



HAL
open science

Propriétés de liquide de Fermi de Sr_2RuO_4 et nématicité dans le supraconducteur $\text{Ba}(\text{Fe}(1-x)\text{Co}(x))_2\text{As}_2$: études par spectroscopies Raman et élasto-Raman

Jean-Côme Philippe

► **To cite this version:**

Jean-Côme Philippe. Propriétés de liquide de Fermi de Sr_2RuO_4 et nématicité dans le supraconducteur $\text{Ba}(\text{Fe}(1-x)\text{Co}(x))_2\text{As}_2$: études par spectroscopies Raman et élasto-Raman. Chimie-Physique [physics.chem-ph]. Université Paris Cité, 2021. Français. NNT : 2021UNIP7196 . tel-03967012

HAL Id: tel-03967012

<https://theses.hal.science/tel-03967012v1>

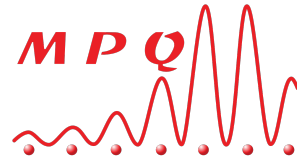
Submitted on 1 Feb 2023

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

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



Université
de Paris



Université de Paris
École doctorale 564 : Physique en Île-de-France
Laboratoire Matériaux et Phénomènes Quantiques — UMR 7162

**Propriétés de liquide de Fermi de Sr_2RuO_4
et nématicité dans le supraconducteur
 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$:
études par spectroscopies Raman et
élasto-Raman**

par Jean-Côme Philippe

Thèse de doctorat de Physique
dirigée par Yann Gallais

Présentée et soutenue publiquement le 8 décembre 2021
devant un jury composé de :

Pr. Johan Chang	Universität Zürich	Rapporteur
Pr. Thierry Klein	Université Grenoble-Alpes	Rapporteur
Pr. Anna Böhrer	Ruhr-Universität Bochum	Examinatrice
Dr. Florence Lévy-Bertrand	Institut Néel, Grenoble	Examinatrice
Pr. Luca de' Medici	ESPCI Paris	Président du jury
Pr. Yann Gallais	Université de Paris	Directeur de thèse

Résumé

Dans les matériaux quantiques, les interactions entre quasiparticules donnent naissance à des ordres collectifs quantiques, parmi lesquels la supraconductivité. Dans les supraconducteurs à base de fer, les propriétés supraconductrices sont significativement influencées par la proximité d'un ordre nématique, induisant notamment une température critique supraconductrice relativement élevée.

Une contrainte uniaxiale est un paramètre clé pour agir sur les matériaux nématiques, et plus généralement sur les supraconducteurs dont l'état fondamental a une représentation à plusieurs composantes. Des modifications considérables de la température critique sous contrainte uniaxiale ont été démontrées expérimentalement dans $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ et Sr_2RuO_4 . Ces découvertes montrent la possibilité de contrôle des propriétés supraconductrices par une contrainte uniaxiale, et permettent réciproquement de mieux comprendre l'origine de cet ordre.

Ces résultats suivent le développement récent de cellules permettant l'application mieux contrôlée de fortes contraintes uniaxiales, combinées avec différents dispositifs expérimentaux complémentaires. La spectroscopie Raman est une sonde unique des états électroniques pouvant résoudre leurs différentes symétries. Durant ce doctorat, j'ai mis en place un dispositif de spectroscopie élasto-Raman, combinant spectroscopie Raman et contrainte uniaxiale.

Avec ce dispositif, j'ai étudié $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$. Je montre que l'intensité du mode de phonon de l'arsenic peut être interprétée comme un paramètre d'ordre nématique. Son évolution en fonction de la température et de la contrainte uniaxiale est en accord avec une transition de phase du second ordre de type Ising. L'étude du continuum électronique me permet d'accéder à l'évolution de la susceptibilité nématique en présence d'un champ externe, à la fois dans l'état métallique et dans l'état supraconducteur. J'observe une forte décroissance des fluctuations nématiques induite par la contrainte uniaxiale, ce qui pourrait être à l'origine de la diminution significative de la température critique supraconductrice.

J'ai également étudié Sr_2RuO_4 . Mon étude de spectroscopie Raman de ce matériau sans contrainte montre que sa réponse Raman est typique de celle attendue pour un liquide de Fermi. J'observe une différenciation en symétrie, que j'interprète comme la marque de propriétés électroniques différentes selon les orbitales. Mes résultats s'inscrivent dans la description de ce matériau comme un métal de Hund.

Mots-clés : spectroscopie Raman, contrainte uniaxiale, supraconductivité, nématicité, liquide de Fermi

Abstract

In quantum materials, interactions between quasiparticles spawn quantum collective orders, including superconductivity. In iron-based superconductors, the superconducting properties are significantly influenced by a close nematic order, leading in particular to a relatively high superconducting critical temperature.

Uniaxial stress is a key parameter to tune nematic materials, and more generally superconductors whose fundamental state has a multi-component representation. Substantial changes in the critical temperature upon applying uniaxial stress have been experimentally demonstrated in $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ and Sr_2RuO_4 . These findings show the possibility to tune the superconducting properties through uniaxial stress, and conversely provide a better understanding of this order.

These results follow the recent development of cells capable of applying well-controlled and strong uniaxial stress, used within various and complementary experimental set-ups. Raman spectroscopy is a unique probe of electronic states, which can resolve their different symmetries. During my PhD, I developed an elasto-Raman spectroscopy device, combining Raman spectroscopy and uniaxial stress.

With this set-up, I studied $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$. I show that the intensity of the arsenic phonon mode can be interpreted as a nematic order parameter. Its evolution with both temperature and uniaxial stress agrees with a second-order Ising-type phase transition. By studying the electronic continuum, I access the evolution of the nematic susceptibility in presence of an external field, both in the metallic and superconducting states. I observe a strong decrease of the nematic fluctuations induced by the uniaxial stress, which could be the source of the significant decrease of the superconducting critical temperature.

I also studied Sr_2RuO_4 . My Raman spectroscopy study of this material without applied stress shows that its Raman response is typical of the one expected for a Fermi liquid. I observe a symmetry differentiation, which I read as the token of electronic properties depending on orbitals. My results fall within the description of this material as a Hund's metal.

Keywords : Raman spectroscopy, uniaxial stress, superconductivity, nematicity, Fermi liquid

Remerciements

Mes remerciements s'adressent d'abord aux membres du jury. Je remercie les rapporteurs Johan Chang et Thierry Klein, les examinatrices Anna Böhmer et Florence Lévy-Bertrand et le président du jury Luca de' Medici pour avoir accepté d'évaluer mon travail, tant par leur lecture attentive du mémoire de thèse que par leur présence et leurs questions à la soutenance. Je remercie également Ricardo Lobo et Ana Akrap pour avoir répondu positivement à mes sollicitations pour participer au jury, même si ces projets de participations n'ont finalement pas abouti.

Ce projet de thèse a été proposé il ya maintenant quatre ans par Yann Gallais, qui m'a fait confiance pour le mener du mieux possible. Yann, je te remercie pour cette confiance, réciproque, qui a duré tout du long de ma présence au labo, pour ton encadrement scientifique, ta disponibilité. J'ai pu constater autour de moi que la collaboration tête-à-tête pendant trois ans chercheur·euse – doctorant·e n'est pas toujours des plus simples à gérer humainement, je m'estime donc d'autant plus chanceux d'avoir pu faire ma thèse avec toi. Je te remercie également plus particulièrement pour les conseils dans l'écriture de ce mémoire de thèse.

Même si seul mon nom apparaît comme auteur de ce mémoire de thèse sur sa couverture, son contenu, que ce soit pour la présentation de l'état de l'art, les résultats expérimentaux obtenus et les interprétations physiques suggérées, résulte de collaborations officielles et de discussions informelles avec une large communauté de scientifiques. L'étude des propriétés physiques des matériaux quantiques n'est rendue possible que grâce aux chimistes qui réussissent à synthétiser des cristaux, selon des techniques en amélioration continue pour assurer des échantillons toujours plus purs. Je remercie mes collaborateurs Yoshiteru Maeno et Chanchal Sow qui ont synthétisé à l'Université de Kyoto les échantillons de Sr_2RuO_4 , et mes collaboratrices Dorothee Colson et Anne Forget du CEA-Saclay pour leurs échantillons de $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$. Dorothee et Anne, merci également pour votre aide sur la découpe des échantillons de Sr_2RuO_4 , pour m'avoir accueilli au CEA pour me former sur le matériel et me permettre de l'utiliser. Merci à Benoît Baptiste pour les multiples séances d'orientation des cristaux de Sr_2RuO_4 à Jussieu, merci Benoît pour ta disponibilité pour assurer ces orientations malgré les restrictions sanitaires à l'accueil des visiteurs à l'IMPMC. Je remercie Indranil Paul pour ses points de vue théoriques éclairants sur mes résultats et sa disponibilité pour des discussions toujours fructueuses en nouvelles questions. Je remercie Antoine Georges pour son enthousiasme face à mes résultats sur Sr_2RuO_4 , qui a permis d'ouvrir des perspectives prometteuses de collaboration entre Raman et DMFT. Merci à Yvan Sidis pour ses indications sur les études en RMN de Sr_2RuO_4 et à Dmitrii Maslov pour la discussion théorique sur le liquide de Fermi Sr_2RuO_4 . Je remercie également la direction du GDR Meetic et les organisatrices des JMC 2021 et de LEES 2021 pour m'avoir permis de présenter mes résultats dans différents colloques et conférences.

Je remercie Amandine Bellec et Christophe Brun pour avoir accepté de constituer mon comité de suivi de thèse, pour leur intérêt envers mes travaux, leur suivi durant ces trois ans, et pour les discussions et suggestions lors de mes présentations.

J'ai mené mes travaux de thèse au sein de l'équipe de spectroscopie Raman du labo.

L'intégration au sein de cette équipe SQUAP est primordiale pour ce qu'elle permet d'aider lors des expériences et de discussions entre chercheur·euse·s permanent·e-s, post-doc, doctorant·e-s et stagiaires, dans l'analyse et la compréhension des résultats. Merci Alain Sacuto pour ton suivi des travaux de l'équipe et tes encouragements. Merci Maximilien Cazayous pour ta présence toujours pleine de bonne humeur et de bon humour. Merci Sarah Houver pour la nouvelle dynamique que tu apportes à l'équipe, et l'œil neuf que tu as porté sur mon projet et mes résultats. Merci Alexandr Alekhin, ou Sascha, pour tes gâteaux et ton soutien sur les expériences sur ma dernière année de thèse. Je remercie les anciens thésard·e-s, Bastien Loret, Ian Aupiais, Nicolas Auvray et Soumaya Chibani pour votre accueil dans l'équipe, les échanges scientifiques (ou non), et vos conseils. Merci à mes contemporains Pierre Hemme, toujours prompt à remplir une CCD à l'aube, et Marco Revelli, ancien par la chimie dont tu nous a dispensé des notions essentielles de sécurité, mais contemporain par le Raman ! Merci enfin et bon courage pour la suite à Manel Mezidi et Alexis Lespinas. Manel, je te souhaite de te plaire à Sherbrooke. Merci Alexis pour tes questions dignes d'un jury de thèse, ton insatisfaction perpétuelle face à mes explications évasives augure du bon pour tes projets de thèse ! Thank you Kota Katsumi, I wish you good results at MPQ and to enjoy your Parisian life, and the best for what will follow after your post-doc ! Merci enfin à toutes les stagiaires qui se sont succédé·e-s dans l'équipe depuis le printemps 2018, Raphaël Eychenne, Adrià Medeiros, Anaïs Féasson, Marc Junior Niemet Mabiala, Pascal Cheng et Cindy Da Costa Silva.

Je tiens à souligner l'importance du soutien des pôles administratif et technique du laboratoire MPQ dans la réalisation de mon doctorat. Merci Nathalie Merlet, Jocelyne Moreau et Sandrine Di Concetto, toujours présentes pour les nécessités administratives. Merci également Anne Servouze pour l'accueil lors de mon arrivée au laboratoire. Merci Jimmy Faria, sans ta participation très active à la mise en place de la manip de Razorbill je n'aurais pu obtenir aucun résultat de spectroscopie élasto-Raman ! Merci Batiste Janvier pour ta disponibilité pour répondre aux soucis techniques et ta participation au projet Razorbill, et ton soutien dans d'autres circonstances aux JMPQ. Merci Wilfrid Niobet et Loïc Noël pour le soutien informatique. Merci enfin Martial Nicolas et Patrick Lepert pour votre disponibilité et votre rapidité dans la fabrication de superbes pièces mécaniques !

L'ambiance entre thésard·e-s au labo est particulièrement solidaire et chaleureuse, en particulier le 645B a été un super cadre pour passer ces 3+ années, aussi bien dans les moments joyeux que dans les moments plus difficiles, que ce soit la pandémie, ou les diverses inondations ou coupures de chauffage. Merci à toutes et tous pour avoir construit cette ambiance que je vais regretter. Merci Pierre pour ta gentillesse et ta bonne humeur au quotidien, qui ont vraiment formé l'épine dorsale de l'ambiance du thésarium sur nos années, et merci pour ton enthousiasme constant à me rappeler que Damien était le thésard de Christian ! Merci Abdelali pour toutes ces discussions, de littérature, cinéma ou politique. Merci Abdallah pour ta force tranquille. Merci Gaël, mon Pogba à moi, pour les films chinois de 4 heures et ta résilience face au billard. Merci Jacko pour l'enthousiasme politique communicatif. Merci Nicolas, au travers des périls ton grand cœur se fait jour. Merci Soumaya pour ta gentillesse qui illumine le thésarium. Merci Grégoire pour ton soutien inconditionnel d'ours à Didier Raoult. Merci Marco pour « les histoires de Marco », toujours incroyables (je ne me remets toujours pas de celle du chien déterré) et pour les interrogations partagées quant aux futurs professionnels. Merci Ulysse pour les discussions cosmopolites entre l'Asie du Sud-Est et le plateau. Merci Salvo, Mehdi et Massine pour vos apparitions au 645B : votre présence mesurée n'en a pas été moins indispensable. Merci Corné d'avoir représenté la start-up nation au labo. Merci Nathaly pour la nourriture colombienne et ta bonne humeur. Merci Alexis, j'ai bien aimé. Merci Manel pour les gâteaux que tu préfères faire que manger. Merci Raphaël pour ton soutien de début de rédaction. Merci aux stagiaires de MEANS, TELEM

(et SQUAP précités) qui ont participé temporairement mais significativement à l'ambiance estivale du 645B : Andrea, Abdallah, Karen. Merci les ancien·ne·s, Chloé, Quentin, Massil, Dimitri, Cynthia, Adrian, Ian, Bastien, Ouafi, Daniele, pour nous avoir transmis tout ça. Du côté des QITE, merci Félicien, le meilleur chairman des séminaires thésards, et merci à Jérémie, Louis, Saverio, Nicolas, Théo, Arnault et Peregrine. Merci à l'armée de DON que, comme Domitille à sa soutenance, j'hésite à citer en détail, au risque de remplir plusieurs pages : lançons-nous néanmoins, en remerciant Domitille, Vincent, Samuel, Samantha, Carlo, Iannis, Cherif, Guillaume, Hamidreza, Louis, et toustes les autres. Également merci Zacharie pour les nombreuses discussions politiques et tes avis cinématographiques tranchés, que ce soit en pédalo aux JMPQ ou au self du ministère, et merci aussi Kaelan, Alberto, Cassia, Zeijian, Ariane et toustes les autres théoricien·ne·s.

Cette thèse doit aussi beaucoup au soutien moral d'en dehors du labo. Je remercie pour cela toustes les camarades d'horizons divers, car comme dit le sage, « la vraie thèse, c'est l'amitié ». Merci les camarades de master, Marianne, Axel, Xin, Bruno, Brendan. Merci Pierre, Gabriel et Aina pour les « mardi/mercredi/n'importe du labo ». Merci celles et ceux de Galois, Lakanal, de l'X. Merci l'Équipage en espérant continuer à naviguer longtemps ensemble. Merci la Conversation et affilié·e·s, merci les crinières et les chauves.

Pour finir, merci à toute ma famille pour leur soutien depuis plus de temps que je ne peux m'en souvenir. Merci Maman, Papa, Antoine, Corentin et Paul-Étienne. Et merci Maud pour avoir accepté la présence de mes spectres (rien de lugubre, je parle de Raman) lorsqu'ils s'immisçaient jusqu'à l'appart.

Table des matières

Résumé	i
Abstract	iii
Remerciements	v
Table des matières	ix
Introduction	1
1 Le modèle du liquide de Fermi et sa réalisation dans Sr_2RuO_4	3
1.1 Modèle du liquide de Fermi	5
1.1.1 Théorie et concepts du modèle	5
1.1.2 Exploration expérimentale du modèle du liquide de Fermi	10
1.2 Propriétés générales de Sr_2RuO_4	13
1.2.1 Structure cristallographique	13
1.2.2 Structure électronique et surface de Fermi	13
1.2.3 Fluctuations magnétiques	17
1.3 État supraconducteur	18
1.3.1 Température critique	18
1.3.2 Paramètre d'ordre supraconducteur	19
1.3.3 Conclusion sur l'état supraconducteur de Sr_2RuO_4	21
1.4 État métallique	22
1.4.1 Preuves du comportement de liquide de Fermi bidimensionnel	22
1.4.2 Fortes corrélations électroniques	24
1.4.3 Modèle du métal de Hund	26
1.4.4 Conclusions sur l'état métallique de Sr_2RuO_4	28
2 Le supraconducteur nématique $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$: propriétés générales et comportement sous contrainte uniaxiale	29
2.1 Propriétés générales	31
2.1.1 Sous-familles et structure cristallographique	31
2.1.2 Diagramme de phase	32
2.1.3 Structure électronique	33
2.1.4 Supraconductivité	34
2.1.5 Ordre magnétique	35
2.2 Nématicité	35
2.2.1 Concept de nématicité quantique	36
2.2.2 Premiers indices de nématicité : anisotropie des propriétés électroniques	37
2.2.3 Sonder les fluctuations nématiques	39
2.2.4 Point critique quantique nématique et supraconductivité	45

2.2.5	Contrôle des propriétés nématiques, magnétiques et supraconductrices par une contrainte uniaxiale	46
2.3	Enjeux de la spectroscopie Raman sous contrainte uniaxiale dans les supraconducteurs nématiques	49
3	Spectroscopie de diffusion Raman : principes théoriques et réalisation expérimentale	51
3.1	Principes de la spectroscopie Raman	53
3.1.1	Description qualitative de la diffusion Raman	53
3.1.2	Expression de la réponse Raman	54
3.2	Réponse Raman électronique dans les métaux	61
3.2.1	Gaz d'électrons libres	61
3.2.2	Modèle de Drude	61
3.2.3	Modèle de Drude étendu : cas d'un liquide de Fermi	62
3.3	Réponse Raman électronique près d'une instabilité nématique de charge	68
3.3.1	Signature Raman de l'instabilité nématique de charge	69
3.3.2	Effet du couplage avec le réseau	70
3.3.3	Observation Raman de la susceptibilité nématique dans $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$	72
3.4	Diffusion Raman dans l'état supraconducteur	72
3.4.1	Processus de diffusion Raman dans l'état supraconducteur	73
3.4.2	Influence d'une instabilité nématique sur l'état supraconducteur	75
3.4.3	Observation du mode de résonance nématique dans la réponse Raman supraconductrice des supraconducteurs à base de fer	76
3.5	Diffusion Raman phononique	76
3.5.1	Processus d'activation Raman des phonons	76
3.5.2	Règles de sélection	78
3.5.3	Formes de raie des modes de phonons	78
3.6	Réalisation expérimentale	79
3.6.1	Chemin optique	79
3.6.2	Spectromètre	81
3.6.3	État de surface des échantillons	84
3.6.4	Cryogénie	84
3.6.5	Traitement des données expérimentales	85
4	Dispositif de spectroscopie élasto-Raman	89
4.1	Principes de la contrainte uniaxiale	91
4.1.1	Définitions	91
4.1.2	Décomposition de la déformation en représentations irréductibles	93
4.2	Dispositif de contrainte uniaxiale Razorbill CS130	96
4.2.1	Dispositifs antérieurs de contrainte uniaxiale	96
4.2.2	Historique des nouvelles cellules de contrainte uniaxiale	97
4.2.3	Principe de fonctionnement de la cellule CS130	98
4.2.4	Préparation d'une expérience de contrainte uniaxiale sur la cellule CS130	100
4.2.5	Application de la contrainte et mesure du déplacement dans le cryostat	105
4.2.6	Détermination du point neutre de déformation nulle	108
4.2.7	Déformation réelle de l'échantillon : estimations par simulations numériques	110
4.3	Bref état de l'art de la spectroscopie Raman sous contrainte uniaxiale	115

5	Spectroscopie élasto-Raman de $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$	117
5.1	Échantillons et conditions expérimentales	118
5.1.1	Échantillons, repères et collages	118
5.1.2	Conditions expérimentales et symétries sondées	120
5.1.3	Détermination de l'échauffement laser	121
5.2	Modes de phonons et sonde de la nématicité via l'effet de contrainte sur le phonon de l'arsenic	122
5.2.1	Phonons actifs en spectroscopie Raman	122
5.2.2	Règles de sélection et définition du paramètre d'ordre nématique du phonon de l'arsenic	124
5.2.3	Orientation des domaines nématiques sous T_s	126
5.2.4	Mesures du paramètre d'ordre nématique autour de T_s	128
5.2.5	Conclusions sur la spectroscopie élasto-Raman du phonon de l'As	135
5.3	Effets de la déformation sur le continuum : suppression des fluctuations nématiques	135
5.3.1	Continuum électronique de BFA0 sous déformation autour de T_s	135
5.3.2	Continuum électronique de BFA7 sous déformation	145
5.3.3	Évolution du couplage némato-élastique avec le dopage	150
5.4	Conclusions et perspectives de la spectroscopie élasto-Raman dans les supraconducteurs à base de fer	152
6	Dichotomie orbitale des propriétés de liquide de Fermi de Sr_2RuO_4 révélée par spectroscopie Raman	155
6.1	Échantillons et conditions expérimentales	156
6.1.1	Échantillons sondés	156
6.1.2	Conditions expérimentales	158
6.1.3	Détermination de l'échauffement laser	159
6.2	Phonons	159
6.3	Continuum électronique : dynamique des quasiparticules et propriétés de liquide de Fermi	162
6.3.1	Réponse électronique dans le plan	162
6.3.2	Réponse électronique hors plan	165
6.3.3	Différentiation B_{1g} / B_{2g} des paramètres de liquide de Fermi	166
6.3.4	Anisotropie plan – hors plan des paramètres de liquide de Fermi	175
6.4	Interprétation orbitale de la différenciation B_{1g}/B_{2g}	177
6.4.1	Bandes et orbitales	177
6.4.2	Calcul des vertex Raman	178
6.4.3	Première discussion qualitative	179
6.4.4	Poids des vertex orbitaux le long de la surface de Fermi	180
6.4.5	Interprétation orbitale des résultats	182
6.4.6	Comparaison à l'état de l'art	182
6.4.7	Différenciation magnétique	184
6.5	Conclusions et perspectives de la spectroscopie Raman électronique de Sr_2RuO_4	184
	Conclusion	187
	Seconde Conclusion	189
	Annexes	191

Annexe A Compléments sur l'analyse des résultats de spectroscopie élasto-	
Raman de $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$	193
A.1 Ajustements de Fano du phonon de l'arsenic	193
A.2 Simulations numériques par éléments finis autour de la transition structurale	194
A.3 Coefficient élastique sous contrainte finie	199
A.4 Paramètre d'ordre sous champ	201
A.5 Soustraction d'une composante extrinsèque dans BFA0	202
Annexe B Résultats complémentaires de spectroscopie Raman de Sr_2RuO_4	205
B.1 Influence de la longueur d'onde incidente	205
B.1.1 Impacts possibles de la longueur d'onde	205
B.1.2 Spectres selon la longueur d'onde	206
B.1.3 Paramètres de liquide de Fermi à 660 nm	207
B.2 Influence de l'énergie de coupure	208
B.2.1 Réponse Raman à haute énergie	208
B.2.2 Impact de l'énergie de coupure sur les paramètres de liquide de Fermi et la différentiation B_{1g}/B_{2g}	210
Bibliographie	213

Introduction

“You mean reverse chronology, like Feynman and Wheeler’s notion that a positron is an electron moving backwards in time.”

“Sure, that’s exactly what I meant.”

“I have a master’s in physics.”

“Well, try and keep up.”

Christopher Nolan, *Tenet* (2020)

La physique de la matière condensée étudie les propriétés électroniques, magnétiques, optiques, thermiques, des matériaux, puis cherche à les intégrer au sein de dispositifs à visée applicative. Ce domaine de recherche s’inscrit dans le cadre de la physique quantique (le comportement des électrons n’est pas descriptible par les lois de la physique classique) et de la physique statistique (pour étudier des systèmes composés de nombreuses particules en interaction).

La physique statistique décrit en général les transitions de phases : la modification des propriétés physico-chimiques d’un matériau lorsque des paramètres, comme la température ou la pression, sont changés, conduisant à l’apparition d’ordres collectifs. Dans les matériaux quantiques, l’interaction entre différents degrés de liberté des électrons et du réseau ionique (charge, spin, orbitales...) donne naissance à des ordres collectifs quantiques. Parmi ceux-ci, le plus remarquable est sans doute la supraconductivité : sous une température critique T_c , le matériau acquiert une résistivité strictement nulle et un diamagnétisme parfait. Dans les supraconducteurs à base de fer, cet ordre apparaît en proximité avec un autre ordre singulier, la nématicité électronique. Par analogie avec les systèmes de cristaux liquides de la matière molle, dans la phase nématique, une symétrie de rotation discrète du fluide électronique est brisée, tout en conservant les invariances par translation. Les chercheuses et chercheurs estiment que la présence de cette phase influe significativement sur les propriétés supraconductrices, induisant notamment une T_c relativement élevée.

Une contrainte uniaxiale appliquée sur un matériau nématique correspond à un champ de brisure de symétrie : de même qu’un champ magnétique induit une aimantation dans un ferromagnétique, la contrainte uniaxiale active le paramètre d’ordre nématique. Ce stimulus externe constitue un moyen de contrôle sélectif de cet ordre : il modifie les propriétés de la phase nématique, et à travers elle de la phase supraconductrice, voire provoque des transitions de phase. Plus généralement, la contrainte uniaxiale est un paramètre clé pour agir sur les supraconducteurs dans lesquels l’état fondamental supraconducteur a une représentation à plusieurs composantes, par exemple nématique ou chirale : elle lève la dégénérescence de cet état. Par exemple, des effets considérables d’augmentation ou de réduction de T_c ont été démontrés expérimentalement dans le nématique $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ et dans Sr_2RuO_4 . La symétrie du paramètre d’ordre supraconducteur de ce dernier matériau n’est pas encore clairement identifiée, mais est probablement nématique ou chirale. Ces découvertes montrant la possibilité de contrôle des propriétés supraconductrices par une contrainte uniaxiale

permettent réciproquement de mieux comprendre l'origine de cet ordre dans ces matériaux.

Ces résultats ont été obtenus suite au développement récent de nouvelles cellules, permettant l'application contrôlée d'une forte contrainte uniaxiale. Ces cellules ont été combinées avec différents dispositifs expérimentaux complémentaires, dont seul le rassemblement des résultats permet d'avancer dans la connaissance des matériaux. La spectroscopie Raman est une sonde unique des états électroniques : sa capacité de résoudre leurs différentes symétries rend particulièrement prometteuse sa combinaison avec un dispositif de contrainte uniaxiale.

L'objectif de ce doctorat était précisément de mettre en place un dispositif de spectroscopie élasto-Raman, combinant spectroscopie Raman et contrainte uniaxiale. Comme des effets importants de contrainte ont été observés dans $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ et dans Sr_2RuO_4 , ces deux matériaux apparaissaient comme des composés de choix pour d'une part valider le fonctionnement du dispositif, et d'autre part utiliser les spécificités de la spectroscopie Raman pour résoudre en symétrie les effets de contrainte dans ces composés. Contrairement à $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$, les spectres de diffusion Raman électronique de Sr_2RuO_4 n'étaient pas préalablement bien connus. En parallèle de la mise en place du dispositif de contrainte, j'ai donc effectué un travail préliminaire de spectroscopie Raman sans contrainte sur ce matériau. J'ai ensuite manqué de temps pour effectuer une étude complète des effets de contrainte, mais ce travail préliminaire a fourni en lui-même des résultats essentiels, que je présente dans cette thèse. Ainsi, cette thèse rend compte de deux études par spectroscopie Raman indépendantes, l'une sur $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ sous contrainte uniaxiale, l'autre sur Sr_2RuO_4 sans contrainte.

Pour $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$, le but est de mettre en évidence des effets de la contrainte uniaxiale sur divers éléments des spectres Raman (modes de phonons, pic quasi élastique et mode supraconducteur), pour notamment évaluer la dépendance en déformation de la susceptibilité nématique et son lien avec la supraconductivité.

Pour Sr_2RuO_4 , l'objectif est de caractériser sa réponse Raman à la lumière du modèle de liquide de Fermi, en utilisant la résolution en symétrie de la spectroscopie Raman pour accéder aux propriétés électroniques de différentes orbitales.

Le plan de cette thèse est le suivant. Les chapitres 1 et 2 introduisent la physique des deux matériaux étudiés : le chapitre 1 est consacré à Sr_2RuO_4 , avec une présentation du modèle de liquide de Fermi, et le chapitre 2 à $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$, avec une présentation de la nématocité. Le chapitre 3 est le seul en commun entre les deux projets : il explique les principes généraux de la diffusion Raman, les cas particuliers de la diffusion Raman par un matériau liquide de Fermi, nématique ou supraconducteur, et l'implémentation expérimentale de la spectroscopie Raman. Le chapitre 4 explique le formalisme gouvernant les expériences sous contrainte uniaxiale, et rend compte de la mise en place du dispositif de spectroscopie élasto-Raman. Enfin, les chapitres 5 et 6 présentent les résultats de cette thèse, respectivement sur $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ sous contrainte uniaxiale et Sr_2RuO_4 . Les annexes A et B complètent les résultats obtenus, respectivement sur $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ et Sr_2RuO_4 .

Chapitre 1

Le modèle du liquide de Fermi et sa réalisation dans Sr_2RuO_4

“Circumstantial evidence is a very tricky thing”, answered Holmes thoughtfully. “It may seem to point very straight to one thing, but if you shift your own point of view a little, you may find it pointing in an equally uncompromising manner to something entirely different.”

Arthur Conan Doyle, *The Boscombe Valley Mystery*,
in *The Adventures of Sherlock Holmes* (1892)

Synthétisé dès 1959 [215], le composé Sr_2RuO_4 n’a suscité qu’un intérêt limité pendant trois décennies. Ce matériau est alors étudié sous forme de poudre, entre autres oxydes de métaux de transition (notamment le ruthénium, l’iridium, ou le platine), les chercheuses s’intéressant principalement à leurs propriétés cristallographiques et magnétiques [37, 137]. Il est synthétisé sous forme de monocristal en 1990 [190].

À partir des travaux de Johannes Georg Bednorz et Karl Alexander Müller publiés en 1986 [19], la découverte de la supraconductivité de plusieurs matériaux de la famille des cuprates (oxydes de cuivre) avec des températures critiques élevées¹, donne de nouvelles perspectives pour Sr_2RuO_4 . D’une part, la recherche d’applications pour les cuprates supraconducteurs incite à trouver des matériaux qui puissent leur être associés au sein de dispositifs. Dans ce cadre, en 1992, Sr_2RuO_4 est utilisé comme substrat métallique pour la croissance du cuprate supraconducteur $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ [154]. À cette occasion, la méthode de synthèse de monocristaux de Sr_2RuO_4 est améliorée, avec la technique de la fusion de la zone flottante (en anglais *floating zone melting*). D’autre part, dans la recherche d’une supraconductivité de haute température critique avec des oxydes d’autres métaux que le cuivre, Sr_2RuO_4 apparaît comme un candidat de choix : il est isostructural à La_2CuO_4 , avec les plans CuO_2 remplacés par des plans RuO_2 , La_2CuO_4 étant le composé parent des supraconducteurs $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ [246] et $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ [43]. Ainsi, découvrir ou non une phase supraconductrice dans Sr_2RuO_4 permettrait de discuter la nécessité de l’élément cuivre pour que les matériaux de cette structure atteignent de hautes températures critiques. Dans cette optique, en 1994, une équipe étudie la transition métal–isolant de la solution solide

1. Jusqu’alors, la plus haute température critique obtenue était de 23 K, pour Nb_3Ge . Bednorz et Müller obtinrent une température critique de 35 K pour un cuprate du système Ba-La-Cu-O, puis des cuprates de températures critiques supérieures à 90 K furent découverts. Le record de température critique supraconductrice à pression ambiante est de 135 K, détenu encore en 2021 par un membre de la famille des cuprates, $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_8$.

$\text{Sr}_2\text{Ir}_{1-x}\text{Ru}_x\text{O}_4$, sans observer de phase supraconductrice [42]; également en 1994, un comportement isolant entre 1,2 et 300 K est observé dans le composé $\text{Sr}_2\text{RuO}_{4+\delta}$ (avec $\delta \approx 0,25$) sous forme polycristalline [196].

En 1994 toujours, Maeno et collaborateurs [168] découvrent finalement l'état supraconducteur de Sr_2RuO_4 , sur des échantillons monocristallins, avec une température critique de 0,93 K. Cette très faible température critique interroge, accompagnée du fait que, contrairement aux cuprates, le matériau devient supraconducteur sans qu'un dopage soit nécessaire. D'autres propriétés découvertes rapidement distinguent Sr_2RuO_4 des cuprates, notamment son caractère multibande et son état métallique de liquide de Fermi (quand les cuprates présentent une unique bande au niveau de Fermi, et sont des mauvais métaux sur la majorité de leur diagramme de phases température–dopage). Ces différences clés rendent la recherche sur Sr_2RuO_4 autonome de celle des cuprates, et lancent une longue quête pour percer les mystères de ce matériau, toujours actuelle et dans laquelle mon travail de doctorat s'inscrit.

Dans ce chapitre, je présente les principaux aspects du modèle du liquide de Fermi puis sa réalisation dans Sr_2RuO_4 , dont j'expose les propriétés essentielles. Puisque j'analyserai mes résultats comme révélateurs de l'anisotropie des axes cristallins et surtout de la différenciation orbitale, j'insiste dans ce chapitre sur les caractéristiques de ce matériau qui montrent une différence de comportement des électrons selon la direction cristallographique ou selon les orbitales.

En plus des articles explicitement cités dans la suite, je me suis inspiré pour ce chapitre de différents articles de revue consacrés à Sr_2RuO_4 [22, 151, 160, 165, 166, 170, 171], ainsi que de la thèse de Damien Stricker [244].

Sommaire

1.1	Modèle du liquide de Fermi	5
1.1.1	Théorie et concepts du modèle	5
1.1.1.1	Construction et concept de quasiparticule	5
1.1.1.2	Propriétés du taux de relaxation	7
1.1.1.3	Modification de la masse	9
1.1.1.4	Domaine de validité du modèle du liquide de Fermi	10
1.1.2	Exploration expérimentale du modèle du liquide de Fermi	10
1.1.2.1	Techniques expérimentales et grandeurs mesurées	10
1.1.2.2	Comportement théorique de la conductivité optique et lois d'échelle	11
1.1.2.3	Réalisation du modèle du liquide de Fermi dans quelques composés	13
1.2	Propriétés générales de Sr_2RuO_4	13
1.2.1	Structure cristallographique	13
1.2.2	Structure électronique et surface de Fermi	13
1.2.2.1	Construction théorique de la surface de Fermi	13
1.2.2.2	Surface de Fermi réelle	15
1.2.2.3	Masses de bande sur chaque feuillet	16
1.2.2.4	Singularité de van Hove	16
1.2.3	Fluctuations magnétiques	17
1.3	État supraconducteur	18
1.3.1	Température critique	18
1.3.2	Paramètre d'ordre supraconducteur	19
1.3.2.1	Vocabulaire	19
1.3.2.2	Un paramètre d'ordre toujours en question pour Sr_2RuO_4	19
1.3.2.3	Feuillets actifs et mécanisme d'appariement	21
1.3.3	Conclusion sur l'état supraconducteur de Sr_2RuO_4	21

1.4 État métallique	22
1.4.1 Preuves du comportement de liquide de Fermi bidimensionnel	22
1.4.2 Fortes corrélations électroniques	24
1.4.3 Modèle du métal de Hund	26
1.4.3.1 Définition d'un métal de Hund	26
1.4.3.2 Approche du métal de Hund pour Sr_2RuO_4	26
1.4.3.3 Cohérence avec les fluctuations de spin	28
1.4.4 Conclusions sur l'état métallique de Sr_2RuO_4	28

1.1 Modèle du liquide de Fermi

Le modèle du liquide de Fermi a été proposé par le physicien russe Lev Landau dans des articles fondateurs publiés entre 1956 et 1958 [145-147]. Il développe ce modèle en prolongement de celui du gaz de Fermi, système de fermions sans interaction, pour étudier les systèmes de fermions en interaction. Il s'intéresse originellement à l'hélium III liquide, mais cite les électrons dans un métal comme autre exemple de ce type de systèmes. Le modèle du liquide de Fermi a été abondamment repris dans la littérature de la physique de la matière condensée, à la fois d'un point de vue théorique et d'un point de vue expérimental. Je ne présenterai que succinctement les bases de ce modèle, en introduisant les concepts nécessaires et suffisants pour comprendre mes travaux sur le liquide de Fermi Sr_2RuO_4 ; j'indiquerai également les techniques expérimentales courantes permettant d'étudier les propriétés de liquide de Fermi.

Plusieurs manuels classiques de physique de la matière condensée donnent plus de détails sur le modèle ou ses réalisations expérimentales. Pour ma part, pour l'écriture de cette section, en sus des sources citées dans la suite, je me suis notamment inspiré des références [67, 119, 211, 225].

1.1.1 Théorie et concepts du modèle

1.1.1.1 Construction et concept de quasiparticule

En partant d'un système de fermions sans interaction, on obtient un liquide de Fermi en activant les interactions de façon adiabatique : très lentement, sans échange de chaleur. L'hypothèse fondamentale du modèle est que les états propres du système réel en interaction (tous les états énergétiques accessibles aux particules du système, donc à la fois l'état fondamental et les états excités) sont, du fait du caractère adiabatique de cette activation, en correspondance bijective avec les états propres du système sans interaction. Les particules excitées du système réel, en bijection avec celles du système sans interaction, sont nommées quasiparticules.

Le comportement du système réel se comprend alors comme celui d'un système sans interaction, mais dans lequel les particules excitées (par exemple les électrons et les trous) sont remplacées par les quasiparticules (quasiélectrons, quasitrous) : des particules effectives aux caractéristiques transformées. Du fait de l'activation adiabatique, le moment et le spin restent de bons nombres quantiques pour caractériser les quasiparticules, comme dans le système sans interaction, et la surface de Fermi reste inchangée. Chaque particule excitée est « habillée » (en anglais *dressed*) par l'ensemble des autres particules avec lesquelles elle interagit, le tout (particule et nuage environnant) formant la quasiparticule. Cet habillage a deux conséquences sur le comportement des particules excitées, mesurables expérimentalement. Il instaure un temps de vie τ fini : la particule dans un état excité peut se relaxer grâce à l'interaction avec d'autres particules, et ne reste donc que le temps τ dans l'état

excité. On définit le taux de relaxation, ou taux de diffusion² $\Gamma = \hbar/\tau$. Dans le cadre du modèle, si le temps de vie est plus faible que le temps d'instauration adiabatique des interactions, la quasiparticule n'est pas proprement définie avant qu'elle ne se relaxe : le concept de quasiparticule n'a donc de sens que pour des temps de vie suffisamment longs. La seconde conséquence de l'habillage d'une particule est que sa masse de référence m est modifiée (ou « renormalisée ») en une masse effective m^* ; on définit le paramètre de renormalisation λ par $1 + \lambda = m^*/m$.

Après ces considérations qualitatives de la théorie microscopique de Landau, j'introduis maintenant quelques grandeurs physiques couramment utilisées pour décrire un liquide de Fermi. Une grandeur fondamentale est l'auto-énergie (en anglais *self-energy*) $\Sigma(\mathbf{k}, \omega)$, dépendant du vecteur d'onde \mathbf{k} et de l'énergie ω de la quasiparticule. Elle représente l'impact des interactions sur les propriétés énergétiques de la quasiparticule ; elle est donc identiquement nulle dans un système sans interaction. Ses parties réelle et imaginaire, notées respectivement Σ' et Σ'' sont reliées directement à Γ et m^* [23, 35] :

$$\Gamma(\mathbf{k}, \omega) = -2Z\Sigma''(\mathbf{k}, \omega) \quad (1.1)$$

$$1 + \lambda = \frac{1}{Z} = 1 - \left. \frac{\partial}{\partial \omega} \Sigma'(\mathbf{k}_F, \omega) \right|_{\omega=0} \quad (1.2)$$

où \mathbf{k}_F est le vecteur d'onde au niveau de Fermi. Z est appelé poids de quasiparticule. Une propriété importante est que $0 < Z \leq 1$ ³. Σ' et Σ'' sont reliées entre elles par la transformée de Kramers–Kronig⁴, donc λ et Γ ne sont pas indépendants. L'équation (1.1) pose que le taux de relaxation d'une quasiparticule présente des dépendances selon son énergie et son vecteur d'onde. $\Gamma(\mathbf{k}, \omega = 0)$ est appelé taux de relaxation statique.

L'auto-énergie intervient également dans la fonction décrivant les états d'excitation du système, la fonction spectrale $A(\mathbf{k}, \omega)$. Je définis $A_0(\mathbf{k}, \omega)$ et $A(\mathbf{k}, \omega)$ les fonctions spectrales d'une (quasi)particule respectivement dans la cas sans et avec interaction, données par :

$$A_0(\mathbf{k}, \omega) = \delta(\omega - \xi_{\mathbf{k}}^0) \quad (1.3)$$

$$A(\mathbf{k}, \omega) = \frac{1}{\pi} \frac{\Sigma''(\mathbf{k}, \omega)}{[\omega - \xi_{\mathbf{k}}^0 - \Sigma'(\mathbf{k}, \omega)]^2 + [\Sigma''(\mathbf{k}, \omega)]^2} \quad (1.4)$$

où $\xi_{\mathbf{k}}^0$ est la relation de dispersion de la particule sans interaction, ou particule nue. L'effet des interactions est illustré en figure 1.1. Schématiquement, la fonction δ de Dirac représentant la fonction spectrale sans interaction s'élargit en une fonction lorentzienne, dont la largeur est donnée par le taux de relaxation et dont le centrage est décalé de la relation de dispersion nue $\xi_{\mathbf{k}}^0$ par la renormalisation de la masse. Le pic de quasiparticule a un poids spectral (aire sous la courbe) égal à Z . Comme l'intégrale du pic de Dirac vaut 1 et qu'il faut conserver le poids spectral lors de l'établissement adiabatique des interactions, dans le cas où $Z < 1$, la fonction spectrale présente une partie dite incohérente, d'intégrale $1 - Z$. Ce poids incohérent est dû

2. \hbar est la constante de Planck réduite. Dans la suite, je prendrai pour simplifier les notations $\hbar = 1$, soit $\Gamma = 1/\tau$.

3. $\lambda < 0$ est permis dans les aspects fondamentaux de la théorie, mais je me place ici dans le cas le plus courant où la masse est augmentée par les corrélations, soit $\lambda > 0$.

4. Si χ est une fonction complexe de la variable complexe ω , avec χ_1 et χ_2 respectivement ses parties réelle et imaginaire, et selon certaines conditions d'analyticité de χ , la relation de Kramers–Kronig est : $\chi_1(\omega) = 1/\pi \mathcal{P} \int_{-\infty}^{\infty} \chi_2(\omega')/(\omega' - \omega)d\omega'$, avec \mathcal{P} la partie principale de Cauchy et une relation inverse similaire reliant χ_2 à χ_1 [266].

à des processus d'excitations plus complexes qu'une simple quasiparticule, pouvant advenir dans des systèmes en forte interaction. La quasiparticule n'est théoriquement bien définie, et le modèle du liquide de Fermi n'est pertinent que si le poids spectral du pic de quasiparticule est suffisamment élevé par rapport au poids incohérent, donc si la renormalisation de la masse est suffisamment faible.

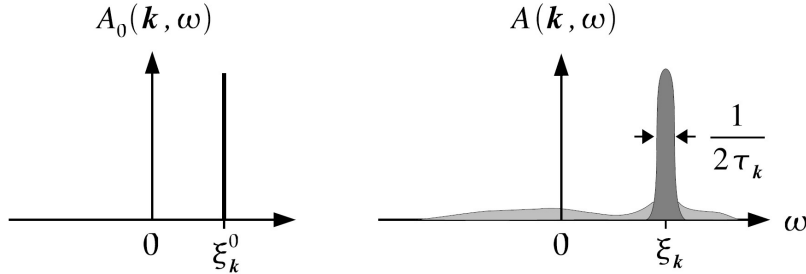


FIGURE 1.1 – Fonction spectrale dans le cas d'un gaz de Fermi sans interaction (gauche) et dans le cas d'un liquide de Fermi (droite). Pour la fonction spectrale A , l'aire gris foncé correspond au poids spectral du pic de quasiparticule (Z), quand l'aire gris clair représente la partie incohérente ($1 - Z$). (Figure issue de [67].)

1.1.1.2 Propriétés du taux de relaxation

Je considère un système d'électrons sans interaction dans un métal, dans son état fondamental, et une particule ajoutée dans un niveau excité : l'état propre résultant est stationnaire. En activant de façon adiabatique les interactions de ce système excité, on obtient un liquide de Fermi, avec une quasiparticule au dessus du niveau de Fermi. Du fait des interactions, cette quasiparticule peut perdre de l'énergie et se rapprocher du niveau de Fermi : la condition de ce processus est que la quasiparticule transmette cette énergie à un électron sous le niveau de Fermi ; cet électron est alors promu au-dessus du niveau de Fermi, créant ainsi une paire électron-trou. L'état du système réel excité n'est bien défini qu'avant la relaxation de la quasiparticule. Si le temps de vie est trop court, la quasiparticule relaxe avant que les interactions aient pu s'établir adiabatiquement, et l'état du système réel n'est plus un état propre.

Or, le temps de vie est d'autant plus grand que la quasiparticule est proche du niveau de Fermi. En effet, la quasiparticule ne peut diffuser qu'avec un électron au moins aussi proche de la surface de Fermi qu'elle : le nombre d'électrons remplissant cette condition diminue quand l'énergie de la quasiparticule se rapproche du niveau de Fermi, et la probabilité qu'elle diffuse est donc plus faible. Plus précisément, le taux de relaxation Γ varie quadratiquement avec l'énergie ω de la quasiparticule⁵ : $\Gamma(\omega) \propto \omega^2$.

Pour expliquer qualitativement cette dépendance quadratique, je rappelle qu'un tel taux de relaxation se calcule au moyen de la règle d'or de Fermi. Elle stipule une sommation des éléments de matrice de diffusion sur l'ensemble des états finaux possibles. L'état final se compose de trois excitations : la quasiparticule de départ relaxée (énergie $\omega_2 > 0$), la quasiparticule créée par l'excitation d'un électron (énergie $\omega_3 > 0$) et le quasitrou laissé par cet électron (énergie $\omega_4 < 0$). La condition de conservation de l'énergie lors du processus est : $\omega = \omega_2 + \omega_3 + \omega_4$. On peut choisir ω_2 dans l'intervalle $[0, \omega]$, ce qui amène un premier facteur ω dans la sommation ; et ω_4 dans l'intervalle $[-(\omega - \omega_2), 0]$, ce qui amène un second

5. On fixe l'origine des énergies au niveau de Fermi.

facteur ω . Ceci étant posé, ω_3 a une valeur contrainte par la conservation de l'énergie. Les deux facteurs ω produisent la dépendance quadratique. La figure 1.2 illustre le processus de relaxation de la quasiparticule.

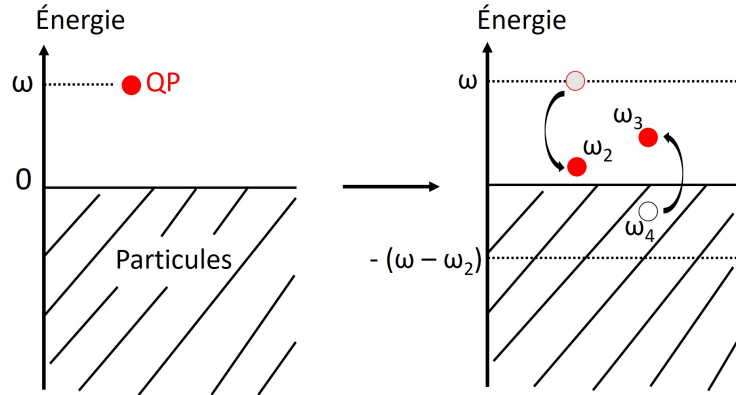


FIGURE 1.2 – Processus de relaxation d'une quasiparticule en une paire quasiparticule–quasitrou autour du niveau de Fermi.

Jusqu'ici, j'ai ignoré l'influence de la température sur le système : je me suis implicitement placé à température nulle, ce qui m'a permis d'assigner la quasiparticule à un niveau fixe, et d'assurer une mer de Fermi remplie. Si on élève la température, les électrons de la mer de Fermi acquièrent une énergie thermique d'ordre $k_B T$ autour du niveau de Fermi, avec T la température et k_B la constante de Boltzmann. De même la quasiparticule, même si elle est virtuellement placée au plus près du niveau de Fermi, peut acquérir une énergie thermique d'ordre $k_B T$. Le nombre de diffusions possibles augmente quadratiquement avec cette énergie thermique proportionnelle à la température. Ainsi, en plus de la dépendance du taux de relaxation avec l'énergie de la quasiparticule, le modèle prédit également une dépendance quadratique avec la température : $\Gamma(T) \propto T^2$.

La double dépendance du taux de relaxation s'écrit finalement :

$$\Gamma(T, \omega) = \alpha \omega^2 + \beta (k_B T)^2 \quad (1.5)$$

avec α et β des constantes. Si Γ , ω et $k_B T$ sont dimensionnés comme des énergies, les préfacteurs α et β sont dimensionnés comme l'inverse d'une énergie. Cette double dépendance est établie dans le cadre du modèle du liquide de Fermi, en ne considérant que les interactions électron–électron : la diffusion des quasiparticules électroniques avec d'autres modes d'excitation entraîne des dépendances autres. Par exemple, la diffusion sur les phonons entraîne à basse température une dépendance en T^5 [8]. La diffusion sur les impuretés du cristal entraîne un taux de relaxation résiduel Γ_{00} indépendant de la température et de l'énergie. Si ces termes de diffusion deviennent prépondérants par rapport au terme quadratique de diffusion électron–électron, alors le matériau ne peut pas être considéré comme un bon liquide de Fermi.

Avant de poursuivre sur le modèle du liquide de Fermi, il est instructif de replacer ce concept de temps de vie de la quasiparticule dans un cadre historique. En effet, l'idée d'associer un temps caractéristique au comportement des électrons dans un métal apparaît dès 1900⁶ dans le premier modèle expliquant la conductivité des métaux en termes de transport

6. Les électrons n'ont été bien identifiés en termes de corpuscules que dans les années 1895–1897.

d'électrons, développé par Paul Drude [65]. Il remarque que pour assurer une conductivité finie, il faut que le déplacement des électrons sous l'influence d'un champ électrique subisse une certaine gêne. Il suppose alors que cette gêne est due aux collisions isotropes entre électrons et ions. Il introduit un temps caractéristique représentant la durée moyenne entre chaque collision : plus ce temps est petit, plus les collisions sont fréquentes et plus le transport électronique est gêné. Quand Arnold Sommerfeld [237] introduit des éléments de mécanique quantique dans le modèle de Drude, l'existence d'un temps de relaxation est conservée comme hypothèse fondamentale. Ainsi, même avant Landau, l'idée d'associer à l'électron un temps de vie était bien ancrée : seule la justification microscopique de ce temps de vie diffère.

1.1.1.3 Modification de la masse

La seconde conséquence mesurable de l'habillage des particules est la modification, ou renormalisation, de leur masse ⁷.

Avant de poursuivre, il est important de préciser que dans un matériau réel, la modification de la masse des particules a plusieurs origines. On peut définir plusieurs types de masses, qui seront liées à diverses interactions, mesurables ou calculables par différentes techniques expérimentales ou simulations, et qu'il ne faudra pas confondre. Par exemple Bergemann et collaborateurs [22] distinguent quatre masses différentes, en plus de la masse de l'électron nu. Je vais me contenter ici de distinguer la masse de bande de la masse effective des quasiparticules dans le cas d'un liquide de Fermi. Les particules portant la charge étant habituellement les électrons ou les trous, les différentes masses sont exprimées en unité de la masse de l'électron.

La masse de bande (ou masse cristalline, notée m_b), correspond à la masse de particules n'interagissant pas entre elles et se déplaçant dans un potentiel périodique dû aux ions (par exemple des électrons dont la fonction d'onde est une onde de Bloch). Les autres termes d'interaction (électron-phonon ou électron-électron) sont ignorés. Elle est calculée sur l'ensemble de la zone de Brillouin par les méthodes de calculs de structures de bandes : c'est l'inverse de la dérivée seconde de l'énergie par rapport à l'impulsion. Elle présente donc une dépendance avec la coordonnée \mathbf{k} de l'espace réciproque. Elle peut être plus grande ou plus petite que la masse réelle de l'électron ; elle est d'autant plus grande que les bandes sont plates.

La masse effective des quasiparticules est définie dans le cadre du modèle du liquide de Fermi comme $m^* = \frac{p_F}{\nabla_{p^c}(p_F)}$, avec p l'impulsion, notée p_F pour une quasiparticule à l'énergie de Fermi. Contrairement à la masse de bande, cette masse effective n'est pas définie uniquement pour des particules dans un potentiel périodique. Landau [145] indique que, dans son modèle du liquide de Fermi, la chaleur spécifique reste proportionnelle à la température ; mais dans la formule de la pente qui s'applique aux gaz de Fermi, il faut remplacer la masse réelle des particules par cette masse effective. Plus les corrélations électroniques au sein du système d'électrons du matériau sont fortes, plus la masse effective sera grande par rapport à la masse sans interaction.

