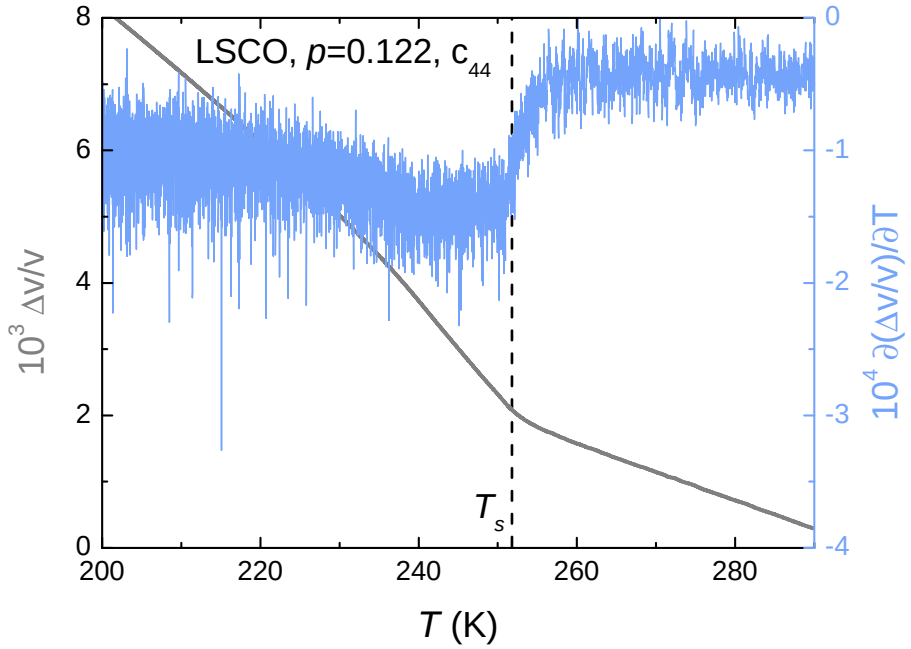

FIGURE 4.1 – Variation relative de vitesse autour de la transition structurale HTT-LTO dans l'échantillon LSCO12, $p = 0.122$**.** Le mode acoustique mesuré est c_{44} (voir table 5.1). La vitesse du son (ligne grise, échelle de gauche) montre un changement de pente à T_s. En conséquence la dérivée en température de la vitesse du son (ligne bleue, échelle de droite) montre un saut, permettant une définition précise et systématique de T_s. La ligne pointillée verticale indique cette dernière température.

4.1.1 Mode acoustique c_{44}

La figure 4.1 montre le comportement de la constante élastique c_{44} (voir table 5.1) autour de la transition structurale HTT-LTO dans l'échantillon LSCO12 (ses caractéristiques se trouvent dans la table 4.1). Le changement de pente observé dans cette constante élastique à la transition structurale est en accord avec la littérature [150], indiquant la bonne orientation à la fois de l'échantillon et du transducteur. La faible réponse de ce mode est prédite au niveau champ moyen [172] et permet de conserver du signal en dessous de la transition structurale tout en étant à même de déterminer précisément T_s. De manière pratique cette détermination s'effectue sur la dérivée de la vitesse du son en fonction de la température qui montre un saut à T_s.

L'anomalie dans la constante élastique c_{44} a été utilisée pour déterminer T_s dans les échantillons LSCO11 et LSCO12 du chapitre 5.

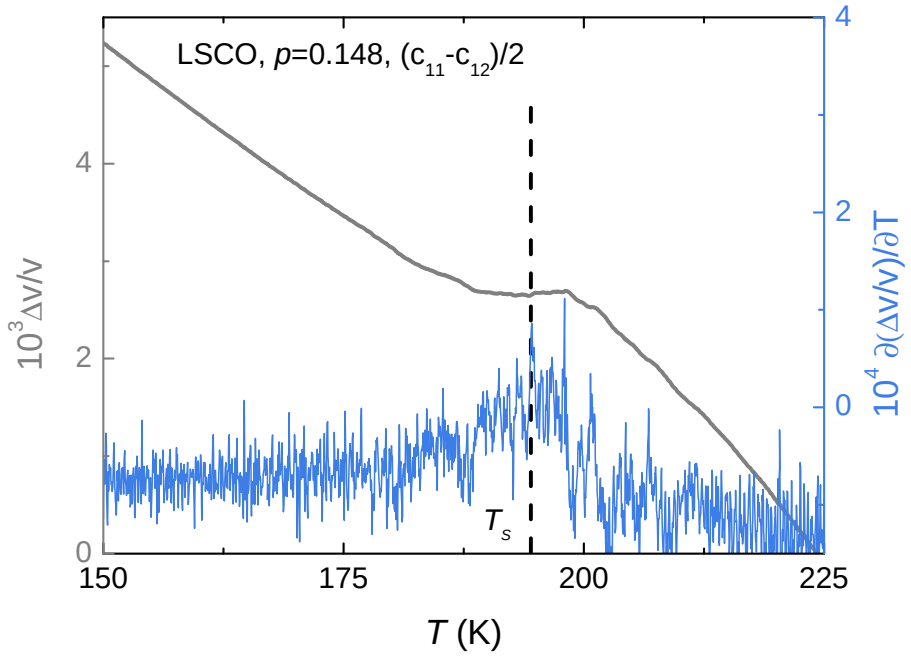

FIGURE 4.2 – Variation relative de vitesse du son dans le mode $(c_{11}-c_{12})/2$ autour de la transition structurale HTT-LTO de l'échantillon LSCO15, $p = 0.148$**.** La vitesse du son (ligne grise, échelle de gauche) est environ constante proche de $T_s \simeq 194.5$ K, cette température critique étant déterminée précisément par le maximum de la dérivée $\partial(\Delta v/v)/\partial T$ (ligne bleue, échelle de droite). La ligne pointillée verticale indique T_s.

4.1.2 Mode acoustique $(c_{11} - c_{12})/2$

La figure 4.2 montre le comportement classique de la constante élastique $(c_{11} - c_{12})/2$ autour de cette même transition structurale, cette fois sur l'exemple de l'échantillon LSCO15. Cette constante élastique montre un palier proche de T_s associé à un maximum de sa dérivée, encore une fois en accord avec la littérature [150]. Lorsque possible, l'accord entre le maximum de $\partial(\Delta v/v)/\partial T$ en $(c_{11} - c_{12})/2$ et la discontinuité de cette même quantité en c_{44} a été vérifiée, indiquant que T_s peut être extraite de manière équivalente par l'un ou l'autre de ces critères.

L'anomalie dans la constante élastique $(c_{11} - c_{12})/2$ a été utilisée pour extraire le dopage des échantillons de dopages $0.148 \leq p \leq 0.188$, *i.e.* ceux présentés dans le chapitre 6.

4.1.3 Détermination du dopage

Les données $T_s(p)$ de la littérature [173–177] montrent un très bon accord, pour $0 < p < 0.20$, avec l'ajustement linéaire suivant :

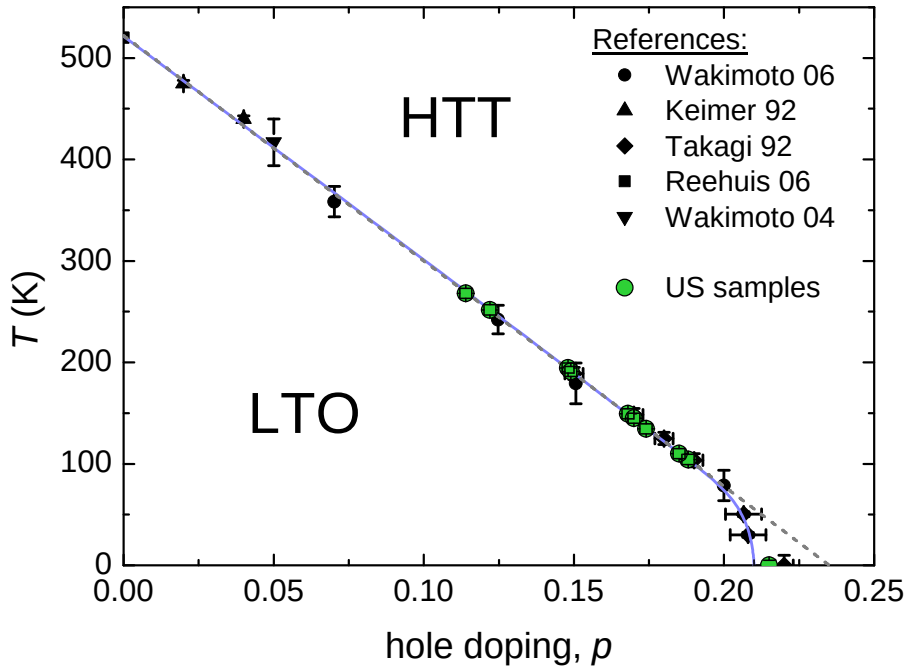

FIGURE 4.3 – Diagramme température-dopage des phases structurales HTT et LTO dans LSCO. Les différents symboles noirs avec les barres d'erreurs associées renseignent la transition structurale HTT-LTO mesurée dans les différentes études de la légende [173–177]. La ligne mauve est un guide à l'œil qui indique un dopage critique de $p_c \simeq 0.21$ pour la transition structurale. La ligne pointillé grise est un ajustement linéaire par la formule 4.1 qui suit très bien les données jusqu'à $p \simeq 0.20$. Les échantillons étudiés dans les chapitres 5 et 6 sont tous indiqués par un rond vert, sauf LSCO4 (voir table 4.1) dans lequel T_s n'est pas connue.

$$T_s(p) = 522 - 2221 \times p \tag{4.1}$$

Cet ajustement est visible sur la figure 4.3, c'est la ligne pointillée grise. On utilise systématiquement cette loi linéaire pour extraire le dopage des échantillons de LSCO pour $0.114 \leq p \leq 0.188$.

Une telle détermination n'a pas été possible pour deux échantillons. Tout d'abord pour l'échantillon LSCO4, de concentration *nominale* en Sr $x = 0.04$: la transition structurale n'a pas été mesurée jusqu'à présent, car $T_S > 300$ K. Le dopage précis de cet échantillon n'est donc pas connu, mais on peut le restreindre à $0.02 < p < 0.05$ puisqu'il n'y a ni trace de supraconductivité ni de l'état de Néel dans les mesures d'aimantations et d'ultrasons. Enfin pour l'échantillon LSCO19 la transition structurale n'est pas atteinte jusqu'à, au moins, $T \simeq 7$ K (voir figure 6.18). On utilise alors T_c pour déterminer le dopage dans cet échantillon, ce qui indique $p = 0.215 \pm 0.005$ (plus d'informations en 6.2.5).

4.2 Transition supraconductrice

La température de transition supraconductrice a été déterminée, selon les échantillons, par une anomalie dans la vitesse du son, l'apparition du diamagnétisme en SQUID, ou encore l'augmentation de la fréquence de résonance du circuit RLC de RMN. Toutes ces méthodes indiquent des valeurs de T_c similaires (dans les barres d'erreurs) lorsque appliquées à un même échantillon.

En vitesse du son T_c a été déterminée selon les échantillons en utilisant les modes longitudinaux, c_{11} et c_{33}, mais également le mode transverse $(c_{11} - c_{12})/2$. Comme expliqué en 3.3.2 la réponse des constantes élastiques transverses et longitudinales est différente à la transition supraconductrice. On décrit donc dans la suite séparément comment on extrait T_c dans chacun de ces cas.

4.2.1 Modes longitudinaux c_{11} et c_{33}

La figure 4.4 montre le saut négatif de la constante élastique c_{33} en champ magnétique nul dans les échantillons LSCO11 (bleu) et LSCO12 (rouge), permettant d'établir la T_c de ces échantillons. Ce saut champ moyen est discuté dans la partie 3.3.2 et est relié à celui de la chaleur spécifique par la relation de Ehrenfest 3.34. L'amplitude du saut, plus importante à $p = 0.122$ que $p = 0.114$, est en accord avec les données de la littérature [150]. La figure montre également que la température critique déterminée par cette méthode concorde avec l'apparition d'un signal diamagnétique vu par SQUID. À $p = 0.122$ la vitesse du son connaît une forte augmentation pour $T < 10$ K. Ce comportement sera discuté dans le chapitre 5.

Une anomalie similaire existe à T_c dans le mode acoustique c_{11}, et a été également utilisée pour déterminer T_c dans certains échantillons. Dans ce dernier mode le saut à la transition supraconductrice est de plus faible amplitude. Cela vient du fait que, dans LSCO, la susceptibilité en déformation de T_c est plus importante selon l'axe c que dans le plan, tout spécialement pour $p \simeq 0.12$ [150].

4.2.2 Mode transverse $(c_{11} - c_{12})/2$

Certains échantillons ont pu être mesurés uniquement dans le mode transverse $(c_{11} - c_{12})/2$. Ce mode acoustique ne montre aucun saut champ moyen à la transition supraconductrice. T_c peut néanmoins être toujours définie par le durcissement du réseau qui apparaît dans l'état supraconducteur (une description de ce dernier se trouve en 3.3.2). La figure 4.5 montre une telle détermination sur l'exemple de l'échantillon LSCO19. Pour $T > T_c$ la variation de vitesse du son dans ce mode acoustique peut

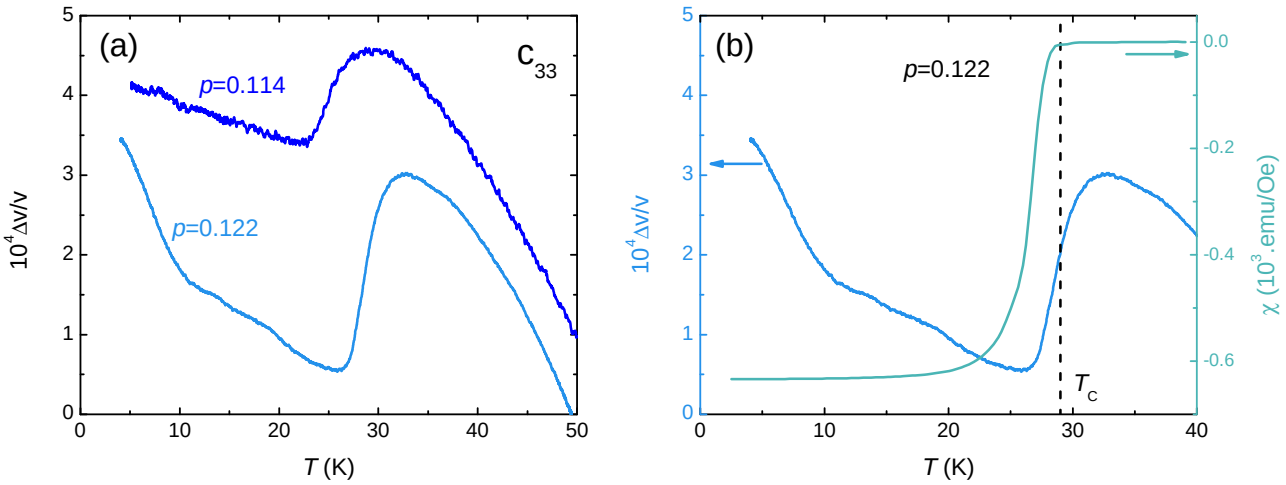

FIGURE 4.4 – Transition supraconductrice dans LSCO11 et LSCO12. (a) $\Delta v/v$ en fonction de la température aux deux dopages indiqués dans le mode c_{33}. Une discontinuité négative indique T_c, elle est d'amplitude plus grande à $p = 0.122$. La forte augmentation de vitesse du son à $p = 0.122$ pour $T < 10$ K est discutée plus tard dans le chapitre 5. Les courbes sont décalées arbitrairement. **(b)** Comparaison entre $\Delta v/v$ (ligne bleue, échelle de gauche) et la susceptibilité magnétique, χ (ligne verte, échelle de droite), mesurée en SQUID, toutes deux dans LSCO12. La discontinuité dans $\Delta v/v$ correspond à l'apparition d'un signal diamagnétique. La ligne pointillée indique T_c.

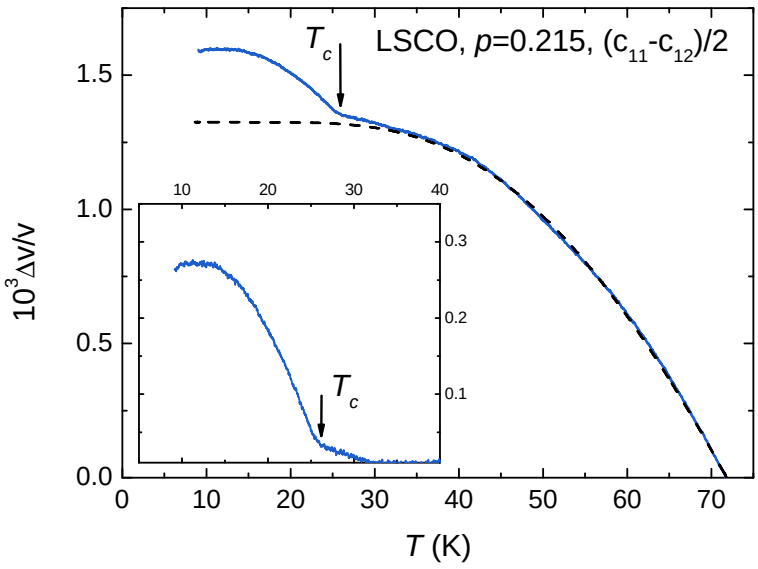

FIGURE 4.5 – Variation en température de la vitesse du son dans le mode $(c_{11} - c_{12})/2$ de l'échantillon LSCO19. La ligne pointillée noire indique un ajustement de la contribution du réseau pour $T > T_c$ suivant la formule 3.20. La courbe bleue est la variation de vitesse du son mesurée, qui dévie de l'ajustement pour $T < T_c$. **Insert :** différence entre la vitesse du son mesurée et l'ajustement. L'augmentation de vitesse du son dans l'état supraconducteur permet de définir T_c. Au dessus, mais proche de T_c, une première légère augmentation de la vitesse du son est visible, liée non pas à T_c mais présumément à l'apparition de fluctuations supraconductrices [70, 155].

être bien modélisée par la formule 3.20. Pour $T \leq T_c$ le réseau durcit, ce qui permet de déterminer T_c même en l'absence de saut dans cette constante élastique.

4.2.3 Dépendance en dopage

Le diagramme de phase 4.6 résume la dépendance en dopage $T_c(p)$ des échantillons ici étudiés. Les valeurs sont en accord avec celles de la littérature d'aimantation [97]. Il existe cependant une exception notable : l'échantillon LSCO15, de dopage $p = 0.148$, mesuré dans le mode $(c_{11} - c_{12})/2$. Ce dernier montre une T_c très faible par rapport à celle attendue pour son dopage. Cela semble indiquer la présence d'impuretés dans cet échantillon particulier. Une telle diminution est obtenue, par exemple, par substitution de un pourcent des atomes de Cu par du Zn [118]. La température de transition structurale HTT-LTO, T_s, visible sur la figure 4.2, ne montre aucun élargissement ou autre anomalie.

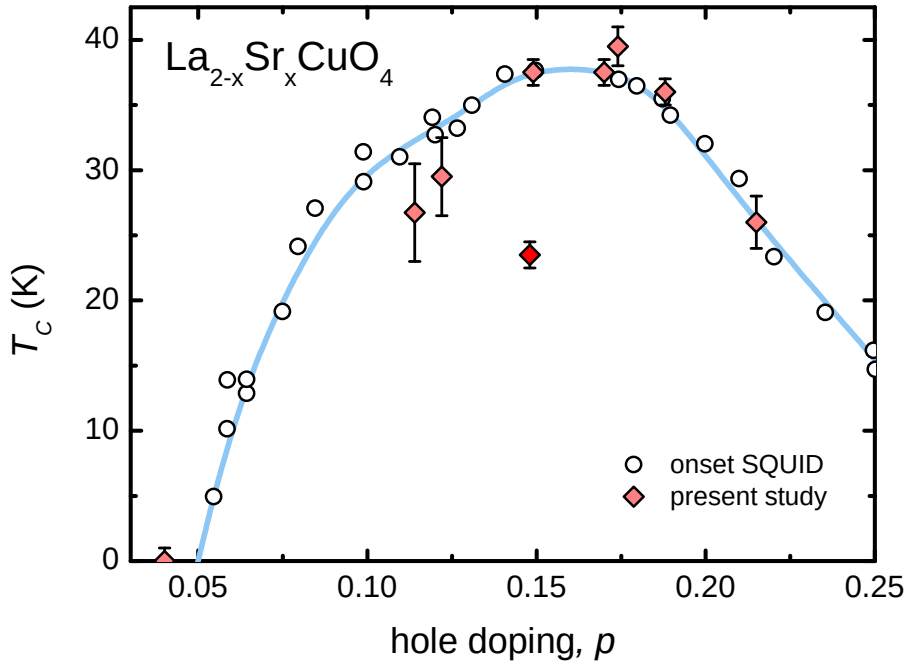

Figure 4.6 – Température critique supraconductrice, T_c, en fonction du dopage dans LSCO. Les ronds noirs vides indiquent T_c déterminée par l'apparition du diamagnétisme en SQUID, d'après [97]. La ligne bleue est un guide à l'oeil. Les échantillons mesurés dans ce manuscrit sont indiqués par des losanges, où T_c a été mesurée par vitesse du son, mais également RMN et SQUID. L'échantillon "LSCO15" (losange rouge) présenté dans le chapitre 6 a une T_c anormalement faible.

4.3 Récapitulatif des échantillons

Le tableau 4.1 résume l'ensemble des échantillons de LSCO présentés dans ce manuscrit. Au total ce sont donc onze échantillons qui sont décrits dans ce manuscrit. Les trois premiers échantillons de ce tableau font l'objet du chapitre 5 de cette thèse. Les suivants sont au cœur du chapitre 6.

nom échantillon	**x nominal**	**mode**	T_s(K)	T_c(K)	p	$B_{c2}(0)$(T)
LSCO4	0.04	c_{12}	>300	-	0.02-0.05	-
LSCO11	0.11	c_{11}, c_{33}	268.0	26.75 ± 3.75	0.114	22.5 ± 3.5
LSCO12	0.12	c_{11}, c_{12}, c_{33}	251.8	29 ± 3	0.122	24 ± 4
LSCO15	0.15	c_{12}	194.5	23.5 ± 1	0.148	41 ± 9
LSCO14	0.145	c_{11}	191	37.5 ± 1	0.149	41 ± 9
LSCO16 N2	0.16	c_{12}	149.3	-	0.168	50.5 ± 3.5
LSCO16 N1	0.16	c_{11}	145.0	37.5 ± 1	0.170	50.5 ± 3.5
LSCO 17 N3	0.17	c_{12}	134.5	39.5 ± 1.5	0.174	50.5 ± 3.5
LSCO17 N2	0.17	c_{12}	110.0	-	0.185	49.5 ± 3.5
LSCO20 N2	0.20	c_{12}	104.1	36.0 ± 1	0.188	49 ± 3.5
LSCO19	0.19	c_{12}	< 7	26.0 ± 2	0.215	41 ± 5

Table 4.1 – Tableau récapitulatif des différents échantillons. Les différentes colonnes indiquent pour chaque échantillon sa concentration nominale en Sr x, le(s) mode(s) dans lequel(s) il a été mesuré, sa température de transition structurale T_s, sa température critique supraconductrice T_c, son dopage p, et enfin une estimation de $B_{c2}(0)$. Les barres d'erreurs typiques sur la détermination de T_s sont de ± 5 K, menant à une incertitude sur p de $\Delta p = \pm 0.002$. On abrège $(c_{11} - c_{12})/2$ par c_{12}. Pour les échantillons de dopage $p = 0.168$ et $p = 0.185$ en mode $(c_{11} - c_{12})/2$ seule T_s et non T_c est connue. Pour l'échantillon LSCO19 dans lequel il y a absence de transition structurale jusqu'à, au moins, 7 K on utilise T_c pour déterminer p (plus de détails en 6.2.5). Cette méthode induit une incertitude de $\Delta p = \pm 0.005$, plus importante qu'aux autres dopages. Pour la méthode d'estimation de $B_{c2}(0)$ voir l'annexe A, les valeurs indiquées ici correspondent à la zone grisée sur la figure A.2.

Chapitre 5

Observation du verre antiferromagnétique de LSCO par ultrasons

L'anomalie "1/8", *i.e.* le creux dans la dépendance en température de la transition supraconductrice se trouvant proche de $p \simeq 1/8$, est particulièrement prononcée dans les cuprates au lanthane. Seulement quelques années après la découvertes des cuprates supraconducteurs cette anomalie du diagramme de phase a été investiguée par le biais de la vitesse et l'atténuation du son dans ces composés, où des anomalies notables ont été identifiées. Un ramolissement du réseau dans l'état normal a été observé dans certains modes acoustiques de monocristaux de LSCO. Dans les polycristaux c'est au contraire un durcissement du réseau à plus basses températures qui se produit. Ces deux anomalies sont inexplicables par l'interaction entre l'onde acoustique et les phonons thermiques et/ou la supraconductivité. Aujourd'hui encore, malgré que l'anomalie "1/8" soit assez bien comprise, l'origine de ces signatures ultrasonores reste mystérieuse et différentes interprétations existent dans la littérature. Ce chapitre propose une étude ultrasonore en champs magnétiques intenses qui montre que les anomalies "1/8" sont dues à la phase verre antiferromagnétique de LSCO, décrite dans le chapitre 1 de ce manuscrit, et non à une instabilité structurale ou directement à l'ordre de charge comme précédemment proposé. Des mesures dans une multitude de modes acoustiques différents jusqu'à des champs magnétiques de $B = 60$ T, dans trois échantillons mono-cristallins de dopages en trous $p = 0.122$ (LSCO12), $p = 0.114$ (LSCO11) et $p \simeq 0.04$ (LSCO4), sont présentées ici.

Le chapitre est organisé comme suit. Tout d'abord une première partie décrit les anomalies précédemment observées par ultrasons. Les différentes interprétations associées sont mentionnées. Dans un second temps les mesures expérimentales de vitesse et atténuation du son sont décrites. Ces dernières sont ensuite ajustées par le modèle de susceptibilité dynamique décrit en 3.6. Une discussion des résultats conclue ce chapitre.

5.1 Aspects de la littérature ultrasons dans les cuprates au Lanthane

J. G. Bednorz et A. Müller ont découvert la supraconductivité dans $La_{2-x}Ba_xCuO_4$ (LBCO) avec l'idée que l'importance du couplage électron-phonon de ce matériau peut mener à une supraconductivité à haute température. Ce n'est donc pas étonnant que LBCO, et les autres cuprates au lanthane, ont une littérature très riche en ultrasons. J. G. Bednorz et A. Müller eux mêmes participent dès 1987 à la première étude de l'atténuation et de la vitesse du son dans LBCO [178].

Cette première partie a pour objectif de décrire deux anomalies observées dans la littérature. Premièrement un ramollissement du réseau, *i.e.* une diminution de vitesse du son en refroidissant, dans l'état normal de LSCO $p \sim 0.12$ qui a été jusqu'alors interprété comme étant dû à une instabilité d'origine structurale. Ensuite un durcissement, *i.e.* une augmentation de vitesse du son, observé dans de nombreux polycristaux de cuprates aux lanthanes, toujours à un dopage proche de $p \sim 0.12$, mais à plus basse température, interprété comme une instabilité d'origine structurale et/ou l'existence locale d'ordre de charge.

5.1.1 Ramollissement du réseau cristallin dans l'état normal au dessus de T_c

La mesure de la vitesse du son dans LSCO, à un dopage de $p = 0.14$, a permis de mettre en évidence un ramollissement du réseau dans l'état normal, *i.e.* pour $T > T_c$. L'étude de différentes constantes élastiques a montré que cette anomalie existe dans plusieurs modes acoustiques : les modes longitudinaux c_{11} [70, 179], $(c_{11}+c_{12}+2c_{66})/2$ [180], c_{33} [181] et le mode transverse $(c_{11}-c_{12})/2$ [70]. L'analyse de différents échantillons de dopages en trous distincts a également indiqué que ce ramolissement est plus important à $p = 0.12$ qu'à $p = 0.14$ ou $p = 0.09$. Cette observation a amenée à conclure que ce ramollissement est reliée à l'anomalie "1/8".

Sur la figure 5.1, reproduite d'après la référence [70], l'anomalie est étudiée à $p \simeq 0.14$ dans le mode transverse $(c_{11}-c_{12})/2$ qui est celui montrant le ramolissement le plus important. Déjà en champ magnétique nul la courbe est anormale avec les prémices d'un ramollissement pour $T > T_c$. L'application d'un champ magnétique perpendiculaire aux plans CuO_2, particulièrement nocif à la supraconductivité, semble indiquer que ce ramollissement se poursuit tant que l'échantillon est dans l'état normal, ou tant que la supraconductivité est suffisamment faible. En effet, l'amplitude du ramollissement croît avec le champ magnétique et lorsque - à un champ magnétique donné - émerge la supraconductivité, ce ra-

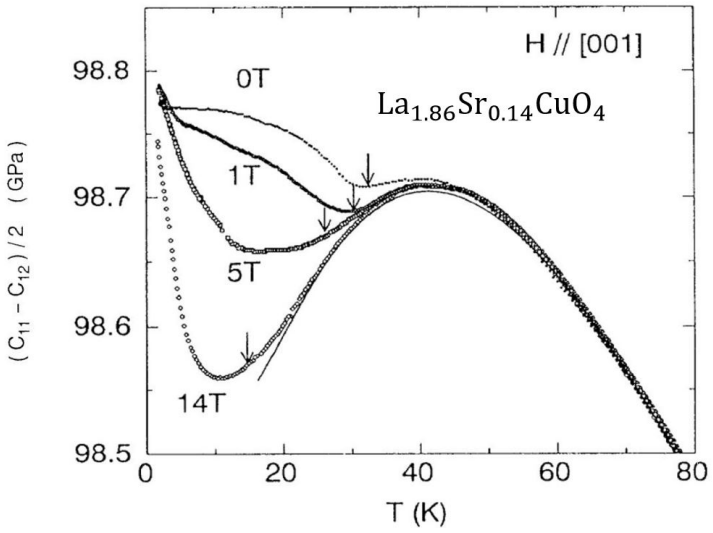

FIGURE 5.1 – Dépendance en température de la constante élastique $(c_{11} - c_{12})/2$ d'un échantillon LSCO $p \simeq 0.14$, tiré de [70]. En dessous de $T \simeq 45$ K $\gg T_c$ le réseau commence à ramollir de manière anormale. Le ramollissement se termine par un minimum proche de T_c en champ magnétique nul et se poursuit à températures plus faibles en champ magnétique appliqué $H \parallel (001)$. Les flèches indiquent $T_c(H)$ extrait de la dépendance en température du mode c_{33}. Un champ magnétique parallèle aux plans CuO_2 n'a lui aucun effet sur le ramollissement, au moins jusqu'à $\mu_0 H = 14$ T. La ligne pleine provient d'un modèle expliqué dans la référence [70].

mollissement se transforme rapidement en un durcissement du réseau. Un minimum se développe ainsi dans la vitesse du son à une température qui diminue lorsque le champ augmente. Cette corrélation entre l'émergence de la supraconductivité et le minimum dans la vitesse du son, ajouté au fait que les courbes à différents champs tendent à se superposer à basse température, est naturellement interprété dans l'étude [70] comme étant l'indication d'une compétition entre la supraconductivité et l'instabilité associée au ramollissement du réseau. L'absence d'effet du champ magnétique lorsque ce dernier est appliqué selon la direction des plans CuO_2 est parfaitement cohérente avec cette interprétation.

Pour $0 < p < 0.21$ la structure cristalline de LSCO à basse de température est orthorhombique (LTO pour Low Temperature Orthorhombic, groupe d'espace $I4/mmm$). Le ramollissement lui même a été interprété par M. Nohara et ses collaborateurs [70] comme étant dû à une instabilité vers une nouvelle structure cristalline, celle de la phase LTT (pour Low Temperature Tetragonal, groupe d'espace $P4_2/ncm$) qui existe macroscopiquement dans des composés proches comme LBCO et les cousins de LSCO dopés avec des terres rares (Nd-LSCO, Eu-LSCO, etc.). Dans le cas de LSCO, seule des distorsions LTT locales existent alors comme le montrent les mesures d'absorption des rayons-x [182, 183]. Dans cette interprétation la supraconductivité empêche alors la phase LTT de s'installer de manière macroscopique, et cause une remontée de vitesse du son à basse température.

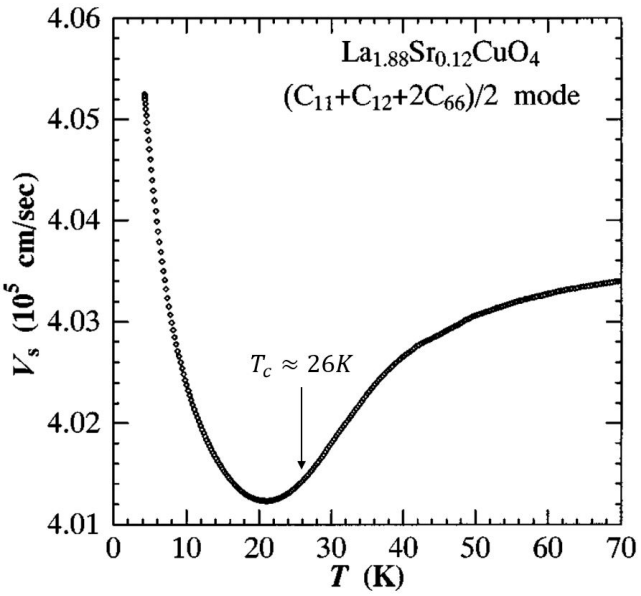

FIGURE 5.2 – Ramolissement dans l'état normal de LSCO $p \simeq 0.12$ dans le mode longitudinal $(c_{11} + c_{12} + 2c_{66})/2$, à champ magnétique nul. Figure tirée de la référence [180], où ce ramolissement est interprété comme étant dû à une distorsion structurale vers la phase LTT qui servirait alors de mécanisme d'ancrage aux fluctuations de spins. Quelques Kelvins en dessous de T_c le réseau durcit à nouveau. La flèche indique la température critique supraconductrice déterminé par l'apparition du diamagnétisme en SQUID.

La température du minimum dans la vitesse du son à $p \simeq 0.12$ est cohérente avec cette interprétation. La figure 5.2 est reproduite d'après l'étude [180]. Le ramollissement du réseau cristallin, débutant à une température de $T \simeq 70$ K (*i.e.* à plus haute température qu'à $p = 0.14$) devient un durcissement à $T \simeq 20$ K. Cette température est inférieure mais très comparable à la température critique supraconductrice de l'échantillon de la référence [180]. À ce dopage aucun champ magnétique n'a été appliqué pour confirmer, ou infirmer, cette interprétation. On propose une telle mesure dans la suite du chapitre.

5.1.2 Durcissement anormal à basse température

Une autre motivation pour cette interprétation en terme d'instabilité structurale provient des mesures d'ultrasons effectuées sur des polycristaux de LSCO [185–188], LBCO [185, 186], $La_{2-x-y}Sr_xBa_yCuO_4$ (LSBCO) [184] et Nd-LSCO [188]. Dans l'ensemble de ces mesures la vitesse du son longitudinale montre une forte augmentation à basse température et l'atténuation un pic. Une étude de ces anomalies dans $La_{1.88}Sr_{0.12-x}Ba_xCuO_4$(LSBCO, $p = 0.12$) [184] est reproduite sur la figure 5.3. Dans LBCO $p = 0.12$, *i.e.* à x=0.12 sur la figure 5.3, la remonté de la vitesse du son et le pic d'atténuation se produisent à $T \simeq 60$ K qui est la température de la transition structurale vers la phase LTT, similaire

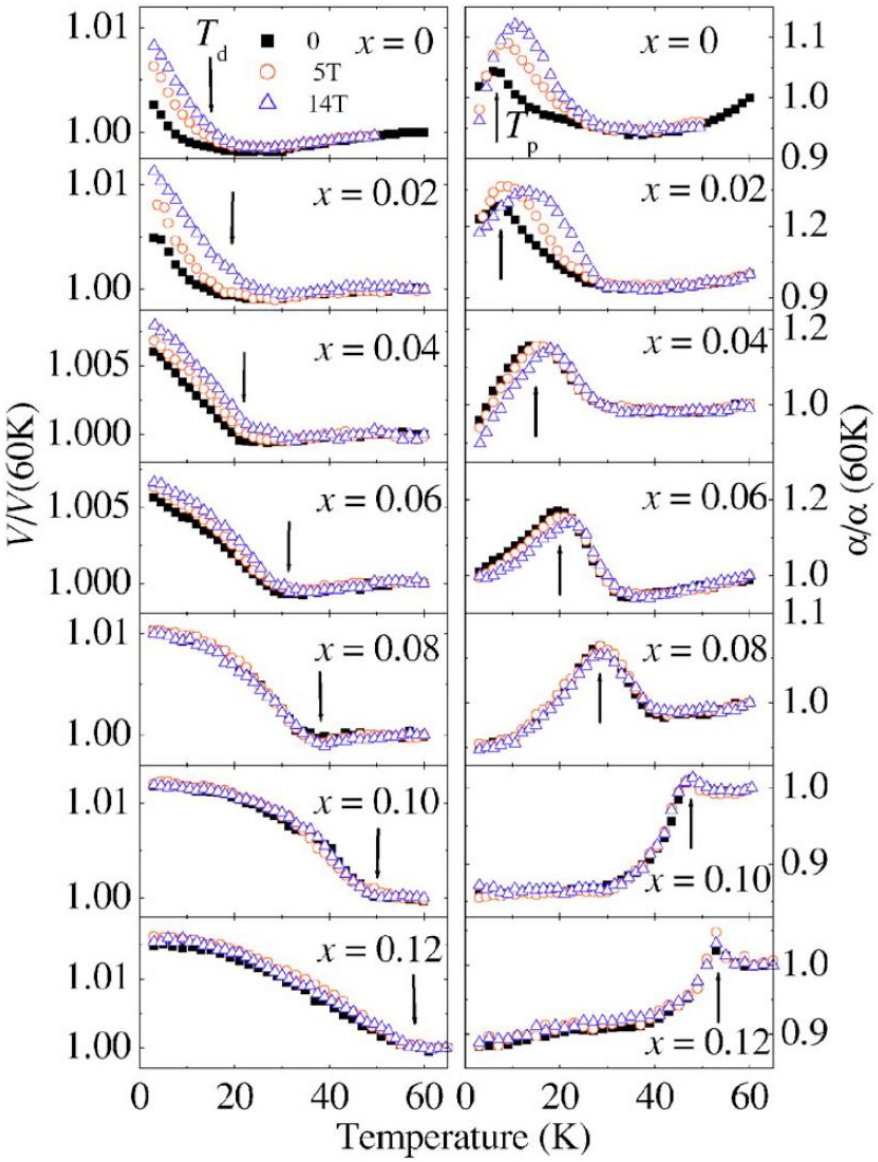

FIGURE 5.3 – Dépendance en température de l'attenuation et la vitesse du son dans des polycristaux $La_{1.88}Sr_{0.12-x}Ba_xCuO_4$ (LSBCO), à différents champs magnétiques, et valeurs de x, tiré de [184]. **Gauche :** Une augmentation apparaît dans la vitesse du son longitudinale à tous les dopages, depuis LBCO $p = 0.12$ (x=0.12) jusqu'à LSCO $p = 0.12$ (x=0), avec une température caractéristique qui augmente et un effet du champ magnétique qui diminue en fonction de x. **Droite :** Atténuation du son aux mêmes compositions. Un pic se produit à température légèrement plus basse que le début de la remontée de vitesse du son. Le champ magnétique n'a un effet que lorsqu'il en a également un sur la vitesse du son, indiquant que les deux quantités sont sensibles au même phénomène. Toutes les données sont normalisées à $T = 60$ K où l'effet du champ magnétique est nul.

à celle de la transition vers l'ordre de charge associé à l'ordre de stripes (*cf.* figure 1.16(b)). L'ordre de spin lui apparaît à plus basse température et sa température caractéristique est toujours inférieure à $T = 40$ K, quelque soit le dopage. Cela signifie que dans LBCO, les anomalies ultrasonores ne sont pas dues à l'ordre de spin mais sont associées à la formation de la structure LTT et/ou l'ordre de charge. Comme le montre la figure 5.3 la température caractéristique de ces anomalies diminue graduellement en allant de LBCO à LSCO, avec toujours un dopage en trous de $p = 0.12$. Pour $x = 0$, c'est à dire dans le cas de LSCO, cette temperature est de $T \simeq 10$ K. L'effet du champ, nul dans LBCO, apparaît graduellement en diminuant x. Dans LSCO $p = 0.12$ la remonté de la vitesse du son et le pic d'atténuation se déplacent tous deux à plus haute température avec le champ magnétique et leur amplitude est également augmentée. Ce comportement graduel a tout d'abord été interprété, avant la découverte de l'ordre de stripes par J. Tranquada [59], comme étant dû à une transition structurale courte portée LTO-LTT dans LSCO $p = 0.12$ qui causerait la dépression de la température critique supraconductrice proche de ce dopage [186]. Suite à la découverte des stripes J. F. Qu et collaborateurs [184] ont interprétés ces anomalies comme étant dues à la formation locale de domaines LTT, et donc localement à l'existence d'ordre de charge associé aux stripes. Cette interprétation est appuyée par le fait qu'à basse température, dans ce système, la vitesse du son varie en fonction du champ magnétique comme le paramètre d'ordre des stripes [184, 189].

La dépendance en dopage en trous de ces anomalies a également été effectuée, aussi bien dans LSCO [186, 187], que dans LBCO [186]. Ces travaux montrent que l'amplitude et la température caractéristique sont maximums pour $p \simeq 1/8$ dans LBCO et plus proche de $p \simeq 0.115 - 0.12$ dans LSCO. C'est un argument fort pour relier cette anomalie à la dépression de T_c dans ces deux composés.

Le ramollissement dans l'état normal discuté en 5.1.1 n'apparaît pas, où très mal, dans les polycristaux. Comme cette anomalie n'existe que dans certains modes acoustiques bien définis ce n'est pas étonnant. Ce qu'il est important de noter est que dans le cas des monocristaux c'est un ramollissement du réseau cristallin qui a été interprété comme étant une instabilité structurale, lorsque la même interprétation naît d'un durcissement du réseau dans les polycristaux.

5.1.3 Questions ouvertes

Les deux anomalies précédemment discutées et leurs interprétations respectives soulèvent un certain nombre de questions. En voici une liste non exhaustive :

1. Y-a-t'il une transition structurale vers la phase LTT dans LSCO lorsque la supraconductivité est suffisamment affaiblie par le champ magnétique ?

2. Quel est l'effet du champ magnétique sur le minimum de vitesse ultrasonore dans LSCO $p = 0.12$? Est-il cohérent avec celui observé à $p = 0.14$ interprété en terme de compétition avec la phase supraconductrice ?

3. La physique menant au durcissement du réseau cristallin et au pic d'atténuation est-elle similaire dans LBCO et LSCO ? Comment comprendre l'effet du champ magnétique différent ?

4. Le durcissement à basse température dans les polycristaux est-il lié à de celui observé en $(c_{11} - c_{12})/2$ dans les monocristaux, interprété alors comme étant un effet de compétition avec la supraconductivité ? Comment expliquer alors que dans les polycristaux sa température caractéristique augmente avec le champ magnétique ?

5. Il y a-t-il besoin d'invoquer une instabilité structurale naissante dans LSCO pour expliquer les données de vitesse et atténuation du son ? Le verre AF ou bien l'ordre de charge présent autour de $p = 0.12$ sont-ils des explications alternatives crédibles ?

La suite du chapitre a pour but de répondre, ou au moins d'apporter des éléments de réponses, à ces différentes questions.

5.2 Propriétés ultrasonores du verre AF

Il est maintenant temps de décrire les mesures ultrasonores sur les trois échantillons de ce chapitre : LSCO4, LSCO11 et LSCO12. Les caractéristiques de ces trois échantillons sont dans le tableau 4.1. Dans un premier temps la situation à champ nul est exposée. Les mesures sont ensuite étendues en champs magnétiques intenses, pulsés et statiques.

5.2.1 Situation en champ magnétique nul

La revue des anomalies à champ nul décrite dans la suite a pour but de les confronter avec celles déjà publiées dans la littérature et d'étendre notre connaissance à d'autres modes acoustiques. Ces

mesures permettent de mettre en doute l'interprétation d'instabilité structurale en compétition avec la supraconductivité comme étant l'origine des anomalies ultrasonores. Les mesures d'atténuation, même à champ magnétique nul, sont toutes présentes en 5.2.2.

Réponse des différentes constantes élastiques dans LSCO12

Une étude de la réponse en champ magnétique nul des différentes constantes élastiques dans LSCO12 a été effectuée. Le tableau 5.1 indique les différents modes mesurés et leurs caractéristiques. Aucun couplage entre le mode acoustique c_{44} et la supraconductivité n'est apparent, en accord avec la littérature [150]. Ce mode est très bien décrit par la formule 3.20, comme cela est visible sur la figure 3.5, et reflète donc le comportement dû à l'interaction entre phonons thermiques et onde acoustique seulement. La variation en température de la vitesse du son dans ce mode acoustique, mais également les autres modes mesurés, est visible sur la figure 5.4.

Constante élastique	**Propagation**	**Polarisation**	**Déformation**	**Symétrie**
c_{11}	[100]	[100]	ϵ_{xx}	$A_{1g} + B_{1g}$
c_{33}	[001]	[001]	ϵ_{zz}	A_{1g}
$(c_{11} - c_{12})/2$	[110]	$[1\bar{1}0]$	$\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy}$	B_{1g}
c_{44}	[100]	[001]	ϵ_{yz}, ϵ_{zx}	E_g

Table 5.1 – Différents modes acoustiques mesurés à champ magnétique nul dans LSCO12. Le tableau indique la direction de propagation de l'onde acoustique, sa direction de polarisation, la déformation associée et sa symétrie. Les notations sont dans la phase HTT.

Toutes les autres constantes élastiques ont un comportement qui ne peut s'expliquer seulement par l'interaction entre phonons thermiques et onde acoustique. Le saut négatif à T_c dans le mode c_{33} a déjà été décrit et est reliée au saut de chaleur spécifique par la relation de Ehrenfest (équation 3.34). Pour $T < T_c$ l'on s'attend à un durcissement du réseau dû à la supraconductivité (voir 3.3.2) qui doit (ou du moins tendre à) saturer aux plus basses températures. Cette saturation à basse température est observée dans la référence [150] à des dopages supérieurs et inférieur à $p = 0.122$. Au contraire on observe ici une augmentation marquée de la vitesse du son en c_{33} pour $T < 10$ K, qui est donc inexplicable avec comme seul ingrédient la supraconductivité et l'interaction phonon-phonon. Cela semble être une caractéristique, au moins en champ magnétique nul, de $p \simeq 0.12$.

Le mode longitudinal c_{11} montre un comportement très similaire à celui déjà observé par Suzuki

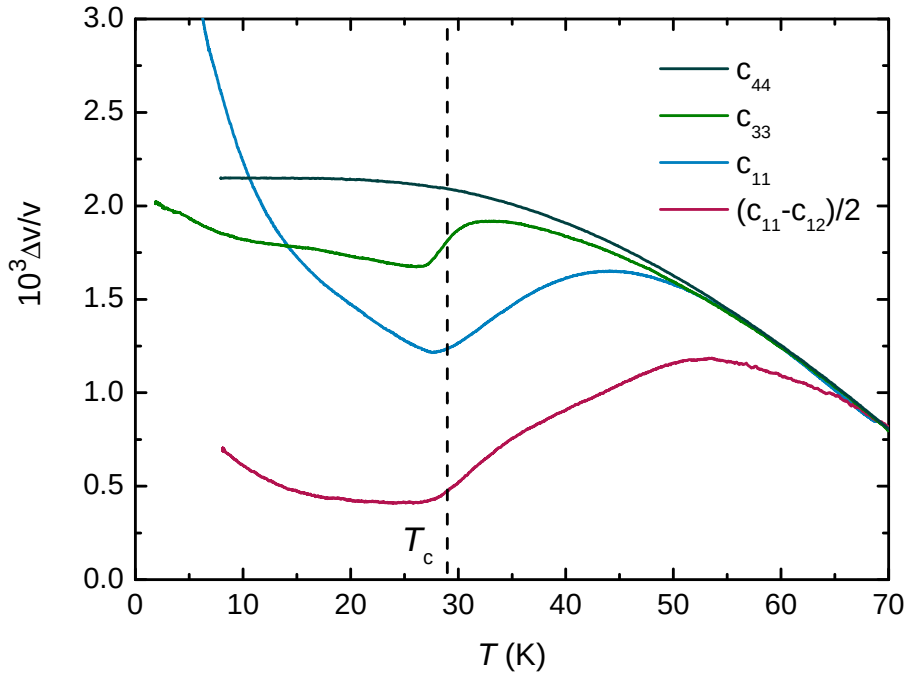

FIGURE 5.4 – Dépendance en température de la variation relative de vitesse du son pour différents modes acoustiques dans LSCO12. Le mode transverse c_{44}, non couplé à la supraconductivité, ne montre aucune anomalie. Il reflète le comportement attendu pour la seule interaction entre l'onde acoustique et les phonons thermiques. Le mode longitudinal c_{33} montre un saut champ moyen (négatif) à T_c lié à celui de chaleur spécifique, comme attendu. Néanmoins une surprenante augmentation de vitesse du son existe alors pour $T < 10$ K. Dans les modes c_{11} et $(c_{11} - c_{12})/2$ aucun saut champ moyen n'est visible à T_c mais l'apparition de la supraconductivité concorde alors avec un minimum de vitesse du son. Les courbes sont décalées arbitrairement pour se superposer à $T = 70$ K. La ligne pointillée verticale indique T_c.

et collaborateurs [180] en mesurant la vitesse du son d'une onde acoustique longitudinale suivant l'axe cristallographique [110] à un dopage similaire (voir figure 5.2). Un ramollissement débute à $T \simeq 45$ K, bien avant T_c. Comme nous le verrons ce dernier est inexplicable par la phase supraconductrice, ses fluctuations et bien sûr la variation normale du réseau cristallin. À une température très proche de T_c ce ramollissement s'arrête pour laisser place à une augmentation de la vitesse du son très marquée qui s'accélère jusqu'aux plus basses températures. Le durcissement du réseau dû à la supraconductivité peut contribuer à cette augmentation mais ne peut pas l'expliquer seul puisque cette contribution tend, au contraire, à saturer à basse température. L'amplitude de ce durcissement est également un ordre de grandeur supérieure à celle observée pour la contribution supraconductrice seule à $x = 0.09$ et $x = 0.19$ dans la référence [150]. Il y a donc dans ce mode c_{11}, comme dans le mode c_{33} précédent, une augmentation anormale de la vitesse du son à basse température, mais bien plus marqué que dans ce dernier.

Le mode transverse $(c_{11} - c_{12})/2$ montre des similitudes avec le mode c_{11}. Cette constante élastique commence à diminuer dès $T \simeq 55$ K, *i.e.* bien avant T_c et une dizaine de Kelvins avant le même effet en c_{11}. Comme en c_{11} le ramollissement se termine très proche de T_c et la vitesse du son augmente à plus basse température. C'est dans ce mode transverse que le ramollissement est le plus marqué. Une interprétation naturelle est alors que le ramollissement pour $T \geq T_c$ est dû à un couplage bilinéaire (voir 3.3.1) entre déformation et un paramètre d'ordre de symétrie B_{1g} (*i.e.* nématique).

En résumé les différentes constantes élastiques mesurées pour $B = 0$ T sont en accord avec la littérature. Un ramollissement dans l'état normal et un durcissement à plus basse température sont bien observés. À champ magnétique nul le minimum de $\Delta v/v$ observé en c_{11} et $(c_{11} - c_{12})/2$ semble bien correspondre à T_c, motivant un scénario en terme de compétition entre une instabilité (à définir) et la supraconductivité.

Comparaison avec l'échantillon non supraconducteur LSCO4

L'échantillon LSCO4 a été mesuré dans le mode $(c_{11} - c_{12})/2$ permettant une comparaison, dans le même mode acoustique, avec l'échantillon LSCO12. Cette dernière est visible sur la figure 5.5. La phénoménologie est similaire aux deux dopages. En abaissant la température le réseau ramollit, montre un minimum de vitesse du son, puis cette dernière augmente à nouveau. Bien que la phénoménologie soit similaire l'effet est bien plus marqué dans LSCO12 que dans LSCO4 où la vitesse du son est dominée par la composante normale du réseau cristallin.

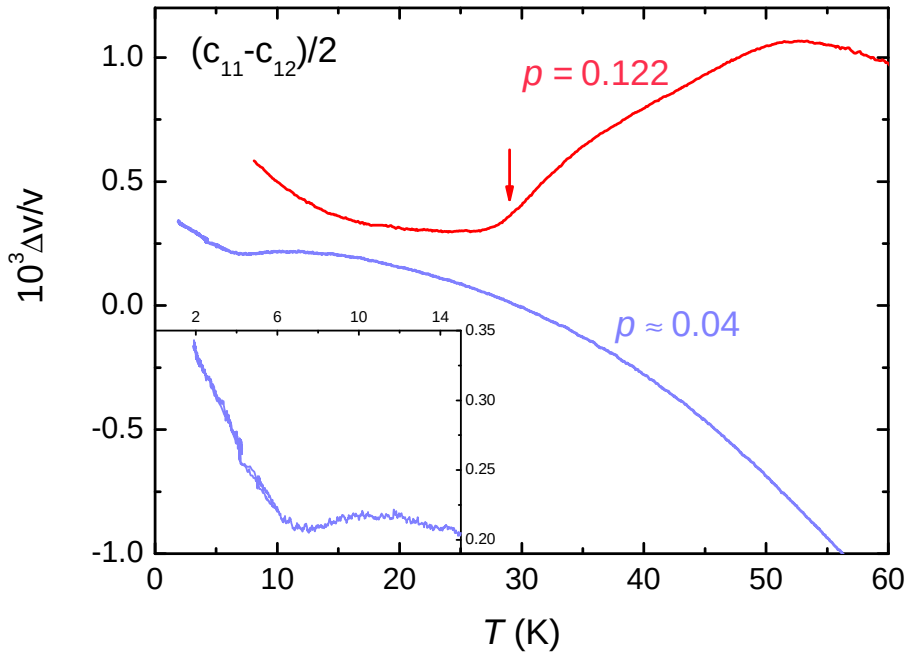

FIGURE 5.5 – Variation relative de vitesse du son dans les échantillons LSCO12 (rouge) et LSCO4 (bleu) en fonction de la température pour le mode acoustique $(c_{11}-c_{12})/2$**.** Aux deux dopages la vitesse du son montre un minimum suivi par un durcissement du réseau à plus basse température. L'effet est bien plus important dans LSCO12 où il se démarque clairement de la contribution classique du réseau cristallin. L'insert en bas à gauche est un zoom sur la zone basse température dans l'échantillon LSCO4. Dans cet échantillon on peut exclure une origine supraconductrice à la remontée de vitesse du son à basse température. La flèche indique T_c dans LSCO12. Les courbes sont décalées arbitrairement.

L'observation d'un (faible) minimum et d'une remontée dans la vitesse du son à basse température dans l'échantillon LSCO4 semble contradictoire avec l'interprétation de M. Nohara et collaborateurs [70] à partir de mesures à $p = 0.14$. En effet l'absence de supraconductivité dans l'échantillon LSCO4 signifie que la remontée dans la vitesse du son, qui se produit à une température de $T \simeq 7$ K, ne peut être due à cette dernière. Ce point est confirmée dans la suite par la persistance de cette remontée en champs magnétiques intenses (voir figure 5.10). L'interprétation de J. F. Qu et collaborateurs [184], qui attribue la remontée de vitesse du son à basse température à l'existence locale d'ordre de charge, est également mise en doute par cette mesure du fait de l'absence apparente de cet ordre à ce dopage [72]. Le verre AF présent dans ces deux échantillons apparaît déjà comme un bon candidat pour expliquer les anomalies de vitesse du son observées.

Évolution proche de $p \sim 1/8$

La mesure de vitesse du son dans le mode acoustique c_{11} a été possible pour les échantillons LSCO11 et LSCO12. La figure 5.6 montre la comparaison de la réponse des deux échantillons lorsque $T < 50$ K. La vitesse du son aux deux dopages dévie de sa variation normale. Au dopage $p = 0.122$ cette déviation est très importante devant la variation due au potentiel ionique anharmonique et on observe un clair minimum dans la vitesse du son. Pour $p = 0.114$ l'amplitude de l'anomalie est bien plus faible, et la variation due au réseau tend à la masquer. Néanmoins à ce dopage également une augmentation de la vitesse du son est bien visible, ici en dessous de $T \simeq 8$ K.

L'extraction de cette anomalie en champ nul à $p = 0.114$ est donc extrêmement sensible à la définition de la composante normale. Sur un plan qualitatif néanmoins l'allure de la vitesse du son dans LSCO11 et la comparaison avec LSCO12 semble indiquer que la même physique est présente aux deux dopages. L'effet du champ magnétique, similaire dans les deux échantillons (pour LSCO11 voir en annexe B, pour LSCO12 on en discute dans la suite), renforce cette interprétation. La principale information provenant de cette comparaison est donc que l'anomalie du diagramme de phase associée à la variation anormale de vitesse du son interagit de manière bien plus importante avec le réseau à $p = 0.122$ qu'à $p = 0.114$. Au premier abord une telle différence de comportement pour un dopage si proche est difficile à entendre, néanmoins en allant de $p = 0.114$ à $p = 0.122$ on s'approche du dopage $p = 1/8$ où aussi bien l'onde de densité de charge que l'onde de densité de spin deviennent commensurables avec le réseau [71]. Un couplage plus fort entre l'instabilité et le réseau cristallin peut alors expliquer l'anomalie de vitesse du son plus importante à $p = 0.122$. Cette observation semble donc indiquer que ces deux instabilités sont des candidats naturels pour expliquer les anomalies ultrasonores.

5.2.2 Évolution en champs magnétiques intenses

Les mesures en champ magnétique nul présentées précédemment permettent de mettre en doute l'interprétation des anomalies ultrasonores en terme de compétition entre instabilité structurale et supraconductivité et/ou existence locale d'ordre de charge. L'extension de ces mesures en champs magnétiques intenses proposée maintenant permet d'écarter définitivement ces interprétations et de lier quantités ultrasonores (vitesse et atténuation) à la phase verre AF observée en champ magnétique nul, aux dopages ici étudiés de LSCO.