Il est important de noter que la masse effective n'est définie théoriquement qu'au niveau de Fermi : ses dépendances avec l'énergie et la température, mesurables expérimentalement, ne sont pas prises en compte. La seule condition sur ses valeurs possibles est qu'elle doit être positive, pour garantir la stabilité du système électronique.

La masse de la particule dans un gaz de Fermi soumise au potentiel du réseau est représentée par la masse de bande : c'est donc cette dernière qui est la masse de référence de

7. λ et Γ sont reliés par des transformations de type Kramers-Kronig, donc ces deux conséquences de l'habillage des particules (temps de vie et masse effective) sont théoriquement liées.

l'électron dans un cristal, plutôt que la masse réelle de l'électron. Pour une quasiparticule dans un potentiel périodique, le facteur de renormalisation $1 + \lambda$ que j'ai défini précédemment est donc défini par rapport à la masse de bande : $1 + \lambda = m^*/m_b$.

1.1.1.4 Domaine de validité du modèle du liquide de Fermi

Comme je l'ai évoqué plus haut, le concept de liquide de Fermi n'a de sens que pour des temps de vie de quasiparticules suffisamment courts. Comme ce temps diminue lorsque la température ou l'énergie de la quasiparticule augmentent, le modèle n'est valable qu'à faible température, pour des excitations de faible énergie. De plus, avec l'élévation de la température, d'autres processus de relaxation peuvent apparaître et devenir dominants par rapport à la diffusion électron-électron, qui est à la base du modèle du liquide de Fermi, par exemple la diffusion électron-phonon. Également, un régime incohérent peut s'établir à haute énergie et température : dans la représentation en fonction spectrale, le poids des processus incohérents devient prépondérant par rapport au pic de quasiparticule.

Ainsi, si un matériau fait montre de propriétés représentatives du modèle du liquide de Fermi, par exemple la dépendance quadratique du taux de relaxation avec la température, on peut s'attendre à ce que cela ne soit le cas que jusqu'à une certaine température T_{FL} , avec des déviations au-delà. De même, la dépendance quadratique avec l'énergie sera valable jusqu'à ω_{FL} .

J'insiste ici sur le fait que le régime de liquide de Fermi n'est pas une phase bien définie caractérisée par un paramètre d'ordre et une température de transition. La sortie du comportement de liquide de Fermi doit plutôt être vue comme une transition progressive (en anglais *crossover*) autour de T_{FL} vers un état non liquide de Fermi.

Inversement, le caractère de liquide de Fermi pourra disparaître en faisant diminuer la température, si une nouvelle phase apparaît : c'est par exemple le cas de Sr_2RuO_4 qui devient supraconducteur sous T_c .

Il est important de préciser que, même dans le cas où un matériau n'obéit pas aux prédictions théoriques du liquide de Fermi, on peut toujours chercher à mesurer un taux de relaxation des porteurs ainsi qu'une masse effective, avec une dépendance éventuelle en énergie et température. Ces grandeurs sont représentatives des corrélations dans le système, qu'elles soient descriptibles dans le cadre du modèle du liquide de Fermi, ou dans le cadre de modèles différents (par exemple dans un modèle où les interactions électron-phonon prédominent).

1.1.2 Exploration expérimentale du modèle du liquide de Fermi

1.1.2.1 Techniques expérimentales et grandeurs mesurées

Plusieurs techniques expérimentales permettent de sonder le comportement de liquide de Fermi d'un matériau, en mesurant le taux de relaxation ou la renormalisation de la masse. La preuve expérimentale la plus centrale, voire déterminante, du caractère de liquide de Fermi d'un composé est d'obtenir les dépendances quadratiques en énergie et température de son taux de relaxation.

La résistivité ρ mesurée par transport en courant continu (en anglais *direct current*, DC) est proportionnelle au taux de relaxation statique ; dans un liquide de Fermi, on retrouve la dépendance quadratique en température : $\rho(T) = AT^2$. Pour révéler à la fois les dépendances quadratiques en température et en énergie du taux de relaxation, on peut utiliser les mesures de conductivité optique, dont la partie réelle de l'inverse est proportionnelle au taux de relaxation⁸, ou de spectroscopie de photoémission résolue en angle (en anglais *angle-resolved*

8. Du fait de la transformation de Kramers-Kronig reliant Γ et λ , la mesure de conductivité optique permet également d'accéder à λ .

photoemission spectroscopy, ARPES), qui permet de mesurer les fonctions spectrales⁹. Ces différentes techniques n'accèdent cependant pas rigoureusement à la même auto-énergie. L'ARPES est une sonde à une particule, permettant de mesurer la fonction spectrale à une particule $A(\mathbf{k}, \omega)$. Les techniques de transport électronique ou optique évoquées ci-avant, ainsi que la spectroscopie Raman, sont des sondes à deux particules. Même si les propriétés physiques du matériau existent indépendamment de la sonde, chaque sonde amène des perturbations du système qui lui sont propres. En général, les techniques de transport et la spectroscopie Raman donnent accès à des auto-énergies modifiées de facteurs correctifs par rapport à celles mesurées directement par ARPES. La détermination de ces facteurs correctifs est difficile, et ceux-ci dépendent des détails des modèles théoriques considérés.

La valeur de renormalisation de la masse peut être obtenue par mesure de la chaleur spécifique, ainsi que par les études des effets d'oscillations quantiques sur la surface de Fermi sous champ magnétique (effet de Haas–van Alphen). Plus précisément, ces dernières permettent d'accéder à la masse cyclotron thermodynamique [22].

Une complexité supplémentaire pour l'étude du caractère de liquide de Fermi d'un composé intervient quand celui-ci présente une surface de Fermi composée de plusieurs feuilletts. En effet, il est a priori possible dans un tel cas que les propriétés des quasiparticules diffèrent selon la bande qu'elles occupent. Ainsi, certaines techniques expérimentales ne sont pas résolues en vecteur d'onde, et sondent l'ensemble de la zone de Brillouin, soit une moyenne potentiellement pondérée des propriétés des différentes bandes. C'est le cas des mesures de transport DC, de conductivité optique et de chaleur spécifique. À l'inverse, certaines techniques accèdent de façon discriminée à différentes régions de la zone de Brillouin, et peuvent donc sonder indépendamment les différentes bandes. C'est le cas de l'ARPES, des mesures d'oscillations quantiques, ainsi que de la spectroscopie Raman, comme je le montrerai au chapitre 3, et l'appliquerai pour Sr_2RuO_4 au chapitre 6.

1.1.2.2 Comportement théorique de la conductivité optique et lois d'échelle

La conductivité optique σ apparaît comme la grandeur physique la plus pertinente pour accéder au comportement de liquide de Fermi, car elle est sensible à la dépendance en énergie et température du taux de relaxation. Les études théoriques établissant son expression dans différents régimes donnent des renseignements importants sur le comportement attendu du taux de relaxation, c'est pourquoi je m'y attarde dans cette section.

L'expression de la partie réelle de σ pour un liquide de Fermi est [178] :

$$\sigma'(\omega, T) = \sigma_0 \frac{\omega^2 + (2\pi k_B T)^2}{\omega^2} \quad (1.6)$$

valable pour $\omega \neq 0$. Elle est illustrée en figure 1.3 (graphique gauche). Le numérateur de cette expression correspond à $\Gamma(\omega, T)$. Quatre régimes se distinguent selon ω [178]. Au-delà du régime continu (DC) à très basse énergie, le régime de Drude s'établit pour $\omega \ll T$, avec $\sigma' \propto T^2/\omega^2$: la dépendance en ω du taux de relaxation est encore négligeable. Pour $\omega \gg T$, σ' sature à une valeur indépendante de l'énergie. Cette saturation est fondamentalement due à la composante ω^2 de Γ , d'où le nom de « pied de liquide de Fermi » (en anglais *Fermi liquid foot*) pour désigner ce comportement. La description en liquide de Fermi n'est plus pertinente au-delà de l'énergie Λ_{FL} .

Un comportement similaire est établi dans le cadre de la théorie du champ moyen dynamique (en anglais *dynamical mean field theory*, DMFT) [23], représenté en figure 1.3 (graphique droit) : régime de Drude sous ω_L , puis déviation vers le pied de liquide de Fermi

9. Les techniques actuelles d'ARPES ne permettent cependant pas d'accéder de façon non ambiguë au taux de relaxation [248].

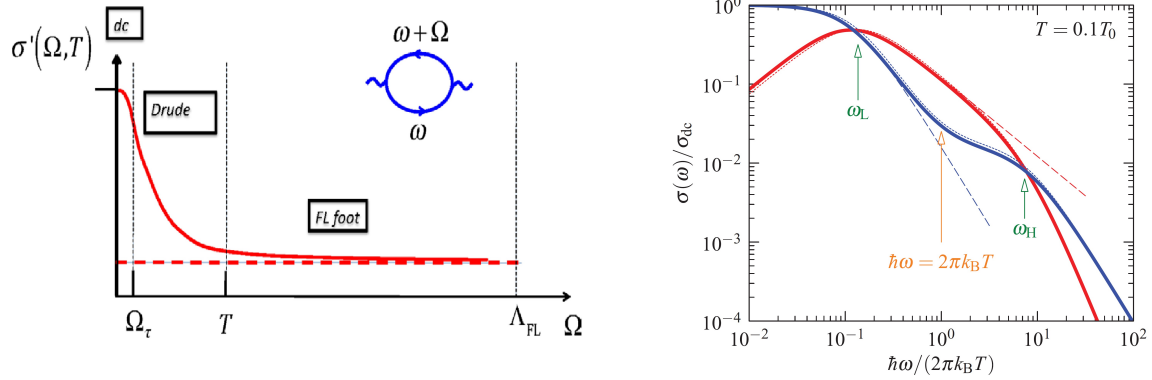


FIGURE 1.3 – Allure de la conductivité optique pour un liquide de Fermi, calculée dans les références [178] (gauche) et [23] (droite). (Gauche) Ω_τ est égal au taux de relaxation statique. (Droite) Les lignes continues sont les parties réelle (bleue) et imaginaire (rouge) de la conductivité. Les lignes tiretées sont le comportement de type Drude, les lignes pointillées le comportement du régime thermal. (Figures issues des références citées.)

autour de $\omega \sim 2\pi k_B T$ (régime dit « thermal »), et effondrement du liquide de Fermi au-delà de ω_H . Une échelle de température est donnée par T_0 , le comportement de liquide de Fermi s’appliquant complètement uniquement sous $T_{FL} = T_0/10$. Au-delà de T_{FL} se produit un *crossover* vers un régime incohérent, dans lequel la conductivité ne peut plus être exprimée sous sa forme de liquide de Fermi.

Le numérateur de l’équation (1.6) qui est égal au taux de relaxation montre que les préfacteurs α et β de ses termes quadratiques ne sont pas indépendants, mais présentent une loi d’échelle¹⁰. Avec α et β respectivement les préfacteurs en énergie et en température, on a $\beta/\alpha = (p\pi)^2$, avec $p = 2$ si le rapport d’échelle est vérifié. Théoriquement, ce rapport d’échelle doit également concerner les limites du comportement de liquide de Fermi T_{FL} et ω_{FL} : $\omega_{FL} = 2\pi k_B T_{FL}$.

Comme je l’ai mentionné précédemment, la conductivité optique et l’ARPES ne sondent pas la même auto-énergie, ce qui a un impact sur le rapport d’échelle. En effet, la partie imaginaire de l’auto-énergie à une particule (fermions) a un comportement en loi d’échelle $\Sigma_1''(\omega, T) \propto \omega^2 + (\pi k_B T)^2$, contre $\Sigma_2''(\omega, T) \propto \omega^2 + (2\pi k_B T)^2$ (équation (1.6)) pour celle à deux particules (bosons).

De façon surprenante, la prédiction théorique de la loi d’échelle, mise à l’épreuve expérimentalement sur plusieurs métaux [178], n’a jamais été vérifiée, la valeur de p pouvant aller de moins de 1 à 30 sans se fixer clairement à 2. Ceci, sauf pour Sr_2RuO_4 [243] : j’y reviendrai plus loin. D’après Maslov et Chubukov [178], la contrainte $p = 2$ est une propriété robuste des liquides de Fermi. Les écarts du rapport d’échelle sont attribués aux effets de diffusion élastique dépendants de l’énergie, qui contribuent à une dépendance en énergie de l’auto-énergie des quasiparticules, mais pas à une dépendance en température. Maslov et Chubukov considèrent que, même si un composé présente un taux de relaxation avec des dépendances quadratiques claires selon ω et T , l’absence de la loi d’échelle montre que ces dépendances ne sont pas dues qu’aux corrélations entre électrons, ce qui nuance sa description en tant que liquide de Fermi.

10. Ce rapport d’échelle est dit de Gurzhi, car il a été établi théoriquement par Gurzhi [92]. Maslov et Chubukov [177] l’obtiennent également sous un angle différent.

1.1.2.3 Réalisation du modèle du liquide de Fermi dans quelques composés

Il est utile de préciser ici que le modèle du liquide de Fermi apparaît comme le modèle standard de description des métaux. En particulier, toute déviation du comportement biquadratique du taux de relaxation expérimental, à suffisamment basses énergie et température, peut être vue comme due à des déviations du modèle. Pour reprendre le titre audacieux d'un article de Varma [259], « seuls les liquides de Fermi sont des métaux ».

Expérimentalement, le comportement de liquide de Fermi de Γ est souvent masqué par d'autres processus de relaxation que les corrélations entre électrons (interactions électron-phonon...), ou par les transitions de phase à basse température (par exemple structurale ou supraconductrice). Également, le rapport d'échelle $p = 2$ n'a été possiblement établi que pour Sr_2RuO_4 . Il faut aussi évoquer le fait que la recherche en matière condensée s'est souvent davantage tournée vers des matériaux complexes, dans lesquels le caractère de liquide de Fermi peut facilement être masqué, justement pour déterminer la relation entre le possible état de liquide de Fermi et d'autres phases, plutôt que vers des métaux simples et peu intéressants.

Le tableau 1 de la revue de Maslov et Chubukov [178] cite la valeur de p dans quelques matériaux, ce qui donne une idée des composés liquides de Fermi (ou proches de liquides de Fermi) abondamment étudiés. Une famille particulièrement intéressante est celle des fermions lourds [240] (par exemple UPt_3 , URu_2Si_2), qui présentent de grandes masses effectives (pouvant atteindre plusieurs centaines de fois la masse de l'électron libre), et des domaines de validité du comportement de liquide de Fermi relativement restreints [192].

Après cette courte description du modèle du liquide de Fermi, je vais maintenant présenter le matériau Sr_2RuO_4 , considéré comme l'une de ses plus fidèles réalisations.

1.2 Propriétés générales de Sr_2RuO_4

1.2.1 Structure cristallographique

Sr_2RuO_4 est un composé appartenant à la famille des ruthénates de strontium, dont les membres présentent des formules brutes de la forme $\text{Sr}_{n+1}\text{Ru}_n\text{O}_{3n+1}$. En plus de Sr_2RuO_4 , les membres avec $n = 2$, $n = 3$ et $n = \infty$ (SrRuO_3) ont été synthétisés et abondamment étudiés. La structure de SrRuO_3 (figure 1.4) se présente comme la brique de base, à partir de laquelle se construisent ses adelphe : dans un réseau cubique pérovskite, sa maille élémentaire présente en ses sommets les cations Sr^{2+} ; des anions O^{2-} situés au centre de chaque face forment un octaèdre, enfermant en son centre, et donc au centre du cube, un cation Ru^{4+} . Les autres composés se construisent à partir de cette brique pérovskite de base. En particulier la maille de Sr_2RuO_4 se lit comme un empilement selon la hauteur de briques SrRuO_3 décalées dans le plan horizontal d'une moitié de diagonale (figure 1.4).

Cet empilement induit une structure lamellaire tétragonale, avec $a = b = 3,871 \text{ \AA}$ et $c = 12,740 \text{ \AA}$ à 295 K, et $a = b = 3,861 \text{ \AA}$ et $c = 12,722 \text{ \AA}$ à 0,35 K [261]. Le matériau ne présente aucune transition structurale entre ces deux températures ; il appartient au groupe d'espace 139 (noté I_4/mmm ou D_{4h}^{17}) [50, 106, 190, 261, 262].

1.2.2 Structure électronique et surface de Fermi

1.2.2.1 Construction théorique de la surface de Fermi

Les calculs de structure de bande [185, 201, 233] indiquent que trois bandes traversent le niveau de Fermi, issues de la combinaison antiliante des orbitales $2p$ de l'oxygène et des orbitales d_{xy} , d_{xz} et d_{yz} du ruthénium. La surface de Fermi calculée présente trois feuillets

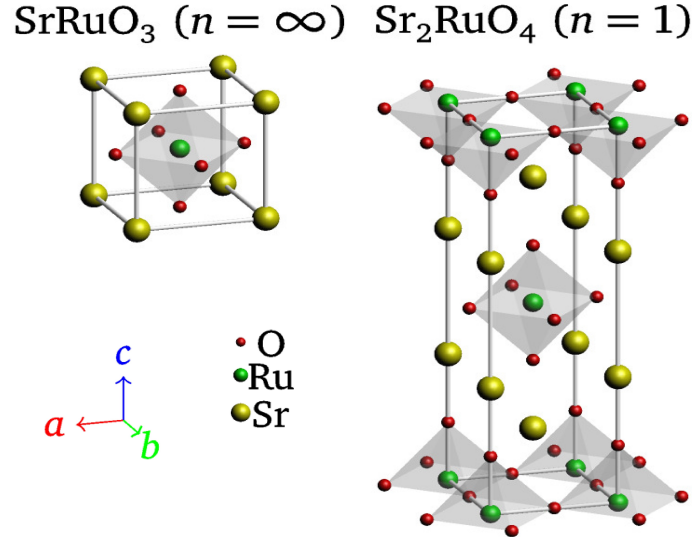


FIGURE 1.4 – Représentation des mailles élémentaires de SrRuO_3 et Sr_2RuO_4 . (Figure issue de [244].)

parallèles à l'axe k_z . Leur forme quasi plane selon k_z indique que le transport électronique est majoritairement bidimensionnel, dans le plan (xy) , et plus précisément selon les plans RuO_2 , d'après le contenu orbitalaire au niveau de Fermi.

Un modèle simple de type liaisons fortes explique la géométrie de la surface de Fermi partant de la structure de bande calculée. La configuration de valence du cation Ru^{4+} est $4d^4$, soit quatre électrons présents sur la sous-couche $4d$. Les cinq orbitales composant la sous-couche $4d$ sont à la même énergie pour l'atome isolé, mais le champ cristallin octaédrique lève la dégénérescence, conduisant à deux états e_g et t_{2g} . Le second est plus bas en énergie, et contient les trois orbitales d_{xy} , d_{xz} et d_{yz} . Seulement quatre électrons peuplent l'ensemble de ces trois orbitales qui peuvent en contenir en tout six ; ce système d'orbitales non toutes remplies participe donc au contenu orbitalaire des feuillets de la surface de Fermi.

La figure 1.5 représente les orbitales $2p$ de O et t_{2g} de Ru dans le plan RuO_2 . La grande distance interplans implique le faible recouvrement orbitalaire selon la direction z , et donc le transport bidimensionnel : je ne considère donc qu'une surface de Fermi bidimensionnelle dans une zone de Brillouin carrée¹¹. L'orbitale d_{xz} a un recouvrement avec les orbitales p_z des oxygènes voisins dans la direction x . Le transport électronique est possible selon l'axe x , ce qui produit une surface de Fermi plane perpendiculaire à l'axe k_x , plus précisément deux lignes situées à $k_x = \pm\epsilon$, avec ϵ donné par les détails microscopiques. Respectivement, le recouvrement de d_{yz} avec p_z produit deux lignes situées à $k_y = \pm\epsilon$ (le même ϵ de par la symétrie tétragonale). d_{xy} a des recouvrements dans le plan (xy) avec les orbitales p_x et p_y des oxygènes voisins, le transport est permis identiquement dans les deux directions du plans. La surface de Fermi correspondante est un cercle centré en Γ . Pour représenter la surface de Fermi tridimensionnelle, comme le transport est quasi nul selon l'axe z , il faut prolonger les lignes selon k_z de façon planaire, d'où un cylindre généré par d_{xy} et quatre plans générés par d_{xz} et d_{yz} . Je désigne cette surface de Fermi théorique construite à partir des recouvrements orbitalaires comme la « surface de Fermi orbitalaire » (figure 1.5).

11. Du fait du réseau cubique centré, la projection dans le plan (k_x, k_y) de la zone de Brillouin tridimensionnelle n'est pas un carré : voir par exemple les représentations bi ou tridimensionnelles de la zone de Brillouin dans les références [22, 120, 201]. Dans la suite, je néglige cette subtilité en représentant uniquement une zone de Brillouin carrée, avec les points remarquables : centre Γ , coin X et milieu de côté M .

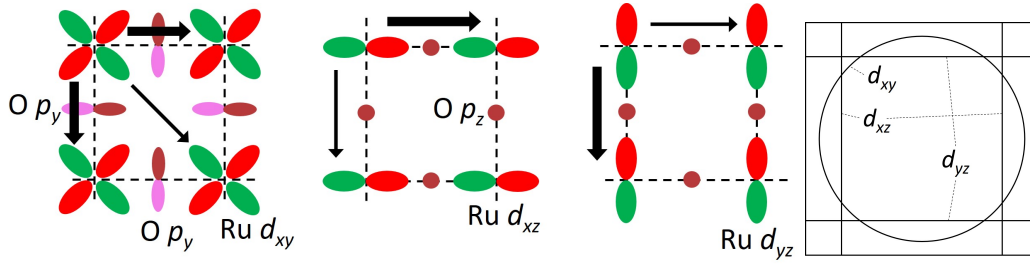


FIGURE 1.5 – (Gauche) Représentation schématique dans le plan RuO_2 des orbitales intervenant au niveau de Fermi. Les flèches noires indiquent les processus intraorbitaux entre orbitales t_{2g} de Ru, médiées par les orbitales $2p$ de O. Les largeurs relatives des flèches représentent qualitativement la facilité des différents processus. (Droite) Surface de Fermi théorique orbitalaire, construite à partir des recouvrements intraorbitaux.

1.2.2.2 Surface de Fermi réelle

Les expériences (oscillations quantiques [21, 164], ARPES [58, 248]) confirment¹² que la surface de Fermi est constituée de trois bandes, nommées α , β et γ . α est une poche de trou centrée au point X , β et γ sont deux poches d'électron centrées au point Γ (figure 1.6 graphique gauche).

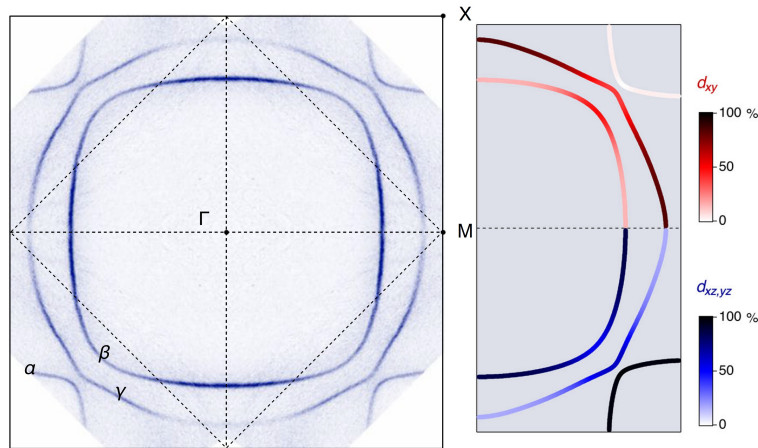


FIGURE 1.6 – (Gauche) Surface de Fermi réelle obtenue par ARPES. (Droite) Composition orbitalaire des états propres calculés numériquement le long de la surface de Fermi. (Figures issues de [248].)

Pour obtenir théoriquement la surface de Fermi réelle, il faut considérer du couplage entre les lignes de la surface de Fermi orbitalaire. La symétrie autorise un couplage entre d_{xz} et d_{yz} , mais pas entre d_{xy} et $d_{xz/yz}$: d_{xy} et $d_{xz/yz}$ ont une symétrie opposée lors de la réflexion par un miroir plan xy [151]. Les lignes issues de d_{xz} et d_{yz} s'anticroisent au niveau des diagonales de la zone de Brillouin, résultant en α et β , tandis que d_{xy} reste non couplée et donne naissance à γ . Cependant, le couplage spin-orbite est important dans ce matériau [96, 260, 282], avec une interaction pouvant atteindre 90 meV. Sa prise en compte permet d'expliquer parfaitement la forme réelle de la surface de Fermi, avec un mélange des contenus orbitaux de α , β et γ , principalement dans la région de proximité des bandes dans la direction diagonale Γ - X [248,

12. Les premières expériences d'ARPES [157, 274] étaient en contradiction avec les résultats d'oscillations quantiques. La controverse a été levée par des mesures d'ARPES ultérieures [58], qui ont montré les biais de mesure des expériences d'ARPES précédentes.

282] ¹³. Une précision supplémentaire dans la compréhension de la structure électronique est la prise en compte du comportement de la surface de Fermi selon l'axe k_z : les cylindres issus des trois feuillets présentent en réalité plusieurs niveaux de corrugation [22].

Ainsi, le matériau présente une surface de Fermi à trois feuillets, mais chaque feuillet a un contenu orbitalaire mélangé (figure 1.6 graphique droit). d_{xz} et d_{yz} sont symétriquement équivalentes : je suivrai donc la littérature en parlant d'un contenu en orbitales $d_{xz/yz}$, contre un contenu en orbitale d_{xy} . α a un contenu quasi purement $d_{xz/yz}$ (supérieur à 96 % en chaque point), β a un contenu $d_{xz/yz}$ variant de 80 à 50 % en passant de la direction Γ - M à la direction Γ - X , et γ a un contenu $d_{xz/yz}$ variant de 20 à 50 % en passant de la direction Γ - M à la direction Γ - X . Autrement dit, β et γ ont un contenu orbitalaire strictement paritaire entre $d_{xz/yz}$ et d_{xy} le long des diagonales de la zone de Brillouin (direction Γ - X) ; dans le reste de la zone de Brillouin, β et γ sont majoritairement constitués respectivement de $d_{xz/yz}$ et de d_{xy} ; même dans les directions principales de la zone de Brillouin carrée (direction Γ - M), leur contenu orbitalaire est inégalitaire, mais n'est pas pur.

1.2.2.3 Masses de bande sur chaque feuillet

Les valeurs des masses effectives de quasiparticules ne sont pertinentes que comparées aux masses de bandes, qui remplacent la masse de l'électron nu pour des particules soumises à un potentiel périodique. Il est donc primordial de connaître les valeurs de ces masses de bande.

Les valeurs des masses de bande ont été calculées au niveau de Fermi [164, 185]. Seules les masses correspondant au transport dans le plan (ab) ont été calculées, pour chacun des trois feuillets de la surface de Fermi. Pour α , β et γ , elles valent respectivement 1,1 ; 2,0 et 2,9. Ce sont ces masses de bande qui sont prises en référence pour calculer la renormalisation de la masse à partir des masses effectives, ou inversement pour évaluer les masses effectives à partir des facteurs de renormalisation.

Selon l'axe c , les surfaces de Fermi sont quasi planes, on s'attend donc à un transport difficile avec des masses de bande très grandes par rapport à celles selon le plan (ab). On peut essayer d'estimer la masse de bande moyenne selon l'axe c $m_{b,c}$ en considérant les paramètres du modèle de liaisons fortes. À partir des paramètres donnés par Mazin et Singh [181], j'estime un facteur d'ordre de grandeur 10 entre la masse de bande dans le plan (ab) et la masse de bande selon l'axe c .

1.2.2.4 Singularité de van Hove

Une singularité de van Hove (en anglais *van Hove singularity*, VHS) est une singularité dans la densité d'état électronique $g(\epsilon)$ (avec ϵ l'énergie). À trois dimensions, ces singularités sont intégrables : la densité d'état est augmentée, mais reste finie ; en revanche, la pente $dg/d\epsilon$ diverge [8].

L'existence d'une VHS a été indiquée théoriquement par les calculs de structure de bande [233] : l'énergie de Fermi est située à environ 60 meV de la VHS, qui se signale par un pic dans la densité d'états. C'est plus précisément la bande γ qui est au voisinage de la VHS (à 49 meV expérimentalement [22]). Le feuillet γ peut être amené à la VHS par dopage, avec le composé $\text{Sr}_{2-y}\text{La}_y\text{RuO}_4$, pour $y = 0,27$ [129, 229] (figure 1.7 graphique gauche). Ce feuillet passe par la VHS en traversant une transition de Lifshitz, c'est-à-dire un changement de topologie : il passe d'une poche d'électron centrée en Γ à une poche de trou centrée en X , la transition étant située au moment où γ touche le point M de la zone de Brillouin.

13. L'importance du couplage spin-orbite doit cependant être nuancée pour ce qui concerne les corrélations électroniques [130]. Je reviens sur ce point en section 1.4.3.

L'étude de l'influence de la VHS sur les propriétés métalliques et supraconductrices de Sr_2RuO_4 était dans un premier temps limitée expérimentalement : les champs magnétiques nécessaires pour amener γ à passer la transition de Lifshitz sont très importants (360 T [22]); quant au dopage, il détruit la supraconductivité. Cette étude s'est cependant intensifiée ces dernières années, grâce au développement d'expériences de contraintes uniaxiales. En effet, il a été montré expérimentalement par ARPES qu'une contrainte uniaxiale amène γ à passer la transition de Lifshitz¹⁴ [245] (figure 1.7).

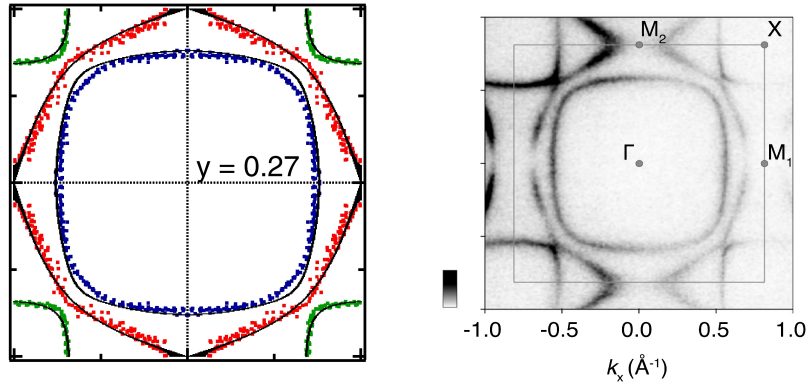


FIGURE 1.7 – (Gauche) Transition de Lifshitz du feuillet γ sous dopage ($\text{Sr}_{2-y}\text{La}_y\text{RuO}_4$) mesurée par ARPES. (Figure issue de [229].) (Droite) Transition de Lifshitz du feuillet γ sous contrainte uniaxiale et brisure de la symétrie d'ordre 4, mesurée par ARPES. (Figure issue de [245].)

1.2.3 Fluctuations magnétiques

Au-dessus de sa température de transition supraconductrice, Sr_2RuO_4 est un métal paramagnétique qui ne présente pas d'ordre magnétique à longue portée [37, 42]. Il présente cependant des fluctuations magnétiques : celles-ci ont notamment été étudiées pour leur possible rôle dans l'instauration de l'état supraconducteur. Dans cette section, j'insiste sur le lien entre les fluctuations et le caractère multibandes.

Les fluctuations dominantes sont de type antiferromagnétique incommensurable (IC), de moment $\mathbf{q}_{IC} = (\pm 0, 6\pi/a; \pm 0, 6\pi/a)$, orienté selon la diagonale de la zone de Brillouin. Leur existence est montrée par plusieurs expériences de diffusion inélastique des neutrons (en anglais *inelastic neutron scattering*, INS), dans l'état supraconducteur et dans l'état métallique jusqu'à 290 K [33, 34, 109, 120, 226, 232, 238]. Mazin et Singh [182] ont montré théoriquement la présence des fluctuations antiferromagnétiques, du fait de l'emboîtement (en anglais *nesting*) entre les feuillets unidimensionnels de la surface de Fermi issus des orbitales d_{xz} et d_{yz} . Cet emboîtement est possible selon les vecteurs d'onde $(\pm 2/3(\pi/a); q_y)$ et $(q_x; \pm 2/3(\pi/a))$, et singulièrement à $(\pm 2/3(\pi/a); \pm 2/3(\pi/a))$. Ce léger écart entre la prédiction théorique et la réalisation expérimentale pourrait être lié aux détails de la structure de bande [232]. En effet, la surface de Fermi réelle est légèrement déformée par rapport à sa représentation théorique orbitale. Des calculs plus récents [26, 241] montrent cependant que les trois orbitales t_{2g} ont un poids égal dans la réponse IC. Ces calculs ne prennent pas en compte le couplage spin-orbite, mais considèrent d'autres termes d'hybridation entre orbitales (interaction locale de Kanamori).

14. Sous dopage, γ est amené simultanément aux 4 points M de la zone de Brillouin. En revanche, la contrainte uniaxiale brise la symétrie d'ordre 4, en différenciant les points M_1 et M_2 (figure 1.7 graphique droit), et γ ne touche les bords de la zone de Brillouin qu'en deux points.

La quête de fluctuations ferromagnétiques (FM) dans Sr_2RuO_4 était guidée par l’hypothèse d’un état supraconducteur triplet : un tel état peut notamment être construit par un appariement de spins de même signe, ce qui est favorisé par des fluctuations FM (voir également la section 1.3). Cependant, de telles fluctuations FM n’ont pas été observées aussi nettement que les fluctuations IC. Imai et collaborateurs [115] interprètent leurs expériences de résonance magnétique nucléaire (RMN, en anglais *nuclear magnetic resonance*) comme révélant des fluctuations FM, dominées par la réponse de l’orbitale d_{xy} . Ces conclusions ont cependant été critiquées par Mackenzie et Maeno [165]. Des expériences récentes d’INS [238] indiquent l’existence d’une réponse large autour de $\mathbf{q} = 0$, caractérisée comme « quasi ferromagnétique » (QFM). Des calculs théoriques [26, 241, 263] confirment l’existence de fluctuations à faible \mathbf{q} , en précisant que c’est principalement l’orbitale d_{xy} (ou la bande γ , selon les références) qui y contribue.

Pour évaluer la pertinence des fluctuations magnétiques dans la compréhension des autres propriétés du matériau, notamment supraconductrices, il est intéressant d’étudier des composés obtenus par dopage de Sr_2RuO_4 . La littérature scientifique comporte de nombreuses études de composés dopés à partir de Sr_2RuO_4 , montrant l’instauration d’ordre IC à différents vecteurs d’onde, mais également FM ou de verre de spin [32, 40, 110, 203, 281].

1.3 État supraconducteur

Mon travail de thèse concernant Sr_2RuO_4 s’est focalisé uniquement sur son état métallique¹⁵. Dans cette section, j’expose les propriétés et débats principaux concernant la phase supraconductrice : en effet, comme les états supraconducteurs et métalliques sont liés, le premier émergeant de l’autre, la recherche sur l’état métallique est notamment guidée par la quête d’informations concernant l’état supraconducteur. Il me paraît donc utile de présenter complètement le cadre d’étude de ce matériau.

1.3.1 Température critique

Lors de la découverte de l’état supraconducteur de Sr_2RuO_4 en 1994 [168], une température critique (T_c) de 0,93 K a été mesurée. Plusieurs synthèses induisant des degrés d’impureté variables dans les échantillons ont indiqué la très grande sensibilité de T_c au désordre. La T_c maximale, prédite et atteinte expérimentalement, est de 1,5 K [161]. Des échantillons de T_c plus élevée, pouvant atteindre 3 K, ont été synthétisés, mais cette augmentation a été attribuée à des défauts structuraux particuliers induisant des contraintes locales [167]. En effet, la T_c est sensible aux distorsions du réseau cristallin. Elle diminue sous pression hydrostatique [75, 231] avec un taux de $-0,2$ K/GPa.

L’évolution de T_c a été étudiée sous contrainte uniaxiale [100, 251]. Plus précisément dans la référence [100], des déformations pouvant aller jusqu’à 0,2 % sont appliquées ; T_c augmente symétriquement en tension et compression lorsque la contrainte est appliquée selon la direction [100] ; l’évolution est antisymétrique (augmentation sous compression, diminution sous tension) pour une contrainte appliquée selon [110]. De plus, T_c subit une évolution non monotone sous compression selon [100] [239] : l’augmentation de T_c connaît un maximum de 3,5 K atteint pour une compression de 0,6 %, puis diminue pour les compressions plus grandes. L’existence de ce maximum peut être liée à l’atteinte de la singularité de van Hove : il est en effet attendu que T_c augmente avec la densité d’états électroniques au niveau de Fermi.

15. La très faible température critique supraconductrice en est la raison : même en utilisant un cryostat permettant de descendre sous T_c , l’utilisation d’un faisceau incident à une puissance raisonnable pour avoir du signal Raman produirait un échauffement conduisant l’échantillon au-dessus de T_c .

La valeur de la température critique est un indicateur de la qualité de l'échantillon synthétisé. Inférieure à 1,5 K, elle indique un échantillon dont la pureté n'est pas optimale; supérieure à cette valeur, elle indique que l'échantillon possède les défauts de composition qui le situent dans la phase dite « phase 3 K ». Dans la suite, j'écarterai de la discussion de l'état de l'art les résultats portant sur des échantillons présentant la phase 3 K.

1.3.2 Paramètre d'ordre supraconducteur

1.3.2.1 Vocabulaire

L'état supraconducteur d'un matériau est caractérisé par un paramètre d'ordre, dont la symétrie est un aspect primordial. Elle peut être estimée par de nombreuses techniques expérimentales complémentaires. Elle renseigne sur la forme du gap supraconducteur dans la zone de Brillouin. Le paramètre d'ordre et sa symétrie donnent des indications sur le mécanisme d'appariement des électrons, qui donne naissance aux paires de Cooper.

La symétrie du paramètre d'ordre prend en compte d'une part le moment orbitaire l du système des deux électrons appariés, d'autre part son spin total. Le moment orbitaire est quantifié et désigné par la nomenclature s, p, d, f, g , etc. (pour respectivement $l = 0, 1, 2, 3, 4$, etc.), on parle de fonctions d'onde s, p , etc. (en anglais *s-wave, p-wave*, etc.). La parité du nombre l correspond à la parité de la partie orbitaire de la fonction d'onde. Ce nombre indique également le nombre de nœuds du gap (régions où le gap s'annule) dans la zone de Brillouin. Le spin total vaut 0 ou 1, et on parle respectivement d'état singulet (un état possible antisymétrique) ou d'état triplet (trois états possibles symétriques). Comme la paire est un système de deux fermions, il faut que la fonction d'onde totale, prenant en compte partie orbitaire et spin, soit antisymétrique. Le nombre de combinaisons est donc réduit : par exemple, les moments orbitaires *s-wave* et *d-wave* ne peuvent se combiner qu'à un état singulet, et les moments *p-wave* et *f-wave* qu'à un état triplet. Par exemple, les premiers supraconducteurs découverts, à faible température critique, ont le plus souvent une symétrie s . Les cuprates ont une symétrie d .

Au niveau du vocabulaire, une précaution s'impose cependant : la terminologie « singulet » ou « triplet » pour qualifier l'état de spin peut être ambiguë dans le cas d'un fort couplage spin-orbite, ce qui est le cas chez Sr_2RuO_4 [166, 260]. Les termes d'état « pair » ou « impair » semblent plus appropriés. La découverte de ce fort couplage spin-orbite a été plutôt tardive par rapport aux premiers travaux sur la symétrie du paramètre d'ordre dans Sr_2RuO_4 , on ne s'étonnera donc pas de la présence de cette terminologie ambiguë dans les articles les plus anciens, voire dans les articles récents qui négligent le couplage spin-orbite.

1.3.2.2 Un paramètre d'ordre toujours en question pour Sr_2RuO_4

Actuellement, le problème du paramètre d'ordre supraconducteur dans Sr_2RuO_4 reste toujours ouvert.

La symétrie s a été rapidement écartée [161]. Certains auteurs parlent de supraconductivité « non conventionnelle », dans le sens où la moyenne du paramètre d'ordre supraconducteur sur la surface de Fermi est approximativement zéro [135] (ce qui est incompatible avec une symétrie s).

L'état triplet de spin pour le paramètre d'ordre a été suggérée dès 1995 par Rice et Sigrist [217], et séparément par Baskaran [16]. Rice et Sigrist s'appuient notamment sur trois points : le composé parent SrRuO_3 est ferromagnétique : il y aurait donc une tendance à l'appariement de spins égaux, ce qui correspond à des états triplet¹⁶ ; dans la sé-

16. C'est dans le cadre de cette hypothèse que des fluctuations ferromagnétiques ont longtemps été recherchées dans Sr_2RuO_4 , pour un résultat plutôt mitigé : voir la section 1.2.3.

rie $\text{Sr}_2\text{Ir}_{1-x}\text{Ru}_x\text{O}_4$, les ions Ru^{4+} dilués portent des spins 1 ; les paramètres de liquide de Fermi (augmentation de masse et de susceptibilité par les corrélations) sont similaires entre Sr_2RuO_4 et ^3He , qui présente une phase superfluide triplet.

Cette hypothèse de l'état triplet de spin a suscité de nombreuses recherches théoriques et expérimentales, cherchant à montrer son existence, et éventuellement à déterminer quel état triplet particulier est réalisé. Deux expériences en particulier semblaient montrer sans ambiguïté l'existence de l'état triplet : les mesures de déplacement de Knight par RMN en 1998 [117] et l'étude de la densité de magnétisation induite sous champ par diffusion de neutrons [66]. Les résultats de l'expérience de RMN ont cependant été remis en question en 2019, suite à de nouvelles mesures [212] ne reproduisant pas les résultats antérieurs. Ces nouvelles mesures faisant désormais consensus, leurs résultats, même s'il ne sont pas incompatibles avec certains états triplets, ne nécessitent plus un état triplet.

Indépendamment de la notion d'état singulet ou triplet, plusieurs expériences [158, 270] suggèrent que la symétrie de renversement du temps est brisée dans l'état supraconducteur. Couplées aux résultats de RMN et de diffusion de neutrons favorisant un état triplet, cette brisure de symétrie désigne un état triplet particulier de symétrie p , noté Γ_5^- , ou $p_x \pm ip_y$. Cet état à double composante est désigné comme « chiral », ou dans un langage plus moderne, comme un état supraconducteur topologique.

Avant la publication des résultats de RMN de 2019 [212], un consensus existait dans la communauté : en dépit de certaines incohérences¹⁷, les résultats expérimentaux pointaient vers un état impair, et probablement¹⁸ l'état Γ_5^- . Le consensus est aujourd'hui nettement fragilisé. En particulier, les résultats récents de RMN ne sont pas compatibles avec Γ_5^- .

Plusieurs articles récents donnent de nouveaux résultats théoriques ou expérimentaux sur l'état supraconducteur de Sr_2RuO_4 en tenant compte, dans leur cadre d'analyse, que Γ_5^- , ou même un état triplet en général, n'est plus l'état consensuel. Je passe ici en revue certains de ces articles, publiés en 2020 et 2021.

Des mesures de déplacement de Knight [51] indiquent que les paramètres d'ordre de symétrie purement impaire sont exclus, seuls seraient possibles des états de type d -wave ou g -wave. Des mesures d'ultrason effectuées indépendamment par deux groupes [20, 87] indiquent que le paramètre d'ordre supraconducteur a deux composantes¹⁹. Les deux groupes se fondent ensuite sur leurs résultats et sur le corpus existant pour proposer un paramètre d'ordre. Il est révélateur que, devant l'impossibilité de réconcilier tous les indices expérimentaux, chaque équipe choisit éventuellement d'en écarter certains (évidemment pas ceux qu'elles viennent de présenter dans leurs articles) pour faire une proposition. Les auteures de la référence [20] écartent les indices de la brisure de renversement du temps pour proposer l'état nématique (1,0) (ou de façon équivalente (0,1)) de la représentation E_g (d_{xz}, d_{yz}) ; un tel état suppose néanmoins une transition structurale orthorhombique concomitante à la transition supraconductrice, ce qui n'a pas encore été observé. Le second groupe [87] propose deux états. Le premier est l'état chiral (1, $\pm i$) de ($d_{xz}; d_{yz}$) ; l'argument principal contre cet état est qu'il ne présente pas les lignes de noeud mesurées notamment dans les références [95, 228] : lignes verticales dont les projetés dans la zone de Brillouin bidimensionnelle sont selon les directions [110] et $[\bar{1}10]$. Le second état, plus exotique, est $d_{x^2-y^2} \pm ig_{xy(x^2-y^2)}$: le fait qu'un état couplant deux représentations différentes (B_{1g} pour d , A_{2g} pour g) présente une unique transition supraconductrice serait accidentel, résultant de valeurs particulières des paramètres gouvernant les deux transitions attendues. Ce second état est également proposé

17. Parmi les résultats incompatibles avec Γ_5^- , on peut citer ceux indiquant la présence de noeuds dans le gap supraconducteur.

18. Il n'est pas rare de lire des articles publiés entre 1998 et 2019 dont l'introduction désigne sans ambiguïté Sr_2RuO_4 comme un supraconducteur triplet p -wave suivant Γ_5^- .

19. Ces observations confirment des résultats de diffraction de neutrons [127], qui n'étaient pas cohérents avec un paramètre d'ordre à une composante.

à partir d'études théoriques [135].

1.3.2.3 Feuillet actifs et mécanisme d'appariement

Comme la symétrie du paramètre d'ordre, le mécanisme d'appariement des électrons en paires de Cooper est encore non résolu dans Sr_2RuO_4 . La possibilité d'un état triplet se fondait notamment sur l'hypothèse des fluctuations de spin ferromagnétiques comme colle électronique. De telles fluctuations sont cependant peu intenses par rapport aux fluctuations antiferromagnétiques incommensurables, et ne permettent pas, à elles seules, de générer un état triplet [238].

Un débat connexe à celui du mécanisme d'appariement concerne le ou les feuillets actifs dans l'instauration de la supraconductivité. En effet, la surface de Fermi de Sr_2RuO_4 présente trois feuillets aux propriétés électroniques distinctes, α , β et γ . Face à ce caractère multibandes, il est pertinent de supposer que l'appariement se fait préférentiellement sur un ou deux feuillets [3]. On parle alors de feuillets actifs : de par leurs propriétés, ces feuillets sont sensibles à l'appariement. Ensuite, sous la température critique, lorsque l'appariement a débuté sur le ou les feuillets actifs, les électrons du ou des autres feuillets vont également s'apparier par effet de proximité [280]. On parle pour ceux-ci de feuillets passifs. Une conséquence importante de la coexistence de feuillets actifs et passifs serait l'explication de résultats expérimentaux apparemment contradictoires : certains pourraient être sensibles aux feuillets actifs, d'autres aux feuillets passifs.

Ce débat sur les feuillets actifs et passifs dans l'établissement de la supraconductivité dans Sr_2RuO_4 n'est actuellement pas fermé. Le feuillet γ a d'abord été majoritairement considéré comme le feuillet actif, notamment pour sa propension aux fluctuations ferromagnétiques, dans l'hypothèse de l'état supraconducteur triplet. Les résultats de mesures de chaleur spécifique ont été interprétés en ce sens [60]. À l'inverse, le travail théorique de Raghu et collaborateurs [213] tend à montrer le rôle actif des feuillets α et β .

Des simulations numériques récentes indiquent que le paramètre d'ordre privilégié par les fluctuations AFM est pair, de symétrie d et situé sur l'orbitale d_{xy} [88]. Mais loin des instabilités magnétiques, d'autres symétries d'appariements peuvent faire intervenir les orbitales d_{xz} et d_{yz} . Dans la perspective d'un métal de Hund (voir la section 1.4.3), un appariement singulet interorbital est théoriquement obtenu, dû aux corrélations de spin interorbitales [125].

1.3.3 Conclusion sur l'état supraconducteur de Sr_2RuO_4

Mon projet de thèse concernant Sr_2RuO_4 s'est limité à l'étude de son état métallique, pour des raisons techniques. Cependant, j'ai tenu à expliquer dans les grandes lignes les propriétés de son état supraconducteur : le grand mystère entourant cette phase est le moteur de la recherche intensive consacrée à ce matériau. Même dans le cas d'expériences ou de recherches théoriques uniquement consacrées à l'état métallique, un des buts secondaires est de comprendre l'état supraconducteur, en comprenant mieux l'état métallique dont il est issu.

Pour appuyer le lien avec mes travaux, j'ai insisté sur l'aspect de dépendance orbitalaire en section 1.3.2.3, même si ce point est toujours actuellement sujet à débat.

À ce jour, aucune théorie n'a réussi à unifier tous les résultats expérimentaux sous un paramètre d'ordre, un mécanisme d'appariement, une symétrie du gap, plus de vingt-cinq ans après la découverte de la supraconductivité dans ce matériau. Cet état de fait a sans doute en partie été provoqué par le résultat expérimental de RMN de 1998 [117], mal interprété, biaisant la recherche sur ce matériau pendant vingt ans. Cependant, cette erreur ne doit pas occulter la grande complexité du problème, la foule de résultats expérimentaux toujours non invalidés, et pourtant en apparence incohérents entre eux. De nombreux travaux théoriques

et expérimentaux restent à effectuer pour démêler cette énigme. Devant l'ampleur de la tâche, je préfère adopter le même point de vue optimiste que Mackenzie, Scaffidi, Hicks et Maeno exprimaient en 2017 : « En dépit des contradictions existant dans notre compréhension actuelle de Sr_2RuO_4 , la prochaine décennie de recherche sur ce matériau fascinant sera au moins aussi excitante que les deux précédentes. » [166].

1.4 État métallique

Concomitamment à la découverte de sa supraconductivité, Sr_2RuO_4 a été caractérisé comme un liquide de Fermi quasi bidimensionnel avec de fortes corrélations électroniques, c'est-à-dire un métal dont le taux de relaxation des quasiparticules obéit à des lois quadratiques et avec des renormalisations de la masse importantes. Dans cette section, je passe en revue les indications expérimentales confortant cette vision. Une perspective théorique plus récente décrit Sr_2RuO_4 comme un métal de Hund : j'introduis dans un second temps les bases de ce modèle, et sa réalisation dans Sr_2RuO_4 .

Certaines techniques expérimentales permettent de montrer une différenciation orbitale des propriétés de liquide de Fermi ; un tel comportement est à la base du modèle de métal de Hund. Dans la suite, en prévision de l'analyse de mes résultats, j'insiste sur les résultats montrant cette différenciation.

1.4.1 Preuves du comportement de liquide de Fermi bidimensionnel

Le caractère quasi bidimensionnel de Sr_2RuO_4 est notamment montré par la forte anisotropie (en comportement et en intensité) concernant la résistivité DC [169, 276] et la conductivité optique [126], selon qu'elles sont mesurées dans le plan (ab) ou selon l'axe c , avec $\rho_c \sim 100\rho_{ab}$, et un facteur équivalent pour les conductivités optiques (figure 1.8). En particulier, ρ_c atteint un maximum à 130 K puis décroît quand la température augmente, ce qui s'apparente à un comportement isolant au-delà de 130 K, quand ρ_{ab} croît de façon monotone jusqu'à la température ambiante.

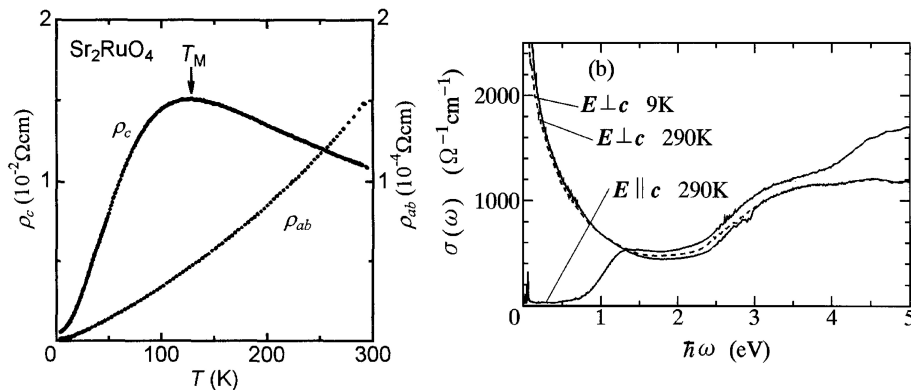


FIGURE 1.8 – Anisotropie de la résistivité DC ρ (gauche) et de la conductivité optique σ (droite) selon le plan et hors plan. (Figures issues de [126, 276].)

La preuve expérimentale prise comme déterminante pour vérifier le modèle du liquide de Fermi est la double dépendance quadratique du taux de relaxation. Pour Sr_2RuO_4 , elle est bien établie en température mais plus incertaine en énergie.

La composante thermique de cette double dépendance a historiquement été établie par des mesures de résistivité DC [11, 108, 169], à la fois selon les plans (ab) et selon l'axe c ,

jusqu'à $T_{FL} \approx 25\text{--}30$ K. Au-delà de T_{FL} , $\rho_{ab} \sim T^n$ avec $1 \leq n \leq 2$. Stricker [244] montre plus précisément que $\rho_{ab}(T < 25 \text{ K}) = a_1 T^2 + c_1$ et $\rho_{ab}(T > 25 \text{ K}) = a_2 T^2 + b_2 T + c_2$. Les mesures de résistivité DC donnent aussi une indication du taux de relaxation résiduel Γ_{00} , dû à la diffusion sur les impuretés. Les valeurs de $\rho_{ab,0}$ (l'extrapolation à température nulle de ρ_{ab}) inférieures à $1 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ montrent qu'il est extrêmement faible.

Contrairement à la dépendance en température, la dépendance en énergie s'avère être plus évasive. Avec l'estimation de $T_{FL} \approx 25$ K, on obtient théoriquement, à partir de la loi d'échelle, $\omega_{FL} \approx 14$ meV.