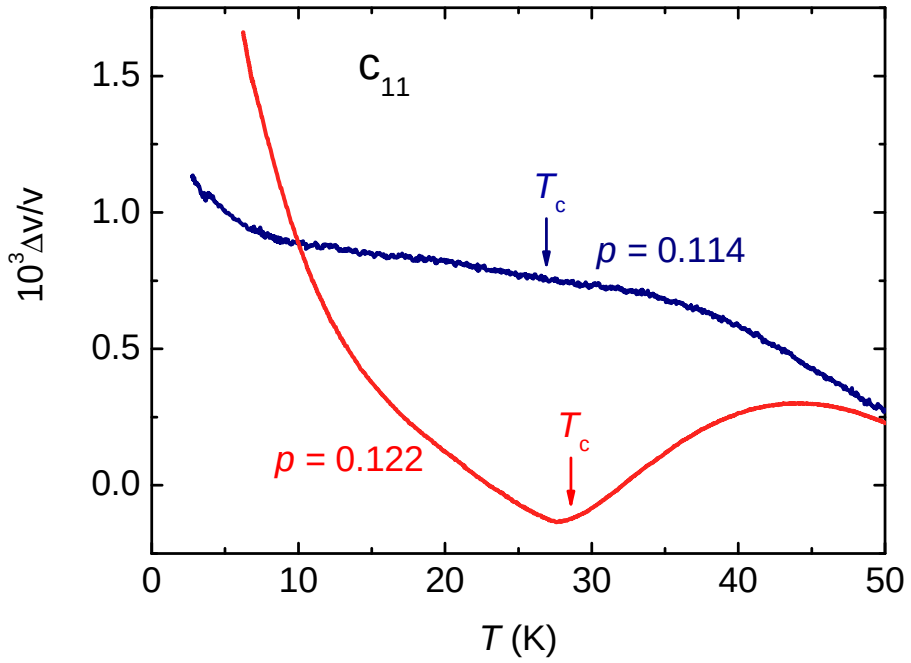

FIGURE 5.6 – Variation relative de vitesse du son pour LSCO11 (bleu) et LSCO12 (rouge), dans le mode acoustique c_{11}. Aux deux dopages la variation de vitesse du son ne peut s'expliquer seulement par la composante normale du réseau et celle de la supraconductivité. Les flèches indiquent T_c. Les courbes sont décalées arbitrairement.

Diagramme de phase $B(T)$ de LSCO12

La figure 5.7 présente la vitesse du son dans le mode acoustique c_{11} en fonction de la température à différent champs magnétiques appliqués jusqu'à $B = 28$ T dans l'échantillon LSCO12 [1]. Le champ magnétique est ici appliqué le long de l'axe c de la structure cristalline, une orientation particulièrement défavorable à la supraconductivité. Dans cette configuration la vitesse du son mesurée doit contenir la contribution de la constante élastique de compression du réseau de vortex, c_{11}^v (voir section 3.4). Cette contribution doit donner un saut dans la vitesse du son lors du désancrage du réseau de vortex, allant donc à plus basse température lorsque le champ magnétique augmente. Bien que cette composante puisse jouer un rôle dans la vitesse du son mesurée ici, elle est visiblement négligeable devant la contribution anormale mesurée à champ nul et son évolution en champ magnétique. Le champ magnétique augmente la température du minimum dans la vitesse du son, $T_{min}(B)$. Il augmente également l'amplitude du ramollissement du réseau qui débute à $T \simeq 45$ K et sensiblement la vitesse du son pour $T < T_{min}(B)$.

La conclusion première qui ressort de l'application de champs intenses est que la remontée de la vitesse du son à basse température ne peut être due directement à la supraconductivité. Sa tempé-

1. Le choix de cet échantillon repose sur le constat que les anomalies y sont mieux définies.

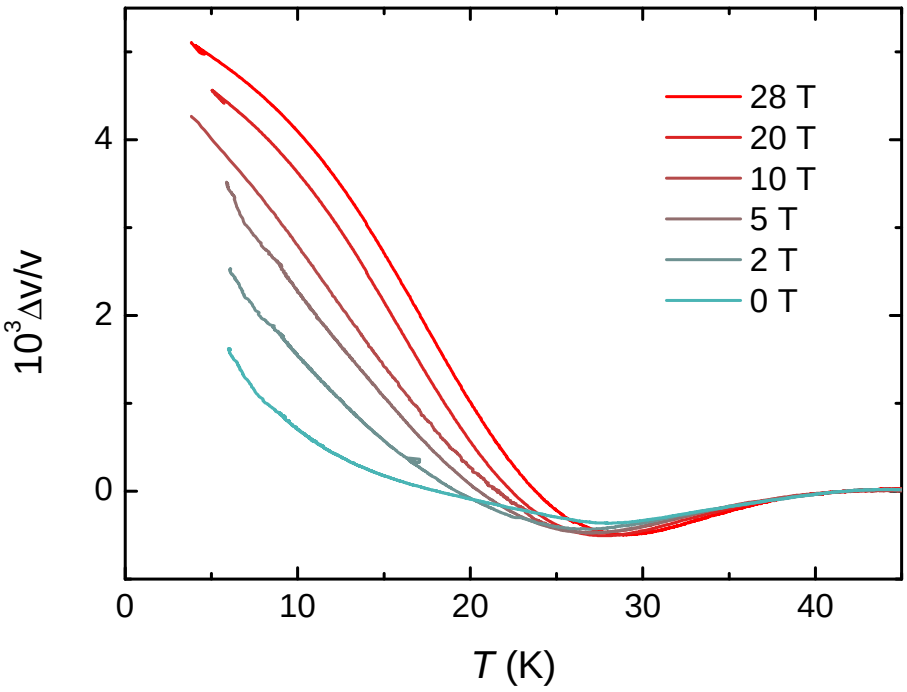

FIGURE 5.7 – Variation de la vitesse du son du mode acoustique c_{11} en fonction de la température pour différents champs magnétiques appliqués pour $T > T_c$. Les courbes sont superposés à $T = 40$ K où l'effet du champ magnétique est pratiquement nul d'après des mesures en champs pulsés.

rature caractéristique et son amplitude augmentent avec le champ magnétique. Ce comportement est similaire dans l'échantillon LSCO11 (données expérimentales en annexe B) et n'est pas uniquement valable pour le mode c_{11} mais également pour les modes $(c_{11} - c_{12})/2$ et c_{33} comme nous le verrons par la suite. C'est un comportement à l'opposé de celui observé par M. Nohara et collaborateurs à $p = 0.14$ [70], mais cohérent avec ce qui a été observé au même dopage de $p \simeq 0.12$ dans les polycristaux [184].

La figure 5.8 montre les données d'atténuation associées. En champ magnétique nul l'atténuation semble indiquer deux pics. Celui à plus haute température provoque un léger épaulement autour de T_c dans un pic d'amplitude plus importante dont la température du maximum est de $T_\alpha = 9.5 \pm 0.4$ K. Ce dernier croît avec le champ magnétique, aussi bien en amplitude qu'en température atteignant $T_\alpha = 21.2 \pm 0.5$ K à $B = 28$ T. La fusion du réseau de vortex devrait également produire un pic d'atténuation dont la température, au contraire, diminue avec le champ magnétique. Ici clairement une telle contribution est négligeable. Pour $B = 28$ T, c'est à dire au dessus de notre estimation de $B_{c2}(0) \simeq 24$ T (voir annexe A) cette contribution doit être absente. Pour tous les champs magnétiques le pic d'atténuation se produit dans la phase de remontée de la vitesse du son à basse température. Ce comportement ressemble énormément à celui observé par J. F. Qu et collaborateurs dans des polycristaux de LSBCO (référence [184] et figure 5.3).

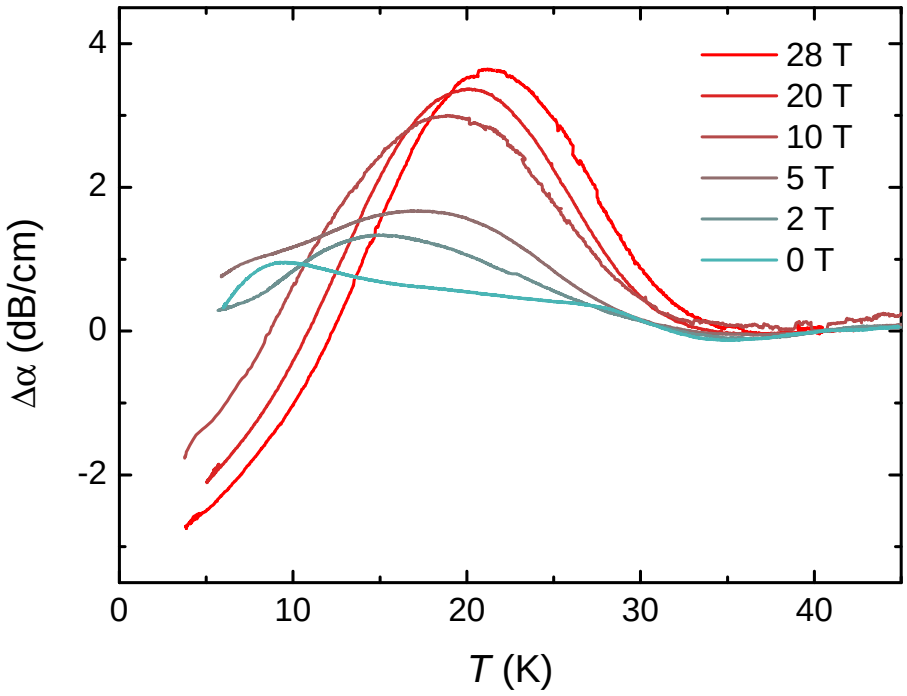

FIGURE 5.8 – Variation de l'atténuation ultrasonore du mode acoustique c_{11} en fonction de la température pour différents champs magnétiques appliqués pour $T > T_c$. Les courbes sont superposés à $T = 40$ K où l'effet du champ magnétique est pratiquement nul d'après des mesures en champs pulsés.

Ces dépendances en température permettent d'extraire des champs magnétiques et températures caractéristiques. Le diagramme de phase correspondant est représenté sur la figure 5.9. Pour $B \leqslant 2$ T, la température du pic d'atténuation T_α est, dans les barres d'erreurs, égale à la température à laquelle la vitesse du son montre un changement de pente en c_{33} (voir figure 5.12). Pour $B \lesssim 5$ T, c'est à dire environ dans la phase de vortex solide, cette température connaît une forte augmentation mais plus étonnamment ne semble pas saturer jusqu'à au moins $B = 28$ T. Ce point est confirmé dans la suite par des mesures en champs pulsés. La température T_{min} du minimum de $c_{11}(T)$ est plus importante que T_α et suit une évolution similaire à haut champ. Cela conforte l'hypothèse que ces anomalies sont toutes deux des signatures d'un même phénomène physique. Néanmoins à bas champ (ici pour $B \lesssim 5$ T), *i.e.* lorsque la supraconductivité est forte, T_{min} décroit avec B. Ce comportement non monotone peut être compris simplement. En champ magnétique faible la vitesse du son reflète deux composantes : une première qu'on va attribuer au verre AF qui cause (notamment) un ramollissement et une seconde liée à supraconductivité qui induit un durcissement. On obtient alors un minimum de vitesse du son proche de l'apparition de la supraconductivité, dont la température diminue donc avec B. En champs magnétiques intenses la composante supraconductrice n'a plus d'impact. Le minimum de vitesse du son est lié uniquement au verre AF qui se développe avec le champ magnétique : T_{min}

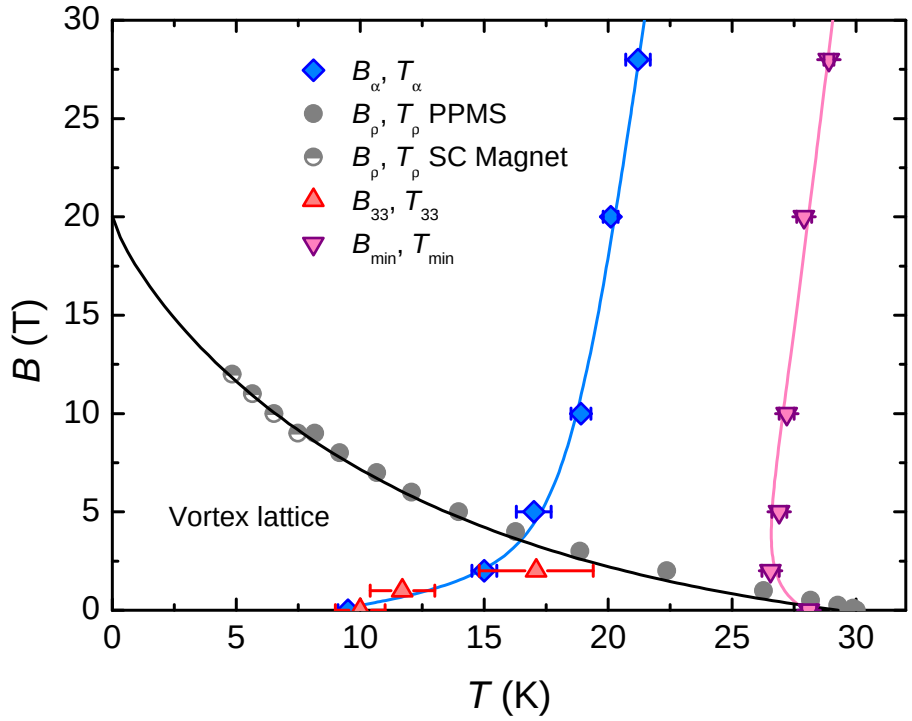

FIGURE 5.9 – Diagramme de phase champ magnétique-température de l'échantillon LSCO12. Les ronds gris renseignent la température de transition résistive vue dans ρ_{ab}, mesurée dans une bobine supraconductrice pour les ronds demi-remplis, mesurée en PPMS® (Physical Property Measurement System) par B. Vignolle pour les ronds pleins. Les triangles violets indiquent T_{min} la température du minimum dans la vitesse du son dans le mode c_{11}. Les losanges bleus indiquent la température T_α du pic d'atténuation dans le même mode. Les triangles rouges correspondent à la température en dessous de laquelle la constante élastique c_{33} montre un durcissement anormal (voir figure 5.12). Cette dernière devient difficile à définir pour $B \geqslant 5$ T à cause de la contribution du réseau et de l'élargissement de la transition supraconductrice. Les lignes bleue et rose sont des guides à l'œil, la ligne noire est un ajustement similaire à celui de la figure A.1.

augmente alors avec B. Cette interprétation est soutenue par les mesures dans l'échantillon LSCO15 ($p = 0.148$) présentées dans le prochain chapitre (voir figure 6.4), mais également celles de M. Nohara et collaborateurs [70].

Absence d'effet du champ magnétique dans LSCO4

La figure 5.10 montre la dépendance en température de la vitesse et l'attenuation du son dans l'échantillon non supraconducteur LSCO4 dans le mode $(c_{11} - c_{12})/2$ jusqu'à $B = 15$ T. L'allure de la vitesse du son a déjà été discutée (voir 5.2.1). L'atténuation montre un pic pour $T_\alpha \simeq 7$ K, suivi par une diminution importante à plus basse température. Contrairement aux échantillon LSCO11 et LSCO12 les signatures ultrasonores ne dépendent pas du champ magnétique à ce dopage. Cette observation semble indiquer que l'effet du champ magnétique est indirect et est lié à une compétition avec la phase supraconductrice. L'ordre de charge et le verre AF coexistant avec la phase supraconductrice dans LSCO sont alors deux candidats naturels pour expliquer les anomalies ultrasonores. Ces deux instabilités du diagramme de phase sont connues pour être en compétition avec la supraconductivité [69, 71]. À ce dopage de $p \simeq 0.04$ seul le verre AF a été reporté dans la littérature [100].

Atténuation et taux de relaxation spin réseau $1/T_1$

Dans les expériences de Résonance Magnétique Nucléaire (RMN) le verre AF de LSCO se manifeste de différentes manières. L'une d'elles est un pic dans le taux de relaxation spin-réseau $1/T_1$ sur le site du lanthane. Ce pic est lié au gel des fluctuations de la composante transverse des spins électroniques. Le pic de $1/T_1$ est bien décrit par la relation dite Bloembergen-Purcell-Pound (BPP) [190] :

$$\frac{1}{T_1} = < h_\perp^2 > \gamma_n^2 \frac{2\tau_c}{1 + (\omega_L \tau_c)^2} \tag{5.1}$$

Ici γ_n est le facteur gyromagnétique, ω_L la fréquence de Larmor proportionnelle au champ magnétique, $< h_\perp^2 >$ est la moyenne temporelle du carré du champ magnétique fluctuant perpendiculaire au champ appliqué et finalement τ_c le temps caractéristique de relaxation entrant dans la fonction d'auto-corrélation à deux spins. Lorsque $\omega_L \tau_c = 1$, c'est à dire lorsque la fréquence RMN est égale à la fréquence des fluctuations (perpendiculaires au champ appliqué) des spins, $1/T_1$ montre un maximum. Aux champs magnétiques typiques auquel les mesures de RMN sont effectuées cette fréquence est de l'ordre de 100 MHz, c'est à dire très similaire à celles des ultrasons. À cette fréquence les spins peuvent être considérés comme gelés et la température du pic dans $1/T_1$ être donc considérée comme une véritable température de gel des fluctuations de spins.

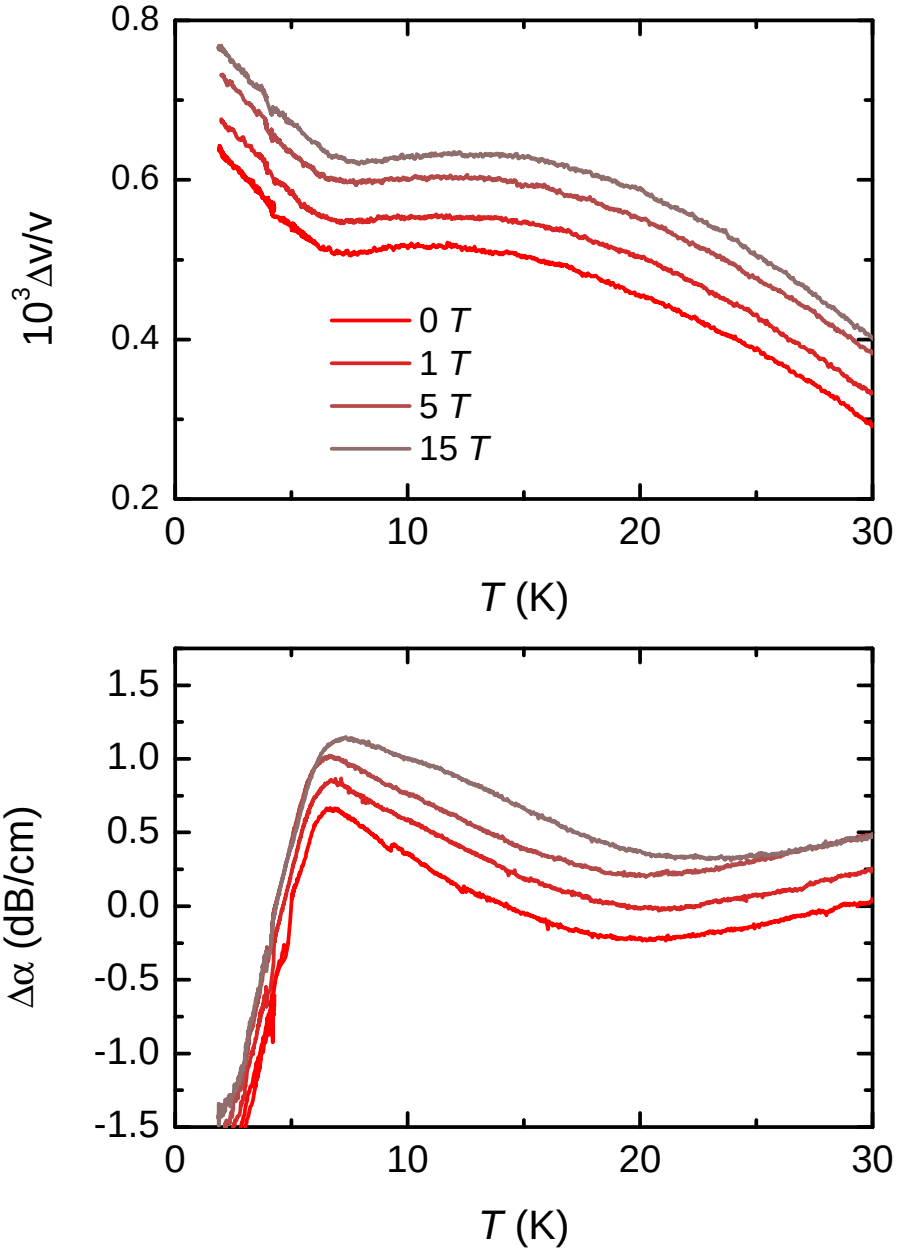

Figure 5.10 – Dépendance en température dans l'échantillon LSCO4 de la variation relative de vitesse du son (haut) et de l'atténuation (bas) dans le mode $(c_{11} - c_{12})/2$**.** Chaque courbe correspond à un champ magnétique $B \parallel c$ appliqué pour $T > T_c$ comme indiqué dans la légende. Les courbes sont décalées arbitrairement par clarté. Aucune dépendance en champ magnétique n'est apparente.

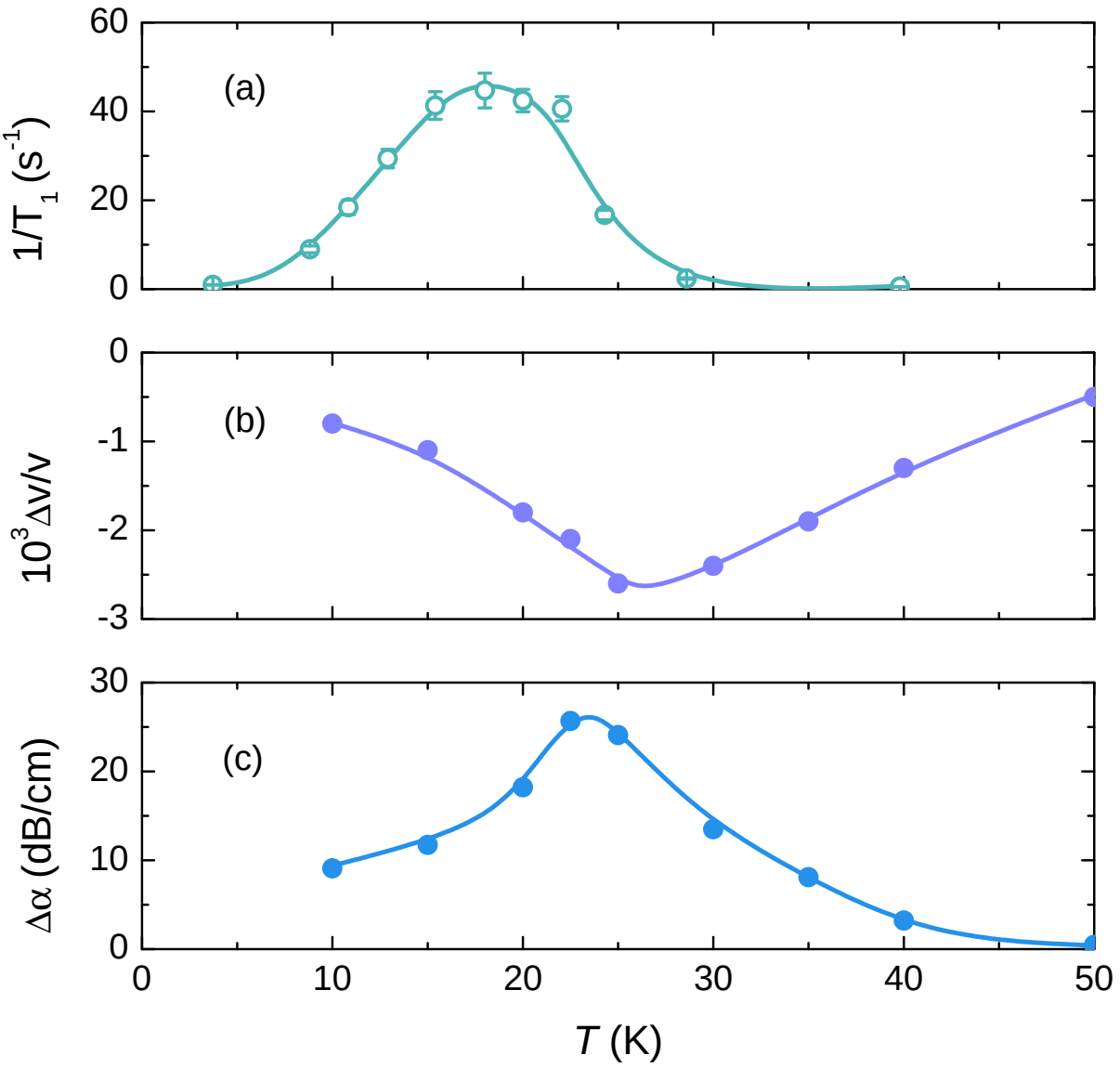

Figure 5.11 – Comparaisons entre le $1/T_1$ de RMN et les quantités ultrasonores dans LSCO12 pour $B = 28$ T $\parallel c$. Les échantillons mesurés en ultrasons et RMN proviennent d'un même échantillon de départ. **(a)** Dépendance en température du $1/T_1$ mesurée par l'équipe RMN du LNCMI-G à une fréquence de 169 MHz. **(b)** Variation relative de vitesse du son et **(c)** variation d'atténuation en fonction de la température. Les mesures d'ultrasons (b,c) sont prises à 240 MHz, dans le mode acoustique $(c_{11} - c_{12})/2$. La contribution du réseau cristallin a été soustraite à la vitesse du son. Les lignes sont des guides à l'œil.

La figure 5.11 montre le pic de $1/T_1$ mesuré dans l'échantillon LSCO12 parallèlement au pic d'atténuation et à la vitesse du son du mode $(c_{11}-c_{12})/2$, tous trois pour $B = 28$ T $\| c$. Les échantillons mesurés en ultrasons et RMN proviennent d'un même échantillon de départ. La comparaison entre atténuation et $1/T_1$ montre que les deux quantités ont une dépendance en température très similaire. Cette observation est interprétée naturellement par le fait que le pic d'atténuation ultrasonore signale également la phase verre AF, et indique que ce dernier provient d'un phénomène de relaxation. La (faible) différence de température entre les pics d'atténuation ultrasonore et du $1/T_1$ n'est pas encore comprise, elle ne peut *pas* s'expliquer par une différence de fréquence de mesure. Sur la même figure est également indiquée la vitesse du son, pour le même mode acoustique et valeur de champ magnétique. L'échelle de température très comparable du minimum de la vitesse du son à celles des pics de l'atténuation ultrasonore et du $1/T_1$ indique une origine physique commune. La dépendance en champ similaire de l'atténuation et du minimum de vitesse du son, visible sur la figure 5.9, est cohérente avec cette interprétation. Une analyse quantitative de vitesse et atténuation du son confirme cela en 5.3.

Vitesse du son et moment ordonné

L'influence du champ magnétique sur la dépendance en température de la vitesse du son dans le mode c_{33} jusqu'à $B = 15$ T est maintenant décrite. Les données expérimentales sont présentées sur la figure 5.12. Les vortex n'ont ici aucune influence puisque la polarisation de l'onde acoustique et le champ appliqué sont parallèles (voir section 3.4). En champ magnétique le saut champ moyen associé à la transition supraconductrice s'élargit et se déplace vers les basses températures comme attendu. Pour $B \leqslant 5$ T il est clairement visible que le durcissement anormal du réseau débutant à $T \simeq 10$ K en champ nul se déplace vers les plus hautes températures avec le champ magnétique. À plus haut champ magnétique il est difficile d'extraire une température caractéristique à cause de l'effet conjugué des fluctuations supraconductrices, de la variation classique du réseau cristallin et de l'augmentation anormale de la vitesse du son avec le champ magnétique à basse température. Ce qui suit montre que cette dernière est qualitativement reliée au développement de l'antiferromagnétisme.

Dans la référence [184] la dépendance en champ magnétique de la vitesse longitudinale du son dans un polycristal de LSCO, de dopage $p = 0.12$, a été mesurée et s'est montrée être parfaitement ajusté par une formule du type :

$$\Delta v/v = A(B/B_c) \times \log(B_c/B) \tag{5.2}$$

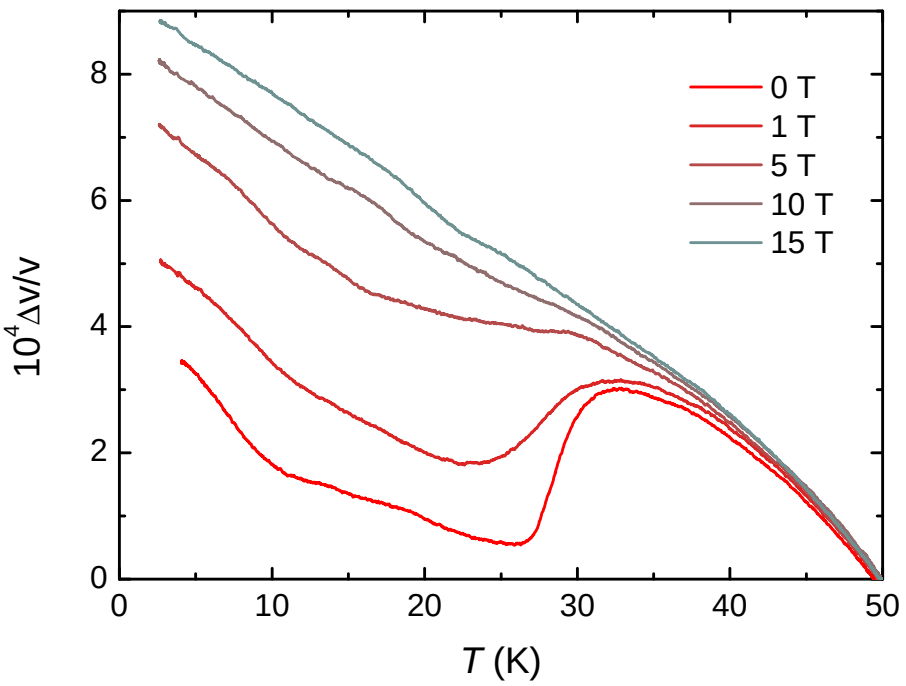

FIGURE 5.12 – Variation relative de vitesse du son pour LSCO12, dans le mode acoustique c_{33}, pour différent champs magnétiques appliqués selon l'axe c jusqu'à $B = 15$ T. Le champ est appliqué pour $T > T_c$. La fréquence de mesure est 325 MHz. Les courbes sont superposés à $T = 50$ K où l'effet du champ est nul. Il y a une forte augmentation de $\Delta v/v$ à basse température avec B qui ne peut pas être uniquement le fait de la fermeture du gap supraconducteur.

A et B_c sont ici des constantes, avec B_c qui doit correspondre à $B_{c2}(0)$. Une telle variation a été prédite théoriquement [116] pour rendre compte de la dépendance en champ magnétique de l'intensité du pic quasi-élastique de neutron associé à l'onde de densité de spin incommensurable de LSCO, lorsque celle-ci coexiste avec la supraconductivité. Cette formule n'est exacte que pour $B \ll B_{c2}$ et se trouve être en bon accord avec les mesures expérimentales de neutrons [69], mais donc également de vitesse du son [184] dans LSCO $p = 0.12$, et ce jusqu'à environ $B \sim 15$ T. Il est néanmoins notable que $B_{c2}(0)$ est ici un paramètre libre, et doit être de l'ordre de ~ 50 T (*i.e.* bien au dessus de notre estimation) pour que la formule 5.2 montre un bon accord avec les données expérimentales jusqu'à 15 T. Cela peut signifier deux choses. Premièrement cela peut être une indication très indirecte que $B_{c2}(0)$ est fortement sous estimé dans LSCO à ce dopage. Ce serait en accord avec une extrapolation de la chaleur spécifique électronique mesurée à $B \leq 12$ T [191]. Deuxièmement, et plus probablement, cela peut signifier que les ajustements réalisés dans la littérature d'ultrasons et de neutrons le sont sur une gamme de champ magnétique trop importante.

La variation similaire à la formule 5.2 de la vitesse du son à basse température dans la référence [184] est interprétée comme une évidence que, alors, $\Delta v/v(B)$ est liée à la croissance de l'ordre de stripe (et plus précisément l'ordre de charge associé [2]), via un couplage électron-phonon important. Sur la figure 5.13 est extrait les mesures de vitesse du son de la référence [184] et ces dernières sont ajustées par la formule 5.2. On y ajoute les mesures de ce manuscrit de $\Delta v/v(B)$ à $T \leqslant 4$ K dans les modes c_{11} et c_{33} et la variation de l'intensité du pic quasi-élastique de neutrons par rapport à sa valeur à champ nul, d'après la référence [69]. Cette intensité est proportionnelle au carré de la composante du moment magnétique gelé dans le plan à l'échelle d'énergie des neutrons quasi-élastique (typiquement < 1 meV). Le moment ordonné suit donc une variation donnée par la racine de la formule 5.2 jusqu'à, au moins, $B = 15$ T.

Deux informations nouvelles ressortent de la (compliquée) figure 5.13. Premièrement que dans les monocristaux, et pour les modes ici étudiés, la variation en champ magnétique de la vitesse du son à basse température suit également la dépendance en champ de l'intensité des neutrons. Cela renforce le lien entre développement des moments antiferromagnétiques et le durcissement à basse température en vitesse du son. Deuxièmement l'évolution de la vitesse du son pour $B \geqslant 15$ T suggère que l'intensité et le moment ordonné vus par neutron ne saturent pas jusqu'à 28 T, contrairement aux attentes théoriques [116] avec une valeur de $B_{c2}(0) \simeq 24$ T. Néanmoins cette absence de saturation apparente de la vitesse du son peut aussi provenir de l'effet Alpher-Rubin discuté en 3.5, ou encore, dans le cas

2. Théoriquement la variation des paramètres d'ordres des ondes de densités de charge et de spin est alors similaire.

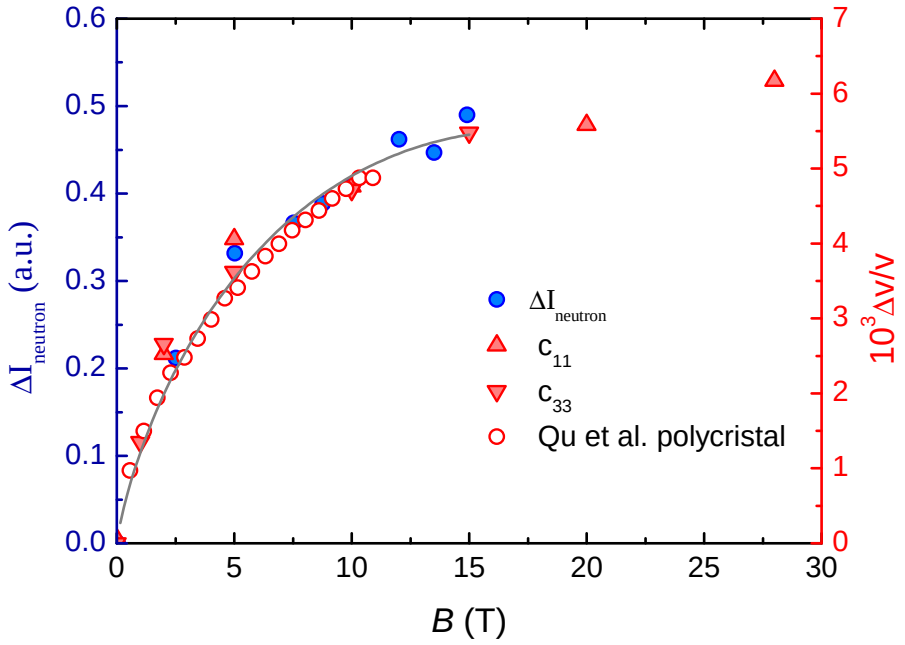

FIGURE 5.13 – Vitesse du son et moment ordonné dans LSCO. Comparaison, dans LSCO $p = 0.12$, de la dépendance en champ magnétique de l'intensité du pic élastique associé à l'onde de densité de spin (normalisé par rapport à la valeur à $B = 0$ T, axe de gauche, ronds bleus) et de la variation relative de vitesse du son (axe de droite) pour les modes c_{11} (triangles vers le haut) et c_{33} (triangles vers le bas) et la vitesse longitudinale dans un polycristal (ronds rouges vides) d'après la référence [184]. Toutes ces mesures sont extraites pour $T \leqslant 4$ K, la vitesse du son en c_{11} est divisée par un facteur 4.5, celle de la référence [184] par un facteur 10.5, afin de suivre celle du mode c_{33}. La variation d'intensité du pic de diffraction des neutrons est extrait de la référence [69]. Pour toutes ces mesures, exception à celles sur polycristal de la référence [184], le champ magnétique est appliqué selon l'axe c au dessus de T_c. La ligne grise est l'ajustement 5.2 décrit dans le texte principal qui suit l'intensité $I \propto \mu^2$ du pic de diffraction neutron.

où $B_{c2}(0) > 28$ T, de la contribution du mode de compression du réseau vortex. Nous allons mieux comprendre l'origine de cette absence de saturation en ayant recourt à un autre mode acoustique et à des mesures en champs pulsés, c'est l'objet du prochain paragraphe.

Absence de saturation au dessus de B_{c2}

Afin de confirmer que l'absence de saturation de la vitesse du son au dessus de $B = 15$ T ne provient ni des vortex ni de l'effet Alpher-Rubin nous avons mesuré cette dernière en champs magnétiques pulsés jusqu'à 60 T dans le mode $(c_{11} - c_{12})/2$. Avec le champ magnétique ici appliqué selon l'axe c ce mode acoustique sonde le module de cisaillement du réseau de vortex. Ce dernier est très faible, en dessous de notre limite de détection. Ce mode a également l'avantage de ne pas subir d'effet Alpher-Rubin. Comme discuté en 3.5 cet effet lié a la magnétorésistance n'existe pas dans les modes

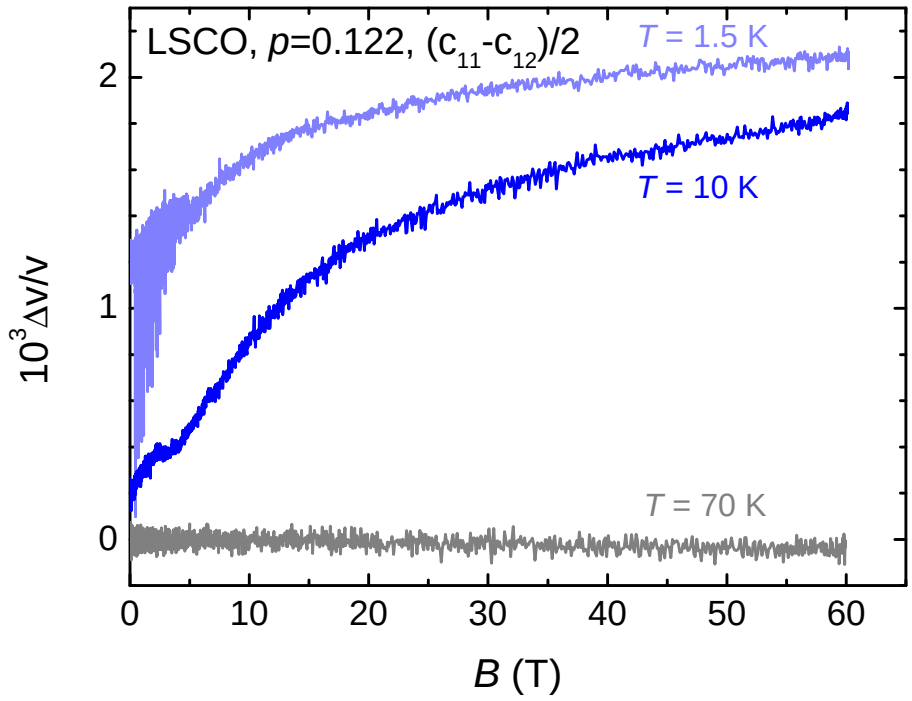

FIGURE 5.14 – Dépendance en champ magnétique pulsé de la vitesse du son, dans le mode acoustique $(c_{11} - c_{12})/2$, pour une fréquence d'excitation de 240 MHz, dans l'échantillon LSCO12. Le champ magnétique est appliqué selon l'axe c. Seul la descente en champ magnétique est tracée, celle-ci est confondue avec la monté initiale au dessus de la ligne d'irréversibilité due aux vortex. Les courbes sont décalées arbitrairement.

transverses lorsque le champ magnétique est appliqué perpendiculairement à la direction de polarisation, comme c'est le cas ici. Toute variation en champ magnétique de la vitesse du son ne peut donc être ici liée à la physique des vortex où celle de l'effet Alpher-Rubin.

Sur la figure 5.14 est tracée la variation relative de vitesse du son dans ce mode acoustique pour trois différentes températures. Pour $T = 70$ K $> T_c$ aucune dépendance en champ magnétique n'est présente. Cela confirme que nous ne somme pas sensible à l'effet Alpher-Rubin[3]. Pour $T = 10$ K et $T = 1.5$ K la variation de vitesse du son est qualitativement similaire : pour $B \lesssim 20$ T la vitesse du son augmente fortement, puis de moins en moins rapidement jusqu'à 60 T mais ne sature pas. Quantitativement l'effet du champ est plus grand à $T = 10$ K qu'à 1.5 K. Cela signifie que les basses températures et les champs intenses (parallèles à l'axe c) sont deux moyens parallèles de géler (dans un motif antiferromagnétique) les spins. Plus on est proche de $T = 0$, plus les fluctuations de spins sont lentes, plus le gel est potentiellement induit avec un champ magnétique faible. Cette dépendance en champ est très similaire à celle extraite des dépendances en température à champ fixe dans les modes c_{33} et c_{11} de la figure 5.13, indiquant que tous ces différents modes sont sensibles à la même physique, au moins à basse température.

3. À ce dopage et cette température il y a toujours de la magnétorésistance [192].

Cette absence de saturation est étonnante car elle suggère qu'au delà de $B = 15$ T l'intensité (et donc le moment ordonné) des mesures de neutrons ne sature pas non plus. On peut interpréter cela de trois (au moins) manières différentes. Tout d'abord il est possible qu'il existe un effet intrinsèque du champ magnétique sur le verre AF de LSCO. Cette version est contestée par l'absence d'effet du champ lorsque la supraconductivité est suffisamment faible à $B = 0$ T (par exemple dans LBCO $p \sim 1/8$ [68]), ainsi que dans l'échantillon non supraconducteur LSCO4 (figure 5.10). Une seconde possibilité est celle de fortes fluctuations supraconductrices à ce dopage, qui sont en compétition avec le verre AF jusqu'à $B = 60$ T. Ce serait alors cohérent avec, à ce dopage, la magnétorésistance qui persiste jusqu'à $T \sim 100$ K [192], et l'interprétation (contestée) des mesures d'effet Nernst [45, 46]. Néanmoins il est important de noter que l'amplitude de la magnétorésistance [193] est maximale à $p \simeq 0.12$. Cela interroge donc sur la possibilité que les ordres de spin et/ou de charge soient responsables pour cette dernière. Finalement il est toujours possible qu'un effet de magnétostriction biaise la mesure de vitesse du son (voir section 2.1.1). Ce dernier effet est généralement négligeable, mais il faudrait ici le vérifier.

5.3 Modèle de susceptibilité dynamique

La section 5.2 a permis de montrer, à partir de considérations qualitatives, que les anomalies dans la vitesse et l'atténuation ultrasonore sont liées à la phase verre AF existant dans les trois échantillons de ce chapitre en champ magnétique nul. Dans cette section on propose une analyse quantitative à partir du modèle de susceptibilité dynamique décrit en 3.6. Ce dernier traite du cas des verres de spins classiques, *i.e.* sans domaines antiferromagnétiques. Le but est d'extraire des grandeurs caractéristiques dont on étudiera l'évolution en dopage dans le chapitre suivant. Cela permettra donc de comparer quantitativement des échantillons de dopages différents.

5.3.1 Paramètres du modèle

L'application du modèle de susceptibilité dynamique nécessite la connaissance de la partie réelle de la susceptibilité magnétique à fréquence nulle et du taux de relaxation des fluctuations de spins. Cette partie décrit et justifie les choix faits pour les fonctionnelles correspondantes. Ces dernières font intervenir 4 paramètres libres utilisés pour ajuster, simultanément ou non, les courbes d'atténuation et de vitesse du son.

Susceptibilité magnétique de la phase verre de spin

La susceptibilité magnétique, χ, a notamment été mesurée dans LSCO aux dopages $p < 0.05$, *i.e.* dans la phase verre de spin antiferromagnétique en absence de supraconductivité [102, 106]. Les mesures montrent toutes les caractéristiques attendues d'un verre de spin classique : aimantation rémanente, irréversibilité et exposants critiques (voir figure 1.22(b)). Au dessus de la température de gel des spins la susceptibilité est bien décrite par une forme Curie :

$$\chi(T) = \chi_0 + C_{curie}/T \tag{5.3}$$

Cette forme est donc utilisée dans le cadre du modèle de susceptibilité dynamique, avec comme paramètres libres χ_0 et C_{curie}. Alors qu'expérimentalement cette dépendance de type Curie est observée seulement au dessus de la température de gel on l'utilise ici jusqu'à $T = 0$. En dessous de la température de gel la formule 3.49 est complètement dominée par la partie relaxative et alors la forme particulière de la susceptibilité magnétique a un impact négligeable. χ_0 est la partie constante de la susceptibilité magnétique et contient, notamment, une composante diamagnétique provenant des noyaux nucléaires [102]. C_{curie} est une constante qui est, dans un modèle simple, proportionnelle à la densité effective des spins Cu^{2+} desquels provient ce comportement paramagnétique de type Curie [106].

Taux de relaxation des fluctuations de spins

L'application du modèle de susceptibilité dynamique requiert également la connaissance du temps de relaxation des fluctuations des spins, τ. Cette quantité peut être en principe extraite directement des mesures [166] mais cela requiert une dépendance fine en fréquence. Ici, en l'absence de telles mesures, il est nécessaire de faire une hypothèse sur la dépendance en température du taux de relaxation. On prend une dépendance exponentielle, selon la forme :

$$\tau = \tau_\infty e^{E_0/k_B T} \tag{5.4}$$

Cette forme a été utilisée avec succès pour modéliser les données du taux de relaxation spin-réseau T_1^{-1} de RMN des mêmes échantillons de LSCO avec un modèle BPP (voir 5.2.2) purement relaxatif [10]. Le temps de relaxation ne diverge strictement qu'à $T = 0$, le système de spins est fluctuant à toute température finie. Cette forme est très similaire à celle de la longueur de corrélation des fluctuations antiferromagnétique au dessus de la température de Néel dans le composé parent La_2CuO_4 dans le cadre du modèle σ non-linéaire [194]. E_0, paramètre libre de l'ajustement, est alors égal (à un facteur 2π près) à la raideur de spin ρ_s. Cette échelle d'énergie est ici aussi une indication de la force des corrélations spin-spin. τ_∞ est le temps de relaxation des fluctuations de spins pour $k_B T \gg E_0$, ou

encore $T \gg T_g$. C'est un paramètre fixe égal à $\exp^{-31} \sim 10^{-14}$ seconde pour tous les échantillons. Cette valeur permet d'optimiser les ajustements pour les différents échantillons et est en accord avec la valeur utilisée pour la modélisation des données RMN.

Un ajustement correct des données n'est pas possible sans introduire une distribution gaussienne de la valeur de E_0, $\int_0^\infty e^{-(E_0-x)^2/2\Delta E_0^2} dx$, de largeur ΔE_0. Ce constat est aussi bien valable pour les données d'ultrasons que de RMN et a du sens puisque les valeurs T_1 extraites de la relaxation de l'aimantation des mesures RMN sont distribuées sur plusieurs ordres de grandeurs [104]. L'utilisation d'une distribution de τ est un procédé usuel dans les verres de spins [166, 169, 170] qui s'explique par la nature vitreuse de la transition.

5.3.2 Ajustement des données expérimentales

On doit tout d'abord extraire les variations de vitesse du son uniquement dues à la physique du verre de spin, et exclure d'autres sources de variations "parasites". Ces dernières sont la variation normale $c_0(T)$ liée à l'interaction entre l'onde acoustique et les phonons thermiques, la constante élastique du réseau de vortex, ou encore l'effet Alpher Rubin. La mesure du mode $(c_{11} - c_{12})/2$ en champs pulsés permet de s'affranchir de toutes ces sources de variations "parasites" puisque ce dernier n'est ni couplé au réseau de vortex ni à l'effet Alpher-Rubin (pour $B \parallel c$) et $c_0(T)$ ne dépend pas du champ magnétique. Dans la suite ce sont vitesse et atténuation du son dans ce mode acoustique qui sont donc ajustées (l'ensemble des données expérimentales sont reproduites en annexe B).

Les données ajustables de vitesse du son sont présentes sur la figure 5.15 pour trois différents champs magnétiques : $B = 10$ T, 30 T et 59 T. Pour obtenir ces données plusieurs étapes sont nécessaires. Tout d'abord l'on extrait la dépendance en température de la vitesse du son induite sous champ magnétique, $\Delta v/v(B) - \Delta v/v(B = 0)$. Cette grandeur est directement déduite de coupes, à champ magnétique fixe, des mesures en champs pulsés à différentes températures. La vitesse induite sous champ magnétique ne comprend donc pas d'informations sur la variation de vitesse du son à $B = 0$ T. Cette dernière, $\Delta v/v(B = 0)$, peut être décomposée en deux termes : celui de la variation classique du réseau cristallin, $\Delta v/v_{background}$, présent dans n'importe quel métal ou isolant et bien modélisé par la formule 3.20, mais également celui représentant toutes les autres sources de variations, $\Delta v/v_e$, ici d'origines électroniques et liées au verre AF et à la supraconductivité :

$$\Delta v/v(B = 0) = \Delta v/v_{background} + \Delta v/v_e \tag{5.5}$$

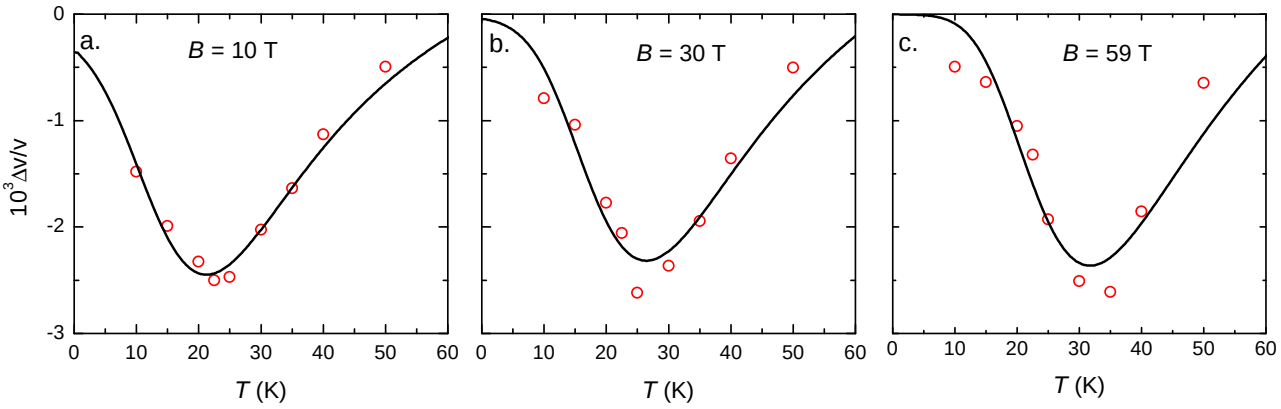

FIGURE 5.15 – Ajustement de la dépendance en température de la variation relative de vitesse du son du mode acoustique $(c_{11} - c_{12})/2$ dans l'échantillon LSCO12 pour $B = 10$ T (a), 30 T (b) et 59 T (c). Les ronds rouges sont extraits de mesures en champ magnétique pulsé, appliqué selon l'axe c, selon la méthode décrite dans le texte principal. La vitesse du son reflète uniquement les composantes de la supraconductivité et du verre AF. Les lignes noires sont des ajustements selon le modèle de susceptibilité dynamique.

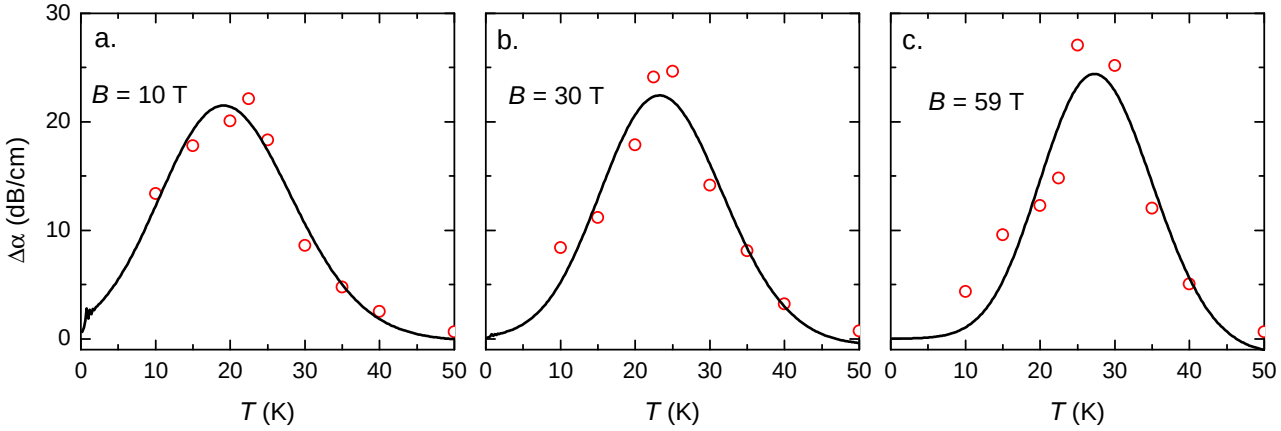

FIGURE 5.16 – Ajustement de la dépendance en température de la variation d'atténuation du son du mode acoustique $(c_{11} - c_{12})/2$ dans l'échantillon LSCO12 pour $B = 10$ T (a), 30 T (b) et 59 T (c). Les ronds rouges sont extraits de mesures en champ magnétique pulsé, appliqué selon l'axe c, auxquelles s'ajoute la composante à champ magnétique nul. Celle-ci est estimée d'après les mesures dans le mode c_{11}. Les lignes noires sont des ajustements selon le modèle de susceptibilité dynamique.

La vitesse du son ajustée sur la figure 5.15 correspond à $\Delta v/v_e + \Delta v/v(B) - \Delta v/v(B=0)$. Elle comprend donc les variations dues au verre AF, mais aussi à la supraconductivité, en champs magnétiques intenses mais également nul. L'effet Alpher-Rubin et l'influence du réseau de vortex sont négligeables. Ces courbes sont qualitativement très similaires aux mesures du mode c_{11} discutées précédemment (voir section 5.2.2), et ne sont donc pas décrites plus longuement. À chaque champ magnétique est également tracé l'ajustement correspondant par le modèle de susceptibilité dynamique. L'accord entre l'ajustement et les données expérimentales est très satisfaisant mais pas parfait. Les écarts ont diverses origines. Tout d'abord le modèle décrit un verre de spin classique, sans domaines antiferromagnétiques. Il ne peut donc pas expliquer l'augmentation de vitesse du son observée à basse température, qui suit le moment ordonné vu par neutron (voir figure 5.13). Ensuite le retranchement de la variation normale $c_0(T)$ aux données expérimentales induit de (faibles) incertitudes. Enfin les mesures en champs magnétiques pulsés ne sont pas parfaitement isothermales, notamment juste au dessus de la température de l'hélium liquide lorsque le pouvoir frigorifique est le plus faible. Néanmoins l'accord très satisfaisant entre les données expérimentales et l'ajustement théorique montre que le ramollissement du réseau dans l'état normal et le durcissement qui s'en suit à plus basse température sont tous deux, dans ce mode acoustique, explicable par une transition vitreuse magnétique. Le même accord entre les données expérimentales et le modèle de susceptibilité dynamique existe dans le cas de l'atténuation ultrasonore. La comparaison est faite sur la figure 5.16. Cela indique que le pic d'atténuation qui existe à champ nul et se développe sous champ magnétique est aussi du fait d'une transition vers un verre de spin, et provient, comme le pic dans $1/T_1$ de RMN, d'effets de relaxations.