Des mesures de conductivité optique [126] donnent les taux de relaxation dans le plan (ab) Γ_{ab} et selon l'axe c Γ_c sur un échantillon de faible pureté ($T_c = 0,9$ K). Le dispositif expérimental de la référence [126] ne permet cependant pas d'obtenir des résultats sous 8 meV pour Γ_c , ni sous 60 meV pour Γ_{ab} . Aucune dépendance quadratique n'est obtenue, mais si on se base sur la valeur estimée de ω_{FL} , alors la zone de comportement quadratique est a priori hors données expérimentales pour Γ_{ab} , et sévèrement tronquée pour Γ_c .

Toujours en conductivité optique, Stricker et collaborateurs [243, 244] présentent Γ_{ab} sur un échantillon de plus grande pureté ($T_c = 1,3$ K) (figure 1.9). Leur gamme d'énergie descend jusqu'à 2 meV, ce qui leur permet d'analyser quantitativement la dépendance de $\Gamma(\omega)$ dans la zone de liquide de Fermi. Leurs données sont ajustées en ω^η , ce qui donne η variant entre 1,2 et 2,3 selon la température, avec des points assez dispersés. Les ajustements sont effectués sous 40 meV, ce qui semble être une fenêtre trop large. Avec leurs données, les auteurs affirment vérifier le rapport d'échelle de Gurzhi entre les préfacteurs en énergie et température, en obtenant $p = 2$.

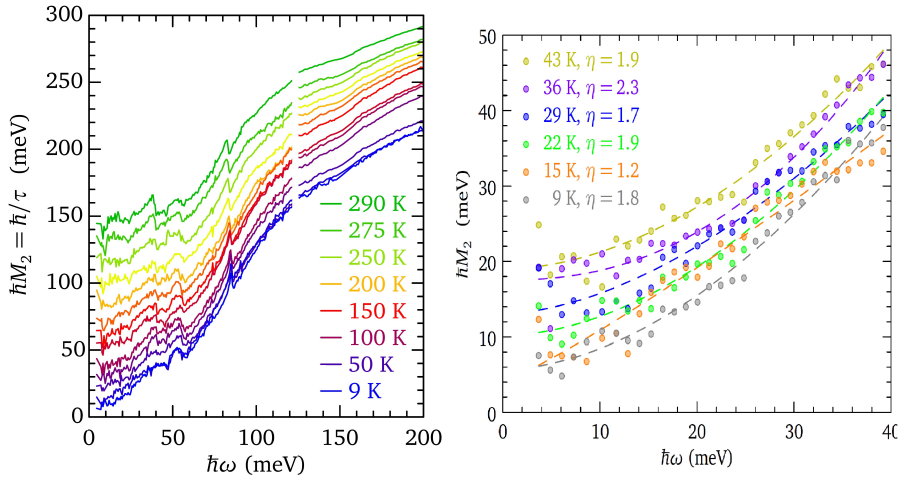


FIGURE 1.9 – Dépendance en énergie du taux de relaxation obtenu par conductivité optique à plusieurs températures. Le graphique de droite est un zoom sur les données ajustées sous 40 meV. (Figure issue de [243].)

À partir de résultats d'ARPES, deux groupes [116, 128] affirment extraire $\Gamma(\omega)$ avec des comportements clairement non quadratiques²⁰. La pertinence de l'interprétation de leurs résultats expérimentaux comme donnant les taux de relaxation est questionnable du fait des

20. Les auteurs des références [116, 128] présentent des ajustements en $\omega^2 \ln(\omega)$ en se fondant sur des travaux théoriques [103] qui montrent que pour un liquide de Fermi bidimensionnel, cette expression est plus pertinente que la dépendance quadratique simple (et de même pour la température). Hormis pour ces deux groupes, tous les résultats concernant Γ dans Sr_2RuO_4 sont discutés selon une loi simplement quadratique, ce qui jette un doute sur la pertinence de ce modèle purement bidimensionnel dans le cas de ce matériau.

grandes valeurs de $\Gamma(\omega)$ obtenues : pour $\omega \rightarrow 0$, ils obtiennent 12, 55 et 40 meV respectivement pour $\Gamma_{\alpha,\beta,\gamma}$ à 10 K. Ces valeurs sont élevées comparées aux résultats de conductivité optique [243] (6 meV à 9 K) (et ceux que j'obtiens en spectroscopie Raman). Une référence plus récente rendant compte de mesures d'ARPES sur Sr_2RuO_4 estime qu'« à très basse fréquence, le temps de vie des quasiparticules ne peut pas être fiablement mesuré par ARPES, comme la largeur intrinsèque de quasiparticules [des pics de la fonction spectrale] est masquée par les contributions de la résolution expérimentale, de la diffusion sur les impuretés, et de l'élargissement inhomogène » [248], .

Ainsi, le caractère de liquide de Fermi de Sr_2RuO_4 est principalement révélé expérimentalement par le comportement en T^2 du taux de relaxation. Des mesures solides montrant celui en ω^2 manquent toutefois, ainsi que la résolution de Γ selon les orbitales ou les feuillets, qui pourraient révéler une dépendance orbitalaire du comportement de liquide de Fermi.

1.4.2 Fortes corrélations électroniques

Les mesures d'oscillations quantiques et d'ARPES permettent d'accéder de façon discriminée aux masses effectives sur les trois feuillets de la surface de Fermi.

Les masses effectives cyclotron sont obtenues par des mesures d'oscillations quantiques selon le plan (ab) pour chaque feuillet, rapportées dans les références [22, 164]²¹. Les auteures de la référence [164] obtiennent pour α , β et γ respectivement 3,4; 7,5 et 14,6²², avec une marge d'erreur de 10 %. Cela correspond à des facteurs d'augmentation de la masse respectifs de 3,1; 3,8 et 5,0²³. Pour la référence [22], elles valent respectivement 3,3; 7,0 et 16,0; avec une marge d'erreur de 10 %²⁴. Cela correspond à des facteurs d'augmentation de la masse respectifs de 3,0; 3,5 et 5,5.

En ARPES [248], les valeurs de 6,1 et 17,3 sont obtenues respectivement pour m_β^* et m_γ^* . Elles correspondent à des augmentations de masse respectives de 3,1 et 6,0, en accord quantitatif correct avec les expériences d'oscillations quantiques.

Les valeurs du coefficient de pente de la chaleur spécifique selon la température rapportées dans les références [169, 172, 199] permettent de déterminer le facteur de renormalisation de masse, moyenné sur l'ensemble de la surface de Fermi. La valeur de 3,6 est obtenue [172], ce qui est proche de celles obtenues par ARPES et par les oscillations quantiques pour α et β .

À l'anisotropie du taux de relaxation répond l'anisotropie de la masse effective, qui lui est liée. Dans l'optique de rendre compte des mesures d'oscillations quantiques, Bergemann et collaboratrices [22] proposent des paramètres de modèle de liaisons fortes ajustés à la surface de Fermi mesurée, et proposent une intégrale de saut interplan. Leurs paramètres de liaisons fortes indiquent que m_c^* est, en ordre de grandeur, 100 fois supérieure à m_{ab}^* . En conductivité optique, l'anisotropie est également conséquente de l'anisotropie de σ . La référence [126] rend compte d'une anisotropie d'ordre 10, mais à des énergies relativement élevées.

Dans le modèle du liquide de Fermi, la renormalisation de la masse, comme le poids de quasiparticule Z , est définie comme indépendante de l'énergie. Mais comme elle est liée à la transformée de Kramers–Kronig de Γ , une dépendance en énergie et en température est

21. Les mesures de la référence [22] sont plus récentes que celles de la référence [164], et sont obtenues en moyennant les mesures sur un grand nombre de valeurs de champ magnétique entre 15 et 33 T; elles sont donc a priori plus précises.

22. La référence [162] corrige les valeurs erronées présentées antérieurement dans les références [164] et [163].

23. Ici et dans la suite, les valeurs de masse de bande de référence pour les trois feuillets sont celles présentées dans la référence [164].

24. Dans la table 6 de la référence [22] sont présentées trois types de masses effectives différentes; ici, je donne la masse cyclotron thermodynamique, qui est la plus représentative de la masse effective des quasiparticules.

possible. On s'attend cependant à ce qu'elle soit inexistante, ou tout du moins faible, dans le régime du liquide de Fermi, et que de plus fortes dépendances indiquent une sortie de ce régime. Les mesures de conductivité optique [126, 150, 243] donnent ainsi l'évolution en température et en énergie de la renormalisation de la masse. Les mesures les plus récentes [243] (figure 1.10) sont assez bruitées à basse énergie, mais elles indiquent une faible dépendance en énergie à 9 K sous 30 meV. Au-delà du domaine de liquide de Fermi, $1 + \lambda$ diminue quand la température et l'énergie augmentent, tout en restant supérieur à 1. Les valeurs de Z , calculées à partir de l'extrapolation à énergie nulle de $1 + \lambda$, ne varient pas significativement avec la température sous 100 K (encart de la figure 1.10).

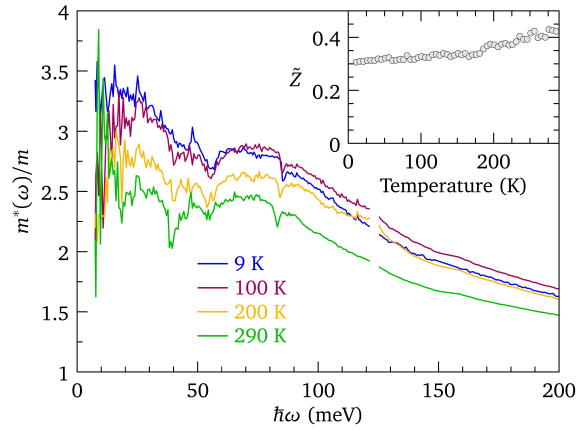


FIGURE 1.10 – Dépendance en énergie du facteur de renormalisation de la masse obtenu par conductivité optique à quelques températures. Encart : variation du poids de quasiparticule avec la température. (Figure issue de [243].)

Les différentes valeurs de facteurs d'augmentation de la masse obtenues expérimentalement sont réunies dans le tableau 1.1. La renormalisation de la masse à basse température et basse énergie est globalement importante (supérieure à 3) sur l'ensemble de la surface de Fermi. La bande γ apparaît comme la plus corrélée, devant β puis α . Au vu du contenu orbitalaire des bandes, cela indique une plus forte corrélation de l'orbitale d_{xy} par rapport à $d_{xz/yz}$.

Technique	α	β	γ	Référence
Oscillations quantiques	3,1 3,0	3,8 3,5	5,0 5,5	[162] (correction de [164]) [22]
ARPES	/	3,1	6,0	[248]
Chaleur spécifique	3,6			[172]
Conductivité optique	3,3 (2 meV, 9 K) 2,3 (2 meV, 290 K)			[243]

TABLEAU 1.1 – Tableau récapitulatif des valeurs des facteurs d'augmentation de masse selon les trois feuillets de la surface de Fermi. Les facteurs d'augmentation de masse sont des nombres sans unité. Pour les oscillations quantiques et l'ARPES, les valeurs de masse de bande de référence sont celles données dans la référence [164].

1.4.3 Modèle du métal de Hund

J'ai montré précédemment que la description de l'état métallique de Sr_2RuO_4 comme un liquide de Fermi sous $T_{FL} \approx 25\text{--}30$ K est abondamment appuyée expérimentalement, avec le comportement quadratique du taux de relaxation au moins en température.

Néanmoins, cette description semble dissimuler des effets plus complexes : de fortes corrélations électroniques sont indiquées par les valeurs élevées de renormalisation de la masse, avec une différenciation claire entre les feuillets de la surface de Fermi. Cette différenciation entre bandes peut être interprétée comme originant du contenu orbitalaire distinct de chaque feuillet. Le modèle du liquide de Fermi, très général, ne permet pas de traiter cette différenciation orbitalaire.

Pour approfondir la discussion sur la dépendance orbitalaire des propriétés électroniques de Sr_2RuO_4 , je rapporte dans cette section les études théoriques le considérant comme un métal de Hund. Je me focalise ici sur l'état métallique, mais comme je l'ai évoqué précédemment, le modèle de Hund offre également de nouvelles perspectives sur l'état supraconducteur [125].

1.4.3.1 Définition d'un métal de Hund

Dans cette section, je me fonde sur les travaux de Georges, de'Medici et Mravlje [85, 186] et sur les références qu'ils contiennent, introduisant le concept de métal de Hund.

Les fortes corrélations électroniques dans un matériau métallique peuvent avoir différentes origines. Une origine possible est la proximité (en température, dopage...) de la phase métallique avec une phase isolante de type Mott : du fait de la répulsion de Coulomb et de la réduction de la largeur de bande, les électrons originellement itinérants se localisent. Par exemple, les composés parents des cuprates supraconducteurs sont des isolants de Mott. Depuis les années 2000, une vision complémentaire considère l'importance du couplage de Hund. Ce concept est lié à la règle de Hund, préconisant la façon de remplir (en occupation et en spin) les états électroniques d'une sous-couche atomique. Dans un hamiltonien, un terme de Hund de couplage intra-atomique entre orbitales induit la règle. Le concept de métal de Hund est particulièrement pertinent pour expliquer les corrélations dans les matériaux multiorbitaux, notamment les oxydes de métaux de transition de la série $4d$.

Le couplage de Hund induit deux effets antagonistes sur le matériau. Le premier est la réduction du gap de Mott : le métal est éloigné de la transition de Mott, ce qui en un sens décorrèle le système. Le second effet est la suppression du poids spectral Z , ce qui correspond à une augmentation de la masse effective de quasiparticules et une diminution de l'échelle d'énergie sous laquelle le comportement de liquide de Fermi est observé : ce second effet accroît les corrélations, et le couplage de Hund est antagoniste au régime de liquide de Fermi.

Les simulations numériques permettant d'étudier les matériaux dans le cadre du concept de métal de Hund utilisent principalement les techniques de DMFT : l'approche atomique orbitalaire de cette théorie est pertinente pour traiter du couplage de Hund entre orbitales sur site.

1.4.3.2 Approche du métal de Hund pour Sr_2RuO_4

L'importance du couplage de Hund dans la compréhension des propriétés de Sr_2RuO_4 a d'abord été montrée théoriquement dans la référence [189] : seule la prise en compte d'un couplage de Hund permet de retrouver numériquement les augmentations de masses obtenues expérimentalement. De plus, il induit une différenciation, avec une renormalisation de masse plus élevée pour d_{xy} que pour $d_{xz/yz}$, ce qui est de nouveau cohérent avec les mesures d'oscillations quantiques. La différenciation dans les corrélations est également observée sur

les températures de cohérence T^* , qui signalent la sortie progressive du régime cohérent (qui contient le régime de liquide de Fermi) : $T_{xy/xz}^* = 60/150$ K (figure 1.11 (a)).

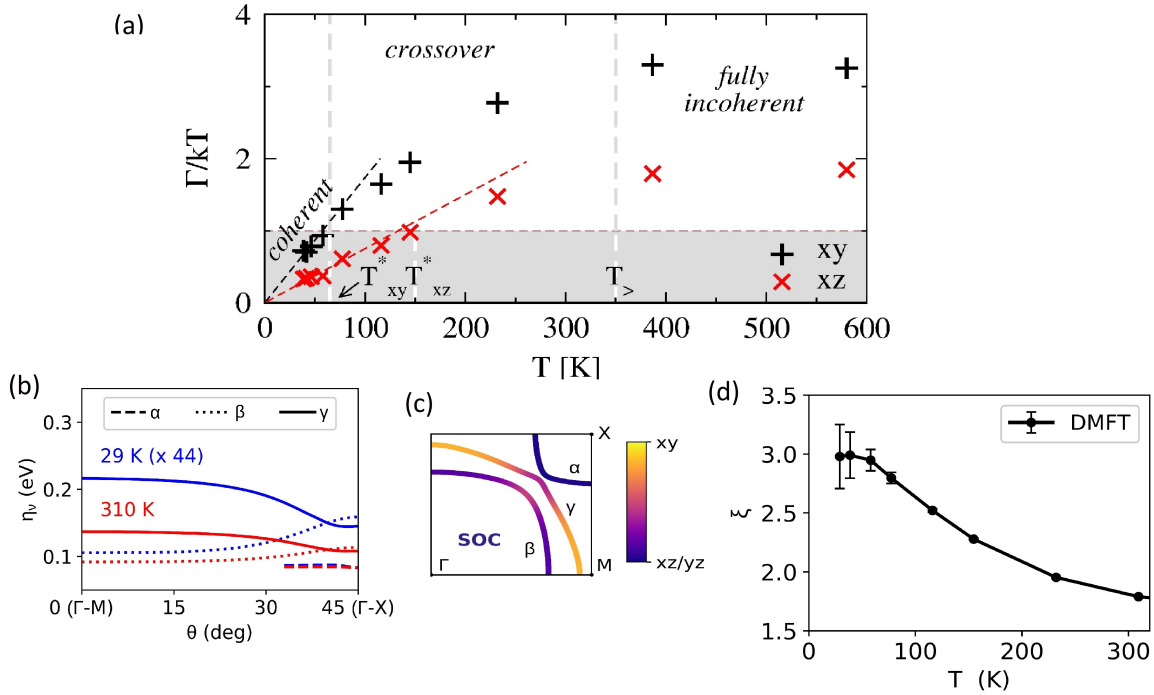


FIGURE 1.11 – Différents résultats de travaux théoriques concernant le taux de relaxation selon la vision du métal de Hund. (a) Évolution en température du taux de relaxation, avec un passage via un crossover d’un régime cohérent (les quasiparticules sont proprement définies) vers un régime incohérent. (b) Taux de relaxation (noté η) sur les bandes ν en fonction de l’angle avec la direction $\Gamma - M$, à deux températures. (c) Contenu orbitalaire des trois feuillet. (d) Ratio ($d_{xy}/d_{xz/yz}$) des composantes inélastiques des taux de relaxation statiques selon la température. (Figures issues de [189, 282].)

La proximité avec la singularité de van Hove est indiquée comme étant à l’origine des plus grandes corrélations pour d_{xy} [139, 189], mais démêler les effets de la VHS et du couplage de Hund n’est pas trivial [124].

La différenciation des corrélations, avec d_{xy} davantage corrélée, est également invoquée pour expliquer les propriétés de transport [61], et pour comprendre le comportement en température de la résistance de Hall [282]. Les évolutions du taux de relaxation selon chaque bande et du contenu orbitalaire selon l’angle avec la direction Γ – M montrent que le taux de relaxation est plus grand sur les orbitales d_{xy} . Cette différenciation orbitalaire décroît avec la température : le ratio ξ entre d_{xy} et $d_{xz/yz}$ des composantes inélastiques (diffusion non due aux impuretés) des taux de relaxation statiques, correspondant dans le régime de liquide de Fermi au ratio des préfacteurs en température β , atteint environ 3 à 25 K et décroît jusqu’à 1,6 à 300 K (figure 1.11 (b)–(d)).

La pertinence du modèle du métal de Hund dans le cadre d’un matériau présentant un fort couplage spin-orbite a été discutée [130]. Bien que le couplage spin-orbite est crucial pour comprendre la structure électronique, il n’a pas d’influence sur les propriétés dynamiques et les corrélations électroniques, ce qui valide le modèle du métal de Hund pour décrire ces dernières.

Ainsi, bien que Sr_2RuO_4 est décrit comme un liquide de Fermi sous T_{FL} , les effets de corrélation sont importants, et différents selon les orbitales. Ce caractère est étudié dans

le cadre du modèle du métal de Hund. Mais ce modèle se base principalement sur des calculs théoriques, dont la comparaison avec des données expérimentales doit encore être confortée. Notamment, si la renormalisation de la masse expérimentale s'accorde bien aux calculs théoriques, le taux de relaxation n'a pas encore clairement été mesuré en discriminant les contributions des différentes orbitales.

1.4.3.3 Cohérence avec les fluctuations de spin

En section 1.2.3, j'ai expliqué que plusieurs phénomènes de fluctuations magnétiques sont présents dans Sr_2RuO_4 . Ces fluctuations sont traditionnellement expliquées en termes d'emboîtements de la surface de Fermi [182]. L'emboîtement diffère selon les différents feuillets, ou dans une vision orbitalaire selon les différentes orbitales qui les composent. Les propriétés électroniques de Sr_2RuO_4 présentant une différenciation orbitalaire peuvent donc a priori être analysées dans leur rapport avec les fluctuations de spin, ou plus généralement avec l'emboîtement.

Le modèle de métal de Hund adopte une vision radicalement différente : description locale atomique, couplage orbitalaire. Il apparaît donc comme un modèle concurrent pour l'explication des différenciations orbitales.

Cette distinction entre ces deux visions est cependant nuancée par des résultats théoriques [241] qui suggèrent que le couplage de Hund contrôle également les fluctuations de spin centrées à Γ , qui ne sont pas expliquées par d'autres modèles théoriques. Ce résultat montre que l'approche privilégiant les fluctuations de spin observées expérimentalement n'est pas forcément contradictoire avec le cadre théorique du métal de Hund.

1.4.4 Conclusions sur l'état métallique de Sr_2RuO_4

Le comportement en T^2 de la résistivité DC est bien établi, et la preuve la plus directe du comportement de liquide de Fermi de Sr_2RuO_4 . Ce matériau présente des renormalisations de la masse importantes, et les valeurs différentes de masses effectives selon les feuillets de la surface de Fermi indiquent que le caractère multibande induit des propriétés non triviales. Cette différenciation orbitalaire peut être vue dans le cadre du modèle du métal de Hund. Il paraît intéressant de compléter la connaissance de la différenciation orbitalaire avec celle des dépendances en énergie et température des masses effectives et des taux de relaxation selon le vecteur d'onde de la surface de Fermi \mathbf{k}_F dans la zone de Brillouin ; ou plus généralement, selon les bandes α , β , γ ou les orbitales d_{xy} , d_{xz} , d_{yz} .

Les différentes expériences mises en oeuvre jusqu'à maintenant ne permettent pas d'accéder à ce degré de connaissance à $\Gamma(\omega, T, \mathbf{k}_F)$ et $1 + \lambda(\omega, T, \mathbf{k}_F)$. Pour le taux de relaxation, seule l'ARPES permettrait de discriminer selon la région de la zone de Brillouin, plus précisément selon les bandes. Mais, comme je l'ai indiqué plus haut, ceci est limité expérimentalement. On ne connaît donc que $\Gamma(\omega, T)$ moyenné sur la surface de Fermi. La situation est légèrement meilleure pour la renormalisation de la masse, comme les oscillations quantiques et l'ARPES permettent de sonder les différents feuillets. Mais expérimentalement, ces deux techniques ne donnent des valeurs qu'à basses énergies et températures. À l'inverse, les expériences de conductivité optique qui ont une résolution en ω et T n'ont pas de résolution selon \mathbf{k}_F .

Je montre dans le chapitre 3 comment l'utilisation de la spectroscopie Raman permet d'obtenir $\Gamma(\omega, T)$ et $1 + \lambda(\omega, T)$. La possibilité de distinguer semi-quantitativement les contributions des trois orbitales est discutée au chapitre 6 après la présentation de mes résultats expérimentaux.

Chapitre 2

Le supraconducteur nématique $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$: propriétés générales et comportement sous contrainte uniaxiale

Even as a boy I had always been fascinated by the **chemical elements**... All precious things are elements! **Diamond** is **pure carbon**! And then there's **gold, silver, platinum**...

John Broome, Carmine Infantino et Frank Giacoia,
Master of the elements!, in *Showcase #13* (1958)

Les matériaux présentant une phase supraconductrice sont souvent classés selon différentes familles¹. Une première distinction se fait selon le mécanisme supraconducteur, et oppose supraconducteurs « conventionnels » et « non conventionnels ». Plusieurs définitions existent pour les supraconducteurs conventionnels, les deux principales étant soit qu'ils sont bien décrits par la théorie Bardeen–Cooper–Schrieffer (théorie BCS) de la supraconductivité, soit que le mécanisme d'appariement est l'interaction électron–phonon². Ces supraconducteurs présentent des compositions chimiques souvent simples, et des températures critiques d'apparition de la supraconductivité (T_c) relativement faibles (au maximum à pression ambiante 42 K pour MgB_2 , mais la plupart présentent plutôt des T_c inférieures à 20 K).

Les supraconducteurs non conventionnels sont distingués selon des ressemblances dans la composition chimique, dans quatre familles principales³. Les cuprates possèdent des atomes de cuivre, et plus précisément des plans de conduction CuO_2 ; leur T_c va de 30 à 135 K à pression ambiante, ce qui fait de la majorité d'entre eux des supraconducteurs dits « à haute température critique ». Les composés à fermions lourds ont des atomes avec des électrons $4f$ (lanthanides) ou $5f$ (actinides) (par exemple cérium, uranium, plutonium); leurs T_c sont inférieures à 20 K. Les supraconducteurs organiques (principalement les sels de Bechgaard et les dérivés du buckminsterfullerène) ont des structures moléculaires à base de carbone, avec des T_c inférieures à 40 K. Enfin, les supraconducteurs à base de fer (FeSC) possèdent

1. Voir par exemple l'article « Supraconductivité » de Wikipédia Français [265] ou encore la figure « Timeline of Superconductivity from 1900 to 2015 » de Wikimedia Commons [267], que je prends comme source pour cette introduction.

2. Ces deux définitions s'appliquent souvent de pair dans les supraconducteurs conventionnels.

3. Il est intéressant de noter que, dans la vision actuelle courante de ces différentes familles, Sr_2RuO_4 , que j'ai présenté au chapitre précédent, est orphelin.

des atomes de fer : plus précisément, ceux-ci s'organisent selon des plans parallèles, entourés d'atomes pnictogènes ou chalcogènes. C'est précisément sur cette dernière famille, et plus particulièrement sur son représentant $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$ que s'est portée une partie de mes travaux de thèse.

La famille des FeSC, dont le premier membre a été découvert par Kamihara et collaborateurs en 2006 [122]⁴, a suscité un intérêt considérable de la part de la communauté scientifique : après les cuprates, il s'agit de la seconde famille de matériaux supraconducteurs ayant en commun un élément et des propriétés remarquables, avec des T_c relativement élevées. Ces propriétés incluent notamment : une phase supraconductrice souvent favorisée sous dopage, une transition structurale (structure tétragonale à haute température, orthorhombique à basse température) et un ordre magnétique à basse température. Ce diagramme de phase complexe résulte probablement de couplages entre différents mécanismes physiques microscopiques. De plus, la transition structurale apparaît comme un symptôme d'un processus physique plus complexe, la nématicité quantique. L'existence de cet ordre a notamment suscité plusieurs expériences dans lesquelles une contrainte uniaxiale est appliquée sur les échantillons de FeSC : comme un tel champ externe se couple au paramètre d'ordre nématique, il donne de nouvelles informations sur cette phase, et agit comme une nouvelle dimension du diagramme de phase.

Dans ce chapitre, j'expose un état de l'art des FeSC. Je présente d'abord leurs propriétés générales, et me focalise particulièrement sur le matériau que j'ai étudié, $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$, que je noterai dans la suite Co-Ba122, ou simplement Ba122 pour $x = 0$. J'expose ensuite les propriétés nématiques des FeSC, notamment révélées par des expériences sous contrainte uniaxiale, dans lesquelles mes travaux de thèse s'inscrivent. En plus des sources particulières citées dans la suite, je renvoie ici aux revues référencées en [38, 102, 121, 204]. Je me suis inspiré pour l'écriture de ce chapitre des thèses de Ludivine Chauvière [47], Pierre Massat [179], Dimitri Labat [143], Soumaya Chibani [49]. Notamment, Ludivine Chauvière donne un état de l'art de 2011 de Co-Ba122 plus détaillé que ce que je résume dans ce chapitre.

Sommaire

2.1 Propriétés générales	31
2.1.1 Sous-familles et structure cristallographique	31
2.1.2 Diagramme de phase	32
2.1.3 Structure électronique	33
2.1.4 Supraconductivité	34
2.1.5 Ordre magnétique	35
2.2 Nématicité	35
2.2.1 Concept de nématicité quantique	36
2.2.2 Premiers indices de nématicité : anisotropie des propriétés électroniques	37
2.2.3 Sonder les fluctuations nématiques	39
2.2.3.1 Description de la transition némato-structurale	39
2.2.3.2 Mesure des coefficients élastiques	41
2.2.3.3 Spectroscopie Raman	42
2.2.3.4 Élastorésistivité	43
2.2.3.5 Autres techniques expérimentales	45
2.2.4 Point critique quantique nématique et supraconductivité	45
2.2.5 Contrôle des propriétés nématiques, magnétiques et supraconductrices par une contrainte uniaxiale	46

4. Ce premier FeSC présentait une T_c inférieure à 5 K. Il a fallu attendre 2008 [123] pour obtenir un FeSC avec une T_c supérieure à 20 K, ce qui a véritablement lancé l'engouement pour cette famille.

2.1 Propriétés générales

2.1.1 Sous-familles et structure cristallographique

Au niveau cristallographique, les FeSC ont en commun la présence d'atomes de fer. Plus précisément, ceux-ci forment, avec des atomes de chalcogène ou de pnictogène (respectivement les quinzième et seizième colonnes du tableau périodique des éléments), un bloc élémentaire se retrouvant dans la maille de tous les FeSC : un plan carré d'atomes de fer, chacun relié par des liaisons tétraгонаles à des atomes d'un élément chalcogène ou pnictogène au-dessus et en-dessous du plan d'atomes de fer. L'arrangement de ce bloc élémentaire avec les autres constituants de la maille diffère selon les sous-familles, classées en fonction de la stœchiométrie (nombre relatif de chaque atome dans la formule chimique brute). Par exemple, Ba122 est membre de la sous-famille 122. La figure 2.1 présente les structures cristallographiques des différentes sous-familles.

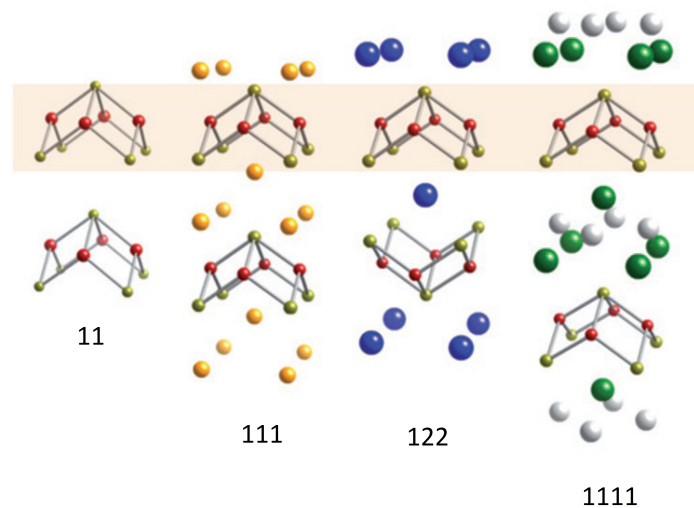


FIGURE 2.1 – Différentes sous-familles de FeSC classées en fonction de leur stœchiométrie. Le bloc élémentaire fer–pnictogène ou fer–chalcogène est surligné en beige. Les atomes de fer sont en rouge, les atomes de pnictogène ou de chalcogène en vert olive. Les atomes d'autres couleurs sont les autres éléments constituant la maille, variant selon les différents FeSC. (Figure adaptée de [204].)

Au niveau du vocabulaire, les FeSC ont traditionnellement été appelés pnictures de fer, car dans les premiers FeSC synthétisés, l'atome associé au fer dans le bloc élémentaire était toujours un pnictogène (le plus souvent l'arsenic ou le phosphore). Même si les FeSC sont encore aujourd'hui en majorité des pnictures de fer, certains sont à base de chalcogène (par exemple FeSe). Le terme plus générique de « supraconducteurs à base de fer » apparaît donc plus approprié, et en tout cas plus prononçable.

Dans la suite, je considère implicitement uniquement Co-Ba122, notamment pour les références invoquées et les paramètres numériques donnés, sauf si contrairement mentionné. Le composé parent Ba122 a une structure tétragonale centrée ($I4/mmm$) à haute température, qui devient orthorhombique faces centrées ($Fmmm$) sous la température de transition structurale $T_s \approx 138$ K [105, 219] (figure 2.2). Sa description cristallographique est complexifiée

par le fait que la direction de distortion orthorhombique est à 45° par rapport à la maille élémentaire tétragonale. Ceci fait que, dans la littérature, les auteurs ne prennent pas tous la même maille de référence dans l'état tétragonal, et soulève parfois des ambiguïtés dans la compréhension des articles. La maille élémentaire tétragonale, de paramètres a , b et c (avec $a = b$), comporte 4 atomes de Fe. Une maille effective de hauteur $c/2$ est parfois considérée, elle ne contient qu'un plan de fer, soit 2 atomes (d'où la dénomination courante dans les articles de « maille à 2 Fe » pour la maille tétragonale ; cette dénomination correspond également à la vision bidimensionnelle illustrée en figure 2.2). Dans ces mailles projetées dans le plan (ab) , les directions cristallographiques sont selon les liaisons Fe–As⁵. La maille élémentaire orthorhombique est orientée à 45° de la maille tétragonale. Elle contient 8 atomes de Fe. Une maille effective plus épurée de hauteur $c/2$, dont les paramètres planaires sont également selon la direction de distortion orthorhombique mais plus petits, contient 1 atome de Fe. Elle est appelée « maille à 1 Fe », et comme la « maille à 2 Fe », est parfois considérée uniquement en deux dimensions ; la maille équivalente dans la phase tétragonale est parfois également considérée.

En résumé, deux mailles effectives sont couramment utilisées pour décrire le composé : la « maille à 2 Fe » dont les côtés dans la plan (ab) sont selon les liaisons Fe–As, et la « maille à 1 Fe », à 45° de la précédente, dont les côtés dans la plan (ab) sont selon les liaisons Fe–Fe, qui sont les directions de la distortion orthorhombique. L'ambiguïté est que, dans le premier cas, la distortion orthorhombique se fait dans la direction $[110]$, et dans le second cas dans la direction $[100]$. Comme je l'explique plus loin, cela correspond à une symétrie nématique B_{2g} dans le premier cas, B_{1g} dans le second. Dans l'entièreté de cette thèse, sauf si le contraire est explicitement précisé, je me place dans la « maille à 2 Fe », avec la symétrie nématique B_{2g} et la distortion orthorhombique selon la direction cristallographique $[110]$.

2.1.2 Diagramme de phase

À pression ambiante, la plupart des FeSC, dont Ba122, ne deviennent supraconducteurs que sous dopage⁶, d'où la représentation courante de diagrammes de phase température–dopage pour ces composés. Plusieurs types de dopage ont été réalisés pour Ba122 : en électron (Fe remplacé par Co, Ni, Rh, Pd), en trou (Ba remplacé par K, Rb) ou dopage isovalent (Fe remplacé par Ru). La figure 2.3 présente un diagramme de phase température–dopage de $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$. Le composé parent présente une transition magnéto-structurale vers $T_{s/N} = 138$ K, de tétragonal paramagnétique vers orthorhombique antiferromagnétique (AFM). En augmentant le dopage, T_s et T_N se séparent, avec $T_s > T_N$ et une différence atteignant au maximum une vingtaine de K, de sorte qu'il existe une phase orthorhombique paramagnétique. Ces deux transitions sont du second ordre [184, 268]⁷. Le composé devient supraconducteur en dopant, pour x compris entre 0,03 et 0,15, avec une T_c maximale de 25 K pour $x_o \approx 0,065$. On distingue les régimes sous-dopé ($x < x_o$) et sur-dopé ($x > x_o$). La phase supraconductrice existe dans les deux phases structurales, avec une frontière quasi verticale (avec une réentrée dans la phase tétragonale en abaissant la température pour $x \approx x_o$) [195].

5. Le terme de « liaisons Fe–As » est trompeur, car en trois dimensions les atomes d'As et de Fe ne sont pas dans le même plan : il s'agit plus précisément de la direction donnée par un atome de Fe et le plus proche projeté d'un atome d'As dans le plan des atomes de Fe.

6. Parmi les exceptions présentant un ordre supraconducteur sans nécessité de dopage, on peut citer FeSe et LiFeAs.

7. À travers une transition de phase du second ordre, le paramètre d'ordre prend une valeur non nulle sans discontinuité (par exemple pour la transition structurale dans Co-Ba122, la distortion orthorhombique $\delta = \frac{a'-b'}{a'+b'}$ [268]).

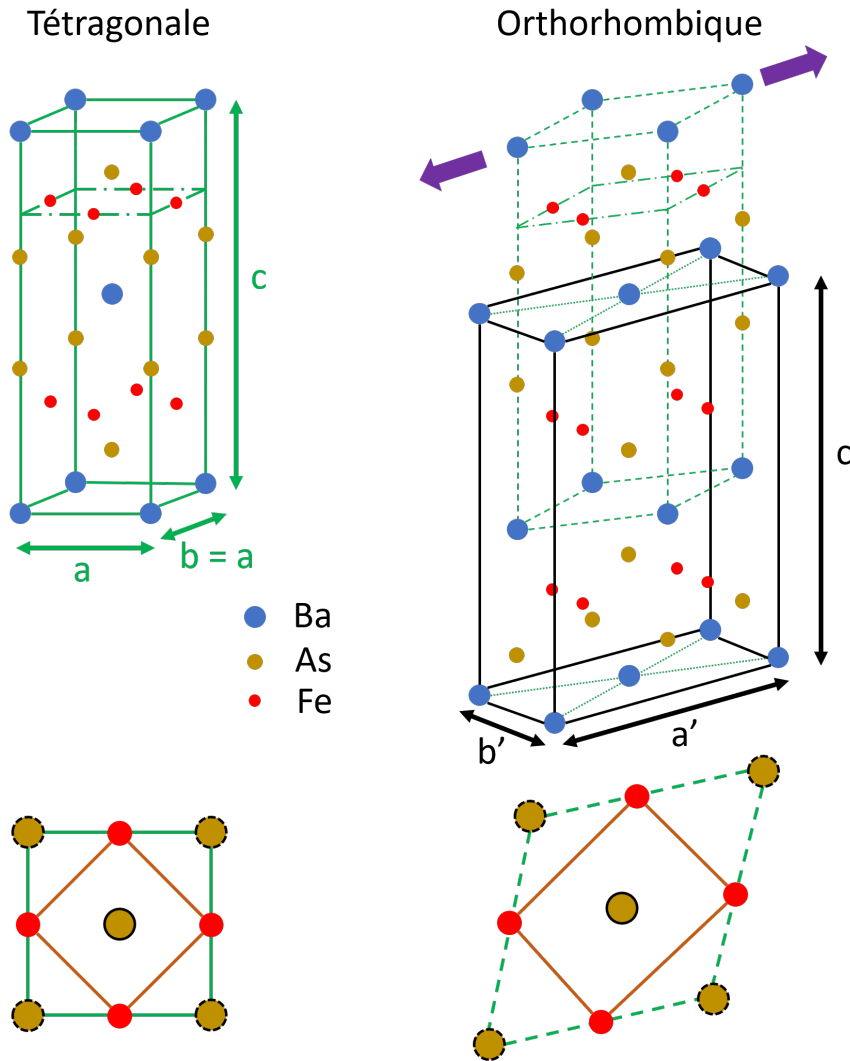


FIGURE 2.2 – (Haut) Schémas de la structure cristallographique de Ba122 dans la phase tétragonale (gauche) et orthorhombique (droite). Les flèches violettes indiquent la direction de distortion orthorhombique, qui est la direction $[110]$ de la maille tétragonale. La maille élémentaire tétragonale est en trait plein vert (et rappelée en trait tireté vert dans la phase orthorhombique). La maille élémentaire orthorhombique est en trait plein noir. Les traits verts pointillés indiquent les diagonales des bases de la maille orthorhombique : ces diagonales sont parallèles aux traits verts tiretés des bases de la maille tétragonale. (Bas) Coupes dans le plan (ab) ou $(a'b')$, au niveau du trait mixte vert, en vue du dessus. Les Fe sont dans le plan de la feuille, les As au contour plein sont devant, les As au contour tireté sont derrière. La projection de la maille effective à 1 Fe est en trait plein orange.

2.1.3 Structure électronique

Les FeSC sont des composés présentant une surface de Fermi multibande complexe, avec des particularités selon les sous-familles. Dans la zone de Brillouin tétragonale, Ba122 présente des poches de type trou centrées en centre de zone Γ , et des poches de type électron centrées en coin de zone X [174, 234, 235] (figures 2.4 et 2.5)⁸. La surface de Fermi évolue fortement sous dopage en Co : le nombre de poches respectif en Γ et X est modifié, avec également trois transitions de Lifshitz (modifications de la topologie de la surface de Fermi)

8. Le point que je note X , suivant la convention de plusieurs articles notamment expérimentaux, est parfois noté M (par exemple dans les articles théoriques [183, 235], et dans la thèse de Ludivine Chauvière [47]).

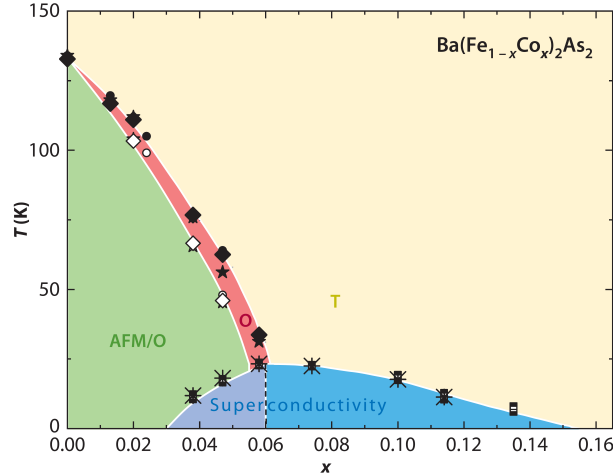


FIGURE 2.3 – Diagramme de phase température–dopage de $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$. Les zones jaune, rouge, verte, bleue et violette correspondent respectivement aux phases suivantes : tétragonale paramagnétique, orthorhombique paramagnétique, orthorhombique antiferromagnétique, supraconductrice tétragonale et supraconductrice orthorhombique. (Figure issue de [38].)

successives quand x augmente jusqu'à 0,3 [156]. La surface de Fermi de Ba122 a un comportement assez tridimensionnel (les poches s'étendent selon k_z , notamment selon la direction Γ – Z pour les poches trous) [174], ce qui indique que la conduction n'est pas limitée dans le plan (ab).

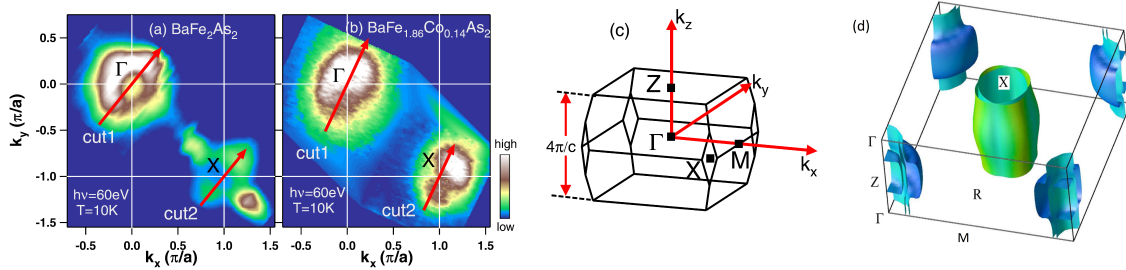


FIGURE 2.4 – (a) et (b) Images d'ARPES de la surface de Fermi de Co-Ba122 (composé pur et composé dopé à 7 %) dans le plan (k_x, k_y) , montrant la présence des poches en Γ et X . Dans le composé parent (sous-figure (a)), les poches (notamment électrons) sont fortement reconstruites du fait de la présence de l'ordre magnétique. (c) Définition de la zone de Brillouin considérée et des points remarquables Γ , M , X . (d) Surface de Fermi calculée théoriquement pour LaFeAsO (sur ce graphique, j'ai échangé les notations M et X par rapport à la figure d'origine pour correspondre à la convention donnée par les articles expérimentaux). (Figures issues de [174] et [235].)

Le contenu orbitalaire des bandes correspond très majoritairement aux orbitales d du fer [279], ce qui montre que la conduction électronique concerne principalement des transitions entre ces atomes.

2.1.4 Supraconductivité

En section 2.2.4, j'expliquerai le lien entre supraconductivité et nématicité, qui est supposé fondamental dans la compréhension des propriétés supraconductrices des FeSC. Dans cette section, je présente brièvement les autres aspects principaux de la supraconductivité.

Également, la section 1.3.2.1 présente une courte discussion sur le vocabulaire décrivant la symétrie du gap supraconducteur.

Les FeSC en général, et Co-Ba122 en particulier sont des supraconducteurs non conventionnels, dans le sens où le mécanisme d'appariement ne peut pas être le simple couplage électron–phonon [27, 176]. La diminution du déplacement de Knight sous T_c indique que l'appariement des paires est singulet [198]. Un ensemble d'indices expérimentaux (résumés dans la thèse de Ludivine Chauvière [47]) excluent un gap de symétrie d ou s conventionnel : la mesure de plusieurs gaps indique un état s^* décrivant un gap anisotrope sans ligne nodale. La présence de plusieurs poches au niveau de Fermi complique l'interprétation, comme les gaps peuvent s'ouvrir différemment selon les différentes bandes. En particulier, le paramètre d'ordre peut changer de signe entre les différentes poches. L'hypothèse privilégiée est celle d'un gap s^\pm , dans lequel le paramètre d'ordre est de signe opposé entre les poches centrées en Γ et celles centrées en X . Un tel état est favorisé par l'interaction antiferromagnétique entre les deux types de poches via le vecteur d'emboîtement \mathbf{Q}_{SDW} (voir la section suivante).

2.1.5 Ordre magnétique

Comme figuré sur le diagramme de phase (figure 2.3), les FeSC présentent un ordre antiferromagnétique à basse température⁹. Celui-ci est présent dans les composés non dopés. Pour Ba122, la température de transition magnétique est $T_N = 138$ K, qui diminue sous dopage jusqu'à la disparition de l'ordre au profit de celui supraconducteur. La concomitance des transitions structurale et magnétique à dopage nul, et le fait que T_s et T_N restent très proches quand le dopage augmente, posent la question du lien entre les ordres nématique et magnétique dans les FeSC.

Les mesures de diffraction des neutrons [105] indiquent que l'ordre antiferromagnétique a un vecteur d'onde de composantes $(1,0,1)$ (dans la maille orthorhombique avec $a' > b'$). Dans un modèle localisé, dans lequel les moments magnétiques sont localisés sur les atomes de Fe, cela signifie qu'ils s'ordonnent antiferromagnétiquement selon a' et c , et ferromagnétiquement selon b' (figure 2.5). Comme les FeSC sont des métaux, avec des électrons délocalisés, une vision plus réaliste correspond à une onde de densité de spin (en anglais *spin density wave*, SDW), soit une modulation de la densité de spin dans la direction $\mathbf{Q}_{SDW} = (1,0,1)$. Dans cette vision correspondant davantage à un magnétisme itinérant, la formation de la SDW peut être expliquée par une instabilité de la surface de Fermi pour le vecteur d'onde \mathbf{Q}_{SDW} . En effet, un tel vecteur relie les poches trou et électron de la surface de Fermi, selon le phénomène d'emboîtement [183] (figure 2.5).

2.2 Nématicité

La transition structurale tétragonale–orthorhombique observée à T_s dans les FeSC correspond à une brisure de symétrie de rotation du cristal : la symétrie de rotation d'ordre 4 d'axe c est abaissée en une symétrie d'ordre 2. Plusieurs indices théoriques et expérimentaux esquissent une vision de cette transition comme symptôme d'un ordre plus profond, la nématicité quantique. La présence d'un point critique quantique nématique à la terminaison de la ligne de transition nématique dans le diagramme de phase température–dopage pourrait influencer les propriétés électroniques, notamment supraconductrices. Dans cette section, j'explique le concept de nématicité dans les matériaux quantiques, et je détaille sa réalisation dans les FeSC.

9. FeSe est une exception parmi les FeSC, car ni le composé parent ni ceux dopés ne présentent d'ordre magnétique.

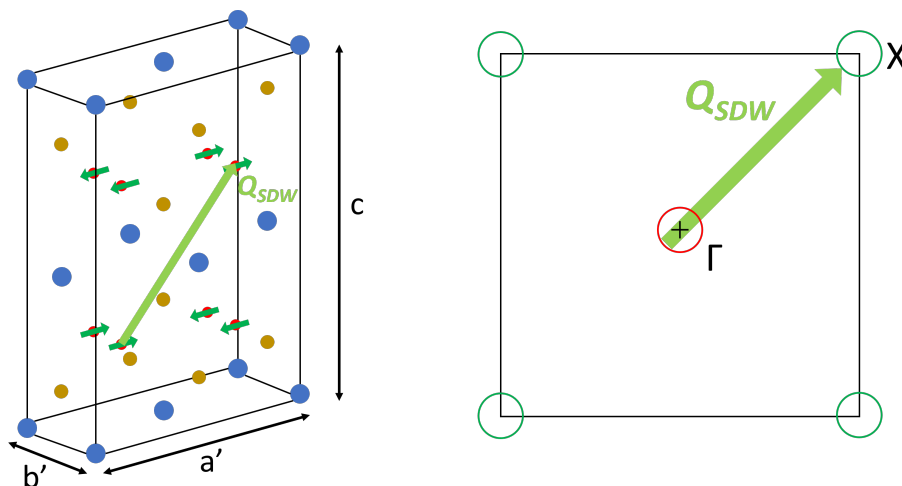


FIGURE 2.5 – (Gauche) Orientation des moments magnétiques (flèches vertes foncées) sur les atomes de Fe selon $\mathbf{Q}_{SDW} = (1,0,1)$ (flèche verte claire) dans la maille orthorhombique. (Droite) Représentation schématique de la surface de Fermi bidimensionnelle (plan (k_x, k_y) de la zone de Brillouin de la maille tétragonale), avec les poches de la surface de Fermi (poches trou en rouge, poches électron en vert), et le vecteur d’emboîtement $\mathbf{Q}_{SDW} = (2\pi/a', 0)$ (maille orthorhombique à 1 Fe) ou $(\pi/a, \pi/a)$ (maille tétragonale à 2 Fe).

2.2.1 Concept de nématicité quantique

Le concept de nématicité a originellement été inventé dans le domaine des cristaux liquides [59]. Il permet de décrire un arrangement particulier de molécules allongées ellipsoïdales appelées nématogènes (figure 2.6). À haute température, ces molécules sont désordonnées à la fois en positions et en orientations. Sous une température de transition T_0 apparaît une phase nématique : les centres de gravité des nématogènes restent disposés aléatoirement, mais leur orientation suit préférentiellement un axe commun. Du point de vue des symétries, la phase haute température a une infinité de symétries de translations (toutes directions, tous modules de vecteurs) et de rotation (toutes directions d’axes, tous angles), comme elle est désordonnée liquide. La phase nématique brise toutes les symétries de rotations, sauf celle ayant pour axe celui d’orientation des nématogènes, qui reste d’ordre infini ; les symétries de translation restent conservées.

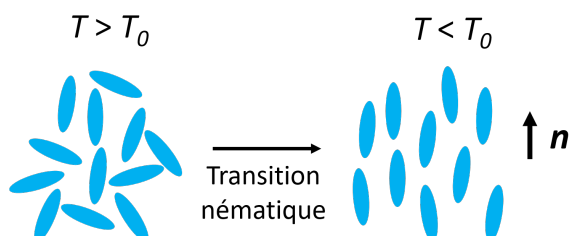


FIGURE 2.6 – Représentation schématique de la phase liquide désordonnée (gauche) et de la phase nématique (droite) d’un système de cristaux liquides, à un instant donné. T_0 est la température de transition nématique, \mathbf{n} est le vecteur directeur d’orientation des nématogènes dans la phase nématique.

Par analogie, Kivelson et collaborateurs [134] introduisent¹⁰ le concept de nématicité¹¹ pour décrire une brisure de symétrie de rotation, à symétrie de translation conservée, dans les liquides électroniques, c'est-à-dire les systèmes d'électrons en interaction. Une subtilité importante est que ces électrons existent dans un solide ionique, qui impose les symétries de son groupe ponctuel (par opposition aux cristaux liquides qui existent en général dans l'espace isotrope), via par exemple le terme de potentiel périodique dans l'hamiltonien. Dans la phase nématique, l'hamiltonien décrivant le fluide électronique perd spontanément une symétrie de rotation du cristal ionique, mais pas ses symétries de translation¹². Dans la référence [134] est pris l'exemple d'un réseau cristallin à base carrée (tétraгонаl ou cubique), dans lequel la phase nématique brise la symétrie de rotation d'ordre 4.

Une transition de structure cristalline tétraгонаle–orthorhombique ou orthorhombique–monoclinique est formellement une transition nématique, car elle implique une brisure de symétrie pour le fluide électronique qu'elle héberge. Mais une notion plus forte de nématicité apparaît dans la considération de l'élément moteur de la transition. On parlera plus volontiers de transition nématique quand la brisure de symétrie est dirigée par les électrons, et que la transition structurale n'en est qu'une conséquence due au couplage entre les électrons et le réseau [76]. Dans ce cas, le mécanisme microscopique de la transition doit être cherché dans les degrés de liberté électroniques plutôt que ioniques. C'est en ce sens que la définition d'une transition nématique distincte d'une simple transition structurale a un intérêt pour comprendre les propriétés des matériaux quantiques. Dans le cas extrême d'un solide parfaitement rigide, une transition nématique électronique peut se dérouler en l'absence de transition structurale [72].

La réalisation du concept de nématicité quantique dans les matériaux réels est discutée dès l'article fondateur de Kivelson et collaborateurs [134], qui évoquent des indices expérimentaux dans certains cuprates. Dans la revue [76] sont également discutés quelques exemples expérimentaux, dont les FeSC, récemment découverts à l'époque. Le mécanisme microscopique à la base de la nématicité est un problème complexe ; dans les FeSC, plusieurs possibilités sont discutées dans une seconde revue [71]. Deux scénarios principaux y sont considérés. Dans le premier, conforté par la présence de l'ordre magnétique dans la majorité des FeSC, l'ordre nématique naît des fluctuations de spin. Le second est un scénario de nématicité orbitale, dans lequel c'est la susceptibilité de charge qui, en divergeant, induit la transition nématique. Actuellement, le mécanisme microscopique fondant la nématicité dans les FeSC n'est toujours pas bien établi.

2.2.2 Premiers indices de nématicité : anisotropie des propriétés électroniques

La possibilité d'un ordre nématique dans les FeSC a été suggérée d'un point de vue théorique rapidement après leur découverte en 2006, à la lumière de premiers résultats expérimentaux [69]. Par la suite, plusieurs articles publiés entre 2010 et 2012 observent l'anisotropie des propriétés électroniques entre les deux axes cristallins orthorhombiques, qui est interprétée comme le symptôme d'un ordre nématique. Je présente dans cette section les articles concernant Co-Ba122, qui sont également étudiés dans les articles de revue [72, 74]. Certaines mesures donnent une indication qualitative de la présence de fluctuations nématiques : je m'intéresserai plus spécifiquement en section 2.2.3 aux articles sondant quantitativement ces

10. L'article [134] a le premier introduit explicitement le concept de nématicité électronique, mais en réalité, il a été envisagé dès les années 1960 par Labbé et Friedel [144] : ils donnent un modèle expliquant une brisure de symétrie de rotation d'un cristal par une instabilité électronique, l'effet Jahn–Teller de bandes.

11. Du domaine des cristaux liquides, cet article reprend également le concept de phase smectique.

12. Au passage de la transition nématique, les vecteurs de translation du réseau cristallin sont généralement modifiés dans leur module, mais ces symétries de translation de la maille ne sont pas brisées.

fluctuations.

Afin d'étudier cette anisotropie des propriétés électroniques, les différents auteurs ont dû faire face au problème de la formation de domaines orthorhombiques : comme il y a deux possibilités de distortion orthorhombique ($a' > b'$ ou l'inverse), l'échantillon refroidi sous T_s sans champ externe appliqué n'est pas uniformément orthorhombique, mais présente des domaines de taille micrométrique. Ce phénomène peut effacer le caractère nématique dans certaines mesures macroscopiques des propriétés électroniques. Pour surmonter ce problème, les mesures sont souvent faites sur des échantillons rendus monodomaine, démaclés (en anglais *detwinned*) au moyen d'une faible contrainte uniaxiale appliquée dans la direction de distortion orthorhombique, ou d'un champ magnétique [74].

Des premières mesures de résistivité ρ [52, 249] des échantillons démaclés montrent une anisotropie de comportement entre les deux axes a et b de la distortion orthorhombique¹³ (figure 2.7). Avec $b < a$, ils obtiennent $\rho_b > \rho_a$ pour différents dopages, ce qui est l'inverse du comportement attendu en prenant simplement en compte le recouvrement des orbitales le long des axes et la diffusion des fluctuations de spin. De plus, les valeurs d'anisotropie sont relativement élevées (atteignant au maximum un facteur 2) par rapport à la distortion orthorhombique $\delta = (a - b)/(a + b)$ (au maximum 0,36 % à dopage nul). Concernant l'évolution en dopage, l'anisotropie atteint un maximum autour de $x = 3$ %, alors que le paramètre d'ordre orthorhombique δ diminue de façon monotone lorsque x augmente. Les maxima de la dérivée de la différence des résistivités sont situés autour de T_s et T_N , ce qui indique un lien avec la distortion orthorhombique. Ces observations constituent un indice que l'anisotropie de résistivité n'est pas qu'un symptôme secondaire de la distortion structurale, et que la transition nématique est avant tout électronique.

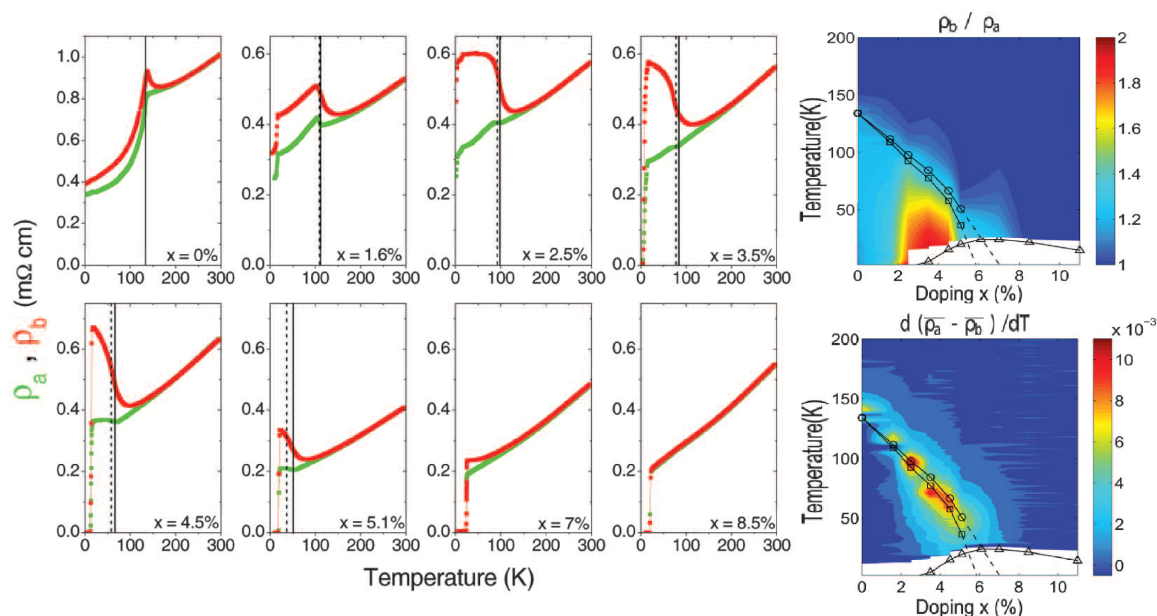


FIGURE 2.7 – Anisotropie de la résistivité dans un échantillon de Co-Ba122 démaclé grâce à une faible compression appliquée selon l'axe orthorhombique b . $\bar{\rho}_a$ et $\bar{\rho}_b$ sont les résistivités normalisées par leur valeur à 300 K. (Figure issue de [52].)

Les résultats de ces premières mesures d'anisotropie de résistivité [52] ont cependant été

13. Pour simplifier l'écriture et correspondre aux articles cités, je ne suis pas nécessairement ma convention de la figure 2.2, et note ponctuellement a et b plutôt que a' et b' les paramètres de la maille orthorhombique.

nuancés par des études ultérieures théoriques et expérimentales montrant qu'elle pouvait être influencée, ou expliquée en partie, par la diffusion sur les impuretés [70, 84, 118]. De plus, l'application d'une contrainte uniaxiale, même faible pour seulement démacler l'échantillon, brise la symétrie de rotation d'ordre 4, donc la transition orthorhombique et T_s ne sont plus proprement définies. Ceci explique l'anisotropie de résistivité mesurée pour T proche de T_s et supérieure à T_s , et complique encore l'interprétation.

Les mesures d'anisotropie de résistivité sont cohérentes avec celles de magnétorésistance, avec un démaclage par un champ magnétique [53]. Cette anisotropie concerne également la dynamique des charges sondée par conductivité optique [68, 193]. Comme pour la résistivité DC, celle-ci est plus importante à $x = 2,5\%$ qu'à $x = 0$; elle s'étend à des énergies et températures supérieures au régime correspondant à la phase orthorhombique, ce qui sous-tend de nouveau la présence de fluctuations nématiques. Des mesures d'ARPES sur un échantillon démaclé confirment ces différentes observations, en observant une séparation en énergie des bandes orthogonales aux caractères d_{xz} et d_{yz} [273].

L'observation de propriétés anisotropes a également été faite dans d'autres FeSC. Par exemple dans $\text{Ca}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$, une étude par microscopie à effet tunnel (en anglais *scanning tunneling microscopy*, STM) dans la phase orthorhombique¹⁴ montre la présence d'états électroniques délocalisés dispersés selon un axe, avec une rotation de 90° de la direction de dispersion en changeant de domaine orthorhombique [55]. Cette anisotropie électronique ne s'explique pas simplement par la symétrie du réseau cristallin, et nécessite donc un ordre nématique électronique. Le cas de FeSe est également intéressant pour discuter du lien entre les différents ordres (nématique, supraconducteur, magnétique) dans les FeSC, car il ne présente justement pas d'ordre magnétique à pression ambiante. Plusieurs preuves expérimentales de la nématicité de ce matériau sont présentées dans la revue de Böhmer et Kreisel [30].

2.2.3 Sonder les fluctuations nématiques

Les articles cités dans la section précédente donnent des indices de la présence d'un ordre nématique électronique moteur de la transition structurale. Des études expérimentales ultérieures ont permis de mesurer quantitativement les fluctuations nématiques autour de T_s , ce qui a entériné le consensus autour de l'ordre nématique et a permis une meilleure compréhension de cet ordre. Dans cette section, je passe en revue ces différents articles, selon les techniques employées ou grandeurs mesurées, après avoir présenté le formalisme théorique décrivant la transition némato-structurale.

2.2.3.1 Description de la transition némato-structurale

Avant de présenter les résultats expérimentaux, je donne un aperçu du cadre théorique décrivant la transition némato-structurale¹⁵. La description par un formalisme de Landau de cette transition et la possibilité du rôle nématique moteur sur la transition structurale ont notamment été introduites par Cano et collaboratrices [39]; mais ici je suis plutôt le formalisme de Böhmer et Meingast [31], dans lequel l'ordre magnétique n'est pas, dans un premier temps, explicitement pris en compte¹⁶.

14. Avec cette technique expérimentale, il est possible de sonder les différents domaines d'un échantillon maclé.

15. Une discussion théorique est également présentée en section 3.3 (chapitre 3), dans un cadre légèrement différent adapté à la discussion de la réponse Raman d'un matériau nématique.

16. L'article [39] lie explicitement la transition nématique au magnétisme, en considérant un paramètre d'ordre nématique de spin, ce qui correspond à la vision dominante au moment de sa publication. Mais le raisonnement reste suffisamment général pour décrire également le cas d'un paramètre d'ordre nématique d'une autre origine microscopique.

On considère un matériau subissant une transition de phase du second ordre nématique induisant une distortion orthorhombique¹⁷. En suivant la description de Landau des transitions de phase du second ordre, l'énergie libre F s'écrit :

$$F = F_0 + \frac{1}{2}C_0\epsilon^2 + \frac{1}{2}\chi^{-1}\phi^2 - \lambda\epsilon\phi \quad (2.1)$$

ϵ est la déformation élastique dans la direction de distortion structurale (c'est donc le paramètre d'ordre de la transition structurale), C_0 est le coefficient élastique correspondant¹⁸, ϕ est le paramètre d'ordre nématique électronique, χ est la susceptibilité nématique (elle est une mesure des fluctuations nématiques), et λ est le paramètre de couplage némato-structural (ou némato-élastique). Ce couplage est dû à une symétrie commune (B_{2g} pour Co-Ba122) entre les paramètres d'ordres structural et nématique. C_0 et χ sont plus précisément le coefficient élastique nu et la susceptibilité nématique nue, c'est-à-dire pris en l'absence d'ordre nématique pour la première, et en l'absence de transition structurale pour la seconde. Les résultats qui suivent sont obtenus dans une vision en champ moyen.

L'équation (2.1) décrit une transition némato-structurale dans le cas général avec un minimum de termes. Plusieurs développements sont possibles. Un premier, valable dans le cas général, est la prise en compte des ordres supérieurs en ϵ ou en ϕ . Pour la discussion de cette section, leur prise en compte n'est pas nécessaire. Un deuxième développement, utile pour décrire plus précisément le cas de Co-Ba122, est l'introduction d'un paramètre d'ordre magnétique, afin de prendre en compte la transition magnétique se déroulant pour $T_N \leq T_s$. Ici, je néglige l'impact de ce paramètre d'ordre magnétique. Il est également important de comprendre que l'équation (2.1) décrit une transition némato-structurale se déroulant spontanément avec l'abaissement de la température. En effet, la déformation d'un échantillon peut également être induite à toute température, en particulier pour $T > T_s$, par une contrainte σ , qui agit comme un champ externe se couplant à la déformation : sa prise en compte dans l'équation (2.1) se fait par l'ajout d'un terme de couplage bilinéaire $-\epsilon\sigma$. Je reviens au chapitre 4 sur le lien entre contrainte et déformation.

Dans l'hypothèse d'une transition guidée par la susceptibilité électronique, C_0 n'a pas de dépendance en température. En l'absence de couplage némato-structural, χ diverge à T_0 , selon $\chi(T) = (a(T-T_0))^{-1}$ (comportement de type Curie-Weiss), avec a un coefficient positif indépendant de la température, et ϵ reste nulle au passage de la transition nématique (le cristal est rigide). Les résultats principaux du couplage némato-structural sont l'induction d'une transition structurale et les renormalisations de C_0 en C et de χ en $\tilde{\chi}$ [31] :

$$\tilde{\chi}^{-1} = \frac{d^2F}{d\phi^2} = \frac{\partial^2F}{\partial\phi^2} - \left(\frac{\partial^2F}{\partial\phi\partial\epsilon}\right)^2 \left(\frac{\partial^2F}{\partial\epsilon^2}\right)^{-1} = \chi^{-1} - \frac{\lambda^2}{C_0} \quad (2.2)$$

$$C = \frac{d^2F}{d\epsilon^2} = \frac{\partial^2F}{\partial\epsilon^2} - \left(\frac{\partial^2F}{\partial\epsilon\partial\phi}\right)^2 \left(\frac{\partial^2F}{\partial\phi^2}\right)^{-1} = C_0 - \lambda^2\chi \quad (2.3)$$

De ces expressions, je déduis le lien entre les quantités renormalisées [73] :

17. Je rappelle que dans Co-Ba122 la distortion orthorhombique est selon [110], et la déformation a une symétrie B_{2g} .

18. Au chapitre 4, je détaille le lien entre déformation et coefficients élastiques. Pour une distortion orthorhombique selon la direction [110], qui est le cas pour Co-Ba122, le coefficient élastique adéquat est le module de cisaillement C_{66} .

$$C^{-1} = C_0^{-1} + \frac{\lambda^2}{C_0^2} \tilde{\chi} \quad (2.4)$$

À T_s , donnée par :

$$T_s = T_0 + \frac{\lambda^2}{aC_0} \quad (2.5)$$

on obtient $\chi^{-1}(T_s) = \frac{\lambda^2}{C_0^2}$, donc $\tilde{\chi}$ diverge et C s'annule : T_s (qui est supérieure à T_0) est donc la température de transition némato-structurale, sous laquelle $\epsilon \neq 0$ et $\phi \neq 0$. Plus précisément, C diminue progressivement de façon non linéaire quand la température diminue jusqu'à s'annuler à T_s , ce qui provoque une transition structurale spontanée, avec :

$$C = C_0 \left(\frac{T - T_s}{T - T_0} \right) \quad \text{pour } T > T_s \quad (2.6)$$

$$C = C_0 \left(\frac{2(T_s - T)}{3T_s - T_0 - 2T} \right) \quad \text{pour } T < T_s \quad (2.7)$$

Simultanément, à T_s , l'annulation de $\tilde{\chi}^{-1}$ provoque la transition nématique. Le couplage némato-élastique provoque la transition structurale pour $T_s > T_0$, donc avant que χ^{-1} se soit totalement annulée. L'augmentation divergente de χ s'arrête donc à T_s . Son comportement pour $T < T_s$, et en particulier pour $T_0 < T < T_s$, dépend de détails microscopiques qui ne sont pas pris en compte dans l'équation (2.1).

Si l'on avait considéré une transition purement structurale sans paramètre d'ordre nématique ($\phi = 0$ pour toute température et la susceptibilité structurale inverse C remplaçant C_0 dans l'équation (2.1)), avec ϵ comme paramètre d'ordre élastique (orthorhombique), la susceptibilité orthorhombique aurait été donnée par C^{-1} , avec $C = a(T - T_s)$. L'annulation de C à T_s est dans ce cas linéaire (comportement de type Curie–Weiss) [278].

2.2.3.2 Mesure des coefficients élastiques

D'après le modèle théorique précédent, la mesure de C et l'étude de sa dépendance en température permettent de montrer le caractère nématique de la transition de phase et d'obtenir T_0 (équation (2.6)), et donnent une estimation des fluctuations nématiques quantifiées par χ (dont le lien avec C est donné en équation (2.3)). C peut être mesuré directement grâce à la technique de spectroscopie résonante par ultrasons, ou indirectement par la mesure de la composante adéquate du module d'Young. Pour Co-Ba122, les résultats de mesures d'ultrason sont présentés dans les références [41, 73, 77, 277, 278], et les mesures du module d'Young dans la référence [29]. La figure 2.8 résume ces différents résultats. Les deux types de mesures donnent des résultats en accord qualitatif. C se ramollit fortement de façon non linéaire en s'approchant de T_s . En s'approchant de T_s , la susceptibilité nématique augmente fortement, ce qui montre l'intensification des fluctuations nématiques. La température de transition nématique T_0 , obtenue par ajustement de la variation de C en température selon la loi de l'équation (2.6), est inférieure d'une vingtaine de K à la température de transition structurale T_s .

Contrairement à la prévision théorique, C n'atteint expérimentalement pas 0 à la transition structurale, à la fois pour les mesures directes de C et les mesures du module d'Young,

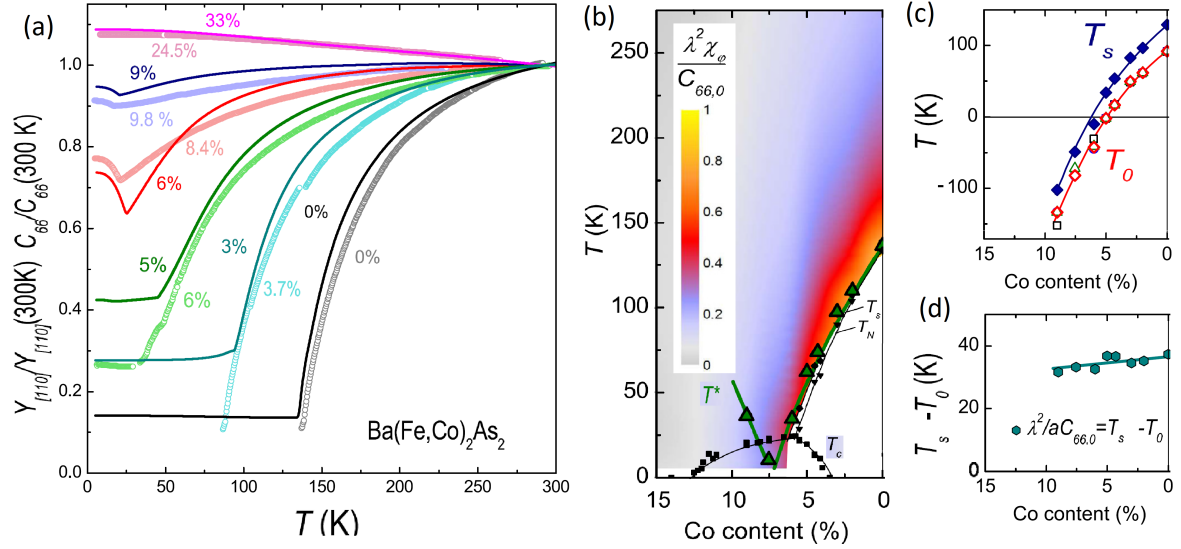


FIGURE 2.8 – Expériences de mesures du coefficient élastique ou du module d’Young. (a) Accord qualitatif entre les mesures directes du module élastique de cisaillement (rond) et les mesures du module d’Young (lignes), indiquant une forte diminution de C_{66} à l’approche de T_s . (b) Valeur de la susceptibilité nématique sur le diagramme de phase température–dopage. T^* est la température limite inférieure de la divergence de Curie–Weiss de $\chi(T)$. (c) Évolution en dopage de la température de transition structurale T_s (symboles pleins) et de la température de divergence nématique T_0 (symboles vides). T_s est estimée comme la température à laquelle C s’extrapole à 0, et T_0 est estimée en inversant l’expression de χ , ces deux températures sont donc obtenues même pour les dopages pour lesquels il n’y a plus de transition structurale, et deviennent formellement négatives à haut dopage. Du fait de la méthode d’estimation, T_0 acquiert de fait une dépendance en T , d’où la présence de différents symboles vides à dopage fixé : mais cette dépendance en T est minimale. (d) Évolution en dopage de la différence entre T_s et T_0 . (Figures adaptées de [31].)

et ceci à tout dopage. Böhmer et Meingast [31] indiquent que la raison de cette disparité est incertaine : elle pourrait être liée aux effets de désordre ou, pour la mesure du module d’Young, à la présence nécessaire d’une contrainte finie. N’est également pas expliqué le fait que le ramollissement s’amointrit quand le dopage augmente¹⁹.

Plus récemment, Sanchez et collaboratrices [221] extraient C à partir de la mesure par diffraction des rayons X des déformations selon les axes orthorhombique x et y , sous l’application d’une contrainte uniaxiale selon l’axe x , sur un échantillon de Co-Ba122 dopé à 4%. Ils obtiennent un ramollissement total, avec une annulation de C à T_s .

2.2.3.3 Spectroscopie Raman

En section 3.3 (chapitre 3), je détaille les considérations théoriques autour de la mesure de la susceptibilité nématique par spectroscopie Raman, illustrées par des spectres obtenus pour différents FeSC. Dans cette section, je donne uniquement les résultats de susceptibilité et de températures de transition nématiques, que je compare avec les mesures de coefficients élastiques.

La figure 2.9 montre la dépendance en température et dopage de la susceptibilité nématique Raman dans Co-Ba122 mesurée par Gallais et collaboratrices [78], avec de claires

¹⁹. Pour les dopages supérieurs à environ 6 %, il n’y a pas de transition structurale, mais C se ramollit néanmoins légèrement avec la température. La transition supraconductrice marque une rupture de pente et stoppe le ramollissement de C .

fluctuations nématiques au-delà de T_s . La température de transition nématique T_0 , obtenue par des ajustements des susceptibilités, présente un comportement quantitativement similaire à celui obtenu via les mesures du coefficient élastique : environ 100 K à dopage nul, et valant 0 pour $x \approx 0,05$. L'accord entre le module élastique mesuré directement et celui déduit de la susceptibilité Raman est quantitativement excellent pour les deux dopages considérés, ce qui valide le scénario dans lequel les degrés de liberté électroniques pilotent la transition structurale et modifient le ramollissement de C . Les fluctuations nématiques ont également été mesurées par spectroscopie Raman dans Co-Ba122 par un second groupe de recherche [138], avec des résultats analogues, et dans deux autres FeSC : $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ [2] et $\text{NaFe}_{1-x}\text{Co}_x\text{As}_2$ [253].

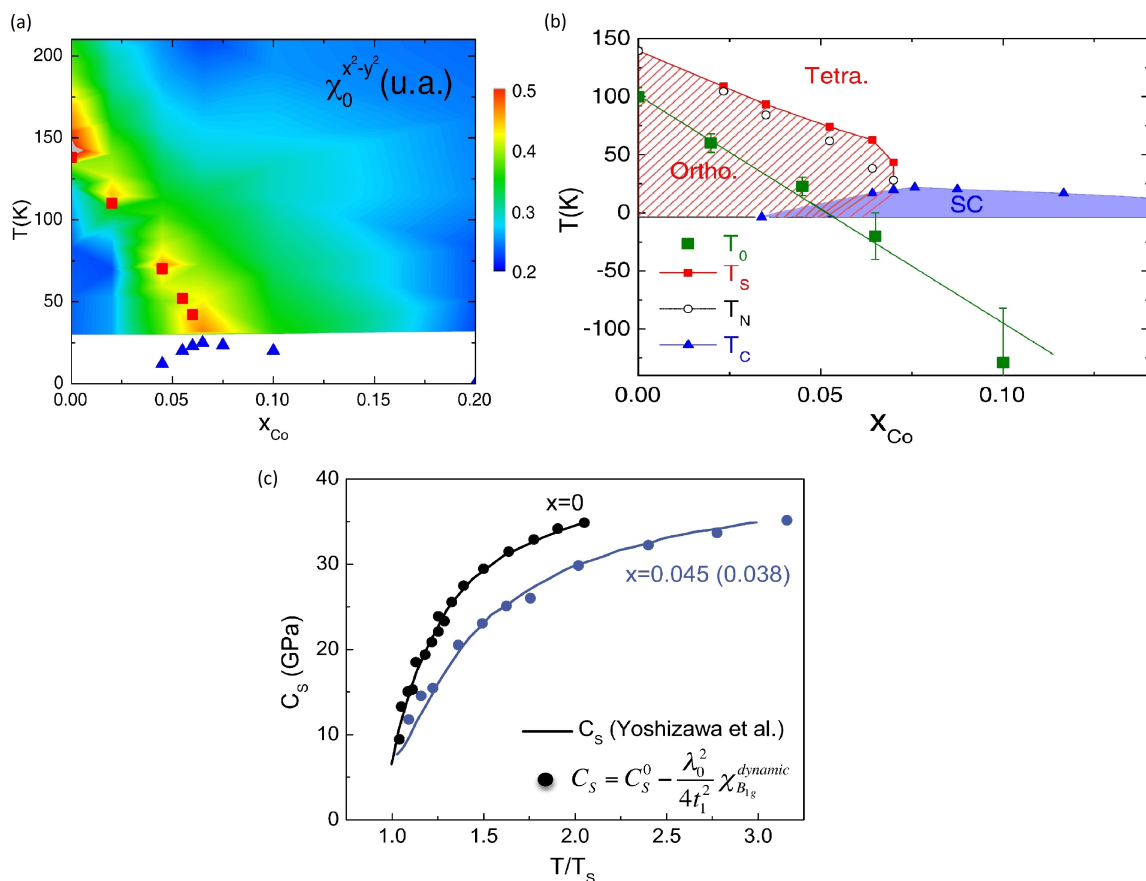


FIGURE 2.9 – Expériences de spectroscopie Raman dans Co-Ba122. (a) Susceptibilité nématique mesurée par spectroscopie Raman. Les carrés rouges et les triangles bleus sont les températures de transition respectivement structurale T_s et supraconductrice T_c . L'échelle de couleur représente la valeur de la susceptibilité nématique. (b) Évolution en dopage de la température de transition nématique T_0 déduite des mesures de spectroscopie Raman. J'ai corrigé une coquille présente sur la figure d'origine qui mettait le dopage d'apparition de la supraconductivité à 5 % au lieu de 3 %. (c) Accord quantitatif entre les mesures directes de C et la spectroscopie Raman. (Figures issues de [78, 79].)

2.2.3.4 Élastorésistivité

Les mesures d'élastorésistivité constituent le prolongement naturel des mesures d'anisotropies de la résistivité présentées en section 2.2.2. Leur apport est crucial par rapport à ces

dernières, car elles permettent de montrer de façon théoriquement plus fondée la nature électronique nématique de la transition de phase, et fournissent une grandeur proportionnelle à la susceptibilité nématique. Elles ont été développées et appliquées pour Co-Ba122 par Chu et collaborateurs [54], dont je présente maintenant les considérations théoriques et les résultats. Des compléments à ces mesures sont présentées dans les références [140, 141], et des considérations théoriques sur les symétries du tenseur d'élastorésistivité sont présentées dans la référence [227].

Ces mesures consistent à mesurer la dépendance de l'anisotropie de résistivité η d'un cristal avec la déformation ϵ de l'échantillon. La déformation est obtenue en soumettant l'échantillon à une contrainte uniaxiale appliquée selon la direction de distortion orthorhombique. La contrainte n'est pas appliquée seulement pour démacler l'échantillon, comme c'était le cas dans les mesures d'anisotropie précédentes : il s'agit ici d'un paramètre externe variable, dont on étudie l'influence sur η .

On définit l'anisotropie de résistivité $\eta = \Delta\rho/\rho_0$, avec $\Delta\rho$ la différence de résistivité entre la direction contrainte et la direction orthogonale (dans le plan) et ρ_0 la résistivité d'un échantillon sans déformation. Le coefficient d'élastorésistivité ²⁰ $2m_{66} = \frac{d\eta}{d\epsilon}$ est proportionnel à la susceptibilité nématique, pour les petites déformations ²¹ [54]. L'ajustement de $2m_{66}$ par un comportement de type Curie–Weiss permet d'obtenir la température de transition nématique. Je présente leurs résultats en figure 2.10. $2m_{66}$ a un comportement divergent en s'approchant de T_s . Ce comportement divergent s'accroît en s'approchant du dopage supraconducteur optimal, aux environs duquel la température de transition nématique s'annule.

Ce dernier résultat est qualitativement en discordance avec ceux de spectroscopie Raman et de coefficients élastiques, pour lesquels T_0 s'annule à un dopage sensiblement plus faible. De plus, la susceptibilité nématique mesurée par élastorésistivité augmente fortement avec le dopage (figure 2.10 graphique (c)), alors que la susceptibilité nématique issue des mesures de coefficients élastiques et la susceptibilité nématique Raman ont plutôt tendance à diminuer quand le dopage augmente (respectivement en figure 2.8 graphique (b) et en figure 2.9 graphique (a)). Ces écarts posent la question de la comparabilité des différentes techniques et des susceptibilités qu'elles extraient.

Une différence importante entre les différentes techniques citées jusqu'à présent réside dans l'application ou non d'une contrainte. En mesure du module d'Young, ainsi qu'en élastorésistivité, une contrainte est nécessairement appliquée : je ne l'ai pas prise en compte dans l'équation (2.1), mais sa présence induit via le terme $-\sigma\epsilon$ un paramètre d'ordre élastique ϵ non nul même au-delà de T_s , qui n'est plus proprement définie. Les mesures d'élastorésistivité reposent sur l'application d'une contrainte, et la déformation appliquée est proprement intégrée au formalisme. En spectroscopie Raman, il n'est pas nécessaire d'appliquer une contrainte pour accéder à la susceptibilité nématique.

La dépendance en dopage de la susceptibilité nématique, différente selon les techniques, pose la question de celle des autres paramètres décrivant le matériau introduits aux équations (2.1) et suivantes, notamment le couplage némato-élastique λ . En effet, comme je le discute dans la suite en section 2.2.4, il est attendu théoriquement que la valeur de ce paramètre proche du point critique quantique nématique ait un impact sur l'ordre supraconducteur. Je reviens sur ces points de comparaison des techniques et de comportement de λ au moment de discuter mes résultats en section 5.3.3 (chapitre 5).

20. $2m_{66}$ est plus précisément la composante du tenseur d'élastorésistivité correspondant à une contrainte selon la direction [110].

21. $2m_{66}$, comme C , sont des fonctions réponses définies dans la limite de contrainte nulle.

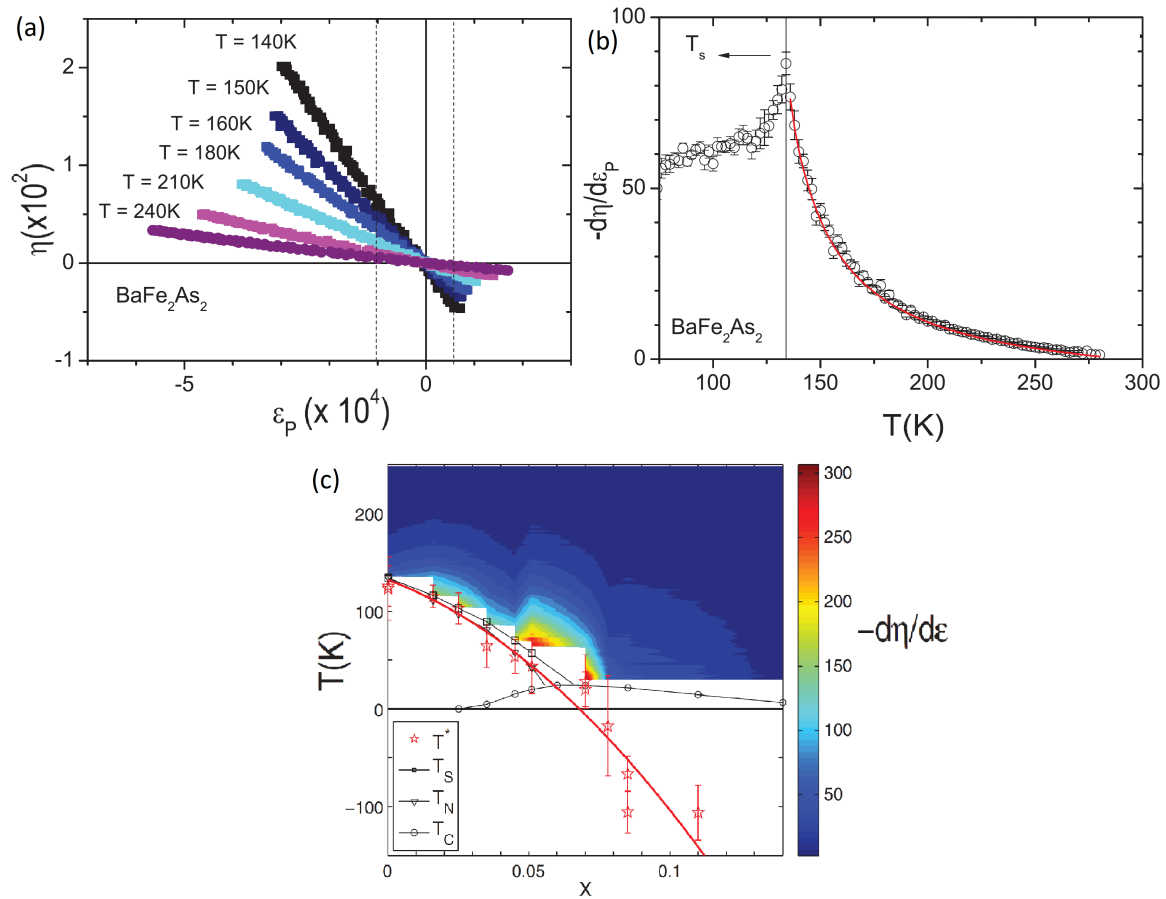


FIGURE 2.10 – Expériences d'élastorésistivité sur Co-Ba122. (a) et (b) La dérivée de la résistivité selon la déformation atteint un maximum à T_s . (c) Dépendance en dopage et en température de la susceptibilité nématique mesurée par élastorésistivité. T^* est la température de transition nématique (que j'ai appelée T_0 dans le texte). (Figure issue de [54].)

2.2.3.5 Autres techniques expérimentales

L'étude de l'effet élastocalorique permet d'analyser les transitions de phase, notamment la transition nématique [111]. Ceci a été appliqué sur Co-Ba122 [113] pour obtenir une susceptibilité nématique. Comme attendu, elle a un comportement divergent quand T diminue vers T_s . Également, à partir de leurs résultats, les auteurices de la référence [113] affirment que le paramètre de couplage élasto-nématique λ diminue fortement avec le dopage, d'un facteur 5 entre $x = 0$ et le dopage optimal. Je discute ce résultat en section 5.3.3 (chapitre 5).

Une susceptibilité nématique de Ba122 a également été extraite d'expériences de RMN [132], en bon accord avec la susceptibilité nématique d'élastorésistivité.

2.2.4 Point critique quantique nématique et supraconductivité

Dans le diagramme de phase température–dopage, la ligne de transition structurale $T_s(x)$ se termine théoriquement sur l'axe des abscisses en un point à x_c , qui constitue un point critique quantique nématique (en anglais *nematic quantum critical point*, NQCP)²²; les fluc-

22. De même que le couplage nématélastique induit une température de transition structurale T_s supérieure à la température de transition nématique T_0 , forçant la transition nématique à T_s en y arrêtant l'augmentation des fluctuations nématiques, ce couplage déplace le NQCP théorique qui est l'aboutissement de la ligne de T_0 en un NQCP réel sur la ligne de T_s [206].

tuations critiques quantiques peuvent cependant être limitées par des mécanismes divers. En regardant le diagramme de phase de Co-Ba122 (figure 2.3), il apparaît qu'un tel NQCP, s'il existe, est situé sous le dôme supraconducteur. Ceci limite la possibilité de le sonder expérimentalement : par exemple les mesures de résistivité pour déterminer T_s ne sont plus possibles dans l'état supraconducteur. Plus fondamentalement, l'interaction entre la supraconductivité et la nématicité déforme la ligne $T_s(x)$ sous le dôme supraconducteur [195], créant un point critique quantique effectif différent du NQCP nu. Un moyen de contourner ce problème est d'effectuer des mesures sous champ magnétique intense pour détruire l'ordre supraconducteur, ce qui a permis d'estimer $x_c \approx 0,067 \pm 0,002$ [205].

De même, la présence d'un point critique quantique magnétique à l'extrémité de la ligne de transition magnétique est supposée [1, 230]. Il est délicat de déterminer les rôles respectifs de ces deux points quantiques dans les propriétés du matériau²³, ce qui est cependant un enjeu essentiel pour leur compréhension. En ce sens, l'intérêt de l'application d'une contrainte sur les FeSC est que ce paramètre externe joue directement sur la nématicité, sans effet sur le magnétisme si ces deux phénomènes sont découplés, et avec un effet seulement indirect en cas de couplage.

Dans le voisinage du NQCP, il est attendu que la susceptibilité nématique suive une loi de puissance en fonction à la fois du dopage et de la température. Cette prédiction importante pour vérifier la présence d'une criticalité quantique a été vérifiée dans Co-Ba122 par élastorésistivité [205] en ce qui concerne la dépendance en dopage, mais avec ces résultats la dépendance en température n'est pas descriptible avec une loi de puissance. Toujours dans Co-Ba122, Worasaran et collaborateurs [269] ont montré la dépendance de T_s avec la déformation selon une loi de puissance pour les deux composantes symétrique et antisymétrique de la déformation. Ceci établit la criticalité dans une région conséquente du diagramme de phase au-dessus du dôme supraconducteur, du côté sous-dopé entre 4,5 et 6 %.

Le questionnement principal soulevé par la présence d'un NQCP est son influence sur la supraconductivité. Dans les FeSC, le mécanisme d'appariement n'est pas l'interaction électron-phonon comme dans les supraconducteurs conventionnels ; il est probable qu'il implique les fluctuations des degrés de liberté électroniques, par exemple magnétiques ou nématiques [56, 72, 223, 271]. Des travaux théoriques récents [148] pointent des expériences sous contrainte uniaxiale comme un test de la supraconductivité médiée par la nématicité.

Théoriquement, la présence d'un NQCP proche de la phase supraconductrice peut conduire à une augmentation de T_c [149] (figure 2.11 (a)). Cependant, dans le cas d'un mécanisme d'appariement non nématique, un fort couplage némato-élastique λ peut empêcher cette augmentation de T_c [142] (figure 2.11 (b)). Ceci a été notamment prédit et vérifié expérimentalement pour le FeSC $FeSe_{1-x}S_x$ [48], dans lequel T_c varie très peu en dopage, et n'augmente pas significativement au NQCP. Dans Co-Ba122, cette question reste ouverte, étant donné que T_c atteint son maximum dans le voisinage du NQCP²⁴.

La présence d'un NQCP modifie également le spectre Raman des FeSC dans l'état supraconducteur en induisant un mode de résonance nématique : je présente cet effet en section 3.4.2 (chapitre 3).

2.2.5 Contrôle des propriétés nématiques, magnétiques et supraconductrices par une contrainte uniaxiale

Précédemment en section 2.2.3, j'ai décrit des expériences, notamment l'élastorésistivité, dans lesquelles un échantillon est soumis à une contrainte uniaxiale. Pour décrire de telles ex-

23. $FeSe_{1-x}S_x$ présentent une transition structurale mais pas de transition magnétique, ce qui, malgré sa T_c relativement basse d'environ 9 K, en fait un composé adéquat pour étudier ce problème.

24. Dans Co-Ba122 et d'autres FeSC par rapport à $FeSe_{1-x}S_x$, un ordre magnétique existe, dont le point critique quantique associé peut également influencer l'ordre supraconducteur.

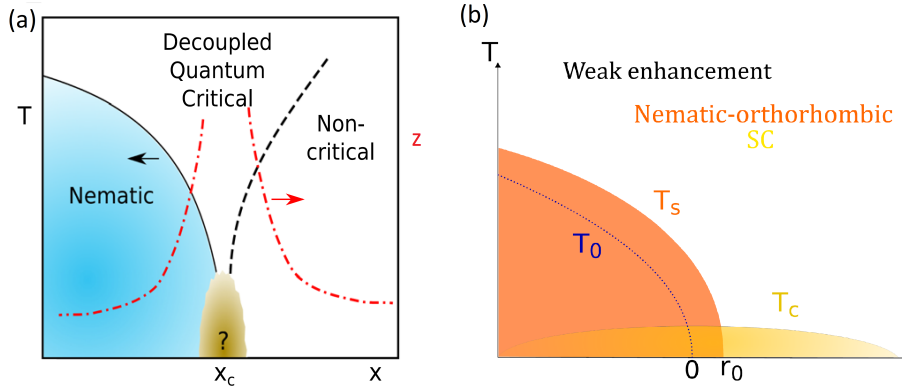


FIGURE 2.11 – Diagrammes de phase théoriques température–dopage. (a) La présence d’un régime de criticalité dans le voisinage de l’ordre supraconducteur (dôme blanc-jaune) induit une forte augmentation de T_c , que la référence [149] lie à la divergence d’un paramètre z (ligne rouge, axe de droite). (b) Cette augmentation de T_c est fortement affaiblie si le couplage némato-élastique λ est trop intense : le dôme supraconducteur s’étale. (Figures issues de [142, 149].)

périences, il est nécessaire d’ajouter un terme $-\sigma\epsilon$ à l’expression de l’énergie libre décrivant la transition spontanée en équation (2.1). Via ce terme, la contrainte crée une déformation qui, via le terme de couplage némato-élastique $-\lambda\epsilon\phi$, se couple au paramètre d’ordre nématique. Ces expériences permettent donc indirectement de mesurer des fonctions réponses des propriétés électroniques nématiques par rapport à la déformation. Les fonctions réponses étant définies dans la limite des petites perturbations, la contrainte exercée et la déformation créée doivent être relativement faibles. Dans cette section, je présente des résultats d’expériences où une contrainte relativement élevée est également exercée, ce qui modifie potentiellement fortement les propriétés du système, notamment ses températures de transition de phase.

Il est important de préciser les symétries des déformations, desquelles dépendent leurs effets dans un matériau subissant une transition némato-structurale tétragonale-orthorhombique [112]. Je considère d’abord les déformations purement uniaxiales, aussi appelées antisymétriques. Lorsque la déformation de l’échantillon est parallèle à la direction de distortion orthorhombique [110], elle est notée $\epsilon_{B_{2g}}$. En effet, comme indiqué dans l’équation (2.1), cette déformation est le paramètre d’ordre élastique de la transition structurale, qui est de symétrie B_{2g} . Une contrainte externe qui crée une déformation $\epsilon_{B_{2g}}$ induit ainsi un paramètre d’ordre élastique non nul, à toute température et notamment au-delà de $T_{s,0}$, que je définis comme la T_s en l’absence de toute déformation. On peut considérer l’analogie avec un matériau présentant une transition paramagnétique–ferromagnétique à T_N : lorsque ce matériau est refroidi sous champ magnétique, la transition ferromagnétique s’élargit et les spins ont une orientation moyenne non nulle pour toute température. De même, la transition némato-structurale sous déformation $\epsilon_{B_{2g}}$ est élargie, et T_s n’est plus proprement définie. À l’inverse, une déformation antisymétrique transverse $\epsilon_{B_{1g}}$, selon la direction [100], ou de façon équivalente selon [010], n’induit pas la transition structurale naturelle de l’échantillon [173] : la transition nématique est donc toujours permise, et T_s est bien définie. Également, on s’attend à ce que les phases magnétiques et supraconductrices soient influencées par $\epsilon_{B_{1g}}$ et $\epsilon_{B_{2g}}$.

Dans la pratique, les déformations induites sont générées par l’application d’une contrainte. Même si la contrainte est uniaxiale, la déformation ne l’est pas, et se présente comme la composition d’une déformation antisymétrique $\epsilon_{B_{1g}}$ (contrainte selon [100]) ou $\epsilon_{B_{2g}}$ (contrainte selon [110]) et d’une déformation symétrique $\epsilon_{A_{1g}}$. Je détaille au chapitre 4 le formalisme permettant de décrire la déformation totale en fonction de la contrainte : je donne

ici uniquement les résultats concernant Co-Ba122. Comme $\epsilon_{A_{1g}}$ est également la déformation induite sous pression isotrope (ou pression hydrostatique), il est possible d'estimer les fractions relatives de $\epsilon_{B_{1g}/B_{2g}}$ et $\epsilon_{A_{1g}}$ en comparant les expériences sous contrainte isotrope et sous contrainte uniaxiale.

Ikeda et collaborateurs [112] obtiennent la dépendance en déformation induite par contrainte uniaxiale selon [100] de T_s et T_N dans un échantillon sous-dopé ($x = 2,5\%$). Elle est quantitativement similaire pour les deux températures de transition. La comparaison avec des expériences sous pression hydrostatique leur permet de séparer les contributions de $\epsilon_{A_{1g}}$ et $\epsilon_{B_{1g}}$ dans l'évolution de T_s . La réponse symétrique de $T_s(\epsilon_{B_{1g}})$ est relativement faible, avec une décroissance de 1,5 % pour $\epsilon_{B_{1g}} = \pm 0,5\%$.

L'influence d'une compression uniaxiale sur T_s et T_N est étudiée grâce à la diffraction de neutrons [62, 63]. La compression selon [100] (déformations A_{1g} et B_{1g}) n'influe pas significativement sur T_N et T_s dans Ba122, contrairement aux résultats de la référence [112], plus récente. La compression selon [110] (déformations A_{1g} et B_{2g}) fait en revanche significativement augmenter les deux températures dans le composé pur et dans plusieurs dopages en Co²⁵. Dans des travaux plus récents sur Ba122 [247], une contrainte selon [110] (déformations A_{1g} et B_{2g}) induit une augmentation de T_N , avec un taux de croissance de 0,25 K/MPa. Pour discuter ce taux, il faut remarquer que, contrairement par exemple aux expériences de transport de la référence [112], ces expériences de diffraction de neutrons sont effectuées sous contrainte contrôlée et non sous déformation contrôlée. Je précise au chapitre 4 le lien entre contrainte et déformation, mais j'indique dès ici que le coefficient élastique C agit comme facteur de proportionnalité entre les deux, dans la symétrie B_{2g} . Or, comme il est fortement ramolli à T_s , il suffit d'une faible contrainte pour induire de fortes déformations. Ceci indiquerait que les échantillons dans la référence [247] sont soumis à une forte déformation pour des contraintes relativement faibles, d'où la forte augmentation de T_N sous contrainte.

Kissikov et collaborateurs [133] étudient par une expérience de RMN l'évolution du spectre de fluctuations de spin sous contrainte uniaxiale selon [110] (déformations A_{1g} et B_{2g}). Leurs résultats montrent la présence d'une structure de spin interne dans le paramètre d'ordre nématique, ce qui ouvre la possibilité du contrôle magnéto-mécanique dans les matériaux nématiques. Une contrainte uniaxiale selon [110] induit sur le spectre de réflectivité une anisotropie entre les axes orthorhombiques croissant avec la contrainte [187]. L'anisotropie du poids spectral des quasiparticules étudiée en ARPES augmente sous contrainte selon [110] [208].

L'influence d'une contrainte selon [110] sur la phase supraconductrice a été étudiée en transport par Malinowski et collaborateurs [175]. T_c diminue drastiquement sous déformation, avec une réduction d'un facteur 5 pour un échantillon optimalement dopé (figure 2.12 graphique gauche) et une suppression complète pour un échantillon sous-dopé sous une déformation de moins de 1 %. Une telle sensibilité à la déformation ne se retrouve dans aucun autre supraconducteur, excepté Sr_2RuO_4 . Une transition de phase quantique supraconducteur-métal apparaît, réglée par la déformation. La figure 2.12 (graphique droit) présente un diagramme de phase température-dopage-déformation illustrant le dôme supraconducteur tridimensionnel. On s'attend à ce que la contrainte selon [110] atténue les fluctuations nématiques ; ces résultats indiqueraient donc le rôle important des fluctuations nématiques pour la supraconductivité de ce matériau.

25. T_s n'est théoriquement plus proprement définie sous $\epsilon_{B_{2g}}$ non nulle, mais les auteures des références [62, 63] définissent une température de *crossover* de la distortion orthorhombique, qui apparaît nettement dans leurs résultats.

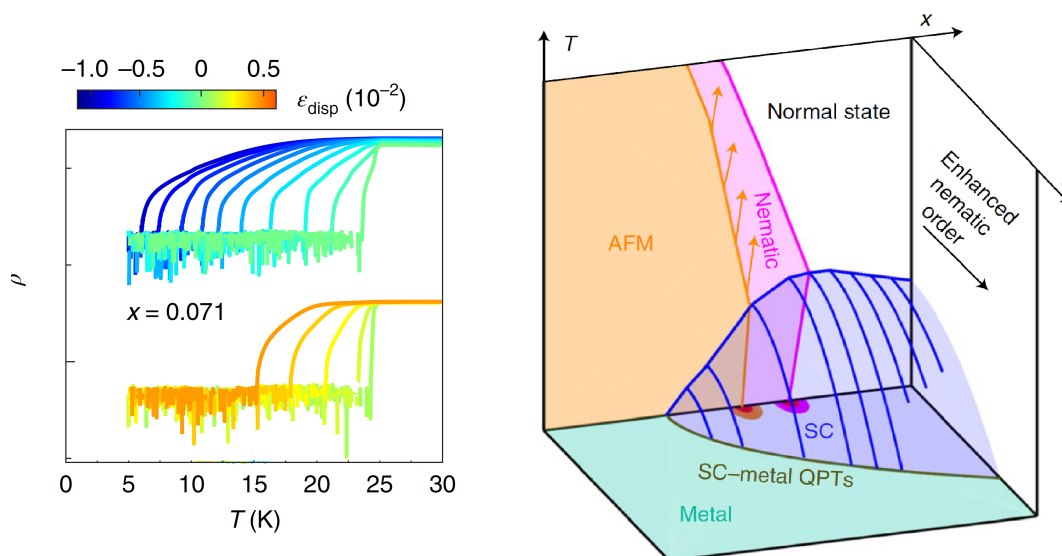


FIGURE 2.12 – (Gauche) Forte diminution de T_c mesurée par transport sous déformation uniaxiale B_{2g} pour un échantillon de Co-Ba122 proche du dopage x optimal. (Droite) Diagramme de phase température–dopage–déformation B_{2g} de Co-Ba122. Les flèches orange illustrent le renforcement de l’ordre antiferromagnétique quand la déformation $\epsilon_{B_{2g}}$ augmente (augmentation de T_N). La ligne verte indique les transitions de phase quantique supraconducteur–métal réglées par la déformation. (Figure adaptée de [175].)

2.3 Enjeux de la spectroscopie Raman sous contrainte uniaxiale dans les supraconducteurs nématiques

L’étude des FeSC constitue un domaine de recherche très actif depuis leur découverte à la fin des années 2000. Ils présentent un diagramme de phase complexe, et c’est notamment la présence d’un ordre nématique qui intrigue, avec ses potentiels couplages avec les autres phénomènes (magnétisme, supraconductivité, criticalité...). Plusieurs expériences utilisant des techniques complémentaires (élastorésistivité, ultrasons, spectroscopie Raman...) ont permis de certifier la pertinence de l’interprétation nématique de la transition structurale dans les FeSC. Malgré les nombreuses avancées dans la compréhension de ces matériaux, certains défis demeurent ; j’en ai abordé certains durant mes travaux de thèse.

Un premier enjeu est la détermination et la mesure du paramètre d’ordre nématique. En effet, les diverses études expérimentales ont majoritairement porté sur la mesure de la susceptibilité nématique : celle-ci permet de quantifier les fluctuations nématiques, notamment pour $T > T_s$. Le paramètre d’ordre nématique ϕ de symétrie C_2 , introduit dans l’équation (2.1) indique la survenue de l’ordre nématique. Il ne prend une valeur non nulle que pour $T < T_s$, et pour une transition de phase du second ordre et en l’absence d’autres transitions, il augmente continûment de T_s jusqu’à la température nulle. L’origine microscopique de ce paramètre d’ordre est toujours en question, mais même en ne la connaissant pas, on peut chercher expérimentalement à accéder à des paramètres d’ordre intermédiaires, soit des quantités qui lui sont proportionnelles.

Cependant, identifier une telle quantité n’est pas immédiat. La distortion orthorhombique δ correspond à un paramètre d’ordre structural, ou élastique, qui correspond formellement à la déformation ϵ introduite dans le développement de Landau (équation (2.1)) : elle ne peut donc pas correspondre théoriquement au paramètre d’ordre nématique électronique. L’anisotropie η de résistivité entre les deux axes orthorhombiques est parfois écrite comme

proportionnelle à ϕ : $\eta = k\phi$ [54, 221]. Cependant, elle a dans plusieurs FeSC un comportement en température ne correspondant pas à celui d'un paramètre d'ordre (par exemple dans $Ba_{1-x}K_xFe_2As_2$ [24] ou dans FeSe [15, 250]), ce qui peut être autrement décrit comme une dépendance en température de k . Dans la dispersion électronique, la séparation énergétique entre bandes issues d'orbitales perdant leur dégénérescence dans la phase nématique (par exemple d_{xz} et d_{yz}), telle que mesurée par ARPES, a en revanche un bon comportement de type paramètre d'ordre (plutôt clair pour FeSe [194], plus bruité pour Co-Ba122 [273]). Cependant, il n'est pas évident avec cette technique de distinguer la séparation énergétique due à la nématicité de celle due à l'ordre SDW, voire de celle due au couplage spin-orbite qui induit lui-même une levée de dégénérescence [209]. Un autre exemple d'intermédiaire possible de ϕ est la distortion induite par champ magnétique [98], qui suit un bon comportement de paramètre d'ordre dans Ba122 (mais moins dans FeSe) : cet exemple pose cependant la question non résolue du lien entre nématicité et magnétisme.

Une fois qu'un intermédiaire valable pour le paramètre d'ordre nématique a été identifié, un enjeu subsidiaire est de mesurer sa dépendance en déformation. En effet, comme le montre l'équation (2.1), le couplage bilinéaire entre ϵ et ϕ suppose une modification de ϕ quand ϵ est modifiée à température fixe. Plus encore, l'activation de ϵ par une contrainte externe σ pour $T > T_s$ implique une activation de ϕ , d'autant plus forte que la susceptibilité nématique est grande.