5.3.3 Dépendance en champ magnétique des paramètres

L'ajustement des dépendances en température à différents champs magnétique permet d'étudier l'évolution des différents paramètres libres en fonction de B : χ_0, E_0, ΔE_0 et C_{curie}. Le résultat est montré sur la figure 5.17. E_0 et C_{curie} montrent tout deux une augmentation en champ magnétique et ont une valeur à champ magnétique nul finie. Étonnamment ces deux paramètres ne semblent pas saturer jusqu'à $B = 59$ T. Cette absence de saturation rappelle celle de la dépendance en champ magnétique de $\Delta v/v$ (voir figure 5.14). Cela vient directement du fait que dans les données expérimentales la position du minimum dans la vitesse du son et l'amplitude du ramollissement dans l'état normal ne saturent pas jusqu'à $B = 59$ T. Dans le cadre du modèle cela indique qu'à la fois la force des corrélations spin-spin et la densité effective de spin impliqué dans ce magnétisme ne saturent pas pour $B \gg 24$ T (*i.e.* l'estimation de $B_{c2}(0)$ d'après les mesures de résistivité, voir annexe A). Concernant χ_0 le constat est inverse, le champ magnétique tend à diminuer sa valeur (négative) qui semble saturer

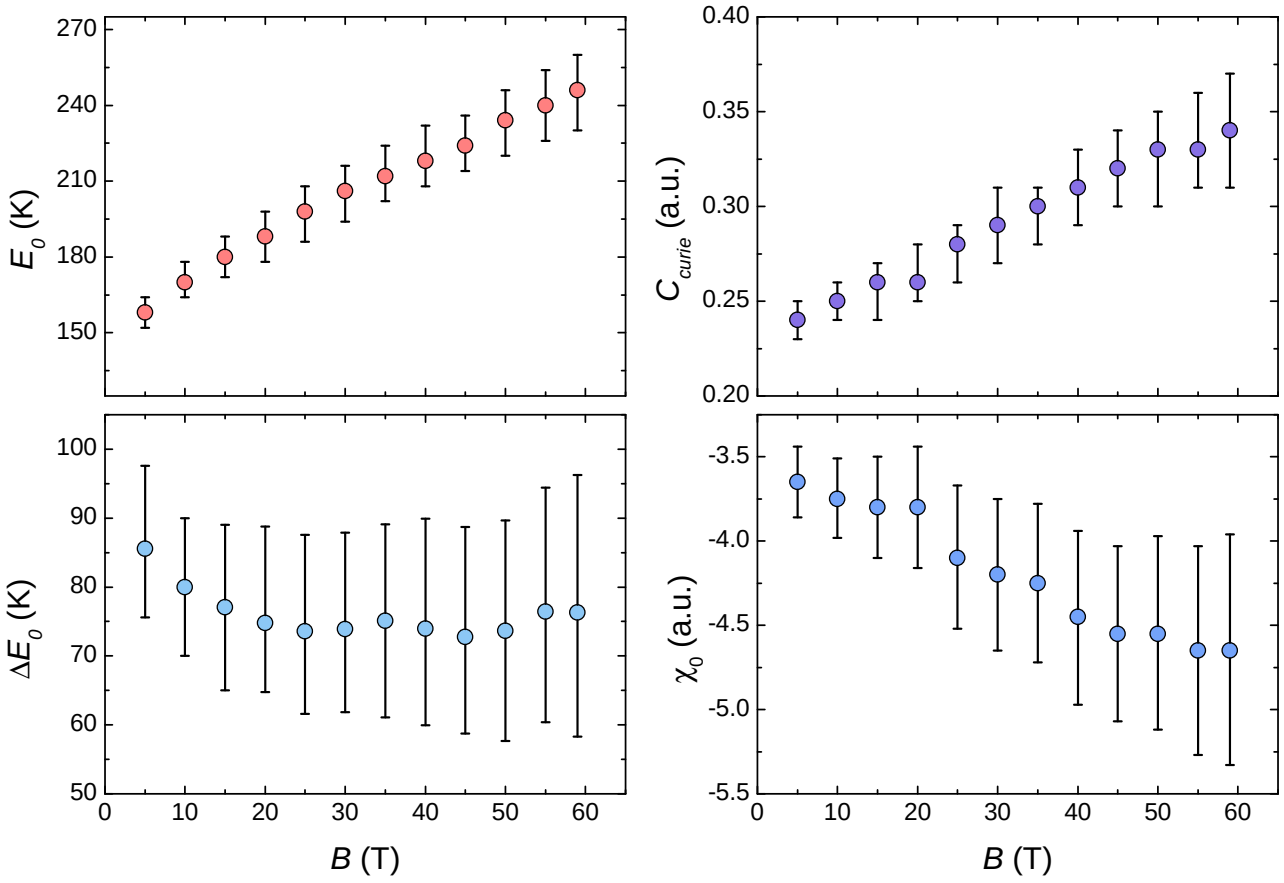

Figure 5.17 – Variation en champ magnétique des différents paramètres χ_0, E_0, ΔE_0 et C_{curie} de l'ajustement jusqu'à $B = 59$ T. Les barres d'erreurs sur chacun des paramètres sont estimées comme suit : on fait varier un paramètre unique jusqu'à obtenir une augmentation de 30 pourcents de l'erreur quadratique moyenne de l'ajustement, par rapport à l'ajustement optimal.

à fort champ. Finalement ΔE_0 n'a, dans les barres d'erreurs, pas (ou peu) de dépendance en champ magnétique.

5.4 Discussion

Les échantillons LSCO4 ($p \simeq 0.04$), LSCO11 ($p = 0.114$) et LSCO12 ($p = 0.122$) montrent tous trois des anomalies phénoménologiquement similaires à basse température. La figure 5.18(a) résume celles-ci dans le cas de l'échantillon LSCO12 où elles sont le mieux marquées. Le champ magnétique appliqué est de $B = 28$ T, l'état normal doit alors être atteint. La vitesse du son montre un large minimum, suivi par un durcissement du réseau à plus basse température, et un pic d'atténuation se produit dans cette dernière phase de durcissement. Différents modes acoustiques montrent ce même type d'anomalies, le mode transverse $(c_{11} - c_{12})/2$ est le plus sensible à la diminution de vitesse du son au dessus de la température du minimum.

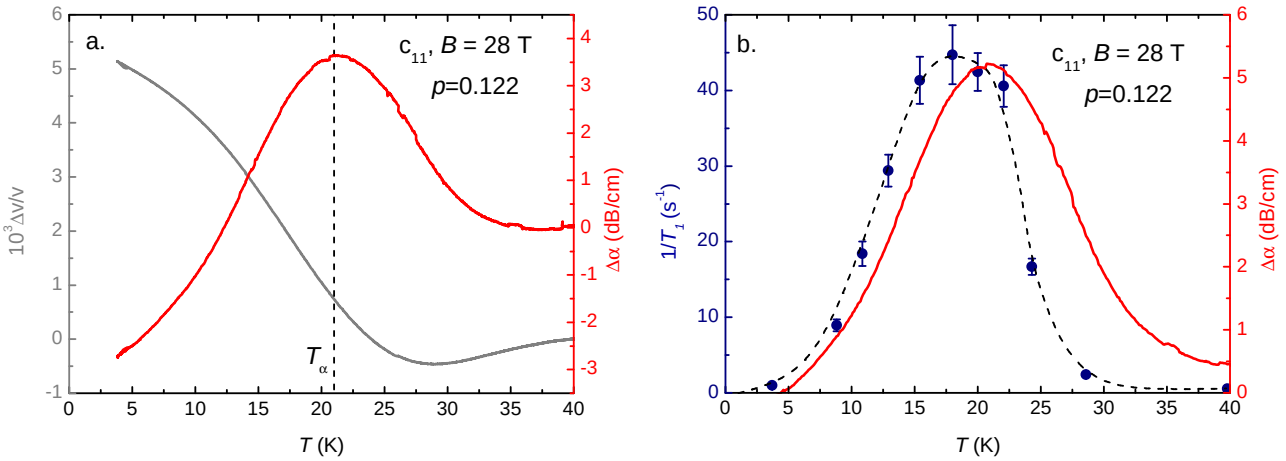

FIGURE 5.18 – Signatures ultrasonores du verre AF dans LSCO12 et comparaison avec le taux de relaxation spin réseau $1/T_1$, pour $B = 28$ T. (a) $\Delta v/v$ (ligne grise, échelle de gauche) et $\Delta\alpha$ (ligne rouge, échelle de droite) dans le mode c_{11} en fonction de la température. L'augmentation de $\Delta v/v$ et le pic d'atténuation à basse température sont deux signatures du gel des fluctuations de spins. Le ramollissement dans la vitesse du son est un effet précurseur au gel. **(b)** Comparaison entre l'atténuation (ligne rouge, échelle de droite) et le taux de relaxation spin réseau $1/T_1$ de RMN (ronds bleus, échelle de gauche), dans le même échantillon LSCO12. Un background linéaire a été soustrait de l'atténuation pour extraire uniquement la contribution liée au verre AF. Atténuation et $1/T_1$ suivent des variations très similaires, l'atténuation ultrasonore vient donc également de phénomènes de relaxations associés au verre AF. La faible différence entre la température du pic de $1/T_1$ et celui de $\Delta\alpha$ n'est pas encore comprise. Les données RMN ont été obtenues par I. Vinograd, M.-H. Julien et H. Mayaffre.

L'augmentation de vitesse du son visible à basse température dans différents modes acoustiques est une signature ultrasonore du gel graduel des fluctuations (antiferromagnétiques) de spins. Ce comportement est similaire à celui observé dans les polycristaux de cuprate au lanthane par J.F Qu et collaborateurs [184, 188] mais alors interprété en terme d'instabilité structurale et d'ordre de charge.

L'établissement de cette anomalie à $p \simeq 0.04$ où la seule phase en présence à basse température est ce verre de spin antiferromagnétique, et les différentes analyses qualitatives et quantitatives de ce chapitre ne laissent cependant pas de doute quant à son origine. L'application d'un champ magnétique sur les échantillons supraconducteurs qui tend à renforcer ce comportement est aussi parfaitement cohérent avec l'augmentation des corrélations antiferromagnétiques vue par exemple par neutron [69] (voir figure 5.13). L'origine microscopique de cette anomalie reste cependant encore inconnue. La présence d'un ramollissement du réseau dans la phase désordonnée, effet précurseur au durcissement, peut s'expliquer dans le cadre d'un modèle de Landau par un couplage bilinéaire entre un paramètre d'ordre électronique et la déformation de l'onde acoustique (*cf.* section 3.3).

Parallèlement au durcissement du réseau un pic d'atténuation se développe dans plusieurs modes acoustiques. Ce dernier montre une similitude frappante avec celui du taux de relaxation spin-réseau T_1^{-1} de RMN (voir figure 5.18(b)) et est donc également dû à des phénomènes relaxatifs via un couplage magnéto-élastique. Il permet de définir une température de gel (à la fréquence ultrasons) du système de spins. Le champ magnétique augmente la température de ce pic et donc tend à ralentir les fluctuations de spins. Néanmoins l'origine microscopique précise de ce pic reste à déterminer. Des pics d'atténuation par spectroscopie anélastique dans LSCO $p < 0.06$ ont été interprétés comme étant dus aux variations de tailles des domaines antiferromagnétiques gelés avec la déformation ultrasonore [195].

La dépendance en dopage de la température du pic d'atténuation et du durcissement du réseau à basse température est résumé sur le diagramme de phase 5.19. Les températures caractéristiques sont ici prises à champ magnétique nul et comparées aux mesures de RMN, μSR et NQR (reproduites d'après la référence [100]) qui sont comme les ultrasons des sondes d'énergie caractéristique $\backsim \mu$eV. Les données ultrasonores s'insèrent parfaitement dans la dépendance en dopage du gel des fluctuations de spins déterminée par ces sondes plus directes du magnétisme. Ce diagramme de phase montre également l'ordre de charge bi-axial et 2D qui apparaît au dessus de la température de gel des spins et coexiste avec celui-ci, au moins pour $p \geqslant 0.10$. La résurgence du magnétisme pour $p \simeq 0.12$ lorsque l'ordre de charge est le plus fort et l'incommensurabilité $\delta_{charge} = 2\delta_{spin}$ [71] indique que, comme dans Nd-LSCO, ces deux ordres sont très liés proche de ce dopage dans LSCO et forment un ordre de "stripes". Il est alors raisonnable de penser que l'ordre de charge puisse déclencher, ou du moins aider, le ralentissement des fluctuations de spins. Du point de vue des données ultrasonores le ramollissement du réseau vu bien au dessus de la température de gel peut être lié à l'ordre de charge. Dans le cadre du modèle de susceptibilité dynamique cela signifie que l'augmentation de la susceptibilité magnétique statique pourrait être liée à l'ordre de charge. Afin de confirmer ou d'infirmer cette hypothèse une

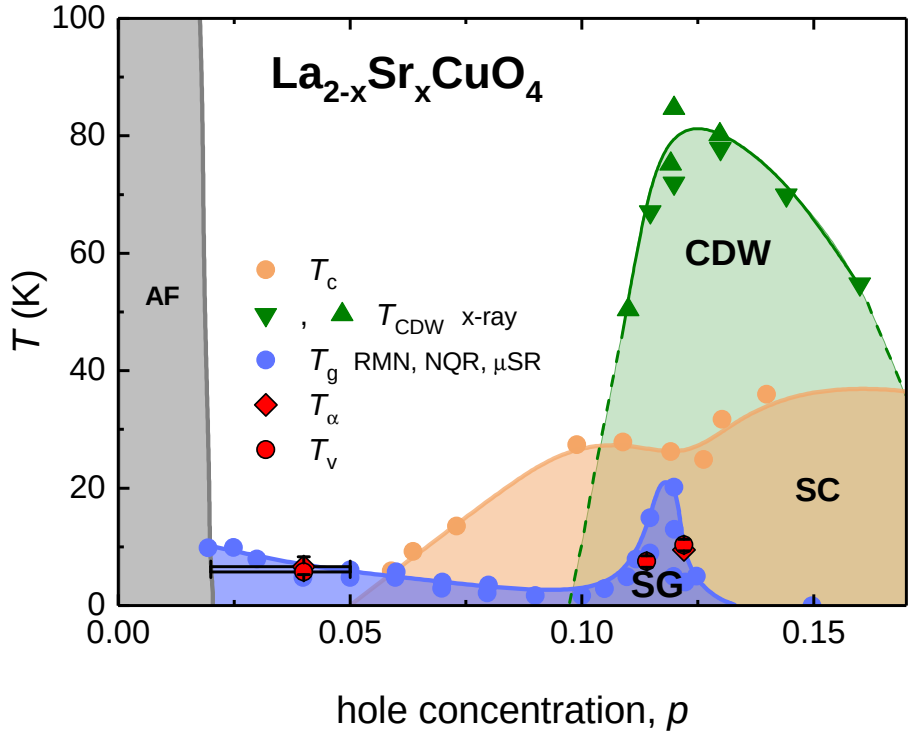

FIGURE 5.19 – Diagramme de phases température-dopage de LSCO. Les ronds beiges correspondent à T_c, l'irrégularité à $p \simeq 0.12$ correspond à l'anomalie 1/8. En vert est renseigné l'ordre de charge 2D d'après les mesures de rayons-x : les triangles vers le bas correspondent à la référence [72], ceux vers le haut à la référence [71]. Les ronds bleus indiquent la température T_g de gel des spins aux fréquences RMN, μSR et NQR, d'après la revue [100] et les références citées. La transition supraconductrice est indiquée par les ronds oranges, d'après les mesures d'aimantation de la référence [97]. La température du pic d'atténuation ultrasonore, T_α, mesurée dans LSCO12 et LSCO4, correspond bien au gel des spins, ce sont les diamants rouges. La température caractéristique en dessous de laquelle le réseau durcit anormalement, T_v, les ronds rouges, correspond également à cette anomalie du diagramme de phase.

analyse fine et systématique de la température à partir de laquelle les différentes constantes élastiques commencent à dévier de $c_0(T)$ est nécessaire.

Un autre point à éclaircir est l'origine de l'effet du champ magnétique. Les anomalies ultrasonores dans LSCO11 et LSCO12 dépendent du champ magnétique alors qu'elles n'en dépendent pas dans LSCO4 jusqu'à $B = 15$ T. Cela n'est pas étonnant puisque cet effet est attribué à une compétition avec la phase supraconductrice. Néanmoins dans les échantillons supraconducteurs cet effet existe pour $T > T_c$ et se poursuit au delà du champ supérieur critique B_{c2} déduit des mesures de transport.

L'effet du champ pour $B > B_{c2}$ se comprendrait mieux si le champ magnétique avait un effet intrinsèque sur les anomalies ultrasonores, qui visiblement n'existe pas dans LSCO4. On peut alors s'interroger sur notre estimation de $B_{c2}(0) \sim 24$ T pour $p \simeq 0.12$. Une possibilité est que cette valeur est fortement sous-estimée. Des mesures en champs magnétiques intenses de conductivité thermique ou bien de chaleur spécifique seraient très intéressantes pour confirmer ou infirmer cette valeur. Reste ensuite la possibilité qu'un effet de magnétostriction biaise la mesure de vitesse du son à ce dopage particulier. Cet effet est généralement négligeable mais il serait intéressant de le vérifier ici. Concernant l'effet du champ magnétique pour $T > T_c$ une possibilité est celle de fortes fluctuations supraconductrices à $p \simeq 0.12$. Un argument en faveur de l'existence de celles-ci est la magnétorésistance qui persiste jusqu'à ~ 100 K [192, 193] et l'effet Nernst important attribué à des excitations de type vortex pour $T \gg T_c$ [45, 46]. Néanmoins l'interprétation des mesures d'effet Nernst est controversée [44] et l'origine de la forte magnétorésistance n'est pas connue. Il a par exemple été suggéré qu'elle pourrait être liée à une augmentation de fluctuations d'ordre de charge sous champ magnétique [193].

Finalement le verre AF a été détecté par diffraction des neutrons à $p \simeq 0.145$ [69, 115] au dessus d'un champ magnétique critique $B \sim 5\ T$ mais jusqu'à présent la situation à plus haut dopage reste inconnue. L'observation du verre AF par ultrasons ouvre l'excitante possibilité d'aller l'étudier à bien plus haut dopage que précédemment. Cette étude est l'objet du prochain chapitre.

5.5 Questions en suspens

Ce chapitre a permis une ré-interprétation des données ultrasonores dans LSCO, mais soulève également un grand nombres de questions associées :

1. Quelle est l'origine microscopique des anomalies ultrasonores ?

2. Quelle est l'origine l'effet du champ pour $T > T_c$ pour $p \sim 0.12$?

3. Quelle est l'origine de l'effet du champ pour $B > B_{c2}$ dans les échantillons supraconducteurs ?

4. L'ordre de charge joue-t-il un rôle dans la vitesse du son mesurée ? Est-il responsable pour le ramollissement précurseur au gel des fluctuations de spins ?

5. Quelle est l'origine de la (faible) différence de température de gel mesurée en RMN et ultrasons ?

6. Est-il possible de reproduire la dépendance non monotone de $T_{min}(B)$ dans le cadre d'un modèle de Landau avec deux paramètres d'ordres ?

Chapitre 6

Résurgence du magnétisme de LSCO jusqu'à p^* en champs magnétiques intenses

Les mesures de diffractions des neutrons [69, 115] ont montrées qu'au delà de $p_{SG} \simeq 0.135$ le verre antiferromagnétique de LSCO peut-être *induit* par un champ magnétique. Ces mesures ont néanmoins été limitées à un dopage en trous de $p \simeq 0.145$ et des champs magnétiques $B \leqslant 15$ T, des champs magnétiques plus intenses étant difficilement accessibles encore aujourd'hui pour de telles expériences. Une question reste donc en suspens. À quel dopage cette phase se termine-t-elle lorsque la supraconductivité est suffisamment affaiblie par un champ magnétique intense ?

Grâce aux résultats du chapitre 5 on propose ici une nouvelle stratégie pour répondre à cette question. Ayant établit l'existence de signatures ultrasonores associées au verre antiferromagnétique lorsque cette phase existe en champ magnétique nul, pour $p < 0.135$, on va maintenant poursuivre ces signatures pour des dopages $p > 0.135$ en appliquant des champs magnétiques intenses.

Ce chapitre est organisé comme suit. Tout d'abord l'on s'intéresse au dopage $p \simeq 0.145$ étudié en neutrons. Nous allons commencer par montrer qu'à ce dopage on observe bien, dès des champs magnétiques modestes, l'émergence d'un verre AF, fortement affaiblit par la supraconductivité en champ nul. À la suite de cela il s'agit d'étudier la dépendance en dopage des anomalies, depuis $p = 0.168$ jusqu'à $p = 0.215$, c'est à dire au travers de p^*. Nous allons voir qu'en champs magnétiques intenses la phase verre AF disparaît à p^*. Pour conclure ce chapitre on résume l'évolution en dopage avant une courte discussion des résultats et leurs implications.

6.1 Émergence du verre AF sous champ magnétique à $p \simeq 0.148$

Deux échantillons (voir tableau 4.1) ont été mesurés proche du dopage de $p \simeq 0.145$ étudié précédemment en diffraction des neutrons [69, 115] :

1. LSCO14, $p = 0.149$, dans le mode c_{11} : $T_c = 37.5 \pm 1$ K en accord avec la littérature, provenant du même barreau que celui étudié en neutron par J. Chang et collaborateurs [69].
2. LSCO15, $p = 0.148$, dans le mode $(c_{11} - c_{12})/2$: $T_c = 23.5 \pm 1$ K anormalement faible.

La situation est donc très intéressante. On va pouvoir dans la suite comparer deux échantillons de dopages similaires mais de T_c très différentes, permettant de mettre en lumière l'effet des impuretés sur la physique du verre antiferromagnétique. L'échantillon LSCO14 doit lui être, à priori, directement comparable à celui mesuré en neutrons dans la référence [69].

6.1.1 Mode longitudinal c_{11} dans l'échantillon LSCO14

La figure 6.1(a, b) montre vitesse du son et atténuation dans le mode acoutique c_{11} de l'échantillon LSCO14 en fonction de la température pour $0 \leq B \leq 32.5$ T. Pour la vitesse du son la contribution classique de la constante élastique du réseau cristallin, $c_0(T)$ (voir 3.2.2), a été soutraite. Pour $B = 0$ T le comportement est celui classiquement attendu pour un supraconducteur dans un mode longitudinal. On trouve pour $T = T_c$ un saut de champ moyen et un durcissement à plus basse température. En champs magnétiques appliqués, $B \parallel c$, on s'attend à observer le réseau de vortex via sa constante élastique de compression c_{11}^v [1]. Cette contribution des vortex est visible dès $B = 5$ T dans la vitesse du son et $B = 10$ T dans l'atténuation qui montrent respectivement une augmentation et un pic à la température T_{US}, la température de désancrage du réseau de vortex. Néanmoins même à ces champs modestes il y a clairement une autre contribution. Pour $T \ll T_{US}$ la vitesse et l'atténuation du son continuent d'augmenter anormalement.

En augmentant le champ magnétique la contribution des vortex est repoussée à plus basses températures, alors qu'une seconde anomalie se développe rapidement. On observe alors clairement un minimum dans la vitesse du son et deux pics distincts dans l'atténuation, l'un d'eux pouvant être associé au désancrage des vortex jusqu'à 32.5 T $< B_{c2}(0)$ (*cf.* annexe A). La situation est en parfait accord qualitatif avec le cas de LSCO12 $p = 0.122$ où un minimum dans la vitesse du son et un pic d'atténuation existent également dans ce même mode acoustique, et le pic d'atténuation se trouve aussi

1. des détails sur l'effet des vortex sur vitesse et atténuation ultrasonore sont disponibles en 3.4.

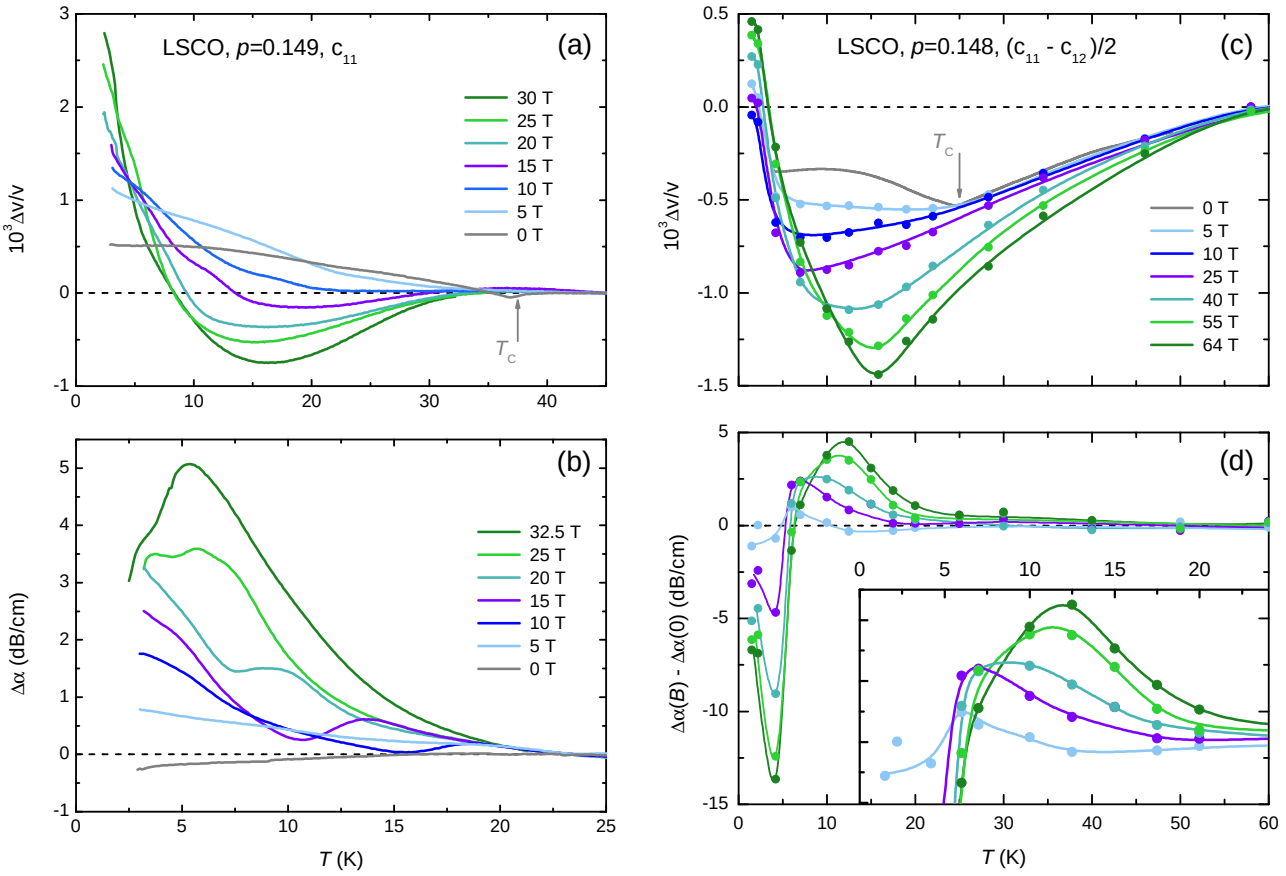

FIGURE 6.1 – Compilation des mesures ultrasonores dans les échantillons LSCO14, $p = 0.149$, dans le mode c_{11} et LSCO15, $p = 0.148$, dans le mode $(c_{11} - c_{12})/2$. (a, b) Variation de vitesse du son **(a)** et d'atténuation **(b)** en fonction de la température pour différents champs magnétiques ($B \parallel c$) indiqués sur les légendes dans l'échantillon LSCO14. Les axes des abscisses sont différents. **(c, d)** Variation de vitesse du son **(c)** et d'atténuation **(d)** en fonction de la température pour différents champs magnétiques ($B \parallel c$) indiqués dans l'échantillon LSCO15. Les valeurs sont discrètes car extraites de mesures en champs magnétiques pulsés, les lignes sont des guides à l'oeil. Pour les panneaux **(a, b, c)** la contribution à champ nul est incluse. Les mesures d'atténuation dans LSCO15 n'ont pu être possible pour $B = 0$ T et donc dans **(d)** seul l'effet induit sous champ magnétique, $\Delta\alpha(B) - \Delta\alpha(0)$, est visible. Pour **(a, c)** la contribution du réseau cristallin $c_0(T)$ a été soustraite.

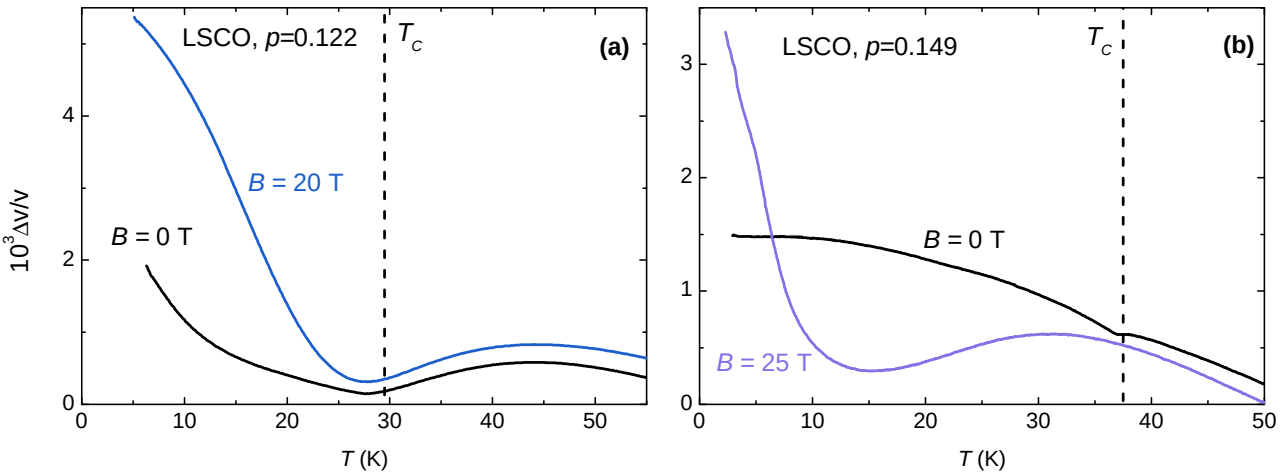

FIGURE 6.2 – Comparaison de la vitesse du son dans le mode c_{11} des échantillons LSCO12, $p = 0.122$ (a), et LSCO14 $p = 0.149$ (b). Pour $B = 0$ T le comportement à $p = 0.149$ est classique, sans autre anomalie que la supraconductivité, lorsque à $p = 0.122$ le comportement est déjà anormal avec la présence d'un large minimum. En augmentant le champ magnétique à $p = 0.149$ la situation devient qualitativement similaire à $p = 0.122$ avec un large minimum et une importante augmentation de vitesse du son à plus basse température, qui peut être expliquée seulement partiellement par les vortex.

dans la phase de remontée de la vitesse du son à basse température. À ce dopage de $p = 0.149$, et dans ce mode acoustique donné, le réseau commence à ramollir pour $T \simeq T_c$.

Une comparaison, dans ce mode acoustique, entre la vitesse du son pour $p = 0.122$ et $p = 0.149$ est visible sur la figure 6.2. Elle met en lumière la différence entre les deux dopages dans le mode c_{11} : alors qu'un minimum est déjà présent pour $B = 0$ T à $p = 0.122$ un champ magnétique est nécessaire pour le faire apparaître à $p = 0.149$. En champs magnétiques intenses la similitude est frappante. Le comportement des deux dopages est très similaire avec une échelle de température caractéristique (par exemple T_{min}, le minimum dans la vitesse du son) qui diminue fortement avec le dopage. Néanmoins, comme à $p = 0.122$, la température caractéristique T_{min} augmente avec le champ magnétique (voir figure 6.1(a)) à $p = 0.149$. Cette comparaison et les résultats de neutrons ne laissent aucun doute sur le fait que ce comportement anormal est ici dû à l'émergence du verre AF sous champs magnétiques à $p = 0.149$. Du point de vue des ultrasons, et mis à part la différence de T_{min}, une situation très similaire au dopage de $p = 0.122$ à champ nul, peut être obtenue par application d'un champ magnétique de $B = 25 - 30$ T à celui de $p = 0.149$. Ici, aussi, il serait donc intéressant de confronter ce résultat à des mesures de diffractions de neutrons à de tels champs magnétiques.

Finalement ces mesures en champs statiques permettent de définir avec précision le diagramme de phase de la figure 6.3. La dépendance en température de $B_{freezing}(T)$, c'est à dire du pic d'atténuation

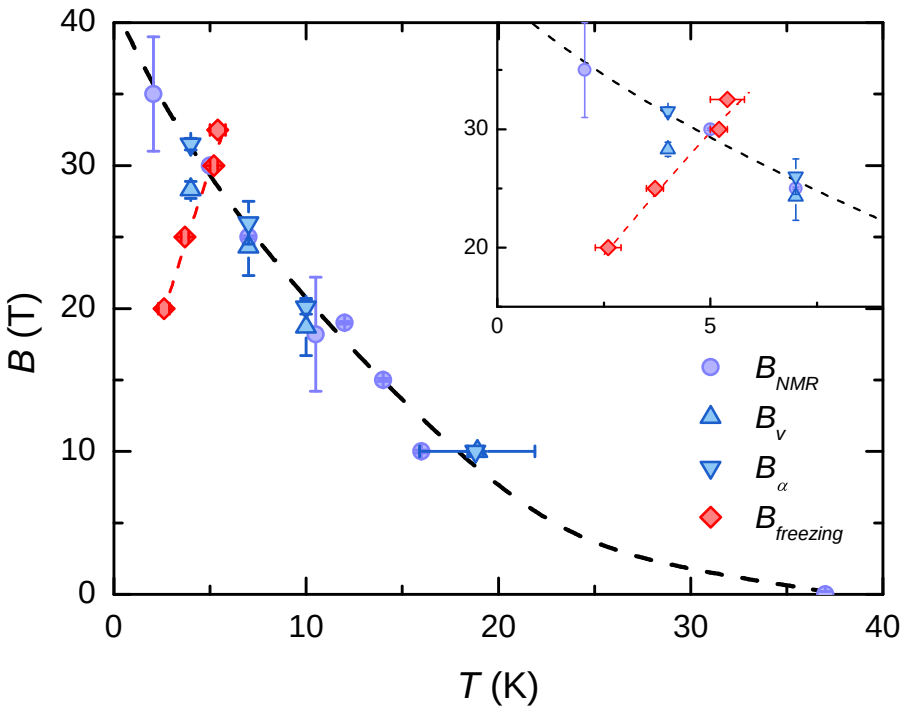

FIGURE 6.3 – Diagramme de phase champ magnétique - température de LSCO14 $p = 0.149$**.** B_{NMR} (ronds violets) indique le champ magnétique de fusion du réseau de vortex déterminé par une chute de la fréquence de résonance du circuit RLC de RMN. Ces mesures ont été effectuées par le groupe RMN du LNCMI-G sur exactement le même échantillon que celui mesuré en ultrasons. Sont également indiqués les champs de désancrage du réseau de vortex vus par une chute de vitesse du son (B_v, triangles bleus vers le haut) et un pic d'atténuation (B_α, triangles bleus vers le bas). Finalement $B_{freezing}$ indique le (second) pic d'atténuation visible sur la figure 6.1(b), non attribuable aux vortex. Les lignes pointillées sont des guides à l'oeil et l'insert un zoom sur la région fort champ - basse température.

attribué au gel des fluctuations de spins, montre que le gel débute dans la phase de vortex solide mais existe toujours, pour $B \geq 30$ T, dans la phase de vortex liquide. La température de gel augmente clairement avec le champ magnétique mais est toujours bien inférieure au cas de $p = 0.122$. Il n'y a aucun signe de saturation jusqu'à $B = 32.5$ T.

6.1.2 Mode transverse $(c_{11} - c_{12})/2$ dans l'échantillon désordonné LSCO15

Tournons nous maintenant vers l'échantillon LSCO15, mesuré lui dans le mode transverse $(c_{11} - c_{12})/2$. Le dopage est similaire à l'échantillon précédent mais T_c est bien plus faible, indiquant la présence d'impuretés. Cet échantillon a été mesuré intensivement en champs magnétiques pulsés jusqu'à $B = 64$ T $\| c$. Dans cette configuration on sonde le mode de cisaillement du réseau de vortex c_{66}^v. Ce dernier est très faible, en dessous de la résolution expérimentale.

La vitesse et l'atténuation du son sont visibles sur la figure 6.1(c, d). Sur la figure 6.1(c) on ajoute à la vitesse du son induite sous champ (quantité directement extraite des mesures en champ magnétique pulsé) celle mesurée en fonction de la température à $B = 0$ T (visible sur la figure 6.20). La contribution classique du réseau cristallin $c_0(T)$ est soustraite. On utilise donc exactement la même méthode qu'en 5.3.2. Ce qui est apparent sur la figure 6.1(c), et ce dès $B = 0$ T, est un minimum dans la vitesse du son qui coïncide alors avec T_c, exactement comme à $p = 0.122$ (voir par exemple la figure 5.4). Ceci indique que le ralentissement des fluctuations de spins entre dans la fenêtre temporelle ultrason pour $T > T_c$ et que ce ralentissement est stoppé par l'apparition de la supraconductivité. Pour $B \lesssim 20$ T la température de ce minimum, T_{min}, diminue en augmentant le champ magnétique, exactement comme observé par M. Nohara et collaborateurs [70] dans un échantillon de LSCO $p \simeq 0.14$ et le même mode acoustique jusqu'à $B = 14$ T. L'extension de ces mesures pour $B \gg 20$ T montre qu'alors, au contraire, T_{min} augmente avec le champ magnétique. Sur la figure 6.4 on compare le comportement de T_{min} à ce dopage avec celui de $p = 0.122$, décrit dans le chapitre précédent. La situation est très similaire dans les deux cas, ici néanmoins T_{min} connait une diminution jusqu'à plus fort champ magnétique. Cela s'explique naturellement par le fait qu'ici la supraconductivité est plus forte. Ce comportement est discuté plus en détails dans la section 5.2.2.

La comparaison entre les figures 6.1(a) et (c) montre que le ramollissement commence à bien plus haute température dans le mode $(c_{11} - c_{12})/2$, dès $T \simeq 60$ K $\gg T_c$. Cette différence peut *ne pas* être reliée à la présence d'impuretés dans l'échantillon LSCO15. Dans LSCO12 étudié précédemment on trouve cette même différence, dans le même échantillon (voir figure 5.4).

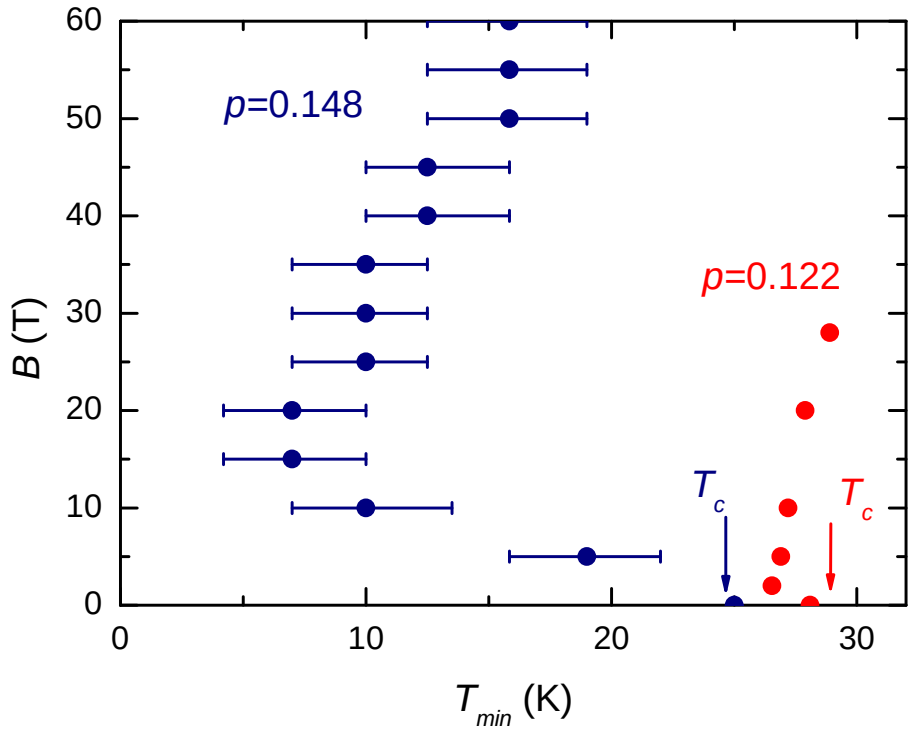

FIGURE 6.4 – Comparaison de $T_{min}(B)$ dans les échantillons LSCO12 et LSCO15. Dans LSCO12 ($p = 0.122$) T_{min} est déterminée dans le mode c_{11}, dans LSCO15 ($p = 0.148$) on utilise le mode $(c_{11} - c_{12})/2$. Les barres d'erreurs plus importantes à $p = 0.148$ sont dues au fait qu'on extrait T_{min} de mesures en champ magnétique pulsé. Dans les deux cas T_{min} a une dépendance non monotone avec B qui s'explique par la contribution supraconductrice qui est non négligeable à bas champ. À $p = 0.148$, où la supraconductivité est plus forte, la décroissance initiale de T_{min} se poursuit à plus haut champ magnétique. Une description plus complète de cet effet se trouve en 5.2.2. Les flèches indiquent T_c.

La figure 6.1(d) montre l'atténuation induite par le champ magnétique, $\Delta\alpha(B) - \Delta\alpha(0)$, directement extraite des mesures en champs magnétiques pulsés. Malheureusement les mesures pour $B = 0$ T se sont révélées non reproductibles et ne sont donc pas présentes ici. Néanmoins l'atténuation induite sous champ est déjà riche d'enseignement. Le champ magnétique induit un excès d'atténuation dans la phase de durcissement du réseau, comme attendu, et provoque une importante déplétion à basse température. Ce dernier effet peut être dû à un "transfert" d'atténuation initié par le champ magnétique ou, plus probablement, à une atténuation du son moins importante dans l'état gelé, plus ordonné, comme observé dans l'échantillon LSCO4 (voir figure 5.10). Le pic d'atténuation croît et se déplace vers les plus hautes températures avec le champ magnétique, en accord avec le mode c_{11} au même dopage. Des mesures similaires dans LSCO12 montrent exactement le même comportement (voir annexe B). Finalement, et de manière très intéressante, la température du pic d'atténuation dans les deux échantillons LSCO15 et LSCO14 est, à un champ magnétique donné, très comparable. Cela

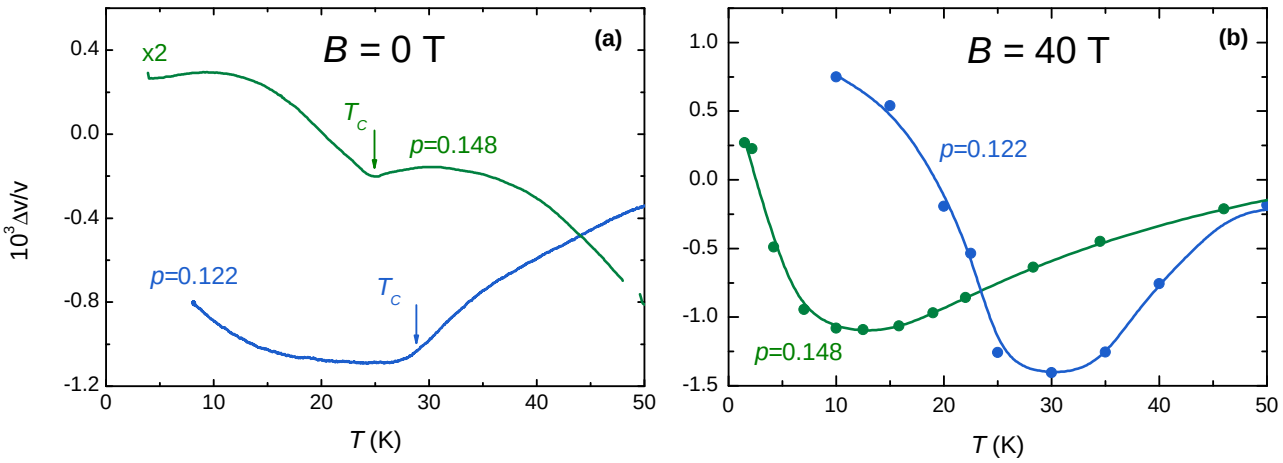

FIGURE 6.5 – Comparaison de la variation relative de vitesse du son dans les échantillons LSCO12 ($p = 0.122$) et LSCO15 ($p = 0.148$), dans le même mode acoustique $(c_{11} - c_{12})/2$, pour $B = 0$ T (a) et $B = 40$ T (b). Pour $B = 0$ T **(a)** les deux échantillons montrent un minimum de vitesse du son proche de T_c. La courbe à $p = 0.148$ a été multipliée par 2 pour laisser ce dernier apparent malgré la contribution (dominante) du réseau $c_0(T)$. Pour $B = 40$ T **(b)** on ajoute à la variation de vitesse induite sous champ celle à $B = 0$ T. Les données sont donc discrètes et les lignes des guides à l'œil. On observe alors aux deux dopages que le minimum de vitesse du son s'est amplifiée et que T_{min} diminue fortement avec le dopage. Les courbes sont décalées arbitrairement pour la lisibilité.

suggère que l'ajout d'impuretés ne permet pas ici de ralentir significativement les fluctuations de spins. Pour confirmer cela il serait intéressant d'étudier exactement le même échantillon, dans le même mode acoustique, avant et après ajout d'impuretés.

Finalement pour conclure la discussion qualitative sur cet échantillon on le compare au dopage $p = 0.122$ dans le même mode acoustique. Cette comparaison est visible sur la figure 6.5. À $B = 0$ T le minimum dans la vitesse du son coïncide avec T_c aux deux dopages, indication qu'alors le verre AF est en forte compétition avec la supraconductivité. En appliquant un champ de $B = 40$ T on renforce, aux deux dopages, le large minimum dans la vitesse du son, autre signature d'une compétition. Les signatures expérimentales sont qualitativement similaires aux deux dopages lorsque la supraconductivité a été suffisamment affaiblie, avec néanmoins une température caractéristique qui diminue avec p.

6.1.3 Ajustement par le modèle de susceptibilité dynamique

L'échantillon LSCO15 ayant été mesuré dans le mode acoustique $(c_{11} - c_{12})/2$, insensible au vortex et à l'effet Alpher-Rubin (pour $B \parallel c$) cela nous donne l'opportunité d'ajuster les données par le modèle de susceptibilité dynamique. La modèle est décrit en 3.6, la méthode pour extraire les données

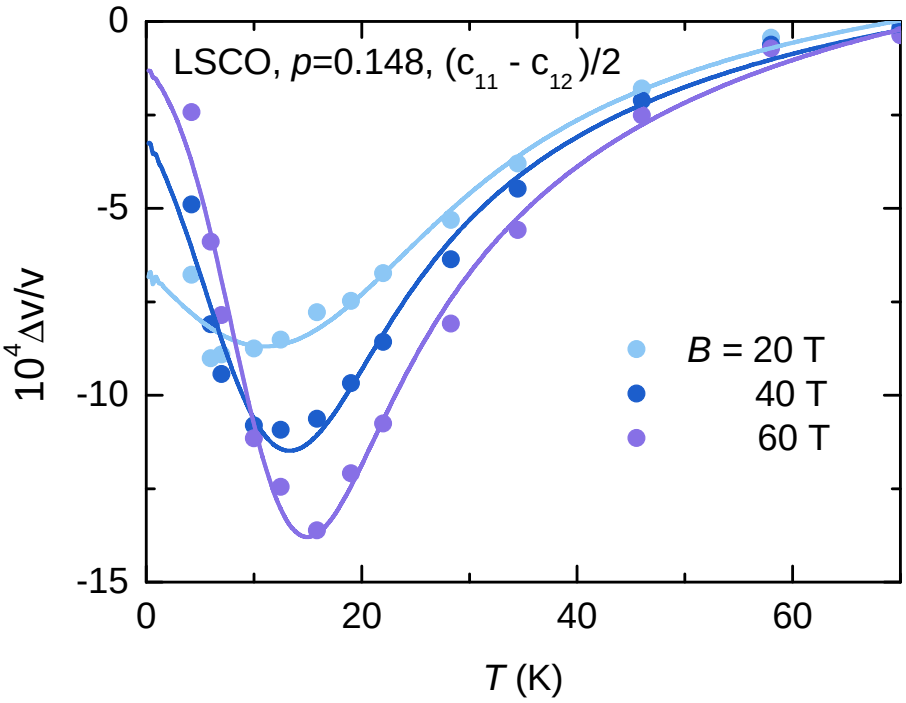

FIGURE 6.6 – Ajustement des données de vitesse du son dans LSCO15 et le mode $(c_{11}-c_{12})/2$, par le modèle de susceptibilité dynamique. Les ronds correspondent aux données expérimentales mesurées en champs magnétiques pulsés, auxquelles on ajoute la contribution à $B = 0$ T mais pas la variation du réseau cristallin $c_0(T)$, comme décrit en 5.3.2. Le minimum de $\Delta v/v$ qui se développe avec le champ magnétique est lié au verre AF. Les lignes sont des ajustements par le modèle décrit en 3.6.

de vitesse du son en 5.3.2. Puisque, à ce dopage et dans cet échantillon, des mesures d'atténuation à $B = 0$ T n'ont pu être possible, on ajuste seulement les données de vitesse du son.

La figure 6.6 montre la vitesse du son à trois différents champs magnétiques : $B = 20$ T, 40 T et 60 T. L'accord entre le modèle et les données expérimentales est remarquable, pour les trois champs magnétiques montrés ici, mais plus généralement pour $0 \leq B \leq 64$ T. On peut extraire de cette procédure la dépendance en champ magnétique des 4 paramètres du modèle : χ_0, C_{curie}, E_0 et ΔE_0. Le résultat est résumé sur la figure 6.7. Le comportement général est similaire à celui observé dans LSCO12, du moins lorsque $B \geq 30$ T : χ_0 diminue, ΔE_0 également avant de, semble-t-il, saturer pour $B > 40$ T et finalement E_0 et C_{curie} augmentent tous deux avec le champ magnétique et ne saturent pas jusqu'à, au moins, $B = 64$ T. Une différence notable existe néanmoins : pour $B \lesssim 30$ T E_0 et C_{curie} diminuent avec B. Cela est directement dû au fait que dans le même temps la température du minimum de vitesse du son suit la même tendance. Cette décroissance initiale est la signature qu'alors il y a une contribution supraconductrice non négligeable à la vitesse du son, qui n'est pas prise en compte par le modèle.

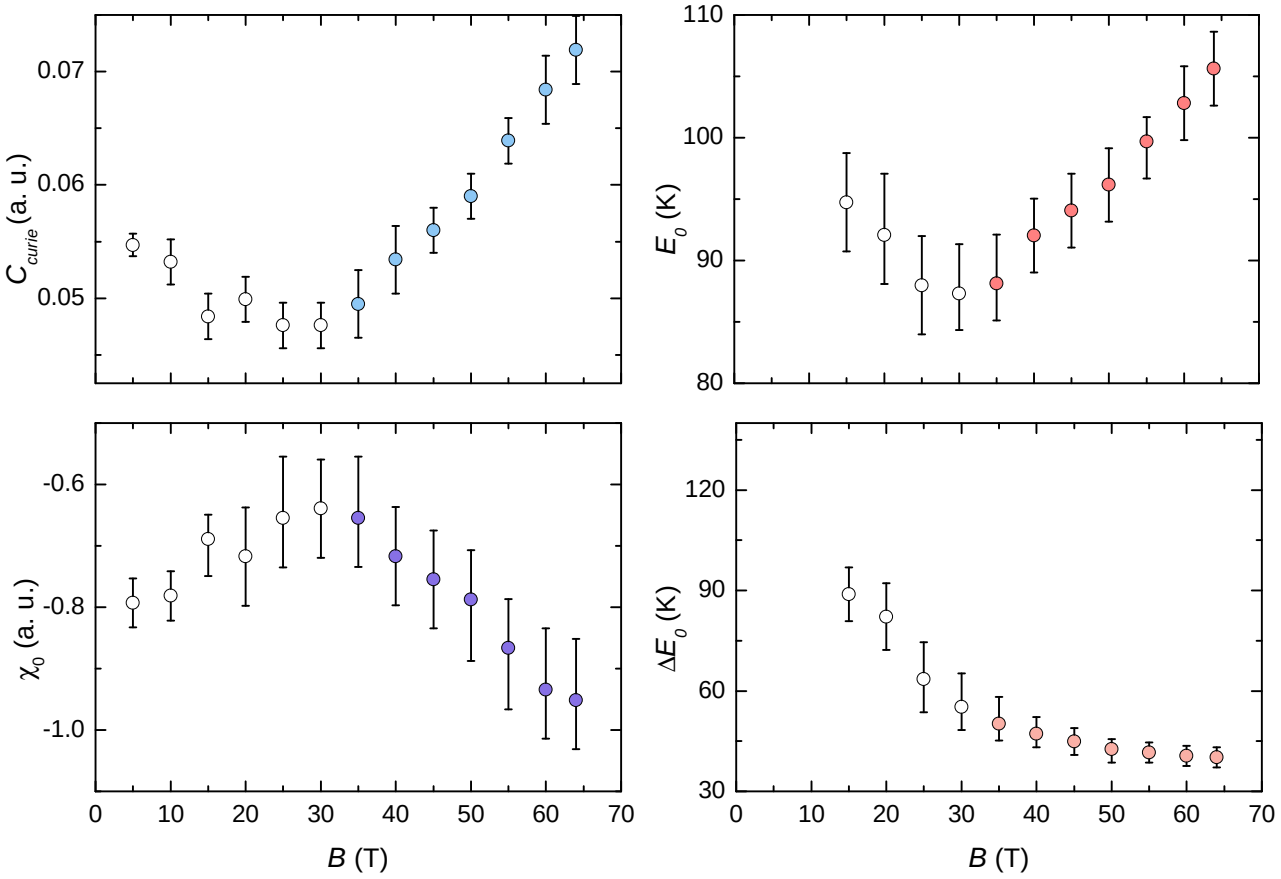

FIGURE 6.7 – Dépendance en champ magnétique des différents paramètres χ_0, E_0, ΔE_0 et C_{curie} du modèle de susceptibilité dynamique jusqu'à $B = 64$ T, dans l'échantillon LSCO15, $p = 0.148$. Les barres d'erreurs sur chacun des paramètres sont estimées comme suit : on fait varier un paramètre unique jusqu'à obtenir une augmentation de 30 pourcents de l'erreur quadratique moyenne de l'ajustement, par rapport à l'ajustement optimal. Les valeurs numériques sont directement comparables à celles de la figure 5.17. Pour $B \gtrsim 30$ T la dépendance en champ magnétique des différents paramètres est qualitativement similaire, mais quantitativement différente, au cas de $p = 0.122$. La différence qualitative pour $B \lesssim 30$ T vient du fait que le modèle n'est plus adapté lorsqu'il y a une contribution de la supraconductivité non négligeable à la vitesse du son. Les symboles correspondants sont vides.

En résumé, proche de $p \simeq 0.15$, Les signatures du verre AF se développent rapidement avec B. C'est en accord avec l'émergence de corrélations AF quasi-statiques vues par diffraction des neutrons au même dopage [69, 115]. D'après les mesures ultrasonores :

1. Il existe une forte compétition entre verre AF et supraconductivité.
2. Les signatures du verre AF se renforcent jusqu'à, au moins, $B = 64$ T.
3. Les impuretés n'ont pas un fort impact sur la température de gel à la fréquence ultrason.
4. Le mode $(c_{11} - c_{12})/2$ est le plus approprié pour détecter le verre AF à plus haut dopages.

6.2 Signatures du verre antiferromagnétique jusqu'à p^*

Il est maintenant question de se tourner vers les dopages $p > 0.149$, c'est à dire d'aller au delà du domaine d'existence connu du verre AF dans LSCO. Cinq échantillons ont été étudiés dans cette gamme de dopage, depuis $p = 0.168$ jusqu'à $p = 0.215$, c'est à dire de part et d'autre de p^*. Tous ont été mesurés dans le mode transverse $(c_{11} - c_{12})/2$ dont on sait maintenant qu'il est celui montrant les effets précurseurs les plus importants au gel des fluctuations de spins. On propose maintenant de les décrire un à un.

6.2.1 LSCO $p = 0.168$

Commençons par l'échantillon LSCO16 N2 (voir tableau 4.1) de dopage $p = 0.168$ [2]. La valeur de $B_{c2}(0)$ estimée des valeurs de transport est de 50.5 ± 3.5 T. Sur la figure 6.8(a) sont visibles les données brutes de vitesse du son en champs magnétiques pulsés. Les mesures sont ici réalisées jusqu'à $B \sim 86$ T et $T = 0.64$ K en combinant les bobines pulsés 90 T (voir 2.2.1) et l'environnement ^{3}He.

Pour $T = 45$ K $> T_c$ aucune dépendance en champ magnétique n'existe, comme attendu puisque ce mode n'est pas sensible à l'effet Alpher-Rubin (pour $B \parallel c$). En descendant en température un ramollissement du réseau induit par le champ magnétique apparaît. Pour $T = 10$ K il est déjà conséquent : $\Delta v/v(60\text{ T}) \sim 5 \times 10^{-4}$. À $T = 4.2$ K l'amplitude du ramollissement devient particulièrement importante avec $\Delta v/v(80\text{ T}) \sim 3 \times 10^{-3}$. De manière très intéressante en descendant à plus basse température encore l'amplitude de ce ramollissement décroît, au moins pour $B \gtrsim 60$ T. Cela indique alors la présence d'un minimum dans la vitesse du son induite sous champ magnétique.

2. Un échantillon de dopage similaire a été mesuré dans le mode c_{11}, voir annexe B.

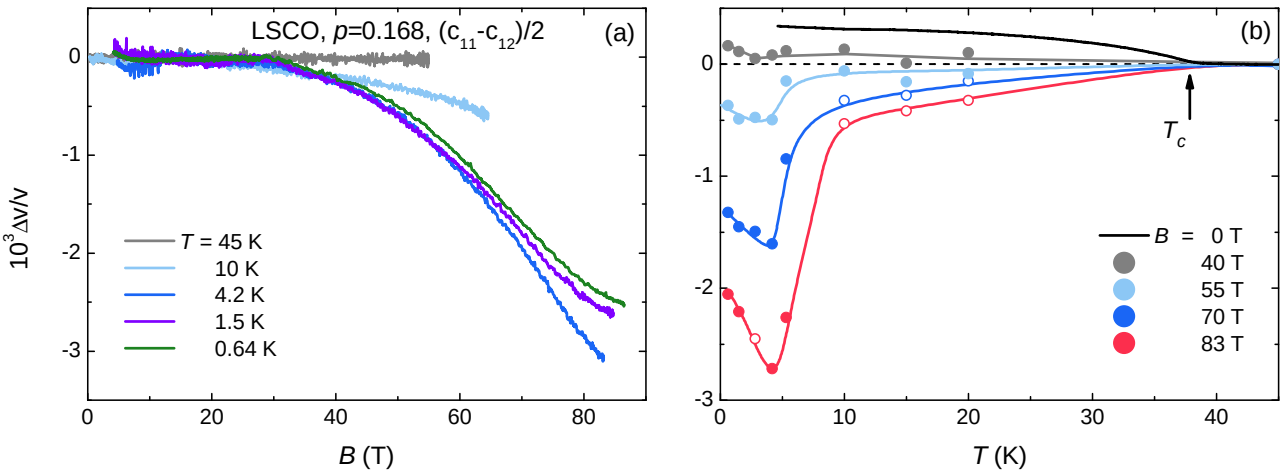

FIGURE 6.8 – Vitesse du son en champs magnétiques pulsés de l'échantillon LSCO16 N2, $p = 0.168$, dans le mode acoustique $(c_{11} - c_{12})/2$. (a) $\Delta v/v$ en fonction de B pour 0.64 K $< T <$ 45 K. On trace ici seulement la descente du champ magnétique. **(b)** Dépendance en température extraite des mesures en champs magnétiques pulsés (a) auxquelles on ajoute la contribution à champ magnétique nul, sans la contribution du réseau cristallin $c_0(T)$. Les ronds pleins représentent des données effectivement mesurées, les ronds vides sont extraits d'extrapolations linéaires de $\Delta v/v(B)$ au delà du champ maximal mesuré à la température en question. Les lignes correspondantes sont des guides à l'œil. Puisque la courbe à $B = 0$ T n'a pu être mesurée de manière précise dans cet échantillon on utile ici celle du dopage voisin de $p = 0.174$, dans le même mode acoustique. Cette procédure n'a aucun impact sur l'analyse en champs intenses. On discute de cela à la fin du chapitre.

Pour $T < T_c$ on s'attend naïvement à voir la vitesse du son diminuer avec le champ magnétique du fait de la fermeture du gap supraconducteur. En affaiblissant la supraconductivité on doit également supprimer son effet de durcissement du réseau cristallin (voir section 3.3.2). Néanmoins ici le ramollissement induit par le champ magnétique est bien trop important pour être expliqué uniquement par cet effet. Pour mettre cela en lumière on trace sur la figure 6.8(b) la dépendance en température de la vitesse du son pour $0 \leq B \leq 83$ T. La vitesse du son tracée ici comprend la contribution à $B = 0$ T à laquelle on a soustrait celle du réseau cristallin $c_0(T)$. On procède donc comme en 5.3.2, cette méthode sera également utilisée pour tous les échantillons qui suivent. Pour $B = 0$ T on observe, comme attendu, une augmentation de vitesse du son en entrant dans l'état supraconducteur. L'amplitude de ce durcissement est, pour $T \to 0$, de $\Delta v/v \sim 3.10^{-4}$. Pour $B = 40$ T la vitesse du son tracée sur la figure 6.8(b) est très proche de $\Delta v/v = 0$. Néanmoins en allant en champs plus intenses on obtient un clair ramollissement du réseau, $\Delta v/v < 0$. Cela indique donc que la contribution de la supraconductivité seule ne peut pas expliquer la diminution de vitesse du son en fonction de B. De plus, alors que la situation est ambigüe pour $B = 40$ T et 55 T, pour $B = 70$ T et 83 T on observe un minimum marqué dans la vitesse du son à $T \simeq 4.2$ K.

Connaissant l'évolution, dans ce même mode acoustique, en allant de $p = 0.122$ à $p = 0.148$, l'observation d'un minimum de vitesse du son en champs magnétiques intenses est naturellement reliée à l'émergence de la phase verre AF, une fois la supraconductivité suffisamment affaiblie. Alors qu'un comportement anormal attribué au verre AF est déjà présent à $B = 0$ T pour $p = 0.122$ et, dans une moindre mesure pour $p = 0.148$, pour ce dernier dopage de $p = 0.168$ un minimum clair n'apparaît dans la vitesse du son que pour $B \gtrsim 60$ T. À ce dopage la compétition entre verre AF et supraconductivité a donc clairement tournée à l'avantage de la seconde à $B = 0$ T. Dans cette interprétation on s'attend, comme aux autres dopages, à une augmentation de l'atténuation et éventuellement un maximum si la température de gel à la fréquence ultrasonore est atteinte. Contrairement aux mesures de vitesse du son les mesures d'atténuation se sont montrées peu reproductibles, et ne sont donc pas présentées à ce dopage. Néanmoins bien que la forme exacte de la courbe $\Delta\alpha(B)$ soit non reproductible les mesures montrent toutes pour $T \leqslant 4$ K une atténuation qui augmente fortement avec le champ magnétique.

Décrivons maintenant plus en détails la variation de vitesse du son en champs magnétiques pulsés à basse température. Sur la figure 6.9(a) est tracé, à nouveau, $\Delta v/v$ pour $T = 1.5$ K en fonction du champ magnétique. On peut y voir que jusqu'à un certain champ magnétique la vitesse du son est constante. Au delà de ce champ magnétique, appelons le B_{slow}, $\Delta v/v$ peut être bien ajustée par une formule de type Curie-Weiss :

$$\Delta v/v = a, \qquad B < B_{slow} \tag{6.1}$$

$$\Delta v/v = -\frac{c}{B - B_c} + \lambda, \qquad B \geqslant B_{slow} \tag{6.2}$$

Avec,

$$\lambda = a + \frac{c}{B_{slow} - B_c} \tag{6.3}$$

Cette dépendance particulière suggère l'existence d'un champ magnétique seuil bien défini, B_{slow}, en dessous duquel la vitesse du son n'est pas sensible au ralentissement des fluctuations de spins. Une autre manière de mettre cela en avant est de tracer, comme sur la figure 6.9(b), $(\Delta v/v - \lambda)^{-1}$. Une dépendance linéaire en B existe pour $(\Delta v/v - \lambda)^{-1}$ lorsque $B \geqslant B_{slow}$. Au dessus de $B \simeq 70$ T dans l'exemple de la figure 6.9 la variation de vitesse du son dévie d'un comportement de type Curie-Weiss. Puisque, aux dopages plus faibles de $p = 0.122$ et $p = 0.148$, on observe pour $T \lesssim T_g$ une augmentation de la vitesse du son avec le champ magnétique ce comportement est interprété comme un signe que le système de spin est alors proche du gel à la fréquence ultrason. Comme nous allons le voir par la suite

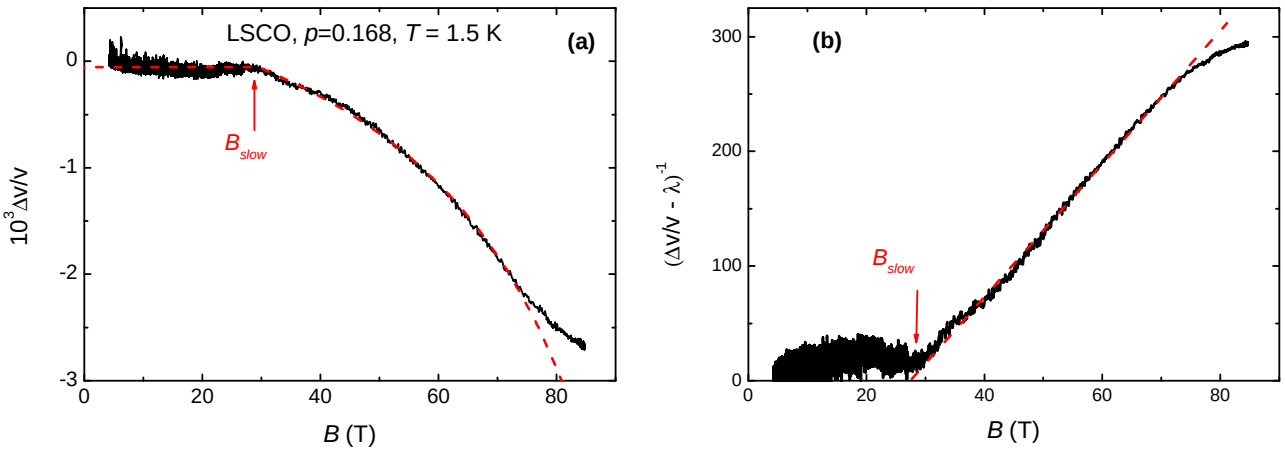

FIGURE 6.9 – Dépendance en champ magnétique de la vitesse du son pour $T = 1.5$ K dans LSCO, $p = 0.168$, et le mode transverse $(c_{11} - c_{12})/2$. (a) La vitesse est constante pour $B < B_{slow}$ et suit ensuite la formule 6.2 jusqu'à $B \simeq 70$ T, comme indiquée par la ligne pointillée rouge qui correspond à un ajustement des données expérimentales. Pour $B \gtrsim 70$ T une déviation positive indique que le système de spins gèle. **(b)** Dépendance en champ magnétique de $(\Delta v/v - \lambda)^{-1}$ avec λ défini par la formule 6.3. Une dépendance linéaire en B est observée pour $B > B_{slow}$, comme indiquée par la ligne pointillée rouge.

cette dépendance particulière en champ magnétique de $\Delta v/v$ a été observée pour $0.122 \leq p \leq 0.188$ lorsque $T \geq T_g$ et n'est donc absolument pas un trait particulier à ce dopage.

6.2.2 LSCO $p = 0.174$

On traite maintenant du cas de l'échantillon LSCO17 N3 (voir tableau 4.1) qui a un dopage en trous de $p = 0.174$. La valeur de $B_{c2}(0)$ estimée des valeurs de transport est (encore) de 50.5 ± 3.5 T. Les mesures en champs magnétiques pulsés sont proposées ici. D'autres mesures en champs statiques jusqu'à $B = 18$ T sont disponible en annexe B. Les résultats en champs statiques et pulsés sont parfaitement cohérents entre eux.

Les données brutes de vitesse du son en champs pulsés jusqu'à $B = 85$ T sont reportées sur la figure 6.10. La dépendance en température de $\Delta v/v$ extraite à partir de ces mesures est également reproduite. La procédure est la même que précédemment : on ajoute la contribution à $B = 0$ et soustrait celle du réseau cristallin. Jusqu'à $B = 40$ T l'effet du champ est compatible avec la seule fermeture du gap supraconducteur. Néanmoins lorsque $B > 40$ T il y a clairement un ramollissement du réseau induit par le champ magnétique pour $T \leqslant 10$ K. En fonction du champ magnétique le comportement est qualitativement, mais également quantitativement, très similaire au cas du dopage précédent. Pour $B > 70$ T, c'est à dire à un champ magnétique légèrement supérieur au cas précédent

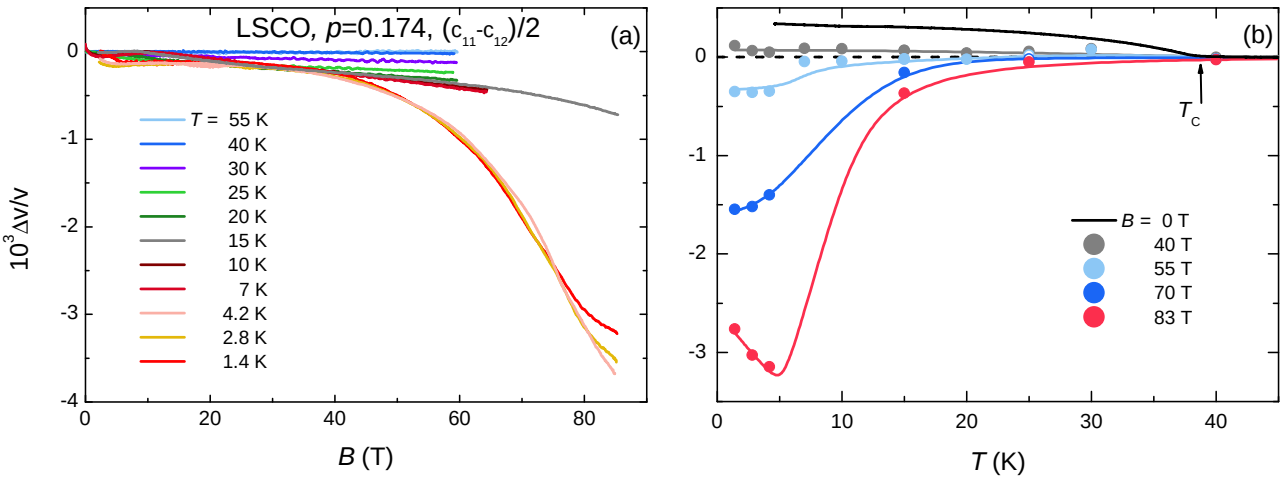

FIGURE 6.10 – Vitesse du son en champs magnétiques pulsés de l'échantillon LSCO17 N3, $p = 0.174$**, dans le mode acoustique** $(c_{11}-c_{12})/2$**. (a)** $\Delta v/v$ en fonction de B pour $1.4\,\mathrm{K} < T < 55\,\mathrm{K}$. On trace ici seulement la descente du champ magnétique. **(b)** Dépendances en températures extraites des mesures en champs magnétiques pulsés (a) auxquelles on ajoute la contribution à champ magnétique nul, sans la contribution du réseau cristallin $c_0(T)$. Les ronds pleins représentent des données effectivement mesurées, les ronds vides sont extraits d'extrapolations linéaires de $\Delta v/v(B)$ au delà du champ maximal mesuré à la température en question. Les lignes sont des guides à l'œil, sauf celle noire qui correspond à une mesure en température à $B = 0$ T.

de $p = 0.168$, on observe également un large minimum dans la vitesse du son, comme attendu autour de la température de gel des fluctuations de spins.

Des mesures fiables et reproductibles d'atténuation ont été possibles jusqu'à $B = 64$ T. Ces dernières sont visibles sur la figure 6.11. Pour $T \lesssim 4.2$ K l'atténuation augmente fortement lorsque $B > 35$ T et l'effet est d'autant plus marqué que la température est faible. Cela signifie la présence d'une forte atténuation à basse température et en champ magnétique intense. Dans la gamme de température et champ investiguée ici on n'atteint néanmoins pas un maximum. Les fluctuations de spins ne sont donc toujours pas gelées à la fréquence ultrason mais cela suggère fortement que ce soit le cas à plus basse température (< 1.5 K) et/ou plus haut champ magnétique (> 64 T).

Comportement hystérétique

Un aspect original des mesures sur cet échantillon est l'observation d'une hystérésis à fort champ magnétique. Ce comportement a été observé uniquement dans cet échantillon. La figure 6.12 montre la vitesse du son mesurée lors de la descente mais également la montée d'un pulse de champ magnétique. Pour $T = 15$ K une hystérésis est observée pour $B \lesssim 30$ T, un comportement classique dans la phase de solide de vortex. Pour $T = 1.5$ K on trouve une toute autre hystérésis, à bien plus fort

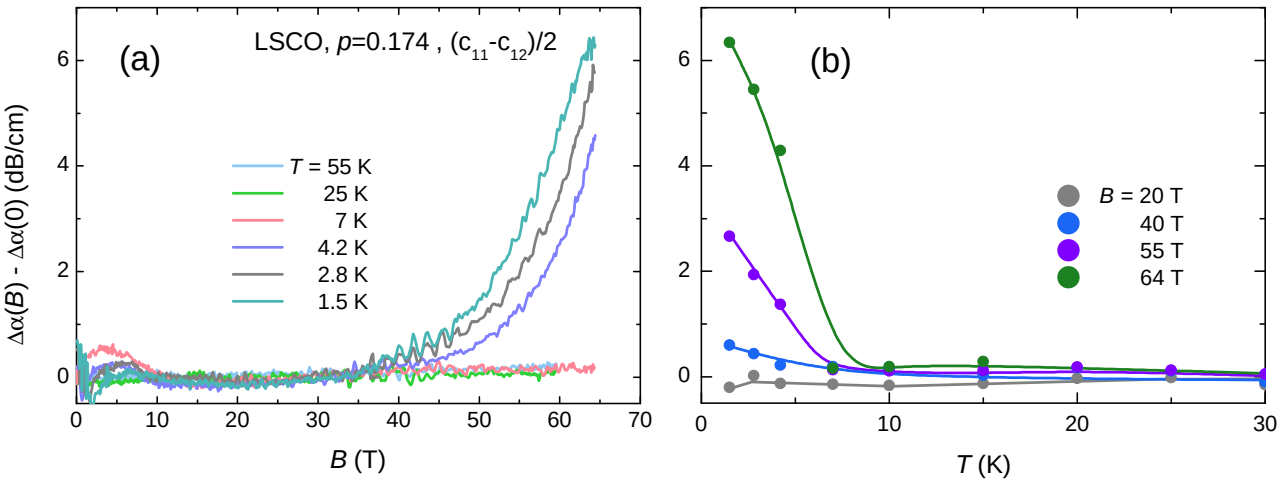

FIGURE 6.11 – Atténuation en champs magnétiques pulsés de l'échantillon LSCO17 N3, $p = 0.174$, dans le mode acoustique $(c_{11} - c_{12})/2$. (a) $\Delta\alpha$ en fonction de B pour 1.5 K $< T <$ 55 K. Pour $T \leq 4.2$ K on observe une augmentation conséquente d'atténuation au dessus de $B \simeq 35$ T. **(b)** Dépendances en températures extraites des mesures précédentes, pour différents champs magnétiques. La contribution à $B = 0$ T est ici négligeable par rapport à l'effet induit sous champ magnétique. Les lignes sont des guides à l'œil.

champ magnétique. Cette dernière a été observée également dans l'atténuation. Le premier suspect est la présence de chauffage lors d'un pulse de champ magnétique. Lors des mesures ultrasons des courants de Foucault peuvent être par exemple induits au niveau des transducteurs. Néanmoins ici on peut avoir des doutes sur cette possibilité. D'autres mesures que celles de la figure 6.12, dans les mêmes conditions expérimentales (même expérience, bobine, cryostat, canne de mesure etc.), avec notamment le même dB/dt, mais jusqu'à seulement 70 T ne montrent pas une hystérésis similaire.

Faisons donc l'hypothèse que ce comportement irréversible est une réelle signature de la physique de l'échantillon. Cette hystérésis est parfaitement compatible avec un verre de spin, et donc celui de LSCO, où une aimantation rémanente est observée [102]. Se pose alors la question de pourquoi une hystérésis similaire n'est pas observée aux autres dopages ? L'explication la plus simple est que dans une phase verre de spin l'historique de l'échantillon, et notamment les vitesses de rampes en températures, a un impact sur sa physique. Par exemple dans LSCO, $p = 0.12$, la vitesse de refroidissement semble avoir un impact sur les corrélations magnétiques perpendiculaires aux plans CuO_2 [196]. Dans tous les cas cette hystérésis observée dans cet échantillon motive de l'étudier bien plus en détails. Il serait très intéressant de le mesurer à ces mêmes champs magnétiques en utilisant d'autres techniques, en transport électrique par exemple.

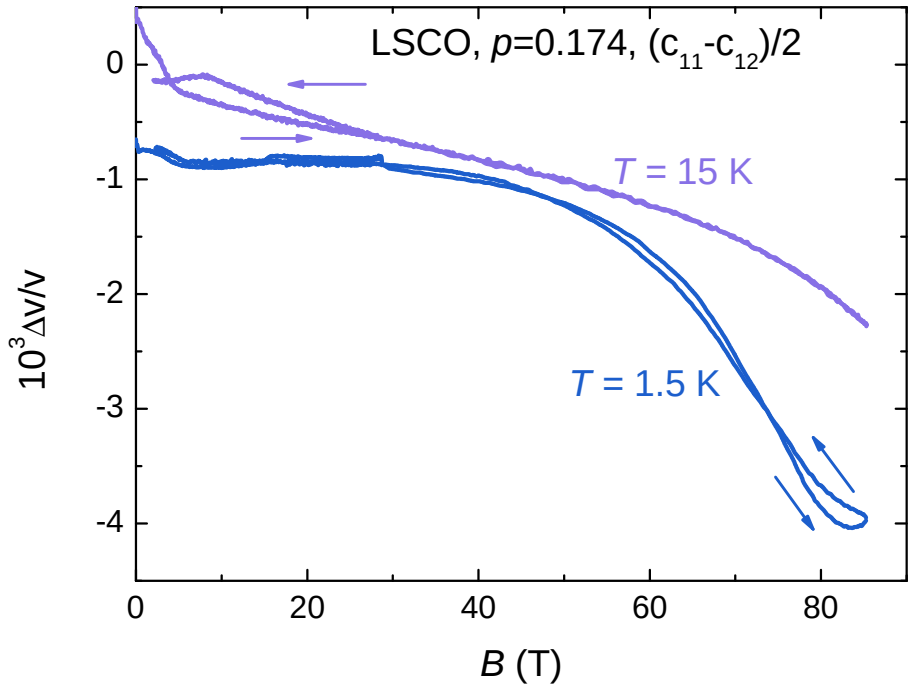

FIGURE 6.12 – Comportement hystérétique en champs intenses de LSCO17 N3, $p = 0.174$, dans le mode $(c_{11} - c_{12})/2$. Pour $T = 15$ K la vitesse du son montre une hystérésis en dessous de $B \sim 30$ T, habituelle dans la phase de vortex solide. Pour $T = 1.5$ K une autre hystérésis apparaît pour $B \sim 70$ T, seulement vue à ce dopage particulier et à basse température.

6.2.3 LSCO $p = 0.185$

Tournons nous maintenant vers l'échantillon LSCO17 N2. Son dopage est de $p = 0.185$, et l'estimation du champ critique supérieur $B_{c2}(0) = 49.5 \pm 3.5$ T d'après les mesures de transport. Les mesures de vitesse du son en champs magnétiques pulsés sont reportées sur la figure 6.13. Le comportement est très similaire à celui des dopages précédents. Pour $T \leq 4.2$ K on observe un fort ramollissement du réseau avec le champ magnétique. À ce dopage il n'est pas clair si pour le champ maximal atteint ici, on obtient ou non, un minimum dans la dépendance en température de la vitesse du son. Néanmoins les données suggèrent fortement que ce soit le cas à plus basse température et/ou plus haut champ magnétique.

Des mesures d'atténuation, parfaitement reproductibles, ont pu être obtenues parallèlement aux mesures de vitesse du son. Ces dernières sont reproduites sur la figure 6.14. Pour $T \leq 30$ K une augmentation progressive d'atténuation apparaît en champs magnétiques intenses. L'excès d'atténuation induit par le champ magnétique est plus important à $T = 4.2$ K qu'aux températures inférieures et on trouve même la présence d'un pic bien marqué dans la courbe à $T = 1.5$ K. On atteint donc le gel des fluctuations de spins à la fréquence ultrasons, ici $f = 200$ MHz. Il peut alors paraître étonnant que ce ne soit pas le cas au dopage précédent, $p = 0.174$. Néanmoins il faut noter qu'au dopage présent il

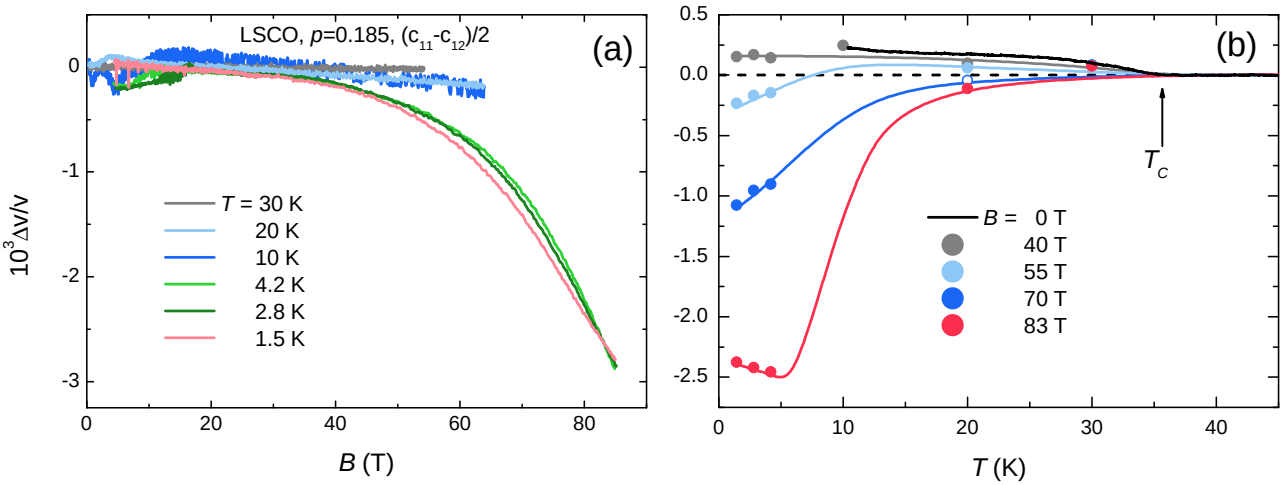

FIGURE 6.13 – Vitesse du son en champs magnétiques pulsés de l'échantillon LSCO17 N2, $p = 0.185$**, dans le mode acoustique** $(c_{11} - c_{12})/2$**. (a)** $\Delta v/v$ en fonction de B pour $1.5K < T < 30$ K. On trace ici seulement la descente du champ magnétique. **(b)** Dépendances en températures extraites des mesures en champs magnétiques pulsés (a) auxquelles on ajoute la contribution à champ magnétique nul, sans la contribution normale $c_0(T)$. La contribution $B = 0$ T utilisée ici est celle du dopage voisin $p = 0.188$, où la mesure a pu être effectuée. Les ronds pleins représentent des données effectivement mesurées, les ronds vides sont extraits d'extrapolations linéaires de $\Delta v/v(B)$ au delà du champ maximal mesuré à la température en question. Les lignes sont des guides à l'œil, sauf celle noire à $B = 0$ T qui correspond à une dépendance en température.

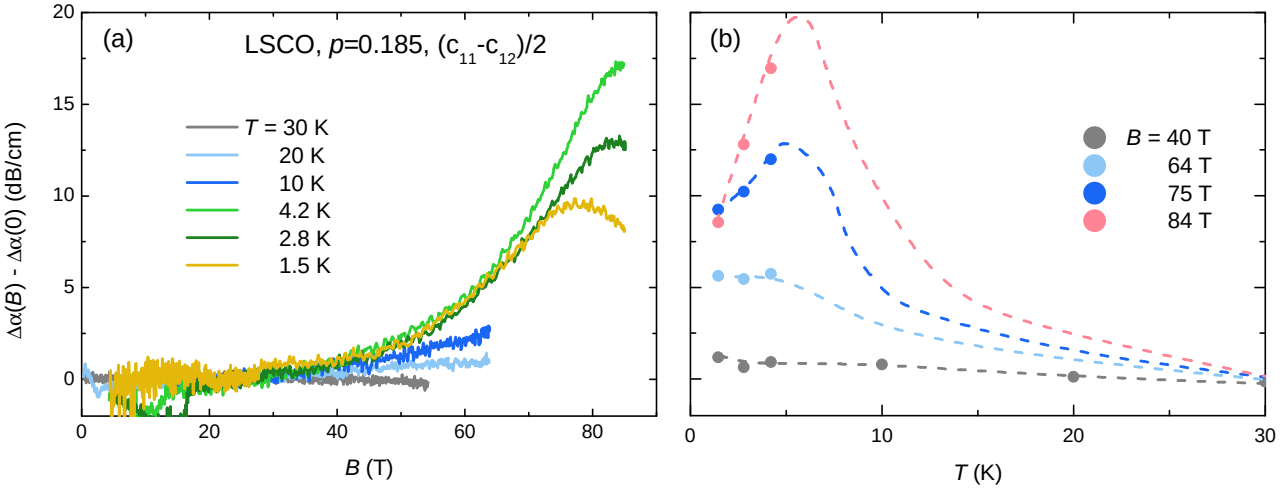

FIGURE 6.14 – Atténuation en champs magnétiques pulsés de l'échantillon LSCO17 N2, $p = 0.185$**, dans le mode acoustique** $(c_{11} - c_{12})/2$**. (a)** Atténuation induite par le champ magnétique pour 1.5 K $< T <$ 30 K. Pour $T \leq 4.2$ K on observe une augmentation conséquente d'atténuation avec B. Un pic est visible à $T = 1.5$ K. **(b)** Dépendances en températures extraites des mesures précédentes, pour différents champs magnétiques. Les lignes pointillées sont des guides à l'œil.

n'y a, pour $B = 64$ T, qu'une augmentation de l'atténuation à basse température, et pas encore de pic, au moins jusqu'à $T = 1.5$ K. La dépendance en dopage est donc bien cohérente.

6.2.4 LSCO $p = 0.188$

L'échantillon LSCO20 N2, $p = 0.188$, correspond au dernier dopage mesuré en dessous de p^* [44]. On estime à ce dopage $B_{c2}(0) = 49 \pm 3.5$ T (voir annexe A). On discute d'abord les mesures en champs magnétiques pulsés avant de voir que l'effet du champ magnétique est très anisotrope.

Mesures en champs magnétiques pulsés

Les mesures de vitesse du son, encore une fois dans le mode transverse $(c_{11} - c_{12})/2$, sont reportées sur la figure 6.15. L'unique différence qualitative avec les dopages précédemment présentés est qu'il n'y a aucun signe de minimum à basse température dans la vitesse du son, jusqu'à $B = 83$ T et $T = 1.5$ K. Il existe toujours le même ramollissement induit par le champ, effet précurseur au gel, mais ce dernier n'est pas atteint dans la gamme de température et champ investiguée.

On peut tirer la même conclusion des mesures d'atténuation, visibles sur la figure 6.16. Pour $T \leq 4.2$ K il y a une forte augmentation d'atténuation au delà de $B = 70$ T mais jusqu'au champ magnétique maximal mesuré, c'est à dire $B = 85$ T, on ne trouve aucun signe de saturation ou de maximum dans les dépendances en températures et/ou champs magnétiques. Les fluctuations de spins sont ralenties par l'application d'un champ magnétique mais ne sont pas gelées à la fréquence ultrasons.

Effet de l'orientation du champ magnétique

À ce dopage des mesures à $T = 4.2$ K ont été effectuées pour $B \parallel c$ mais également $B \perp c$. Le résultat sur la vitesse du son est reporté sur la figure 6.17. Pour $B \perp c$ $\Delta v/v$ ne montre pratiquement aucune variation jusqu'à $B \simeq 70$ T puis croît doucement, un comportement complètement différent de la diminution observée pour $B \parallel c$ et décrite précédemment. Cette forte anisotropie de l'effet du champ reflète celle de B_{c2}. Pour $B \perp c$ la supraconductivité est visiblement à peine affaiblie, même avec $B = 85$ T et donc le verre AF est toujours absent. Les mesures d'atténuation pour $B \perp c$ (pas montrées ici) s'insèrent parfaitement dans cette interprétation : jusqu'à $B = 85$ T cette dernière ne connaît qu'une très faible décroissance.

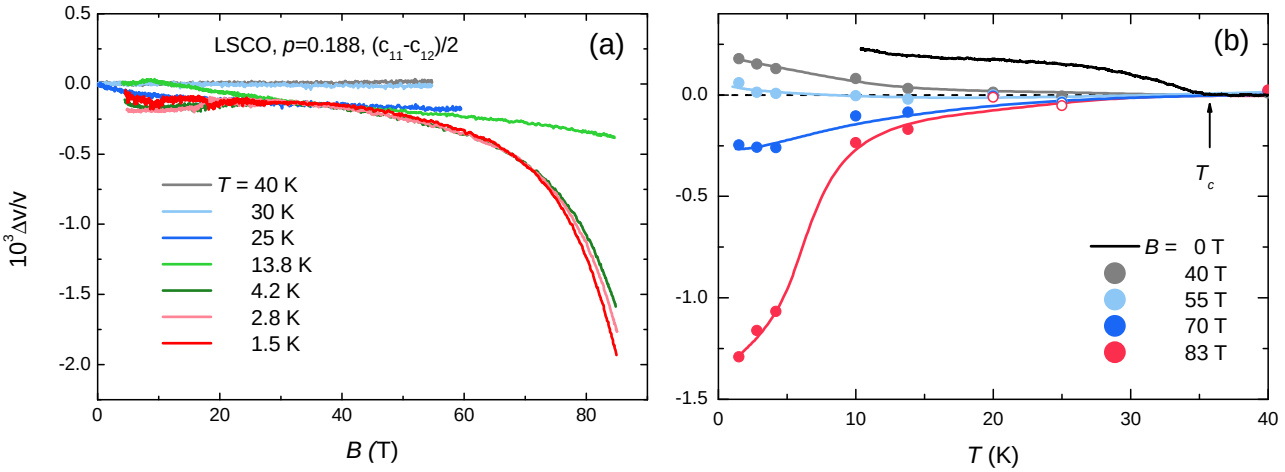

FIGURE 6.15 – Vitesse du son en champs magnétiques pulsés de l'échantillon LSCO20 N2, $p = 0.188$**, dans le mode acoustique** $(c_{11} - c_{12})/2$**. (a)** $\Delta v/v$ en fonction de B pour 1.5 K $< T <$ 40 K. On trace ici seulement la descente du champ magnétique. **(b)** Dépendances en températures de la vitesse du son extraites des mesures en champs magnétiques pulsés (a) auxquelles on ajoute la contribution à champ magnétique nul, sans la contribution du réseau cristallin $c_0(T)$. Les ronds pleins représentent des données effectivement mesurés, les ronds vides sont extraits d'extrapolations linéaires de $\Delta v/v(B)$ au delà du champ maximal mesuré à la température en question. Les lignes sont des guides à l'œil, sauf pour $B = 0$ T.

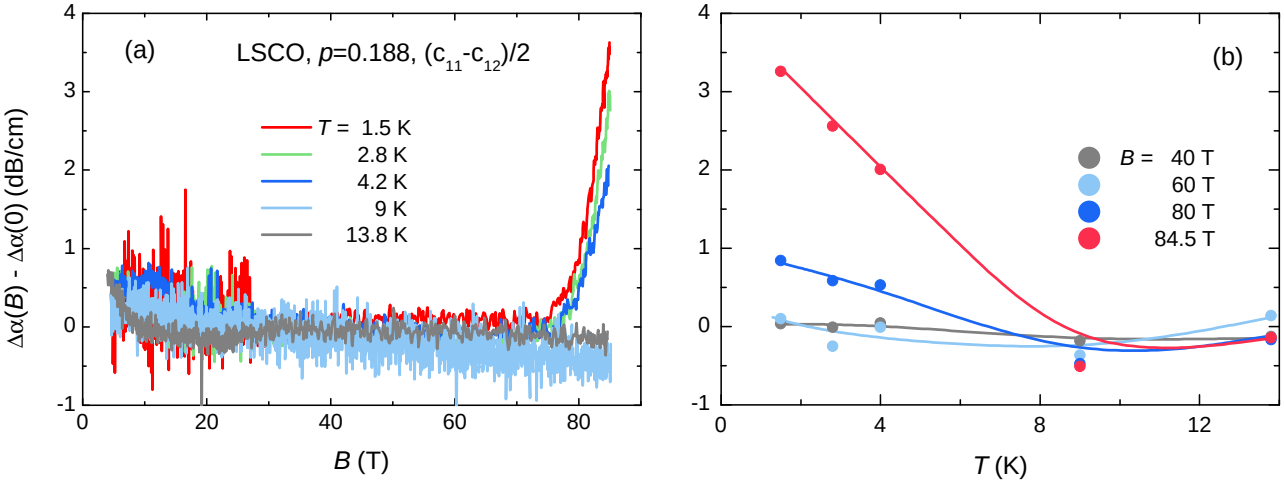

FIGURE 6.16 – Atténuation en champs magnétiques pulsés de l'échantillon LSCO20 N2, $p = 0.188$**, dans le mode acoustique** $(c_{11} - c_{12})/2$**. (a)** Atténuation induite par le champ magnétique pour 1.5 K $< T <$ 13.8 K comme indiqué sur la légende. Pour $T \leq 4.2$ K on observe une augmentation conséquente d'atténuation lorsque $B > 70$ T. **(b)** Dépendances en températures extraites des mesures précédentes, pour différents champs magnétiques. Les lignes sont des guides à l'œil.

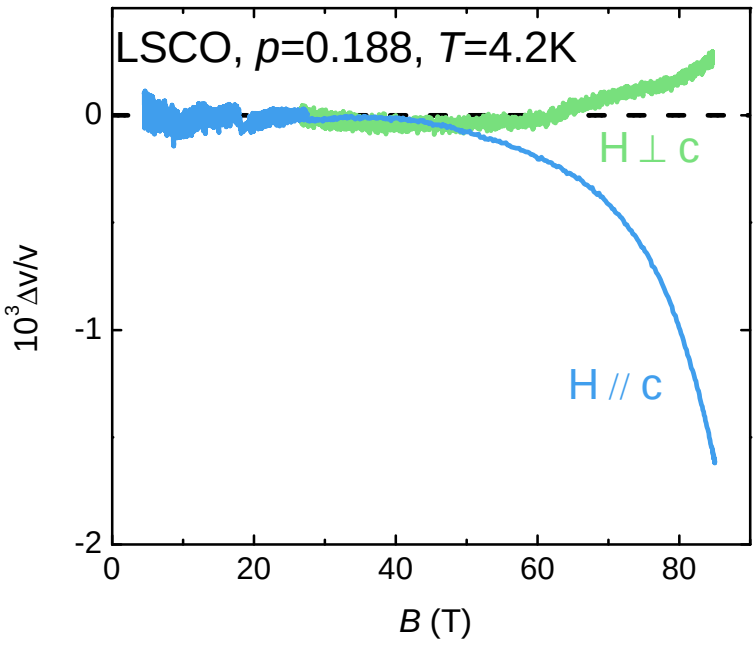

FIGURE 6.17 – Effet de l'orientation du champ magnétique sur $\Delta v/v(B)$ pour $T = 4.2$ K. Pour $B \perp c$ aucun ramollissement du réseau n'est induit, contrairement au cas $B \parallel c$. L'origine de l'augmentation de $\Delta v/v$ pour $B \geq 70$ T $\perp c$ n'est pas encore comprise. Cette anisotropie motive un scénario dans lequel l'effet du champ magnétique est seulement lié à la destruction de la supraconductivité.

6.2.5 LSCO $p = 0.215$

Le dernier échantillon présenté ici est LSCO19 (voir tableau 4.1). Dans cet échantillon, très proche du point critique pour la transition structurale HTT-LTO, la détermination du dopage est plus complexe que pour les échantillons précédents. On commence donc par donner quelques détails à ce sujet.

Dopage

La vitesse du son a été mesurée, pour $B = 0$ T, dans le mode c_{66} ($\vec{k} \parallel [100]$, $\vec{e} \parallel [010]$), qui est le mode mou de la transition structurale HTT-LTO. Le résultat est sur la figure 6.18 : depuis $T \sim 150$ K et jusqu'à, au moins, $T = 7$ K, le réseau ramollit sans interruption. L'effet tend néanmoins à saturer pour $T \longrightarrow 0$. Ce comportement est celui observé dans la littérature pour $T > T_s$. En dessous de T_s aucun signal n'a été reporté dans ce mode acoustique [150] à cause de la forte atténuation due aux parois de domaines LTO. Cette mesure indique donc que cet échantillon est très proche du dopage critique pour la transition HTT-LTO. En l'absence d'une valeur de T_s on détermine le dopage en utilisant la valeur de la température critique supraconductrice, $T_c = 26 \pm 2$ K, et les mesures de Yamada et collaborateurs [97] (voir figure 4.6). Cette méthode indique une valeur de $p = 0.215 \pm 0.005$, *i.e.* proche du dopage critique de la transition structurale, comme attendu.

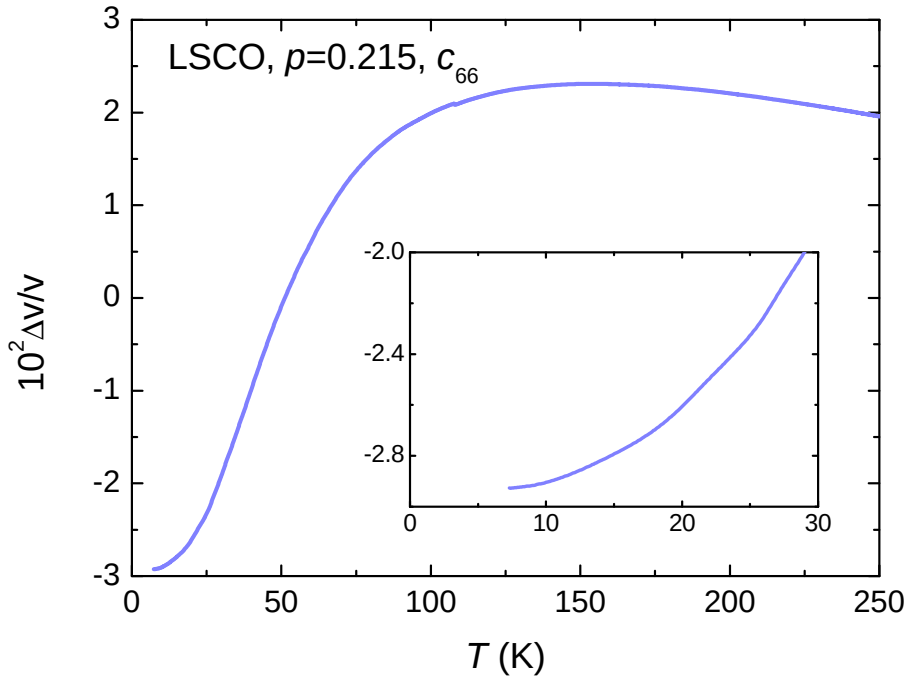

FIGURE 6.18 – Variation de vitesse du son dans le mode c_{66} de LSCO19. Un ramollissement du réseau cristallin apparaît sans interruption depuis $T \sim 150$ K causé par la transition structurale HTT-LTO. **Insert :** zoom sur la partie basse température où la vitesse du son tend à saturer.

Mesures en champs magnétiques pulsés

Les mesures de vitesse du son en fonction du champ magnétique pulsé sont décrites sur la figure 6.19. Le comportement est très différent de celui des dopages discutés auparavant. Tout d'abord il est important de noter que les variations de vitesse du son sont un ordre de grandeur plus faible que précédemment. En débutant à $T = 40$ K la vitesse du son suit une dépendance en B^2, dont l'origine reste à déterminer puisque dans ce mode acoustique et avec $B \parallel c$ aucun effet Alpher-Rubin n'est attendu. En descendant en température, pour $T < T_c$, l'effet du champ est tout d'abord de diminuer la vitesse du son avant d'induire à nouveau l'augmentation en B^2. Cette diminution initiale est complètement cohérente avec celle attendue du fait de l'affaiblissement de la supraconductivité. En effet, comme le montre la figure 6.19, l'amplitude du durcissement dû à la supraconductivité dans la limite $T \longrightarrow 0$ est de $\Delta v/v \simeq 2.5 \times 10^{-4}$, une valeur similaire au ramollissement induit par le champ magnétique à basse température. Cette diminution de vitesse du son s'arrête pour $T = 1.5$ K à $B \sim 45$ T, une valeur qui peut correspondre à $B_{c2}(0)$ (voir annexe A). Pour $T = 1.5$ K et jusqu'à $B = 84$ T il n'y a aucun ramollissement supplémentaire induit par le champ magnétique, pas même un signe avant-coureur. La situation est donc très différente de celle des échantillons précédents.

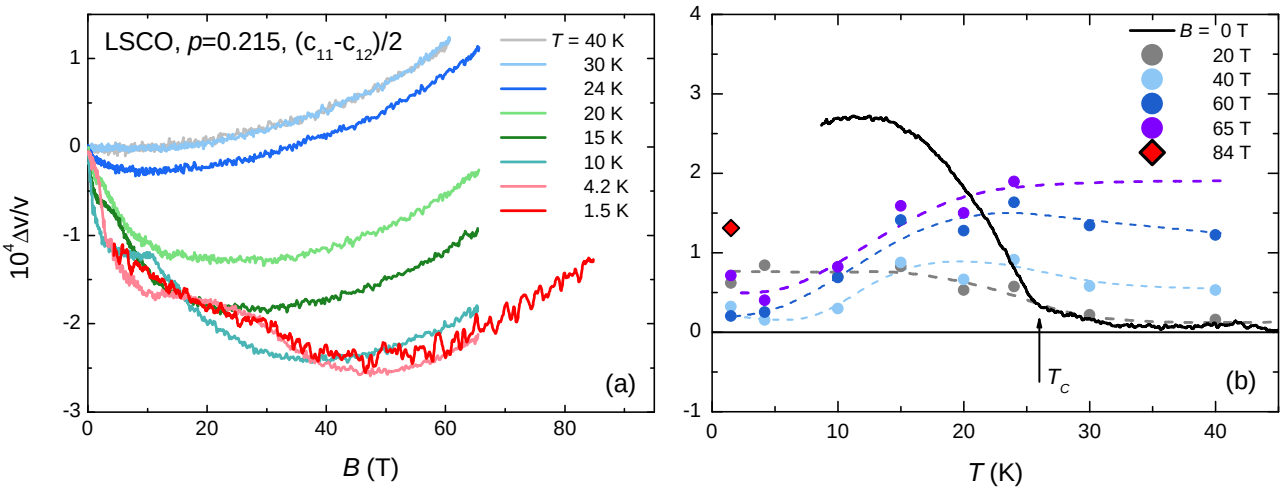

FIGURE 6.19 – Vitesse du son en champs magnétiques pulsés de l'échantillon LSCO19, $p = 0.215$, dans le mode acoustique $(c_{11} - c_{12})/2$. (a) $\Delta v/v$ en fonction de B pour 1.5 K $< T <$ 40 K. On trace ici seulement la descente du champ magnétique. **(b)** Dépendances en températures de la vitesse du son extraites des mesures en champs magnétiques pulsés (a) auxquels on ajoute la contribution à champ magnétique nul, sans la contribution du réseau cristallin $c_0(T)$. Les lignes pointillées sont des guides à l'œil.

L'atténuation amène à une conclusion similaire. Il n'y a aucune variation d'atténuation jusqu'à $B = 84$ T et $T = 1.5$ K. En résumé à ce dopage de $p = 0.215 > p^*$ les signatures du verre AF de LSCO ont disparu et un comportement *à priori* conventionnel est retrouvé.

6.3 Résumé de la dépendance en dopage de $\Delta v/v$

Dans la partie précédente nous avons décrit les échantillons dopage par dopage. Ici on propose de résumer l'évolution en dopage de $\Delta v/v$ en usant de comparaisons, tout d'abord en fonction de la température, puis en fonction du champ magnétique. Puisque l'intégralité des dopages a pu être mesurée dans le mode acoustique transverse $(c_{11} - c_{12})/2$ particulièrement sensible au verre AF on se concentre sur ce dernier. La dépendance en dopage de l'atténuation est elle proposée en annexe C.

6.3.1 Dépendance en température

Commençons par les dépendances en températures. La figure 6.20 montre celles-ci, depuis $p = 0.122$ jusqu'à $p = 0.215$, pour $B = 0$ T. Pour $p = 0.122$ et $p = 0.148$ on trouve, déjà à champ magnétique nul, un ramollissement débutant respectivement à $T \sim 60$ K et $T \sim 50$ K et se terminant dans les deux cas à T_c, signe qu'alors la supraconductivité entre en compétition avec une instabilité naissante. Pour les dopages plus élevés on observe uniquement le durcissement attendu pour $T < T_c$. En champ

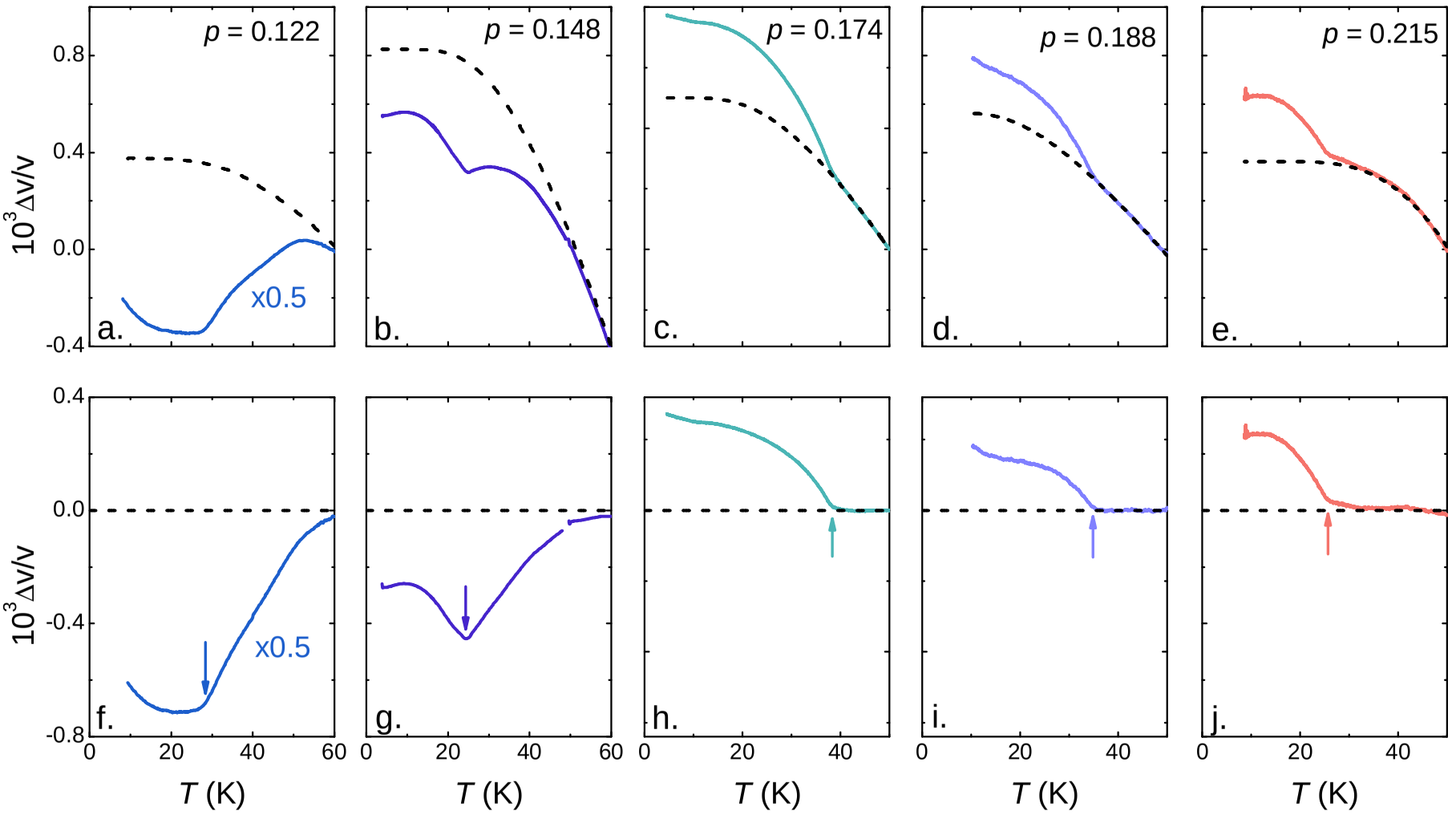

FIGURE 6.20 – Vitesse du son à $B = 0$ T dans le mode $(c_{11} - c_{12})/2$. (a-e) Vitesse du son mesurée expérimentalement (ligne pleine) depuis $p = 0.122$ jusqu'à $p = 0.215$ comme indiqué. La ligne pointillée correspond à un ajustement de la variation classique du réseau par la formule 3.20. **(f-j)** Différence entre la vitesse du son mesurée et la variation due au réseau cristallin. À champ magnétique nul un ramollissement n'est pas observé pour $p \geqslant 0.174$. Les flèches indiquent T_c. Les axes des abscisses sont en accord entre deux panneaux de même dopage, *e.g.* (a, f).

magnétique nul les signes avant-coureurs du verre AF disparaissent donc pour $0.148 < p < 0.174$. Il est également intéressant de noter est que l'amplitude du durcissement dû à la supraconductivité pour $0.174 < p < 0.215$ semble avoir une évolution faible en dopage, et est toujours environ un ordre de grandeur inférieur au ramollissement induit par le champ magnétique. Pour les dopages où la contribution à champ nul n'a pas pu être mesurée, l'utilisation de celle d'un dopage proche est donc justifiée.

Sur la figure 6.21 est visible l'évolution en dopage de la dépendance en température de $\Delta v/v$, cette fois en champs magnétique intenses. Pour $B = 20$ T le constat est le même que précédemment à $B = 0$ T : le verre AF disparaît pour $0.148 < p < 0.168$. En allant à $B = 60$ T on observe à $T \simeq 4.2$ K le minimum de $\Delta v/v$ signature de la proximité du gel des fluctuations de spins pour $p = 0.168$. À ce même champ magnétique la diminution précurseur de $\Delta v/v$ est observée jusqu'à $p = 0.185$. Finalement en allant jusqu'à $B = 80$ T il semble que l'on étende encore la phase verre AF et l'on perd le ramollissement précurseur pour $0.188 < p < 0.215$, *i.e.* lors de la disparition du pseudogap. L'évolution très graduelle obtenue avec des échantillons provenant de différents fournisseurs, et donc *à priori* avec des niveaux de désordre différents, suggère fortement que l'impact du taux précis d'impuretés n'est pas fondamental pour la physique du verre AF. Cette évolution en dopage est *compatible* avec l'idée d'un point critique qui se déplace avec le champ magnétique, à cause d'une compétition avec la supraconductivité. Cela rappelle fortement les scénarios théoriques dans lesquels un point critique quantique d'une onde de densité de spin subit ce même phénomène [117]. L'image est ici néanmoins quelque peu modifiée, on n'observe pas une transition classique du second ordre mais une transition vitreuse. En résumé les mesures suggèrent fortement, mais ne prouvent pas strictement, que la température critique du verre AF, dépendante du champ magnétique, s'annule à p^* en champs intenses. On peut alors se demander si en appliquant des champs toujours plus intenses on n'arrive pas au cas où $p_{SG} > p^*$. La suite met en doute ce scénario.

6.3.2 Dépendance en champ magnétique

Sur la figure 6.22(a-g) est tracée la variation de vitesse du son en fonction du champ magnétique. Pour chaque dopage on choisit une température légèrement supérieure à la température de gel des fluctuations de spins (elle même observée à fort champ magnétique pour $p \geq 0.168$), $T > T_{\mathrm{g}}$. Cela permet de comparer les échantillons dans des conditions *assez* similaires. Ce qui est apparent, et sur lequel on n'a pas insisté auparavant, est que la diminution de $\Delta v/v$ avec B est observée depuis $p = 0.122$ jusqu'à $p = 0.188$ pour $T > T_{\mathrm{g}}$. Ce comportement est donc visible à relativement haute température pour les échantillons de dopages $p = 0.122$ et $p = 0.148$. Ce qui est également apparent est que cette

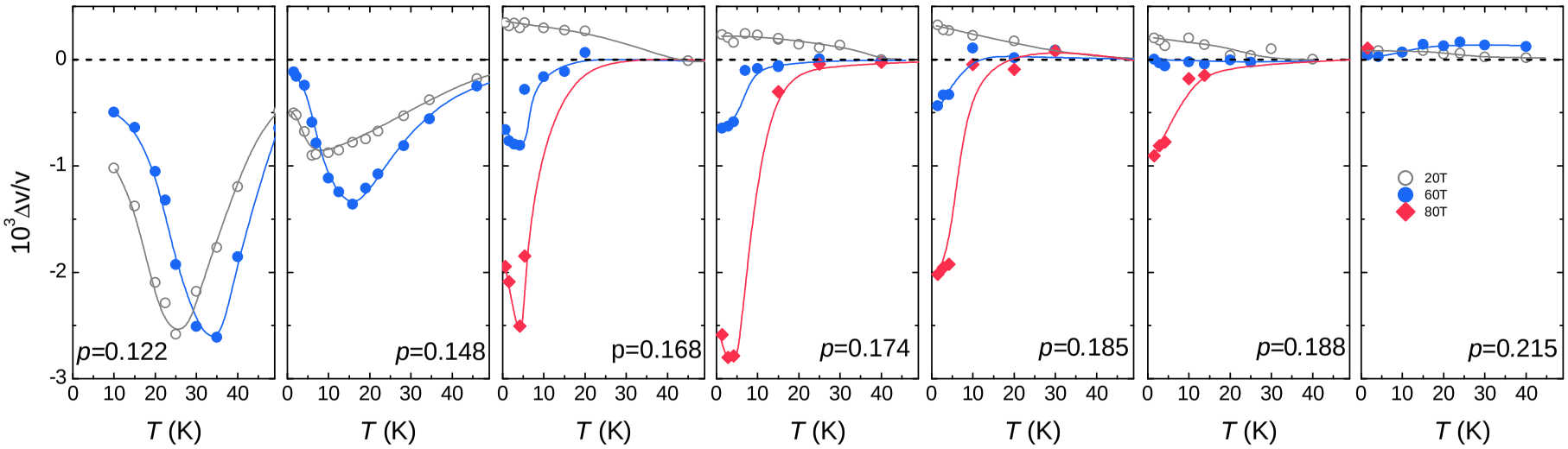

FIGURE 6.21 – Variation en température de la vitesse du son en champs magnétiques intenses pour $0.122 < p < 0.215$ dans le mode $(c_{11} - c_{12})/2$. À chaque champ magnétique, $B = 20,\ 60,\ 80$ T, correspond une couleur et un symbole indiqué dans la légende. La contribution du réseau cristallin est déduite de la vitesse du son tracée. Pour $p \geq 0.168$ et $B = 20$ T un durcissement est observé à basse température, lié à la supraconductivité. Pour $p \leq 0.188$ on observe une diminution de $\Delta v/v$ à basse température et fort champ magnétique, conséquence du ralentissement progressif des fluctuations de spins du verre AF. Un minimum est observé à suffisamment faible (respectivement fort) dopage (resp. champ magnétique), indiquant la proximité du gel à la fréquence ultrasons.

diminution se produit dès $B = 0$ T pour $p \leqslant 0.148$, alors qu'aux dopages supérieurs il faut d'abord atteindre le champ magnétique B_{slow} discuté en 6.2.1. Cela est mieux visualisé sur les panneaux (h-n) où l'on trace $(\Delta v/v - \lambda)^{-1}$. À $p = 0.215$ la situation a dramatiquement changée, $\Delta v/v$ montre un large (et faible) minimum proche de $B \sim 45$ T, une valeur qui semble correspondre à $B_{c2}(0)$ (voir annexe A).

On trace maintenant sur la figure 6.23 l'évolution en dopage de $B_{slow}(T = 1.5$ K). Pour $p \leqslant 0.148$ cette valeur ne peut pas être définie à cette même température puisque le système de spins est alors effectivement gelé ($p = 0.122$) ou le devient très rapidement ($p = 0.148$). La détermination d'un champ caractéristique à ces dopages doit donc reposer sur d'autres techniques. Pour $p = 0.144$ [115] et $p = 0.145$ [69] les expériences de neutrons définissent un champ magnétique seuil de, respectivement, $B = 3$ T et $B = 7$ T, au dessus duquel un signal quasi-élastique apparaît. À des dopages légèrement supérieurs un champ seuil peut être encore défini par les mesures de $1/T_1$ de RMN [10]. Ici il s'agit d'un critère arbitraire défini par la valeur de $1/T_1$ à $B = 7$ T dans un échantillon similaire à celui étudié en neutrons par J. Chang et collaborateurs [69]. Par définition le champ seuil à $p = 0.145$ est donc le même aussi bien en neutron qu'en RMN. En prenant en compte toutes ces définitions on obtient une dépendance en dopage très régulière, dans la suite on appelle donc ce champ B_{slow} sans distinguer par quelle technique expérimentale il est obtenu. Pour tous les dopages B_{slow} est inférieur à B_{c2}, il croît rapidement pour $p > 0.145$ et semble, tout comme B_{c2}, saturer proche de $p = 0.19$, une valeur qui peut correspondre à p^* [44]. Ce comportement suggère encore une fois un scénario de compétition entre verre AF et supraconductivité. Une augmentation du rapport B_{slow}/B_{c2} est par exemple attendue dans un scénario où le verre AF se développe dans des halos autour des vortex de champ magnétique, avec une longueur de corrélation magnétique qui diminue avec le dopage plus rapidement que la longueur de cohérence supraconductrice ξ. Dans ce cadre l'absence d'un début de diminution de $\Delta v/v$ à $p = 0.215$ pour $B = 86$ T $\gg B_{c2}$ et $T = 1.5$ K semble alors bien indiquer que ce signe précurseur, et donc le verre AF, a bel et bien disparu à ce dopage.