En spectroscopie Raman dans Co-Ba122, plusieurs modes de phonon ont un comportement particulier au passage de T_s : apparition du phonon de l'arsenic [45], dédoublement du phonon E_g [46]. Ces modes de phonon peuvent être utilisés comme des intermédiaires du paramètre d'ordre²⁶ : durant mes travaux, j'ai plus précisément suivi l'apparition du phonon de l'arsenic comme intermédiaire de ϕ . De plus, durant ma thèse, j'ai mis en place un dispositif expérimental couplant spectroscopie Raman et contrainte uniaxiale : ce dispositif de spectroscopie élasto-Raman m'a permis de suivre la dépendance de ce paramètre d'ordre nématique phononique avec la déformation.

Également, j'ai montré dans ce chapitre que la spectroscopie Raman électronique permet d'accéder à la susceptibilité nématique χ . Si le comportement en température de χ est maintenant bien établi avec plusieurs techniques expérimentales, l'utilisation du dispositif de spectroscopie élasto-Raman m'a permis d'accéder à sa dépendance en déformation. Cette nouvelle possibilité de mesure expérimentale trouve un intérêt tout particulier pour mesurer la susceptibilité nématique et sa dépendance en déformation dans l'état supraconducteur, avec un avantage de la spectroscopie Raman sur les expériences de transport qui sont aveugles dans la phase supraconductrice.

J'explique au chapitre 4 le principe de fonctionnement et la mise en place expérimentale du dispositif de spectroscopie élasto-Raman, et présente ensuite mes résultats sur Co-Ba122 au chapitre 5. Avant cela, je détaille au chapitre suivant les principes de la diffusion Raman.

26. Même si un phonon est un mode d'excitation lié au réseau cristallin, il n'est visible sur les spectres Raman qu'indirectement, via le couplage avec les électrons, ce qui en fait donc bien un bon intermédiaire du paramètre d'ordre nématique électronique.

Chapitre 3

Spectroscopie de diffusion Raman : principes théoriques et réalisation expérimentale

Les cœurs, l'un par l'autre attirés,
Se communiquent leur substance ;
Tels deux miroirs ardents, l'un à l'autre opposés
Concentrent la lumière, et se la réfléchissent :
Les rayons tour-à-tour recueillis, divisés,
En se multipliant s'accroissent, s'embellissent ;
Et d'autant plus actifs, qu'ils se sont plus croisés,
Au même point se réunissent.
Quel spectacle je vois ! sur un lit verdoyant,
Enrichi de l'émail de mainte fleur naissante...

Barnabé Farmian Durosoy,
Les Sens, poème en six chants (1766),
extrait cité dans : Stanley Kubrick, *Barry Lyndon* (1975)

Les résultats expérimentaux que je présente dans cette thèse ont été obtenus sur deux matériaux très différents, comme l'ont montré les chapitres 1 et 2, mais ont en commun la technique expérimentale qui les a révélés, la spectroscopie de diffusion inélastique de la lumière, plus connue sous le nom d'un des découvreurs de ce mécanisme physique, le physicien indien **Chandrashekhara Venkata Raman** (1888–1970)¹.

Tout matériau solide, liquide ou gazeux, qui reçoit une onde électromagnétique, comme la lumière, en diffuse une partie vers l'extérieur. La diffusion se fait dans toutes les directions autour du matériau irradié : c'est ce qui le rend visible à un observateur externe, dont une partie du rayonnement diffusé frappe l'œil. Une autre partie du rayonnement incident est réfléchi par le matériau dans une direction particulière, obéissant aux lois de Snell–Descartes. Cette réflexion dite spéculaire est particulièrement intense pour les cristaux métalliques. Dans la suite, je ne m'intéresse absolument pas à la lumière réfléchi, qui est à la base d'autres techniques expérimentales.

1. Historiquement, même si le **prix Nobel de Physique de 1930** n'a récompensé que Raman, « pour son travail sur la diffusion de la lumière et la découverte de l'effet qui porte son nom », d'autres physiciens sont à l'origine de cette découverte. Parmi eux, on peut citer **Adolf Smekal**, qui l'a prédit théoriquement en 1923, **Kariamanikkam Srinivasa Krishnan**, collaborateur de Raman, **Leonid Mandelstam** et **Grigory Landsberg**, qui ont mis en évidence expérimentalement cet effet au même moment que Raman et Krishnan et de façon indépendante, et sans doute un grand nombre d'autres, resté-e-s anonymes.

La très grande majorité du rayonnement diffusé est à la même énergie que le rayonnement incident : l'énergie donnée au matériau par la lumière lui est rendue. On parle dans ce cas de diffusion élastique, ou diffusion Rayleigh². Une infime partie de la lumière incidente, de l'ordre de 1 pour 10^6 , est diffusée à une énergie différente de l'énergie incidente : cette diffusion inélastique est à la base de la spectroscopie Raman. Ce processus inélastique implique que la lumière a globalement transmis de l'énergie au matériau, si l'énergie du photon incident est inférieure à celle du photon diffusé, ou qu'elle en a reçu dans le cas contraire : la lumière a créé ou détruit des états d'excitation du matériau. L'analyse de la lumière diffusée en connaissant la lumière incidente permet d'acquérir de l'information sur les états d'excitation du matériau. Pour bien la distinguer de la diffusion Rayleigh, la mise en évidence de la diffusion Raman nécessite l'utilisation de sources lumineuses monochromatiques intenses, comme des lasers. La figure 3.1 illustre les processus de diffusion et de réflexion sur un échantillon de matière solide.

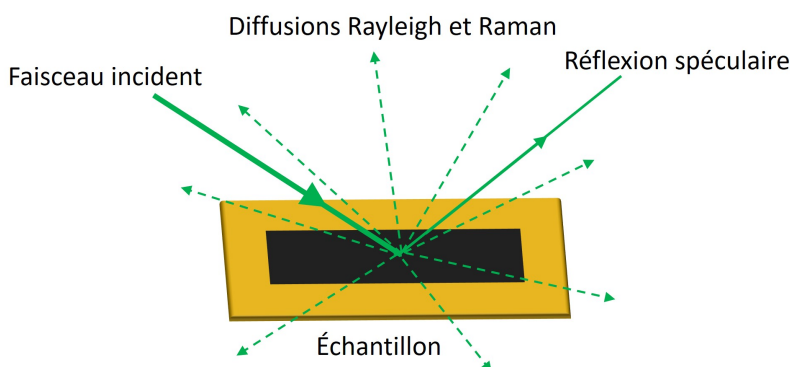


FIGURE 3.1 – Schéma des processus de diffusion et de réflexion sur un échantillon solide.

Dans ce chapitre, je présente les principes théoriques de la spectroscopie Raman et sa réalisation expérimentale. J'ai choisi de ne pas m'attarder sur les expressions et calculs fondamentaux, déjà amplement traités dans diverses sources³, en présentant directement les principaux résultats. Plutôt, j'explique de façon détaillée le comportement théorique de la diffusion Raman pour les états et phénomènes physiques des matériaux étudiés dans cette thèse : métal, liquide de Fermi, supraconducteur, nématicité.

Sommaire

3.1 Principes de la spectroscopie Raman	53
3.1.1 Description qualitative de la diffusion Raman	53
3.1.2 Expression de la réponse Raman	54
3.1.2.1 Intensité Raman et probabilité de transition	54
3.1.2.2 Hamiltonien perturbatif	55
3.1.2.3 Opérateur densité électronique effective	56
3.1.2.4 Réponses Raman expérimentale et théorique	56
3.1.2.5 Vertex Raman	57
3.1.2.6 Expression analytique des vertex	59

2. Du nom du physicien anglais [John W. S. Rayleigh](#) (1842–1919).

3. Parmi les sources disponibles, je me suis référé en particulier au livre de Hayes et Loudon [97] et aux différentes thèses de l'équipe SQUAP du laboratoire Matériaux et Phénomènes Quantiques, notamment celles de Yann Gallais [81], Ludivine Chauvière [47], Pierre Massat [179], Nicolas Auvray [10] et Soumaya Chibani [49].

3.2 Réponse Raman électronique dans les métaux	61
3.2.1 Gaz d'électrons libres	61
3.2.2 Modèle de Drude	61
3.2.3 Modèle de Drude étendu : cas d'un liquide de Fermi	62
3.2.3.1 Formalisme de la fonction mémoire	62
3.2.3.2 Utilisation de la fonction mémoire en spectroscopie Raman	65
3.2.3.3 Forme de la réponse Raman d'un liquide de Fermi	67
3.3 Réponse Raman électronique près d'une instabilité nématique de charge	68
3.3.1 Signature Raman de l'instabilité nématique de charge	69
3.3.2 Effet du couplage avec le réseau	70
3.3.3 Observation Raman de la susceptibilité nématique dans $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$	72
3.4 Diffusion Raman dans l'état supraconducteur	72
3.4.1 Processus de diffusion Raman dans l'état supraconducteur	73
3.4.2 Influence d'une instabilité nématique sur l'état supraconducteur	75
3.4.3 Observation du mode de résonance nématique dans la réponse Raman supraconductrice des supraconducteurs à base de fer	76
3.5 Diffusion Raman phononique	76
3.5.1 Processus d'activation Raman des phonons	76
3.5.2 Règles de sélection	78
3.5.3 Formes de raie des modes de phonons	78
3.6 Réalisation expérimentale	79
3.6.1 Chemin optique	79
3.6.2 Spectromètre	81
3.6.2.1 Réjection de la raie élastique	81
3.6.2.2 Paramètres importants du spectromètre	82
3.6.3 État de surface des échantillons	84
3.6.4 Cryogénie	84
3.6.5 Traitement des données expérimentales	85
3.6.5.1 Élimination des artefacts de la CCD	85
3.6.5.2 Pulsations de coupure et raccordement de plages	86
3.6.5.3 Facteur de Bose et coefficient de réponse du spectromètre	86

3.1 Principes de la spectroscopie Raman

3.1.1 Description qualitative de la diffusion Raman

Les photons incidents et diffusés sont caractérisés par leur énergie ω ⁴ et leur vecteur d'onde \mathbf{k} . Je note respectivement (ω_i, \mathbf{k}_i) et (ω_s, \mathbf{k}_s) , pour le photon incident et le photon diffusé (*scattered* en anglais). Par conservation d'énergie et de moment du système total (matériau et photons), l'énergie ω et le moment \mathbf{q} transférés au matériau s'expriment comme $\omega = \omega_i - \omega_s$ et $\mathbf{q} = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_s$. Pour $\omega < 0$, une excitation d'énergie ω a été détruite dans le matériau; inversement pour $\omega > 0$, une telle excitation a été créée. On parle dans le premier cas de processus anti-Stokes, dans le second de processus Stokes. L'intensité Raman correspondant aux processus anti-Stokes est beaucoup plus faible que celle des processus Stokes, surtout à basse température. Intuitivement, pour pouvoir détruire une excitation, il faut qu'elle soit déjà présente dans le système : ce processus est donc moins probable qu'un

4. Formellement, ω est la pulsation d'un photon d'énergie $\hbar\omega$, mais j'utilise l'abus de langage de désigner ω comme l'énergie du photon. Cela revient à prendre $\hbar = 1$ dans les équations.

processus de création. Dans ma thèse, je me suis intéressé exclusivement à des processus Stokes : je considère donc toujours $\omega > 0$. Si $\omega = 0$, la diffusion est élastique, c'est un processus Rayleigh et non Raman⁵.

Une caractéristique importante de la spectroscopie Raman est la limitation du moment transféré q . Pour la lumière visible, le module du vecteur d'onde du photon $k = 2\pi/\lambda$ vaut environ 10^7 rad.m^{-1} . C'est une valeur très faible par rapport à l'extension de la zone de Brillouin. Par exemple, pour un cristal tétragonal, la taille de la zone de Brillouin planaire est $2\pi/a$, avec a le paramètre de maille dans le plan, soit de l'ordre de $10^9\text{--}10^{11} \text{ rad.m}^{-1}$ pour $a \sim 1\text{--}10 \text{ \AA}$. La première conséquence importante de ce faible q par rapport à la taille de la zone de Brillouin est que chaque excitation électronique est sondée dans une région ponctuelle de la zone de Brillouin. Également, cela permet d'effectuer plusieurs approximations dans le traitement mathématique de la réponse Raman. On parle souvent d'approximation « $q = 0$ », en considérant que le moment transmis par le photon est nul. Dans la suite, sauf indication contraire, je me place dans cette approximation.

Un spectre Raman se présente comme une intensité I en fonction de l'énergie transmise ω , aussi appelée « déplacement Raman ». L'intensité à une énergie donnée est d'autant plus importante qu'une excitation a été créée dans le matériau à cette énergie. La figure 3.2 donne un exemple schématique de spectre de diffusion Raman.

Les excitations sondées par spectroscopie Raman sont diverses. Le processus le plus direct correspond à la création d'une paire électron-trou autour du niveau de Fermi, avec une différence d'énergie ω entre l'électron et le trou. Ces processus sont souvent permis sur un continuum d'énergie, avec des variations d'intensité dues aux particularités de la structure de bande. Leur contribution au spectre Raman se présente donc comme un fond continu, appelé continuum électronique.

Des excitations non électroniques, comme les modes collectifs de vibration du réseau cristallin (phonons), sont également visibles sur les spectres. Du fait de l'écart énergétique important entre le photon incident et les phonons, l'activation d'un phonon par interaction directe avec la lumière est très peu probable⁶. Par contre, elle est davantage permise indirectement via des excitations électroniques et le couplage électron-phonon. Comme les niveaux d'énergie des phonons sont discrets, les contributions phononiques se manifestent par des pics intenses à énergie précise.

3.1.2 Expression de la réponse Raman

3.1.2.1 Intensité Raman et probabilité de transition

L'intensité Raman mesurée $I(\omega)$ est proportionnelle à la section efficace différentielle $\frac{d^2\sigma}{d\omega d\Omega}$. Cette section efficace différentielle représente la probabilité qu'un photon incident soit diffusé inélastiquement dans un angle solide $d\Omega$, avec une énergie comprise entre ω et $\omega + d\omega$. Microscopiquement, cette quantité est liée à la probabilité de transition Γ des photons initiaux incidents vers des états finaux diffusés différant de ω en énergie. Une telle probabilité peut être reliée à l'hamiltonien décrivant le système via la règle d'or de Fermi.

5. Dans la pratique, de par sa très grande intensité par rapport au signal Raman et un élargissement thermique, le pic de diffusion Rayleigh s'élargit d'une fonction δ de Dirac vers une fonction lorentzienne centrée en $\omega = 0$, masquant la réponse Raman à faible énergie. Ceci explique l'utilisation de techniques présentées dans la section 3.6 pour expulser la raie élastique et obtenir le signal Raman aux énergies les plus faibles.

6. Il faut comparer l'énergie du photon incident, environ 2–3 eV, aux énergies des phonons. Par exemple, pour Sr_2RuO_4 , le phonon optique le plus énergétique est à 70 meV. En spectroscopie infrarouge, l'énergie du rayonnement est plus faible (de l'ordre de la centaine de meV), ce qui permet l'activation directe des modes de phonon par le faisceau.

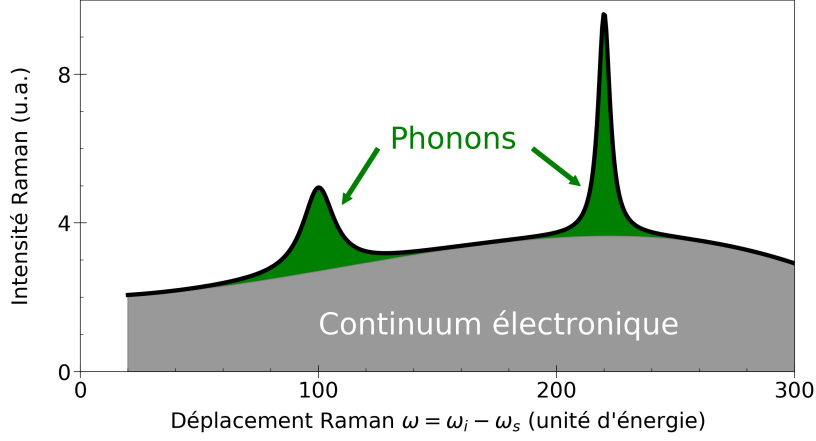


FIGURE 3.2 – Spectre Raman schématique présentant des modes de phonons étroits (vert) superposés à un continuum électronique (gris). Sous un certain déplacement Raman (ici 20 unités d'énergie), le spectre Raman est contaminé par la diffusion Rayleigh et n'est donc pas accessible.

$$\Gamma_{I,F} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle F | H' | I \rangle|^2 \delta(E_F - E_I) \quad (3.1)$$

$\Gamma_{I,F}$ est la probabilité par unité de temps pour que le système passe d'un état initial $|I\rangle$ vers un état final $|F\rangle$. H' est la partie perturbative de l'hamiltonien total du système, c'est-à-dire les composantes décrivant l'interaction lumière-matière, et δ est la fonction δ de Dirac. Pour avoir le taux de transition Γ , il faut sommer $\Gamma_{I,F}$ sur tous les états finaux possibles, et prendre la moyenne thermodynamique sur l'ensemble des états initiaux.

3.1.2.2 Hamiltonien perturbatif

L'hamiltonien d'interaction électron-photon H' est essentiellement issu du remplacement, dans l'hamiltonien du système électronique, de l'opérateur impulsion \mathbf{p} par l'opérateur $\mathbf{p} - e\mathbf{A}(\mathbf{r})$. e est la charge élémentaire, \mathbf{A} est le potentiel vecteur du champ électromagnétique, dépendant de la position \mathbf{r} de l'électron. Ce remplacement se fait dans la jauge de Coulomb, dans laquelle les opérateurs \mathbf{p} et $\mathbf{A}(\mathbf{r})$ commutent. Le terme cinétique de l'hamiltonien électronique devient donc :

$$\frac{(\mathbf{p} - e\mathbf{A}(\mathbf{r}))^2}{2m} = \frac{\mathbf{p}^2}{2m} + \frac{e^2}{2m} \mathbf{A}^2(\mathbf{r}) - \frac{e}{m} \mathbf{p} \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}) \quad (3.2)$$

Soit :

$$H' = \frac{e^2}{2m} \mathbf{A}^2(\mathbf{r}) - \frac{e}{m} \mathbf{p} \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}) \quad (3.3)$$

L'hamiltonien perturbatif comporte donc deux termes d'interaction : un terme en A^2 , l'autre en A , notés respectivement H_A et H_{AA} . Pour le calcul des éléments de matrice $\langle F | H' | I \rangle$ dans l'expression des taux de transition, on effectue un développement perturbatif en $H_A + H_{AA}$. Comme la diffusion Raman est un processus à deux photons, au plus petit ordre en perturbation il faut considérer H_{AA} au premier ordre, et H_A au deuxième ordre. La figure 3.3 illustre les processus de création d'une paire électron-trou correspondant à H_{AA} au premier ordre et H_A au deuxième ordre.

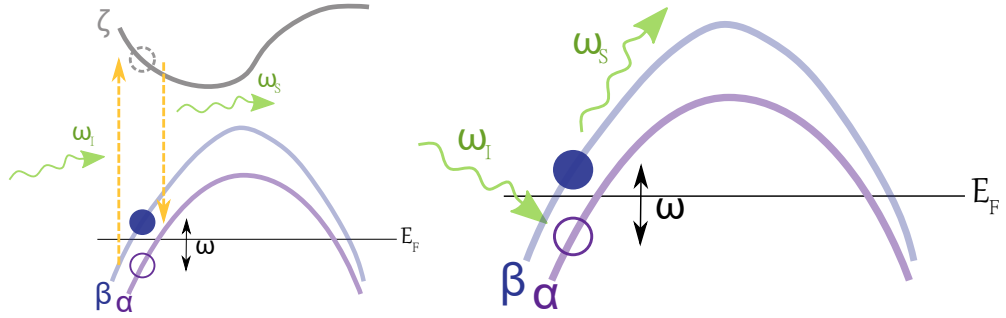


FIGURE 3.3 – Schéma des processus Raman de création d’une paire électron–trou autour du niveau de Fermi sur deux bandes α et β (identiques ou différentes) correspondant au deuxième ordre de H_A via un état intermédiaire sur la bande ζ (gauche) et au premier ordre de H_{AA} (droite). (Figure issue de [10].)

3.1.2.3 Opérateur densité électronique effective

Dans la suite, on se place en formalisme de seconde quantification. Le calcul de Γ permet d’exprimer la section efficace différentielle Raman comme :

$$\frac{d^2\sigma}{d\omega d\Omega} \propto \frac{\omega_s}{\omega_i} \int dt e^{i\omega t} \langle \tilde{\rho}(t) \tilde{\rho}(0) \rangle \quad (3.4)$$

Les chevrons indiquent la moyenne thermodynamique. $\tilde{\rho}$ est l’opérateur densité électronique effective. Cet opérateur s’exprime comme l’opérateur densité habituel, avec l’ajout d’un poids γ appelé vertex Raman, qui inclut l’interaction électron–photon, et qui dépend des polarisations incidentes et diffusées \mathbf{e}_i et \mathbf{e}_s ⁷ et du vecteur d’onde \mathbf{k} .

$$\tilde{\rho} = \sum_{\mathbf{k}} \gamma_{\mathbf{k}}(\mathbf{e}_i, \mathbf{e}_s) c_{\mathbf{k}}^\dagger c_{\mathbf{k}} \quad (3.5)$$

$c_{\mathbf{k}}^\dagger$ et $c_{\mathbf{k}}$ sont les opérateurs fermioniques classiques de création et de destruction d’un électron de vecteur d’onde \mathbf{k} . Je reviens en section 3.1.2.5 sur le vertex Raman. L’équation (3.4) montre que la diffusion Raman sonde les fluctuations de la densité de charge effective $\tilde{\rho}$.

3.1.2.4 Réponses Raman expérimentale et théorique

On définit une fonction réponse $\chi(\omega)$ comme une réponse linéaire reliant les modifications du système aux perturbations extérieures qui les causent. Dans le cas de la spectroscopie Raman, la fonction réponse Raman χ caractérise les modifications de la densité électronique effective $\tilde{\rho}$ sous l’action d’un champ électromagnétique externe. Sa partie imaginaire $\chi''(\omega)$ décrit la dissipation d’énergie dans le système après perturbation⁸.

Grâce au théorème de fluctuation–dissipation, $\chi''(\omega)$ est également reliée aux fluctuations de la densité de charge effective, donc à l’intensité Raman expérimentale I , et on obtient la réponse Raman expérimentale comme :

$$\chi''_{exp}(\omega, T) \propto \frac{1}{1 + n(\omega, T)} I(\omega, T) \quad (3.6)$$

7. Dans la suite, je considère que les vecteurs de polarisation \mathbf{e}_i et \mathbf{e}_s sont de norme 1.

8. $\chi''(\omega)$ est souvent elle-même appelée réponse Raman, alors qu’elle n’est formellement que la partie imaginaire de la réponse Raman. J’utilise le plus souvent cet abus de langage dans la suite.

avec $n(\omega, T) = 1/(e^{\frac{\hbar\omega}{k_B T}} - 1)$ le facteur de Bose dépendant de la température T .

Le facteur de proportionnalité contenu dans l'équation (3.6) comporte d'une part des constantes qui garantissent l'homogénéité des grandeurs. Je ne m'occupe pas de ces constantes, et exprime χ'' en unité arbitraire. D'autre part, il cache deux termes dépendants de ω . Le premier est le facteur $\frac{\omega_s}{\omega_i} = \frac{\omega_i - \omega}{\omega_i}$ de l'équation (3.4), qui fait décroître la réponse Raman quand le déplacement Raman augmente. Dans la suite, je m'intéresse principalement au continuum sous $\omega = 75$ meV, dans des spectres acquis dans le vert à 2,3 eV, pour lesquels ce terme apporte une correction inférieure à 5 %, largement négligeable. Aux plus hautes énergies que j'ai sondées (500 meV dans le vert à 2,3 eV), la perte est inférieure à 25 %, ce qui ne change pas fondamentalement l'analyse des spectres. Je décide donc de négliger totalement ce terme correctif. Le second terme dépendant de l'énergie est le coefficient de réponse instrumentale. Celui-ci correspond au fait que les réseaux utilisés dans le spectromètre ont un rendement (leur coefficient de réflexion) dépendant de l'énergie. Ce facteur modifiant sensiblement la forme des spectres, surtout à haute énergie, j'indiquerai quand je ne l'ai pas pris en compte.

Il est également utile d'exprimer des réponses Raman théoriques, auxquelles on pourra comparer la réponse Raman expérimentale. Le formalisme mathématique utilisé est celui des fonctions de Green, qui aboutit à l'expression suivante pour la partie imaginaire de la réponse Raman, dans l'approximation $q = 0$:

$$\chi''(\omega) = \frac{1}{4\pi} \sum_{\mathbf{k}} |\gamma_{\mathbf{k}}|^2 \int d\omega' A(\omega' + \omega, \mathbf{k}) A(\omega', \mathbf{k}) [f(\omega') - f(\omega' + \omega)] \quad (3.7)$$

avec A les fonctions spectrales et f la fonction de Fermi–Dirac. Cette expression se présente essentiellement comme la convoluée de deux fonctions spectrales, pondérée par les fonctions de Fermi–Dirac : ceci reflète le fait qu'il s'agit d'une réponse à deux particules. Elle est très générale, mais dans le cas d'électrons en interaction, elle néglige les corrections de vertex, qu'induit la modification de l'interaction électron–photon à cause des interactions entre électrons.

3.1.2.5 Vertex Raman

Un aspect fondamental de la spectroscopie Raman est le rôle du vertex Raman, qui module la densité électronique sondée. En effet, l'équation (3.7) montre que la réponse Raman est proportionnelle au module carré du vertex Raman (sommé sur \mathbf{k}). Le traitement quantique de la diffusion Raman donne l'expression de ce vertex, au deuxième ordre en perturbation en \mathbf{A} , dans la limite $q = 0$:

$$\gamma_{\mathbf{k}, \alpha, \beta}(e_i, e_s) = e_s^* e_i + \frac{1}{m} \sum_{\zeta} \left(\frac{\langle \mathbf{k}, \beta | \mathbf{p} e_s^* | \mathbf{k}, \zeta \rangle \langle \mathbf{k}, \zeta | \mathbf{p} e_i | \mathbf{k}, \alpha \rangle}{\epsilon_{\mathbf{k}, \alpha} - \epsilon_{\mathbf{k}, \zeta} + \hbar\omega_i} + \frac{\langle \mathbf{k}, \beta | \mathbf{p} e_i | \mathbf{k}, \zeta \rangle \langle \mathbf{k}, \zeta | \mathbf{p} e_s^* | \mathbf{k}, \alpha \rangle}{\epsilon_{\mathbf{k}, \alpha} - \epsilon_{\mathbf{k}, \zeta} - \hbar\omega_s} \right) \quad (3.8)$$

e_i et e_s sont les polarisations des photons incident et diffusé, avec l'exposant * indiquant la transposée. α , β et ζ sont les indices de bande des états initial, final et intermédiaire respectivement, qui ont tous un vecteur d'onde \mathbf{k} dans la limite $q = 0$. \mathbf{p} est l'opérateur impulsion. m est la masse de l'électron libre. $\epsilon_{\mathbf{k}, n}$ est la dispersion énergétique en \mathbf{k} pour la bande n .

Dans l'expression (3.8), le premier terme provient de H_{AA} , le second de H_A . Le second terme permet des transitions globales interbandes dans le cas où $\alpha \neq \beta$. L'état intermédiaire

$|\mathbf{k}, \zeta\rangle$ est formellement un état virtuel, sur une bande ζ virtuelle. Dans le cas particulier où l'écart d'énergie entre l'état initial $|\mathbf{k}, \alpha\rangle$ et un état intermédiaire réel $|\mathbf{k}, \zeta\rangle$ vaut ω_i ou ω_s , un dénominateur s'annule dans la somme et le vertex Raman diverge. Ce phénomène de résonance dépend donc de la longueur d'onde incidente. Dans la suite, je me place dans le cas non résonant, et dans les expériences, l'absence de résonance peut être évaluée en utilisant différentes longueurs d'onde incidentes.

On définit également le tenseur Raman électronique $\tilde{\gamma}_{\mathbf{k}}$: chaque vertex pour une configuration de polarisations donnée se déduit du tenseur en le contractant par les vecteurs de polarisation⁹ :

$$\gamma_{\mathbf{k}}(\mathbf{e}_i, \mathbf{e}_s) = \mathbf{e}_s^* \tilde{\gamma}_{\mathbf{k}} \mathbf{e}_i \quad (3.9)$$

En utilisant le formalisme de la théorie des groupes, on peut exprimer le tenseur Raman dans la base des représentations irréductibles μ du groupe ponctuel cristallin correspondant au matériau étudié :

$$\tilde{\gamma}_{\mathbf{k}} = \sum_{\mu} \tilde{\gamma}_{\mathbf{k}}^{\mu} \quad (3.10)$$

Les deux matériaux étudiés dans cette thèse s'inscrivent, dans les conditions expérimentales que j'ai mises en œuvre, dans seulement deux groupes ponctuels. Sr_2RuO_4 a une symétrie tétragonale à toute température et appartient au groupe D_{4h} . Selon le dopage, $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ présente une phase tétragonale D_{4h} à haute température et une phase orthorhombique D_{2h} à plus basse température. Le groupe D_{4h} peut se décomposer en cinq représentations irréductibles¹⁰, notées : A_{1g} , A_{2g} , B_{1g} , B_{2g} , et E_g . Le groupe D_{2h} a un ensemble de symétries plus restreint, et a donc seulement quatre représentations irréductibles, notées : A_g , B_{1g} , B_{2g} , et B_{3g} . Ces représentations s'écrivent matriciellement dans les bases cristallographiques respectives de chacun des deux groupes ponctuels comme :

$$\tilde{\gamma}_{\mathbf{k}}^{D_{4h}} = \underbrace{\begin{pmatrix} a & 0 & 0 \\ 0 & a & 0 \\ 0 & 0 & c \end{pmatrix}}_{\tilde{\gamma}_{\mathbf{k}}^{A_{1g}}} + i \underbrace{\begin{pmatrix} 0 & b & 0 \\ -b & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}}_{\tilde{\gamma}_{\mathbf{k}}^{A_{2g}}} + \underbrace{\begin{pmatrix} d & 0 & 0 \\ 0 & -d & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}}_{\tilde{\gamma}_{\mathbf{k}}^{B_{1g}}} + \underbrace{\begin{pmatrix} 0 & e & 0 \\ e & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}}_{\tilde{\gamma}_{\mathbf{k}}^{B_{2g}}} + \underbrace{\begin{pmatrix} 0 & 0 & f \\ 0 & 0 & f \\ f & f & 0 \end{pmatrix}}_{\tilde{\gamma}_{\mathbf{k}}^{E_g}} \quad (3.11)$$

$$\tilde{\gamma}_{\mathbf{k}}^{D_{2h}} = \underbrace{\begin{pmatrix} a' & 0 & 0 \\ 0 & b' & 0 \\ 0 & 0 & c' \end{pmatrix}}_{\tilde{\gamma}_{\mathbf{k}}^{A_g}} + \underbrace{\begin{pmatrix} 0 & d' & 0 \\ d' & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}}_{\tilde{\gamma}_{\mathbf{k}}^{B_{1g}}} + \underbrace{\begin{pmatrix} 0 & 0 & e' \\ 0 & 0 & 0 \\ e' & 0 & 0 \end{pmatrix}}_{\tilde{\gamma}_{\mathbf{k}}^{B_{2g}}} + \underbrace{\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & f' \\ 0 & f' & 0 \end{pmatrix}}_{\tilde{\gamma}_{\mathbf{k}}^{B_{3g}}} \quad (3.12)$$

9. À partir d'ici, je n'écris plus la dépendance en bandes pour alléger les notations.

10. Au total, le groupe D_{4h} se décompose en dix représentations irréductibles, mais seulement le sous-ensemble des représentations symétriques par rapport au centre d'inversion, notées g (*gerade*, pair en allemand, contre les représentations antisymétriques notées u , *ungerade*, impair) ont des tenseurs Raman non nuls, car le tenseur Raman doit être symétrique par rapport au centre d'inversion.

Pour les tenseurs Raman électroniques discutés ici, les composantes des matrices de ces équations sont des fonctions réelles contenant la dépendance en \mathbf{k} , issues des calculs de l'équation (3.8). La définition des représentations irréductibles et la position des composantes nulles dans leur forme matricielle est définie plus généralement que dans le cas des tenseurs Raman électroniques, et se retrouve notamment dans la décomposition des tenseurs Raman phononiques (voir la section 3.5).

Pour déterminer si une symétrie μ est sondée pour une configuration de polarisations $(\mathbf{e}_i, \mathbf{e}_s)$ donnée, il faut calculer le produit $\mathbf{e}_s^* \gamma_{\mathbf{k}}^\mu \mathbf{e}_i$, en exprimant \mathbf{e}_i et \mathbf{e}_s dans la base cristallographique¹¹. Par exemple, pour le groupe D_{4h} , A_{1g} est sondée seulement pour des polarisations avec des composantes parallèles, et E_g est sondée seulement pour des polarisations ayant des composantes hors plan. La figure 3.4 (graphique supérieur) illustre en exemple les directions de polarisations rectilignes utilisées avec le groupe D_{4h} pour sonder A_{1g} (en mélange avec B_{1g} ou B_{2g}), B_{1g} et B_{2g} , dans le référentiel de la base carrée du réseau tétragonal. La contribution A_{2g} est souvent faible et négligée, par exemple dans les cuprates [10] et les supraconducteurs à base de fer [47]. Formellement, sa contribution nécessite une brisure de renversement du temps dans le matériau, par exemple un ordre magnétique. Dans la suite, je la néglige systématiquement, notamment sur la figure 3.4, et dans l'analyse de mes résultats sur Co-Ba122 au chapitre 5. Pour Sr_2RuO_4 , je néglige également cette composante A_{2g} , mais je discute cette approximation au chapitre 6.

3.1.2.6 Expression analytique des vertex

Dans cette section, je ne développe l'expression analytique des vertex Raman que pour le cas du groupe D_{4h} , car je n'utiliserai les notions discutées ici que pour le cas de Sr_2RuO_4 . Le vertex Raman dans chaque symétrie peut être décomposé en harmoniques de la zone de Brillouin. Les décompositions pour les symétries A_{1g} , B_{1g} et B_{2g} s'écrivent :

$$\gamma_{\mathbf{k}}^{A_{1g}} = \gamma^{A_{1g}, L=0} + \gamma^{A_{1g}, L=2} [\cos(k_x a) + \cos(k_y a)] + \dots \quad (3.13)$$

$$\gamma_{\mathbf{k}}^{B_{1g}} = \gamma^{B_{1g}, L=2} [\cos(k_x a) - \cos(k_y a)] + \dots \quad (3.14)$$

$$\gamma_{\mathbf{k}}^{B_{2g}} = \gamma^{B_{2g}, L=2} [\sin(k_x a) \sin(k_y a)] + \dots \quad (3.15)$$

La figure 3.4 (graphique inférieur) représente les harmoniques d'ordre 2 dans ces trois symétries. Les expressions (3.13), (3.14) et (3.15) n'informent pas sur les valeurs absolues des vertex, qui sont cachées dans les $\gamma^{\mu, L}$. Ces coefficients dépendent des détails de la structure de bandes. Mais elles permettent d'obtenir des expressions des vertex explicitant leur dépendance en \mathbf{k} . En particulier, on observe que les vertex Raman B_{1g} et B_{2g} , pour ces raisons de symétrie et indépendamment des détails du matériau, s'annulent respectivement selon les diagonales et selon les axes principaux de la zone de Brillouin.

L'approximation de la masse effective permet d'obtenir une expression analytique quantitative des vertex Raman à partir de la dispersion électronique. Théoriquement, elle n'est valable que loin de toute résonance, quand $\hbar\omega_{i,s} \ll \epsilon_{\mathbf{k},\alpha} - \epsilon_{\mathbf{k},\zeta}$, ce qui est souvent le cas dans les isolants et les semiconducteurs. Par contre, elle est plus difficile à justifier pour les métaux. Dans un modèle à une bande, cette approximation s'écrit :

11. On peut utiliser des polarisations circulaires, mais durant ma thèse, je n'ai utilisé que des polarisations rectilignes. Dans la suite du texte, je ne considère donc pas des configurations de polarisations autres que rectilignes.

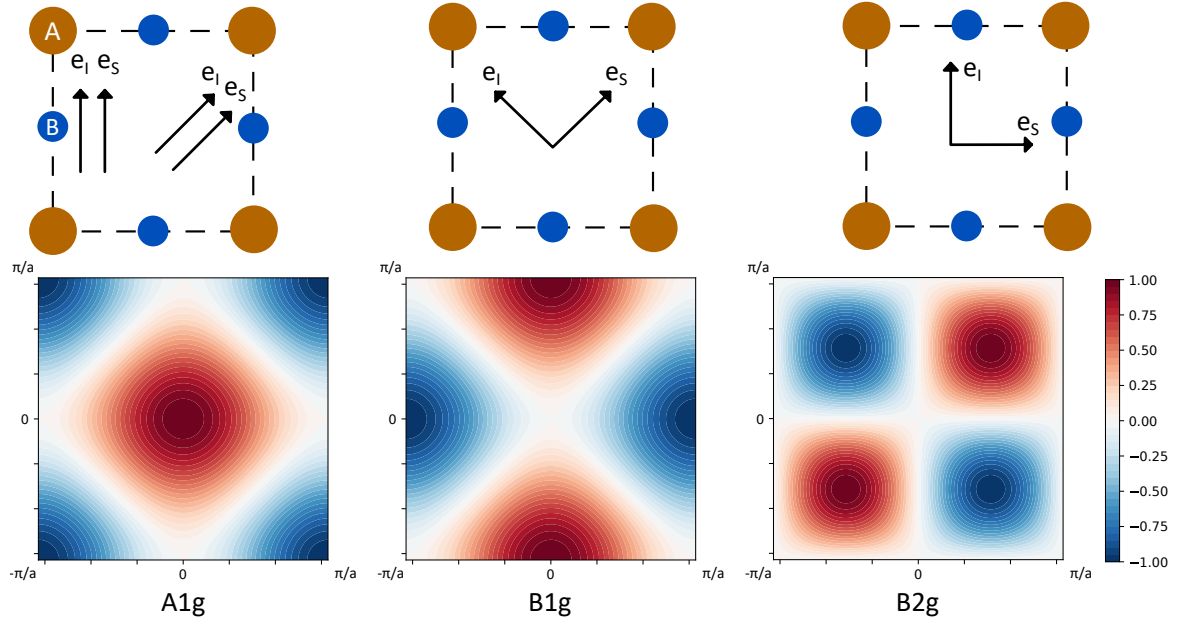


FIGURE 3.4 – (Haut) Jeux de polarisation permettant d’obtenir $A_{1g} + B_{1g}$ (vertical) ou $A_{1g} + B_{2g}$ (à 45°), B_{1g} , B_{2g} . (Bas) Harmoniques d’ordre 2 de la première zone de Brillouin dans les 3 symétries A_{1g} , B_{1g} et B_{2g} . (Figure issue de [10].)

$$\gamma_{\mathbf{k}}(\mathbf{e}_i, \mathbf{e}_s) = \frac{m}{\hbar^2} \sum_{u,v} e_s^{u*} \left[\frac{\partial^2 \epsilon(\mathbf{k})}{\partial k_u \partial k_v} \right] e_i^v \quad (3.16)$$

Les indices u et v décrivent les trois directions de l’espace ; e_i^u est la composante selon la direction u du vecteur \mathbf{e}_i . $\epsilon(\mathbf{k})$ est la dispersion énergétique de la bande. Cette expression donne donc la valeur absolue et la dépendance en \mathbf{k} du vertex, quand la dispersion de la bande est connue.

Jusqu’ici, j’ai discuté de la théorie de la spectroscopie Raman en considérant des ondes de Bloch, c’est-à-dire des électrons délocalisés soumis à un potentiel périodique. C’est dans un tel cadre qu’on construit les bandes d’énergie. Une autre approche complémentaire de la matière condensée est le modèle de liaisons fortes, qui amène des expressions analytiques des vertex Raman similaires. Dans ce modèle, les électrons sont davantage localisés sur les sites atomiques, et peuvent passer de sites en sites selon des processus paramétrés par des termes énergétiques appelés intégrales de saut. Plus précisément, les électrons sont placés sur les orbitales des atomes, et on considère des intégrales de saut intra ou interorbitales contraintes par le respect des symétries. C’est cette approche essentiellement orbitale que j’ai présentée au chapitre 1 pour expliquer la forme de la surface de Fermi de Sr_2RuO_4 , et que j’utiliserai pour analyser mes résultats de spectroscopie Raman sur ce matériau au chapitre 6, d’où l’utilité de présenter ici l’approximation de la masse effective dans l’approche orbitale. Les calculs établissant la formule de l’approximation de la masse effective dans l’approche orbitale sont effectués dans la référence [258], consacrée à l’étude de BaFe_2As_2 ; je ne donne ici que les résultats de cette approche.

Dans l’approche orbitale, la formule de l’équation (3.16) est modifiée en remplaçant la dispersion $\epsilon(\mathbf{k})$ sur la bande par $\epsilon_{n,m}(\mathbf{k})$, l’intégrale de saut entre n et m . On a des sauts intraorbitaux si $n = m$, et interorbitaux si $n \neq m$. On peut ainsi exprimer le vertex Raman pour une représentation donnée, sous une forme matricielle dans la base des orbitales (n, m, \dots).

En utilisant la formule de l'approximation de la masse effective, on peut exprimer $\gamma_{\mathbf{k}}(\mathbf{e}_i, \mathbf{e}_s)$ comme $\gamma_{\mathbf{k}}^{\mu}$ en considérant les configurations de polarisation permettant de sonder μ pur. Pour les symétries B_{1g} et B_{2g} , cette expression donne¹² (en omettant le préfacteur m/\hbar^2) :

$$\gamma_{\mathbf{k},n,m}^{B_{1g}} = \frac{\partial^2 \epsilon_{n,m}(\mathbf{k})}{\partial k_x^2} - \frac{\partial^2 \epsilon_{n,m}(\mathbf{k})}{\partial k_y^2} \quad (3.17)$$

$$\gamma_{\mathbf{k},n,m}^{B_{2g}} = \frac{\partial^2 \epsilon_{n,m}(\mathbf{k})}{\partial k_x \partial k_y} \quad (3.18)$$

Les dépendances angulaires des vertex Raman, et notamment les directions des lignes nodales, correspondent à celles de la décomposition en harmoniques de la zone de Brillouin dans le cas intraorbital, mais pas nécessairement dans le cas interorbital.

En utilisant les expressions paramétrées des relations de dispersion, obtenues pour décrire les surfaces de Fermi obtenues expérimentalement, avec des intégrales de transfert t_i , l'approximation de la masse effective donne des intensités absolues pour les vertex Raman, et on peut donc comparer les valeurs des vertex Raman dans les différentes symétries. Il faut cependant être prudent sur l'utilisation des résultats de l'approximation de la masse effective : d'une part ils dépendent de la paramétrisation choisie, qui peut sensiblement varier selon les références, d'autre part cette approximation est difficile à justifier dans le cas des métaux.

3.2 Réponse Raman électronique dans les métaux

Dans les métaux, la diffusion Raman est due à la création de paires électron-trou autour du niveau de Fermi. La forme de la réponse Raman varie selon les processus de relaxation électronique possibles. Fondamentalement, les expressions des réponses Raman s'obtiennent à partir de la formule générale de l'équation (3.7), en prenant dans chaque cas les bonnes expressions des fonctions spectrales A . Des expressions de A pertinentes pour ce qui suit sont présentées au chapitre 1 (équations (1.3) et (1.4)). Je ne détaille pas les calculs et présente directement les résultats pour $\chi''(\omega)$.

3.2.1 Gaz d'électrons libres

Dans le modèle le plus simple, on considère des électrons libres avec un mouvement ballistique. À température nulle, la vitesse maximale des électrons est $v_F = \hbar k_F/m$. À cause du q faible par rapport à la zone de Brillouin, les excitations sont limitées dans le voisinage de la surface de Fermi. Par approximation linéaire de la dispersion au niveau de Fermi, l'énergie maximale de l'excitation est $\omega_{max} = qv_F$. Par exemple pour Sr_2RuO_4 , $v_F \sim 1 \text{ eV\AA}$ (pour la bande β) [248], avec $q = 10^7 \text{ rad/m}$, et on obtient $\omega_{max} \approx 1 \text{ meV}$. Pour les cuprates, ω_{max} vaut quelques meV. Dans ce modèle, la réponse Raman n'est donc non nulle qu'aux très basses énergies.

3.2.2 Modèle de Drude

Je prends maintenant en compte des processus de diffusion des électrons, avec un taux de relaxation $\Gamma = \hbar/\tau$, inverse du temps de vie. Plus précisément, la diffusion se fait sur les

12. Avec des intégrales de saut scalaires, on a toujours $\frac{\partial^2}{\partial k_x \partial k_y} = \frac{\partial^2}{\partial k_y \partial k_x}$.

impuretés, et est donc isotrope avec un taux constant Γ_0 . Dans ce cas, la réponse Raman s'écrit :

$$\chi''(\omega) = 2N_F |\gamma_{\mathbf{k}}|^2 \frac{\omega \Sigma''}{\omega^2 + 4\Sigma''^2} \quad (3.19)$$

N_F est la densité d'états au niveau de Fermi. Σ'' est la partie imaginaire de l'auto-énergie, reliée au taux de diffusion par $2\Sigma'' = \Gamma_0$. Le facteur 2 provient du fait que Γ_0 est un taux de relaxation effectif à deux particules, dû au fait que la spectroscopie Raman est une sonde à deux particules, quand Σ est l'auto-énergie à une particule¹³. Contrairement au modèle ballistique, la réponse Raman est différente de 0 même pour $q = 0$. Si $\Gamma_0 \gg qv_F$, la réponse Raman est dominée par cette composante relaxationnelle.

Dans le modèle de Drude, la réponse Raman présente un pic de Drude à basse énergie, dont le maximum est atteint pour $\omega = \Gamma_0$. Puis elle décroît comme $1/\omega$ à haute énergie (figure 3.5 graphique gauche, courbe bleue). Ce pic de Drude représentatif de la diffusion élastique entre électrons¹⁴ est également appelé pic quasi élastique.

3.2.3 Modèle de Drude étendu : cas d'un liquide de Fermi

Pour un liquide de Fermi, le modèle de Drude n'est pas suffisant, car il ne prend pas en compte de dépendance en énergie ω du taux de relaxation. Je réécris la réponse Raman en modèle de Drude comme¹⁵ :

$$\chi''(\omega) = \chi^0 \frac{\omega \Gamma}{\omega^2 + \Gamma^2} \quad (3.20)$$

Le facteur χ^0 est la réponse Raman statique : $\chi^0 = \chi(\omega = 0) = \frac{2}{\pi} \int_0^\infty d\omega \frac{\chi''(\omega)}{\omega}$. Il contient notamment le vertex (plus précisément le carré du module du vertex).

Pour prendre en compte la dépendance en énergie du taux de relaxation, ainsi que pour faire apparaître explicitement la masse effective des quasiparticules dans la réponse Raman, je me place dans le modèle dit de Drude étendu (en anglais *extended Drude model*, EDM). Ce modèle a d'abord été introduit pour étudier la conductivité optique [17]. Je reprends ici le cheminement historique, avant de me placer dans le cadre de la spectroscopie Raman.

3.2.3.1 Formalisme de la fonction mémoire

Dans le cadre du modèle de Drude, la conductivité optique d'un métal s'écrit :

$$\sigma_{Drude}(\omega) = \frac{\omega_p^2}{4\pi} \frac{1}{\Gamma - i\omega} \quad (3.21)$$

13. Ici, la valeur 2 du facteur entre Σ'' et Γ_0 provient directement du modèle considéré (diffusion isotrope notamment). Pour des modèles plus compliqués, comme le modèle de Drude étendu présenté ci-après, le facteur correctif entre l'auto-énergie « pure » et le taux de relaxation effectif peut différer de 2.

14. Un processus Raman correspond à la diffusion inélastique de la lumière par le matériau ; les processus de relaxation du système électronique sondés par spectroscopie Raman peuvent être des processus de diffusion élastique. Le terme « diffusion » désigne dans les deux cas deux phénomènes différents.

15. Pour ne pas alourdir les équations, je n'écris plus les dépendances en température ni en symétrie μ , qui concernent a priori toutes les quantités. Également, je prends $\hbar = 1$.

ω_p est la pulsation plasma du métal considéré, $\Gamma = \frac{1}{\tau}$ est le taux de relaxation des porteurs. Le facteur de modification de la masse peut être pris en compte dans cette expression. Par exemple Pines et Nozières (section 3.7 de la référence [211]) étudient le cas d'un liquide de Fermi avec de la diffusion sur les impuretés. Ils montrent que la conductivité suit une loi similaire à (3.21), mais en remplaçant τ par un temps de relaxation effectif τ_{eff} tel que : $\frac{1}{\tau_{eff}} = \frac{m^*}{m} \frac{1}{\tau}$.

Le modèle de Drude étendu repose sur le formalisme de la fonction mémoire introduit par Götze et Wölfle [89], qui s'intéressent à la conductivité optique homogène $\sigma(\omega, q = 0)$. Ils définissent la fonction mémoire M par :

$$M(z) = \frac{z \chi(z)}{\chi_0 - \chi(z)} \quad (3.22)$$

avec la relation inverse :

$$\chi(z) = \chi_0 \frac{M(z)}{z + M(z)} \quad (3.23)$$

χ est la fonction de corrélation courant-courant, dont la partie imaginaire est obtenue en mesure de conductivité optique ; χ_0 est sa limite statique. Le problème est formalisé à l'aide d'une variable complexe z , que je relierai plus bas à ω .

Il est utile de commencer par discuter les propriétés mathématiques de χ et M . χ est une fonction complexe dont les propriétés lui permettent d'être représentée par une intégrale spectrale :

$$\chi(z) = \frac{1}{\pi} \int d\omega \frac{\chi''(\omega)}{\omega - z} \quad (3.24)$$

avec la fonction spectrale $\chi''(\omega)$, partie imaginaire de χ , donnée par la discontinuité au passage de l'axe réel :

$$\chi(\omega \pm i0) = \chi'(\omega) \pm i\chi''(\omega) \quad (3.25)$$

Pour tout z non réel, $\chi(z) \neq \chi_0$. Cela assure que M est une fonction holomorphe pour tout z non réel. Du fait des propriétés de χ (décroissance en z^{-2} , relations de symétrie), $M(z)$ décroît asymptotiquement comme $\frac{1}{z}$, et obéit aux relations de symétrie $M^*(z) = M(z^*)$ et $M(z) = -M(-z)$. Donc M peut également être représentée par une intégrale spectrale :

$$M(z) = \frac{1}{\pi} \int d\omega \frac{M''(\omega)}{\omega - z} \quad (3.26)$$

avec :

$$M(\omega \pm i0) = M'(\omega) \pm iM''(\omega) \quad (3.27)$$

χ' , χ'' , M' et M'' sont des fonctions réelles de la variable réelle ω . Ainsi, on raisonne mathématiquement avec une variable complexe z , mais le sens physique est retrouvé par continuité analytique $z \rightarrow \omega \pm i0$.

La conductivité optique σ s'exprime en fonction de χ comme :

$$\sigma(z) = -i \frac{e^2}{z} \chi(z) + i \frac{\omega_p^2}{4\pi z} \quad (3.28)$$

avec $\chi_0 = \frac{\omega_p^2}{4\pi e^2}$. En remplaçant $\chi(z)$ par l'expression (3.23), on obtient :

$$\sigma(\omega \pm i0) = \frac{\omega_p^2}{4\pi} \frac{1}{-iM(\omega \pm i0) - i\omega \mp i0} \quad (3.29)$$

En comparant avec l'équation (3.21), on voit que la conductivité optique dans le formalisme de la fonction mémoire s'obtient à partir de celle dans le modèle de Drude en remplaçant le taux de relaxation constant par $-iM(\omega \pm i0)$. Dans le cas du modèle de Drude étendu, le lien entre la fonction mémoire et les paramètres de liquide de Fermi se fait en écrivant :

$$M'(\omega) = \omega\lambda(\omega) \quad (3.30)$$

$$M''(\omega) = \Gamma(\omega) \quad (3.31)$$

Bien qu'elles s'expriment de façon similaire selon la renormalisation de la masse et le taux de relaxation, l'auto-énergie Σ et la fonction mémoire M ne sont pas des grandeurs identiques : dans un système à plusieurs particules, M est une fonction de corrélation à deux particules, quand Σ représente les propriétés à une particule [202]. Alors l'équation (3.29) s'interprète comme une expression de type Drude, mais contenant la dépendance en énergie des paramètres de liquide de Fermi :

$$\sigma(\omega) = \frac{\widetilde{\omega}_p(\omega)^2}{4\pi} \frac{1}{\widetilde{\Gamma}(\omega) - i\omega} \quad (3.32)$$

avec $\widetilde{\omega}_p(\omega)^2 = \frac{\omega_p^2}{1+\lambda(\omega)}$ et $\widetilde{\Gamma}(\omega) = \frac{\Gamma(\omega)}{1+\lambda(\omega)}$.

À ce stade, on a obtenu l'expression de la réponse physique mesurable σ dépendant de deux fonctions paramètres, Γ et λ . On pourrait penser qu'avec seulement l'équation (3.32) et deux inconnues, le problème de l'obtention de Γ et λ n'est pas résolu. Cependant, tout l'intérêt de l'arsenal mathématique déployé autour du formalisme de la fonction mémoire réside dans le fait que les deux composantes réelle et imaginaire de χ , donc celles de M , et donc indirectement Γ et λ , ne sont pas indépendants. En effet, le fait que χ est une fonction causale respectant certaines propriétés de symétries et de comportement asymptotique, qu'on peut écrire comme une intégrale spectrale, permet d'utiliser les relations de Kramers-Kronig :

$$\chi'(\omega) = \frac{2}{\pi} \mathcal{P} \int_0^\infty d\xi \frac{\xi \chi''(\xi)}{\xi^2 - \omega^2} \quad (3.33)$$

$$M'(\omega) = \frac{2\omega}{\pi} \mathcal{P} \int_0^\infty d\xi \frac{M''(\xi)}{\xi^2 - \omega^2} \quad (3.34)$$

$$\lambda(\omega) = \frac{2}{\pi} \mathcal{P} \int_0^\infty d\xi \frac{\Gamma(\xi)}{\xi^2 - \omega^2} \quad (3.35)$$

Ici j'ai écrit les relations de Kramers–Kronig exprimant la partie réelle en fonction de la partie imaginaire, mais des relations inverses expriment la partie imaginaire en fonction de la partie réelle. La lettre \mathcal{P} signifie que l'intégrale est calculée comme une partie principale.

J'ai présenté ci-dessus le formalisme de la fonction mémoire selon un point de vue assez théorique. Je le résume maintenant en faisant apparaître plus explicitement le cheminement expérimental, qui sera similaire dans le cadre de la spectroscopie Raman. Expérimentalement, on acquiert la fonction réponse χ'' . En utilisant la transformation de Kramers–Kronig (équation (3.33)), on obtient χ' , et donc la réponse totale χ . On utilise alors l'équation (3.22) pour calculer M , puis les équations (3.30) et (3.31) pour obtenir $\Gamma(\omega)$ et $\lambda(\omega)$.

3.2.3.2 Utilisation de la fonction mémoire en spectroscopie Raman

Opel et collaboratrices [202] reprennent ce formalisme pour l'analyse de leurs résultats de spectroscopie Raman sur des cuprates. Iels écrivent la fonction de réponse Raman complexe χ (dont la partie imaginaire est la réponse Raman mesurée) et la fonction mémoire Raman M , définies dans un premier temps comme aux équations (3.23), (3.30) et (3.31), pour exprimer M en fonction du taux de relaxation et du facteur de modification de la masse. Il y a cependant quelques subtilités pour adapter le formalisme à la diffusion Raman. En effet, expérimentalement dans les cuprates et, comme je le montre au chapitre 6 et en annexe B, pour Sr_2RuO_4 , χ'' ne décroît pas à haute énergie, mais reste constant, voire croît. Ceci pose problème pour la convergence des intégrales dans les relations de Kramers–Kronig. L'introduction d'une énergie de coupure ω_c dans le calcul de ces intégrales n'est pas satisfaisante, car son choix influence beaucoup les résultats. Le problème est résolu en introduisant une nouvelle fonction $\tilde{\chi}$, définie par ¹⁶ :

$$\chi(z) = 1 - z\tilde{\chi}(z) \quad (3.36)$$

On a alors :

$$\tilde{\chi}(z) = \frac{1}{z + M(z)} \quad (3.37)$$

et la relation inverse :

$$M(z) = \frac{1 - z\tilde{\chi}(z)}{\tilde{\chi}(z)} \quad (3.38)$$

Le comportement analytique de $\tilde{\chi}$ est le même que celui de χ . Deux fonctions J et K sont définies par :

$$J(\omega) = -\chi^0 \tilde{\chi}''(\omega) \quad (3.39)$$

$$K(\omega) = \chi^0 \frac{\tilde{\chi}'(\omega)}{\omega} \quad (3.40)$$

16. Je reprends ici les notations de la référence [202], qui considère initialement $\chi_0 = 1$.

J est la conductivité Raman, obtenue à partir de la réponse Raman mesurée χ'' , χ^0 est la réponse Raman statique. La relation de Kramers–Kronig permet d’exprimer K en fonction de J :

$$J(\omega, T) = \frac{\chi''}{\omega} \quad (3.41)$$

$$\chi^0 = \frac{2}{\pi} \int_0^{\omega_c} d\omega J(\omega) \quad (3.42)$$

$$K(\omega) = -\frac{2}{\pi} \mathcal{P} \int_0^{\omega_c} d\xi \frac{J(\xi)}{\xi^2 - \omega^2} \quad (3.43)$$

Ainsi, l’adaptation du formalisme de la fonction mémoire à la spectroscopie Raman revient essentiellement à remplacer l’équation (3.33) par les équations (3.41) et (3.43). Opel et collaboratrices [202] appliquent la méthode non pas à la fonction de réponse Raman, mais à la réponse effective $\tilde{\chi}$, qui n’est de fait essentiellement autre que la conductivité Raman J : la division par z définissant $\tilde{\chi}$ (équation (3.36)) équivaut à celle par ω définissant J (équation (3.41)).

Le modèle nécessite néanmoins toujours d’introduire une énergie de coupure ω_c , dans les intégrales des équations (3.42) et (3.43). D’après Opel et collaboratrices, l’énergie de coupure introduite ici a moins d’influence sur le résultat que si on n’avait pas défini $\tilde{\chi}$. χ^0 dépend logarithmiquement de ω_c si χ'' tend vers une constante. Pour $\omega \leq 0,2 \omega_c$, l’intégrale converge rapidement et $K(\omega)$ ne dépend que peu de ω_c .

Finalement, avec les équations (3.30), (3.31) et (3.38), on obtient $\Gamma(\omega)$ et $1 + \lambda(\omega)$ en fonction de ces différentes fonctions :

$$\Gamma(\omega) = \chi^0 \frac{J(\omega)}{[J(\omega)]^2 + [\omega K(\omega)]^2} \quad (3.44)$$

$$1 + \lambda(\omega) = \chi^0 \frac{K(\omega)}{[J(\omega)]^2 + [\omega K(\omega)]^2} \quad (3.45)$$

D’un point de vue plus expérimental, le cheminement, similaire au cas de la conductivité optique, est le suivant : on obtient expérimentalement χ'' , donc J (équation (3.41)), dont on déduit K (équation (3.43)) et donc $\tilde{\chi}$ (équations (3.39) et (3.40)), puis M (équation (3.38)), et de là Γ et λ .

Réciproquement, on peut exprimer la réponse Raman mesurée en fonction de Γ et λ :

$$\begin{aligned} \chi''(\omega) &= \chi^0 \frac{\omega \Gamma(\omega)}{\{\omega[1 + \lambda(\omega)]\}^2 + \Gamma(\omega)^2} \\ &= \tilde{\chi}^0(\omega) \frac{\omega \tilde{\Gamma}(\omega)}{\omega^2 + \tilde{\Gamma}(\omega)^2} \end{aligned} \quad (3.46)$$

avec $\tilde{\chi}^0(\omega) = \frac{\chi^0}{1 + \lambda(\omega)}$ et $\tilde{\Gamma}(\omega) = \frac{\Gamma(\omega)}{1 + \lambda(\omega)}$. On remarquera la similitude formelle entre la partie réelle de la conductivité optique σ (équation (3.32)) et la conductivité Raman $\chi''(\omega)/\omega$.

La procédure que je viens de présenter (calcul de J , K , χ^0 , puis calcul de Γ et $1 + \lambda$) est celle que j’utilise pour calculer les paramètres de liquide de Fermi de Sr_2RuO_4 dans le chapitre 6. Dans la pratique, pour effectuer les calculs numériques à partir de la réponse

Raman expérimentale χ'' , il faut d'abord en soustraire les modes de phonons pour ne garder que le continuum électronique. Également, pour le calcul des intégrales des équations (3.42) et (3.43), il faut extrapoler la réponse Raman à basse énergie et déterminer une énergie de coupure ω_c . Je reviens sur ces points d'implémentation pratique du calcul dans le chapitre 6 et en annexe B.

3.2.3.3 Forme de la réponse Raman d'un liquide de Fermi

Pour anticiper l'analyse des spectres Raman expérimentaux de Sr_2RuO_4 , je discute maintenant de la forme de la réponse Raman dans le cadre du modèle de Drude étendu (équation (3.46)) selon différentes expressions pour Γ et $1 + \lambda$, en particulier pour un liquide de Fermi.

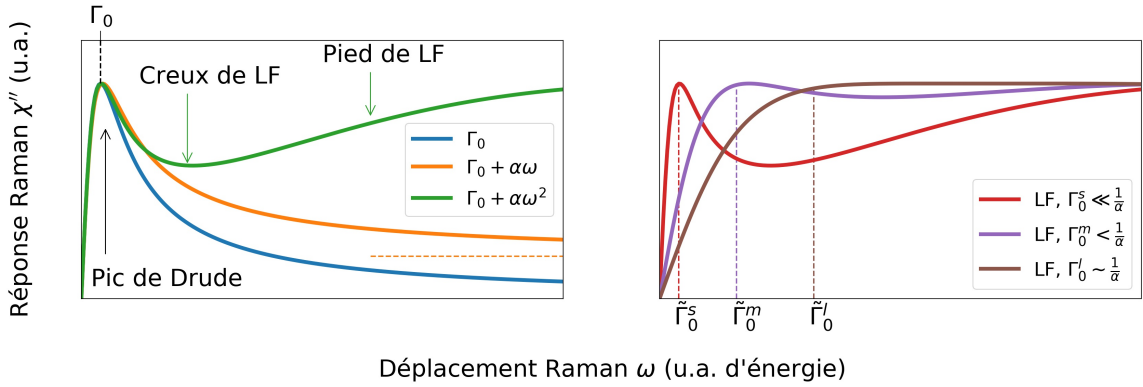


FIGURE 3.5 – (Gauche) Réponses Raman pour un métal selon différents modèles : modèle de Drude simple (Γ constant), modèle de Drude étendu avec une dépendance linéaire (liquide de Fermi marginal) ou quadratique (liquide de Fermi) de Γ en fonction de ω . La ligne pointillée jaune indique l'asymptote de la réponse avec dépendance linéaire. Pour les trois réponses, j'ai pris le même taux de relaxation statique Γ_0 . Pour les autres paramètres, voir le texte. (Droite) Réponses Raman pour un liquide de Fermi (LF) dans le modèle de Drude étendu pour trois valeurs de $\tilde{\Gamma}_0$, à α commun.

La figure 3.5 (graphique gauche) compare trois réponses Raman : selon que Γ est pris constant dans le modèle de Drude simple (équation (3.20)), ou dépendant linéairement ou quadratiquement de ω dans un modèle de Drude étendu (équation (3.46)), que je note respectivement SDM, EDM-MFL et EDM-FL. La dépendance linéaire correspond à un comportement de liquide de Fermi marginal, observé par exemple dans les cuprates, et la dépendance quadratique correspond au liquide de Fermi. Pour la réponse SDM, j'ai pris¹⁷ $\chi^0 = 1$. Pour les réponses EDM, je prends une renormalisation de la masse sans dépendance en énergie ; un tel comportement est attendu pour le régime de liquide de Fermi. Pour ces deux réponses, je prends $(\chi^0; \lambda) = (4; 1)$ et $\alpha = 0,2$ et $0,03$ respectivement pour les dépendances linéaire et quadratique. Je prends $\Gamma_0 = 2$ commun pour les trois réponses.

Le maximum du pic de Drude est situé à $\omega = \Gamma_0$ pour le SDM, et à $\omega \approx \tilde{\Gamma}_0$ dans les EDM¹⁸. La renormalisation de la masse ramollit le maximum du pic de Drude, l'impact de α sur sa position est minime pour α suffisamment faible. Le comportement au-delà du pic de

17. Dans cette discussion, Γ_0 , dimensionné comme une énergie, est donné en unité d'énergie arbitraire. α est sans dimension dans le cas EDM-MFL, je le donne en unité arbitraire, et dimensionné comme l'inverse d'une énergie dans le cas EDM-FL, je le donne dans l'inverse de l'unité d'énergie arbitraire utilisée pour Γ_0 . Ainsi, dans le cas EDM-FL, $\Gamma_0\alpha$ est sans dimension. $1 + \lambda$ et χ^0 sont donnés en unités arbitraires.

18. Je rappelle le lien entre $\tilde{\Gamma}$ et Γ : $\tilde{\Gamma}(\omega) = \frac{\Gamma(\omega)}{1 + \lambda(\omega)}$.

Drude est remarquablement différent dans les trois cas. Pour le SDM, la réponse décroît vers 0 comme $1/\omega$. Pour l'EDM-MFL, la réponse décroît également, mais jusqu'à une asymptote dont la position dépend de χ^0 , α et λ . Pour l'EDM-FL, la réponse n'est pas monotone à haute énergie, avec une remontée au-delà du pic de Drude. Cette remontée à haute énergie est un marqueur distinctif du comportement de liquide de Fermi, correspondant au pied de liquide de Fermi apparaissant dans la conductivité optique (voir le chapitre 1, section 1.1.2.2). Elle induit l'existence d'un creux de liquide de Fermi entre le pic de Drude et le pied de liquide de Fermi. Au-delà du pied de liquide de Fermi, la réponse décroît vers 0 comme $1/\omega$.

Sur la figure 3.5 (graphique droit), je représente l'évolution de la réponse Raman EDM-FL pour trois valeurs de Γ_0 , avec $\Gamma_0^{s/m/l} = 4/16/32$, et $(\chi^0; \alpha; \lambda) = (2; 0,03; 1)$ dans les trois cas. On a donc pour les trois réponses respectivement : $\Gamma_0\alpha \ll 1$, $\Gamma_0\alpha < 1$ et $\Gamma_0\alpha \sim 1$. L'augmentation de Γ_0 simule une augmentation de la température ou une augmentation de la diffusion sur les impuretés. Quand Γ_0 augmente, le pic de Drude se fond progressivement avec le pied de liquide de Fermi, faisant disparaître le creux de liquide de Fermi. Numériquement, la disparition du creux de liquide de Fermi a lieu quand $\Gamma_0 \sim 1/\alpha$. Le maximum du pic de Drude, quand celui-ci est discernable, est de nouveau situé à $\omega \approx \tilde{\Gamma}_0$.

Dans cette discussion, j'ai considéré que l'expression de $\Gamma(\omega)$ ne variait pas selon ω . Pour un liquide de Fermi réel, on s'attend à ce qu'il ne présente la loi quadratique que jusqu'à ω_{FL} , avec des déviations ensuite, notamment une diminution de l'exposant n de ω ; à plus haute énergie, le régime incohérent s'établit et la description en quasiparticule n'est plus pertinente. Ainsi, pour un liquide de Fermi comme Sr_2RuO_4 , il est difficile de prévoir l'allure de la réponse Raman électronique intrabande haute énergie au-delà du pied de liquide de Fermi.

La renormalisation de la masse apparaît au dénominateur dans l'expression (3.46). Pour des augmentations de la masse ($\lambda > 0$), ce qui est expérimentalement le cas dans de nombreux matériaux dont Sr_2RuO_4 , ce terme diminue l'intensité globale de la réponse Raman. Pour un liquide de Fermi dans son régime thermal [23], $1 + \lambda$ ne présente pas de dépendance en énergie.

Cette analyse qualitative doit être nuancée sur plusieurs points. Tout d'abord, comme indiqué, il ne s'agit que d'une analyse qualitative. J'ai choisi les valeurs des paramètres de telle sorte que leur influence puisse être claire visuellement sur les figures et discutée, mais il est possible a priori que les effets soient expérimentalement beaucoup moins marqués. Par exemple, si Γ_0 est trop grand par rapport à α^{-1} , ce qui est notamment le cas si le matériau n'est pas suffisamment pur, le pic de Drude et le creux de liquide de Fermi ne sont pas visibles. Enfin, il est envisageable que la réponse Raman électronique théorique du modèle de Drude étendu soit noyée par d'autres contributions au spectre Raman (phonons, réponse critique...). De fait, avant mes travaux sur Sr_2RuO_4 , cette réponse Raman de liquide de Fermi présentant clairement à la fois un pic de Drude et un creux de liquide de Fermi n'avait à ma connaissance pas encore été observée.

3.3 Réponse Raman électronique près d'une instabilité nématique de charge

Dans la section précédente, j'ai détaillé la réponse Raman électronique d'un métal. J'ai complexifié au fur et à mesure l'expression du taux de relaxation des électrons, tout en restant dans la description d'un métal simple, dans le sens où je n'ai pris en compte aucune instabilité du fluide électronique. Ces instabilités peuvent être de plusieurs ordres, par exemple : nématique, d'onde de densité de charge, magnétique, supraconductrice... Ce cadre est pertinent dans le cas de Sr_2RuO_4 loin de la transition supraconductrice. A contrario, les

supraconducteurs à base de fer, comme Co-Ba122, sont caractérisés, en plus de leur transition supraconductrice, par la présence d'instabilités nématique et magnétique.

Dans cette section, j'étudie la réponse Raman dans le cadre d'une instabilité nématique. Je donne les résultats principaux de l'étude théorique de Gallais et Paul [79]. Pour plus de détails, on pourra s'y référer, ainsi qu'à son résumé dans les thèses [10, 49, 179]. J'illustre ces résultats théoriques par quelques exemples expérimentaux dans les supraconducteurs à base de fer. L'impact d'une résonance nématique sur l'état supraconducteur, pertinent dans Co-Ba122, est discuté en section 3.4.2.

3.3.1 Signature Raman de l'instabilité nématique de charge

On considère une instabilité liée à un opérateur nématique comportant un facteur de forme brisant la symétrie de rotation d'ordre 4. On introduit ce terme nématique H_{nem} dans l'hamiltonien total du système, avec :

$$H_{nem} = -\frac{g}{2} \sum_{\mathbf{q}} O_n(-\mathbf{q}) O_n(\mathbf{q}) \quad (3.47)$$

Le raisonnement restant phénoménologique, l'origine microscopique de l'instabilité n'importe pas : on introduit simplement une constante de couplage nématique g , avec $g > 0$ pour avoir une interaction attractive conduisant à une instabilité. O_n est un opérateur nématique de charge, comportant un facteur de forme brisant la symétrie de rotation. Les axes cristallographiques étant fixés, ce facteur de forme peut être de symétrie $\mu = B_{1g}$ ou B_{2g} , selon s'il se transforme respectivement comme $(x, y) \rightarrow x^2 - y^2$ ou $(x, y) \rightarrow xy$, l'un étant équivalent à l'autre par rotation de 45° .

Je considère dans un premier temps le cas d'un système à une bande. La susceptibilité nématique $\chi_{\mu, nem}(\mathbf{q}, \omega)$ est non nulle uniquement dans la même symétrie μ que celle de l'instabilité nématique. Cette quantité est liée à la réponse Raman mesurée $\chi''_{\mu}(\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{0}, \omega)$ (voir l'équation (3.24)) :

$$\chi_{\mu, nem} = \chi_{\mu}(\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{0}, \omega \rightarrow 0) = \frac{2}{\pi} \int_0^{\infty} \frac{\chi''_{\mu}(\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{0}, \omega)}{\omega} d\omega \quad (3.48)$$

Je considère une réponse de Drude simple suivant l'équation (3.20)¹⁹, donc correspondant initialement à l'absence d'interaction nématique. Dans l'approximation de la phase aléatoire (en anglais *random phase approximation*, RPA) (formalisée par l'équation (3.56)), la conséquence principale de l'instabilité nématique est que la susceptibilité statique χ^0 et le taux de relaxation Γ acquièrent une dépendance en température importante, qui n'existe pas dans le modèle de Drude simple.

Cette dépendance apparaît dans le calcul via le paramètre $r_0 = \left(\frac{a}{\xi_n}\right)^2$. a est le paramètre de maille dans le plan où est brisée la symétrie de rotation (la distance Fe-Fe dans le cas de BaFe₂As₂), et ξ_n est la longueur de corrélation des fluctuations nématiques. La longueur de corrélation diverge à la transition nématique. Un modèle de champ moyen donne le comportement de la divergence, et en notant T_0 la température de transition nématique, on a :

19. Les résultats théoriques ne changent pas fondamentalement si on se place dans le modèle de Drude étendu en considérant des dépendances en énergie du taux de relaxation et de la masse effective des quasiparticules. Également, j'ometts dans la suite l'indice du canal nématique μ pour alléger les notations.

$$r_0(T \geq T_0) = \tilde{r}_0(T - T_0) \quad (3.49)$$

avec \tilde{r}_0 un coefficient positif indépendant de la température. La réponse Raman de type Drude dans le canal nématique, en présence de l'instabilité nématique, s'écrit :

$$\chi''(\omega) = \chi_{nem}^0 \frac{\Gamma_{nem}\omega}{\omega^2 + \Gamma_{nem}^2} \quad (3.50)$$

avec χ_{nem}^0 et Γ_{nem} définis comme :

$$\chi_{nem}^0 = \frac{|\gamma_{nem}|^2 \rho_0}{r_0(r_0 + g\rho_0)} \quad (3.51)$$

$$\Gamma_{nem} = \frac{r_0\Gamma}{r_0 + g\rho_0} \quad (3.52)$$

ρ_0 est la densité d'états au niveau de Fermi, γ_{nem} est le vertex Raman dans la symétrie nématique μ , et Γ est le taux de relaxation en l'absence d'instabilité nématique.

Ainsi, quand r_0 s'annule à la transition nématique, le taux de relaxation s'annule et la susceptibilité statique χ_{nem}^0 diverge. Qualitativement sur les spectres Raman, on observe une forte augmentation du poids spectral du pic de Drude à l'approche de T_0 , mais avec un amincissement de celui-ci (comme sa pseudolargeur Γ tend vers 0). Plus précisément, χ_{nem}^0 acquiert une dépendance en température de type Curie–Weiss et diverge à l'approche de T_0 via l'influence de r_0 . Proche de T_0 , pour r_0 petit, on a au premier ordre en r_0 :

$$\chi_{nem}^0(T) = \frac{|\gamma_{nem}|^2}{gr_0(T)} \quad (3.53)$$

La figure 3.6 illustre le comportement théorique de la réponse Raman nématique χ''_μ et de la susceptibilité Raman nématique proche de la transition.

3.3.2 Effet du couplage avec le réseau

Dans les matériaux réels, l'instabilité nématique électronique discutée dans ce qui précède s'accompagne systématiquement d'une réduction de symétrie du réseau cristallin accueillant le système électronique. Dans les supraconducteurs à base de fer, on observe ainsi une distortion orthorhombique. Ceci indique l'existence d'un couplage électron–réseau, et ouvre la possibilité d'une instabilité essentiellement structurale, le fluide électronique se contentant de suivre la distortion du réseau. Pour écarter cette hypothèse, il est nécessaire d'étudier l'effet du couplage sur la réponse Raman et la susceptibilité nématique.

J'ai décrit la transition némato-structurale au chapitre 2 (section 2.2.3.1), en prenant en compte à la fois l'instabilité nématique et le couplage némato-structural (couplage entre les électrons et le réseau). Je rappelle ici le résultat important de cette discussion qui est la renormalisation de la température de transition :

$$T_S = T_0 + \frac{\lambda^2}{C_0 g \tilde{r}_0} \quad (3.54)$$

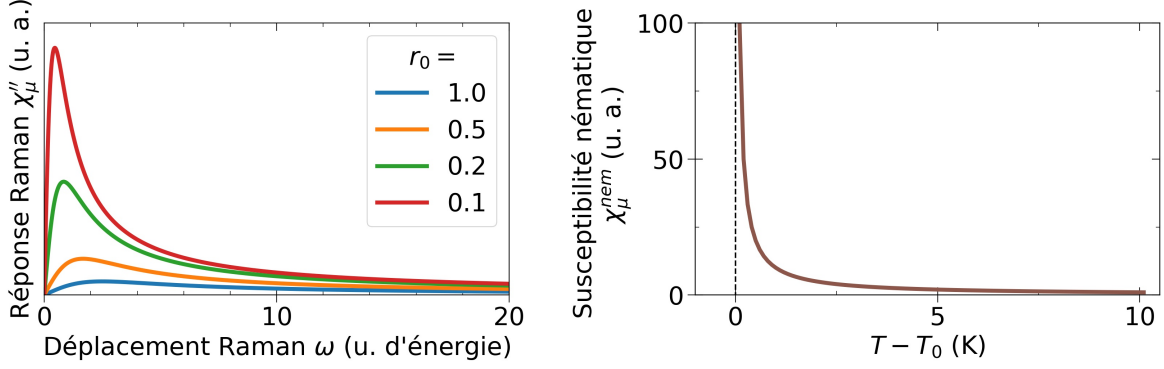


FIGURE 3.6 – Développement du pic de Drude dans la réponse Raman dans le canal nématique μ (gauche) et divergence de la susceptibilité nématique (droite) à l’approche de la transition nématique. Pour cette figure, j’ai pris l’expression de la réponse Raman Drude nématique de l’équation (3.50) et l’expression de la susceptibilité nématique de l’équation (3.53), avec les paramètres $(A_0 = |\gamma_{nem}|^2/g; \tilde{r}_0; T_0; c = g\rho_0; \Gamma) = (1; 0,1; 100; 0,1; 5)$. Les quatre courbes sur le graphique de gauche correspondent à $T = 110; 105; 102; 101$ K.

avec λ la constante de couplage némato-structural, C_0 le coefficient élastique nématique non renormalisé, et j’ai introduit les paramètres nématiques g et \tilde{r}_0 . On a $T_S > T_0$. Sous T_S , à la fois le système électronique et le réseau perdent la symétrie de rotation d’ordre 4.

Un effet du couplage concerne directement l’expression de la réponse Raman, avec l’ajout d’un terme :

$$\bar{\chi}_{nem}^{-1}(\mathbf{q}, \omega) = \chi_{nem}^{-1}(\mathbf{q}, \omega) - \frac{\lambda^2 q^2}{C_0 q^2 + \omega^2} \quad (3.55)$$

La susceptibilité nématique Raman totale (électrons et réseaux) est $\bar{\chi}_{nem}$, avec le premier terme dû aux électrons (celui qui aux limites donne χ_{nem}^0 des équations (3.48) et (3.53)), et le second dû aux phonons acoustiques. L’équation (3.55) montre que la susceptibilité inverse mesurée $\bar{\chi}_{nem}^{-1}(\mathbf{q}, \omega)$ pourrait a priori s’annuler même sans divergence de $\chi_{nem}(\mathbf{q}, \omega)$, si on a $\chi_{nem}^{-1}(\mathbf{q}, \omega) = \frac{\lambda^2 q^2}{C_0 q^2 + \omega^2}$. Ceci invaliderait l’interprétation nématique électronique de la divergence de la susceptibilité Raman observée expérimentalement. En réalité, la considération de l’ordre des limites rétablit la pertinence de cette interprétation.

En effet, précisons d’abord que l’ordre des limites $\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{0}$ et $\omega \rightarrow 0$ n’importe pas dans le cas d’une instabilité nématique purement électronique, c’est-à-dire quand elle est gouvernée par les degrés de liberté électroniques et non structuraux. En effet, on définit habituellement deux limites possibles, $\chi_{dynamique} = \lim_{\omega \rightarrow 0} \chi(\mathbf{q} = \mathbf{0}, \omega)$ et $\chi_{statique} = \lim_{q \rightarrow 0} \chi(\mathbf{q}, \omega = 0)$, qui ne sont pas égales dans le cas général. L’instabilité thermodynamique nématique induit une divergence de la susceptibilité statique, alors que la spectroscopie Raman mesure la susceptibilité dynamique. Cependant, pour une réponse Raman purement électronique, et si les électrons n’ont pas un temps de vie infini, $\chi(\mathbf{q}, \omega)$ devient analytique en $(\mathbf{q} = \mathbf{0}, \omega = 0)$, ce qui rend les deux limites identiques.

Concernant la susceptibilité nématique Raman totale $\bar{\chi}$, dans la limite dynamique sondée en Raman, le terme des phonons acoustiques disparaît, et on mesure uniquement la réponse nématique électronique. Ce résultat est essentiel, car il montre que toute réponse Raman divergente à la température de transition structurale mesurée dans le canal de la brisure de symétrie commune aux électrons et au réseau ($\bar{\chi}_{nem}$), est la mesure expérimentale d’une instabilité nématique purement électronique (χ_{nem}), et non pas d’une instabilité du réseau.

$\chi_{nem}(T)$ diverge théoriquement à T_0 (figure 3.6), mais du fait du couplage avec le réseau et de la transition orthorhombique qui annule le coefficient élastique C à T_S , la divergence de $\chi_{nem}(T)$ est nécessairement coupée à T_S . En ajustant $\chi_{nem}(T)$ par un comportement divergent, on peut cependant obtenir T_0 . Le comportement précis de $\chi_{nem}(T)$ entre T_S et T_0 n'est pas facilement prédictible avec des arguments d'ordre général, et dépend des détails microscopiques pour chaque matériau. Une possibilité, observée pour Co-Ba122, est la présence d'un maximum de χ_{nem} à T_S : χ_{nem} diminue de T_S vers T_0 .

3.3.3 Observation Raman de la susceptibilité nématique dans $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$

Au chapitre 2 (section 2.2.3.3), j'ai présenté les résultats de spectroscopie Raman dans Co-Ba122 en montrant directement les valeurs de la susceptibilité nématique dans le diagramme de phase température–dopage. Ici, en application de la discussion théorique qui précède, je reproduis des spectres Raman expérimentaux révélant le développement du pic de Drude et la divergence de la susceptibilité nématique, à comparer avec la figure théorique 3.6.

Dans le modèle présenté ci-avant, j'ai considéré un système à une bande. Les supraconducteurs à base de fer sont des systèmes multibandes, ce qui pose la question de l'applicabilité du modèle. En prenant en compte un nombre quantique orbital pouvant prendre plusieurs valeurs, on autorise différentes formes de paramètres d'ordre nématique. Ceci peut compliquer l'interprétation quantitative des données obtenues en spectroscopie Raman, car il faut prendre en compte la dépendance en \mathbf{k} du paramètre d'ordre, son intensité variant notamment d'une bande à l'autre. Mais l'interprétation qualitative de l'augmentation du poids spectral du pic de Drude par les fluctuations nématiques reste valide.

La figure 3.7 illustre l'évolution de la réponse Raman et de la conductivité Raman (réponse Raman divisée par l'énergie) à dopage nul autour de la transition structurale $T_S = 138$ K, dans les deux symétries complémentaires B_{1g} et B_{2g} . Dans la référence [79] dont est tirée la figure, la maille de référence est la maille orthorhombique à un fer : l'instabilité nématique y est donc attendue dans le canal B_{1g} . Dans cette symétrie, en abaissant la température de 308 à 142 K, le pic de Drude est exalté, puis son poids spectral diminue fortement de 134 à 83 K. La susceptibilité nématique extraite de ces spectres montre un maximum clair autour de T_S , totalement absent dans la symétrie B_{2g} .

L'évolution en dopage et en température des spectres et de la susceptibilité est illustrée en figure 3.8 : le maximum de la susceptibilité suit la température de transition structurale des différents dopages sondés. À chaque dopage, $\chi_{nem}(T)$ peut être ajustée par une loi de Curie–Weiss, ce qui permet d'extraire la température d'instabilité nématique électronique T_0 .

3.4 Diffusion Raman dans l'état supraconducteur

Dans Sr_2RuO_4 , il est techniquement délicat de sonder par spectroscopie Raman la phase supraconductrice, du fait de la très faible température critique. Dans ma thèse et dans les travaux antérieurs sur ce matériau, aucun spectre Raman n'a été acquis dans l'état supraconducteur. La discussion qui suit est donc davantage axée sur le signal Raman de la supraconductivité de Co-Ba122, auquel je me suis intéressé dans ma thèse. Plus précisément, après une brève présentation de la réponse Raman dans le cas d'un supraconducteur classique, je discute de l'influence d'une instabilité nématique sur la supraconductivité dans la réponse Raman.

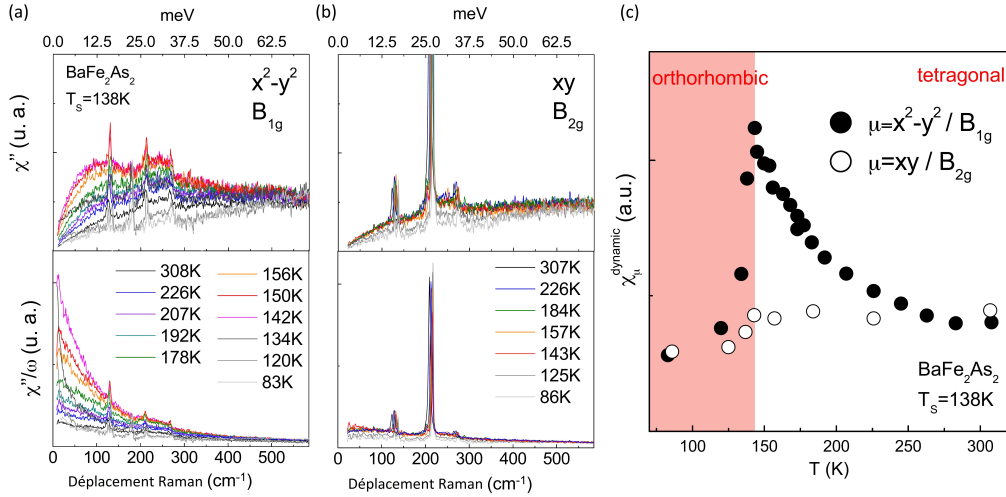


FIGURE 3.7 – (a) et (b) Réponses Raman et conductivité Raman à différentes températures dans les deux symétries B_{1g} (canal nématique) et B_{2g} . (c) Dépendance en température de la susceptibilité Raman dynamique extraite des spectres. (Figure issue de [79]).

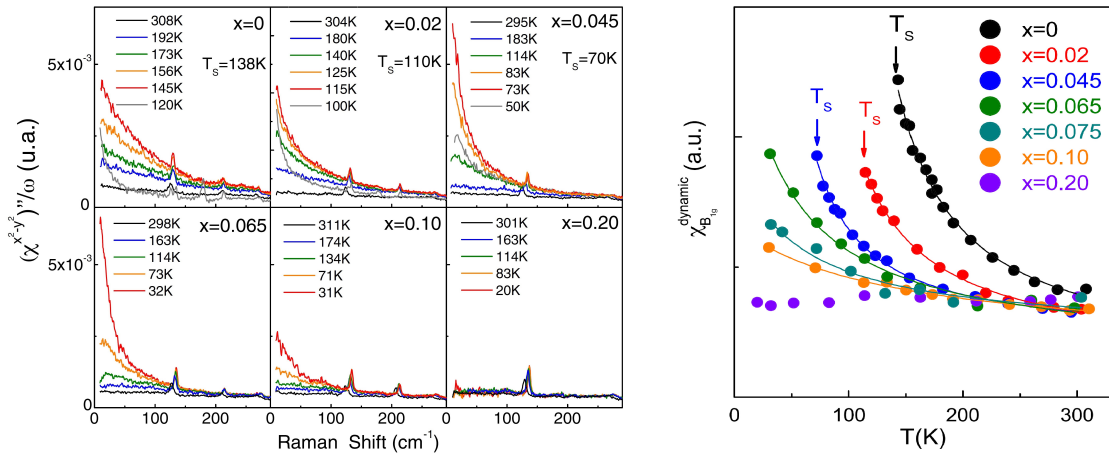


FIGURE 3.8 – (Gauche) Conductivité Raman dans le canal nématique à six dopages pour une sélection de températures. (Droite) Ajustements de la susceptibilité nématique par une loi de Curie-Weiss. (Figures issues de [78, 79]).

3.4.1 Processus de diffusion Raman dans l'état supraconducteur

Dans la phase supraconductrice, l'état fondamental à température nulle est un condensat de paires de Cooper, avec un gap de largeur 2Δ s'ouvrant au niveau de Fermi. Dans le cas d'un gap de symétrie s isotrope (la supraconductivité la plus conventionnelle), une excitation électronique n'est possible qu'en brisant une paire de Cooper, et en promouvant un électron de la paire au dessus du niveau de Fermi : ceci correspond à un processus Raman d'énergie minimale $\omega = 2\Delta$. Le processus correspondant est schématisé en figure 3.9. Le spectre Raman théorique présente donc une intensité nulle pour $\omega < 2\Delta$, puis est piqué à $\omega = 2\Delta$ (pic dit

« de paires brisées »)²⁰. Pour $T > 0$, tous les électrons ne forment pas des paires de Cooper, donc le gap n'est pas complètement formé : le pic de paires brisées augmente d'intensité progressivement de $T = T_c$ à $T = 0$ K.

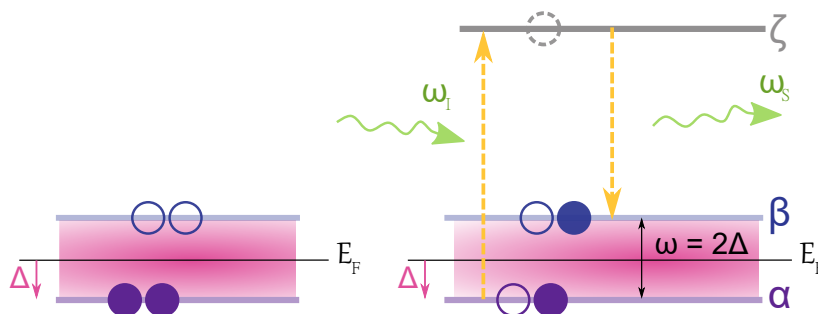


FIGURE 3.9 – Processus Raman conduisant à la brisure d'une paire de Cooper dans un supraconducteur de gap Δ . (Figure issue de [10].)

Dans de nombreux supraconducteurs non conventionnels, le gap ne s'ouvre pas de façon isotrope sur la surface de Fermi. Dans certains cas, il peut même présenter des noeuds, c'est-à-dire des régions où le gap s'annule. Les excitations deviennent alors théoriquement possibles pour $\omega < 2\Delta$, même à température nulle. Du fait de sa résolution en symétrie qui permet de sonder différentes zones de la surface de Fermi, via les symétries des vertex, la spectroscopie Raman est adaptée pour étudier la topologie du gap. La figure 3.10 présente la forme de la réponse Raman calculée pour trois topologies de gap différentes, dans le cas simplifié d'une surface de Fermi monobande circulaire. La symétrie d est notamment établie dans les cuprates ; pour les supraconducteurs à base de fer, le consensus tend vers un gap de type s^* , mais le caractère multibandes est une complexité supplémentaire (différentes symétries de gap selon les feuillettes de la surface de Fermi).

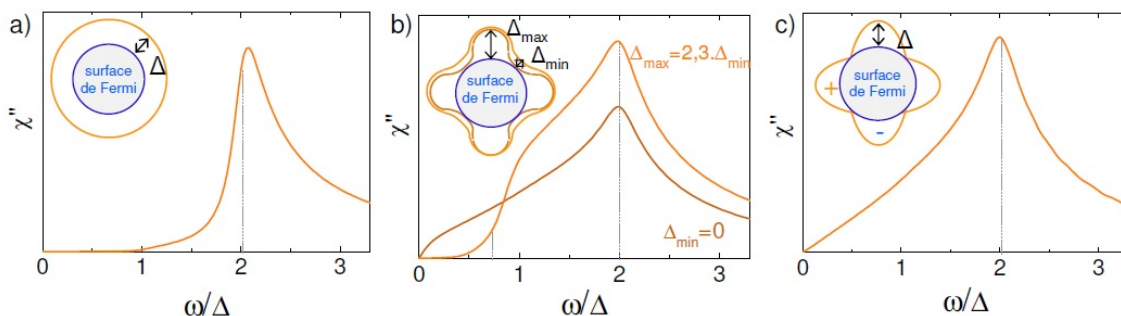


FIGURE 3.10 – Calculs numériques de la réponse Raman dans l'état supraconducteur pour une surface de Fermi circulaire, un vertex Raman constant, pour trois symétries de gap différentes : de gauche à droite : s , s^* (avec deux anisotropies différentes) et d . Dans tous les cas, la réponse est maximale au pic de paires brisées, mais la forme à basse énergie est très dépendante de la symétrie du gap. Notamment dans la symétrie d , le signal est linéaire à basse énergie. Un léger élargissement est pris en compte pour éviter les discontinuités à $\omega = 2\Delta$. (Figure issue de [47]).

20. Ce pic est une divergence de la réponse Raman : pour l'éviter, ainsi que la discontinuité dans la réponse Raman à $\omega = 2\Delta$, on considère parfois un élargissement des fonctions δ de Dirac présentes dans la réponse Raman théorique en des lorentziennes.

3.4.2 Influence d'une instabilité nématique sur l'état supraconducteur

Le diagramme de phase des supraconducteurs à base de fer présente une phase supraconductrice dans le voisinage d'une phase nématique, ce qui soulève la question de l'influence réciproque entre ces deux instabilités. Ce problème est étudié par Gallais, Paul, Chauvière et Schmalian [80], dont je résume les résultats essentiels dans cette section et dont je reprends les notations.

La proximité des phases supraconductrice et nématique amène à supposer l'existence d'un point critique quantique sous le dôme supraconducteur, donné sur le diagramme de phase par le point en $T = 0$ de la prolongation de la ligne de transition nématique. Dans l'approximation de la phase aléatoire, la réponse Raman dans le canal de némativité est donnée par :

$$\chi''_{nem,\mu}(\omega) = \text{Im} \left(\frac{\chi_{\mu}(\omega)}{1 - g\chi_{\mu}(\omega)} \right) \quad (3.56)$$

où $\chi_{\mu}(\omega)$ est la susceptibilité Raman complexe supraconductrice nue, c'est-à-dire en l'absence de couplage avec une transition nématique, dans la symétrie μ du canal nématique. g est la constante de couplage nématique définie en section 3.3.1. La formulation de l'équation (3.56) est également valable dans l'état normal, avec $\chi_{\mu}(\omega)$ une réponse de Drude, et est à la base des calculs théoriques dont j'ai présenté les résultats en section 3.3. Pour la suite, j'ometts l'indice μ , et je ne considère que la réponse Raman dans la symétrie nématique.

On se place dans le cas simple d'un gap de symétrie s isotrope. Comme expliqué ci-avant, $\chi''(\omega)$, qui est la partie imaginaire de la réponse Raman d'un supraconducteur classique, est nulle pour $\omega < 2\Delta$ ²¹. En revanche, la partie réelle $\chi'(\omega)$, qui est donnée par la transformée de Kramers–Kronig de la partie imaginaire, diverge pour $\omega \rightarrow 2\Delta$ par valeurs inférieures. On définit Ω_r par $\chi'(\Omega_r) = 1/g$. L'équation (3.56) montre que la réponse Raman diverge pour $\omega = \Omega_r$. Ce mode, dû au couplage entre l'instabilité nématique et la réponse supraconductrice, est nommé mode de résonance nématique. En plus de sa position Ω_r , il est également caractérisé par son poids spectral Z_r . On peut également définir le paramètre de réglage $\lambda = \rho g$, avec ρ la densité d'états. La figure 3.11 illustre la naissance du mode de résonance nématique, et montre que son poids spectral peut être équivalent voire supérieur à celui du pic de paires brisées classique. Un résultat important est que le mode de résonance nématique est incompatible avec un gap supraconducteur contenant des noeuds sur des surfaces de Fermi de type électron.

Quand λ augmente, le mode de résonance nématique se ramollit et gagne en intensité. Théoriquement, au point critique quantique nématique, $\Omega_r = 0$ et le poids spectral diverge. Cependant, de même que pour la divergence du pic de Drude dans le cas de fluctuations nématiques, la transition structurale pose un arrêt à l'évolution de ces paramètres. En prenant en compte le couplage avec le réseau, on obtient qu'au point critique quantique nématique, Ω_r ne s'annule pas et Z_r reste fini. Dans la phase ordonnée orthorhombique, l'évolution de ces paramètres et donc la forme de la réponse supraconductrice dépendent des particularités microscopiques de chaque matériau. On s'attend néanmoins à une diminution de l'intensité globale du mode si les fluctuations nématiques diminuent. Dans le cas de Co-Ba122 la situation est rendue complexe par la présence de l'ordre SDW, qui peut concurrencer l'ordre nématique (et donc la baisse des fluctuations nématiques) dans la suppression du mode de résonance nématique.

21. La présence d'un élargissement phénoménologique rend la réponse non nulle pour $\omega < 2\Delta$, mais suffisamment faible pour que le raisonnement qui suit reste quantitativement valide.

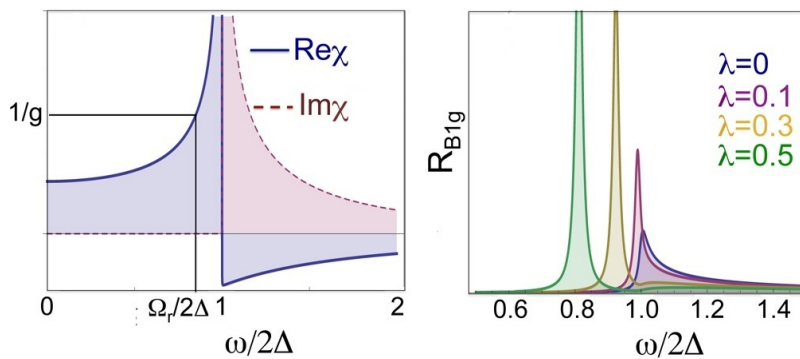


FIGURE 3.11 – Naissance du mode de résonance nématique dans la réponse Raman supraconductrice. (Gauche) Parties réelle et imaginaire de la réponse Raman supraconductrice (gap s isotrope). (Droite) Développement du mode de résonance nématique dans la réponse Raman supraconductrice (ici notée R_{B1g}) pour différentes valeurs du paramètre de réglage λ . (Figure issue de [80]).

3.4.3 Observation du mode de résonance nématique dans la réponse Raman supraconductrice des supraconducteurs à base de fer

De même que pour la réponse nématique dans l'état métallique, j'ai présenté ci-avant un raisonnement théorique valide pour un modèle à une bande, et la prise en compte du caractère multibandes des matériaux réels peut compliquer l'interprétation quantitative des spectres.

L'apparition d'un pic supraconducteur dans Co-Ba122 sous T_c au dopage optimal x_{opt} dans le canal nématique (symétrie B_{2g} dans la convention maille à 2 Fe) est illustrée en figure 3.12 (graphique gauche). Il n'est cependant pas clair a priori s'il s'agit d'un pic de paires brisées, d'un mode de résonance nématique ou d'une superposition des deux. En abaissant le dopage depuis le régime surdopé, le système se rapproche de la phase nématique et du point critique quantique : on peut donc supposer que le paramètre λ augmente, ce qui exalterait le mode de résonance nématique. La figure 3.12 (graphique central) montre la très forte dépendance du poids spectral du pic supraconducteur avec le dopage dans le régime surdopé tétragonal. T_c et donc Δ varient très peu dans cette gamme de dopage, ainsi ce comportement n'est pas cohérent avec un pic de paires brisées, ce qui permet de supposer qu'il correspond plutôt au mode de résonance nématique. Avec cette tentative d'assignation, on peut représenter l'évolution de Ω_r et Z_r avec le dopage (figure 3.12 (graphique droit)), qui montre un léger ramolissement du pic et une forte augmentation de Z_r en approchant de x_{opt} . Le comportement sous x_{opt} pour Ω_r paraît plus erratique, mais comme évoqué ci-avant, l'évolution dans la phase orthorhombique n'est pas facilement prédictible de façon générale.

Le mode de résonance nématique dans la réponse Raman supraconductrice a également été observé dans deux autres supraconducteurs à base de fer, $BaFe_2(As_{1-x}P_x)_2$ [2] et $NaFe_{1-x}Co_xAs_2$ [253]. Notamment pour ce dernier, le mode de résonance nématique est plus intense que dans Co-Ba122.

3.5 Diffusion Raman phononique

3.5.1 Processus d'activation Raman des phonons

Comme je l'ai signalé ci-avant au début de ce chapitre, le spectre Raman peut présenter des modes d'excitation des vibrations du réseau, c'est-à-dire des modes de phonons. L'activation des phonons par le champ électromagnétique est principalement indirecte, à travers

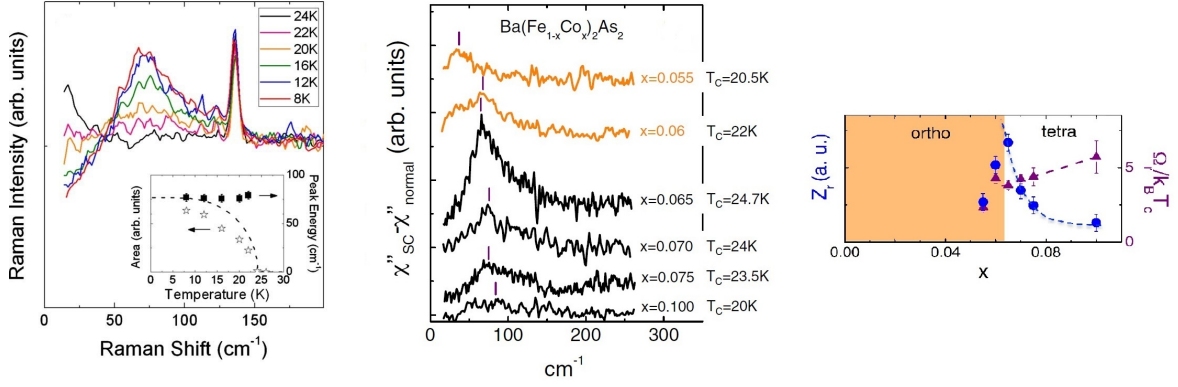


FIGURE 3.12 – Comportement du signal Raman dans la symétrie nématique B_{2g} dans la phase supraconductrice de Co-Ba122. (Gauche) Augmentation du pic supraconducteur sous T_c au dopage optimal. Le mode à 140 cm^{-1} est un mode de phonon. Encart : évolution de l'énergie du pic et de son aire avec la température. (Milieu) Dépendance en dopage du pic supraconducteur. La position estimée du pic est marquée par des traits verticaux. (Droite) Évolution en dopage des paramètres du mode de résonance nématique. (Figures issues de [44, 80].)

les interactions photon-électron et électron-phonon.

Dans une approche quantique, il faut calculer l'élément de matrice $\langle F | H' | I \rangle$ de l'hamiltonien perturbatif H' entre les états initiaux $|I\rangle$ et finaux $|F\rangle$ (cf. équation 3.1). Cet élément se calcule par la théorie des perturbations au troisième ordre :

$$\langle F | H' | I \rangle = \sum_{N, N'} \frac{\langle F | H_{e-photon} | N' \rangle \langle N' | H_{e-phonon} | N \rangle \langle N | H_{e-photon} | I \rangle}{(E_I - E_N)(E_F - E_{N'})} \quad (3.57)$$

où les états $|N\rangle$ et $|N'\rangle$ comportent respectivement zéro et un phonon. Le calcul est assez lourd, donc on adopte souvent une description semi-classique en termes de polarisation électrique des ions, en ignorant le rôle des électrons.

On définit le champ électrique $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ du faisceau incident, de pulsation ω_i , la polarisation électrique dans le milieu $\mathbf{P}(\mathbf{r}, t)$ et la susceptibilité diélectrique $\tilde{\chi}$, qu'on développe au premier ordre par rapport à de faibles déplacements atomiques $d\mathbf{u}$ (oscillations de pulsation ω_c) :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_0 \cos(\mathbf{k}_i \mathbf{r} - \omega_i t) \quad (3.58)$$

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = \epsilon_0 \tilde{\chi} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \quad (3.59)$$

$$\tilde{\chi} = \tilde{\chi}_0 + \left(\frac{\partial \tilde{\chi}}{\partial \mathbf{u}} \right)_0 d\mathbf{u} \quad (3.60)$$

$$d\mathbf{u} = \mathbf{u}_0 \cos(\mathbf{q} \mathbf{r} - \omega_c t) \quad (3.61)$$

Le terme d'ordre un du développement de la polarisation, dû à $\left(\frac{\partial \tilde{\chi}}{\partial \mathbf{u}} \right)_0$, est la polarisation induite qui conduit à l'émission de radiations de fréquences $\omega_i \pm \omega_c$. Ceci induit la création d'un mode dans les spectres Raman, centré au déplacement Raman $\omega = \pm \omega_c$. ω_c peut varier avec la température, principalement à cause des modifications des paramètres de maille et des coefficients élastiques avec la température.

3.5.2 Règles de sélection

L'intensité I du phonon s'exprime en fonction de la susceptibilité diélectrique et des polarisations \mathbf{e}_i et \mathbf{e}_s selon :

$$I(\mathbf{e}_i, \mathbf{e}_s) \propto \left| \mathbf{e}_s^* \left(\frac{\partial \tilde{\chi}}{\partial \mathbf{u}} \right)_0 d\mathbf{u} \mathbf{e}_i \right|^2 \quad (3.62)$$

Comme dans le cas du traitement quantique de la réponse Raman électronique, on peut décomposer $\tilde{\mathcal{R}} = \left(\frac{\partial \tilde{\chi}}{\partial \mathbf{u}} \right)_0 d\mathbf{u}$ sur la base des représentations irréductibles du groupe ponctuel cristallin, soit $\tilde{\mathcal{R}} = \sum_{\mu} \mathcal{R}^{\mu}$. Pour un groupe ponctuel donné, les matrices de \mathcal{R}^{μ} dans la base de la maille cristalline s'écrivent d'une façon similaire aux tenseurs Raman $\tilde{\gamma}_{\mathbf{k}}^{\mu}$ (équations (3.11) et (3.12) respectivement pour D_{4h} et D_{2h}). Les coefficients de ces matrices correspondent à $\left(\frac{\partial \tilde{\chi}}{\partial \mathbf{u}} \right)_0$, donc ont une expression particulière pour chaque phonon.

À tout phonon dans un cristal on associe une symétrie correspondant à une des représentations irréductibles du groupe ponctuel cristallin²². On obtient des règles de sélection, dictant l'activation du phonon de symétrie μ si la contraction du tenseur Raman phononique \mathcal{R} par les vecteurs de polarisations est non nulle.