Sur cette même figure on trace $B_{freezing}$. Ce champ caractéristique est celui du gel à la fréquence ultrasons des fluctuations magnétiques, pour $T = 1.5$ K. Il est défini par deux critères différents suivant les échantillons : la déviation à la linéarité de $(\Delta v/v - \lambda)^{-1}$ ou bien, lorsque la mesure a été possible, le pic d'atténuation. Au dopage de $p = 0.185$, où l'on peut définir ces deux critères, les valeurs sont en accord dans les barres d'erreurs. $B_{freezing}$ est toujours supérieur à B_{slow} et connaît une variation en dopage à priori similaire : il subit une forte augmentation pour $p > 0.145$ puis sature proche de p^*. Ce champ caractéristique est très important car il permet de prédire à quelle champ magnétique l'on doit par exemple observer un pic de $1/T_1$ dans les expériences de RMN, qui sont réalisées à des

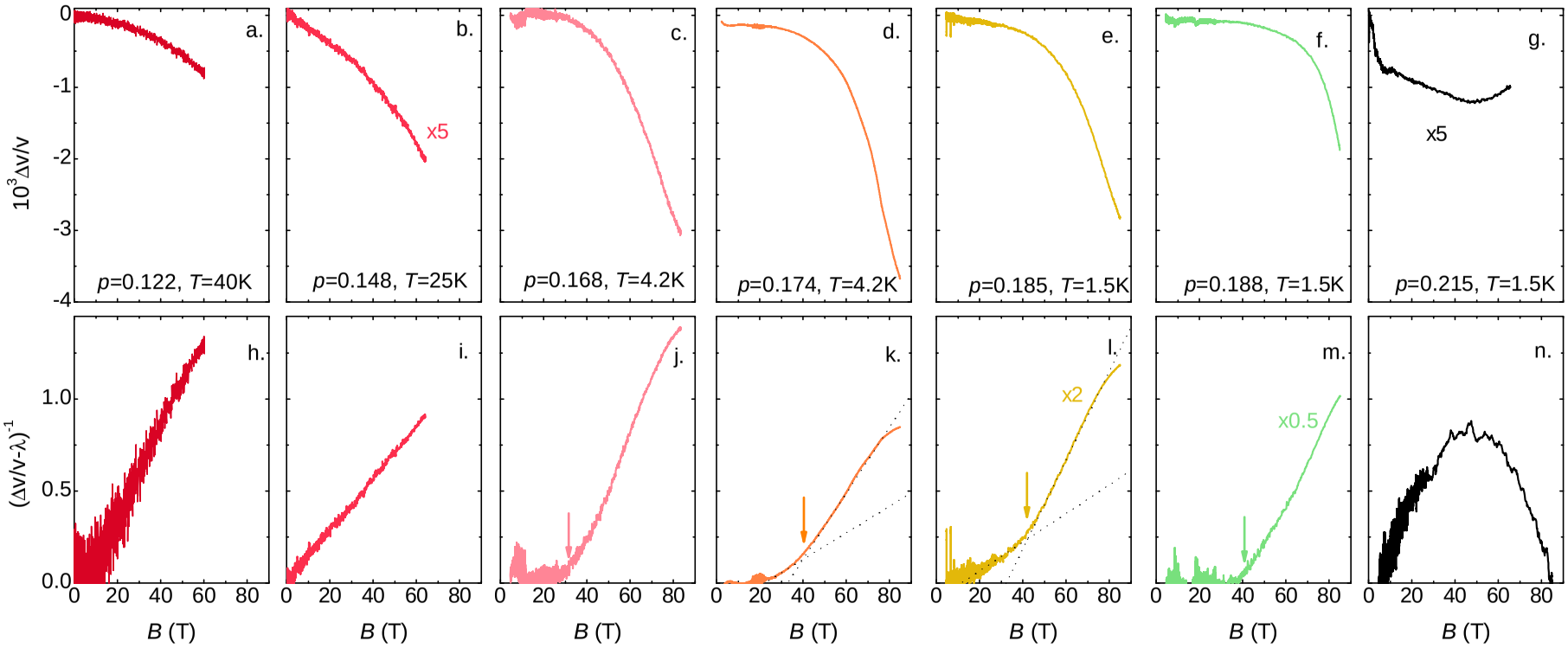

FIGURE 6.22 – Vitesse du son en fonction du champ magnétique pour $T > T_g$, dans le mode transverse $(c_{11} - c_{12})/2$. (a-g) $\Delta v/v$ en fonction de B aux dopages et températures indiqués. À chaque dopage la température choisie est supérieure à celle du gel, et plus encore $T > T_{min}$. On observe pour $0.122 \leq p \leq 0.188$ une diminution de vitesse induite par B. **(h-n)** $(\Delta v/v - \lambda)^{-1}$ en fonction de B. B_{slow}, indiqué par une flèche, marque le début d'une dépendance linéaire associée au ralentissement des fluctuations de spins. Des lignes pointillées indiquent comment l'on détermine B_{slow} pour $p = 0.174$ et $p = 0.185$. Pour $p = 0.215$ puisque la courbe brute ne montre pas une dépendance de type Curie-Weiss la procédure pour extraire $(\Delta v/v - \lambda)^{-1}$ n'est pas adaptée. En s'en accommodant on montre néanmoins qu'à ce dopage la réponse est très différente.

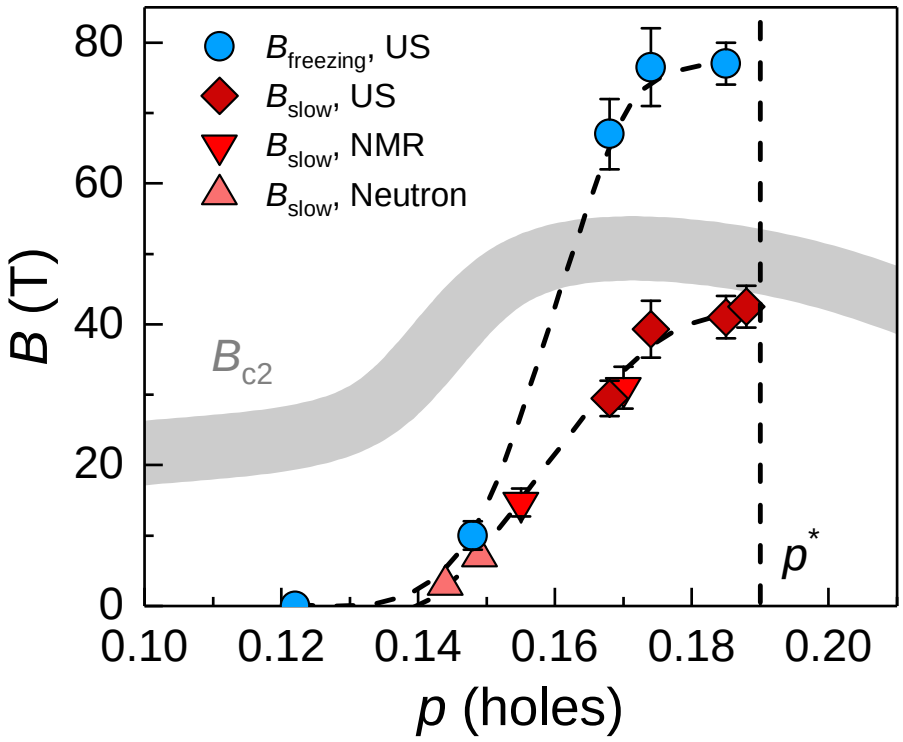

FIGURE 6.23 – Évolution des échelles de champ magnétique B_{slow} et $B_{freezing}$ avec le dopage. Les différentes définitions de B_{slow} depuis les mesures de vitesse du son, RMN et diffraction des neutrons sont données dans le texte principal, il est toujours extrait pour $T \simeq 1.5$ K. $B_{freezing}$ est également défini dans le texte principal, il marque le gel des fluctuations de spin à la fréquence ultrasons et $T = 1.5$ K. Pour la méthode d'extraction de B_{c2} voir l'annexe A. La valeur du dopage de l'échantillon étudié en neutron dans la référence [69] a été corrigée à $p = 0.148$. La ligne pointillée verticale indique $p^* \simeq 0.19$.

fréquences semblables. Pour $p = 0.168$ on a déjà $B_{freezing} > 60$ T. Cette valeur est donc cohérente avec l'absence de pic dans $1/T_1$ mesuré jusqu'à $B = 45$ T dans un échantillon de dopage similaire [10].

6.3.3 Paramètres du modèle de susceptibilité dynamique

Comme pour les dopages de $p = 0.122$ et $p = 0.148$ il est possible d'ajuster les données ultrasonores du mode transverse $(c_{11} - c_{12})/2$ par le modèle de susceptibilité dynamique pour tous les dopages $p \leq 0.188$. Sur la figure 6.24 on montre cela en ajustant les données de vitesse du son au champ magnétique maximal mesuré. Lorsqu'un pic d'atténuation et/ou un minimum de vitesse du son est observé il est raisonnable d'extraire l'échelle d'énergie E_0. Pour les dopages où ce n'est pas le cas, en particulier $p = 0.188$ où l'on est donc dans la gamme de température et champ mesurée restreint au domaine $T > T_g$, il est plus judicieux d'ajuster les données de vitesse du son par une simple susceptibilité statique de type Curie pour extraire (seulement) C_{curie} et χ_0.

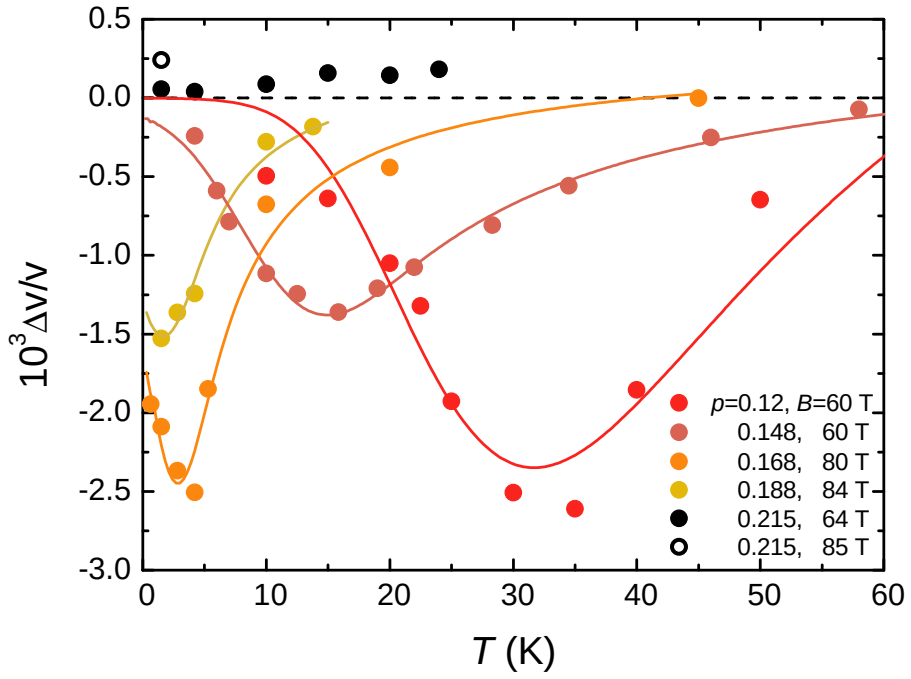

FIGURE 6.24 – Ajustement par le modèle de susceptibilité dynamique de la vitesse du son au champ maximal mesuré dans le mode $(c_{11} - c_{12})/2$**.** Les ronds correspondent aux mesures en champs pulsés auxquelles on ajoute la contribution à $B = 0$ T mais pas celle du réseau cristallin $c_0(T)$, comme décrit en 5.3.2. Les lignes sont des ajustements par le modèle de susceptibilité dynamique. Pour $p = 0.188$ l'ajustement indique un minimum et donc une valeur de E_0 non nulle. Néanmoins puisque les données seules n'indiquent pas un tel minimum, et sont donc compatibles avec $E_0 = 0$ K, cette valeur n'est pas prise en compte. Aucun ajustement n'est possible à $p = 0.215$ où la vitesse du son ne montre aucun ramollissement jusqu'à, au moins, $B = 85$ T. On ne montre pas les dopages intermédiaires $p = 0.174$ et $p = 0.185$ pour alléger la figure.

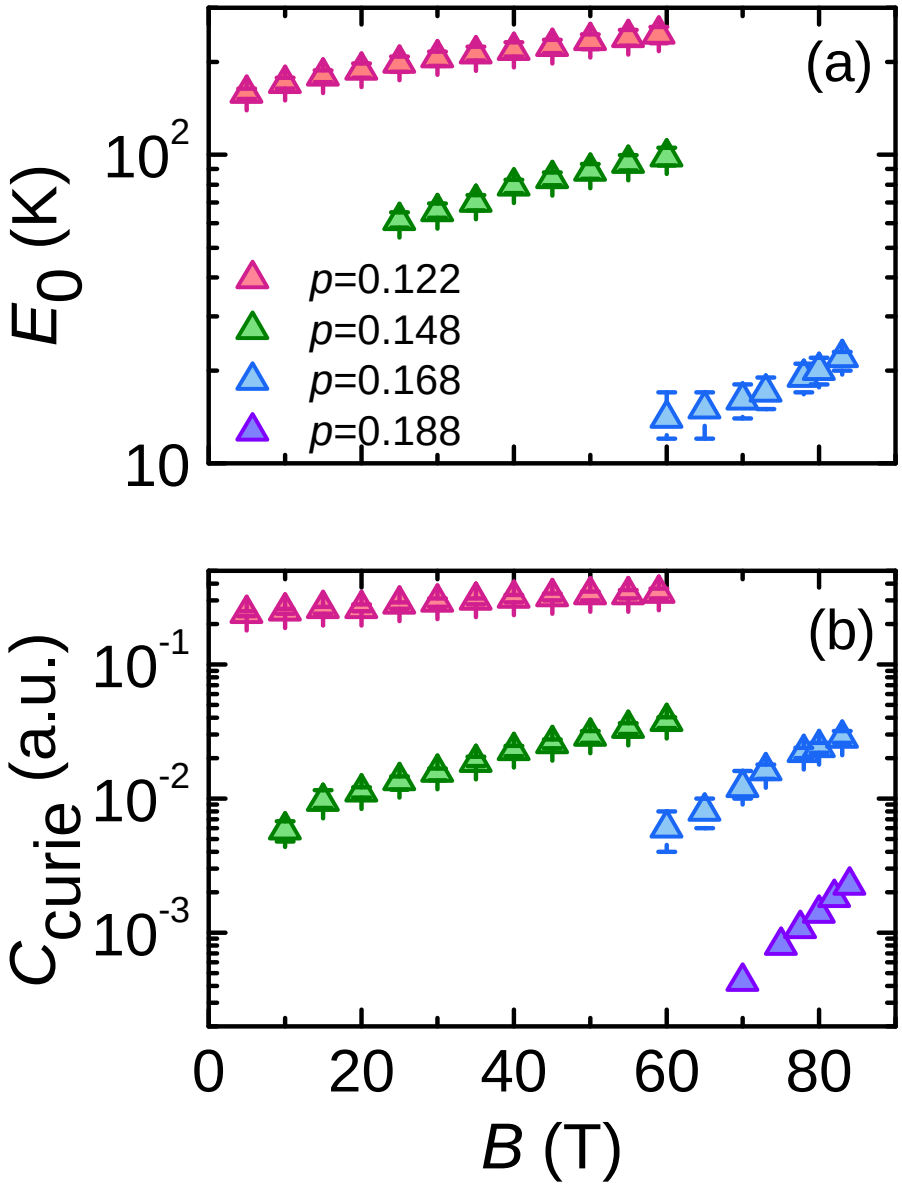

FIGURE 6.25 – Paramètres du modèle de susceptiblité dynamique E_0 et C_{curie} en fonction de B à différents dopages. Les paramètres sont directement extraits des ajustements de $\Delta v/v$ par le modèle de susceptibilité dynamique. Les barres d'erreurs sur chacun des paramètres sont estimées comme suit : on fait varier un paramètre unique jusqu'à obtenir une augmentation de 30 pourcents de l'erreur quadratique moyenne de l'ajustement, par rapport à l'ajustement optimal. On ne trace pas les paramètres à $p = 0.174$ et $p = 0.185$, les valeurs correspondantes sont très proches de $p = 0.168$. Puisque à $p = 0.188$ aucun minimum n'est apparent dans $\Delta v/v(T)$ il n'est pas raisonnable d'extraire E_0 (et ΔE_0). La variation en champ magnétique apparemment faible à $p = 0.122$ est uniquement due à l'échelle logarithmique.

L'évolution en dopage de la dépendance en champ magnétique de E_0 et C_{curie} est résumée sur la figure 6.25. Pour tous les dopages E_0 et C_{curie} augmentent avec B. En fonction du dopage ces deux paramètres connaissent une forte décroissance, en particulier pour $0.122 < p < 0.148$. Pour $p = 0.188$ où seulement C_{curie} peut être extraite du fait de l'absence d'un minimum de vitesse du son, on trouve une valeur très faible. Ce qu'il est également important de noter ici est qu'à tous les dopages on trouve des paramètres qui ne saturent pas pour $B > B_{c2}$, B_{c2} étant estimé par les mesures de transport électrique (voir annexe A). C'est particulièrement clair pour $p = 0.122$ où aucune saturation n'est apparente jusqu'à $B = 60$ T $\gg B_{c2}(0) \simeq 24$ T.

6.4 Discussion

Cette étude ultrasonore a permis de montrer qu'en champs magnétiques intenses, et à basse température, le verre AF de LSCO disparaît pour $0.188 \leq p \leq 0.215$, une valeur compatible avec p^* [44]. Une manière de le visualiser est de tracer T_{min}, la température du minimum dans la vitesse du son en fonction du dopage pour différents champs magnétiques, comme effectué sur la figure 6.26. T_{min} n'est pas strictement la température de gel des spins mais suit sa dépendance en dopage et doit être considéré comme un précurseur proche au gel. Le champ magnétique a un effet important de part la compétition entre verre AF et supraconductivité et permet, lorsqu'il est suffisamment fort, de faire coïncider le dopage critique du verre AF, p_{SG}, avec p^*. On observe donc, en champs magnétique intenses, une transition de phase quantique, à p^*. Un effet du champ magnétique est évident, pour tous les dopages étudiés, au delà de B_{c2} estimé d'après les mesures de transport (voir annexe A), et même pour $T > T_c$ lorsque $p \simeq 0.12$. Pour mieux comprendre ces effets une description profonde de l'effet du champ magnétique sur le verre AF, une meilleure connaissance de B_{c2} et de l'importance des fluctuations supraconductrice est nécessaire.

Ces résultats ont des implications originales et importantes, notamment concernant des études remarquables reportées récemment dans LSCO et d'autres cuprates :

— Premièrement ce qui semble différencier le pseudogap du métal plus conventionnel pour $p > p^*$ est donc la capacité à supporter une phase verre AF à basse température. La localisation observée par effet Hall de un trou par atome de cuivre dans la phase pseudogap en champs magnétiques intenses, dans YBCO [41] et Nd-LSCO [42], pourrait en être une autre signature. La transition $p \longrightarrow 1+p$ de l'effet Hall, puisqu'elle est obtenue pour $B > B_{c2}$, il est raisonnable de penser qu'elle soit liée aux corrélations statiques AF observées par ultrasons dans LSCO.

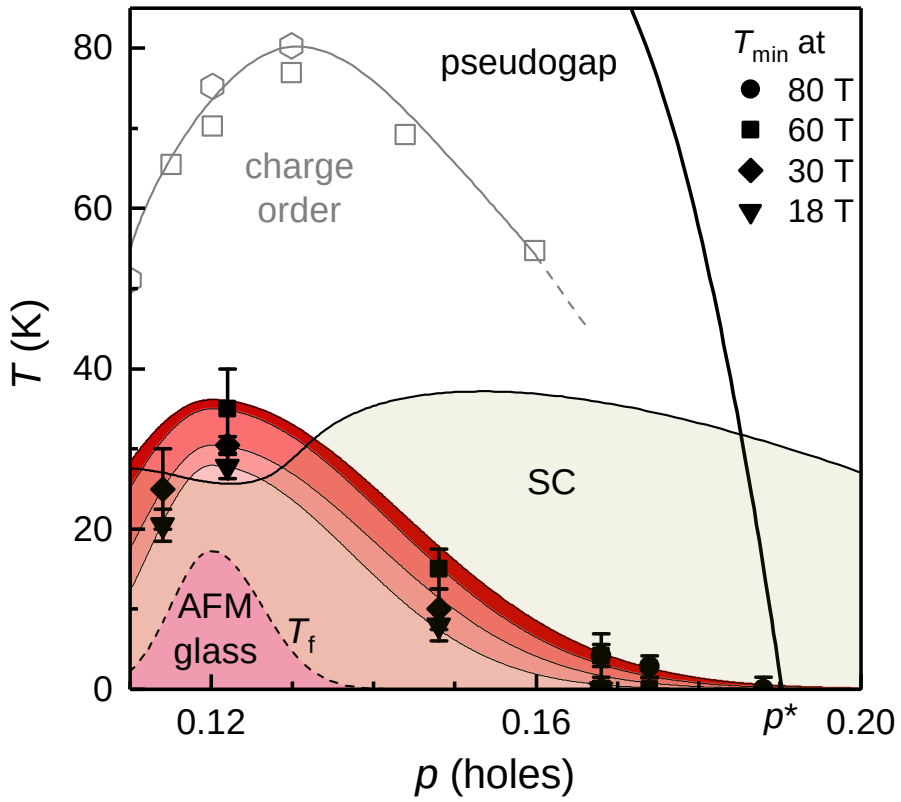

FIGURE 6.26 – Diagramme de phase température - dopage de LSCO. T_{min} marque le minimum de vitesse du son en champ magnétique. La ligne T_f pointillée modélise la température du gel des fluctuations de spins à l'échelle d'énergie de la RMN, la μSr et la NQR (typiquement le μeV, voir référence [100]). La température critique de l'ordre de charge est déterminée en rayons-x par les références [71] (pentagones) et [72] (carrés). La ligne noire correspond à T^* et s'annule à $p^* \simeq 0.19$ [44]. Toutes les lignes sont des guides à l'œil.

Alors on doit conclure qu'il peut exister une transition bien marqué à p^* en champs intenses (ou non) sans pour autant signifier que le pseudogap soit lui même un état ordonné. Au jour d'aujourd'hui cette transition dans l'effet Hall n'a cependant pas été observée dans LSCO, mais dans son proche cousin Nd-LSCO [42].

— Ensuite les signatures de criticalité quantique observées dans Nd-LSCO par chaleur spécifique [138], pourraient également être expliquées par la présence d'un verre AF à p^* dans ce composé. À champ magnétique nul les mesures de diffraction des neutrons montrent l'existence de corrélations AF quasi-statiques jusqu'à $p = 0.20$ avec une température critique qui s'extrapole naturellement à p^* [62]. Il est donc probable qu'en présence de champ magnétique intense, *i.e.* dans les mêmes conditions que les mesures de chaleur spécifique, des corrélations statiques existent jusqu'à p^*. Une conclusion alternative crédible de ces mesures est donc que la criticalité quantique de Nd-LSCO à p^* provient du verre AF et non du pseudogap lui même.

— Une autre observation récente particulièrement intéressante, cette fois directement dans LSCO, et en champs magnétiques intenses, est celle d'un effet Hall thermique important (et négatif) [197]. Puisque cet effet est observé le plus intensément dans les différents composés parents des cuprates il est naturellement relié à l'antiferromagnétisme, mais semble-t-il pas un état "classique" de Néel. Ces résultats et ceux d'ultrasons vont donc tous deux dans le sens d'une disparition d'une certaine forme d'antiferromagnétisme à p^*, mais un lien plus étroit reste à établir.

Au delà de ces implications, certaines mises en garde doivent être faites. La persistance du verre AF peut à priori paraître très séduisante en rapprochant LSCO, et donc les cuprates, d'autres systèmes comme les supraconducteurs organiques ou les pnictides, dans lesquels un point critique quantique AF est certainement à l'origine de la supraconductivité. Néanmoins il faut être ici très prudent. Un aspect majeur des signatures recensés ici jusqu'à p^* est leur caractère vitreux, qui n'est pas observé dans les autres familles mentionnées. Bien que le taux précis de désordre ne semble pas modifier significativement la température de gel des fluctuations magnétiques, rien ne dit qu'en l'absence de désordre le verre AF survivrait sous la forme d'un antiferromagnétisme plus conventionnel. Les résultats de μSR suggèrent que ce ne soit pas le cas [118]. Alors, bien que l'on observe très certainement une transition de phase quantique à p^* en champs magnétiques intenses, la criticalité quantique associée pourrait être *à priori* différente de celle "classique" en l'absence de comportement vitreux, *i.e.* en présence d'une véritable transition de phase du second ordre.

Il est également important de rappeler ici que Panagopoulos et collaborateurs ont également obtenus un résultat qualitativement similaire par μSR avec une méthode très différente : l'ajout d'impuretés non magnétiques (Zn) dans LSCO [118]. Avec cette méthode ils ont également observé que le magnétisme statique de $La_{2-x}Sr_xCu_{1-y}Zn_yO_4$ disparaît précisément à p^*. Cette dernière étude est néanmoins controversé puisque d'autres mesures utilisant la même sonde expérimentale et la même méthode semblent indiquer qu'il est possible d'induire un gel de spin au delà de p^* [198]. Au delà même de cette controverse l'utilisation d'un champ magnétique intense permet de tirer des conclusions plus importantes. Il existe une clair anisotropie dans l'effet du champ (voir figure 6.17) qui n'induit le verre AF que pour $B \parallel c$, montrant que cette phase n'apparaît que parce que la supraconductivité est détruite, ou du moins suffisamment affaiblie. Avec l'ajout d'impuretés on pouvait jusqu'à présent craindre que ce ne soit qu'un effet intrinsèque, et non un effet indirect des impuretés via l'affaiblissement de la supraconductivité. Dans ce contexte le résultat en champ magnétique intense a des répercussions bien plus profondes aux cuprates, qui tous partagent la même supraconductivité.

Finalement jusqu'à présent on a plus ou moins ignoré la présence d'ordre de charge. Il n'y a aucune évidence directe d'ordre de charge dans les données expérimentales d'ultrasons de LSCO. Néanmoins on doit bien garder en tête que dans ce composé l'ordre de charge, au moins pour $p \sim 0.12$ semble promouvoir le verre AF, qui apparaît seulement à plus basse température. Une possibilité que l'on ne peut donc pas exclure est qu'en appliquant des champs magnétiques intenses on induit à nouveau l'ordre de charge et que l'on n'observe que sa conséquence, le verre AF. Notons néanmoins que pour $p \lesssim 0.08$ le verre AF existe en l'absence de l'ordre de charge, aussi bien dans LSCO que YBCO [95, 100].

6.5 Questions en suspens

Ce chapitre soulève un très grand nombre de questions, en voici quelques-unes :

1. La phase verre AF survit-elle également jusqu'à p^* dans YBCO et en champs magnétiques intenses ? Ou bien la compétition entre ordre de charge et de spin dans ce composé l'en empêche-t-elle ?

2. Est-il possible d'atteindre le gel des fluctuations de spins à la fréquence ultrasons pour $p = 0.188$?

3. Quelle est l'origine de l'hystérésis à $p = 0.174$? Peut-on la reproduire avec d'autres sondes expérimentales ?

4. D'où la variation en B^2 de $\Delta v/v$ à $p = 0.215$? Ce comportement est-il générique aux dopages $p > p^*$?

5. Quelle est la nature de la transition observée à $p = 0.170$ dans le mode c_{11} (voir annexe B) ? Y a-t-il une signature associée en aimantation par exemple ?

Chapitre 7

Ordre de charge 3D de Y-123 sondé par vitesse du son

Le travail principal de cette thèse a été consacré à LSCO. Une autre partie du travail, notamment en début de thèse, a été dédiée à l'étude de l'ordre de charge dans $YBa_2Cu_3O_y$ (Y-123).

L'ordre de charge est maintenant établi comme un phénomène générique aux cuprates dopés en trous. En particulier il a été observé dans les composés Bi-2212 et Bi-2201 [74, 76, 77], LSCO et les composés proches dopés aux terres rares [59, 71, 101], Hg-1201 [199] et $YBa_2Cu_3O_y$ (Y-123) [4, 6, 85, 86]. En conséquence une connaissance profonde de cet ordre est nécessaire, notamment concernant son rôle dans la physique du pseudogap et son intéraction avec la supraconductivité. Dans Y-123, considéré comme le plus propre des cuprates, la situation est très intéressante puisque deux ordres de charges (ODC) distincts apparaissent dans une région commune du diagramme de phase : l'ODC 2D et 3D que nous avons décrit dans le chapitre 1.

Dans ce chapitre on propose d'utiliser la vitesse du son pour en apprendre plus sur le rôle de l'ordre de charge dans le diagramme de phase de Y-123. Dans un premier temps l'on va rappeler rapidement les spécificités de ce composé en terme de structure cristalline, de dopage, et donner les caractéristiques des échantillons ici étudiés. Ensuite, en se basant sur la publication [88], l'on décrit les limites de l'ODC 3D dans le diagramme de phase de Y-123, et le lien entre cet ordre et la reconstruction de la surface de Fermi vue, par exemple, par un changement de signe de l'effet Hall. Enfin les mesures de vitesse du son à champ nul permettent d'extraire la susceptibilité en déformation de la température critique supraconductrice, $\mathrm{d}T_c/\mathrm{d}\epsilon_i$. On termine donc par décrire la dépendance en dopage complexe et anisotrope de $\mathrm{d}T_c/\mathrm{d}\epsilon_i$ qui pourrait trouver son origine dans l'interaction entre ODC(s) et supraconductivité.

7.1 Caractéristiques des échantillons de Y-123

On commence ce chapitre par une description brève des spécificités de $YBa_2Cu_3O_y$ (Y-123) en termes de structure cristalline et dopage. Les caractéristiques des différents échantillons étudiés dans ce chapitre sont également renseignées.

7.1.1 Structure cristalline et dopage

La structure cristalline de Y-123 est décrite sur la figure 7.1. La cellule unité contient deux plans CuO_2, mais également, et là est la particularité de ce cuprate, des chaines CuO qui courent le long de l'axe b de la structure cristalline. Le dopage est ici effectué en insérant des atomes d'oxygènes dans les chaînes CuO. En augmentant y, la concentration en oxygène, on retire des électrons (ajoute des trous) aux atomes de cuivre, aussi bien des plans CuO_2 que des chaines elles mêmes. Lorsque les chaînes sont vides, et plus largement tant que $y < 6.4$, la structure est tétragonale. Pour une concentration supérieure en oxygène la structure devient orthorhombique ce qui produit notamment une anisotropie dans les mesures de transport. Si aucune précaution particulière n'est prise les échantillons de Y-123 sont maclés : des domaines se forment avec une alternance des axes a et b de la structure orthorhombique. En appliquant une pression uni-axiale le long de l'un de ces axes à haute température, lorsque les oxygènes peuvent diffuser dans la structure, il est néanmoins possible de démacler les échantillons en favorisant l'un des deux domaines.

Cette méthode de dopage rend intrinsèquement ce composé particulièrement propre parmi les cuprates. Elle ne repose pas sur une substitution chimique aléatoire mais sur l'insertion d'atomes supplémentaires dans la structures qui s'ordonnent. Les chaines CuO forment en effet des superstructures appelées O-I, O-II, O-III, O-V, O-VIII, etc. selon la périodicité le long de l'axe a. Différentes superstructures sont visibles sur la figure 7.2. Deux échantillons de Y-123 présentant la même concentration en oxygène, y, mais un agencement différents des chaines CuO ont des valeurs de T_c et donc de dopages différentes. En d'autres termes il n'existe pas de relation univoque entre dopage et concentration en oxygène. Néanmoins il en existe une entre dopage et hauteur de la cellule unité selon (001), notée c par la suite. R. Liang et collaborateurs ont mesurés dans les mêmes échantillons T_c et c permettant ainsi d'extraire le dopage des échantillons à partir de T_c [201]. C'est la méthode que nous utiliseront dans la suite pour déterminer le dopage des échantillons.

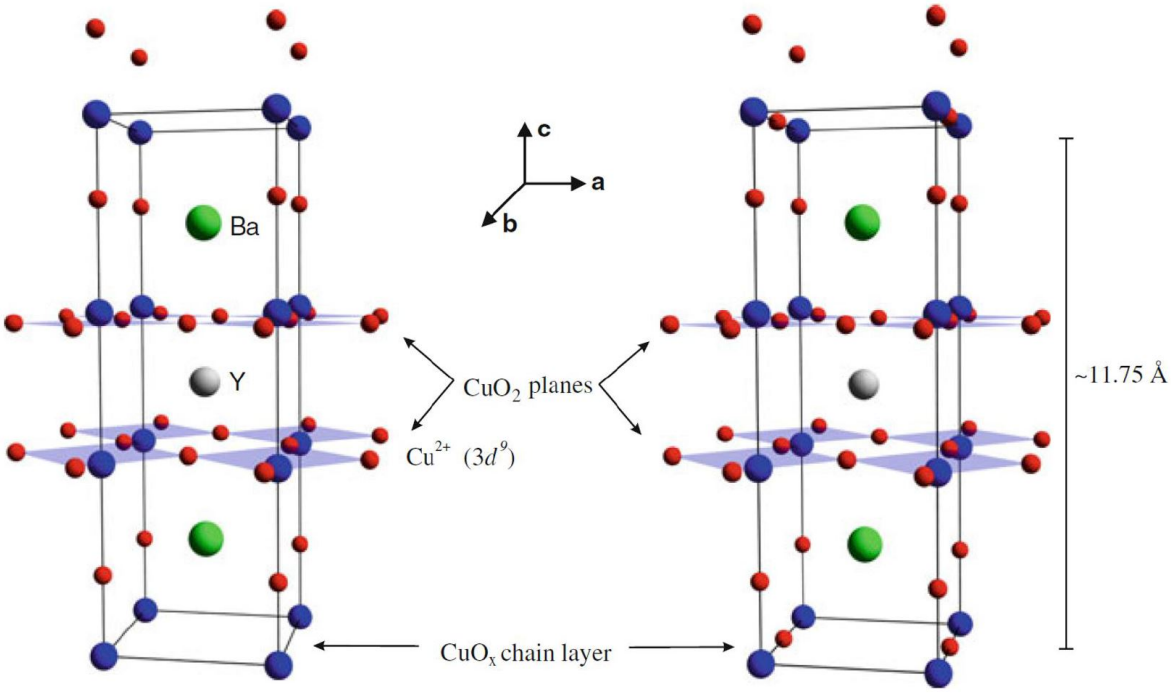

FIGURE 7.1 – Structure cristalline de $YBa_2Cu_3O_y$. Figure reproduite d'après la thèse [200]. $YBa_2Cu_3O_6$ correspond au cas de gauche où les chaines CuO_x sont vides en oxygènes, la structure est alors tétragonale. $YBa_2Cu_3O_7$ à celui de droite où les chaines sont remplies d'oxygènes, lequel dope les cuivres en trous du fait de son électronégativité, aussi bien des chaines elles mêmes que des plans CuO_2. La structure est alors orthorhombique. Une oxygénation complète correspond (seulement) à un dopage proche de l'optimal.

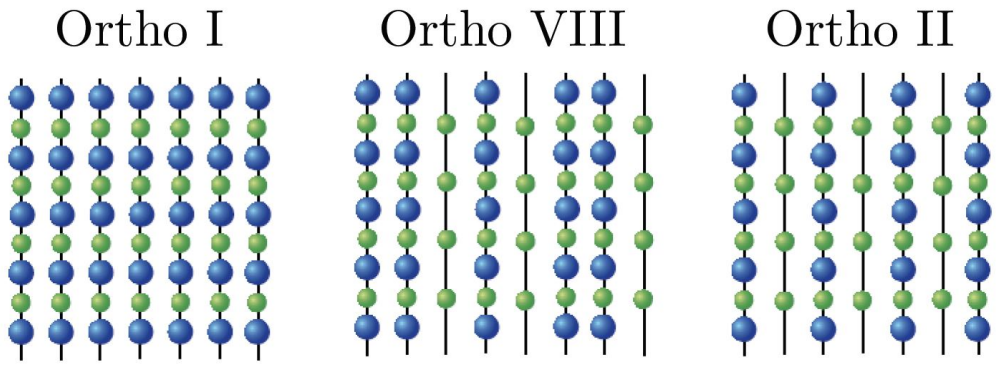

FIGURE 7.2 – Superstructures des chaînes CuO dans Y-123. L'axe b de la structure cristalline est ici vertical. Chaque superstructure a une périodicité différente selon l'axe a. Ortho-I est obtenu pour $y > 6.9$, ortho-VIII pour $y \sim 6.67$ et ortho-II pour $y \sim 6.5$. A l'exception notable de ortho-II les superstructures sont essentiellement 2D [120].

y	T_c(K)	p	superstructure	dT_c/dϵ_1 (K)	dT_c/dϵ_2 (K)
6.45	34.0	0.071	O-II	-	0 ± 60
6.48	55.7	0.095	O-II	-	357 ± 15
6.51	60.0	0.106	O-II	0 ± 40	450 ± 80
6.55	62.0	0.110	O-II	0 ± 40	514 ± 84
6.67	65.2	0.118	O-VIII	-	-
6.67	67.3	0.122	O-VIII	470 ± 80	755 ± 140
6.75	76.6	0.134	O-III	685 ± 155	800 ± 190
6.79	82.0	0.139	O-III	531 ± 137	512 ± 113
6.87	92.3	0.154	O-I	0 ± 30	397 ± 109

Table 7.1 – Caractéristiques des échantillons de Y-123 : concentration en oxygène y, température critique supraconductrice T_c, dopage en trous p, superstructure stable des chaines CuO et susceptibilités en déformations selon l'axe a, dT_c/dϵ_1, et b, dT_c/dϵ_2. Les deux dernières quantités sont discutées en 7.3. À noter que pour $y = 6.67$ deux échantillons de T_c et donc dopages différents ont été mesurés.

7.1.2 Échantillons étudiés

Les échantillons ici étudiés sont des monocristaux démaclés de Y-123, synthétisés à partir de poudres de grande puretés par T. Loew et J. Porras (Max Planck Institute, Stuttgart). Des détails sur leur préparations et caractérisations sont décrits dans les références [84, 86, 202]. Pour chaque échantillon les chaines CuO sont dans la superstructure stable au regard de la concentration en oxygène. Les caractéristiques des différents échantillons sont présentés dans le tableau 7.1.

7.2 Ordre de charge 3D au travers du diagramme de phase

Dans Y-123 des mesures systématiques de diffraction des rayons-x durs [87] et de diffusion résonnante de rayons-x [86] ont permis de restreindre le domaine d'existence de l'ODC 2D à $0.08 \leq p \leq 0.16$. Dans la même gamme de dopage l'effet Hall change de signe pour devenir négatif à basse température, un comportement qui a été relié à une reconstruction de la surface de Fermi [81, 83], qui devient alors de type électron. L'ordre de charge 2D, bi-axial, est un candidat sérieux pour expliquer cette reconstruction. Les vecteurs de modulations pourraient permettre de connecter les arcs de Fermi entre eux [79] et induire 4 petites poches d'électrons dans la première zone de Brillouin, expliquant par la même occasion les oscillations quantiques de petite fréquence [80]. Néanmoins l'ODC 3D, avec ces longueurs

de corrélations bien plus importantes [85, 92] est *à priori* plus à même d'influencer les quasi-particules. L'origine de cette reconstruction reste donc une question ouverte, tout spécialement dans Y-123.

Le lien entre les deux ordres de charges de Y-123 reste encore également à établir. Alors que l'ODC 2D est bi-axial, l'ODC 3D est lui uni-axial, mais les deux partagent un même vecteur d'onde selon l'axe b. Il semble alors que les deux sont intimement liés, mais bien distincts. Il a par exemple été proposé une coexistence inhomogène entre les deux qui dépend du niveau de désordre local [91]. La localisation exacte de l'ODC 3D dans le diagramme de phase, et la comparaison avec celle de la version 2D, doit permettre de mieux comprendre cette interaction. Cette localisation est également d'importance car dans les scénarios d'un pseudogap en tant que précurseur nématique de l'ordre de charge [203, 204] ou en tant que fluctuations d'ordre de charge [89, 90], on s'attend à observer l'ordre de charge jusqu'à $\sim p^*$.

Dans cette seconde partie on propose de poursuivre l'ODC 3D au travers du diagramme de phase de Y-123 en utilisant la vitesse du son pour amener de nouveaux éclairages sur ces deux questions : l'origine de la reconstruction de la surface de Fermi et le lien avec le pseudogap.

7.2.1 Signatures de l'ODC 3D dans la vitesse du son

Commençons par décrire les signatures expérimentales de l'ODC 3D sur la vitesse du son. Tout d'abord sur la dépendance en température, puis en fonction du champ magnétique. On va se concentrer sur le mode acoustique c_{22} qui correspond à une onde longitudinale suivant l'axe b de la structure cristalline. C'est dans ce mode que les anomalies sont les mieux définies. On reviendra sur ce point dans la section 7.3.

Dépendance en température

Sur la figure 7.3 on trace $\Delta v/v(T)$ dans le mode c_{22} pour $B = 30$ T $\parallel c$. Pour ce champ magnétique et pour les différents dopages ici discutés, $p = 0.106, 0.110$ et 0.122, l'état normal, *i.e.* en l'absence de supraconductivité jusqu'à $T = 0$, doit être atteint [49, 205, 206]. En conséquence la supraconductivité ne joue aucun rôle. La transition de phase du second ordre responsable du saut dans la constante élastique c_{22} est liée à l'émergence de l'ODC 3D. C'est la première signature d'une transition de phase du second ordre dans une sonde thermodynamique. La transition est mieux observée à $p = 0.106$ et $p = 0.110$, où un saut de champ moyen associé à la relation de Ehrenfest 3.34 est bien observé, qu'à $p = 0.122$ où seul un durcissement est visible sous la transition. Ce changement de comportement

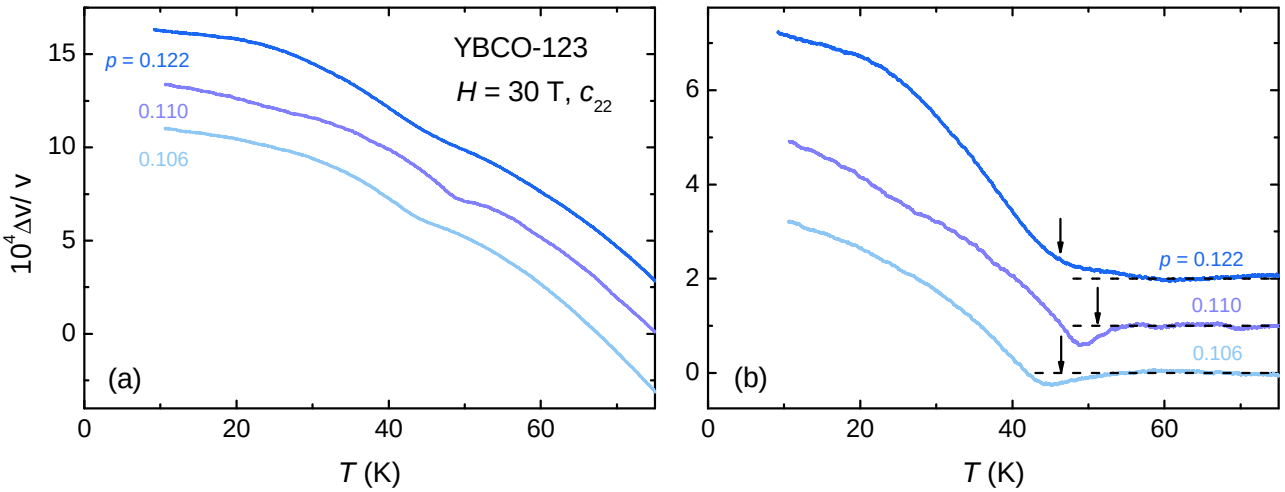

FIGURE 7.3 – Dépendance en température de la vitesse du son dans le mode c_{22} pour différents dopages et un champ magnétique appliqué $B = 30$ T $\parallel c$. (a) $\Delta v/v$ en fonction de T, une anomalie est surimposée à la variation du réseau. **(b)** Mêmes courbes après soustraction de la composante du réseau d'après un ajustement par la formule 3.20 pour $T \gtrsim 60$ K. Un saut champ moyen est clairement observé à $p = 0.106, 0.110$ mais est visiblement trop faible à $p = 0.122$ pour être résolu. Les flèches indiquent la température de transition, en dessous de laquelle l'ODC 3D émerge.

coïncide avec le changement de superstructure, de O-II à O-VIII.

Une transition bien marquée est d'un point de vu théorique quelque peu étonnante puisqu'il est attendu qu'une onde de densité de charge incommensurable et de longue porté, comme c'est le cas ici, ne puisse pas se développer en présence d'un désordre fini. Néanmoins même en présence d'un désordre fini on s'attend à voir expérimentalement un changement de comportement au travers de la température (et du champ magnétique) critique déterminée dans les théories de champ moyen en l'absence de désordre [207], d'autant plus marqué que le désordre est faible. Les longueurs de corrélations dans le plan plus grandes pour O-II que O-VIII [120], et donc le niveau de désordre moins important, peuvent alors expliquer la transition plus marquée pour cet ordre des chaines CuO. Il est également envisageable que l'absence de corrélations selon l'axe c pour toute autre superstructure que O-II [120] rende alors la transition moins bien définie.

Dépendance en champ magnétique

On se tourne maintenant vers le comportement de cette même constante élastique c_{22} en fonction du champ magnétique. On explique tout d'abord la phénoménologie sur l'exemple de Y-123 $p = 0.122$ à $T = 25$ K, reporté sur la figure 7.4. À faible champ magnétique, dans la phase de vortex solide (et ancrés au réseau cristallin), on observe une augmentation de $\Delta v/v$ causée par l'augmentation parallèle

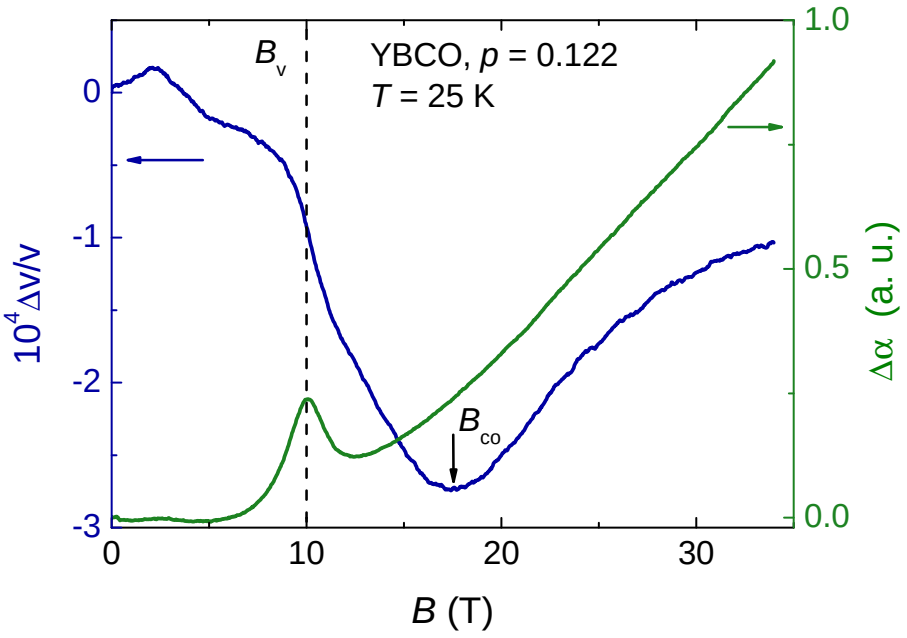

FIGURE 7.4 – Signatures ultrasonores de la transition vers l'ordre de charge 3D dans Y-123 $p = 0.122$ **pour le mode** c_{22} **et** $T = 25$ **K.** À $B_{co}(T)$, le champ seuil pour la transition vers l'ordre de charge longue porté, $\Delta v/v$ (échelle de gauche, ligne bleue) montre un minimum. $\Delta\alpha$ (échelle de droite, ligne verte) ne montre alors aucune anomalie. La ligne pointillée verticale indique la transition de désancrage du réseau de vortex qui s'accompagne d'un pic d'atténuation et d'une chute de vitesse du son pour $B = B_v$. Une description complète se trouve dans le texte principal.

de la constante élastique c_{11}^v du réseau de vortex. En augmentant encore le champ magnétique $\Delta v/v$ commence par diminuer relativement faiblement puis connait une forte chute pour $B_v \simeq 10$ T. Cette chute est accompagnée par un pic d'atténuation. C'est la transition de désancrage discutée en 3.4. Pour $B > B_v$ la vitesse du son continue de diminuer, un effet attendu à cause de la destruction de la supraconductivité. Parallèlement $\Delta\alpha$ varie en B^2, un comportement imputable à l'effet Alpher-Rubin. Pour $B_{co}(T) \simeq 17.5$ T $\Delta v/v$ marque un minimum prononcé, c'est la transition vers l'ordre de charge 3D longue porté [4]. Aucune signature n'est visible dans l'atténuation. Pour cette dernière transition une anomalie dans la vitesse du son a été observée dans plusieurs modes acoustiques, les modes longitudinaux dans le plan selon a (c_{11}) et b (c_{22}), mais également dans les modes transverse c_{66} et c_{44}. Ces deux derniers correspondent à une onde transverse avec une propagation suivant l'axe a et une polarisation suivant, respectivement, les axes b et c de la structure cristalline.

Sur la figure 7.5 on montre maintenant $\Delta v/v$ en fonction de B pour différentes températures 9.8 K $< T <$ 29.7 K. Pour chaque température, exceptée $T = 9.8$ K on est à même de déterminer $B_{co}(T)$. Pour $T = 9.8$ K la chute de vitesse du son causée par la transition de désancrage des vortex se produit précisément lors de la transition vers l'ordre de charge 3D et le minimum dans $\Delta v/v$ n'est

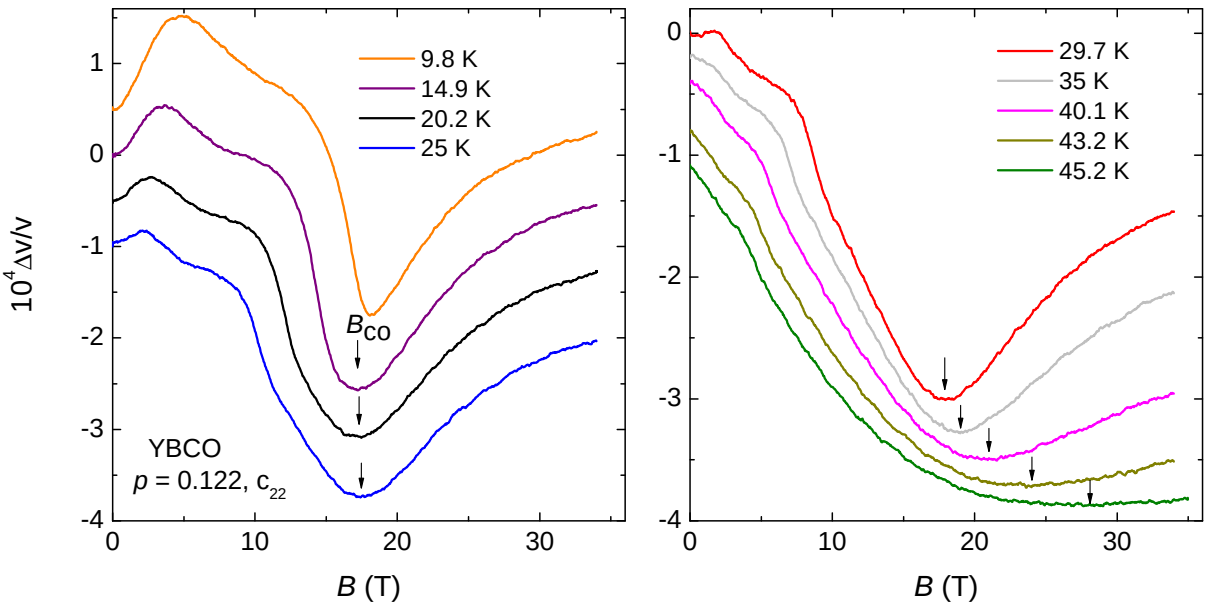

FIGURE 7.5 – Vitesse du son en fonction du champ magnétique à différentes températures dans Y-123 $p = 0.122$ et le mode c_{22}. Le comportement de $\Delta v/v(B)$ est expliqué dans le texte principal. Les flèches indiquent $B_{co}(T)$, le champ de transition vers l'ordre de charge longue porté, qui marque un minimum dans la vitesse du son. À $T = 9.8$ K le minimum est relié à l'émergence de l'ODC 3D mais également à la transition de désancrage du réseau de vortex (trop) proche.

plus un bon critère pour déterminer le champ de transition. Dans cette situation on peut tout de même déterminer $B_{co}(T)$ en utilisant un mode acoustique très peu couplé aux vortex, c_{66}, mais qui est aussi moins sensible à la transition vers l'ordre de charge.

7.2.2 Diagramme de phase d'ordres en compétitions

Les mesures de vitesse du son décrites dans la section précédente permettent de déterminer le diagramme de phase champ magnétique - température de la figure 7.6. Il peut être interprété comme suit. Pour des champs magnétiques suffisamment importants ($B > B_{c2}$) la température critique de l'ordre de charge 3D est indépendante du champ magnétique. On appel cette température T_{co}. Néanmoins pour des champs inférieurs la supraconductivité freine la transition vers l'ordre de charge 3D et alors il existe un champ magnétique seuil à dépasser pour induire cet ordre à longue porté. Pour la suite ce champ magnétique seuil est noté $B_{co} = B_{co}(T \longrightarrow 0)$. Des diagrammes de phase très similaires ont été déduits de l'effet Seebeck [208] et de mesures de rayons-x [209].

Ce type de diagramme de phase est donc caractéristique de celui d'ordres en compétitions, en l'occurrence l'ordre de charge longue porté et la supraconductivité. Des calculs théoriques dans le cadre

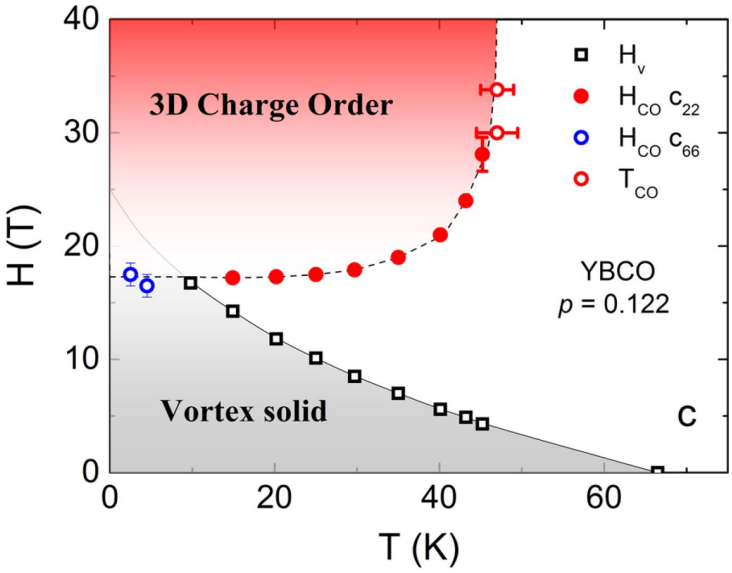

FIGURE 7.6 – Diagramme de phase champ magnétique - température de Y-123, $p = 0.122$**.** H_v réfère à la transition de désancrage du réseau de vortex et est déterminé par une chute de $\Delta v/v$. $H_{co}(T)$ marque la transition vers l'ordre de charge 3D, et est déterminé par un minimum de $\Delta v/v$ dans le mode c_{22} (ronds rouges) ou une anomalie reliée dans le mode c_{66} (ronds vides bleus). T_{co} est déterminé par des dépendances en températures pour $B > B_{c2}$, un exemple est visible sur la figure 7.3.

d'un modèle sigma non linéaire [210] permettent, lorsque l'effet du désordre a été pris en compte [207, 211], de reproduire l'allure du diagramme de phase. Dans ce type de modèle les paramètres d'ordres supraconducteurs et de l'onde de densité de charge sont tous deux pris en compte, ainsi que leur interaction et fluctuations respectives. Néanmoins dans le cadre du modèle sigma non linéaire le champ magnétique induit un changement graduel de l'ordre de charge 2D vers sa version 3D [210], ce qui est en désaccord avec les mesures expérimentales qui trouvent une réelle transition de phase [4, 212] et une coexistence à basse température et fort champ magnétique.

7.2.3 Limites de l'ODC 3D

Sur la figure 7.7 on trace pour tous les dopages la vitesse du son à $T = 20$ K en fonction du champ magnétique. Un minimum dans la vitesse du son est visible pour tous les dopages, exceptions au deux extrêmes $p = 0.071$ et $p = 0.154$. Pour ces deux derniers dopages le comportement de $\Delta v/v$ reflète seulement la transition de désancrage des vortex et la destruction de la supraconductivité. Puisque ce constat est également valable pour $T < 20$ K [88] on en conclut que l'ODC 3D n'existe plus à ces dopages.