3.5.3 Formes de raie des modes de phonons

Le calcul théorique précédent conduit à la forme de raie d'un mode de phonon comme une fonction δ de Dirac centrée à l'énergie ω_c . La continuité du spectre est retrouvée en introduisant un terme Γ d'amortissement, symbolisant le temps de vie fini du phonon. Le pic de Dirac s'élargit en une lorentzienne de largeur à mi-hauteur Γ centrée en ω_c . L'intensité du mode de phonon s'écrit alors :

$$I(\omega) = I_0 \frac{\Gamma/2}{(\omega - \omega_c)^2 + (\Gamma/2)^2} \quad (3.63)$$

Dans les spectres, cette allure lorentzienne peut être déformée pour plusieurs raisons. D'abord, le mode de phonon se superpose au continuum ; si celui-ci n'est pas constant, la forme effective du pic de phonon est déformée. En pratique, il faut soustraire le fond continu du spectre pour obtenir le mode de phonon pur. Plus physiquement, en présence d'un continuum électronique, le mode de phonon pur (avec soustraction du continuum) peut être affecté par le couplage électron-phonon ; la lorentzienne se déforme en une allure Fano²³ :

$$I(\omega) = I_0 \frac{(q\Gamma/2 + \omega - \omega_c)^2}{(\omega - \omega_c)^2 + (\Gamma/2)^2} \quad (3.64)$$

Plus le paramètre Fano q (qui peut être positif ou négatif) est proche de 0, plus le pic est asymétrique. La figure 3.13 compare les fonctions lorentzienne et de Fano.

Enfin, la réponse instrumentale du spectromètre est gaussienne : si le pic de phonon est fin devant la largeur de la réponse gaussienne, le pic est une distribution lorentzienne de gaussiennes, aussi appelé pic de Voigt. Si l'on cherche à ajuster un mode de phonon pour le caractériser ou pour le soustraire du continuum, il faudra choisir la forme de raie la plus pertinente.

22. Une telle assignation d'une symétrie demande de considérer les transformations restant invariantes lors du mouvement des ions correspondant au phonon.

23. En annexe A.1, je donne une formule plus détaillée de l'allure Fano, faisant ressortir les paramètres de couplage et utilisée pour ajuster les modes de phonons au chapitre 5.

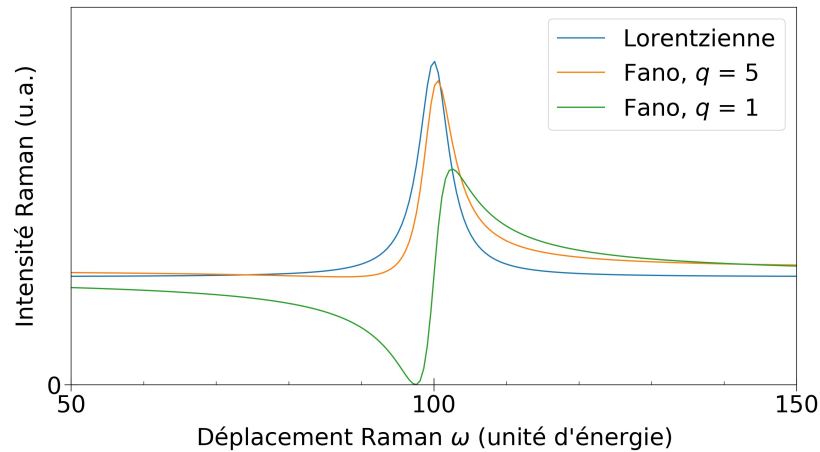


FIGURE 3.13 – Comparaison entre une forme de phonon lorentzienne et deux formes Fano, de paramètres q différents. Les trois modes ont même $\omega_c = 100$ et $\Gamma = 5$ unités d'énergie.

3.6 Réalisation expérimentale

Dans cette section, je détaille les éléments expérimentaux permettant d'acquérir des spectres Raman à différentes températures, ainsi que les étapes de traitement des spectres nécessaires pour passer d'une intensité mesurée à une réponse Raman.

3.6.1 Chemin optique

La figure 3.14 présente un schéma du chemin optique, que je vais décrire du laser jusqu'à la fente d'entrée du spectromètre.

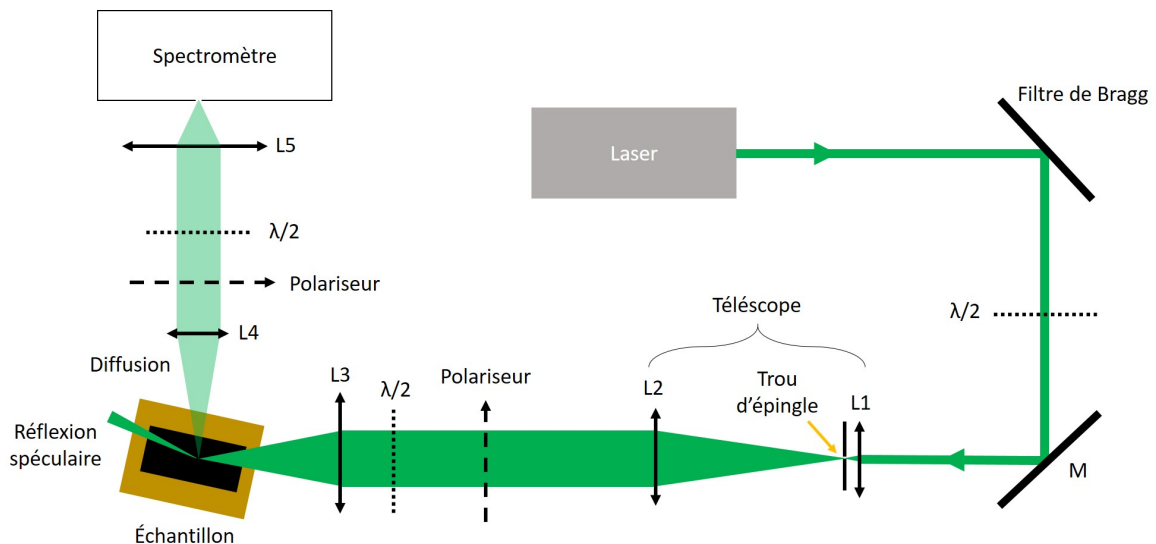


FIGURE 3.14 – Schéma du chemin optique du laser jusqu'à l'entrée du spectromètre pour la spectroscopie Raman. L1 à 5 sont des lentilles ou équivalents (objectif de microscope...), M est un miroir, $\lambda/2$ sont des lames demi-onde.

Les sources monochromatiques que j'ai utilisées sont des lasers de différentes longueurs

d'onde : laser solide Quantum Torus vert (532 nm), laser solide Cobolt Flamenco rouge (660 nm), laser solide Azur Light Systems bleu (488 nm) et un laser à gaz Ar–Kr Spectra physics, comportant plusieurs raies d'excitation entre 488 et 647 nm, dont j'ai utilisé les raies à 488, 514, 532 et 647 nm. Les puissances de laser en sortie valent quelques dizaines ou une centaine de mW, ce qui permet, avec les pertes sur le circuit, d'avoir une puissance de quelques mW sur l'échantillon. Ces lasers ne sont pas purement monochromatiques, car en plus des longueurs d'onde indiquées ils présentent des raies parasites. Ces raies sont éliminées en utilisant des filtres de Bragg en réflexion adaptés à la longueur d'onde du laser qu'on souhaite conserver.

Le faisceau monochromatique résultant a un diamètre de l'ordre du millimètre. Afin de focaliser au mieux le faisceau sur l'échantillon, il est utile d'élargir le faisceau. Ceci se fait au moyen de deux lentilles L1 et L2 formant un télescope. Dans le plan focal de L1, on place un trou d'épingle permettant de filtrer spatialement le faisceau. Ceci permet de réduire davantage la taille du point laser focalisé sur l'échantillon. J'ai utilisé un trou d'épingle de diamètre 10 μm .

La polarisation incidente est réglée par un polariseur situé juste avant la lentille de focalisation sur l'échantillon. Je n'ai utilisé que des polarisations rectilignes, donc mon montage expérimental ne comporte aucune lame quart-onde. La polarisation en sortie du laser est connue (rectiligne verticale), mais les multiples réflexions sur des miroirs ou le filtre de Bragg peuvent la modifier, d'où l'importance d'un polariseur pour la fixer sûrement juste avant l'échantillon. Dans la pratique, j'ai réglé la polarisation incidente en utilisant à la fois un polariseur et une lame demi-onde située en aval de celui-ci. En effet, en utilisant uniquement un polariseur, la puissance laser à sa sortie est modifiée lorsqu'on change son angle, et il faut changer un autre paramètre pour retrouver la puissance désirée. En fixant le polariseur à un angle donné, et en tournant la lame demi-onde pour rotationner la polarisation à l'angle voulu, la puissance n'est pas modifiée.

Une autre lame demi-onde située en amont du polariseur permet de modifier finement la puissance laser après le polariseur : en la tournant, on modifie la polarisation du faisceau juste avant le polariseur, donc on modifie la proportion du faisceau transmise par celui-ci.

La lentille L3 permet de focaliser le faisceau sur l'échantillon. Les lentilles L4 et L5 permettent d'imager le point laser de l'échantillon sur la fente d'entrée du spectromètre. Le faisceau collecté est la fraction du faisceau diffusé dans l'angle solide correspondant au diamètre de L4.

Un second polariseur permet de sélectionner une polarisation du faisceau diffusé. Comme la réponse instrumentale du spectromètre varie selon la polarisation du faisceau en entrée, il est nécessaire d'utiliser une lame demi-onde en aval de ce polariseur pour garder une direction de polarisation à l'entrée du spectromètre constante malgré les changements d'angle du polariseur de collection.

J'ai utilisé deux dispositifs Raman différents, notés dispositifs 1 et 2, qui correspondent tous deux au schéma de la figure 3.14. Ils diffèrent par quelques détails mineurs (parcours du faisceau, optiques utilisées...), mais surtout par la géométrie des faisceaux incident et diffusé par rapport à l'échantillon (figure 3.15).

Dans le dispositif 2, les optiques de focalisation sur l'échantillon et de collection du faisceau diffusé sont fixées orthogonalement l'une par rapport à l'autre, de telle sorte que les directions des faisceaux incident et diffusé sont nécessairement à 90° l'une de l'autre. Dans ce cas, il est impossible que l'une des deux directions soit normale à la surface de l'échantillon. On choisit souvent un angle d'incidence²⁴ d'environ $60\text{--}65^\circ$: il est proche des angles de

24. L'angle d'incidence est défini comme l'angle entre la normale à la surface de l'échantillon et le faisceau incident.

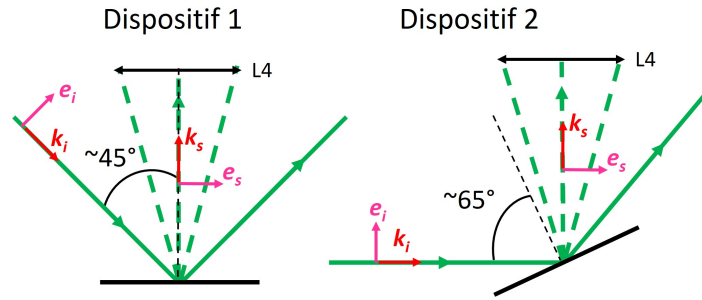


FIGURE 3.15 – Schéma de la géométrie d'incidence et de collection des faisceaux dans les deux dispositifs utilisés. Les lignes pleines vertes sont les faisceaux incident et réfléchi, les lignes tiretées vertes représentent la lumière diffusée collectée dans l'optique L4. Les lignes tiretées noires représentent la direction normale à l'échantillon, les angles indiqués sont les angles d'incidence. Pour les faisceaux incident et diffusé, les flèches rouges et roses correspondent respectivement aux directions des vecteurs d'onde (propagation du faisceau) et des vecteurs de polarisation.

Brewster²⁵ des matériaux étudiés, ce qui permet de maximiser la lumière transmise dans l'échantillon, et l'éventuelle réflexion n'entre pas dans la lentille de collection. Dans cette configuration, le faisceau incident réfracté à l'interface et se propageant dans l'échantillon, ainsi que le faisceau diffusé dans la direction de collection, ont une composante de polarisation substantielle selon la direction normale à la surface de l'échantillon²⁶.

Dans le dispositif 1, les optiques de focalisation sur l'échantillon et de collection du faisceau diffusé sont amovibles, de telle sorte que les directions des faisceaux incident et diffusé peuvent être modifiées. Dans la pratique, elles sont contraintes par les tailles des fenêtres optiques du cryostat et par la nécessité d'éviter toute réflexion dans la lentille de collection. J'ai utilisé une configuration en pseudorétrodiffusion, avec la direction de collection normale par rapport à la surface de l'échantillon, et un angle incident d'environ 45°. Cette configuration est plus éloignée de l'angle de Brewster, mais les composantes des polarisations normales à la surface de l'échantillon sont limitées, ce qui est appréciable si on veut sonder des symétries le plus purement possible.

3.6.2 Spectromètre

Le spectromètre permet de séparer spatialement les photons du faisceau diffusé selon leur énergie, grâce à un réseau de diffraction. Ces photons sont envoyés sur une caméra CCD, et leur position sur la caméra correspond à leur énergie. La caméra CCD lit électroniquement les photons reçus. On peut alors tracer un spectre Raman du nombre de coups reçus par la caméra CCD selon l'énergie.

3.6.2.1 Réjection de la raie élastique

Un des enjeux principaux de la diffusion Raman est d'obtenir le signal aux plus bas déplacements Raman possibles, ce qui est empêché par la diffusion Rayleigh. Celle-ci est théoriquement à $\omega = 0$, mais en réalité, de par sa grande intensité, le pic de diffusion acquiert une largeur bien supérieure aux déplacements Raman intéressants. Il faut donc filtrer la composante Rayleigh. La première méthode consiste simplement à placer un filtre à l'entrée

25. L'angle de Brewster correspond à l'angle d'incidence pour lequel l'intégralité du faisceau incident est transmis à l'interface avec l'échantillon, si la polarisation est contenue dans le plan d'incidence.

26. Je rappelle que la polarisation d'un faisceau, qui est la direction du champ électrique propagé par la lumière, est orthogonale à la direction de propagation du faisceau. Dans le cas d'une polarisation rectiligne, cette direction est constante en temps et uniforme en position le long du faisceau.

du spectromètre, correspondant à la longueur d'onde du laser, et coupant typiquement le signal sous $\omega = 80 \text{ cm}^{-1}$. Ceci n'est pas suffisant pour les matériaux que j'étudie, pour lesquels on souhaite accéder au moins à environ $10\text{--}20 \text{ cm}^{-1}$. Dans ce cas, on utilise un dispositif appelé prémonochromateur avant le spectromètre. L'ensemble du prémonochromateur et du spectromètre est aussi appelé spectromètre en mode triple²⁷, quand le spectromètre seul est appelé spectromètre en mode simple.

En effet, le prémonochromateur est un dispositif comportant deux réseaux de diffraction, soit un total de trois réseaux pour l'ensemble du prémonochromateur et du spectromètre. Le schéma de principe du spectromètre en mode triple est présenté en figure 3.16. Après l'entrée dans le prémonochromateur par la fente 1, un premier réseau sépare les différentes énergies, et les énergies proches de la raie élastique sont éliminées par la fente 2. À ce stade, on pourrait imaginer placer dès la sortie de la fente 2 la caméra CCD, car théoriquement la raie élastique a été filtrée. Cependant, en pratique, de nombreux rayons hors axe optique²⁸, principalement d'énergie ω_i , sont présents dans la première chambre du prémonochromateur, entre les fentes 1 et 2. Ils sont dus à des diffusions du faisceau collecté sur des poussières ou sur les imperfections des miroirs et réseaux de la chambre. Également, des rayons lumineux de l'extérieur qui ne sont pas issus de la diffusion du point laser sur l'échantillon peuvent pénétrer dans le prémonochromateur par la fente 1 malgré sa finesse, et ces rayons sont a priori hors axe optique.

Il est nécessaire de filtrer ces rayons hors axe optique en faisant repasser le faisceau diffusé par une fente fine. Un second réseau, placé dans la seconde chambre du prémonochromateur, recombine donc le signal, délesté des énergies éliminées par la fente 2. Ce signal entre dans le spectromètre par la fente fine 3. Ainsi, le filtrage spatial par la fente 2 et la recombinaison dans une fente fine avant l'entrée dans la chambre de la caméra CCD limitent fortement l'impact des photons de la diffusion Rayleigh sur la caméra CCD. Le troisième réseau, celui du spectromètre, disperse enfin les énergies sur la caméra CCD, comme en mode simple. Un désavantage du mode triple par rapport au mode simple est que le signal collecté subit des réflexions supplémentaires sur huit miroirs et deux réseaux, ce qui diminue fortement l'intensité mesurée.

3.6.2.2 Paramètres importants du spectromètre

La gamme d'énergie accessible en un spectre est limitée par la taille de la caméra CCD ; en modifiant l'angle du réseau 3 par rapport à la caméra, on change la gamme de déplacements Raman des photons arrivant sur celle-ci. La dispersion spatiale augmente quand on choisit une gamme de déplacements Raman plus élevés, mais comme la taille de la CCD ne change pas, la fenêtre spectrale accessible diminue. En augmentant le nombre de traits du réseau, on augmente la dispersion des énergies et donc la gamme spectrale accessible sur la caméra est davantage réduite. Typiquement, pour un laser à 532 nm et un réseau de 1800 traits par mm , la fenêtre d'énergie accessible est d'environ 600 cm^{-1} pour un centrage de la fenêtre vers 300 cm^{-1} ; pour un réseau de 600 traits par mm , elle est d'environ 2000 cm^{-1} pour un centrage vers 1000 cm^{-1} . La dispersion des réseaux augmente quand la longueur d'onde du laser diminue. En pratique, j'ai utilisé trois réseaux 1800 traits par mm en mode triple, et un réseau 600 traits par mm en mode simple.

Le profil de chaque composante en énergie du faisceau diffracté est gaussien. Il faut que la largeur de chaque gaussienne du spectre continu soit suffisamment fine par rapport à la précision en énergie souhaitée. Je définis la résolution comme la largeur des profils

27. Plus précisément, j'ai utilisé le mode triple soustractif, par opposition au mode triple additif qui constitue une autre méthode d'expulsion de la raie élastique.

28. L'axe optique est défini comme la direction de propagation du faisceau diffusé collecté, entre sa diffusion et son impact sur la CCD.

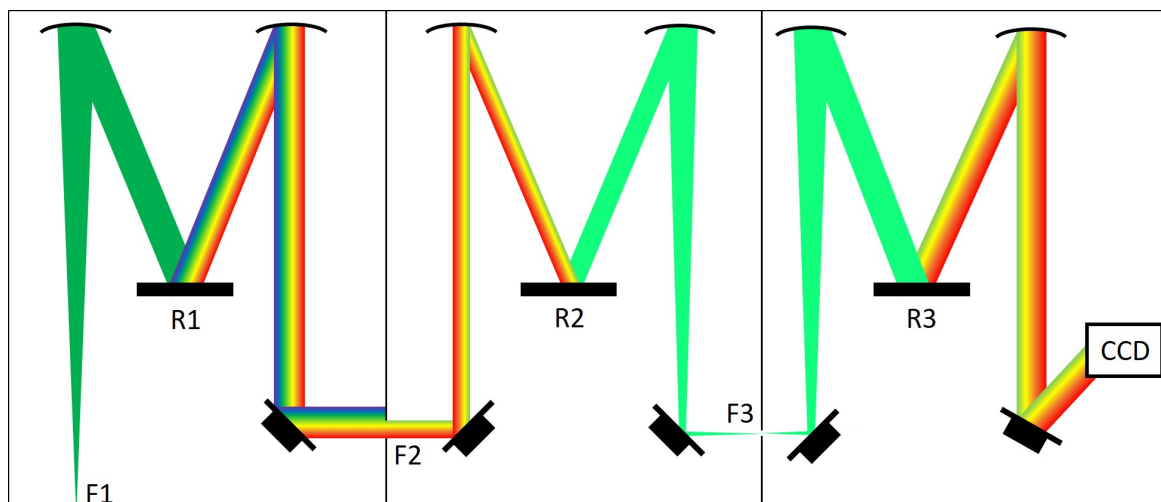


FIGURE 3.16 – Schéma du spectromètre en mode triple soustractif. Les R sont les réseaux, les F les fentes. Les autres constituants sont des miroirs simples ou paraboliques, et l’enceinte. J’ai schématisé plus précisément le cas d’un laser incident vert (par exemple 532 nm), avec une expulsion de la raie élastique et un centrage de la gamme spectrale sur les déplacements Raman positifs (soit les processus Stokes, donc les énergies diffusées sont inférieures à l’énergie incidente, du vert au rouge).

gaussiens : avec cette définition, on cherche donc la résolution la plus petite possible. La résolution diminue en diminuant la taille de l’image du point laser sur la fente d’entrée du spectromètre : en pratique, cette taille est réglée en changeant la taille de la fente d’entrée F1. J’ai réglé la fente²⁹ à 150 μm , ce qui à 532 nm correspond à une résolution de 2–3 cm^{-1} pour les réseaux à 1800 traits par mm dans le dispositif utilisé [36]. À 600 traits par mm, la résolution est trois fois plus grande. En diminuant la taille de la fente d’entrée et donc la résolution, on diminue également la largeur de la raie élastique, et on peut accéder à des déplacements Raman plus faibles. La résolution est également théoriquement limitée par la taille des pixels de la caméra CCD : en 1800 traits par mm, cette taille correspond à environ 0,6 cm^{-1} , donc la taille des pixels n’est pas limitante. Il est même utile de moyenner le signal sur les pixels voisins pour diminuer le bruit expérimental. La résolution de 2–3 cm^{-1} est suffisante pour l’étude du continuum électronique à basse énergie. Par contre, pour des pics de phonon dont la demi-largeur à mi-hauteur est de l’ordre de grandeur de cette résolution, cela implique de prendre en considération la réponse instrumentale pour ajuster les raies (typiquement en considérant une distribution lorentzienne de gaussiennes centrée sur l’énergie du phonon).

Comme le facteur d’agrandissement du prémonochromateur vaut 1, la fente d’entrée du prémonochromateur F1 doit être ouverte à la même largeur que celle du spectromètre F3. La fente intermédiaire du prémonochromateur F2 peut être rétrécie pour imposer des pulsations de coupure inférieure et supérieure au sein de la fenêtre spectrale, ce qui permet notamment de déterminer l’intensité du courant noir (voir la section 3.6.5).

Le bruit expérimental de l’intensité mesurée est poissonien, ce qui signifie qu’il diminue en l’inverse de la racine du temps d’acquisition. La limite principale de l’acquisition des spectres à des temps longs (supérieurs à une heure) est la présence de nombreux pics dus à l’impact de rayons cosmiques sur la caméra CCD, qu’on appelle *spikes*. Cependant, comme

29. Dans le prémonochromateur et le spectromètre des dispositifs utilisés, les réseaux diffractent selon la direction verticale, donc la dimension importante des fentes F1 et F3 est selon la verticale. Selon l’horizontale, on peut également rétrécir la fente pour limiter les rayons hors axe optique d’origine extrinsèque.

les positions de ces *spikes* sont aléatoires, on ne les retrouve statistiquement pas au même endroit de la CCD, donc à la même énergie, entre plusieurs spectres acquis dans les mêmes conditions : on peut moyenniser plusieurs spectres de temps inférieur à une heure obtenus dans les mêmes conditions pour obtenir un spectre effectif de plusieurs heures. Une seconde limite instrumentale au moyennage de plusieurs spectres est la présence d'un bruit de lecture de quelques coups, indépendant du temps d'acquisition. Comme le temps d'acquisition d'un spectre est limité par les *spikes*, ce bruit de lecture est un bruit minimal sur le spectre final. Les spectres effectifs obtenus sur Sr_2RuO_4 à faible puissance laser (2 mW) ont une durée typique d'une heure, répartie en trois ou quatre spectres. Pour BaFe_2As_2 à faible puissance (1–2 mW), il s'agit plutôt de spectres d'une dizaine à une vingtaine d'heures, répartis en acquisitions d'une heure. L'augmentation de la puissance laser permet de diminuer le temps d'acquisition, mais augmente l'échauffement (voir la section 3.6.5). Les spectres sont obtenus en coups par seconde, de telle sorte que deux spectres acquis dans des conditions identiques hormis le temps d'acquisition sont identiques au bruit près.

3.6.3 État de surface des échantillons

La spectroscopie Raman est décrite comme une méthode permettant de sonder les excitations de volume (en anglais *bulk*) d'un échantillon. Cependant, le champ électromagnétique incident pénètre dans l'échantillon via sa surface, et si l'épaisseur de pénétration est faible, par exemple seulement quelques mailles élémentaires, les excitations observées ne sont sans doute pas représentatives du volume. L'épaisseur sondée correspond à la profondeur de pénétration $\delta = \frac{\lambda}{4\pi\kappa}$, avec λ la longueur d'onde et κ la partie imaginaire de l'indice de réfraction. Pour Sr_2RuO_4 , à partir des données de fonction diélectrique [243] dont les parties réelle et imaginaire valent respectivement environ 2,5 et 1,5 à 2,3 eV, je calcule κ et obtiens $\delta \approx 100$ nm, ce qui correspond à une dizaine de fois le paramètre de maille c . Pour Co-Ba122, Ludivine Chauvière a estimé dans sa thèse [47] une longueur de pénétration de 42 nm, ce qui correspond à une quarantaine de cellules élémentaires.

Dans le cas d'une surface de mauvaise qualité présentant des impuretés ou des fissures, le problème de sonder uniquement les excitations du matériau en volume est accentué. De plus, ces impuretés et fissures sont une source de diffusion élastique. Dans ce cas, si le point laser focalisé sur l'échantillon n'est pas assez petit pour ne contenir qu'une surface suffisamment propre, il est nécessaire de traiter la surface de l'échantillon. En particulier pour mes travaux, j'ai dû polir certains échantillons de Sr_2RuO_4 . Le polissage consiste à frotter la surface de l'échantillon sur une pâte contenant des diamants, dont le diamètre correspond à la corrugation finale désirée de la surface. Plus précisément, l'échantillon est fixé par de la cire sur un verre de montre, ce qui permet de le manipuler et le frotter sur la pâte diamantée déposée sur un feutre. J'ai utilisé des diamants de diamètre minimal 0,1 μm . La figure 3.17 compare l'état de surface d'un échantillon avant, pendant et après polissage.

3.6.4 Cryogénie

Les propriétés d'un matériau dépendant de la température, il est primordial d'acquérir des spectres à différentes températures, notamment aux températures les plus basses auxquelles les propriétés quantiques se manifestent. Ceci est possible en plaçant l'échantillon dans un cryostat.

J'ai utilisé deux cryostats, chacun associé à un des deux dispositifs Raman. Chacun des deux cryostats fonctionne avec un cycle thermodynamique impliquant de l'hélium, ce qui leur permet d'atteindre des températures minimales inférieures à 10 K au niveau du « doigt froid », la zone du cryostat la plus froide, en contact avec le réservoir d'hélium. Plus précisément, le cryostat du dispositif 1, de marque *Absolut System* (AS), a une température

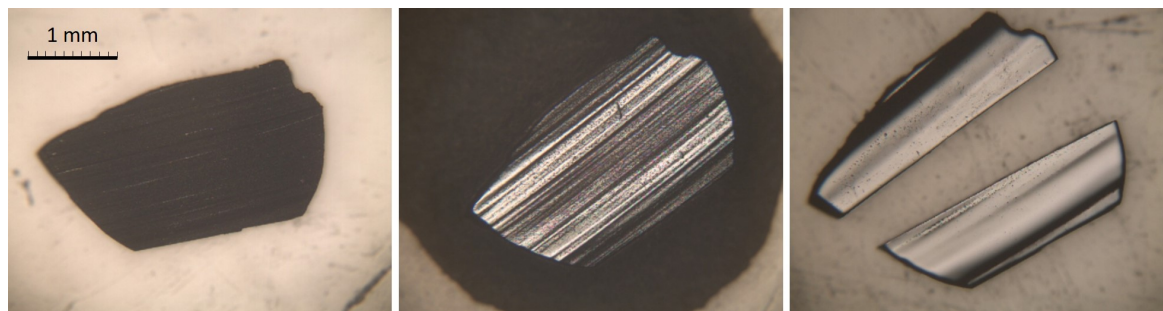


FIGURE 3.17 – État de surface d'un échantillon de Sr_2RuO_4 avant, pendant et après polissage. Au cours du polissage, l'échantillon s'est clivé le long d'un axe cristallin.

minimale de 2,9 K, et le cryostat du dispositif 2, de marque *Advanced Research System* (ARS), de 7 K. La température au niveau de l'échantillon est cependant plus élevée, car l'échantillon est disposé à environ 20 cm du doigt froid, près des fenêtres optiques qui provoquent des transferts de chaleur par rayonnement : les températures minimales au niveau de l'échantillon sont d'environ 4 K et 10 K respectivement pour les cryostats AS et ARS.

L'échantillon est placé sur un support en cuivre pour maximiser le transfert thermique avec le doigt froid³⁰ ; il est fixé au support par de la laque d'argent, qui est également un bon conducteur thermique. La température est mesurée par un capteur de type diode silicium, placé en contact avec le support en cuivre, à quelques cm de l'échantillon. Lorsque le compresseur du cryostat est mis en route, la température de l'enceinte diminue jusqu'à la température minimale, de façon trop rapide pour acquérir des spectres pendant la descente. Pour fixer une température intermédiaire entre la minimale et l'ambiante, des résistances chauffantes sont placées dans le cryostat. Un appareil de la marque *Lakeshore* permet simultanément d'afficher la température mesurée par le capteur et de faire varier l'intensité électrique circulant dans les résistances pour fixer la température à une consigne donnée.

Avant de descendre en température, un vide secondaire d'ordre 10^{-5} mbar est imposé dans l'enceinte du cryostat. Par cryopompage, la pression dans le cryostat aux plus faibles températures peut atteindre 10^{-7} mbar.

3.6.5 Traitement des données expérimentales

Un traitement en plusieurs étapes est nécessaire à partir des intensités $I(\omega)$ des spectres bruts expérimentaux pour obtenir les réponses Raman $\chi''(\omega)$. Dans cette section je prends comme exemple des spectres obtenus sur mes différents échantillons.

3.6.5.1 Élimination des artefacts de la CCD

Les spectres bruts présentent un fond constant dû à l'acquisition électronique, appelé « courant noir », qu'il faut soustraire. On peut déterminer son intensité en étudiant le spectre au-delà de la pulsation de coupure expérimentale supérieure : la moyenne de l'intensité dans cette zone qui ne reçoit pas de photons correspond au courant noir. L'intensité du courant noir en coups par seconde diminue avec le temps d'acquisition, mais elle est toujours supérieure au bruit de photon, on peut donc la soustraire de façon précise.

Les *spikes* peuvent être retirés automatiquement par le logiciel d'acquisition des spectres, si l'on acquiert au moins deux spectres dans les mêmes conditions qu'il peut comparer.

30. La description du montage de l'échantillon dans le cryostat avec le dispositif de contrainte uniaxiale est décrit au chapitre 4.

Personnellement, j'ai préféré retirer les *spikes* manuellement, car la correction automatique peut déformer légèrement le continuum si elle n'est pas correctement réalisée. Je moyenne ensuite les spectres acquis dans les mêmes conditions pour avoir un spectre effectif. Ces traitements (soustraction du courant noir, suppression des spikes, moyennage) sont présentés en figure 3.18.

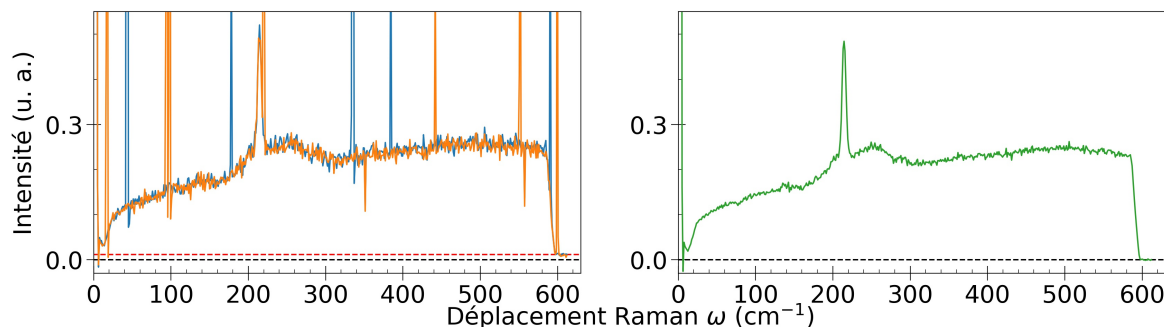


FIGURE 3.18 – (Gauche) Deux spectres bruts acquis exactement dans les mêmes conditions. Hormis le mode de phonon vers 210 cm^{-1} , tous les pics étroits sont des *spikes* : chacun n'est présent que sur un des deux spectres. La remontée sous 10 cm^{-1} est due à la diffusion élastique. La ligne tiretée noire indique l'intensité nulle, la ligne tiretée rouge indique l'intensité du courant noir. (Droite) Spectre traité : suppression des divers artefacts et moyennage sur 9 spectres. (Spectres de BaFe_2As_2 dopé 7 % Co en $A_{1g} + B_{1g}$ à 26 K.)

3.6.5.2 Pulsations de coupure et raccordement de plages

Si la fente intermédiaire du prémonochromateur est choisie suffisamment fine, seule une partie de la gamme spectrale de la caméra CCD est illuminée. Les bordures du spectre doivent donc être retirées. La coupure d'énergie supérieure est souvent simple à déterminer. À cause de la diffusion élastique, cela peut être plus subtile pour la coupure d'énergie inférieure. Pour la déterminer, on peut acquérir plusieurs spectres dans les mêmes conditions hormis le centrage de la gamme spectrale. En se plaçant proche de la limite de filtrage de la diffusion élastique, on détermine le centrage limite au-dessus duquel la diffusion élastique n'influe pas, et la pulsation de coupure correspondante.

Pour obtenir un spectre sur une gamme d'énergie plus grande que la fenêtre spectrale de la caméra CCD, on peut acquérir plusieurs spectres en décalant le centrage de la fenêtre, puis les raccorder.

Les traitements de coupure et de raccordement sont présentés sur la figure 3.19. Le spectre obtenu correspond à l'intensité Raman expérimentale.

3.6.5.3 Facteur de Bose et coefficient de réponse du spectromètre

À partir de l'intensité Raman expérimentale $I(\omega, T)$, on obtient la réponse Raman $\chi''(\omega, T)$ en appliquant deux facteurs.

Le premier est le facteur de Bose (équation (3.6)). Ce facteur agit principalement sur les basses énergies à haute température, en diminuant l'intensité. Comme ce facteur dépend de la température, il faut connaître de façon suffisamment précise la température réelle de l'échantillon. Celle-ci peut être différente de la température mesurée par la sonde de température, d'abord du fait de son éloignement (d'autant plus quand le support de l'échantillon et de la sonde n'est pas en cuivre, comme c'est le cas pour le dispositif de contrainte uniaxiale), ensuite, plus critique, du fait de l'échauffement laser. En effet, la puissance lumineuse

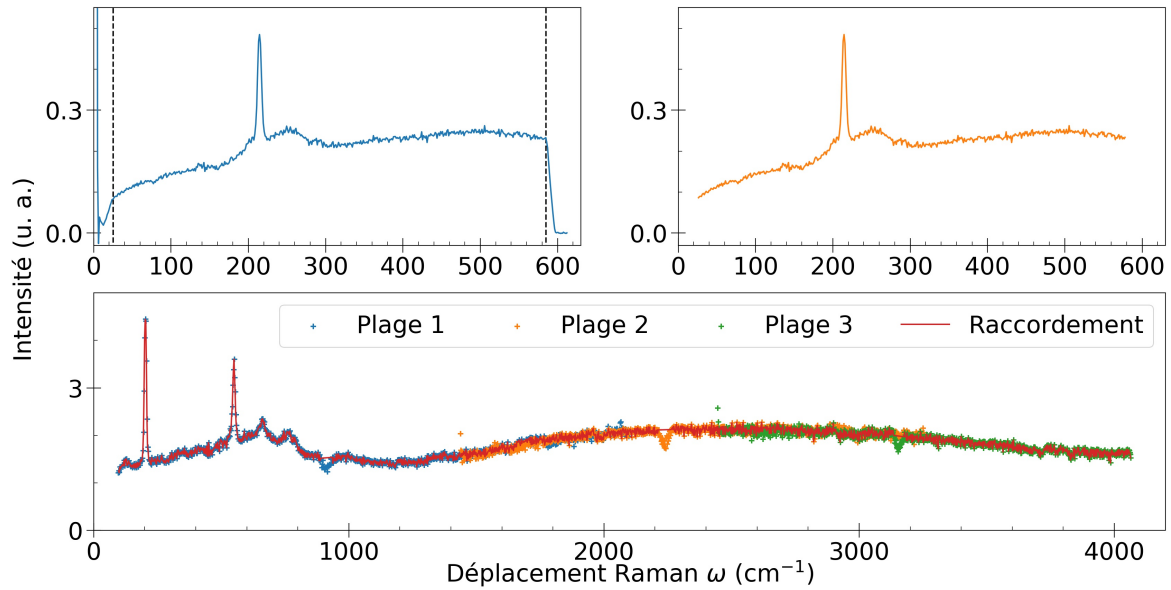


FIGURE 3.19 – (Haut) Spectre avant (gauche) et après coupure (droite) des zones non illuminées en bordure de la CCD. Les lignes tiretées encadrent la zone conservée. (Spectre de BaFe_2As_2 dopé 7 % Co en $A_{1g} + B_{1g}$ à 26 K.) (Bas) Raccordement de trois spectres. Les creux à 900, 2250 et 3100 sont des artefacts de la CCD du dispositif 2. (Spectre de Sr_2RuO_4 en $A_{1g} + B_{2g}$ à 104 K.)

apportée par le laser induit un échauffement de l'échantillon. Sa dissipation à travers le porte-échantillon peut ne pas être suffisante. L'échauffement dépend donc de la puissance laser, du matériau et du support de l'échantillon. J'explique comment je l'ai déterminé dans mes expériences dans les chapitres 5 et 6 respectivement pour Co-Ba122 et Sr_2RuO_4 .

Le coefficient de réflexion des réseaux de diffraction dépend de la longueur d'onde du faisceau. Il faut donc prendre en compte un coefficient de réponse du spectromètre, dû aux trois réflexions sur des réseaux, qui dépend de la longueur d'onde incidente. Ce coefficient pour les dispositifs Raman que j'ai utilisés est connu. À 532 nm, ce coefficient augmente l'intensité quand l'énergie augmente. Je l'ai appliqué systématiquement pour les spectres obtenus pour Sr_2RuO_4 , car la forme des spectres était importante pour leur analyse. Pour les spectres obtenus sur Co-Ba122, l'étude résidant essentiellement dans l'influence de la contrainte uniaxiale, une approche comparative des spectres selon la contrainte rend ce coefficient moins crucial, et je ne l'ai donc pas appliqué. La figure 3.20 illustre l'impact de ces deux facteurs.

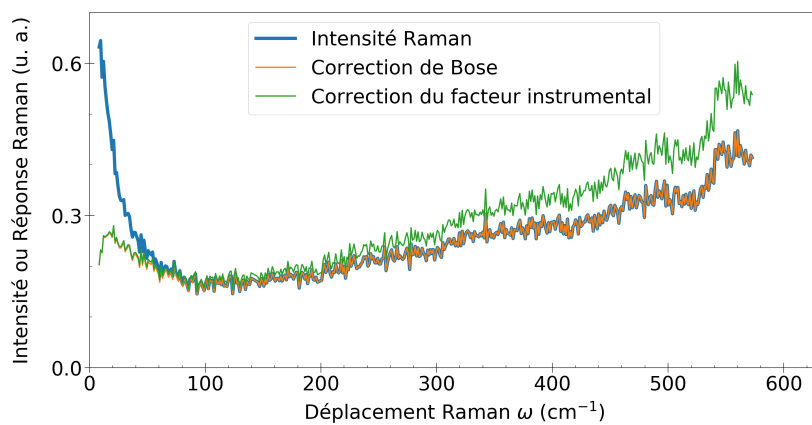


FIGURE 3.20 – Influence du facteur de Bose ($T = 33$ K) et du coefficient de réponse du spectromètre (à 532 nm) sur l'intensité Raman mesurée, pour obtenir la réponse Raman finale. (Spectre de Sr_2RuO_4 en symétrie B_{1g} .)

Chapitre 4

Dispositif de spectroscopie élasto-Raman

He wanted to glorify the leaders of forlorn hopes, the mad lovers, the giants that fought under stress and strain, amid terror and tragedy, making life crackle with the strength of their endeavor.

Jack London, *Martin Eden* (1909)

Pour étudier les matériaux quantiques, il est intéressant d'explorer l'évolution de leurs propriétés à mesure que des paramètres sont modifiés. Des paramètres couramment utilisés sont la température, le dopage, ou encore les champs électriques ou magnétiques. La réponse des échantillons sous contrainte mécanique est un champ de recherche actif. Elles peuvent être appliquées de façon isotrope sur l'échantillon : on parle alors de pression hydrostatique. Des résultats marquants ont été obtenus par l'application d'une pression hydrostatique, par exemple l'augmentation de la température critique de matériaux déjà supraconducteurs à pression ambiante¹, ou plus récemment la création de supraconductivité dans les composés hydrogénés à très haute température critique². L'utilisation de cellules à base d'enclumes diamants et d'hélium comme fluide compressif permet d'appliquer de grandes pressions hydrostatiques de façon contrôlée; ce type de système peut être couplé à un dispositif de spectroscopie Raman pour mesurer l'évolution de la réponse Raman sous pression hydrostatique. Un tel montage expérimental a été utilisé à plusieurs reprises dans mon équipe de recherche au laboratoire MPQ, notamment sur les matériaux multiferroïques [9, 254], les dichalcogénures à métaux de transition [90], les mercurates [10] et le supraconducteur à base de fer FeSe [179].

Selon les matériaux, il peut aussi être intéressant d'appliquer des contraintes mécaniques de façon discriminée selon certains axes cristallographiques, avec notamment des contraintes biaxiales ou uniaxiales. En particulier, une contrainte uniaxiale est un champ externe qui se couple au paramètre d'ordre nématique, pertinent notamment dans les supraconducteurs à base de fer. Les techniques de contrainte uniaxiale ont cependant été relativement peu utilisées par rapport à la pression hydrostatique, du fait de difficultés techniques : il s'agit d'appliquer des contraintes bien contrôlées en direction et en magnitude, sur des échantillons

1. Par exemple, la température critique du mercurate $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+\delta}$ passe de 135 K à pression ambiante (le record à pression ambiante) à 164 K sous 30 GPa [83].

2. Ce domaine de recherche a été lancé avec la découverte de la supraconductivité de H_2S à 203 K sous 150 GPa [64], et a culminé récemment avec celle d'un hydrure de carbone et de soufre à 15°C à 270 GPa [236]. Ce dernier résultat est cependant largement débattu, le phénomène observé pouvant ne pas être lié à la supraconductivité [101].

souvent de petites tailles (de l'ordre du centimètre ou du millimètre), tout en adaptant les dispositifs aux spécificités de chaque technique expérimentale. Par exemple, en spectroscopie Raman, la surface de l'échantillon doit être accessible optiquement.

Des résultats de transport électronique sous contrainte uniaxiale sur Sr_2RuO_4 publiés en 2014 [100] ont relancé l'intérêt pour cette technique, notamment grâce à l'invention d'un nouveau type de cellule, permettant l'application d'une contrainte uniaxiale bien contrôlée amenant une déformation relativement forte (de l'ordre de 1 %). De nombreuses études ont été récemment publiées concernant Sr_2RuO_4 ou les supraconducteurs à base de fer, en couplant l'utilisation d'une technique expérimentale classique (transport, diffusion de neutrons, ARPES...) avec l'application d'une contrainte uniaxiale grâce à ces nouveaux dispositifs. Ce cadre de recherche motive la mise en place d'un dispositif couplant contrainte uniaxiale et spectroscopie Raman, que j'ai baptisé dispositif de spectroscopie élasto-Raman.

Dans ce chapitre, je présente d'abord les aspects théoriques de l'application d'une contrainte uniaxiale sur un échantillon. J'évoque les différentes méthodes pour appliquer expérimentalement une contrainte uniaxiale, avant de me focaliser sur le type de dispositif actuellement le plus utilisé suite aux travaux de Hicks et collaboratrices [100], en expliquant spécifiquement comment je l'ai intégré au montage expérimental de spectroscopie Raman. Pour les considérations théoriques et les explications techniques générales du dispositif de contrainte uniaxiale, je me suis notamment appuyé, en plus des sources citées dans la suite, sur la thèse de Mark Edward Barber [14].

Sommaire

4.1 Principes de la contrainte uniaxiale	91
4.1.1 Définitions	91
4.1.2 Décomposition de la déformation en représentations irréductibles	93
4.2 Dispositif de contrainte uniaxiale Razorbill CS130	96
4.2.1 Dispositifs antérieurs de contrainte uniaxiale	96
4.2.2 Historique des nouvelles cellules de contrainte uniaxiale	97
4.2.3 Principe de fonctionnement de la cellule CS130	98
4.2.4 Préparation d'une expérience de contrainte uniaxiale sur la cellule CS130	100
4.2.4.1 Géométrie du montage	100
4.2.4.2 Choix des paramètres de montage et des dimensions de l'échantillon	101
4.2.4.3 Montage de l'échantillon	102
4.2.5 Application de la contrainte et mesure du déplacement dans le cryostat	105
4.2.6 Détermination du point neutre de déformation nulle	108
4.2.7 Déformation réelle de l'échantillon : estimations par simulations numériques	110
4.2.7.1 Importance de l'estimation de la déformation réelle	110
4.2.7.2 Simulations numériques par éléments finis : définition du système	111
4.2.7.3 Simulations numériques par éléments finis : résultats	114
4.3 Bref état de l'art de la spectroscopie Raman sous contrainte uniaxiale	115

4.1 Principes de la contrainte uniaxiale

4.1.1 Définitions

Je considère un objet souple subissant une force externe \mathbf{F} qui le déforme. La déformation, notée ϵ , est décrite comme un champ au sein de l'objet, prenant des valeurs a priori différentes selon la position, et est une grandeur physique sans dimension. La déformation globale de l'objet dans une direction est donnée par $\epsilon_g = (L - L_0)/L_0$, avec L et L_0 les dimensions de l'objet dans la direction considérée respectivement sous l'application de \mathbf{F} et à vide. L'objet déformé subit un champ de contrainte interne σ , dimensionné comme une force par unité de surface. La contrainte interne prend en surface d'application de \mathbf{F} la valeur $\sigma_s = F/S$, avec F le module de la force et S la surface sur laquelle s'étend l'application de la force. Dans la suite, je considère essentiellement les modifications internes de l'échantillon, c'est-à-dire les champs de contrainte et de déformation³, plus que la force externe appliquée.

Je définis un repère cartésien (xyz) . La déformation ϵ s'écrit mathématiquement comme un tenseur symétrique d'ordre 2, de composantes ϵ_{ij} , avec i et j correspondant aux directions de l'espace x , y et z :

$$\epsilon = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} & \epsilon_{xz} \\ \epsilon_{xy} & \epsilon_{yy} & \epsilon_{yz} \\ \epsilon_{xz} & \epsilon_{yz} & \epsilon_{zz} \end{pmatrix} \quad (4.1)$$

Dans l'objet déformé, on définit un champ vectoriel de déplacement $\mathbf{u}(\mathbf{r})$, prenant des valeurs aux positions \mathbf{r} dans l'échantillon. Chaque composante du tenseur de déformation s'exprime en fonction du champ de déplacement comme :

$$\epsilon_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i}{\partial j} + \frac{\partial u_j}{\partial i} \right) \quad (4.2)$$

avec u_i la composante de \mathbf{u} dans la direction i , ce qui donne pour chaque composante :

$$\begin{aligned} \epsilon_{xx} &= \frac{\partial u}{\partial x} & \epsilon_{yz} &= \frac{1}{2} \left(\frac{\partial w}{\partial y} + \frac{\partial v}{\partial z} \right) \\ \epsilon_{yy} &= \frac{\partial v}{\partial y} & \epsilon_{zx} &= \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u}{\partial z} + \frac{\partial w}{\partial x} \right) \\ \epsilon_{zz} &= \frac{\partial w}{\partial z} & \epsilon_{xy} &= \frac{1}{2} \left(\frac{\partial v}{\partial x} + \frac{\partial u}{\partial y} \right) \end{aligned} \quad (4.3)$$

avec u , v et w les composantes de \mathbf{u} selon les directions x , y et z respectivement. Ainsi, la déformation est reliée aux variations du déplacement interne. Si le déplacement est non nul mais de dérivées nulles, l'objet est macroscopiquement déplacé sans déformation. Il n'y a également pas de déformation si les dérivées apparaissant dans les expressions de ϵ_{ij} avec $i \neq j$ se compensent : l'objet subit une simple rotation (d'axe z si $\partial v/\partial x = -\partial u/\partial y$, etc.). Les composantes ϵ_{ii} décrivent une déformation normale aux directions de l'espace, quand ϵ_{ij} avec

3. Les traductions anglaises de « contrainte » et « déformation » sont respectivement « *stress* » et « *strain* ».

$i \neq j$ décrivent un cisaillement⁴. Je parlerai de compression et de traction respectivement pour des déformations globales négatives et positives dans une direction donnée.

On décrit également l'état de l'échantillon par le tenseur de contraintes d'ordre 2 σ . Au sein d'un matériau, contrainte et déformation sont liées : aux petites contraintes et déformations, la réponse est élastique, ce qui signifie que ces deux grandeurs sont proportionnelles. Lorsque la force appliquée est à une dimension, les contraintes et déformations normales σ_n et ϵ_n sont reliées par le module d'Young Y du matériau ; les contraintes et déformations de cisaillement σ_c et ϵ_c sont reliées par le module de cisaillement G du matériau : $\sigma_n = Y\epsilon_n$, $\sigma_c = G\epsilon_c$ (Y et G pouvant dépendre de la direction dans un matériau anisotrope). Plus généralement, les composantes des tenseurs σ et ϵ sont reliées par les composantes du tenseur de raideur symétrique d'ordre 4 C , qui sont les coefficients élastiques. Avec k et l désignant un des six couples xx, yy, zz, xy, xz, yz , on a la relation :

$$\sigma_k = \sum_l C_{kl}\epsilon_l \quad (4.4)$$

On peut réécrire les tenseurs σ et ϵ en vecteurs colonne (notation de Voigt) afin d'écrire matriciellement la relation générale contrainte-déformation :

$$\begin{pmatrix} \sigma_{xx} \\ \sigma_{yy} \\ \sigma_{zz} \\ \sigma_{yz} \\ \sigma_{zx} \\ \sigma_{xy} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & C_{14} & C_{15} & C_{16} \\ C_{12} & C_{22} & C_{23} & C_{24} & C_{25} & C_{26} \\ C_{13} & C_{23} & C_{33} & C_{34} & C_{35} & C_{36} \\ C_{14} & C_{24} & C_{34} & C_{44} & C_{45} & C_{46} \\ C_{15} & C_{25} & C_{35} & C_{45} & C_{55} & C_{56} \\ C_{16} & C_{26} & C_{36} & C_{46} & C_{56} & C_{66} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} \\ \epsilon_{yy} \\ \epsilon_{zz} \\ 2\epsilon_{yz} \\ 2\epsilon_{zx} \\ 2\epsilon_{xy} \end{pmatrix} \quad (4.5)$$

où on désigne les composantes C_{kl} de C selon leur position dans le tenseur. On a par exemple : $C_{12} = C_{xx,yy}$. La relation inverse utilise le tenseur de souplesse (ou complaisance) $S = C^{-1}$.

Les symétries supplémentaires des cristaux étudiés diminuent le nombre de composantes indépendantes de C . Par exemple, dans la symétrie tétragonale, pertinente pour Co-Ba122, on obtient :

$$\begin{pmatrix} \sigma_{xx} \\ \sigma_{yy} \\ \sigma_{zz} \\ \sigma_{yz} \\ \sigma_{zx} \\ \sigma_{xy} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{13} & C_{13} & C_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{66} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} \\ \epsilon_{yy} \\ \epsilon_{zz} \\ 2\epsilon_{yz} \\ 2\epsilon_{zx} \\ 2\epsilon_{xy} \end{pmatrix} \quad (4.6)$$

avec tous les C_{kl} non nuls si explicitement écrits.

Je rappelle ici que σ correspond au champ de contrainte à l'intérieur du matériau. Ce champ de contrainte, et donc indirectement le champ de déformation, est produit par une force extérieure \mathbf{F} . La relation (4.6) montre que, pour un matériau D_{4h} , même dans le cas d'une force uniaxiale, la contrainte et la déformation ne peuvent dans le cas général pas être strictement uniaxiales. Par exemple, en imaginant qu'on réussit à forcer $\epsilon_{ij} = 0$ sauf pour $i = j = x$, on a nécessairement σ_{xx} , σ_{yy} et σ_{zz} non nulles, car C_{12} et C_{13} sont généralement

4. Ces deux comportements de déformation sont respectivement appelés *normal strain* et *shear strain* en anglais.

non nuls. Plus généralement, si ϵ_{xx} , ϵ_{yy} et ϵ_{zz} sont non nulles, alors σ_{xx} , σ_{yy} et σ_{zz} sont également non nulles. Ce phénomène est également décrit par les coefficients de Poisson du matériau⁵, qui interviennent dans les C_{kl} .

J'ai ci-avant introduit le module d'Young, qui, dans l'approximation unidimensionnelle correspondant à des échantillons suffisamment longs, fins et étroits, relie la contrainte et la déformation normales. Pour un matériau anisotrope, on peut définir des modules d'Young pour chaque direction de contrainte, et les relier aux coefficients élastiques. Par exemple, le module d'Young dans la direction [110] d'un matériau tétragonal s'écrit [29] :

$$Y_{[110]} = 4 \left(\frac{1}{C_{66}} + \frac{1}{\gamma} \right) \quad ; \quad \gamma = \frac{C_{11}}{2} + \frac{C_{12}}{2} - \frac{C_{13}^2}{C_{33}} \quad (4.7)$$

Ainsi, $Y_{[110]}$ est dominée par C_{66} tant que celui-ci est petit par rapport à γ .