Le diagramme de phase température - dopage montrant $T_{co}(p)$ est reporté sur la figure 7.8. La

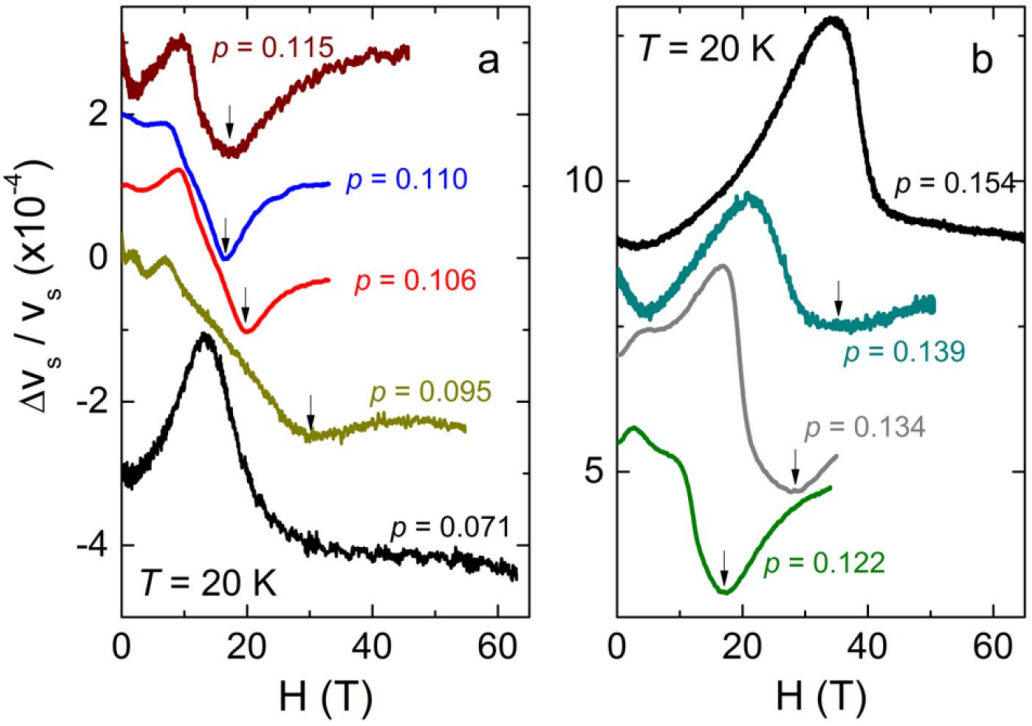

FIGURE 7.7 – Vitesse du son en fonction de B pour $T = 20$ K à différents dopages dans le mode longitudinal c_{22}. Pour $0.095 < p < 0.139$ un minimum à $B_{co}(T)$ signale la transition vers l'ODC 3D. Il n'existe plus à $p = 0.071$ et $p = 0.154$ indiquant l'absence de transition. En plus de ce minimum on observe, et cela pour tous les dopages, l'influence des vortex et de la supraconductivité.

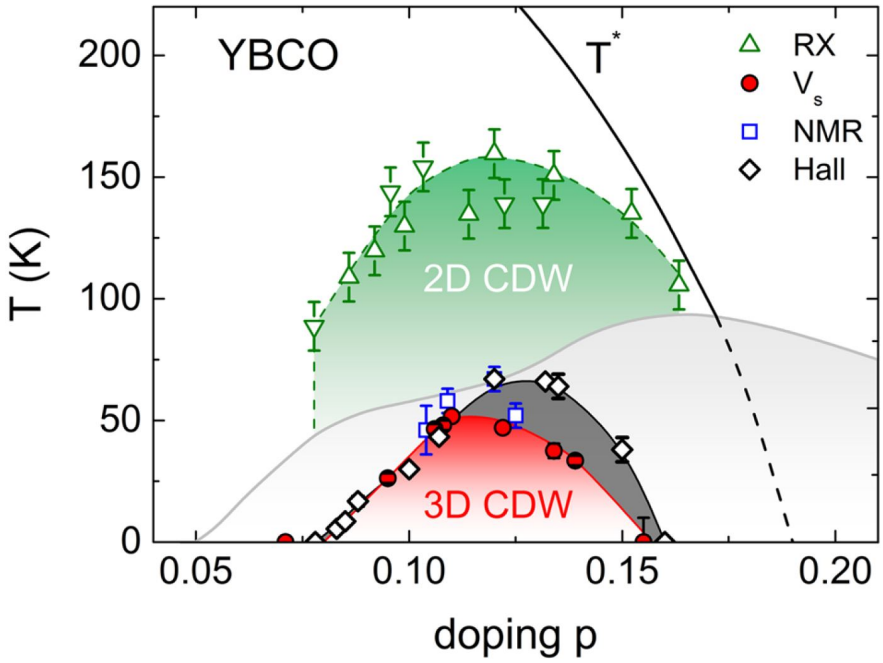

Figure 7.8 – Diagramme de phase des ordres de charges dans Y-123. La température de l'ODC 2D est extraite des mesures de diffraction des rayons-x [86] (triangles verts vers le bas) et de rayons-x résonnants [87] (triangles verts vers le haut). La température de l'ODC 3D est déduite de RMN [6, 202] (carrés bleus) et vitesse du son (ronds rouges). Les losanges gris indiquent la température du changement de signe dans l'effet Hall, signature d'une reconstruction de la surface de Fermi [81, 83]. Finalement la ligne noire indique T^* qui s'extrapole à $p^* \simeq 0.19$.

première conclusion est que le domaine d'existence de l'ODC 3D est similaire à celui de l'ODC 2D. Cela renforce l'idée d'un lien intime entre ces deux ordres, l'ordre de charge longue porté ne semble pas pouvoir exister sans sa version courte portée. Les deux ODC ont d'ailleurs une température seuil maximale à $p \simeq 0.12$. Sur cette même figure l'on compare T_{co} à la température à laquelle un changement de signe se produit dans l'effet Hall, signature de la reconstruction de la surface de Fermi [81, 83]. Alors que pour $p \leqslant 0.11$ ces deux températures sont très proches, pour $p \geq 0.11$ le changement de signe dans l'effet Hall se produit à des températures significativement plus importantes que la transition vers l'ordre de charge 3D. On souligne cela sur la figure 7.9 en comparant directement à $p \simeq 0.12$ les données expérimentales. Le changement de signe dans l'effet Hall se produit alors 20 K au dessus de la transition vers l'ordre de charge. Cela met très sérieusement en doute, au moins pour $p > 0.11$, une reconstruction de la surface de Fermi causée l'ODC 3D.

Sur la figure 7.10 on compare maintenant B_{co} déterminé par ultrasons et la même quantité déterminée par rayons-x [209] ou RMN [6, 213], avec B_{c2} déterminé par transport et conductivité thermique [49]. B_{co} déterminé par vitesse du son est en accord avec celui déterminé rayon-x [91, 92, 209] et effet

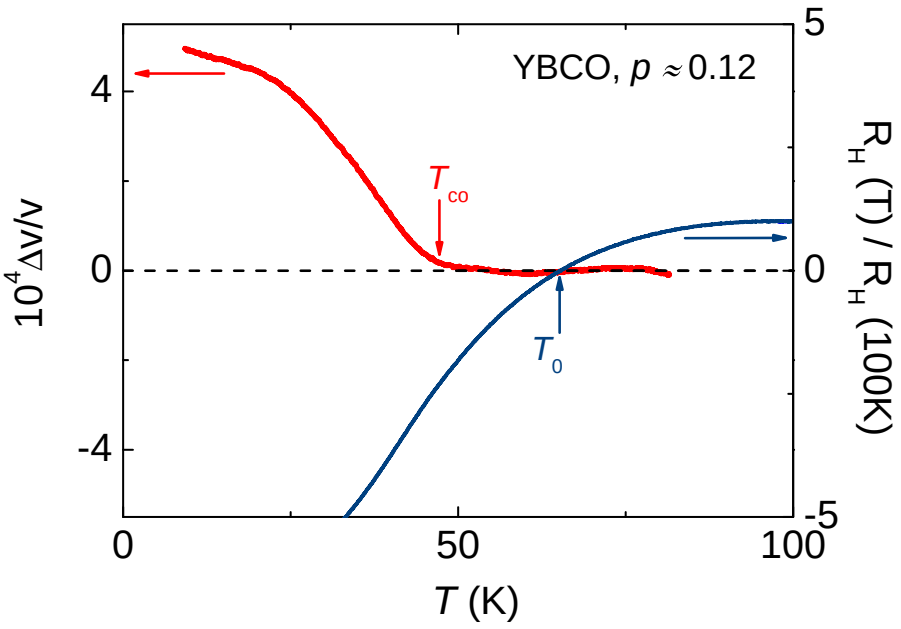

FIGURE 7.9 – Comparaison entre l'effet Hall et la vitesse du son dans Y-123, $p \simeq 0.12$**.** R_H est extrait de la référence [81] à $p = 0.12$ et $B = 45$ T. $\Delta v/v$ provient du mode c_{22} à $B = 30$ T dans l'échantillon de dopage $p = 0.122$, la contribution du réseau est soustraite. Le dopage très similaire et l'absence de dépendance en champ de l'effet Hall entre 30 T et 45 T à ce dopage [81] rend la comparaison signifiante.

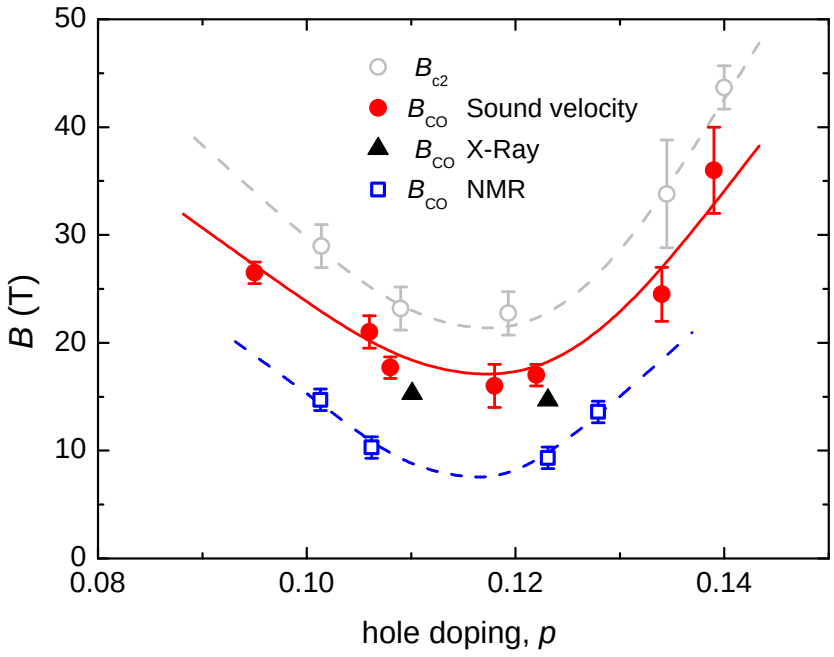

FIGURE 7.10 – Champ seuil pour induire l'ordre de charge 3D en fonction de p**.** Les ronds rouges correspondent aux champs déterminés par ultrasons et discutés dans le texte principal. B_{co} peut également être déterminé par rayon-x comme étant le champ au dessus duquel une intensité quasi-élastique non nulle est détectée ([209], triangles noirs), mais également par RMN lorsque qu'un dédoublement des raies Cu2F apparaît ([6, 213], carrés bleus). Les lignes sont des guides à l'œil. Celle rouge associée aux données de vitesse du son est simplement déduite de la ligne pointillée grise de B_{c2} par un facteur 0.8.

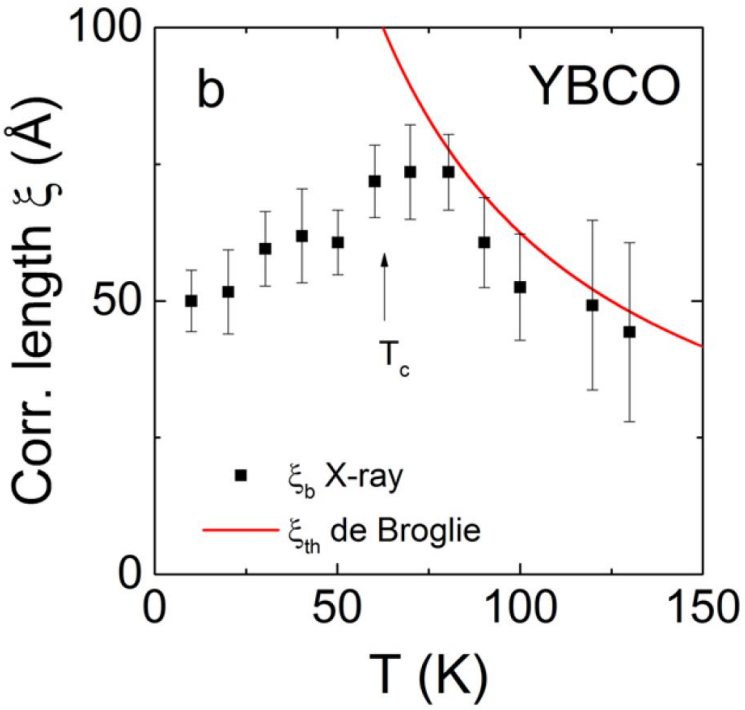

FIGURE 7.11 – Comparaison de la dépendance en température de la longueur thermique de De Broglie, ξ_{th}, et de la longueur de corrélation de l'ordre de charge 2D, $\xi_{co,2D}$, dans YBCO ortho-II. La détermination de ξ_{th} est décrite dans le texte principal, pour $\xi_{co,2D}$ on utilise l'étude [86]. Ces deux longueurs sont très proches jusqu'à T_c, puis $\xi_{co,2D}$ décroit à cause de la compétition avec la supraconductivité.

Seebeck [208], mais est supérieur au champ détecté par RMN. Ce dernier serait alors sensible à un précurseur de l'ODC 3D qui se développe dans le plan, également détecté par rayons-x [209]. Peu importe la définition précise de B_{co} il y a clairement un minimum dans la dépendance en dopage proche de $p \simeq 0.12$, exactement là où l'ordre de charge 2D voit sa température critique être maximale [86]. Cela renforce, encore, l'idée d'un lien très fort entre ces deux ordres de charge. Ce qu'il faut également retenir est qu'il semble exister une relation de proportionnalité entre B_{c2} et B_{co} déterminé par ultrasons : $B_{co}/B_{c2} = 0.8$. La supraconductivité doit être suffisamment affaiblie, ou de manière équivalente la densité de vortex suffisamment importante, pour induire l'ODC 3D. Un scénario possible est que l'ordre à longue porté se développe lorsque des halos d'ordre de charge, centrés autour des cœurs de vortex, se superposent [213].

7.2.4 Reconstruction de la surface de Fermi

Puisque, au moins pour $p > 0.11$, la reconstruction de la surface de Fermi ne semble pas causée par l'ODC 3D il nous faut explorer d'autres possibilités. On ne peut tout d'abord pas exclure qu'une autre brisure de symétrie, encore non découverte expérimentalement, soit à l'origine de cette reconstruction.

Le candidat le plus sérieux reste tout de même l'ODC 2D. Examinons maintenant s'il est possible ou non qu'il reconstruise la surface de Fermi. Dans le cas des systèmes 2D il a été demontré théoriquement que des fluctuations antiferromagnétiques peuvent impacter les états électroniques de basses énergies, et donc la surface de Fermi, dès lors que les longueurs de corrélations AF sont bien supérieures à la longueur thermique de De Broglie, $\xi_{th} = \hbar v_F / k_B T$ [214]. Par analogie on compare sur la figure 7.11 les longueurs de corrélations de l'ordre de charge 2D, $\xi_{co,2D}$, extraites des mesures de rayons-x [86], à la longueur thermique de De Broglie calculée dans le cas de YBCO ortho-II. Pour cela on utilise la vitesse de Fermi déduite des oscillations quantiques [80], qui est une valeur moyenne intégrée sur une orbite cyclotron, et qui concerne la surface de Fermi reconstruite à basse température, et non celle à haute température (si le concept de surface de Fermi est alors encore applicable). La valeur de ξ_{th} extraite ici est donc seulement une approximation. Néanmoins ce qui est apparent ici est que $\xi_{th} \sim \xi_{co,2D}$ jusqu'à $\sim T_c$. On n'est pas, avec nos approximations, dans le cas $\xi_{co,2D} \gg \xi_{th}$, et donc aucune conclusion ferme ne doit être faite. Néanmoins l'observation d'une valeur très similaire jusqu'à $\sim T_c$ laisse à penser que l'ODC 2D peut impacter les états proches de l'énergie de Fermi, et pourrait donc induire une reconstruction.

Un autre argument va dans ce sens : le libre parcours moyen déduit des oscillations quantiques est toujours très proche de $\xi_{co,2D}(T = T_c)$ (voir figure S6. de [88]) : il semble limité par les longueurs de corrélations de l'ODC 2D. C'est vrai pour tous dopages, excepté pour $p \sim 0.11$ (ortho-II) où une transition de type "lock-in" est envisageable puisque les vecteurs d'ondes des ODC (2D et 3D) sont très proches d'être commensurables avec le réseau. Cela expliquerait naturellement le libre parcours moyen particulièrement renforcé à ce dopage.

Finalement une reconstruction par l'ODC 2D permet d'arriver à une sorte de cohérence dans la grande famille des cuprates. Dans LSCO et Hg-1201 où seulement l'ODC 2D a été observé jusqu'à présent [71, 72, 101, 199] les effets Hall et Seebeck sont négatifs à basse température [215, 216], signifiant que *à priori* la reconstruction de la surface de Fermi se produit même en l'absence de l'ODC 3D.

7.3 Susceptibilité en déformation de T_c

Dans la dernière partie de ce chapitre sur Y-123 on propose de traiter de la susceptibilité en déformation de la température critique supraconductrice, et en particulier son anisotropie. Cela permet de mieux comprendre l'interaction entre ODC et supraconductivité, et est donc en lien direct avec la partie précédente. Comme décrit en 3.3.2 le saut champ moyen qui existe à champ magnétique

nul dans les modes acoustiques longitudinaux à la transition supraconductrice permet d'extraire la valeur absolue de $\mathrm{d}T_\mathrm{c}/\mathrm{d}\epsilon_i$. Cette grandeur est la susceptibilité de T_c lors du changement d'un unique paramètre de réseau, laissant tous les autres inchangés, et dans la limite des faibles déformations $\epsilon \longrightarrow 0$. Cette grandeur est donc fondamentalement différente de $\mathrm{d}T_\mathrm{c}/\mathrm{d}P_i$, la susceptibilité en pression uni-axiale, où le coefficient de Poisson du composé en question modifie également les paramètres de réseau perpendiculaires à la contrainte appliquée. $\mathrm{d}T_\mathrm{c}/\mathrm{d}P_i$ a été directement mesuré par pression uni-axiale [217] mais également par dilation thermique [218] dans Y-123. Ces deux susceptibilités sont simplement reliées par :

$$\frac{\mathrm{d}T_\mathrm{c}}{\mathrm{d}\epsilon_i} = \sum_j c_{ij} \frac{\mathrm{d}T_c}{\mathrm{d}P_j} \tag{7.1}$$

Dans la suite on décrit une étude systématique du saut champ moyen à T_c dans la vitesse du son pour les modes c_{11} et c_{22} afin d'extraire, pour $0.08 < p < 0.154$, $\mathrm{d}T_\mathrm{c}/\mathrm{d}\epsilon_1$ et $\mathrm{d}T_\mathrm{c}/\mathrm{d}\epsilon_2$. On interprétera l'anisotropie de ces quantités, et la dépendance en dopage, en lien avec les ordres de charges de Y-123.

7.3.1 Introduction et intérêt

Dans les cuprates, et en particulier Y-123, l'application de pression permet d'en apprendre plus sur l'interaction des différents ordres du diagramme de phase. Au dopage de $p \simeq 0.12$ la température critique supraconductrice T_c dévie de sa dépendance parabolique, c'est le fameux "plateau" (voir par exemple la figure 7.8). Au même dopage les ordres de charges de Y-123 ont une température critique maximale. La pression hydrostatique détruit le plateau et semble donc indiquer que cette dernière, comme le champ magnétique, permet de jouer sur la compétition entre ODC et supraconductivité [219]. Il est attendu qu'en supprimant l'ordre de charge [1] la pression hydrostatique permette de renforcer l'ODS dans Y-123. Il est néanmoins nécessaire de noter qu'actuellement l'effet de la pression hydrostatique sur les ODC de Y-123 n'est pas encore complètement compris. Les anomalies de phonons associées à l'ODC 2D dans Y-123 disparaissent avec seulement $P = 1$ GPa [220], alors que les études d'effet Hall ont été interprétées comme une suppression de l'ODC 2D sur une échelle de $P \sim 15$ GPa [219] mais également l'absence d'effet sensible de la pression hydrostatique [221] [2] et finalement des mesures récentes de RMN (I. Vinograd, M. -H. Julien, communications privées) sont compatibles avec l'absence de suppression de l'ODC 2D jusqu'à, au moins, $P = 2$ GPa.

L'une des possibilités pour mieux comprendre ces apparentes contradictions et l'origine de l'effet de

1. Ici intentionnellement on ne spécifie pas lequel...
2. et donc la nécessité d'un autre ordre en compétition pour expliquer l'augmentation de T_c avec P

la pression hydrostatique est d'utiliser la pression uni-axiale. Dans Y-123 l'effet de la pression hydrostatique est complexifiée par l'effet de la pression sur le dopage. Une pression selon l'axe c (et donc en particulier une pression hydrostatique) rapproche les chaînes CuO des plans CuO_2, et donc accroît le transfert de charge, *i.e.* le dopage [218]. Si la pression est appliquée à température ambiante l'ordre des chaines peut être lui même modifié, menant encore à une modification de dopage [222]. En utilisant une pression uni-axiale on peut mieux séparer les différents effets qui s'ajoutent des les études en pression hydrostatique. Par exemple proche du dopage optimal dans Y-123 l'effet faible de la pression hydrostatique est uniquement causé par la somme de deux termes importants de signes opposés, $\mathrm{d}T_c/\mathrm{d}P_a$ et $\mathrm{d}T_c/\mathrm{d}P_b$ [217, 223]. Un des résultats particulièrement marquant est l'effet de la pression uni-axiale le long de l'axe a dans Y-123 qui permet d'induire l'ODC 3D, sans champ magnétique, et au dessus de T_c [93].

En résumé des informations sur l'interaction entre les différents ordres électroniques du diagramme de phase des cuprates peuvent être déduites de l'effet de la pression. L'interprétation est facilitée par l'utilisation de pression uni-axiale plutôt que hydrostatique. Dans ce contexte la quantité $\mathrm{d}T_c/\mathrm{d}\epsilon_i$ est particulièrement intéressante : elle inclue les informations d'anisotropies et permet de sonder la limite élastique $\epsilon_i \longrightarrow 0$.

7.3.2 Modèle thermodynamique et ajustement

D'après la valeur du saut de chaleur spécifique, $\Delta C_p(T_\mathrm{c})$, et de celui de constante élastique, $\Delta c_{ii}(T_\mathrm{c})$, à $T = T_\mathrm{c}$ on peut directement extraire la valeur absolue de $\mathrm{d}T_c/\mathrm{d}\epsilon_i$ (voir la section 3.3.2). Dans la suite on ne mesure pas uniquement $\Delta c_{ii}(T_\mathrm{c})$ mais l'on modélise les données de vitesse du son autour de T_c par un modèle thermodynamique. On propose tout d'abord de décrire le modèle utilisé puis la dépendance en dopage de $\mathrm{d}T_c/\mathrm{d}\epsilon_i$, $i = 1, 2$.

Modèle thermodynamique

On utilise le même modèle thermodynamique que Nohara et collaborateurs [150]. Dans ce dernier on écrit la variation d'énergie libre comme suit :

$$\Delta F = F_S - F_N = -\phi(\epsilon_i) \times f(T/T_\mathrm{c}(\epsilon_i)) \tag{7.2}$$

F_S et F_N sont respectivement les énergies libres de la phase supraconductrices et normales. $\phi = 1/2\mu_0 H_c^2$ est l'énergie de condensation supraconductrice, avec H_c le champ critique thermodynamique, et f une fonction dont la forme ne dépend pas de ϵ_i telle que $f(0) = 1$ et $f(1) = 0$. On peut par

exemple prendre un modèle à deux fluides : $f(T/T_c(\epsilon_i)) = (1 - T^2/T_c^2(\epsilon_i))^2$, mais forme précise de f n'a aucun impact sur la discussion qui suit. En calculant la dérivée seconde de ΔF sur la déformation on obtient :

$$\Delta c_{ii}(T) = -\left(\frac{\mathrm{d}\ln T_c}{\mathrm{d}\epsilon_i}\right)^2 \frac{T\Delta C_p(T)}{V_{mol}} + AT\Delta S(T) + \frac{1}{\phi}\frac{\mathrm{d}^2\phi}{\mathrm{d}\epsilon_i^2}\Delta F(T) \tag{7.3}$$

Avec,

$$A = \frac{\mathrm{d}^2\ln T_\mathrm{c}}{\mathrm{d}\epsilon_i^2} + 2\frac{\mathrm{d}\ln T_\mathrm{c}}{\mathrm{d}\epsilon_i}\frac{\mathrm{d}\ln\phi}{\mathrm{d}\epsilon_i} - \left(\frac{\mathrm{d}\ln T_\mathrm{c}}{\mathrm{d}\epsilon_i}\right)^2 \tag{7.4}$$

$\Delta S(T)$ est ici la variation d'entropie. Pour $T = T_\mathrm{c}$ la formule 7.3 se réduit à la relation de Ehrenfest 3.34, et pour $T = 0$ on obtient $\mathrm{d}^2\phi/\mathrm{d}\epsilon_i^2 = \Delta c_{ii}(0)$. Puisque, de plus, $(\mathrm{d}T_\mathrm{c}/\mathrm{d}\epsilon_i)^2$, est directement extrait de $\Delta c_{ii}(T_\mathrm{c})$ [3] il ne reste qu'un seul paramètre libre pour ajuster les données de vitesse du son : A. Ici la contribution du réseau $c_0(T)$ n'est pas prise en compte et il est donc nécessaire de la soustraire avant d'ajuster les données par le modèle. On utilise alors la formule empirique 3.20 de Y. P. Varshni [151].

Dépendance en dopage

Sur la figure 7.12 on récapitule la situation pour $0.106 < p < 0.154$ dans les modes c_{11} et c_{22}. Pour $p = 0.106$ et 0.110 aucun saut n'est observé à T_c dans le mode c_{11} alors qu'un est bien observé dans le mode c_{22}. Cela indique une anisotropie dans le plan à ces dopages : une déformation selon l'axe b de la structure orthorhombique a alors bien plus d'effet sur T_c qu'une même déformation le long de l'axe a. Toujours pour ces dopages une légère augmentation de vitesse du son causée par les fluctuations supraconductrice est évidente pour $T > T_\mathrm{c}$ dans le mode c_{11}. On ne va pas ici discuter cela. Pour $p = 0.122, 0.134$ et 0.139 une réponse plus isotrope est obtenue avec un saut dans les deux modes acoustiques. Pour $p = 0.154$ la réponse redevient anisotrope.

La situation est résumée sur sur la figure 7.13. La dépendance en dopage de $\mathrm{d}T_\mathrm{c}/\mathrm{d}\epsilon_i$ est extraite du saut à T_c dans les constantes élastiques mais également de l'application directe de pression uniaxiale [217] et du saut à T_c dans la dilation thermique [218]. Pour ces deux dernières mesures on utilise la formule 7.1 pour déterminer $\mathrm{d}T_\mathrm{c}/\mathrm{d}\epsilon_i$. Les incertitudes sur les constantes élastiques $c_{ij,i\neq j}$ ([224] et références citées) induisent d'importantes incertitudes sur les $\mathrm{d}T_\mathrm{c}/\mathrm{d}\epsilon_i$ obtenues par cette méthode. Concernant les mesures de vitesse du son il est nécessaire de connaître $\Delta C_p(T_\mathrm{c})$ afin de calculer $\mathrm{d}T_\mathrm{c}/\mathrm{d}\epsilon_i$, pour cela on utilise les données de la littérature ([206, 225–227], voir annexe D). Les valeurs

3. et du $\Delta C_p(T_\mathrm{c})$ de la littérature

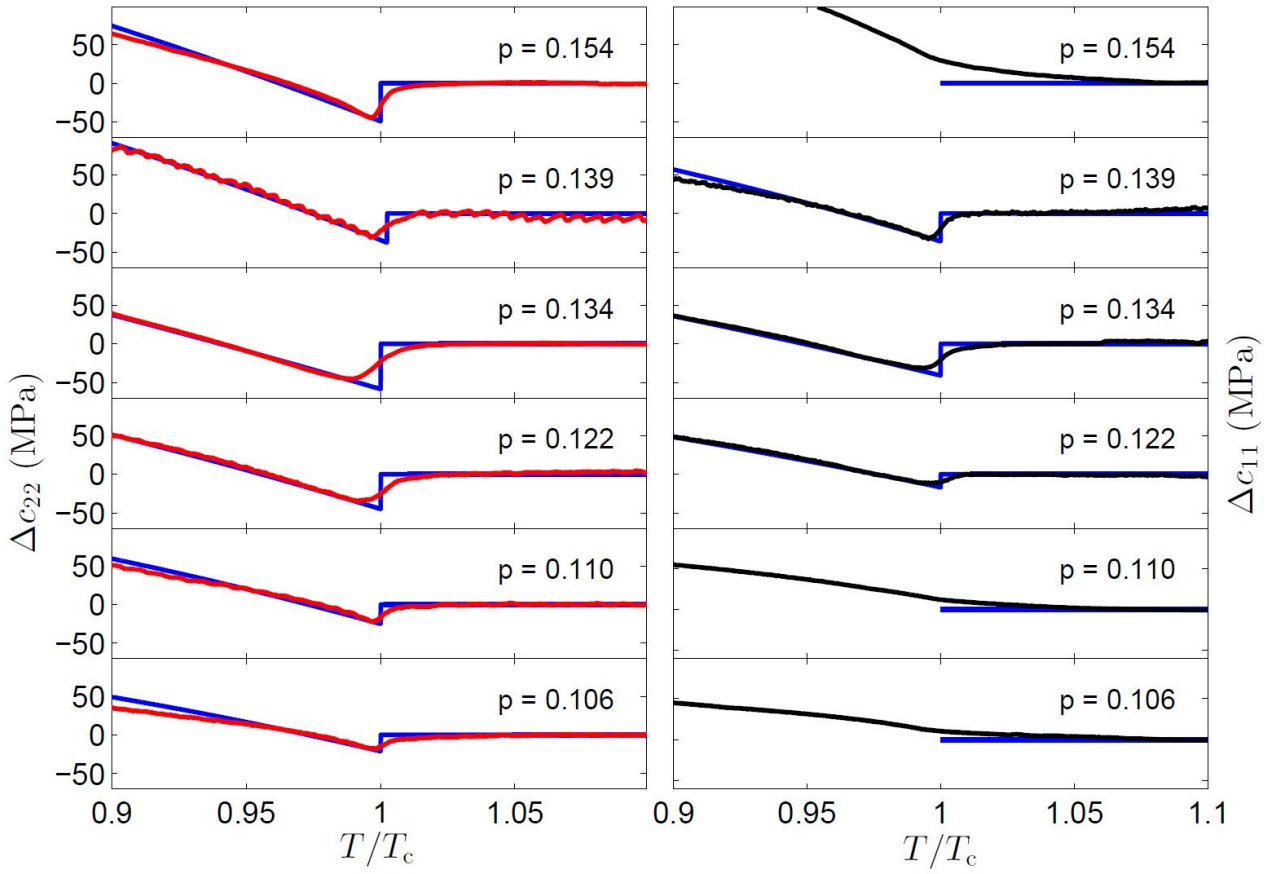

FIGURE 7.12 – Saut anisotrope à $T = T_c$ dans les constantes élastiques. Panneaux de gauche : c_{11} en fonction de T/T_c aux dopages indiqués. La ligne rouge correspond aux données de vitesse du son traduites en constante élastique. **Panneaux de droite :** équivalents des panneaux de gauche dans le mode acoustique c_{11} aux mêmes dopages. La ligne noire correspond aux données expérimentales. Pour tous les panneaux la ligne bleue est un ajustement par le modèle thermodynamique décrit dans le texte principal. Les déviations du modèle thermodynamique proviennent essentiellement des inhomogénéités de dopages et des fluctuations supraconductrices [70, 155].

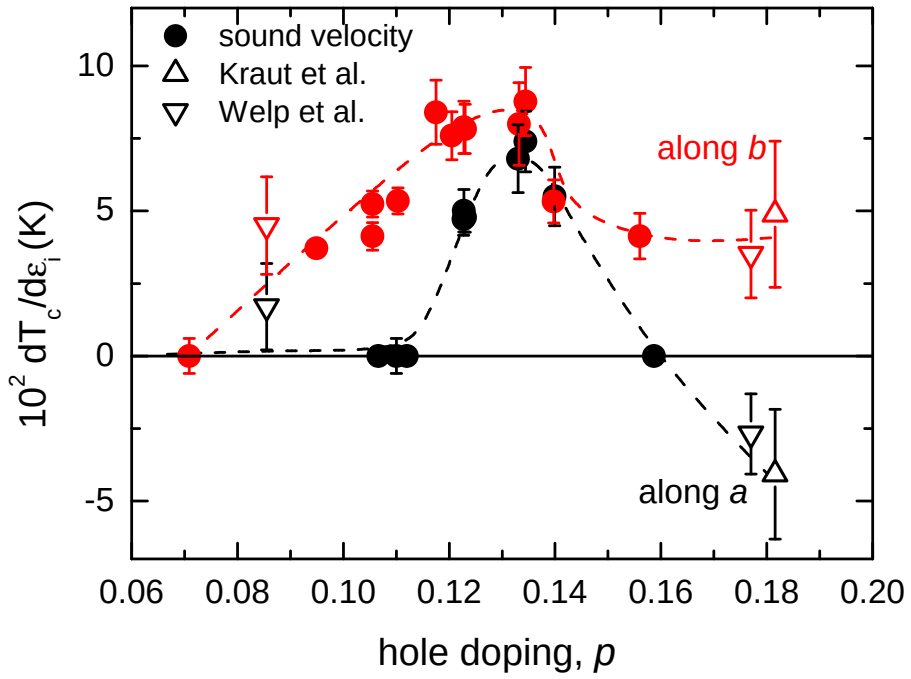

FIGURE 7.13 – Susceptibilité en déformation de la température critique supraconductrice T_c. Les ronds pleins sont issus du saut à T_c dans les constantes élastiques. Les triangles proviennent de dT_c/dP_i convertis via la formule 7.1 : vers le bas pour des mesures directement sous pression uni-axiale [217] et vers le haut lorsque extrait du saut de champ moyen à T_c dans la dilation thermique [218]. La conversion induit des barres d'erreurs importantes dues aux incertitudes sur les constantes élastiques non diagonales. Dans tous les cas : noir = $dT_c/d\epsilon_1$, rouge = $dT_c/d\epsilon_2$. Le signe de $dT_c/d\epsilon_i$ est obtenue en comparant les mesures ultrasonores avec celles des références [217, 218]. La déformation ϵ est définie de telle sorte que $\epsilon_i > 0$ correspond à une compression de l'axe i. Une discussion détaillée de la dépendance en dopage singulière se trouve dans le texte principal.

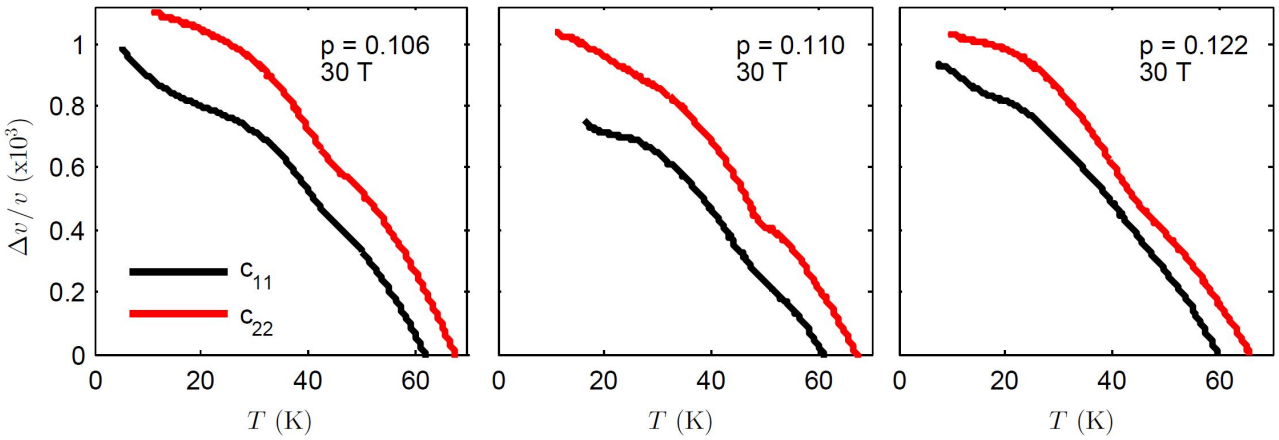

FIGURE 7.14 – Anisotropie de la transition ODC 3D en vitesse du son. Le champ magnétique appliqué $B = 30$ T $\parallel c$ permet d'être dans l'état normal aux trois dopages indiqués [49]. À tous les dopages l'anomalie à $T_{co,3D}$ est bien bien plus marquée dans $\Delta v/v$ en mode c_{22} (ligne rouge) que c_{11} (ligne noire), indiquant que $|\mathrm{d}T_{co,3D}/\mathrm{d}\epsilon_2| \gg |\mathrm{d}T_{co,3D}/\mathrm{d}\epsilon_1|$. Il y a basse température dans le mode c_{11} une augmentation de $\Delta v/v$ dont l'origine est encore à déterminer. On trace ici la vitesse du son complète, *i.e.* avec la contribution du réseau $c_0(T)$.

numériques sont présentes pour les différents échantillons dans le tableau 7.1. Ce que l'on peut dès a présent noter est que le maximum dans $\mathrm{d}T_c/\mathrm{d}P$ proche de $p \simeq 0.12$ [219] est essentiellement du à une forte augmentation de $\mathrm{d}T_c/\mathrm{d}\epsilon_1$ qui atteint $\sim \mathrm{d}T_c/\mathrm{d}\epsilon_2$, les deux étant maximums à ce dopage. Une telle isotropie à ce dopage intermédiaire est difficile à comprendre par la seule contribution du réseau, dont l'orthorhombicité augmente de manière monotonique avec le dopage [228].

7.3.3 Anisotropie de la transition ODC 3D

Comme précédemment mentionné l'effet de la pression dans Y-123, tout spécialement proche de $p \simeq 0.12$, a été interprété en lien avec les ordres de charges 2D et 3D. Afin d'étudier si une telle approche est cohérente avec les mesures ici présentées on discute tout d'abord de l'anisotropie de la transition vers l'ordre de charge 3D.

Sur la figure 7.14 on montre la transition vers l'ODC 3D pour $p = 0.106, 0.110$ et 0.122. Pour tous ces dopages l'état normal doit être atteint avec $B = 30$ T $\parallel c$. Aux trois dopages l'anomalie à $T_{co,3D}$, c'est à dire le saut de champ moyen élargit par les fluctuations et les inhomogénéités de dopages auquel s'ajoute la contribution normale du réseau, est bien plus marquée dans le mode c_{22} que c_{11}. En l'absence de la détermination expérimentale du saut de chaleur spécifique $\Delta C_p(T_{co,3D})$ il n'est pas possible d'extraire la valeur numérique de $\mathrm{d}T_{co,3D}/\mathrm{d}\epsilon_i$, mais l'anisotropie de la réponse en vitesse du son indique sans ambiguïté que $|\mathrm{d}T_{co,3D}/\mathrm{d}\epsilon_2| \gg |\mathrm{d}T_{co,3D}/\mathrm{d}\epsilon_1|$.

L'anisotropie importante observée proche de $p \simeq 0.12$ dans $\mathrm{d}T_c/\mathrm{d}\epsilon_i$ est alors cohérente avec une interprétation en terme d'une compétition entre supraconductivité et ODC 3D. L'anisotropie de cet ordre uni-axial se reflèterai alors dans la dépendance en déformation de T_c de part la compétition. On met en lumière ce dernier effet sur la figure 7.15. Le paramètre d'ordre de l'ODC 3D apparaît à $B = 30$ T avec une anisotropie similaire à celle de la supraconductivité à $B = 0$ T, dans les deux cas la réponse est bien plus importante en c_{22}. Cela suggère très fortement que la compétition entre ODC 3D et supraconductivité est à l'œuvre même en l'absence de champ magnétique et dans la limite élastique sondée. Finalement il est également utile de noter que ces résultats sont cohérents avec l'apparition de l'ODC 3D sous pression uni-axiale le long de l'axe a par Kim et collaborateurs [93]. La dépendance en déformation de T_c, au dopage étudié de $p \simeq 0.12$, indique $\mathrm{d}T_\mathrm{c}/\mathrm{d}\epsilon_2 \gg \mathrm{d}T_\mathrm{c}/\mathrm{d}\epsilon_1$. Avec une pression uni-axiale le long de l'axe a, qui induit une réduction de l'axe b ($\epsilon_2 < 0$), on attend donc bien une diminution de la température critique supraconductrice, comme observé. Cette diminution de T_c vient alors de la promotion de l'ODC 3D par $\epsilon_2 < 0$, plutôt que l'inverse, puisque la déformation permet d'induire l'ODC 3D au dessus de la température critique supraconductrice : $T_{co,3D} > T_\mathrm{c}$.

7.3.4 Discussion

La discussion est scindée en deux parties. Tout d'abord on parle du régime proche de l'optimal et sur-dopé où $\mathrm{d}T_\mathrm{c}/\mathrm{d}\epsilon_i$ s'explique naturellement par l'orthorhombicité de la structure cristalline. Ensuite l'on discute de deux différents scénarios possibles pour expliquer la dépendance en dopage singulière de $\mathrm{d}T_\mathrm{c}/\mathrm{d}\epsilon_i$ dans le régime sous-dopé : un premier qui repose sur l'ordre de charge et un second lié à une susceptibilité nématique.

régime optimal - sur-dopé

Commençons tout d'abord par discuter le régime $p \geq 0.18$ où une anisotropie, bien différente de celle de $p < 0.135$, est clairement observée. On obtient alors $\mathrm{d}T_c/\mathrm{d}\epsilon_1 \approx -\mathrm{d}T_\mathrm{c}/\mathrm{d}\epsilon_2$ avec $\mathrm{d}T_\mathrm{c}/\mathrm{d}\epsilon_2 > 0$. Dans cette gamme proche du dopage optimal une compression de l'axe b, et une dilatation de l'axe a, augmentent toutes deux de manière similaire T_c. En d'autres termes réduire l'orthorhombicité de Y-123 renforce alors la supraconductivité. Cet effet a été interprété comme étant lié au couplage entre structure cristalline et supraconductivité [217, 223]. Notons néanmoins qu'un tel comportement est bien différent de LSCO, autre cuprate à structure orthorhombique, où $\mathrm{d}T_\mathrm{c}/\mathrm{d}\epsilon_{1,2} > 0$ est observée dans la même gamme de dopage [229]. Cette différence pourrait venir du fait que l'orthorhombicité augmente avec le dopage dans Y-123, alors qu'elle décroît dans LSCO, rendant Y-123 bien plus sensible

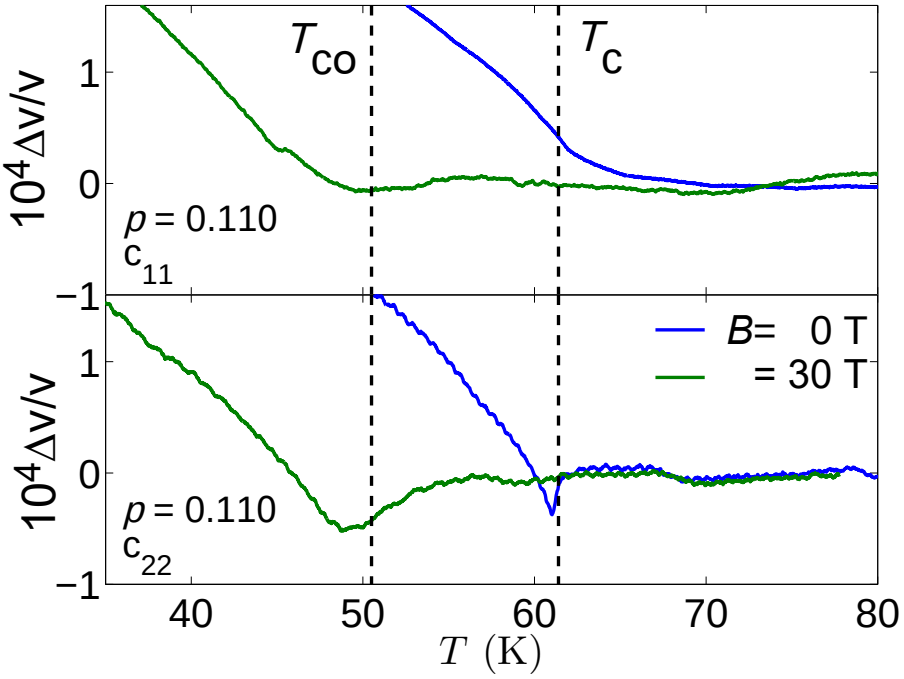

Figure 7.15 – Anisotropie similaire des constantes élastiques aux transitions ODC 3D et supraconductrice. Panneau du haut : $\Delta v/v$ en fonction de T dans le mode c_{11} pour $B = 0$ (ligne bleue) et 30 T (ligne verte). La composante normale du réseau a été soutraite. Aucun saut champ moyen n'est résolu, aussi bien à T_c en champ nul qu'à $T_{co,3D}$ en champ intense. **Panneau du bas :** mêmes courbes mais dans le mode c_{22}. Une anomalie est maintenant bien visible à T_c et $T_{co,3D}$ indiquant que contrairement à l'axe a, ces deux ordres sont sensibles à une déformation selon l'axe b. L'anisotropie similaire renvoie à une compétition entre ODC 3D et supraconductivité, modulée par la déformation, dont les signatures seraient visibles jusqu'à $B = 0$ T.

que LSCO à cette dernière dans le régime sur-dopé.

régime sous-dopé

Tout d'abord concernant l'ODC 3D. On a vu auparavant qu'un scénario de compétition entre ODC 3D et supraconductivité, existant même dans l'état $B = 0$ T et la limite élastique sondée expérimentalement, explique naturellement l'anisotropie observée pour $0.07 \lesssim p \lesssim 0.135$. Dans cette gamme de dopage une dilation de l'axe b renforce l'ODC 3D et fragilise la supraconductivité, comme observé par rayons-x inélastique [93]. Mais alors, comment expliquer le comportement isotrope pour $p \simeq 0.135$? Il est alors tentant d'invoquer un changement de la structure de l'ODC 3D elle-même à ce dopage. Cette hypothèse n'a pas été encore testée expérimentalement, mais il y a des indications que la structure de l'ODC 2D évolue en fonction du dopage. Par exemple pour $YBa_2Cu_3O_{6.51}$ l'intensité de diffusion des rayons-x est plus grande selon b que a, alors que dans le cas de $YBa_2Cu_3O_{6.60}$ l'intensité est égale dans les deux directions [86]. Un tel changement de structure pourrait également exister pour la proche ODC 3D. Ces changements subtiles dans la structure de l'ODC 2D, et potentiellement 3D, peuvent eux mêmes être liés au changement de structure des chaines CuO depuis O-II à $p = 0.110$ jusqu'à O-VIII à $p = 0.12$. Finalement concernant ce scénario il est également important de noter que le rôle de l'ODC 2D est ici mal renseigné. Aucun transition thermodynamique n'est observée pour l'ODC 2D et l'on n'a donc pas accès à $\mathrm{d}T_{co,2D}/\mathrm{d}\epsilon_i$. Dans le cas où $|\mathrm{d}T_{co,2D}/\mathrm{d}\epsilon_2| \gg |\mathrm{d}T_{co,2D}/\mathrm{d}\epsilon_1|$, toujours pour $0.07 \lesssim p \lesssim 0.135$, la compétition entre ODC 2D et supraconductivité peut expliquer seule la susceptibilité en déformation de T_c à champ magnétique nul sans avoir recourt à l'ODC 3D observée en champs intenses. Un argument expérimental qui suggère cela est l'observation d'une anisotropie dans l'effet Nernst qui grandit avec le paramètre d'ordre de l'ODC 2D [230].

Pour terminer l'on propose un autre scénario, hypothétique, pour expliquer $\mathrm{d}T_c/\mathrm{d}\epsilon_i(p)$ dans le régime sous-dopé. Certains calculs numériques du modèle de Hubbard 2D suggèrent que le pseudogap est associé à une susceptibilité nématique, qui induit une seconde composante (s-)anisotrope dans le gap d supraconducteur [231]. Dans Y-123 le développement d'une telle susceptibilité peut être par exemple reliée à l'augmentation d'anisotropie qui est observé à l'intérieur de la phase pseudogap par résistivité électrique et effet Nernst [230]. Pour $p \leqslant 0.11$, lorsque la supraconductivité se développe dans cette phase nématique, elle explique le comportement anisotrope de $\mathrm{d}T_c/\mathrm{d}\epsilon_i$. Pour $p \simeq 0.11$ la température d'apparition de la susceptibilité nématique coïncide avec celle de l'ODC 2D et l'anisotropie dans la résistivité disparaît à plus haut dopage. Cela pourrait donc expliquer la diminution rapide de l'anisotropie pour $p > 0.11$ dans la région sous-dopé.

7.4 Résumé

Ce chapitre a traité de la place et du rôle de l'ODC 3D dans le diagramme de phase de Y-123.

Dans un premier temps nous avons montré que la vitesse du son indique l'existence d'une véritable transition de phase du second ordre pour l'ODC 3D. La signature en vitesse du son a permis de suivre l'ODC 3D au travers du diagramme de phase, qui n'existe que pour $0.071 < p < 0.154$, comme l'ODC 2D. Cela renforce encore l'idée d'un lien intime entre ces deux ordres. La comparaison entre les températures critiques de l'ODC 3D et du changement de signe de l'effet Hall, entres autres arguments, indique que l'ODC 2D est un candidat plus sérieux pour la reconstruction de la surface de Fermi.

Concernant cette première partie il serait intéressant de modéliser la variation de vitesse du son pour en apprendre plus sur la structure de l'ODC 3D et notamment son évolution en dopage. Une extension des calculs théoriques de la référence [214] dans le cas de l'ODC 2D est également d'importance pour mieux comprendre son rôle dans la reconstruction de la surface de Fermi.

Dans une seconde partie on s'est concentré sur l'interaction entre ODC et supraconductivité, via la mesure de la dépendance en déformation de T_c. Une des interprétations possibles pour expliquer l'anisotropie observée dans le régime sous-dopé est que l'ODC 3D est en compétition avec la supraconductivité dès $B = 0$ T. Cette interprétation n'explique cependant pas toute la dépendance en dopage étudiée, à moins qu'un changement de structure, encore non détecté, apparaisse pour $p \sim 0.12$. On suggère donc également un autre scénario qui repose sur l'existence d'une susceptibilité nématique à l'intérieur du pseudogap.

Pour mieux comprendre la dépendance en dopage de $\mathrm{d}T_c/\mathrm{d}\epsilon_i$ et son anisotropie plusieurs choses restent à faire. Il serait notamment intéressant d'étudier l'évolution de la structure des ODC 2D et 3D en fonction du dopage de manière systématique. Une meilleure connaissance de l'effet de la pression sur l'ODC 2D est également particulièrement importante, tout spécialement concernant sa température critique. Une telle expérience n'est pas possible en ultrasons qui n'est pas sensible à l'ODC 2D et est difficile techniquement par rayons-x.

Annexe A

B_{c2} dans LSCO

Cette annexe est en deux parties. La première décrit une méthode pour extraire $B_{c2}(0)$ sur l'exemple de LSCO12 en utilisant une extrapolation du champ de fusion du réseau de vortex, $B_v(T)$, à $T = 0$. Dans une seconde partie on généralise cette méthode pour extraire $B_{c2}(p)$ dans LSCO en utilisant des données de la littérature de transport.

A.1 L'exemple de LSCO12

Une estimation du champ critique supérieur, B_{c2}, peut être extraite de la dépendance en température et champ magnétique de la fusion du réseau de vortex. Il y a en effet des indications, au moins dans Y-123, qu'aucune phase de vortex liquide n'existe à $T = 0$ K [49, 232, 233], c'est à dire que les fluctuations quantiques seules ne permettent pas de fondre le réseau de vortex. Cela reste néanmoins une question ouverte, tout spécialement dans d'autres cuprates comme LSCO. Dans ce cas la valeur du champ magnétique pour laquelle le réseau de vortex fond à température nulle, $B_v(0)$, est égale à $B_{c2}(0)$.

Afin d'estimer $B_{c2}(0)$ dans l'échantillon LSCO12 nous avons donc mesuré, en collaboration avec B. Vignolle (ICMCB, Bordeaux, France), la résistivité électrique longitudinale selon les plans CuO_2, ρ_{ab}. En présence de champ magnétique la résistivité devient non nulle lorsque le réseau de vortex, eux mêmes composés d'électrons normaux, fond. Les ronds bordeaux de la figure A.1 indiquent $B_v(T)$ ainsi extrait.

Cet échantillon a également été mesuré par RMN au LNCMI-G par I. Vinograd, M.-H. Julien et H. Mayaffre. En entrant dans l'état solide de vortex la contribution diamagnétique de la surface de l'échantillon diminue l'inductance du circuit RMN et donc augmente sa fréquence caractéristique. Cet effet est également utilisé pour déterminer $B_v(T)$ sur la figure A.1, il s'agit des triangles mauves.

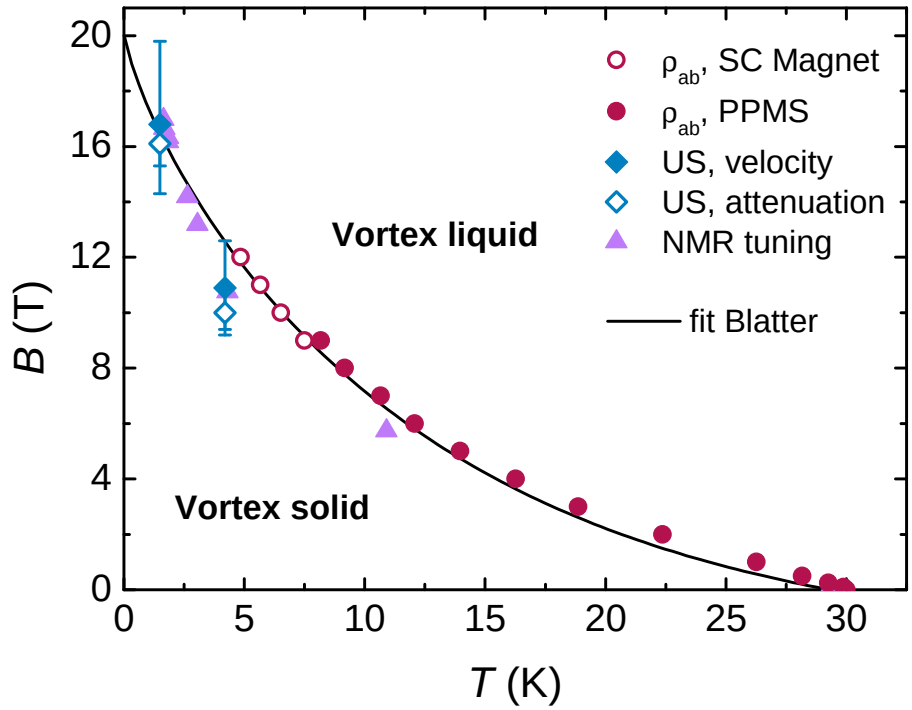

Figure A.1 – Ligne de transition vortex solide - vortex liquide pour l'échantillon LSCO12. Les ronds bordeaux indiquent la transition résistive : ceux pleins correspondent à des mesures pour $B < 9$ T en PPMS par B. Vignolle, ceux vides à des mesures en bobine supraconductrice au LNCMI-G. Les losanges bleus indiquent le désancrage du réseau de vortex vu en ultrasonss : par un pic d'atténuation pour les losanges vides, par une chute de vitesse du son pour les losanges pleins. Les triangles mauves indiquent le changement de fréquence de résonance du circuit RMN associé à la fusion du réseau de vortex. Ces dernières mesures ont été effectuées par le groupe RMN du LNCMI-G sur exactement le même échantillon. Un ajustement des données de ρ_{ab} par la formule de Blatter [50] (voir texte) donne une estimation $B_{c2}(0) \simeq 20$ T. L'ajustement montre également un bon accord avec $B_v(T)$ déterminé par ultrasons et RMN.

Enfin, comme décrit dans la partie 3.4, les ultrasonss sont sensibles au désancrage du réseau de vortex dans certaines orientations relatives du champ magnétique et de la polarisation de l'onde acoustique (voir section 3.4). Les losanges bleus de la figure A.1 correspondent à une mesure pour $B \parallel [001]$ dans le mode c_{11} qui sonde le module de compression du réseau de vortex, c_{11}^v. La grandeur mesurée par ultrasons dépend de la fréquence de l'onde acoustique, $B_v(T)$ ne peut donc être strictement mesuré qu'en extrapolant cette grandeur à fréquence nulle. À fréquence finie et température donnée le pic d'atténuation et la chute de vitesse du son se produisent à un champ magnétique (légèrement) inférieur à $B_v(T)$, ce qui explique pourquoi les données d'ultrasonss se trouvent légèrement en dessous de l'ajustement de la figure A.1.

Toutes ces méthodes différentes donnent des valeurs $B_v(T)$ en accord. Afin d'extrapoler cette grandeur à $T = 0$ on utilise sur la figure A.1 un ajustement par la formule dite de Blatter [50] :

$$\frac{\sqrt{b_m(t)}}{1-b_m(t)}\frac{t}{\sqrt{1-t}}\left[\frac{4(\sqrt{2}-1)}{\sqrt{1-b_m(t)}}+1\right]=\frac{2\pi c_L^2}{\sqrt{G_I}} \tag{A.1}$$

Où $t = T/T_c$ est la température réduite, $b_m(t) = B_v(t)/B_{c2}(t)$, G_I le nombre de Ginzburg qui est une mesure des fluctuations thermiques et finalement c_L la fraction de Lindemann. Cette formule implicite dérive d'une description uniquement semi-quantitative de la fusion du réseau de vortex, et n'est valide que pour $B_{c1} \ll B < 0.2B_{c2}$. On utilise ici cet ajustement pour $0 < B < B_{c2}$ et c'est donc uniquement un moyen empirique de reproduire les données expérimentales sans justification théorique. L'ajustement montre un bon accord avec les données expérimentales et la présence de points expérimentaux à basse température, $T < 2$ K, restreint l'erreur possible sur l'extrapolation. Cette méthode donne une estimation de $B_{c2}(0) \simeq 20$ T dans LSCO12.

A.2 Dépendance en dopage

Dans Y-123 la ligne $B_{c2}(p)$ a été extraite en extrapolant le champ de fusion du réseau de vortex à $T \longrightarrow 0$ [49, 233], comme décrit précédemment dans l'exemple de LSCO12. La même procédure peut être effectuée dans LSCO où des mesures de résistivité, indiquant la fusion du réseau de vortex, sont nombreuses dans la littérature [39, 140, 234, 235]. Cela a d'ailleurs déjà été effectué par le groupe de L. Taillefer [236]. Comme cela est apparent sur la figure A.2 cette procédure donne une grande dispersion des valeurs de B_{c2} obtenues. Néanmoins cela permet de comparer les champs caractéristiques extraits des mesures à ce B_{c2}, en faisant donc l'hypothèse d'une absence de liquide de vortex à $T = 0$.

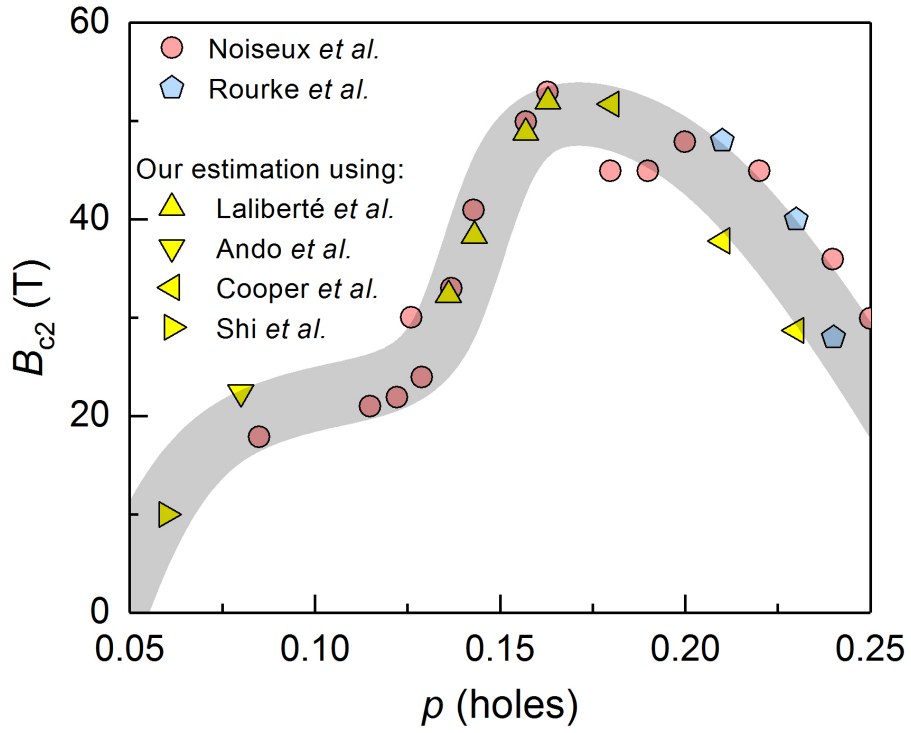

FIGURE A.2 – $B_{c2}(p)$ dans LSCO. Les triangles jaunes [39, 140, 234, 235] et ronds rouges [236] sont extraits d'extrapolation de la fusion de vortex à $T = 0$, en utilisant la formule de Blatter [50]. Cette méthode n'est justifiée que lorsque on a accès à des points expérimentaux pour $T \ll T_c$. Les pentagones bleus sont extraits depuis [23] et correspondent à la déviation de la magnétorésistance B^2 à basse température. En prenant en compte la dispersions des valeurs de B_{c2} ainsi obtenues on observe un maximum à un dopage qui peut être compatible avec le dopage optimal pour la supraconductivité, $p_{opt} \simeq 0.16$, mais également avec le dopage critique du pseudogap, p^*. La dispersion peut être (au moins partiellement) expliquée par les incertitudes de dopages.

Annexe B

Extension des mesures en champs magnétiques intenses

Certaines mesures d'ultrasonss dans LSCO ne sont pas présentées dans le texte principal car elles ne sont pas strictement nécessaires au message principal de cette thèse. Dans cette annexe l'on propose néanmoins de les archiver pour rendre le manuscrit auto-suffisant. Dans la suite ces mesures sont présentées par dopage croissant.

B.1 LSCO11, mode c_{11}

Dans le chapitre 5 seulement les mesures de vitesse du son à $B = 0$ T ont été discutées pour l'échantillon LSCO11, $p = 0.114$. La figure B.1 montre $\Delta v/v(T)$ mesurée en bobine supraconductrice, jusqu'à $B = 18.9$ T, dans le mode acoustique longitudinal c_{11}. À $B = 0$ T il est difficile d'extraire un ramollissement du réseau à basse température à cause de la variation du réseau qui est alors dominante. Seule une augmentation de $\Delta v/v$ pour $T \lesssim 8$ K est visible. Néanmoins avec l'application de $B = 18.9$ T $\parallel c$ la signature en vitesse du son du verre AF se développe et un minimum de vitesse du son est bien visible. La forte augmentation de vitesse du son à basse température ne peut être seulement causée par la transition de désancrage du réseau de vortex puisque cet effet se déplace à plus haute température avec le champ magnétique.

L'effet du champ magnétique montre donc bien que la même physique est à l'œuvre dans les échantillons LSCO11 et LSCO12 (voir 5.7 pour les mêmes mesures dans cet échantillon), malgré une nette différence quantitative du couplage avec le réseau cristallin.

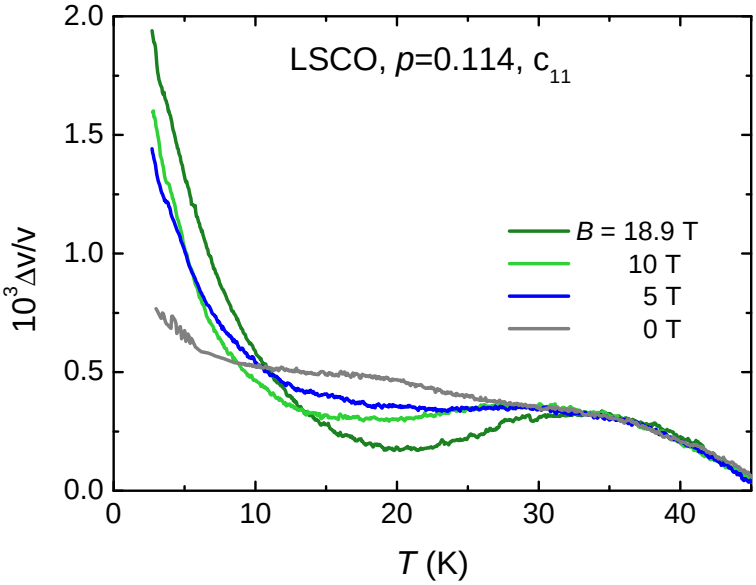

Figure B.1 – Vitesse du son dans LSCO11, de dopage $p = 0.114$, pour $0 \leq B \leq 18.9$ T dans le mode c_{11}. Pour $B = 0$ T seulement une augmentation de vitesse du son pour $T \lesssim 8$ K se détache clairement de la variation due au réseau cristallin. Néanmoins pour $B = 18.9$ T un clair minimum de vitesse du son s'est développé. Les courbes sont superposées à $T = 45$ K où il n'y a plus de dépendance en champ magnétique.

B.2 LSCO12, mode $(c_{11} - c_{12})/2$

Dans le chapitre 5 on ajuste les données de vitesse et atténuation du son dans le mode transverse $(c_{11} - c_{12})/2$ par le modèle de susceptibilité dynamique. Ces données sont visible sur la figure B.2. Avec le champ magnétique un minimum, qui existe déjà pour $B = 0$ T, se développe dans la vitesse du son. La situation est donc très similaire au LSCO15 mesuré dans ce même mode acoustique, lorsque la supraconductivité est suffisamment affaiblie par un champ magnétique (voir figure 6.1(c)). La différence majeure est que T_{min} est bien supérieure à $p = 0.122$ par rapport à $p = 0.148$, à un champ magnétique donnée.

L'atténuation ultrasonore induite sous champ magnétique montre aussi un comportement qualitativement similaire au cas de LSCO15 (voir figure 6.1(d)). À un champ magnétique donné on trouve, en descendant en température, un pic puis un creux. La température du pic d'atténuation augmente graduellement avec B, ce qui indique que le champ magnétique permet de ralentir les fluctuations de spins et éventuellement de les geler.

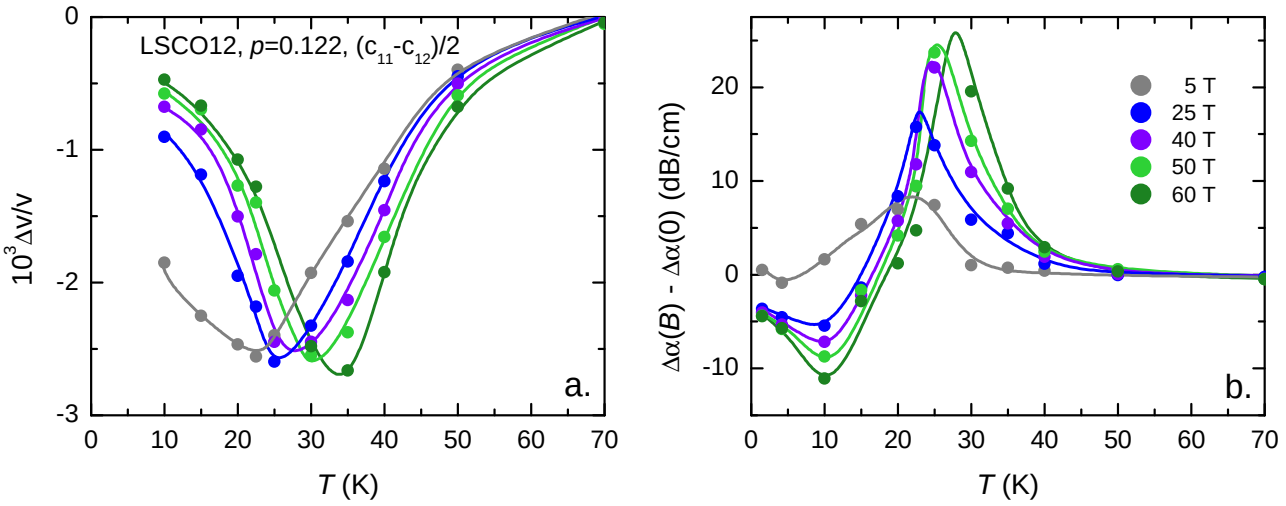

Figure B.2 – Dépendance en température de la vitesse et l'atténuation du son dans LSCO12, $p = 0.122$, extrait de mesures en champ pulsé. Le mode acoustique mesuré est $(c_{11} - c_{12})/2$. Pour la vitesse du son **(a)** la variation à $B = 0$ T a été ajoutée, une fois la contribution du réseau cristallin soustraite (voir figure 6.20). La variation d'atténuation $\Delta\alpha$ **(b)** est uniquement celle induite sous champ magnétique, la composante à $B = 0$ T n'ayant pas été reproductible.

B.3 LSCO16 N1, mode c_{11}

L'échantillon, LSCO16 N1, de dopage $p = 0.170$, a été mesuré en champs magnétiques pulsés, dans le mode longitudinal c_{11}. La courbe de vitesse du son à $B = 0$ T est visible sur la figure 3.9. Les mesures en champs pulsés, vitesse et atténuation du son, sont reportées sur la figure B.3, pour $1.5\text{ K} \leq T \leq 2.2\text{ K}$.

Pour $T = 2.2$ K vitesse et atténuation du son reflètent essentiellement la contribution du réseau de vortex (une discussion de celle-ci se trouve en 3.4). On observe tout d'abord un comportement en B^2, aussi bien pour la vitesse que l'atténuation, qui est dû à l'augmentation du mode de compression du réseau de vortex c_{11}^v. Pour $B \simeq 43$ T et toujours $T = 2.2$ K le réseau de vortex se désancre du réseau cristallin, on perd cette contribution : la vitesse du son chute et un pic se produit dans l'atténuation. Au delà de ce champ magnétique la vitesse du son continue doucement de diminuer. Ce peut-être du au fait qu'on n'a pas encore atteint B_{c2}, ou bien être lié au ramollissement important qui existe dans le mode $(c_{11} - c_{12})/2$ dans un échantillon de dopage similaire (voir chapitre 6). Dans tous les cas cela indique que ce mode longitudinal est, à ce dopage aussi, moins sensible que le mode transverse $(c_{11} - c_{12})/2$ à l'émergence du verre AF, et en particulier au ramollissement du réseau précurseur au gel des fluctuations de spins.

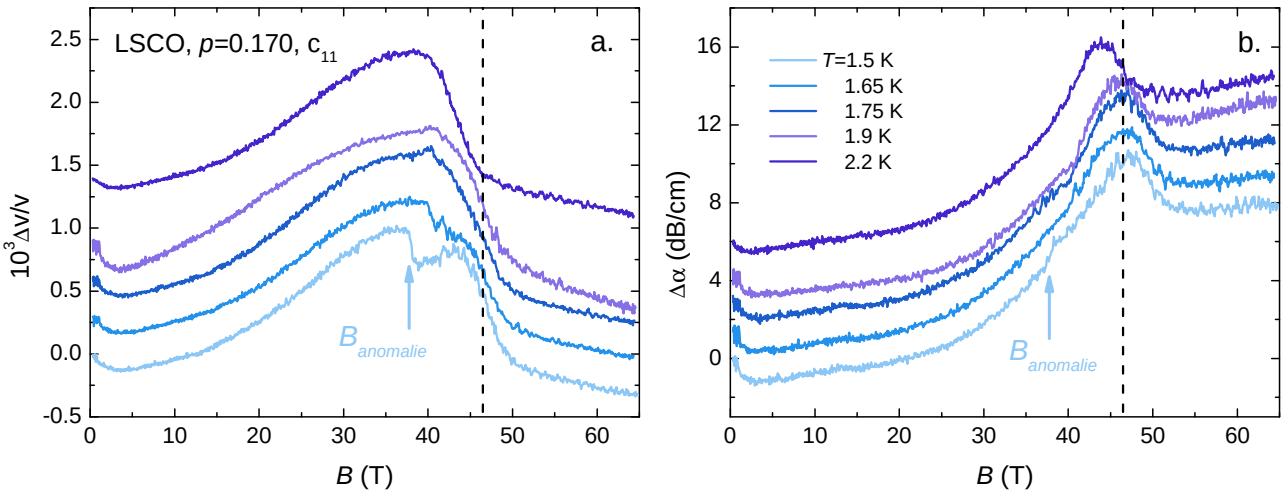

FIGURE B.3 – Vitesse du son (a) et atténuation (b) en champ magnétique pulsé et dans le mode c_{11} pour l'échantillon LSCO16 N1, 1.5 K $< T <$ 2.2 K. Pour $T = 2.2$ K le comportement de la vitesse et de l'atténuation du son provient *essentiellement* de la contribution des vortex. À plus basse température on observe une anomalie, particulièrement bien marquée à $T = 1.5$ K, où elle est désignée par une flèche. Elle se caractérise par une discontinuité dans la vitesse du son et un épaulement dans l'atténuation. La ligne verticale pointillée indique le champ auquel le réseau de vortex se désancre du réseau cristallin à $T = 1.5$ K. Il ne semble pas avoir de dépendance en température en dessous de $T = 1.9$ K.

En refroidissant pour $T < 2.2$ K les mesures deviennent plus singulières. Le cas le plus marqué est celui de la température de base : $T = 1.5$ K. Pour $B_{anomalie} \simeq 36$ T sur la figure B.3 on observe une discontinuité négative dans la vitesse du son, qui semble accompagnée par un épaulement dans l'atténuation, par ailleurs essentiellement dominée par les vortex. Ce comportement, caractéristique d'une transition de phase, disparaît graduellement à plus haute température et devient à peine discernable pour $T = 1.9$ K. Ces signatures ont été observées dans deux campagnes distinctes de mesures en champs pulsés. Une telle transition n'a pas été observée au dopage $p = 0.149$ mesuré dans le même mode acoustique et aucun échantillon pour $p > 0.170$ n'a été mesuré jusqu'à présent dans le mode c_{11} en champ pulsé. Le mode transverse $(c_{11} - c_{12})/2$ ne semble pas sensible à cette transition.

L'origine de cette transition de phase est encore à établir. Le diagramme de phase B.4 montre que cette dernière semble n'exister qu'à l'intérieur même de la phase de vortex solide. Une hypothèse crédible peut donc être une transition du réseau de vortex lui même. Autour de ce dopage de $p = 0.170$ le réseau de vortex est observé par diffusion de neutron aux petits angles et montre une transition entre réseau hexagonal et carré, mais à des champs magnétiques bien plus faibles, de l'ordre de $B \sim 1$ T [237]. Pour mieux comprendre cette transition il serait intéressant d'étudier d'autres échantillons de dopages proches dans ce même mode acoustique, mais également d'utiliser d'autres techniques expérimentales sensibles au réseau de vortex, par exemple des mesures de torque.

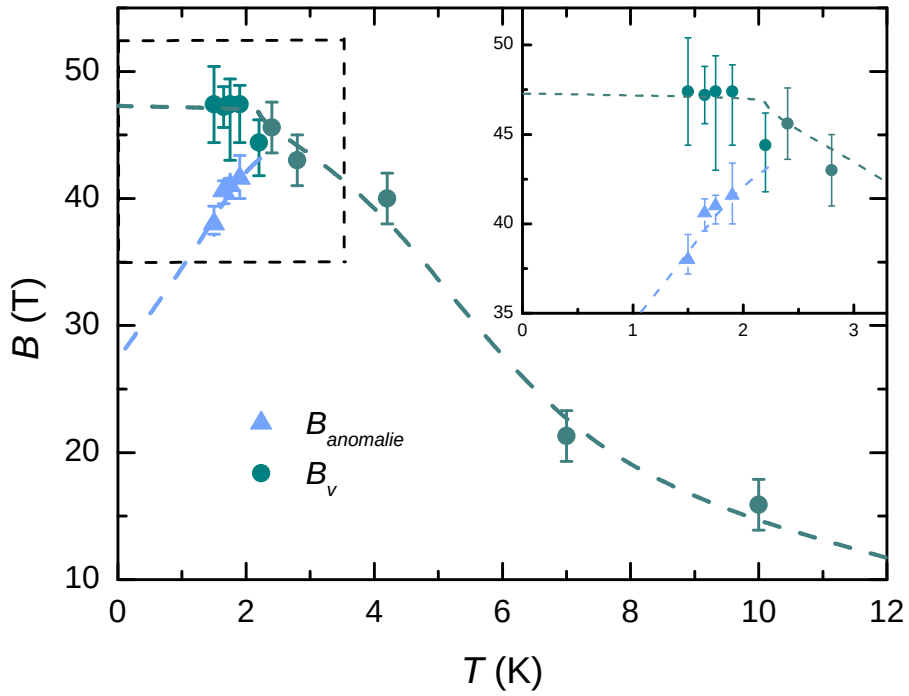

FIGURE B.4 – Diagramme de phase température - champ magnétique de LSCO, $p = 0.170$, dans le mode c_{11}. Les ronds verts indiquent B_v, lorsque le réseau de vortex se désancre du réseau cristallin, déterminé par une chute de $\Delta v/v(B)$. B_v sature en dessous de $T = 1.9K$. $B_{anomalie}$ indique la discontinuité dans la vitesse du son, définie comme un minimum dans $\partial(\Delta v/v)/\partial T$. Cette dernière va à plus haute température avec le champ magnétique et ne semble pas exister en dehors de la phase de solide de vortex. L'insert est un zoom sur la zone à basse température et fort champ magnétique.

On remarque également sur ce même diagramme de phase B.4 que le champ de désancrage du réseau de vortex semble saturer pour $T < 1.9$ K. Ce comportement est très étonnant et le premier suspect est un problème de chauffage. À ces températures l'hélium est superfluide et conduit donc très bien la chaleur. Néanmoins il est alors difficile de comprendre pourquoi dans le même temps $B_{anomalie}$ suit une dépendance en température très régulière. C'est un autre point à éclaircir.

B.4 LSCO17 N3, mode $(c_{11} - c_{12})/2$

La figure B.5 montre la dépendance en température de $\Delta v/v$ pour $0 \leqslant B \leqslant 18$ T dans l'échantillon LSCO17 N3, de dopage $p = 0.174$. Ces mesures ont été effectuées dans une bobine supraconductrice et sont complémentaires aux mesures en champs magnétiques pulsés du chapitre 6 dans ce même échantillon (voir 6.2.2). À $B = 0$ T la vitesse du son dévie de $c_0(T)$ pour $T \leqslant T_c$, montrant le durcissement dû à la phase supraconductrice, et semble saturer pour $T \to 0$. Cet effet est mis en relief en soustrayant

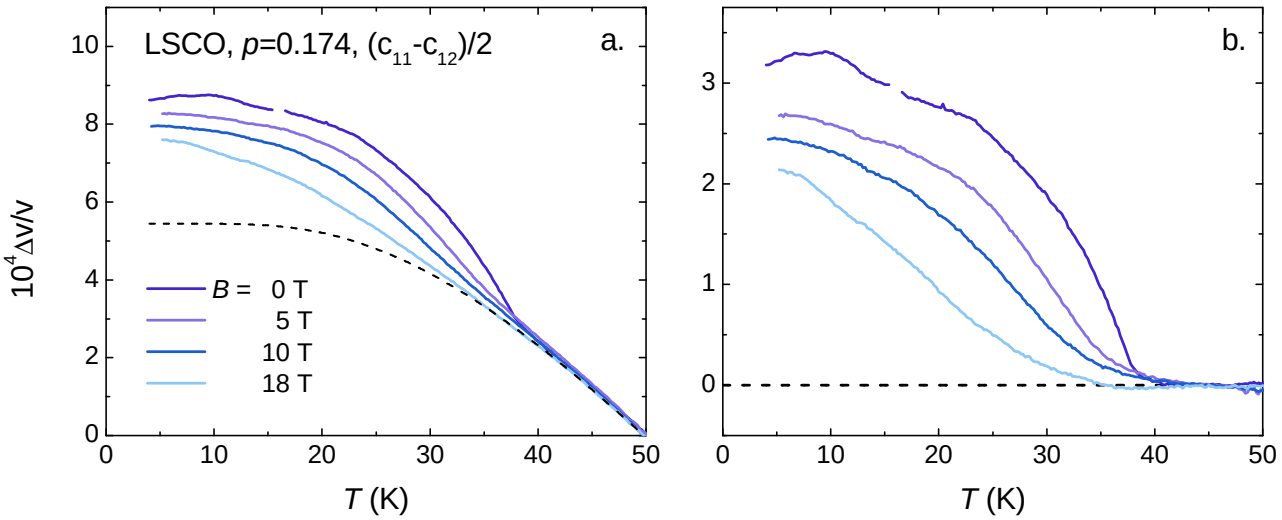

FIGURE B.5 – Vitesse du son en fonction de la température dans LSCO, $p = 0.174$ et le mode transverse $(c_{11} - c_{12})/2$ pour $0 \leqslant B \leqslant 18$ T. (a) $\Delta v/v$ en fonction de T. Les courbes sont superposées à $T = 50$ K où aucune dépendance en champ magnétique n'est observée. La ligne pointillée noire indique un ajustement de la variation normale du réseau cristallin par la formule 3.20 pour $T > T_c$. **(b)** Différence entre l'ajustement précédent et les données expérimentales. Le durcissement dans l'état supraconducteur, pour $T < T_c$, est affaibli par l'application d'un champ magnétique $B \parallel c$.

la variation du réseau à celle mesurée expérimentalement. L'effet d'un champ magnétique est totalement compatible avec le seul affaiblissement de la supraconductivité jusqu'à $B = 18$ T. En résumé il n'y a aucune indication du verre AF jusqu'à $B = 18$ T pour ce dopage de $p = 0.174$. Ces mesures sont donc cohérentes avec celles en champs magnétiques pulsés (voir 6.2.2).

Annexe C

Évolution en dopage de l'atténuation dans LSCO

À la fin de chapitre 6 l'évolution en dopage de la variation de vitesse du son dans LSCO a été résumée. Concernant l'atténuation la situation est un peu plus complexe du fait que la composante à $B = 0$ T n'a pas pu être mesurée ou estimée à tous les dopages. Dans cette annexe on propose donc de regarder l'évolution en dopage de l'atténuation *induite* par le champ magnétique, $\Delta\alpha(B) - \Delta\alpha(0)$. Tout d'abord en fonction de la température, puis en fonction du champ magnétique.

C.1 Dépendance en température

La figure C.1 résume la dépendance en température de $\Delta\alpha(B) - \Delta\alpha(0)$ en champs intenses. Pour $p = 0.122$ et $p = 0.148$ un pic est clairement visible dès $B = 20$ T. La température de ce dernier correspond à celle du gel des fluctuations de spins. À plus basses températures on observe une déplétion de l'atténuation induite par le champ magnétique. Cette dernière peut être liée à un transfert d'atténuation initié par le champ magnétique où une atténuation du son plus faible dans l'état gelé. Pour ces dopages on observe clairement que le champ magnétique permet d'augmenter la température du pic d'atténuation, *i.e.* $B \parallel c$ ralentit les fluctuations de spins.

Pour les dopages supérieurs, $p \geq 0.174$, et pour $B \leq 60$ T, aucun pic d'atténuation n'est visible. Néanmoins pour $p = 0.174$ et $p = 0.185$ on observe clairement une augmentation de l'atténuation à basse température lorsque $B = 60$ T. Les fluctuations magnétiques ralentissent à basse température mais ne sont pas gelées à la fréquence ultrasons. Ce comportement laisse penser qu'on pourrait observer un gel à plus haut champ magnétique et/ou plus basse température. C'est en effet le cas dans

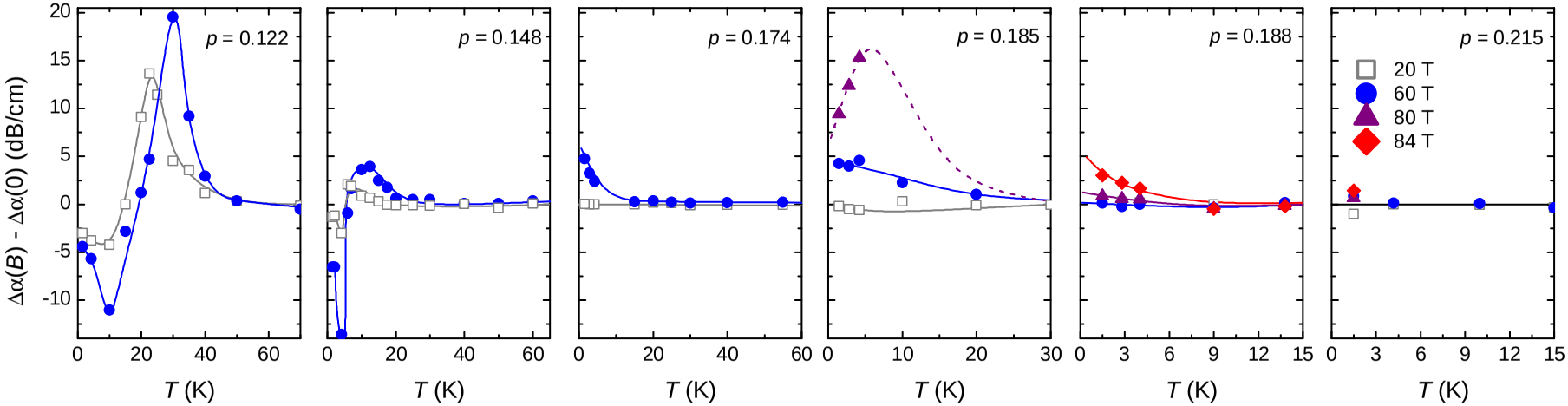

FIGURE C.1 – Évolution en dopage de la dépendance en température de $\Delta\alpha(B) - \Delta\alpha(0)$. Le mode acoustique mesuré est $(c_{11} - c_{12})/2$. Chaque panneau correspond à un dopage croissant de la gauche vers la droite, chaque symbole/couleur correspond à un champ magnétique indiqué dans la légende de droite. Notons que dans le cadre du modèle de susceptibilité dynamique l'amplitude du pic d'atténuation attribué au gel des fluctuations de spins dépend de la fréquence. Les échantillons sont mesurés à des fréquences différentes, typiquement entre 100 MHz et 400 MHz, et la comparaison est donc uniquement qualitative. Les axes des abscisses sont différents pour chaque dopage. Pour le dopage de $p = 0.215 > p^*$ aucune augmentation d'atténuation induite par le champ magnétique n'est visible jusqu'à $B = 84$ T, le champ maximal mesuré. L'échantillon LSCO16 N2 n'est pas représenté sur cette figure du fait de l'absence de mesures reproductibles d'atténuation à ce dopage. Les lignes sont des guides à l'œil.

l'échantillon de dopage $p = 0.185$ pour $B = 85$ T à $T \sim 4$ K où un pic semble bien exister. Pour $p = 0.188$ un champ magnétique de $B = 60$ T n'est pas suffisant pour observer sans ambiguïté une augmentation d'atténuation à basse température. Néanmoins c'est le cas pour $B = 84$ T. Pour le dernier dopage de $p = 0.215 > p^*$ peut importe la valeur du champ magnétique, jusqu'à $B = 84$ T, il n'y a aucune trace d'un ralentissement des fluctuations de spins. L'évolution en dopage de l'atténuation est donc compatible avec l'absence de verre AF pour $p > p^*$.

C.2 Dépendance en champ magnétique

La figure C.2 montre la dépendance en champ magnétique de l'atténuation lors d'un pulse de champ magnétique pour $T > T_g$ et $0.122 \leq p \leq 0.215$. Pour chaque dopage la température est la même que sur la figure 6.22, celle-ci est donc supérieure à T_{min} la température du minimum dans la vitesse du son en champs intenses. Cette procédure a pour but de comparer les échantillons dans des conditions *assez* similaires.

Pour $0.122 \leq p \leq 0.188$ on observe systématiquement une augmentation de l'atténuation avec le champ magnétique. Cette dernière débute dès $B = 0$ T pour $p = 0.122$ et $p = 0.148$ mais il semble y avoir un champ critique à dépasser pour l'observer à plus fort dopage. On attribue cette augmentation d'atténuation au ralentissement des fluctuations de spins et le champ critique à la compétition entre verre AF et supraconductivité. Pour $p = 0.185$ un pic est visible à $B \sim 80$ T, ce qui indique qu'on atteint alors un gel à la fréquence ultrasons des fluctuations magnétiques. L'absence d'un pic similaire aux autres dopages vient alors seulement du fait de la gamme de champ limité des mesures. Pour $p = 0.215$ aucune variation d'atténuation n'est résolue. Cette observation est encore une fois complètement cohérente avec l'absence de verre AF pour $p > p^*$.

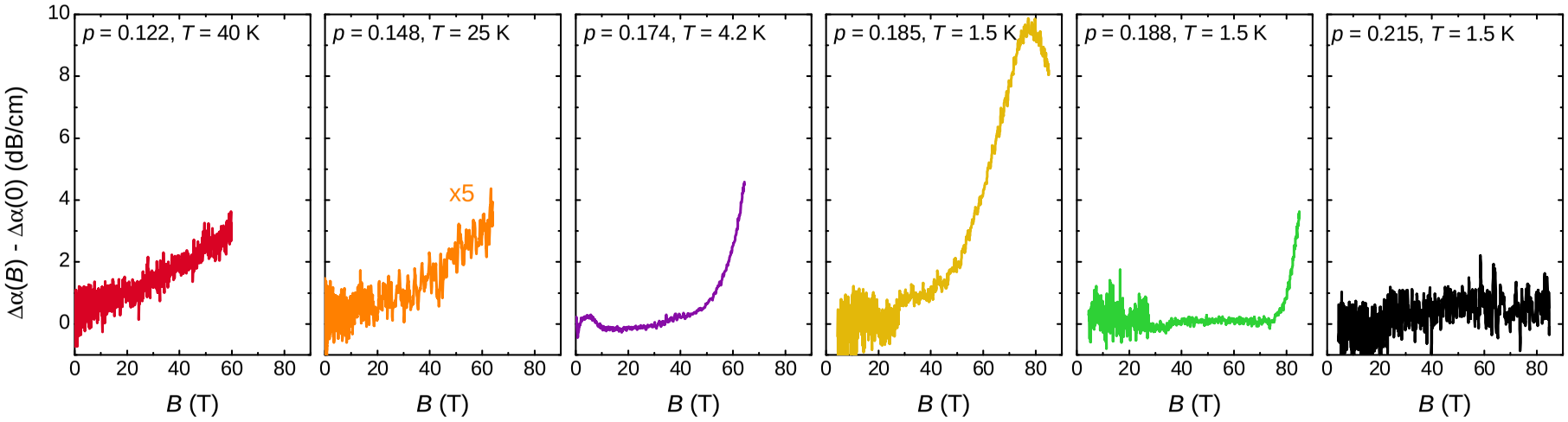

FIGURE C.2 – Atténuation ultrasonore en fonction du champ magnétique pour $T > T_g$, dans le mode transverse $(c_{11} - c_{12})/2$**.** $\Delta\alpha$ en fonction de B aux dopages et températures indiqués, normalisée par rapport à la valeur à $B = 0$ T. À chaque dopage la température choisie est supérieure à celle du gel, et plus encore $T > T_{min}$, avec T_{min} la température du minimum dans $\Delta v/v$. On observe pour $0.122 \leq p \leq 0.188$ une augmentation d'atténuation induite par B, qui correspond à un ralentissement des fluctuations de spins. Un pic est visible à $p = 0.185$ et $T = 1.5$ K pour $B \simeq 80$ T indiquant qu'alors on atteint le gel à la fréquence ultrasons. L'échantillon LSCO16 N2 n'est pas représenté sur cette figure du fait de l'absence de mesures reproductibles d'atténuation à ce dopage. Aucune dépendance en champ magnétique n'existe pour $p = 0.215$ jusqu'à $B = 86$ T. Les échantillons sont mesurés à des fréquences différentes, typiquement entre 100 MHz et 400 MHz, la comparaison est donc uniquement qualitative.

Annexe D

Saut de chaleur spécifique à T_c dans Y-123

Afin d'extraire la valeur numérique de $\mathrm{d}T_c/\mathrm{d}\epsilon_i(p)$ dans Y-123 (chapitre 7) il est nécessaire de connaitre la valeur de $\Delta C_p(T_c)/T_c$. Puisque cette mesure n'a pas été effectuée dans nos échantillons on utilise les valeurs de la littérature [206, 225–227]. Les valeurs sont reproduites sur la figure D.1. L'incertitude sur la valeur de $\Delta C_p(T_c)$ se reflète dans la dispersion des points expérimentaux, ce qui induit également une incertitude sur $\mathrm{d}T_c/\mathrm{d}\epsilon_i$.

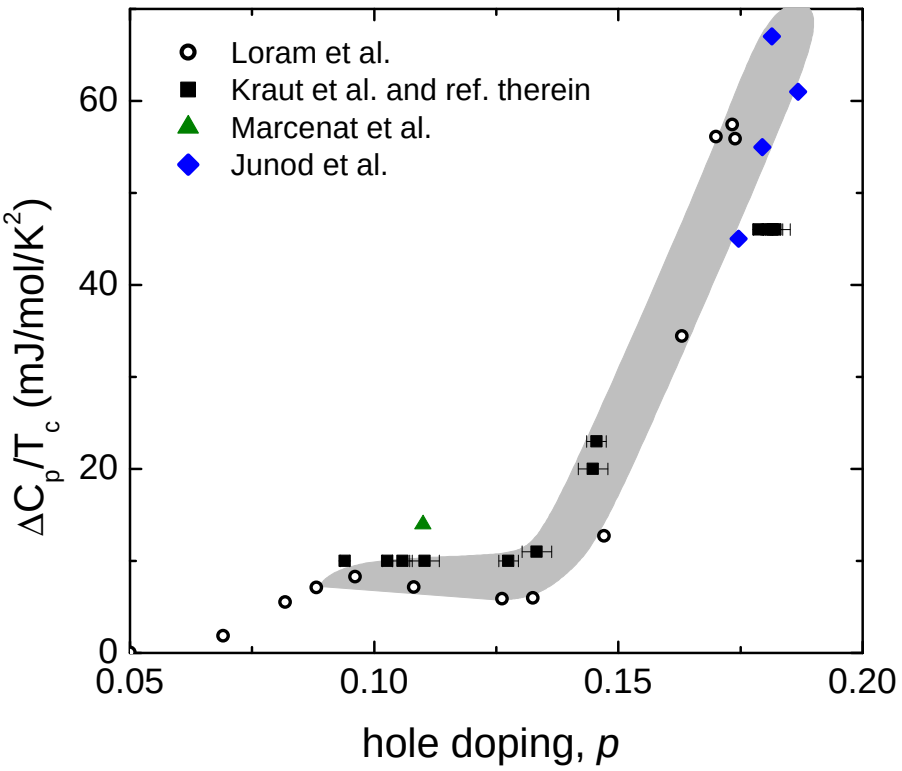

Figure D.1 – Saut de chaleur spécifique à la transition supraconductrice, normalisé par T_c, en fonction du dopage dans Y-123. Les points expérimentaux viennent de la littérature [206, 225–227]. La bande grisée met en valeur la dispersion des données expérimentales.

Remerciements

J'aimerais tout d'abord remercier Yann Gallais et Joerg Schmalian qui ont accepté d'être rapporteurs de cette thèse. Merci également à Thierry Klein, président du jury, Anna Böhmer et Johan Chang, examinateurs. Leurs questions et commentaires ont été toujours pertinents et bienveillants.

Une thèse est une aventure humaine. Pendant ces 3 années David Le Bœuf m'a fait découvrir avec enthousiasme et passion le monde de la recherche. Je lui suis très reconnaissant pour sa disponibilité, son écoute, et les tant de choses qu'il m'a fait découvrir pendant cette thèse et le stage qui l'a précédé. Il m'a offert l'opportunité de participer à de nombreuses conférences, de découvrir le milieu scientifique international, et même de participer à des projets annexes à ma thèse. Ces trois années ont donc été très enrichissantes professionnellement et humainement, et je l'en remercie.

Marc-Henri Julien a également été très important tout au long de cette thèse, très (très) loin d'un simple rôle "administratif". Du côté scientifique, le projet de mesure en champs intenses sur LSCO, une collaboration entre le groupe ultrasons et celui de RMN, a été au cœur du projet de thèse. Il a toujours été disponible pour me coacher sur une présentation, m'aider à trouver n'importe quel papier de l'immense bibliographie des cuprates, ou encore répondre à mes interrogations, aussi bien sur la physique que sur le ski ! Je garde un très bon souvenir de la (matinale) sortie ski au pic blanc du Galibier avec Igor en clôture de la saison 2018.

Plus généralement travailler de concert avec l'équipe de RMN a été un vrai plaisir. Hadrien Mayaffre a toujours été enclin à m'aider avec les présentations (à commencer par celle de l'école doctorale pour obtenir le financement de thèse), le moindre problème technique, et m'a même initié à ma première mesure de RMN (seulement du tuning, mais ça compte quand même !). L'aide technique et les discussions avec Steffen Krämer, Rui Zhou et Mladen Horvatic ont été également grandement appréciées.

Au sein de l'équipe RMN il y a l'inclassable Igor. Ça a été un immense plaisir de vivre cette thèse avec Igor dans le même bureau. Nos (longues) discussions quotidiennes ont grandement contribué à

ce manuscrit dans son ensemble et à l'analyse des données dans LSCO en particulier. Ses fantastiques pizzas, les sorties skis (mes premières conversions !) et le séjour à Cargèse sont autant d'excellents souvenirs partagés ensemble. Je lui souhaite plein de bonheur dans sa nouvelle aventure transatlantique, de la réussite pour la suite, et encore d'innombrables pentes enneigées !

J'ai également eu la chance de partager le bureau avec Shangfei Wu, avec lequel ça a été un plaisir d'échanger. Je lui souhaite de la réussite dans sa nouvelle aventure. Plus récemment c'est Anne Missiaen qui a pris la relève et appréciera - sans aucun doute possible - les trois prochaines années !

Cette thèse a été construite entre les champs magnétiques intenses statiques du site Grenoblois, et ceux pulsés du site Toulousain. Lors des nombreux déplacements à Toulouse avec David nous avons pu bénéficier de l'aide sans failles de l'équipe FFC locale. Notre merveilleuse collègue et "local contact" Siham Benhabib a toujours su nous accompagner sur l'expérience et sa bonne humeur a rendu ces séjours (intenses) très agréables. David Vignolles a également été d'une grande aide pour résoudre le lot de problèmes inhérents à ces expériences en environnement extrême, tout spécialement lors des quelques problèmes d'acquisition LabVIEW où son aide a été inestimable ! J'ai également eu la chance, en début de thèse, de croiser la route de Baptiste Vignolle, dont l'enthousiasme pour la recherche a égayé les premiers séjours à Toulouse. Merci également à lui pour avoir réalisé quelques caractérisations d'échantillons de LSCO. À Toulouse toujours j'ai rencontré Benoît Fauqué et sa bonne humeur communicative. Les mesures d'ultrasons effectuées alors sur le graphite ont mené à ma première signature d'une publication scientifique ! Enfin vient Cyril Proust qui a toujours su être disponible pour donner un coup de main et discuter des résultats. Au-delà des expériences en champs pulsés Cyril a été d'une grande aide pour l'écriture de ce manuscrit, de par une relecture minutieuse et des commentaires toujours pertinents. C'est avec une grande gentillesse qu'il m'a écouté et conseillé à la fin de cette thèse, alors que j'avais plein (sûrement trop) de questions en tête !

Avec ces réguliers allers-retours entre Grenoble et Toulouse j'ai régulièrement sollicité Natacha Hubert et Dominique Vitiello. Un grand merci à elles ! Je n'oublie pas Amélie Pic et Alexandra Gasparini qui ont toutes deux toujours répondu avec gentillesse à mes demandes et questions avec une efficacité sans égal.

Les équipes techniques aussi bien du site de Grenoble que de celui de Toulouse ont toujours répondu présent au moindre problème. Je pense tout particulièrement à Jean-Pierre Nicolin, Abdelaziz Zitouni, Jérôme Béard, Tristan Moraine, Marc Nardone et Nicolas Bruyant sur le site de Toulouse, Benjamin

Vincent, Eyub Yildiz, Robert Pankow, Romain Barbier, Julien Jousset et Cédric Grandclément sur le site de Grenoble. Merci à eux et à l'ensemble des équipes techniques ! Durant cette thèse j'ai également eu l'aide importante de Jérôme Debray pour orienter et couper les échantillons de LSCO, une tâche souvent fastidieuse. Merci !

L'analyse des données ultrasonores est une tâche complexe. Je tiens à remercier Indranil Paul pour les discussions concernant le couplage entre paramètres d'ordre et déformation, et ses explications sur les mécanismes microscopiques du couplage électron-phonon. Nicolas Laflorencie a également apporté son aide dans la compréhension de l'effet du champ magnétique sur la phase verre AF de LSCO.

L'ambiance à Toulouse et Grenoble aurait été bien différente sans la présence de Armelle, Leonid, Artur, Diana, Benjamin, Kévin et beaucoup d'autres. À la prochaine !

Finalement pendant ces trois années j'ai pu compter sur le soutien de ma famille que je remercie, et sur les deux dernières de Inna, la plus belle découverte de cette thèse !

Bibliographie

[1] J. Bardeen, L. N. Cooper, and J. R. Schrieffer. Theory of superconductivity. *Phys. Rev.*, 108 :1175–1204, 1957.

[2] J. G. Bednorz and K. A. Müller. Possible high-T_c superconductivity in the Ba−La−Cu−O system. *Zeitschrift für Physik B Condensed Matter*, 64(2) :189–193, 1986.

[3] A. Hikata, M. J. McKenna, C. Elbaum, R. Kershaw, and A. Wold. Ultrasonic studies of the relation between two-level-tunneling systems, oxygen content, and superconducting transition temperature in $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. *Phys. Rev. B*, 40 :5247–5250, 1989.

[4] D. LeBoeuf and al. Thermodynamic phase diagram of static charge order in underdoped $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. *Nature Physics*, 9 :79–83, 2013.

[5] A. Shekhter and al. Bounding the pseudogap with a line of phase transitions in $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. *Nature*, 498 :75–77, 2013.

[6] Wu T., Mayaffre H., Krämer S., Berthier C. Horvatić M., Hardy W. N., Liang R., Bonn D. A., and Julien M.-H. Magnetic-field-induced charge-stripe order in the high-temperature superconductor $YBa_2Cu_3O_y$. *Nature*, 477 :191–194, 2011.

[7] Eduardo Fradkin and Steven A. Kivelson. Ineluctable complexity. *Nature Physics*, 8 :864–866, 2012.

[8] N. P. Armitage, P. Fournier, and R. L. Greene. Progress and perspectives on electron-doped cuprates. *Rev. Mod. Phys.*, 82 :2421–2487, 2010.

[9] Y. Wang et al. Real-space observation of charge ordering in epitaxial $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ films. *npj Quantum Materials*, 4, 2019.

[10] I. Vinograd. *Etudes par résonance magnétique nucléaire des ordres en compétition dans les cuprates supraconducteurs.* PhD thesis, Laboratoire National des Champs Magnétiques Intenses, CNRS, Grenoble, 2018.

[11] S. Uchida, T. Ido, H. Takagi, T. Arima, Y. Tokura, and S. Tajima. Optical spectra of $La_{2-x}Sr_xCuO_4$: Effect of carrier doping on the electronic structure of the CuO_2 plane. *Phys. Rev. B*, 43 :7942–7954, 1991.

[12] N. F. Mott. The basis of the electron theory of metals, with special reference to the transition metals. *Proceedings of the Physical Society. Section A*, 62(7) :416–422, 1949.

[13] N. S. Headings, S. M. Hayden, R. Coldea, and T. G. Perring. Anomalous high-energy spin excitations in the high-T_c superconductor-parent antiferromagnet La_2CuO_4. *Phys. Rev. Lett.*, 105 :247001, 2010.

[14] A. Bianconi, J. Budnick, A.M. Flank, A. Fontaine, P. Lagarde, A. Marcelli, H. Tolentino, B. Chamberland, C. Michel, B. Raveau, and G. Demazeau. Evidence of 3d9-ligand hole states in the superconductor $La_{1.85}Sr_{0.15}CuO_4$ from L3 x-ray absorption spectroscopy. *Physics Letters A*, 127(5) :285 – 291, 1988.

[15] N. Hussey et al. A coherent three-dimensional fermi surface in a high-transition-temperature superconductor. *Nature*, 425 :814–817, 2003.

[16] A. P. Mackenzie, S. R. Julian, D. C. Sinclair, and C. T. Lin. Normal-state magnetotransport in superconducting $Tl_2Ba_2CuO_{6+\delta}$ to millikelvin temperatures. *Phys. Rev. B*, 53 :5848–5855, 1996.

[17] M. Platé, J. D. F. Mottershead, I. S. Elfimov, D. C. Peets, Ruixing Liang, D. A. Bonn, W. N. Hardy, S. Chiuzbaian, M. Falub, M. Shi, L. Patthey, and A. Damascelli. Fermi surface and quasiparticle excitations of overdoped $Tl_2Ba_2CuO_{6+\delta}$. *Phys. Rev. Lett.*, 95 :077001, 2005.

[18] B. Vignolle, D. Vignolles, D. LeBoeuf, S. Lepault, B. Ramshaw, R. Liang, D. A. Bonn, W. N. Hardy, N. Doiron-Leyraud, A. Carrington, N. E. Hussey, L. Taillefer, and C. Proust. Quantum oscillations in an overdoped high-T_c superconductor. *Nature*, 455, 2008.

[19] Cyril Proust and Louis Taillefer. The remarkable underlying ground states of cuprate superconductors. *Annual Review of Condensed Matter Physics*, 10(1) :409–429, 2019.

[20] S. Nakamae, K. Behnia, N. Mangkorntong, M. Nohara, H. Takagi, S. J. C. Yates, and N. E. Hussey. Electronic ground state of heavily overdoped nonsuperconducting $La_{2-x}Sr_xCuO_4$. *Phys. Rev. B*, 68 :100502, 2003.

[21] Cyril Proust, Etienne Boaknin, R. W. Hill, Louis Taillefer, and A. P. Mackenzie. Heat transport in a strongly overdoped cuprate : Fermi liquid and a pure d-wave BCS superconductor. *Phys. Rev. Lett.*, 89 :147003, 2002.

[22] B. Michon, A. Ataei, P. Bourgeois-Hope, C. Collignon, S. Y. Li, S. Badoux, A. Gourgout, F. Laliberté, J.-S. Zhou, Nicolas Doiron-Leyraud, and Louis Taillefer. Wiedemann-franz law and abrupt change in conductivity across the pseudogap critical point of a cuprate superconductor. *Phys. Rev. X*, 8 :041010, 2018.

[23] P. M. C. Rourke, A. F. Bangura, T. M. Benseman, M. Matusiak, J. R. Cooper, A. Carrington, and N. E. Hussey. A detailed de haas–van alphen effect study of the overdoped cuprate Tl2201. *New Journal of Physics*, 12(10) :105009, 2010.

[24] David J. Singh and Warren E. Pickett. Electronic characteristics of Tl2201 : Fermi surface, positron wavefunction, electric field gradients, and transport parameters. *Physica C : Superconductivity*, 203(1) :193 – 202, 1992.

[25] Tom Timusk and Bryan Statt. The pseudogap in high-temperature superconductors : an experimental survey. *Reports on Progress in Physics*, 62(1) :61–122, 1999.

[26] Takashi Imai, Tadashi Shimizu, Hiroshi Yasuoka, Yutaka Ueda, and Koji Kosuge. Anomalous temperature dependence of cu nuclear spin-lattice relaxation in $YBa_2Cu_3O_{6.91}$. *Journal of the Physical Society of Japan*, 57(7) :2280–2283, 1988.

[27] H. Alloul, T. Ohno, and P. Mendels. ^{89}Y NMR evidence for a fermi-liquid behavior in $YBa_2Cu_3O_{6+x}$. *Phys. Rev. Lett.*, 63 :1700–1703, 1989.

[28] David C. Johnston. Magnetic susceptibility scaling in $La_{2-x}Sr_xCuO_{4-y}$. *Phys. Rev. Lett.*, 62 :957–960, 1989.

[29] T. Nakano, M. Oda, C. Manabe, N. Momono, Y. Miura, and M. Ido. Magnetic properties and electronic conduction of superconducting $La_{2-x}Sr_xCuO_4$. *Phys. Rev. B*, 49 :16000–16008, 1994.

[30] M. R. Norman, D. Pines, and C. Kallin. The pseudogap : friend or foe of high T_c ? *Advances in Physics*, 54(8) :715–733, 2005.

[31] T. Yoshida, X. J. Zhou, T. Sasagawa, W. L. Yang, P. V. Bogdanov, A. Lanzara, Z. Hussain, T. Mizokawa, A. Fujimori, H. Eisaki, Z.-X. Shen, T. Kakeshita, and S. Uchida. Metallic behavior of lightly doped $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ with a fermi surface forming an arc. *Phys. Rev. Lett.*, 91 :027001, 2003.

[32] H. Takagi, T. Ido, S. Ishibashi, M. Uota, S. Uchida, and Y. Tokura. Superconductor-to-nonsuperconductor transition in $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ as investigated by transport and magnetic measurements. *Phys. Rev. B*, 40 :2254–2261, 1989.

[33] H. Ding et al. Spectroscopic evidence for a pseudogap in the normal state of underdoped high-T_c superconductors. *Nature*, 382 :51–54, 1996.

[34] T. Yoshida, W. Malaeb, S. Ideta, D. H. Lu, R. G. Moor, Z.-X. Shen, M. Okawa, T. Kiss, K. Ishizaka, S. Shin, Seiki Komiya, Yoichi Ando, H. Eisaki, S. Uchida, and A. Fujimori. Coexistence of a pseudogap and a superconducting gap for the high $-T_c$ superconductor $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ studied by angle-resolved photoemission spectroscopy. *Phys. Rev. B*, 93 :014513, 2016.

[35] C. E. Matt, C. G. Fatuzzo, Y. Sassa, M. Månsson, S. Fatale, V. Bitetta, X. Shi, S. Pailhès, M. H. Berntsen, T. Kurosawa, M. Oda, N. Momono, O. J. Lipscombe, S. M. Hayden, J.-Q. Yan, J.-S. Zhou, J. B. Goodenough, S. Pyon, T. Takayama, H. Takagi, L. Patthey, A. Bendounan, E. Razzoli, M. Shi, N. C. Plumb, M. Radovic, M. Grioni, J. Mesot, O. Tjernberg, and J. Chang. Electron scattering, charge order, and pseudogap physics in $La_{1.6-x}Nd_{0.4}Sr_xCuO_4$: An angle-resolved photoemission spectroscopy study. *Phys. Rev. B*, 92 :134524, 2015.

[36] E Razzoli, Y Sassa, G Drachuck, M Månsson, A Keren, M Shay, M H Berntsen, O Tjernberg, M Radovic, J Chang, S Pailhès, N Momono, M Oda, M Ido, O J Lipscombe, S M Hayden, L Patthey, J Mesot, and M Shi. The fermi surface and band folding in $La_{2-x}Sr_xCuO_4$, probed by angle-resolved photoemission. *New Journal of Physics*, 12(12) :125003, 2010.

[37] N. E. Hussey, K. Takenaka, and H. Takagi. Universality of the mott–ioffe–regel limit in metals. *Philosophical Magazine*, 84(27) :2847–2864, 2004.

[38] K. Takenaka, J. Nohara, R. Shiozaki, and S. Sugai. Incoherent charge dynamics of $La_{2-x}Sr_xCuO_4$: Dynamical localization and resistivity saturation. *Phys. Rev. B*, 68 :134501, 2003.

[39] F. Laliberte, W. Tabis, S. Badoux, B. Vignolle, D. Destraz, N. Momono, T. Kurosawa, K. Yamada, H. Takagi, and N. Doiron-Leyraud. Origin of the metal-to-insulator crossover in cuprate superconductors. *arXiv e-prints*, page arXiv :1606.04491, 2016.

[40] Yoichi Ando, Seiki Komiya, Kouji Segawa, S. Ono, and Y. Kurita. Electronic phase diagram of high-T_c cuprate superconductors from a mapping of the in-plane resistivity curvature. *Phys. Rev. Lett.*, 93 :267001, 2004.

[41] S. Badoux et al. Change of carrier density at the pseudogap critical point of a cuprate superconductor. *Nature*, 531 :210–214, 2016.

[42] C. Collignon, S. Badoux, S. A. A. Afshar, B. Michon, F. Laliberté, O. Cyr-Choinière, J.-S. Zhou, S. Licciardello, S. Wiedmann, N. Doiron-Leyraud, and Louis Taillefer. Fermi-surface transfor-

mation across the pseudogap critical point of the cuprate superconductor $La_{1.6}Nd_{0.4}Sr_xCuO_4$. *Phys. Rev. B*, 95 :224517, 2017.

[43] Andreas Eberlein, Walter Metzner, Subir Sachdev, and Hiroyuki Yamase. Fermi surface reconstruction and drop in the hall number due to spiral antiferromagnetism in high-T_c cuprates. *Phys. Rev. Lett.*, 117 :187001, 2016.

[44] O. Cyr-Choinière, R. Daou, F. Laliberté, C. Collignon, S. Badoux, D. LeBoeuf, J. Chang, B. J. Ramshaw, D. A. Bonn, W. N. Hardy, R. Liang, J.-Q. Yan, J.-G. Cheng, J.-S. Zhou, J. B. Goodenough, S. Pyon, T. Takayama, H. Takagi, N. Doiron-Leyraud, and Louis Taillefer. Pseudogap temperature T^* of cuprate superconductors from the nernst effect. *Phys. Rev. B*, 97 :064502, 2018.

[45] Yayu Wang, Z. A. Xu, T. Kakeshita, S. Uchida, S. Ono, Yoichi Ando, and N. P. Ong. Onset of the vortexlike nernst signal above T_c in $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ and $Bi_2Sr_{2-y}La_yCuO_6$. *Phys. Rev. B*, 64 :224519, 2001.

[46] Z. A. Xu et al. Vortex-like excitations and the onset of superconducting phase fluctuation in underdoped $La_{2-x}Sr_xCuO_4$. *Nature*, 406 :486–488, 2000.

[47] J. L. Tallon, C. Bernhard, H. Shaked, R. L. Hitterman, and J. D. Jorgensen. Generic superconducting phase behavior in high-T_c cuprates : T_c variation with hole concentration in $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. *Phys. Rev. B*, 51 :12911–12914, 1995.

[48] Hidekazu Mukuda, Sunao Shimizu, Akira Iyo, and Yoshio Kitaoka. High-T_c superconductivity and antiferromagnetism in multilayered copper oxides –a new paradigm of superconducting mechanism–. *Journal of the Physical Society of Japan*, 81(1) :011008, 2012.

[49] G. Grissonnanche et al. Direct measurement of the upper critical field in cuprate superconductors. *Nature Communications*, 5, 2014.

[50] G. Blatter, M. V. Feigel'man, V. B. Geshkenbein, A. I. Larkin, and V. M. Vinokur. Vortices in high-temperature superconductors. *Rev. Mod. Phys.*, 66 :1125–1388, 1994.

[51] C. C. Tsuei and J. R. Kirtley. Pairing symmetry in cuprate superconductors. *Rev. Mod. Phys.*, 72 :969–1016, 2000.

[52] P. Monthoux, D. Pines, and G. G. Lonzarich. Superconductivity without phonons. *Nature*, 450 :1177–1180, 2007.

[53] Z.-X. Shen, D. S. Dessau, B. O. Wells, D. M. King, W. E. Spicer, A. J. Arko, D. Marshall, L. W. Lombardo, A. Kapitulnik, P. Dickinson, S. Doniach, J. DiCarlo, T. Loeser, and C. H. Park. Anomalously large gap anisotropy in the a-b plane of $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$. *Phys. Rev. Lett.*, 70 :1553–1556, 1993.

[54] W. N. Hardy, D. A. Bonn, D. C. Morgan, Ruixing Liang, and Kuan Zhang. Precision measurements of the temperature dependence of λ in $YBa_2Cu_3O_{6.95}$: Strong evidence for nodes in the gap function. *Phys. Rev. Lett.*, 70 :3999–4002, 1993.

[55] N. Miyakawa, P. Guptasarma, J. F. Zasadzinski, D. G. Hinks, and K. E. Gray. Strong dependence of the superconducting gap on oxygen doping from tunneling measurements on $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8-\delta}$. *Phys. Rev. Lett.*, 80 :157–160, 1998.

[56] Louis Taillefer, Benoit Lussier, Robert Gagnon, Kamran Behnia, and Hervé Aubin. Universal heat conduction in $YBa_2Cu_3O_{6.9}$. *Phys. Rev. Lett.*, 79 :483–486, 1997.

[57] C. Bernhard, J. L. Tallon, C. Bucci, R. De Renzi, G. Guidi, G. V. M. Williams, and Ch. Niedermayer. Suppression of the superconducting condensate in the high-T_c cuprates by Zn substitution and overdoping : Evidence for an unconventional pairing state. *Phys. Rev. Lett.*, 77 :2304–2307, 1996.

[58] M. Hashimoto et al. Energy gaps in high-transition-temperature cuprate superconductors. *Nature Physics*, 10 :483–495, 2014.

[59] J. M. Tranquada, B. J. Sternlieb, J. D. Axe, Y. Nakamura, and S. Uchida. Evidence for stripe correlations of spins and holes in copper oxide superconductors. *Nature*, 375 :561–563, 1995.

[60] S-W. Cheong, G. Aeppli, T. E. Mason, H. Mook, S. M. Hayden, P. C. Canfield, Z. Fisk, K. N. Clausen, and J. L. Martinez. Incommensurate magnetic fluctuations in $La_{2-x}Sr_xCuO_4$. *Phys. Rev. Lett.*, 67 :1791–1794, 1991.

[61] Jan Zaanen and Olle Gunnarsson. Charged magnetic domain lines and the magnetism of high-T_c oxides. *Phys. Rev. B*, 40 :7391–7394, 1989.

[62] J. M. Tranquada, J. D. Axe, N. Ichikawa, A. R. Moodenbaugh, Y. Nakamura, and S. Uchida. Coexistence of, and competition between, superconductivity and charge-stripe order in $La_{1.6-x}Nd_{0.4}Sr_xCuO_4$. *Phys. Rev. Lett.*, 78 :338–341, 1997.

[63] M. Hücker, M. v. Zimmermann, G. D. Gu, Z. J. Xu, J. S. Wen, Guangyong Xu, H. J. Kang, A. Zheludev, and J. M. Tranquada. Stripe order in superconducting $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ ($0.095 \leqslant x \leqslant 0.155$). *Phys. Rev. B*, 83 :104506, 2011.

[64] M. Hücker, M. v. Zimmermann, Z. J. Xu, J. S. Wen, G. D. Gu, and J. M. Tranquada. Enhanced charge stripe order of superconducting $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ in a magnetic field. *Phys. Rev. B*, 87 :014501, 2013.

[65] K. A. Moler. How the cuprates hid their stripes. *Nature*, 468 :643–644, 2010.

[66] M. Hücker, M. v. Zimmermann, M. Debessai, J. S. Schilling, J. M. Tranquada, and G. D. Gu. Spontaneous symmetry breaking by charge stripes in the high pressure phase of superconducting $La_{1.875}Ba_{0.125}CuO_4$. *Phys. Rev. Lett.*, 104 :057004, 2010.

[67] Jinsheng Wen, Qing Jie, Qiang Li, M. Hücker, M. v. Zimmermann, Su Jung Han, Zhijun Xu, D. K. Singh, R. M. Konik, Liyuan Zhang, Genda Gu, and J. M. Tranquada. Uniaxial linear resistivity of superconducting $La_{1.905}Sr_{0.095}CuO_4$ induced by an external magnetic field. *Phys. Rev. B*, 85 :134513, 2012.

[68] M Fujita, M Matsuda, H Goka, T Adachi, Y Koike, and K Yamada. Magnetic field-effect on static spin correlation in stripe ordered phase of $La_{2-x}Ba_xCuO_4$. *Journal of Physics : Conference Series*, 51 :510–513, 2006.

[69] J. Chang, Ch. Niedermayer, R. Gilardi, N. B. Christensen, H. M. Rønnow, D. F. McMorrow, M. Ay, J. Stahn, O. Sobolev, A. Hiess, S. Pailhes, C. Baines, N. Momono, M. Oda, M. Ido, and J. Mesot. Tuning competing orders in $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ cuprate superconductors by the application of an external magnetic field. *Phys. Rev. B*, 78 :104525, 2008.

[70] M. Nohara, T. Suzuki, Y. Maeno, T. Fujita, I. Tanaka, and H. Kojima. Interplay between lattice softening and high-T_c superconductivity in $La_{1.86}Sr_{0.14}CuO_4$. *Phys. Rev. Lett.*, 70 :3447–3450, 1993.

[71] T. P. Croft, C. Lester, M. S. Senn, A. Bombardi, and S. M. Hayden. Charge density wave fluctuations in $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ and their competition with superconductivity. *Phys. Rev. B*, 89 :224513, 2014.

[72] J. J. Wen, H. Huang, S. J. Lee, H. Jang, J. Knight, Y. S. Lee, M. Fujita, K. M. Suzuki, S. Asano, S. A. Kivelson, C. C. Kao, and J. S. Lee. Observation of intertwined density-wave orders and superconductivity in $La_{2-x}Sr_xCuO_4$. *arXiv e-prints*, page arXiv :1810.10600, 2018.

[73] M. Kofu, S.-H. Lee, M. Fujita, H.-J. Kang, H. Eisaki, and K. Yamada. Hidden quantum spin-gap state in the static stripe phase of high-temperature $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ superconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 102 :047001, 2009.

[74] J. E. Hoffman, K. McElroy, D.-H. Lee, K. M Lang, H. Eisaki, S. Uchida, and J. C. Davis. Imaging quasiparticle interference in $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+x}$. *Science*, 297(5584) :1148–1151, 2002.

[75] C. Howald, H. Eisaki, N. Kaneko, M. Greven, and A. Kapitulnik. Periodic density-of-states modulations in superconducting $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$. *Phys. Rev. B*, 67 :014533, 2003.

[76] C. Howald, H. Eisaki, N. Kaneko, and A. Kapitulnik. Coexistence of periodic modulation of quasiparticle states and superconductivity in $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 100(17) :9705–9709, 2003.

[77] W. D. Wise, M. C. Boyer, Kamalesh Chatterjee, Takeshi Kondo, T. Takeuchi, H. Ikuta, Yayu Wang, and E. W. Hudson. Charge-density-wave origin of cuprate checkerboard visualized by scanning tunnelling microscopy. *Nature*, 4 :696–699, 2008.

[78] T. Hanaguri, C. Lupien, Y. Kohsaka, D.-H. Lee, M. Azuma, M. Takano, H. Takagi, and J. C. Davis. A 'checkerboard' electronic crystal state in lightly hole-doped $Ca_{2-x}Na_xCuO_2Cl$. *Nature*, 430 :1001–1005, 2004.

[79] R. Comin, A. Frano, M. M. Yee, Y. Yoshida, H. Eisaki, E. Schierle, E. Weschke, R. Sutarto, F. He, A. Soumyanarayanan, Yang He, M. Le Tacon, I. S. Elfimov, Jennifer E. Hoffman, G. A. Sawatzky, B. Keimer, and A. Damascelli. Charge order driven by fermi-arc instability in $Bi_2Sr_{2-x}La_xCuO_{6+x}$. *Science*, 343(6169) :390–392, 2014.

[80] Doiron-Leyraud N., Proust C., LeBoeuf D., Levallois J., Bonnemaison J.-B., Liang R., Bonn D.A., Hardy W. N., and Taillefer Louis. Quantum oscillations and the fermi surface in an underdoped high-T_c superconductor. *Nature*, 447 :565–568, 2007.

[81] D. LeBoeuf, N. Doiron-Leyraud, J. Levallois, R. Daou, J.-B. Bonnemaison, N. E. Hussey, L. Balicas, B.J. Ramshaw, R. Liang, D. A. Bonn, W. N. Hardy, S. Adachi, C. Proust, and Louis Taillefer. Electron pockets in the fermi surface of hole-doped high-T_c superconductors. *Nature*, 450 :533–536, 2007.

[82] A. F. Bangura, J. D. Fletcher, A. Carrington, J. Levallois, M. Nardone, B. Vignolle, P. J. Heard, N. Doiron-Leyraud, D. LeBoeuf, L. Taillefer, S. Adachi, C. Proust, and N. E. Hussey. Small fermi surface pockets in underdoped high temperature superconductors : Observation of shubnikov–de haas oscillations in $YBa_2Cu_4O_8$. *Phys. Rev. Lett.*, 100 :047004, 2008.

[83] David LeBoeuf, Nicolas Doiron-Leyraud, B. Vignolle, Mike Sutherland, B. J. Ramshaw, J. Levallois, R. Daou, Francis Laliberté, Olivier Cyr-Choinière, Johan Chang, Y. J. Jo, L. Balicas, Ruixing Liang, D. A. Bonn, W. N. Hardy, Cyril Proust, and Louis Taillefer. Lifshitz critical point

in the cuprate superconductor $YBa_2Cu_3O_y$ from high-field hall effect measurements. *Phys. Rev. B*, 83 :054506, 2011.

[84] G. Ghiringhelli, M. Le Tacon, M. Minola, S. Blanco-Canosa, C. Mazzoli, N. B. Brookes, G. M. De Luca, A. Frano, D. G. Hawthorn, F. He, T. Loew, M. Moretti Sala, D. C. Peets, M. Salluzzo, E. Schierle, R. Sutarto, G. A. Sawatzky, E. Weschke, B. Keimer, and L. Braicovich. Long-range incommensurate charge fluctuations in $(Y,Nd)Ba_2Cu_3O_{6+x}$. *Science*, 337(6096) :821–825, 2012.

[85] Chang J., Blackburn E., Holmes A. T., Christensen N. B., Larsen J., Mesot J., Liang R., Bonn D. A., Hardy W. N., Watenphul A., Zimmermann M. v., Forgan E. M., and Hayden S. M. Direct observation of competition between superconductivity and charge density wave order in $YBa_2Cu_3O_{6.67}$. *Nature Physics*, 477 :871–876, 2012.

[86] S. Blanco-Canosa, A. Frano, E. Schierle, J. Porras, T. Loew, M. Minola, M. Bluschke, E. Weschke, B. Keimer, and M. Le Tacon. Resonant x-ray scattering study of charge-density wave correlations in $YBa_2Cu_3O_{6+x}$. *Phys. Rev. B*, 90 :054513, 2014.

[87] M. Hücker, N. B. Christensen, A. T. Holmes, E. Blackburn, E. M. Forgan, Ruixing Liang, D. A. Bonn, W. N. Hardy, O. Gutowski, M. v. Zimmermann, S. M. Hayden, and J. Chang. Competing charge, spin, and superconducting orders in underdoped $YBa_2Cu_3O_y$. *Phys. Rev. B*, 90 :054514, 2014.

[88] F. Laliberté, M. Frachet, S. Benhabib, B. Borgnic, T. Loew, M. Le Tacon, B. Keimer, S. Wiedmann, C. Proust, and D. LeBoeuf. High field charge order across the phase diagram of $YBa_2Cu_3O_y$. *npj Quantum Materials*, 11, 2018.

[89] S. Caprara, C. Di Castro, G. Seibold, and M. Grilli. Dynamical charge density waves rule the phase diagram of cuprates. *Phys. Rev. B*, 95 :224511, 2017.

[90] X. Montiel, T. Kloss, and C. Pépin. Effective su(2) theory for the pseudogap state. *Phys. Rev. B*, 95 :104510, 2017.

[91] H. Jang, W.-S. Lee, H. Nojiri, S. Matsuzawa, H. Yasumura, L. Nie, A. V. Maharaj, S. Gerber, Y.-J. Liu, A. Mehta, D. A. Bonn, R. Liang, W. N. Hardy, C. A. Burns, Z. Islam, S. Song, J. Hastings, T. P. Devereaux, Z.-X. Shen, S. A. Kivelson, C.-C. Kao, D. Zhu, and J.-S. Lee. Ideal charge-density-wave order in the high-field state of superconducting $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 113(51) :14645–14650, 2016.

[92] S. Gerber, H. Jang, H. Nojiri, S. Matsuzawa, H. Yasumura, D. A. Bonn, R. Liang, W. N. Hardy, Z. Islam, A. Mehta, S. Song, M. Sikorski, D. Stefanescu, Y. Feng, S. A. Kivelson, T. P. Devereaux,

Z.-X. Shen, C.-C. Kao, W.-S. Lee, D. Zhu, and J.-S. Lee. Three-dimensional charge density wave order in $YBa_2Cu_3O_{6.67}$ at high magnetic fields. *Science*, 350(6263) :949–952, 2015.

[93] H.-H. Kim, S. M. Souliou, M. E. Barber, E. Lefrançois, M. Minola, M. Tortora, R. Heid, N. Nandi, R. A. Borzi, G. Garbarino, A. Bosak, J. Porras, T. Loew, M. König, P. J. W. Moll, A. P. Mackenzie, B. Keimer, C. W. Hicks, and M. Le Tacon. Uniaxial pressure control of competing orders in a high-temperature superconductor. *Science*, 362(6418) :1040–1044, 2018.

[94] N. Barišić, S. Badoux, M. K. Chan, D. Chelsey, W. Tabis, B. Vignolle, G. Yu, J. Béard, X. Zhao, C. Proust, and M. Greven. Universal quantum oscillations in the underdoped cuprate superconductors. *Nature Physics*, 9 :761–764, 2013.

[95] D Haug, V Hinkov, Y Sidis, P Bourges, N B Christensen, A Ivanov, T Keller, C T Lin, and B Keimer. Neutron scattering study of the magnetic phase diagram of underdoped $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. *New Journal of Physics*, 12(10) :105006, 2010.

[96] D. Haug, V. Hinkov, A. Suchaneck, D. S. Inosov, N. B. Christensen, Ch. Niedermayer, P. Bourges, Y. Sidis, J. T. Park, A. Ivanov, C. T. Lin, J. Mesot, and B. Keimer. Magnetic-field-enhanced incommensurate magnetic order in the underdoped high-temperature superconductor $YBa_2Cu_3\mathbf{O}_{6.45}$. *Phys. Rev. Lett.*, 103 :017001, 2009.

[97] K. Yamada, C. H. Lee, K. Kurahashi, J. Wada, S. Wakimoto, S. Ueki, H. Kimura, Y. Endoh, S. Hosoya, G. Shirane, R. J. Birgeneau, M. Greven, M. A. Kastner, and Y. J. Kim. Doping dependence of the spatially modulated dynamical spin correlations and the superconducting-transition temperature in $La_{2-x}Sr_xCuO_4$. *Phys. Rev. B*, 57 :6165–6172, 1998.

[98] M. Fujita, K. Yamada, H. Hiraka, P. M. Gehring, S. H. Lee, S. Wakimoto, and G. Shirane. Static magnetic correlations near the insulating-superconducting phase boundary in $La_{2-x}Sr_xCuO_4$. *Phys. Rev. B*, 65 :064505, 2002.

[99] S. Wakimoto, R. J. Birgeneau, M. A. Kastner, Y. S. Lee, R. Erwin, P. M. Gehring, S. H. Lee, M. Fujita, K. Yamada, Y. Endoh, K. Hirota, and G. Shirane. Direct observation of a one-dimensional static spin modulation in insulating $La_{1.95}Sr_{0.05}CuO_4$. *Phys. Rev. B*, 61 :3699–3706, 2000.

[100] M.-H. Julien. Magnetic order and superconductivity in $La_{2-x}Sr_xCuO_4$: a review. *Physica B : Condensed Matter*, 329-333 :693 – 696, 2003. Proceedings of the 23rd International Conference on Low Temperature Physics.

[101] V. Thampy, M. P. M. Dean, N. B. Christensen, L. Steinke, Z. Islam, M. Oda, M. Ido, N. Momono, S. B. Wilkins, and J. P. Hill. Rotated stripe order and its competition with superconductivity in $La_{1.88}Sr_{0.12}CuO_4$. *Phys. Rev. B*, 90 :100510, 2014.

[102] F. C. Chou, N. R. Belk, M. A. Kastner, R. J. Birgeneau, and Amnon Aharony. Spin-glass behavior in $La_{1.96}Sr_{0.04}CuO_4$. *Phys. Rev. Lett.*, 75 :2204–2207, 1995.

[103] T. Wu, H. Mayaffre, S. Krämer, M. Horvatić, C. Berthier, C. T. Lin, D. Haug, T. Loew, V. Hinkov, B. Keimer, and M.-H. Julien. Magnetic-field-enhanced spin freezing on the verge of charge ordering in $YBa_2Cu_3O_{6.45}$. *Phys. Rev. B*, 88 :014511, 2013.

[104] V. F. Mitrović, M.-H. Julien, C. de Vaulx, M. Horvatić, C. Berthier, T. Suzuki, and K. Yamada. Similar glassy features in the ^{139}La NMR response of pure and disordered $La_{1.88}Sr_{0.12}CuO_4$. *Phys. Rev. B*, 78 :014504, 2008.

[105] A. T. Rømer, J. Chang, N. B. Christensen, B. M. Andersen, K. Lefmann, L. Mähler, J. Gavilano, R. Gilardi, Ch. Niedermayer, H. M. Rønnow, A. Schneidewind, P. Link, M. Oda, M. Ido, N. Momono, and J. Mesot. Glassy low-energy spin fluctuations and anisotropy gap in $La_{2-x}Sr_xCuO_4$. *Phys. Rev. B*, 87 :144513, 2013.

[106] S. Wakimoto, S. Ueki, Y. Endoh, and K. Yamada. Systematic study of short-range antiferromagnetic order and the spin-glass state in lightly doped $La_{2-x}Sr_xCuO_4$. *Phys. Rev. B*, 62 :3547–3553, 2000.

[107] K. Binder and A. P. Young. Spin glasses : Experimental facts, theoretical concepts, and open questions. *Rev. Mod. Phys.*, 58 :801–976, 1986.

[108] Stephen M. Hayden. *Neutron Scattering and the Magnetic Response of Superconductors and Related Compounds*, pages 993–1029. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2008.

[109] B. Lake, G. Aeppli, T. E. Mason, A. Schröder, D. F. McMorrow, K. Lefmann, M. Isshiki, M. Nohara, H. Takagi, and S. M. Hayden. Spin gap and magnetic coherence in a clean high-temperature superconductor. *Nature*, 400 :43–46, 1999.

[110] Susumu Katano, Masugu Sato, Kazuyoshi Yamada, Takao Suzuki, and Tetsuo Fukase. Enhancement of static antiferromagnetic correlations by magnetic field in a superconductor $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ with $x = 0.12$. *Phys. Rev. B*, 62 :R14677–R14680, 2000.

[111] B. Lake, H. M. Rønnow, N. B. Christensen, G. Aeppli, K. Lefmann, D. F. McMorrow, P. Vorderwisch, P. Smeididl, N. Mangkorntong, T. Sasagawa, M. Nohara, H. Takagi, and T. E. Mason.

Antiferromagnetic order induced by an applied magnetic field in a high-temperature superconductor. *Nature*, 415 :299–302, 2002.

[112] B. Lake, G. Aeppli, K. N. Clausen, D. F. McMorrow, K. Lefmann, N. E. Hussey, N. Mangkorntong, M. Nohara, H. Takagi, T. E. Mason, and A. Schröder. Spins in the vortices of a high-temperature superconductor. *Science*, 291(5509) :1759–1762, 2001.

[113] V. F. Mitrović, E. E. Sigmund, W. P. Halperin, A. P. Reyes, P. Kuhns, and W. G. Moulton. Antiferromagnetism in the vortex cores of $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. *Phys. Rev. B*, 67 :220503, 2003.

[114] V. F. Mitrović, E. E. Sigmund, M. Eschrig, H. N. Bachman, W. P. Halperin, A. P. Reyes, P. Kuhns, and W. G. Moulton. Spatially resolved electronic structure inside and outside the vortex cores of a high-temperature superconductor. *Nature*, 413 :501–504, 2001.

[115] B. Khaykovich, S. Wakimoto, R. J. Birgeneau, M. A. Kastner, Y. S. Lee, P. Smeibidl, P. Vorderwisch, and K. Yamada. Field-induced transition between magnetically disordered and ordered phases in underdoped $La_{2-x}Sr_xCuO_4$. *Phys. Rev. B*, 71 :220508, 2005.

[116] Eugene Demler, Subir Sachdev, and Ying Zhang. Spin-ordering quantum transitions of superconductors in a magnetic field. *Phys. Rev. Lett.*, 87 :067202, 2001.

[117] Subir Sachdev. Where is the quantum critical point in the cuprate superconductors ? *physica status solidi (b)*, 247(3) :537–543, 2010.

[118] C. Panagopoulos, J.L. Tallon, B.D. Rainford, J.R. Cooper, C.A Scott, and T. Xiang. Low-frequency spins and the ground state in high-T_c cuprates. *Solid State Communications*, 126(1) :47 – 55, 2003. Proceedings of the High-T_c Superconductivity Workshop.

[119] M. Fujita, M. Enokie, S. Likubo, and K. Yamada. Neutron-scattering study of impurity effect on stripe correlations in la-based 214 high-T_c cuprate. *J Supercond Nov Magn*, 22 :243–245, 2009.

[120] M. v. Zimmermann, J. R. Schneider, T. Frello, N. H. Andersen, J. Madsen, M. Käll, H. F. Poulsen, R. Liang, P. Dosanjh, and W. N. Hardy. Oxygen-ordering superstructures in underdoped $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ studied by hard x-ray diffraction. *Phys. Rev. B*, 68 :104515, 2003.

[121] Ch. Niedermayer, C. Bernhard, T. Blasius, A. Golnik, A. Moodenbaugh, and J. I. Budnick. Common phase diagram for antiferromagnetism in $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ and $Y_{1-x}Ca_xBa_2Cu_3O_6$ as seen by muon spin rotation. *Phys. Rev. Lett.*, 80 :3843–3846, 1998.

[122] S. Sanna, G. Allodi, and R. De Renzi. The freezing of spin and charge at low temperature in $YBa_2Cu_3O_{6+x}$. *Solid State Communications*, 126(1) :85 – 91, 2003. Proceedings of the High-T_c Superconductivity Workshop.

[123] Kazuki Ohishi, Ikuya Yamada, Akihiro Koda, Wataru Higemoto, Shanta R. Saha, Ryosuke Kadono, Kenji M. Kojima, Masaki Azuma, and Mikio Takano. Magnetic phase diagram of hole-doped $Ca_{2-x}Na_xCuO_2Cl_2$ cuprate superconductor. *Journal of the Physical Society of Japan*, 74(9) :2408–2412, 2005.

[124] M. Miyazaki, R. Kadono, M. Hiraishi, K.H. Satoh, S. Takeshita, A. Koda, Y. Fukunaga, Y. Tanabe, T. Adachi, and Y. Koike. Muon knight shift study of pseudogap state in underdoped (Bi, Pb)2201. *Physica C : Superconductivity and its Applications*, 470 :S55 – S56, 2010. Proceedings of the 9th International Conference on Materials and Mechanisms of Superconductivity.

[125] P. L. Russo, C. R. Wiebe, Y. J. Uemura, A. T. Savici, G. J. MacDougall, J. Rodriguez, G. M. Luke, N. Kaneko, H. Eisaki, M. Greven, O. P. Vajk, S. Ono, Yoichi Ando, K. Fujita, K. M. Kojima, and S. Uchida. Muon spin relaxation study of superconducting $Bi_2Sr_{2-x}La_xCuO_{6+\delta}$. *Phys. Rev. B*, 75 :054511, 2007.

[126] T. Adachi, Y. Tanabe, K. Suzuki, Y. Koike, T. Suzuki, T. Kawamata, and I. Watanabe. Development of cu-spin correlation in $Bi_{1.74}Pb_{0.38}Sr_{1.88}Cu_{1-y}Zn_yO_{6+\delta}$ high-temperature superconductors observed by muon spin relaxation. *Phys. Rev. B*, 83 :184522, 2011.

[127] Masanori Enoki, Masaki Fujita, Satoshi Iikubo, John M. Tranquada, and Kazuyoshi Yamada. Incommensurate magnetic excitation in spin-glass phase of Bi2201 cuprate. *Journal of the Physical Society of Japan*, 80(Suppl.B) :SB026, 2011.

[128] Louis Taillefer. Scattering and pairing in cuprate superconductors. *Annual Review of Condensed Matter Physics*, 1(1) :51–70, 2010.

[129] C. M. Varma. Non-fermi-liquid states and pairing instability of a general model of copper oxide metals. *Phys. Rev. B*, 55 :14554–14580, 1997.

[130] B. Fauqué, Y. Sidis, V. Hinkov, S. Pailhès, C. T. Lin, X. Chaud, and P. Bourges. Magnetic order in the pseudogap phase of high-T_c superconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 96 :197001, 2006.

[131] Yoichi Ando, Kouji Segawa, Seiki Komiya, and A. N. Lavrov. Electrical resistivity anisotropy from self-organized one dimensionality in high-temperature superconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 88 :137005, 2002.

[132] Y. Sato, S. Kasahara, H. Kasahara, Y. Kasahara, E.-G. Moon, T. Nishizaki, T. Loew, J. Porras, B. Keimer, T. Sibauchi, and Y. Matsuda. Thermodynamic evidence for a nematic phase transition at the onset of the pseudogap in $YBa_2Cu_3O_y$. *Nature Publishing Group*, 13 :1074–1078, 2017.

[133] R. Daou, J. Chang, D. LeBoeuf, O. Cyr-Choinière, F. Laliberté, N. Doiron-Leyraud, B. J. Ramshaw, R. Liang, D. A. Bonn, W. N. Hardy, and Louis Taillefer. Broken rotational symmetry in the pseudogap phase of a high-T_c superconductor. *Nature*, 463 :519–522, 2010.

[134] Jing Xia, Elizabeth Schemm, G. Deutscher, S. A. Kivelson, D. A. Bonn, W. N. Hardy, R. Liang, W. Siemons, G. Koster, M. M. Fejer, and A. Kapitulnik. Polar kerr-effect measurements of the high-temperature $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ superconductor : Evidence for broken symmetry near the pseudogap temperature. *Phys. Rev. Lett.*, 100 :127002, 2008.

[135] J. L. Tallon, C. Bernhard, G. V. M. Williams, and J. W. Loram. Zn-induced T_c reduction in high-T_c superconductors : Scattering in the presence of a pseudogap. *Phys. Rev. Lett.*, 79 :5294–5297, 1997.

[136] J. R. Cooper, J. W. Loram, I. Kokanović, J. G. Storey, and J. L. Tallon. Pseudogap in $YBa_2Cu_3O_{6+\delta}$ is not bounded by a line of phase transitions : Thermodynamic evidence. *Phys. Rev. B*, 89 :201104, 2014.

[137] N E Hussey, J Buhot, and S Licciardello. A tale of two metals : contrasting criticalities in the pnictides and hole-doped cuprates. *Reports on Progress in Physics*, 81(5) :052501, 2018.

[138] B. Michon, C. Girod, S. Badoux, J. Kačmarčík, Q. Ma, M. Dragomir, H. A. Dabkowska, B. D. Gaulin, J.-S. Zhou, S. Pyon, T. Takayama, H. Takagi, S. Verret, N. Doiron-Leyraud, C. Marcenat, L. Taillefer, and T. Klein. Thermodynamic signatures of quantum criticality in cuprate superconductors. *Nature*, 567 :218–222, 2019.

[139] P. Coleman and A. J. Schofield. Quantum criticality. *Nature*, 433 :226–229, 2005.

[140] R. A. Cooper, Y. Wang, B. Vignolle, O. J. Lipscombe, S. M. Hayden, Y. Tanabe, T. Adachi, Y. Koike, M. Nohara, H. Takagi, Cyril Proust, and N. E. Hussey. Anomalous criticality in the electrical resistivity of $La_{2-x}Sr_xCuO_4$. *Science*, 323(5914) :603–607, 2009.

[141] Lu Li, Yayu Wang, Seiki Komiya, Shimpei Ono, Yoichi Ando, G. D. Gu, and N. P. Ong. Diamagnetism and cooper pairing above T_c in cuprates. *Phys. Rev. B*, 81 :054510, 2010.

[142] B. Luthi. Physical acoustics in the solid state. 2005.

[143] C. Lupien. *Ultrasound attenuation in the unconventional superconductor* Sr_2RuO_4. PhD thesis, University of Toronto, Department of Physics, 2002.

[144] R. N. Thurston and A. D. Pierce. *Ultrasonic Measurement Methods*. Physical Acoustics 19. Academic Press, Elsevier, 1990.

[145] S. Askenazy, Ch. Fert, J. Marquez, Ph. Bellan, Ph. Wallace, and F. Herlach. Sur les champs magnétiques pulsés crowbar. I. Caractéristiques géométriques et électriques des bobines en cuivre. *Revue de Physique Appliquee*, 21(9) :563–577, 1986.

[146] A. B. Bhatia. *Ultrasonic absorption.* Oxford University Press, 1985.

[147] M. Dion. Symétries du gap supraconducteur dans le composé $k-(BEDT-TTF)_2Cu(NCS)_2$. Master's thesis, Faculté des sciences, Université de Sherbrooke, 2009.

[148] W. P. Mason. Effect of dislocations on ultrasonic wave attenuation in metals. *Bell System Technical Journal*, 34(5) :903–942, 1955.

[149] W. P. Mason. Ultrasonic attenuation due to lattice-electron interaction in normal conducting metals. *Phys. Rev.*, 97 :557–558, 1955.

[150] Minoru Nohara, Takashi Suzuki, Yoshiteru Maeno, Toshizo Fujita, Isao Tanaka, and Hironao Kojima. Unconventional lattice stiffening in superconducting $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ single crystals. *Phys. Rev. B*, 52 :570–580, 1995.

[151] Y. P. Varshni. Temperature dependence of the elastic constants. *Phys. Rev. B*, 2 :3952–3958, 1970.

[152] W. Rehwald. The study of structural phase transitions by means of ultrasonic experiments. *Advances in Physics*, 22(6) :721–755, 1973.

[153] A. E. Böhmer. *Competing phases in iron-based superconductor studied by high-resolution thermal-expansion and shear modulus measurements.* PhD thesis, Institut de technologie de Karlsruhe, KIT, 2014.

[154] J.P. Benoit, J. Berger, M. Krauzman, and J.L. Godet. Experimental observation of a soft mode in ammonium hydrogen oxalate hemihydrate by Brillouin scattering. *Journal de Physique*, 47(5) :815–819, 1986.

[155] A. J. Millis and K. M. Rabe. Superconductivity and lattice distortions in high-T_c superconductors. *Phys. Rev. B*, 38 :8908–8919, 1988.

[156] J. Trivisonno and al. Temperature dependence of the elastic constants of niobium and lead in the normal and superconducting states. *Journal of Low Temperature Physics*, 12(1-2) :153–169, 1973.

[157] P. H. Kes, J. Aarts, J.Van Den Berg, C. J. Van Der Beek, and J. A. Mydosh. Thermally assisted flux flow at small driving forces. *Superconductor Science and Technology*, 1(5) :242–248, 1989.

[158] J. Pankert. Ultrasonic attenuation in the mixed state of high-T_c superconductors. *Physica C : Superconductivity*, 168(3) :335 – 345, 1990.

[159] J. Pankert, G. Marbach, A. Comberg, P. Lemmens, P. Fröning, and S. Ewert. Ultrasonic attenuation by the vortex lattice of high-T_c superconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 65 :3052–3055, 1990.

[160] Tetsuo Hanaguri, Tetsuo Fukase, Isao Tanaka, and Hironao Kojima. Elastic properties and anisotropic pinning of the flux-line lattice in single-crystalline $La_{1.85}Sr_{0.15}CuO_4$. *Phys. Rev. B*, 48 :9772–9781, 1993.

[161] M. Saint-Paul, H. Noël, J.C. Levet, M. Potel, and P. Gougeon. Magnetic field dependence of ultrasound velocity in $YBa_2Cu_3O_7$ single crystals. *Physica C : Superconductivity*, 180(5) :394 – 400, 1991.

[162] Ralph A. Alpher and Robert J. Rubin. Magnetic dispersion and attenuation of sound in conducting fluids and solids. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 26(3) :452–453, 1954.

[163] E. J. Ozimek, R. G. Leisure, and D. K. Hsu. Ultrasonic velocity dispersion in single-crystal indium. *Phys. Rev. B*, 20 :3502–3504, 1979.

[164] Y. Shapira and L.J. Neuringer. Influence of a magnetic field on the ultrasonic attenuation in impure metals. *Physics Letters*, 20(2) :148 – 150, 1966.

[165] R. Gujral and Judy R. Franz. Magnetic-field-dependent ultrasonic velocity measurements in Cu and V. *Phys. Rev. B*, 16 :3471–3475, 1977.

[166] P. Doussineau, A. Levelut, M. Matecki, J. P. Renard, and W. Schön. Acoustic and magnetic studies of an insulating spin glass. *Europhysics Letters (EPL)*, 3(2) :251–258, 1987.

[167] T. C. Hsu and J. B. Marston. Measurement of ultrasound velocity in the spin-glass CuMn. *Journal of Applied Physics*, 61(5) :2074–2077, 1987.

[168] P. K. Mukhopadhyay and A. K. Raychaudhuri. The elastic manifestation of a spin-glass transition : a low-frequency study. *Journal of Physics C : Solid State Physics*, 21(12) :L385–L389, 1988.

[169] K. H. Fischer. Ultrasound in spin glasses. *Zeitschrift für Physik B Condensed Matter*, 43(4) :291–297, 1981.

[170] L. Lundgren, P. Svedlindh, and O. Beckman. Anomalous time dependence of the susceptibility in a Cu(Mn) spin glass. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 31-34 :1349 – 1350, 1983.

[171] L. Lundgren, P. Svedlindh, and O. Beckman. Measurement of complex susceptibility on a metallic spin glass with broad relaxation spectrum. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 25(1) :33 – 38, 1981.

[172] A. Migliori, William M. Visscher, S. Wong, S. E. Brown, I. Tanaka, H. Kojima, and P. B. Allen. Complete elastic constants and giant softening of c_{66} in superconducting $La_{1.86}Sr_{0.14}CuO_4$. *Phys. Rev. Lett.*, 64 :2458–2461, 1990.

[173] B. Keimer and al. Magnetic excitations in pure, lightly doped, and weakly metallic La_2CuO_4. *Phys. Rev. B*, 46 :14034–14053, 1992.

[174] M. Reehuis, C. Ulrich, K. Prokeš, A. Gozar, G. Blumberg, Seiki Komiya, Yoichi Ando, P. Pattison, and B. Keimer. Crystal structure and high-field magnetism of La_2CuO_4. *Phys. Rev. B*, 73 :144513, 2006.

[175] H. Takagi, R. J. Cava, M. Marezio, B. Batlogg, J. J. Krajewski, W. F. Peck, P. Bordet, and D. E. Cox. Disappearance of superconductivity in overdoped $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ at a structural phase boundary. *Phys. Rev. Lett.*, 68 :3777–3780, 1992.

[176] Shuichi Wakimoto, Seunghun Lee, Peter M. Gehring, Robert J. Birgeneau, and Gen Shirane. Neutron scattering study of soft phonons and diffuse scattering in insulating $La_{1.95}Sr_{0.05}CuO_4$. *Journal of the Physical Society of Japan*, 73(12) :3413–3417, 2004.

[177] Shuichi Wakimoto, Hiroyuki Kimura, Masaki Fujita, Kazuyoshi Yamada, Yukio Noda, Gen Shirane, Genda Gu, Hyunkyung Kim, and Robert J. Birgeneau. Incommensurate lattice distortion in the high temperature tetragonal phase of $La_{2-x}(Sr, Ba)_xCuO_4$. *Journal of the Physical Society of Japan*, 75(7) :074714, 2006.

[178] K. Fossheim and al. Wide-temperature instability in high-T_c superconductors, $La_{1.85}Ba_{0.15}CuO_4$. *Solid State Communications*, 63(6) :531 – 533, 1987.

[179] T. Fujita, M. Nohara, T. Suzuki, I. Tanaka, and H. Kojima. Ultrasonic study on anisotropic elastic properties of oxide superconductors. *Journal of Advanced Science*, 4(2) :131–134,f2, 1992.

[180] T. Suzuki, T. Goto, K. Chiba, T. Shinoda, T. Fukase, H. Kimura, K. Yamada, M. Ohashi, and Y. Yamaguchi. Observation of modulated magnetic long-range order in $La_{1.88}Sr_{0.12}CuO_4$. *Phys. Rev. B*, 57 :R3229–R3232, 1998.

[181] Fukase T. Suzuki T. Tanaka I. Kojima H. Hanaguri, T. Elastic anomalies in a $La_{1.85}Sr_{0.15}CuO_4$ single crystal under high magnetic fields. *Physica B : Condensed Matter*, 194-196 :1579 – 1580, 1994.

[182] A. Bianconi, N. L. Saini, A. Lanzara, M. Missori, T. Rossetti, H. Oyanagi, H. Yamaguchi, K. Oka, and T. Ito. Determination of the local lattice distortions in the cuo$_2$ plane of $La_{1.85}Sr_{0.15}CuO_4$. *Phys. Rev. Lett.*, 76 :3412–3415, 1996.

[183] N. L. Saini, A. Lanzara, H. Oyanagi, H. Yamaguchi, K. Oka, T. Ito, and A. Bianconi. Local lattice instability and stripes in the CuO_2 plane of the $La_{1.85}Sr_{0.15}CuO_4$ system by polarized xanes and exafs. *Phys. Rev. B*, 55 :12759–12769, 1997.

[184] J. F. Qu, Y. Q. Zhang, X. L. Lu, X. Q. Xiang, Y. L. Liao, G. Li, and X. G. Li. Ultrasonic study on magnetic-field-induced stripe order in$La_{1.88-x}Sr_{0.12}Ba_xCuO_44$. *Applied Physics Letters*, 89(16) :162508, 2006.

[185] Tetsuo Fukase, Tetsuo Nomoto, Tetsuo Hanaguri, Takayuki Goto, and Yoji Koike. Ultrasonic studies of structural phase transitions and superconductivity in $La_{2-x}Ba_xCuO_4$ and $La_{2-x}Sr_xCuO_4$. *Physica B : Condensed Matter*, 165-166 :1289 – 1290, 1990. LT-19.

[186] T. Fukase and al. Ultrasonic and nqr studies of structural phase transitions and superconductivity in $La_{2-x}Sr_xCuO_4$. *JJAP series*, 7 :213–218, 1992.

[187] T. Goto, T. Suzuki, K. Chiba, T. Shinoda, M. Mori, and T. Fukase. Field-induced spin reorientation and low-temperature structural phase transition in $La_{2-x}Sr_xCuO_4$. *Physica B : Condensed Matter*, 246-247 :572 – 575, 1998.

[188] J.F. Qu, Y.Q. Zhang, X.Q. Xiang, X.L. Lu, and X.G. Li. Effect of magnetic field on the charge-stripe phase in $La_{2-x-y}Nd_ySr_xCuO_4$: An ultrasonic attenuation study. *Materials Science and Engineering : A*, 442(1) :216 – 219, 2006. Proceedings of the 14th International Conference on Internal Friction and Mechanical Spectroscopy.

[189] Jean-Yves Prieur and Jacques Joffrin. Ultrasonic velocity variations in $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ single crystals. *physica status solidi (c)*, 1(11) :3061–3064, 2004.

[190] N. Bloembergen, E. M. Purcell, and R. V. Pound. Relaxation effects in nuclear magnetic resonance absorption. *Phys. Rev.*, 73 :679–712, 1948.

[191] Y. Wang and H.-H. Wen. Doping dependence of the upper critical field in $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ from specific heat. *EPL (Europhysics Letters)*, 81(5) :57007, 2008.

[192] G. S. Boebinger, Yoichi Ando, A. Passner, T. Kimura, M. Okuya, J. Shimoyama, K. Kishio, K. Tamasaku, N. Ichikawa, and S. Uchida. Insulator-to-metal crossover in the normal state of $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ near optimum doping. *Phys. Rev. Lett.*, 77 :5417–5420, 1996.

[193] T. Kimura, S. Miyasaka, H. Takagi, K. Tamasaku, H. Eisaki, S. Uchida, K. Kitazawa, M. Hiroi, M. Sera, and N. Kobayashi. In-plane and out-of-plane magnetoresistance in $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ single crystals. *Phys. Rev. B*, 53 :8733–8742, 1996.

[194] R. J. Birgeneau, M. Greven, M. A. Kastner, Y. S. Lee, B. O. Wells, Y. Endoh, K. Yamada, and G. Shirane. Instantaneous spin correlations in La_2CuO_4. *Phys. Rev. B*, 59 :13788–13794, 1999.

[195] A. Paolone, F. Cordero, R. Cantelli, and M. Ferretti. Anelastic spectroscopy study of the spin-glass and cluster spin-glass phases of $La_{2-x}Sr_xCuO_4$. *Phys. Rev. B*, 66 :094503, 2002.

[196] A. T. Rømer, P. J. Ray, H. Jacobsen, L. Udby, B. M. Andersen, M. Bertelsen, S. L. Holm, N. B. Christensen, R. Toft-Petersen, M. Skoulatos, M. Laver, A. Schneidewind, P. Link, M. Oda, M. Ido, N. Momono, and K. Lefmann. Field-induced interplanar magnetic correlations in the high-temperature superconductor $La_{1.88}Sr_{0.12}CuO_4$. *Phys. Rev. B*, 91 :174507, 2015.

[197] Gaël Grissonnanche, Anaëlle Legros, Sven Badoux, Etienne Lefrançois, Victor Zatko, Maude Lizaire, Francis Laliberté, Adrien Gourgout, Jianshi Zhou, Sunseng Pyon, Tomohiro Takayama, Hidenori Takagi, Shimpei Ono, Nicolas Doiron-Leyraud, and Louis Taillefer. Giant thermal Hall conductivity from neutral excitations in the pseudogap phase of cuprates. *arXiv e-prints*, page arXiv :1901.03104, 2019.

[198] Risdiana, T. Adachi, N. Oki, S. Yairi, Y. Tanabe, K. Omori, Y. Koike, T. Suzuki, I. Watanabe, A. Koda, and W. Higemoto. Cu spin dynamics in the overdoped regime of $La_{2-x}Sr_xCu_{1-y}Zn_yO_4$ probed by muon spin relaxation. *Phys. Rev. B*, 77 :054516, 2008.

[199] W. Tabis, Y. Li, M. Le Tacon, L. Braicovich, A. Kreyssig, M. Minola, G. Dellea, E. Weschke, M. J. Veit, M. Ramazanoglu, A. I. Goldman, T. Schmitt, G. Ghiringhelli, N. Barišić, M. K. Chan, C. J. Dorow, G. Yu, X. Zhao, B. Keimer, and M. Greven. Charge order and its connection with fermi-liquid charge transport in a pristine high-T_c cuprate. *Nature Communications*, 5, 2014.

[200] Alex Frano. *The Cuprates : A Charge Density Wave*, pages 91–138. Springer International Publishing, Cham, 2014.

[201] Ruixing Liang, D. A. Bonn, and W. N. Hardy. Evaluation of CuO_2 plane hole doping in $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ single crystals. *Phys. Rev. B*, 73 :180505, 2006.

[202] T. Wu, R. Zhou, M. Hirata, I. Vinograd, H. Mayaffre, R. Liang, W. N. Hardy, D. A. Bonn, T. Loew, J. Porras, D. Haug, C. T. Lin, V. Hinkov, B. Keimer, and M.-H. Julien. ^{63}Cu-NMR study of oxygen disorder in ortho-II $YBa_2Cu_3O_y$. *Phys. Rev. B*, 93 :134518, 2016.

[203] Eduardo Fradkin, Steven A. Kivelson, and John M. Tranquada. Colloquium : Theory of intertwined orders in high temperature superconductors. *Rev. Mod. Phys.*, 87 :457–482, 2015.

[204] Matthias Vojta. Lattice symmetry breaking in cuprate superconductors : stripes, nematics, and superconductivity. *Advances in Physics*, 58(6) :699–820, 2009.

[205] Rui Zhou, Michihiro Hirata, Tao Wu, Igor Vinograd, Hadrien Mayaffre, Steffen Krämer, Arneil P. Reyes, Philip L. Kuhns, Ruixing Liang, W. N. Hardy, D. A. Bonn, and Marc-Henri Julien. Spin susceptibility of charge-ordered $YBa_2Cu_3O_y$ across the upper critical field. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 114(50) :13148–13153, 2017.

[206] C. Marcenat, A. Demuer, K. Beauvois, B. Michon, A. Grockowiak, R. Liang, W. Hardy, D. A. Bonn, and T. Klein. Calorimetric determination of the magnetic phase diagram of underdoped ortho II $YBa_2Cu_3O_{6.54}$.

[207] Yosef Caplan, Gideon Wachtel, and Dror Orgad. Long-range order and pinning of charge-density waves in competition with superconductivity. *Phys. Rev. B*, 92 :224504, 2015.

[208] O. Cyr-Choinière, S. Badoux, G. Grissonnanche, B. Michon, S. A. A. Afshar, S. Fortier, D. LeBoeuf, D. Graf, J. Day, D. A. Bonn, W. N. Hardy, R. Liang, N. Doiron-Leyraud, and Louis Taillefer. Anisotropy of the seebeck coefficient in the cuprate superconductor $YBa_2Cu_3O_y$: Fermi-surface reconstruction by bidirectional charge order. *Phys. Rev. X*, 7 :031042, 2017.

[209] J. Chang, E. Blackburn, O. Ivashko, A. T. Holmes, N. B. Christensen, M. Hücker, R. Liang, Hardy W. N. Rütt U. Bonn, D. A., M. V. Zimmermann, E. M. Forgan, and S. M. Hayden. Magnetic field controlled charge density wave coupling in underdoped $YBa_2Cu_3O_{6+x}$. *Nature Communications*, 7(11494), 2016.

[210] Lauren E. Hayward, David G. Hawthorn, Roger G. Melko, and Subir Sachdev. Angular fluctuations of a multicomponent order describe the pseudogap of $YBa_2Cu_3O_{6+x}$. *Science*, 343(6177) :1336–1339, 2014.

[211] Laimei Nie, Lauren E. Hayward Sierens, Roger G. Melko, Subir Sachdev, and Steven A. Kivelson. Fluctuating orders and quenched randomness in the cuprates. *Phys. Rev. B*, 92 :174505, 2015.

[212] Fan Yu, Max Hirschberger, Toshinao Loew, Gang Li, Benjamin J. Lawson, Tomoya Asaba, J. B. Kemper, Tian Liang, Juan Porras, Gregory S. Boebinger, John Singleton, Bernhard Keimer, Lu Li, and N. Phuan Ong. Magnetic phase diagram of underdoped $YBa_2Cu_3O_y$ inferred from torque magnetization and thermal conductivity. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 113(45) :12667–12672, 2016.

[213] T. Wu, H. Mayaffre, S. Krämer, M. Horvatić, C. Berthier, P. L. Kuhns, A. P. Reyes, R. Liang, W. N. Hardy, D. A. Bonn, and M.-H. Julien. Emergence of charge order from the vortex state of a high-temperature superconductor. *Nature Communications*, 4(2113), 2013.

[214] Y.M. Vilk and A.-M.S. Tremblay. Non-perturbative many-body approach to the hubbard model and single-particle pseudogap. *J. Phys. I France*, 7(11) :1309–1368, 1997.

[215] S. Badoux, S. A. A. Afshar, B. Michon, A. Ouellet, S. Fortier, D. LeBoeuf, T. P. Croft, C. Lester, S. M. Hayden, H. Takagi, K. Yamada, D. Graf, N. Doiron-Leyraud, and Louis Taillefer. Critical doping for the onset of fermi-surface reconstruction by charge-density-wave order in the cuprate superconductor $La_{2-x}Sr_xCuO_4$. *Phys. Rev. X*, 6 :021004, 2016.

[216] Nicolas Doiron-Leyraud, S. Lepault, O. Cyr-Choinière, B. Vignolle, G. Grissonnanche, F. Laliberté, J. Chang, N. Barišić, M. K. Chan, L. Ji, X. Zhao, Y. Li, M. Greven, C. Proust, and Louis Taillefer. Hall, Seebeck, and Nernst coefficients of underdoped $HgBa_2CuO_{4+\delta}$: Fermi-surface reconstruction in an archetypal cuprate superconductor. *Phys. Rev. X*, 3 :021019, 2013.

[217] U. Welp, M. Grimsditch, S. Fleshler, W. Nessler, J. Downey, G. W. Crabtree, and J. Guimpel. Effect of uniaxial stress on the superconducting transition in$YBa_2Cu_3O_7$. *Phys. Rev. Lett.*, 69 :2130–2133, 1992.

[218] O. Kraut, C. Meingast, G. Bräuchle, H. Claus, A. Erb, G. Müller-Vogt, and H. Wühl. Uniaxial pressure dependence of T_c of untwinned $YBa_2Cu_3O_x$ single crystals for x=6.5–7. *Physica C : Superconductivity*, 205(1) :139 – 146, 1993.

[219] O. Cyr-Choinière, D. LeBoeuf, S. Badoux, S. Dufour-Beauséjour, D. A. Bonn, W. N. Hardy, R. Liang, D. Graf, N. Doiron-Leyraud, and Louis Taillefer. Sensitivity of T_c to pressure and magnetic field in the cuprate superconductor $YBa_2Cu_3O_y$: Evidence of charge-order suppression by pressure. *Phys. Rev. B*, 98 :064513, 2018.

[220] S. M. Souliou, H. Gretarsson, G. Garbarino, A. Bosak, J. Porras, T. Loew, B. Keimer, and M. Le Tacon. Rapid suppression of the charge density wave in $YBa_2Cu_3O_{6.6}$ under hydrostatic pressure. *Phys. Rev. B*, 97 :020503, 2018.

[221] Carsten Putzke, Jake Ayres, Jonathan Buhot, Salvatore Licciardello, Nigel E. Hussey, Sven Friedemann, and Antony Carrington. Charge order and superconductivity in underdoped $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ under pressure. *Phys. Rev. Lett.*, 120 :117002, 2018.

[222] S. Sadewasser, J. S. Schilling, A. P. Paulikas, and B. W. Veal. Pressure dependence of T_c to

17 GPa with and without relaxation effects in superconducting $YBa_2Cu_3O_x$. *Phys. Rev. B*, 61 :741–749, 2000.

[223] C. Meingast, O. Kraut, T. Wolf, H. Wühl, A. Erb, and G. Müller-Vogt. Large a-b anisotropy of the expansivity anomaly at T_c in untwinned $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. *Phys. Rev. Lett.*, 67 :1634–1637, 1991.

[224] Ming Lei, J. L. Sarrao, William M. Visscher, T. M. Bell, J. D. Thompson, A. Migliori, U. W. Welp, and B. W. Veal. Elastic constants of a monocrystal of superconducting $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. *Phys. Rev. B*, 47 :6154–6156, 1993.

[225] A. Junod, D. Eckert, T. Graf, G. Triscone, and J. Muller. $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$: Improvement of the specific heat behavior at low temperatures and near T_c. *Physica C : Superconductivity and its Applications*, 162-164 :482 – 483, 1989.

[226] H. Wühl, R. Benischke, M. Braun, B. Frank, O. Kraut, R. Ahrens, G. Bräuchle, H. Claus, A. Erb, W.H. Fietz, C. Meingast, G. Müller-Vogt, and T. Wolf. Influence of oxygen deficiency on the superconducting properties of $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. *Physica C : Superconductivity*, 185-189 :755 – 756, 1991.

[227] J.W. Loram, J. Luo, J.R. Cooper, W.Y. Liang, and J.L. Tallon. Evidence on the pseudogap and condensate from the electronic specific heat. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 62(1) :59 – 64, 2001.

[228] J. D. Jorgensen, B. W. Veal, A. P. Paulikas, L. J. Nowicki, G. W. Crabtree, H. Claus, and W. K. Kwok. Structural properties of oxygen-deficient $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. *Phys. Rev. B*, 41 :1863–1877, 1990.

[229] Frank Gugenberger, Christoph Meingast, Georg Roth, Kai Grube, Volker Breit, Thomas Weber, Helmut Wühl, S. Uchida, and Y. Nakamura. Uniaxial pressure dependence of T_c from high-resolution dilatometry of untwinned $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ single crystals. *Phys. Rev. B*, 49 :13137–13142, 1994.

[230] O. Cyr-Choinière, G. Grissonnanche, S. Badoux, J. Day, D. A. Bonn, W. N. Hardy, R. Liang, N. Doiron-Leyraud, and Louis Taillefer. Two types of nematicity in the phase diagram of the cuprate superconductor$YBa_2Cu_3O_y$. *Phys. Rev. B*, 92 :224502, 2015.

[231] Shi-Quan Su and Thomas A. Maier. Coexistence of strong nematic and superconducting correlations in a two-dimensional hubbard model. *Phys. Rev. B*, 84 :220506, 2011.

[232] J. Kačmarčík, I. Vinograd, B. Michon, A. Rydh, A. Demuer, R. Zhou, H. Mayaffre, R. Liang, W. N. Hardy, D. A. Bonn, N. Doiron-Leyraud, L. Taillefer, M.-H. Julien, C. Marcenat, and T. Klein. Unusual interplay between superconductivity and field-induced charge order in $YBa_2Cu_3O_y$. *Phys. Rev. Lett.*, 121 :167002, 2018.

[233] B. J. Ramshaw, James Day, Baptiste Vignolle, David LeBoeuf, P. Dosanjh, Cyril Proust, Louis Taillefer, Ruixing Liang, W. N. Hardy, and D. A. Bonn. Vortex lattice melting and H_{c2} in underdoped $YBa_2Cu_3O_y$. *Phys. Rev. B*, 86 :174501, 2012.

[234] Yoichi Ando, G. S. Boebinger, A. Passner, Tsuyoshi Kimura, and Kohji Kishio. Logarithmic divergence of both in-plane and out-of-plane normal-state resistivities of superconducting $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ in the zero-temperature limit. *Phys. Rev. Lett.*, 75 :4662–4665, 1995.

[235] X. Shi. *Magnetotransport properties in underdoped high-T_c*. PhD thesis.

[236] V. Noiseux. Variation de $H_{c2}(0)$ avec le dopage dans les cuprates LSCO et $Nd-LSCO$. Master's thesis, Faculté des sciences, Université de Sherbrooke, 2016.

[237] J. Chang, J. S. White, M. Laver, C. J. Bowell, S. P. Brown, A. T. Holmes, L. Maechler, S. Strässle, R. Gilardi, S. Gerber, T. Kurosawa, N. Momono, M. Oda, M. Ido, O. J. Lipscombe, S. M. Hayden, C. D. Dewhurst, R. Vavrin, J. Gavilano, J. Kohlbrecher, E. M. Forgan, and J. Mesot. Spin density wave induced disordering of the vortex lattice in superconducting $La_{2-x}Sr_xCuO_4$. *Phys. Rev. B*, 85 :134520, 2012.

Abstract

In cuprates, copper oxides, an unconventionnal superconductivity appears by chemical doping between a Mott insulator and a correlated Fermi liquid. Beyond superconductivity the phase diagram includes multiple broken symmetry phases, including spin and charge density waves. All these phases interact together and with superconductivity, in a complex way. A deeper knowledge of this phase diagram is without doubt a necessary step toward the resolution of the high-T_c enigma. In this aim, we propose in this experimental thesis to measure velocity and attenuation of sound in the low temperature normal state of cuprates, using high magnetic fields.

The first (main) part of this thesis focus on the magnetism of $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ (LSCO). In this compound, an antiferromagnetic glass competes with superconductivity. By applying high magnetic fields of the order of ~ 90 T, we show that, when superconductivity is weakened enough, the antiferromagnetic glass disappears together with the pseudogap. The persistence of this order up to p^*, and the associated ordered magnetic moment, could explain recent observations at p^* without necessarily implying that the pseudogap is an ordered phase. Among them are the fall of the Hall number and quantum criticality signatures observed in different cuprates.

The shorter second part deals with a related topic : the two distinct charge density waves (CDW, 2D and 3D) of $YBa_2Cu_3O_{6+\delta}$ (Y-123). By performing sound velocity measurements in high magnetic fields we constrain the doping range of the 3D CDW and show that the latter is unlikely at the origin of the Fermi surface reconstruction. Sound velocity measurements also allow the determination of $dT_c/d\epsilon_i$, the T_c's susceptibility to a given elastic deformation. The complex and anisotropic doping dependence of $dT_c/d\epsilon_i$ cannot be easily reconcile alone with a scenario of competition between CDW(s) and superconductivity.

Résumé

Dans les cuprates, des oxydes de cuivre, une supraconductivité non conventionnelle, confinée entre isolant de Mott et liquide de Fermi corrélé, apparaît par dopage chimique en porteurs de charges. Au delà de la supraconductivité, le diagramme de phase renferme de nombreux ordres électroniques, notamment des ordres de charges et spins, qui interagissent entre eux mais également avec la supraconductivité. Une connaissance profonde de ce diagramme de phase est une étape nécessaire à la résolution de l'énigme de la supraconductivité des cuprates. Pour cela on propose ici une étude de la vitesse et de l'atténuation du son, une fois la supraconductivité affaiblie jusqu'à basse température par des champs magnétiques intenses.

La première (et principale) partie de cette thèse s'intéresse au magnétisme de $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ (LSCO). Dans ce composé un verre antiferromagnétique est en forte compétition avec la supraconductivité. L'établissement de signatures ultrasonores associées à cet ordre a permis une étude en champs magnétiques pulsés, jusqu'à $\sim$ 90 T, qui indique qu'alors il persiste jusqu'à un dopage qui semble coïncider avec celui de la disparition du pseudogap, p^*. L'existence de moments magnétiques quasi-statiques en champs magnétiques intenses suggère que les signatures de criticalités quantiques, mais également la chute du nombre de Hall, observées dans certains cuprates dans des conditions similaires, à p^*, pourraient être liées au verre antiferromagnétique plutôt qu'au pseudogap lui même.

Dans une courte seconde partie, on s'intéresse aux deux ordres de charges, 2D et 3D, de $YBa_2Cu_3O_{6+\delta}$ (Y-123) : une problématique distincte mais reliée à la précédente. Une étude systématique en dopage de la vitesse du son dans Y-123 restreint le domaine d'existence de l'ordre de charge 3D et indique que ce dernier est peu probablement à l'origine de la reconstruction de la surface de Fermi observée dans ce composé. La susceptibilité à une déformation élastique de la température critique supraconductrice, $dT_c/d\epsilon_i$, obtenue également par vitesse du son, interroge quant à elle sur la possibilité d'un scénario dans lequel sa dépendance en dopage - complexe et anisotrope - s'explique uniquement par une compétition entre supraconductivité et ordre(s) de charge(s).