Pour relier la contrainte et la déformation, je me suis placé dans le régime élastique, dans lequel contraintes et déformations sont théoriquement proportionnelles, reliées par un coefficient élastique (ou plus macroscopiquement le module d'Young) considéré constant. Des effets non linéaires peuvent cependant subvenir, selon les conditions expérimentales. D'abord, dans le cas d'un matériau présentant une instabilité structurale (comme Co-Ba122), le coefficient élastique correspondant à la direction de distortion admet une forte dépendance en température. Ensuite, pour un matériau nématique, le coefficient élastique dépend non linéairement du paramètre d'ordre nématique, avec une contribution devenant significative à forte déformation. Ces deux effets sont importants pour discuter des résultats sur Co-Ba122, présentés au chapitre 5, et j'y reviens dans la suite. Enfin, la description élastique de la déformation des matériaux sous contrainte n'est valable que pour un régime de petites contraintes et déformations. À partir d'une certaine gamme de contraintes, dépendant du matériau, on entre dans le régime de déformation plastique, dans lequel la déformation de l'échantillon devient irréversible.

Dans l'analyse de ses expériences de contrainte uniaxiale sur Sr_2RuO_4 , Barber [14] indique que la réponse de ses échantillons à la contrainte est totalement élastique. Il considère en revanche que les résultats de la référence [251] (utilisant un dispositif différent des cellules de type Razorbill) présentent très probablement un régime de déformation plastique. Pour Co-Ba122 sous contrainte uniaxiale, cette question n'est pas discutée dans les différentes références. Pour mes résultats, le comportement semble majoritairement réversible, ce qui indique que je reste dans le régime élastique.

4.1.2 Décomposition de la déformation en représentations irréductibles

De même que pour le tenseur Raman (voir le chapitre 3), on peut décomposer la déformation totale dans la base des représentations irréductibles du groupe ponctuel cristallin. On note ϵ_μ une déformation qui abaisse la symétrie, mais préserve les transformations correspondant à la représentation μ . La figure 4.1 donne la décomposition pour le groupe tétragonal D_{4h} , et indique les coefficients élastiques correspondants (définis à l'équation (4.6)). Pour la suite, je me place exclusivement dans le cas d'une contrainte uniaxiale appliquée sur un échantillon tétragonal de groupe ponctuel D_{4h} . Chaque déformation ϵ_μ peut être exprimée en fonction des composantes spatiales ϵ_{ij} du tenseur de déformation (définies à l'équation (4.3)), avec notamment pour D_{4h} :

5. Le coefficient de Poisson ν_{ij} selon les directions i et j correspond au ratio de la déformation transverse (direction j) sur la déformation longitudinale (direction i) pour une force longitudinale.

$$\begin{aligned}
\epsilon_{A_{1g},1} &= \frac{1}{2}(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy}) \\
\epsilon_{A_{1g},2} &= \epsilon_{zz} \\
\epsilon_{B_{1g}} &= \frac{1}{2}(\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy}) \\
\epsilon_{B_{2g}} &= \epsilon_{xy} \\
\epsilon_{E_g,1} &= \epsilon_{zx} \\
\epsilon_{E_g,2} &= \epsilon_{yz}
\end{aligned} \tag{4.8}$$

Le tenseur de contrainte σ peut également faire l'objet de cette décomposition en symétries.



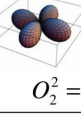

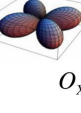

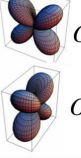


D_{4h} $4/mmm$	Orbitales, quadrupoles	Déformation	Coefficients élastiques
Γ_1 A_{1g}	 $O_{ZZ} = \hat{Z}^2$	 $\epsilon_{XX} + \epsilon_{YY}$	$\frac{1}{2}(C_{11} + C_{12})$
Γ_3 B_{1g}	 $O_2^2 = \hat{X}^2 - \hat{Y}^2$	 $\epsilon_{XX} - \epsilon_{YY}$	$C_E = \frac{1}{2}(C_{11} - C_{12})$
Γ_4 B_{2g}	 $O_{XY} = \hat{X}\hat{Y}$	 ϵ_{XY}	C_{66}
Γ_5 E_g	 $O_{YZ} = \hat{Y}\hat{Z}$ $O_{ZX} = \hat{Z}\hat{X}$	 ϵ_{YZ}  ϵ_{ZX}	C_{44}

FIGURE 4.1 – Décomposition des différentes composantes de la déformation selon les représentations irréductibles μ du groupe ponctuel tétragonal D_{4h} , et coefficients élastiques correspondants. (Figure traduite de [278].)

Je considère un matériau présentant une transition némato-structurale spontanée dans le canal μ à T_s (voir la section 2.2.3.1). ϵ_μ constitue le paramètre d'ordre structural de cette transition. Au passage de la transition, ϵ_μ prend spontanément une valeur non nulle. Le coefficient élastique C_{kl} correspondant au canal μ s'annule à la température de transition structurale T_S , ce qui fait que la déformation se fait spontanément à contrainte interne σ_μ nulle. Une déformation ϵ_μ peut également être imposée à toute température par une contrainte extérieure ayant une composante σ_μ .

Lorsqu'une déformation est présente dans un matériau suite à une contrainte extérieure, elle se décompose en général selon différentes représentations. J'ai évoqué ci-avant l'influence des coefficients de Poisson : de leur fait, même une force uniaxiale selon la direction du canal

nématique μ ne peut pas produire une déformation strictement selon μ . Ceci est illustré sur la figure 4.2 pour le cas d'une nématicité B_{1g} : une contrainte uniaxiale dans le canal B_{1g} (contrainte selon la direction [100] ou [010]) induit une déformation antisymétrique B_{1g} , mais aussi une déformation symétrique A_{1g} . Il en est de même pour une contrainte selon la direction [110], qui induit une somme de déformations A_{1g} et B_{2g} .

Théoriquement, on s'attend à ce que les déformations symétriques (A_{1g}) et antisymétriques (B_{1g} ou B_{2g}) aient des effets différents sur les grandeurs scalaires caractéristiques du système : une telle grandeur est modifiée au plus petit ordre de façon paire avec une déformation antisymétrique, et de façon impaire avec une déformation symétrique [112]. Par exemple, sous une contrainte uniaxiale induisant $\epsilon_{A_{1g}}$ et $\epsilon_{B_{1g}}$ une température de transition de phase T_s évolue⁶ selon [112] :

$$T_s = T_{s,0} + \alpha_1 \epsilon_{A_{1g}} + \alpha_2 \epsilon_{A_{1g}}^2 + \dots + \beta_2 \epsilon_{B_{1g}}^2 + \beta_4 \epsilon_{B_{1g}}^4 + \dots \quad (4.9)$$

avec donc les préfacteurs des puissances impaires de $\epsilon_{B_{1g}}$ tous nuls. Aux plus petits ordres en $\epsilon_{A_{1g}}$ et $\epsilon_{B_{1g}}$, on ne garde que α_1 et β_2 non nuls, d'où l'effet impair (respectivement pair) de $\epsilon_{A_{1g}}$ (respectivement $\epsilon_{B_{1g}}$) sur T_s . Pour découpler les effets des déformations symétrique et antisymétrique, on peut comparer des expériences de contrainte uniaxiale (où les deux sont présentes) avec des expériences de pression hydrostatique, qui ne créent qu'une déformation compressive purement A_{1g} . Cette comparaison est notamment la démarche effectuée dans la référence [112] dans le cas de BaFe_2As_2 .

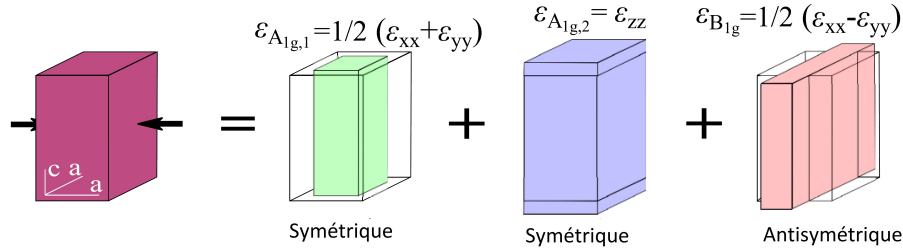


FIGURE 4.2 – Décomposition d'une contrainte externe uniaxiale selon la direction [100] sur un échantillon tétragonal selon les représentations symétriques A_{1g} (qui conservent toutes les symétries du réseau D_{4h}) et la représentation antisymétrique B_{1g} . La décomposition est équivalente dans le cas d'une contrainte externe selon [110], qui crée une déformation se décomposant selon A_{1g} et B_{2g} . (Figure traduite de [112].)

J'ai exprimé à l'équation (4.8) les relations entre les déformations dans la base des représentations et dans la base spatiale. À l'aide des coefficients de Poisson, on peut exprimer chacune des ϵ_μ en fonction d'une seule déformation spatiale. Je me place dans le cas correspondant aux expériences que j'ai menées, en considérant une force appliquée sur un échantillon selon la direction [110] de la maille tétragonale. Ici, pour alléger l'écriture, j'écris x cette direction⁷. La déformation se décompose selon les directions de l'espace : ϵ_{xx} (direction longitudinale d'application de la force externe) d'une part et d'autre part ϵ_{yy} et ϵ_{zz}

6. Ce raisonnement est valable si T_s reste bien définie sous contrainte. Par exemple, la température de transition structurale tétragonale-orthorhombique dans Co-Ba122 n'est plus bien définie sous contrainte uniaxiale selon [110] (qui induit $\epsilon_{A_{1g}}$ et $\epsilon_{B_{2g}}$), mais elle l'est toujours sous contrainte uniaxiale transverse selon [100] (qui induit $\epsilon_{A_{1g}}$ et $\epsilon_{B_{1g}}$).

7. Du fait de ce choix de notation, les expressions que j'obtiens dans la suite diffèrent de celles de l'équation (4.8).

(directions transverses). Dans le type de dispositifs de contrainte uniaxiale que je décris dans la suite, on peut accéder à ϵ_{xx} . Les coefficients de Poisson ν_{xy} et ν_{xz} sont définis par : $\epsilon_{yy} = -\nu_{xy}\epsilon_{xx}$ et $\epsilon_{zz} = -\nu_{xz}\epsilon_{xx}$ [175]. On obtient :

$$\epsilon_{B_{2g}} = \frac{1}{2}(\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy}) = \frac{1}{2}\epsilon_{xx}(1 + \nu_{xy}) \quad (4.10)$$

$$\epsilon_{A_{1g},1} = \frac{1}{2}(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy}) = \frac{1}{2}\epsilon_{xx}(1 - \nu_{xy}) \quad (4.11)$$

$$\epsilon_{A_{1g},2} = \epsilon_{cc} = -\epsilon_{xx}\nu_{xz} \quad (4.12)$$

Je répète ici que ces équations correspondent à la notation (Ox) pour la direction $[110]$, alors que l'équation (4.8) correspond à la notation (Ox) pour la direction $[100]$. Les coefficients de Poisson peuvent se calculer à partir des coefficients élastiques. Dans le cas de la force selon $(Ox) = [110]$, on obtient [175] :

$$\nu_{xy} = -\frac{\epsilon_{yy}}{\epsilon_{xx}} = \frac{-C_{13}^2 + \frac{1}{2}(C_{11} + C_{12})C_{33} - C_{33}C_{66}}{-C_{13}^2 + \frac{1}{2}(C_{11} + C_{12})C_{33} + C_{33}C_{66}} \quad (4.13)$$

$$\nu_{xz} = -\frac{\epsilon_{zz}}{\epsilon_{xx}} = \frac{2C_{13}C_{66}}{-C_{13}^2 + \frac{1}{2}(C_{11} + C_{12})C_{33} - C_{33}C_{66}} \quad (4.14)$$

Les C_{kl} sont définis dans ces équations dans la base tétragonale habituelle.

Ces équations appellent quelques commentaires. Dans le cas idéal de coefficients de Poisson ν_{xy} et ν_{xz} nuls, toute la déformation dans l'échantillon est purement selon x , et se décompose paritairement selon A_{1g} et B_{2g} . Habituellement, ν est strictement positif, ce qui favorise la déformation B_{2g} : si je comprime selon x , du fait du coefficient de Poisson l'échantillon s'étire selon y , ce qui renforce la distortion orthorhombique, ou le paramètre d'ordre structural dans le canal B_{2g} . À la transition structurale, C_{66} s'annule théoriquement : à une contrainte arbitrairement faible correspond une grande déformation. Ceci amène $\nu_{xy} = 1$ et $\nu_{xz} = 0$, soit $\epsilon_{A_{1g}} = 0$, la déformation est purement B_{2g} , et la déformation selon y est en valeur absolue égale à celle selon x .

Dans la pratique, pour l'analyse de mes résultats, je ne calculerai pas explicitement les coefficients de Poisson avec les équations (4.13) et (4.14), mais j'évaluerai directement $\epsilon_{B_{2g}}$ avec les simulations par éléments finis (voir la section 4.2.7 et l'annexe A.2).

4.2 Dispositif de contrainte uniaxiale Razorbill CS130

4.2.1 Dispositifs antérieurs de contrainte uniaxiale

Appliquer sur un échantillon une contrainte uniaxiale bien contrôlée provoquant une déformation relativement forte constitue un défi technique que plusieurs types de dispositifs ont tenté de relever. Plusieurs sont passés en revue par Barber [14], qui détaille certains de leurs résultats et leurs limites. Je résume dans cette section les aspects fondamentaux des deux principaux types de techniques. Je renvoie à la référence [14] pour les références et exemples correspondant aux différentes techniques, ainsi qu'à la section 4.3 pour quelques exemples en spectroscopie Raman. Aux chapitres 1 et 2, j'ai également présenté des résultats obtenus grâce à certaines d'entre elles respectivement sur Sr_2RuO_4 et les supraconducteurs à base de fer.

Une première technique consiste à plus ou moins presser l'échantillon entre deux enclumes. Sa limite principale est le défaut d'homogénéité de la déformation. Celui-ci est notamment dû à la friction entre l'échantillon et les enclumes, s'opposant à sa dilatation dans la direction transverse. Également, l'inhomogénéité est exacerbée si les surfaces de contact entre l'échantillon et les enclumes ne sont pas rigoureusement lisses et parallèles. Seules des compressions peuvent être administrées ; les modifications *in situ* de la contrainte dans un cryostat lorsqu'on change la température sont possibles (par exemple avec des vérins à hélium) mais délicates.

Ces dernières limites peuvent être dépassées avec un second type de dispositif, dans lequel l'échantillon est directement collé sur un support piézoélectrique. Une contrainte biaxiale, qui peut être ramenée à une contrainte quasi uniaxiale avec un bon choix de composant piézoélectrique et de géométrie d'installation, est exercée sur l'échantillon lorsqu'on modifie les tensions électriques appliquées sur le composant piézoélectrique. Les modifications de la tension électrique et la mesure de la déformation peuvent être faites dans un cryostat *in situ*, avec la possibilité d'administrer à la fois des compressions et des tractions.

Une première limite de ce dispositif est la relative faiblesse des déformations applicables. À température ambiante, la déformation maximale est d'environ 0,1 %. Elle est encore plus faible aux températures cryogéniques, comme la déformation du piézoélectrique à tension électrique constante diminue fortement avec la température. Ensuite, la contraction thermique différentielle entre le composant piézoélectrique et l'échantillon amène des contraintes non contrôlées, d'autant plus que contrairement aux échantillons courants qui se contractent quand la température diminue, un composant piézoélectrique se dilate. L'échantillon peut alors être sous forte traction, avec des risques de cassure ou de dépassement du régime élastique. Également, la colle utilisée pour fixer l'échantillon peut absorber une partie de la contrainte exercée. Il reste enfin un problème d'homogénéité, en épaisseur et en surface.

Les différentes limites de ces deux dispositifs pourraient être dépassées avec un nouveau type de dispositifs de contrainte uniaxiale, dont le cahier des charges inclurait notamment : modifications et contrôle *in situ* de la contrainte appliquée, grandes déformations accessibles dans une large gamme de température, bonne homogénéité de la déformation. Les nouvelles cellules de contrainte uniaxiale développées à partir des travaux de Hicks et collaboratrices [100] et actuellement fabriquées par l'entreprise Razorbill Instruments sont conçues pour répondre à ces critères.

4.2.2 Historique des nouvelles cellules de contrainte uniaxiale

Le nouveau dispositif de contrainte uniaxiale a originellement été conçu pour tester l'hypothèse de l'état supraconducteur $p_x \pm ip_y$ dans Sr_2RuO_4 : cela nécessitait d'appliquer des déformations importantes, à la fois en compression et en traction. Hicks et collaboratrices ont donc développé un nouveau type de dispositif de contrainte uniaxiale, dont les aspects techniques sont présentés dans la référence [99] et dont la référence [100] présente les premiers résultats sur Sr_2RuO_4 . Les déformations maximales appliquées étaient d'environ 0,2 %, à la fois en compression et en traction. L'entreprise Razorbill Instruments a ensuite été créée en 2014 pour développer des cellules sur le modèle de celle de la référence [99], avec différentes améliorations notables (plus grandes déformations applicables jusqu'à environ 1 %, meilleure homogénéité, mesure de la contrainte et de la déformation). Plusieurs équipes de recherche ont parallèlement développé leurs propres cellules sur le même modèle, en l'adaptant si besoin à leurs techniques expérimentales. Les premières cellules comportaient des capteurs de déplacement, permettant d'accéder à la déformation ; des cellules plus récentes, également commercialisées par Razorbill Instruments, mesurent également la force appliquée sur l'échantillon [13].

Aujourd'hui, les mesures de propriétés de différents matériaux sous contrainte uniaxiale se sont largement développées, principalement avec des cellules de type Razorbill. Les adaptations de ces cellules avec d'autres techniques expérimentales sont notamment décrites dans les références [131] (RMN), [104] (élastorésistivité en courant alternatif (en anglais *alternating current*, AC)), [111, 242] (effet élastocalorique), [86] (relaxation de spin des muons (en anglais *muon spin relaxation*, μ SR)), [152] (chaleur spécifique). Plus spécifiquement pour les deux matériaux étudiés durant ma thèse, de nombreux résultats ont récemment été obtenus avec des cellules de type Razorbill : concernant Sr_2RuO_4 , des résultats de transport [11, 12, 100, 239], de RMN [159, 212], de chaleur spécifique [153], de μ SR [91], et de mesures de diamagnétisme au magnétomètre SQUID (*Superconducting Quantum Interference Device*, interféromètre quantique supraconducteur) [264] ; concernant BaFe_2As_2 , des résultats de transport [112, 175, 221, 224, 269], d'élastocalorimétrie [113], et de RMN [132, 133].

Plusieurs types de cellules de contrainte uniaxiale sont conçues par l'entreprise Razorbill Instruments. La série CS1x0 correspond à des cellules dites « de déformation » (en anglais *strain cells*), car le capteur associé mesure le déplacement maximum imposé à l'échantillon, contrairement à la série FC1x0 des cellules « de contrainte » (en anglais *stress cells*) dans lesquelles le capteur mesure la force appliquée sur l'échantillon. La cellule plus récente UC200 permet de combiner les mesures de force et de déplacement. Durant ma thèse, j'ai exclusivement utilisé la cellule de déformation CS130, qui est la cellule la plus grande et performante de la série CS1x0. Je n'expliquerai donc que le fonctionnement des cellules de déformation, en précisant quelques données numériques correspondantes à CS130.

Le fonctionnement des cellules de déformation CS1x0 est décrit en détail dans l'article technique les introduisant [99], dans les divers articles sus-cités utilisant ces dispositifs ainsi que dans la documentation technique fournie par l'entreprise Razorbill Instruments, en libre accès sur leur [site internet](#). Dans la suite, je résume ces différentes sources pour donner les principes généraux de fonctionnement, ainsi que les détails de la mise en oeuvre d'une expérience de contrainte uniaxiale, nourris par mon expérience de ce dispositif.

4.2.3 Principe de fonctionnement de la cellule CS130

La cellule et son principe de fonctionnement sont représentés schématiquement en figure 4.3. L'échantillon est fixé de telle façon à ce qu'il forme un pont entre une plaque fixe et une plaque mobile. Les géométries d'échantillon adaptées au dispositif sont des barrettes longues, fines et étroites. La plaque fixe est vissée sur la partie de la cellule en forme de U, qui est rigidement fixée sur un support (non représenté). La plaque mobile est vissée sur une partie mobile, qui peut translater grâce à l'action de trois composants piézoélectriques (PZT). À une extrémité, deux PZT externes sont fixés sur la partie fixe en U, et le troisième à la partie mobile ; à l'autre extrémité, les trois PZT sont reliés à un pont. À la position neutre (composants piézoélectriques de même longueur sur le schéma), l'échantillon n'est pas contraint.

Si une tension électrique est appliquée sur les PZT externes de telle sorte qu'ils s'étirent, le pont s'éloigne du corps en U, entraînant le PZT interne et la partie mobile : l'échantillon est étiré. Inversement, si le PZT interne est étiré par la même tension électrique, la partie mobile se rapproche du corps en U : l'échantillon est comprimé. Les processus complémentaires se déroulent si une tension électrique de signe opposé à la précédente est appliquée sur les PZT : dans ce cas, ils se compriment au lieu de s'étirer. Si la même tension électrique est appliquée à la fois sur les PZT externes et internes, leurs déformations se compensent : la partie mobile reste fixe et l'échantillon n'est pas contraint.

Ce nouveau dispositif présente plusieurs avantages par rapport aux dispositifs antérieurs. La contrainte appliquée externe est formellement uniaxiale et non biaxiale anisotrope. Les PZT n'appliquent pas directement la contrainte, mais déplacent la partie mobile : dans

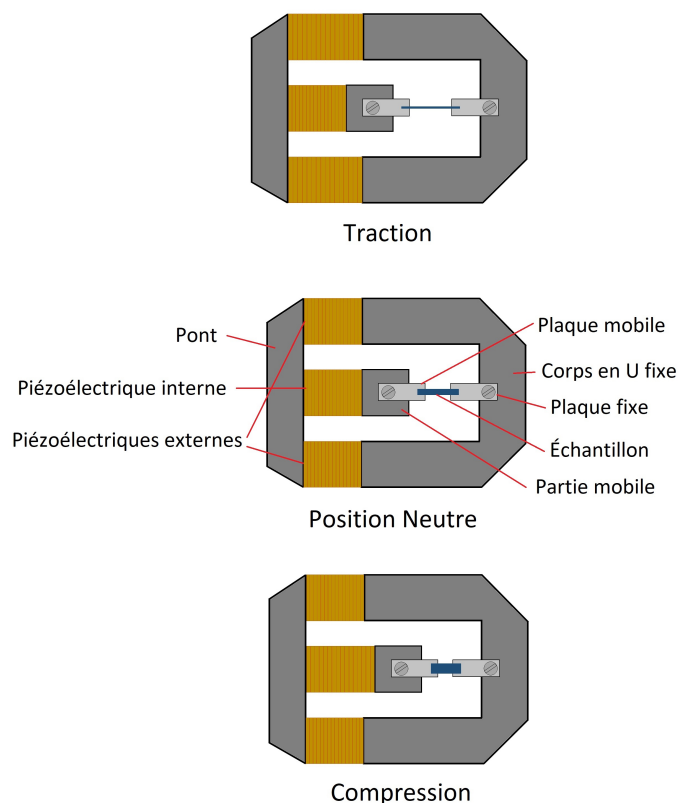


FIGURE 4.3 – Schéma du principe de fonctionnement de la cellule de déformation Razorbill CS130, en vue du dessus. Sous l'action des composants piézoélectriques, l'échantillon, initialement non contraint (milieu) est étiré (haut) ou comprimé (bas). Les déformations de l'échantillon sont largement exagérées.

cette configuration, avec des PZT bien plus grands que l'échantillon, les déformations de l'échantillon ne sont plus égales aux déformations des PZT, et elles peuvent être bien plus élevées que dans les dispositifs antérieurs (de 1 à 2 ordres de grandeur en général, selon les échantillons). La disposition des PZT en parallèle permet d'annuler l'effet de leur dilatation quand la température diminue : le pont est éloigné par l'élongation des PZT externes, mais du fait de l'élongation concomitante du PZT interne, la partie mobile ne bouge pas. Seul un effet de contraction différentielle entre le corps de la cellule (en titane) et l'échantillon peut amener une déformation à tensions électriques nulles.

La contrainte est facilement réglée *in situ* dans un cryostat, en modifiant les tensions électriques sur les PZT. Également, le déplacement imposé à la partie mobile est mesuré *in situ* grâce à une capacitance, dont la valeur dépend de la distance entre la partie mobile et le corps fixe.

Deux photographies du dispositif sont présentées en figure 4.4. La première montre l'ensemble du dispositif CS130 (cellule et câbles électriques) ; la seconde montre un échantillon monté sur la cellule.

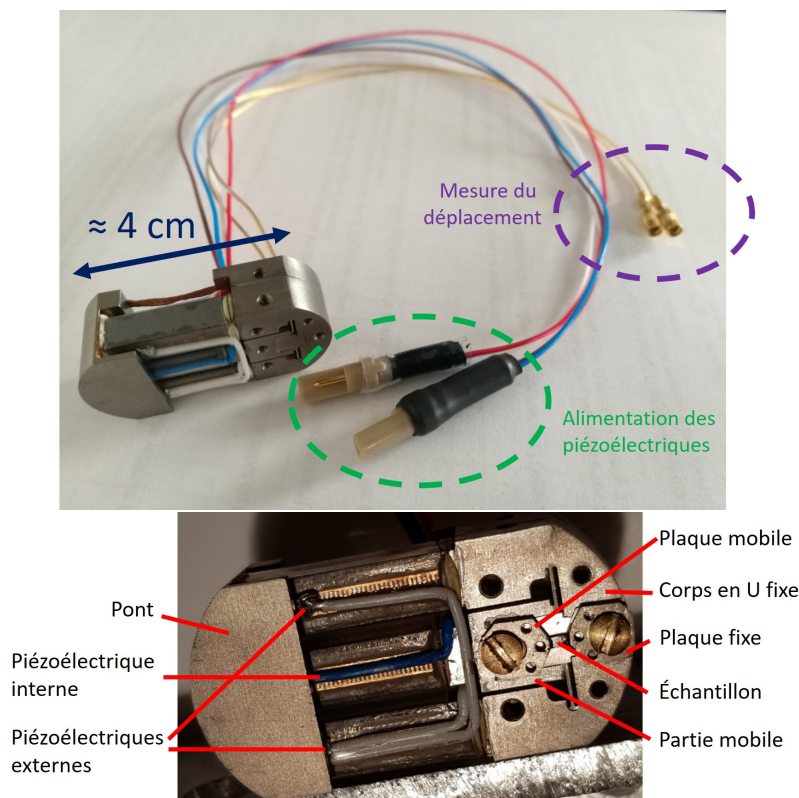


FIGURE 4.4 – Photographies du dispositif de contrainte uniaxiale CS130, sans (haut) et avec (bas) un échantillon monté. Les plaques supportant l'échantillon possèdent de petits trous (trois chacune), nécessaires pour certaines techniques, mais inutiles pour la spectroscopie élasto-Raman.

4.2.4 Préparation d'une expérience de contrainte uniaxiale sur la cellule CS130

4.2.4.1 Géométrie du montage

L'échantillon est directement collé sur les plaques mobile et fixe, ce qui permet sa déformation quand la plaque mobile se déplace. Je donne ici des détails supplémentaires sur la géométrie du montage, ainsi que sa mise en place pratique.

La géométrie du montage est schématisée en figure 4.5. Sur chacune de ses extrémités, l'échantillon est pris en sandwich entre les plaques inférieures et supérieures (plaques fixes à une extrémité, plaques mobiles à l'autre). Il est maintenu aux plaques par de la colle. Une vis ancre rigidement les plaques mobiles supérieure et inférieure dans la partie mobile, et de même pour les plaques fixes sur le corps fixe. Des espaceurs (rondelles) instaurent un espace entre les plaques supérieures et inférieures, et permettent de ne pas écraser l'échantillon au vissage. Les dimensions importantes du montage sont les suivantes : dimensions de l'échantillon, longueur totale L_t , largeur w et épaisseur e ; épaisseur de colle d ; épaisseur des espaceurs E ; longueur d'échantillon suspendue L_s et longueur de contact échantillon-colle L_c . L'épaisseur de colle est prise égale de part et d'autre de l'échantillon, et est dans la pratique fixée par l'épaisseur des espaceurs, avec $E = 2d + e$. L'échantillon est centré également à l'horizontale, avec une même longueur de contact à chaque extrémité, de sorte que $L_t = L_s + 2L_c$.

Plusieurs possibilités de montage ont été étudiées théoriquement par Barber [14], notamment un montage asymétrique avec un échantillon collé seulement du côté inférieur en laissant le côté supérieur libre sans plaques : la géométrie schématisée en figure 4.5 correspond

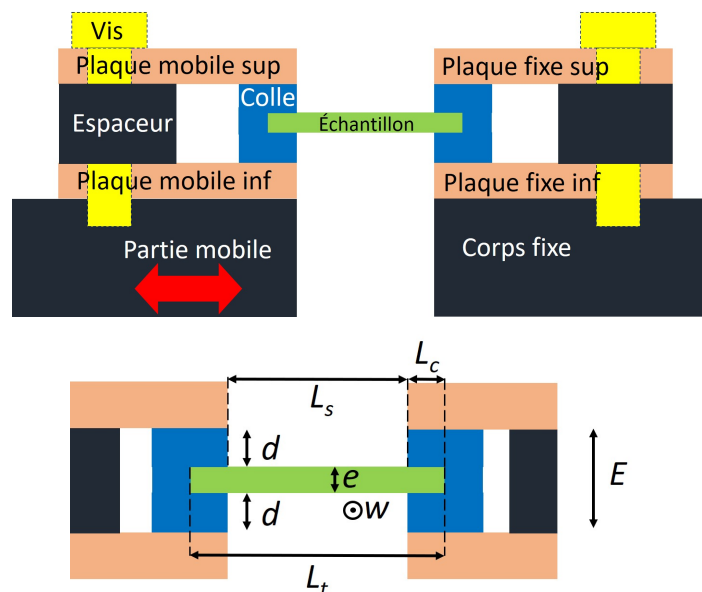


FIGURE 4.5 – Schémas de l'échantillon monté sur la cellule CS130, en vue de côté.

à celle que j'ai utilisée, optimale pour la transmission homogène de la contrainte.

4.2.4.2 Choix des paramètres de montage et des dimensions de l'échantillon

Afin d'assurer la meilleure homogénéité de la déformation dans l'échantillon, celui-ci doit présenter une forme parallélépipédique (barrette). Le choix de ses dimensions est primordial, le montage final devant obéir principalement à deux exigences.

La première est que l'échantillon doit avoir une raideur suffisamment faible. En effet, dans le régime élastique où l'échantillon se comporte comme un ressort⁸, on peut exprimer la force uniaxiale F s'exerçant sur l'échantillon comme $F = kx$, avec k la constante de raideur de l'échantillon, $x = L_s - L_{s,0}$ le déplacement (L_s la longueur suspendue sous contrainte, $L_{s,0}$ la longueur suspendue à vide). À déplacements égaux, si k est plus élevée, il faut une plus grande force. Mais la force est appliquée par la déformation des piézoélectriques : si l'échantillon est trop raide, les piézoélectriques n'arrivent pas à fournir une force suffisante pour le déformer. Autrement dit, en poussant sur l'échantillon ils auront plutôt tendance à subir des contraintes internes qu'à le contraindre, ce qui, en plus d'être inefficace, peut endommager la cellule.

k s'exprime en fonction des paramètres géométriques de l'échantillon et du module d'Young dans la direction de contrainte. On a $F = \sigma S$, avec σ la force surfacique et $S = we$ la surface d'application. Comme d'autre part $\sigma = Y\epsilon = Yx/L_s$, avec Y le module d'Young et ϵ la déformation dans la direction de contrainte, on obtient :

$$k = Y \frac{ew}{L_s} \quad (4.15)$$

Les constantes de raideur maximales k_{max} permises par la cellule CS130 sont spécifiées par le constructeur. Pour des déplacements inférieurs à 10 μm , elle vaut 5 N/ μm , et décroît jusqu'à 2,5 N/ μm pour les déplacements maximaux de la cellule CS130 (environ 17 μm).

8. Je néglige ici le comportement tridimensionnel de la déformation dans l'échantillon.

Dans mes résultats, je suis globalement resté sous 10 μm de déplacement, donc j'ai considéré 5 N/ μm comme la limite.

Pour diminuer k , il faut choisir un échantillon à grand rapport d'aspect : long⁹, fin et étroit. Mais de tels échantillons sont difficiles à obtenir (des synthèses d'échantillons longs et des découpes pour diminuer w et e sont des étapes délicates), et délicats à manipuler ; leur fragilité s'ils sont trop fins peut même les amener à se casser lors de l'application de la contrainte. Ainsi dans la pratique il faut trouver un compromis, avec un échantillon suffisamment solide mais pas trop raide.

La seconde exigence, présentée par Barber [14], concerne la transmission de la contrainte dans le dispositif. En effet, comme il le montre, la colle ne transmet pas parfaitement la contrainte des plaques vers l'échantillon, elle en absorbe une partie en se déformant elle-même. Ceci est dû au fait que, dans le cas général, la colle a un module de cisaillement bien plus faible que le module d'Young de l'échantillon dans la direction de contrainte¹⁰. On peut définir λ_t , une longueur caractéristique de la décroissance exponentielle du champ de déplacement dans l'échantillon en contact avec la colle :

$$\lambda_t = \sqrt{\frac{Yed}{2G}} \quad (4.16)$$

avec Y le module d'Young de l'échantillon, e son épaisseur, d l'épaisseur de colle, et G le module de cisaillement de la colle. Barber conseille de prendre $L_c \approx 2-3\lambda_t$ pour assurer une bonne transmission de la contrainte via la colle. Dans la pratique, j'ai fait en sorte de suivre au mieux ces recommandations avant le collage ; mais j'ai de toute façon vérifié également avec des simulations par éléments finis que la contrainte était suffisamment bien transmise dans l'échantillon.

Avec ces différentes exigences, et avec quelques nuances selon les matériaux dues à la différence de module d'Young, un bon compromis est un échantillon d'environ 100 μm d'épaisseur, quelques centaines de μm de largeur, et d'une longueur totale entre 1,5 et 2 mm, pour une longueur de contact de quelques centaines de μm et une longueur suspendue supérieure à 1 mm. Pour la spectroscopie Raman, ces dimensions de la surface exposée sont suffisamment grandes par rapport à la taille du point laser focalisé sur l'échantillon.

Avant le montage de l'échantillon dans la cellule, il faut donc choisir finement ses dimensions, la longueur de contact échantillon-colle et l'épaisseur de colle. On fixe cette dernière en choisissant l'épaisseur E des espaceurs. Les espaceurs fournis par Razorbill Instruments sont souvent trop épais, il suffit alors de les limer au papier de verre pour obtenir l'épaisseur souhaitée.

4.2.4.3 Montage de l'échantillon

Lorsque ces préparatifs sont effectués, il faut monter l'échantillon sur la cellule. J'explique ici le protocole que j'ai personnellement mis en place pour mes collages. Le montage se fait sous loupe binoculaire, sous hotte aspirante, à cause de la toxicité de la colle utilisée.

9. Dans le raisonnement et la formule obtenue (4.15), j'ai considéré L_s comme la longueur de l'échantillon déformé. Dans la géométrie du montage, choisir L_s serait valable si les extrémités non suspendues étaient fixées rigidement aux plaques de titane. Du fait du collage, ceci n'est clairement pas le cas. Intuitivement, une longueur plus pertinente serait L_p , intermédiaire entre L_s et L_t , donc $L_p \geq L_s$. La condition $k \leq k_{max}$ avec k définie avec L_s est donc une exigence plus grande qu'avec L_p . L'ambiguïté du choix entre L_s et L_t pour décrire les expériences revient dans l'évaluation de la déformation nominale (voir la section 4.2.7).

10. Ceci n'est plus tout à fait le cas pour Co-Ba122 proche de la transition structurale, où C_{66} se ramollit significativement : dans cet état, la transmission de la contrainte dans l'échantillon s'améliore grandement, comme le montrent les simulations par éléments finis (section 4.2.7 et annexe A.2).

Je visse sur la cellule un guide de maintien, qui permet de placer les quatre plaques de façon alignée selon l'axe de contrainte. Il est composé de deux plaques dont l'écartement est ajustable (figure 4.6). Ce guide ne sera retiré qu'à la toute fin du montage, après séchage de la colle. Je place les plaques inférieures (mobile et fixe) ; je les fixe avec de la laque d'argent : ce produit superficiellement adhésif permet de les garder immobiles durant le montage, tout en pouvant les retirer facilement lors du démontage ; la distance entre les deux plaques correspond à L_s , mesurable précisément (au dixième de mm près) au pied à coulisse. Je place les espaceurs, sans les fixer.

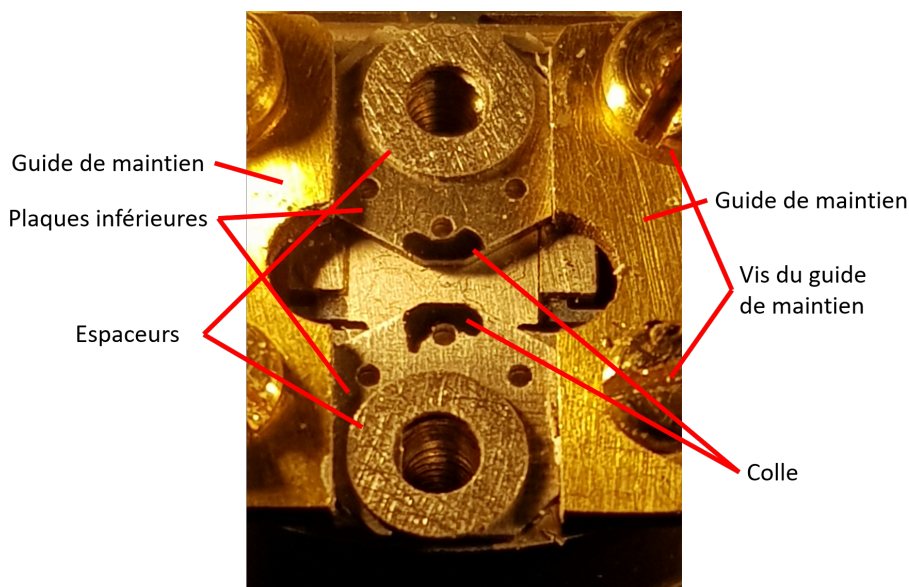


FIGURE 4.6 – Photographie d'une étape intermédiaire dans le collage d'un échantillon : plaques inférieures et espaceurs déposés, points de colle.

La colle adaptée au dispositif est de la colle époxy, constituée d'une résine époxy et d'un catalyseur (agent durcissant). Ces deux réactifs doivent être mélangés dans des proportions exactes (précisées dans la notice de l'époxy), et le produit obtenu peut être manipulé un temps restreint avant qu'il ne durcisse complètement. J'ai utilisé de l'époxy Stycast 2850FT, avec le catalyseur 24LV (produits Loctite fabriqués par l'entreprise Henkel). Avec ces réactifs, il faut un ratio massique 100 : 8 entre la résine et le catalyseur. Afin d'assurer un mélange homogène, et du fait de la précision de 0,1 g de la balance utilisée, je choisis des quantités très importantes par rapport à la quantité finale de colle utilisée pour coller l'échantillon : 30 g d'époxy pour 2,4 g de catalyseur, que je mélange pendant une dizaine de minutes dans une coupelle en aluminium. La colle obtenue peut être manipulée pendant environ une heure avant séchage.

Je place des points de colle au bord des plaques inférieures à l'aide d'une pointe fine (figure 4.6). Je jauge l'épaisseur déposée en comparaison avec l'épaisseur des espaceurs. J'accroche l'échantillon sur l'extrémité d'un cure-dent entouré de film Téflon (l'échantillon est maintenu par électricité statique), et le dépose sur les points de colle. La colle mouillant facilement sur l'échantillon, il est primordial de le déposer simultanément sur les deux points aux deux extrémités : l'échantillon se détache alors naturellement du Téflon et flotte sur la colle. Si on ne le dépose que sur un point de colle, il se détache du Téflon et flotte sur ce point, éloigné de l'autre point de colle : il est alors délicat de le récupérer sans étaler de la colle sur sa surface.

Une fois l'échantillon déposé et aligné selon la direction de contrainte, je repose deux points de colle sur sa surface, aux extrémités. Il faut déposer suffisamment de colle pour assurer le contact avec les plaques supérieures, mais si on en dépose trop, elle aura tendance à s'étaler sur la surface de l'échantillon, ce qui la rend insondable par spectroscopie Raman. Je place les deux plaques supérieures exactement au-dessus des plaques inférieures, et visse l'ensemble (plaque supérieure–espaceur–plaque inférieure) sur les côtés mobile et fixe. En vissant, la colle entre en contact avec les plaques supérieures et englobe les extrémités de l'échantillon. À ce stade, on peut encore décaler délicatement l'échantillon avec un cure-dent si celui-ci n'est pas parfaitement centré en largeur ou parfaitement aligné selon l'axe de contrainte.

Le séchage de la colle peut se faire à l'air ambiant ; il faut dans ce cas compter une dizaine d'heures de séchage. Il est cependant préférable d'effectuer un séchage sous température élevée (à environ 50 °C, pendant environ 2 heures), ce qui permet de mieux éliminer les éventuelles bulles de gaz restées piégées dans la colle. Après séchage, on ôte le guide de maintien, et la cellule est prête à être montée dans le cryostat.

La figure 4.7 présente une photographie au microscope d'un échantillon monté sur la cellule CS130.

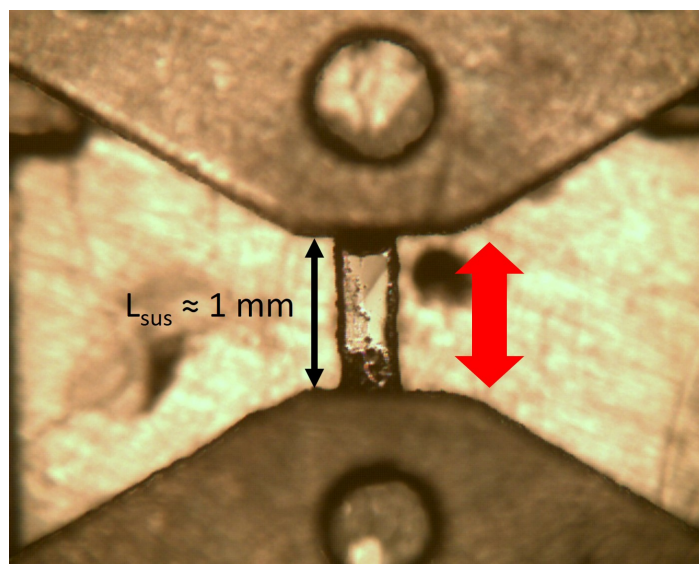


FIGURE 4.7 – Photographie au microscope d'un échantillon de Co-Ba122 monté sur la cellule CS130, en vue du dessus. Les zones noires aux extrémités de l'échantillon sont de la colle séchée ayant mouillée sur la surface au moment du collage. La double flèche rouge indique la direction de contrainte.

Le protocole précédent est légèrement complexifié si l'on souhaite monter un échantillon sous contrainte. Cela peut être le cas pour un échantillon présentant une contraction thermique très différente de celle du titane. Si la contraction de l'échantillon est plus faible que celle du titane, il se retrouve en traction lorsqu'on abaisse la température. Cette traction peut amener l'échantillon à se casser, alors même qu'aucune tension électrique n'a été appliquée aux PZT.

Pour pallier à ce problème, une possibilité est d'appliquer une tension électrique sur les PZT pendant la descente en température, afin de maintenir un déplacement négatif de la partie mobile de la cellule, et donc de ramener l'échantillon au point de déformation nulle, ou à faible compression. Une seconde possibilité est de monter l'échantillon en éloignant les

plaques, puis de les rapprocher après montage et séchage : l'échantillon est alors sous compression. En choisissant bien la compression initiale, on peut faire en sorte que l'échantillon ne soit jamais sous traction à tension électrique nulle : pendant la descente en température, l'effet de contraction différentielle va le rapprocher du point de déformation nulle, sans le dépasser.

Dans la pratique, Co-Ba122 a une contraction thermique quasi identique à celle du titane [112], mais Sr_2RuO_4 a une contraction thermique plus faible [50]. Ce protocole complexifié n'est donc pas nécessaire pour le premier, mais il peut être indispensable pour le second.

4.2.5 Application de la contrainte et mesure du déplacement dans le cryostat

Un des intérêts de la cellule CS130 de Razorbill Instruments est d'appliquer des contraintes uniaxiales aux températures cryogéniques, grâce au dispositif des piézoélectriques pouvant se déformer à distance sous une tension électrique.

Avant le début de mon projet de thèse, mon directeur de thèse Yann Gallais et mon collaborateur Jimmy Faria, ingénieur au laboratoire MPQ, ont conçu un porte-cellule adapté au cryostat AS, fabriqué par les mécaniciens du laboratoire Patrick Lepert et Martial Nicolas. Cette pièce permet de supporter la cellule CS130 en exposant l'échantillon du côté de la fenêtre optique par laquelle passent les faisceaux incident et diffusé. Deux photographies du porte-cellule, avec la cellule montée ou non sur lui, sont présentées en figure 4.8. Le porte-cellule se présente globalement comme une fourche à deux dents. Les dents contiennent deux rails, de sorte qu'entre elles la cellule (qui a des trous de vis sur ses côtés) peut être maintenue par des vis. Le porte-cellule comporte quatre composants, vissés ou encastrés les uns dans les autres. En modifiant leur configuration, on peut modifier légèrement la position de la cellule dans le cryostat, notamment la rapprocher ou l'éloigner de la fenêtre. Tous ces composants sont en cuivre afin d'optimiser le transfert thermique lors de la cryogénie.

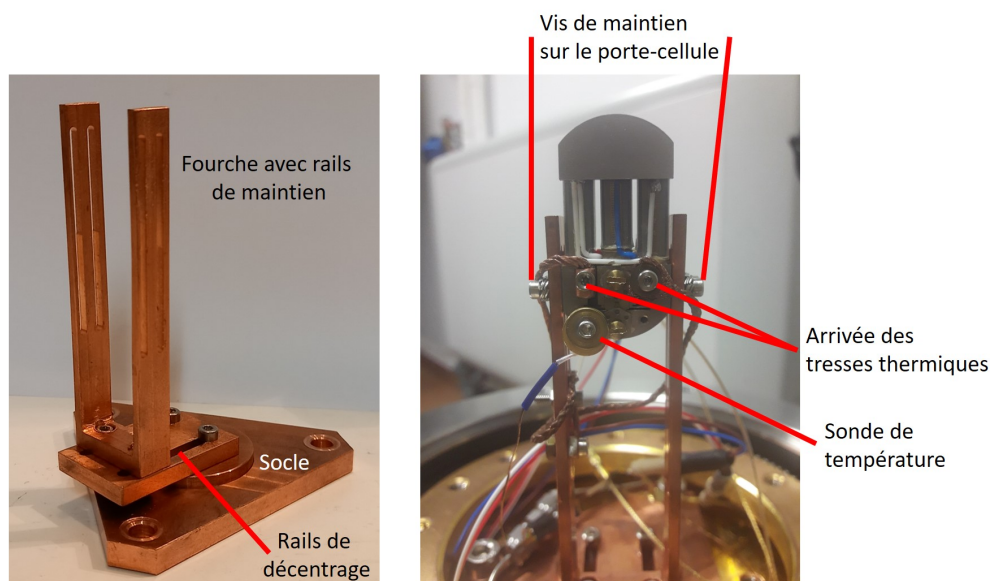


FIGURE 4.8 – Photographies du porte-cellule seul (gauche), et de la cellule CS130 installée sur le porte-cellule dans la tête (ouverte) du cryostat AS (droite).

La sonde de température est vissée directement sur le corps de la cellule, à proximité de l'échantillon. Pour améliorer la thermalisation, deux tresses thermiques connectent la cellule au porte-cellule. La plus basse température mesurée par la sonde dans cette configuration est 6,5 K, supérieure d'environ 3 K à la température minimale accessible avec ce cryostat en plaçant la sonde sur un porte-échantillon en cuivre. Cette différence est due à la difficulté de thermaliser la cellule en titane, qui représente une masse significative. Les tresses et la sonde ne doivent pas être en contact avec les plaques pour ne pas gêner la déformation. Elles ne doivent également pas gêner la propagation du faisceau incident, et ne pas recevoir de réflexions de celui-ci.

La cellule présente six sorties électriques (figure 4.4) : quatre permettent d'appliquer une tension électrique sur les PZT (deux potentiels pour le PZT interne, et deux potentiels en commun aux PZT externes), et deux permettent de mesurer la capacitance indiquant le déplacement de la plaque mobile. Ces sorties électriques sont reliées à des appareils à l'extérieur du cryostat, via des liaisons sur des ports électriques étanches au niveau du cryostat (figure 4.9).

L'application d'une tension électrique sur les PZT se fait via un générateur de tension continu, fourni par Razorbill Instruments (source RP100). Celle-ci peut appliquer des tensions maximales de ± 200 V sur chaque PZT. Pour la régler, j'ai utilisé le logiciel de commande fourni par Razorbill Instruments, qui permet essentiellement de modifier les tensions selon une rampe dont on peut définir la vitesse (que j'ai fixée à 1 V/s). Avec la cellule CS130, la partie mobile peut être déplacée de ± 17 μm à température ambiante. Cette gamme se réduit à ± 10 μm à 10 K. Dans les faits, j'ai appliqué des déplacements plus faibles, surtout en traction, car l'échantillon peut facilement se casser lorsqu'il est étiré. Sous compression, ce risque est bien plus faible ; il existe cependant le risque de décollement de l'échantillon (rupture du contact colle-échantillon ou colle-plaques) sous compression trop forte.

En modifiant les valeurs des tensions électriques, on déplace plus ou moins la partie mobile de la cellule, ce qui crée des déformations plus ou moins grandes de l'échantillon. Le comportement physique des PZT fait qu'on ne peut malheureusement pas se fonder uniquement sur les valeurs des tensions électriques à leurs bornes pour évaluer le déplacement induit. En effet, leur déformation avec la tension est fortement hystérétique : leur déformation à tension donnée dépend de leur histoire. Pour pallier à ce problème, une mesure du déplacement de la partie mobile est faite indépendamment des PZT, via une mesure de capacitance C : la distance entre les deux armatures du condensateur correspond à celle entre les parties mobile et fixe de la cellule, la capacitance diminue lorsqu'elle augmente. La relation entre C et le déplacement de la partie mobile est complètement bijective, et étalonnée pour chaque cellule fabriquée par Razorbill Instruments. Je présente en figure 4.10 la courbe d'étalonnage correspondant à la cellule que j'ai utilisée. Les capacitances sont de l'ordre du pF, ce qui nécessite un appareil de mesure de précision : j'ai utilisé le RLC-mètre modèle E4980A/AL du constructeur Keysight Technologies. En fixant une fréquence de mesure de 100 kHz, on a une précision de l'ordre du fF sur la mesure de capacitance, ce qui correspond à quelques dizaines de nm. La calibration capacitance-déplacement est modifiée avec la température, mais il s'agit essentiellement d'un décalage additif de la courbe, qu'on peut estimer en notant la variation de C avec la température lorsqu'aucune tension électrique n'est appliquée.

Une autre limite de l'utilisation des PZT est l'existence d'une dérive dans l'établissement du déplacement à tension fixée. Si je modifie la tension électrique à une certaine valeur, la déformation des PZT est modifiée jusqu'à correspondre à cette tension ; mais ensuite, elle continue à être lentement modifiée au cours du temps. Ce phénomène de dérive est bien connu pour les PZT. Dans mon cas, il est visible via la modification lente de C après que la tension électrique s'est fixée sur une valeur. Cette dérive a un comportement logarithmique, donc non convergent, et est relativement rapide par rapport au temps d'acquisition typique

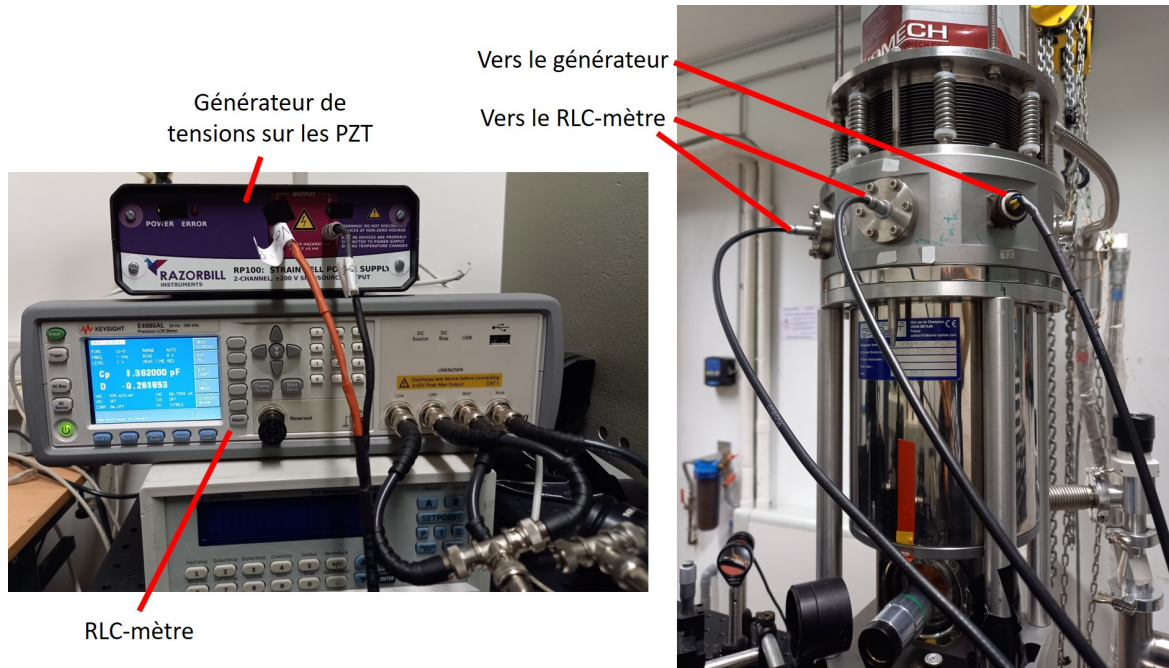


FIGURE 4.9 – Photographies du dispositif expérimental : générateur et RLC-mètre reliés à la cellule CS130 dans le cryostat via des passages électriques étanches.

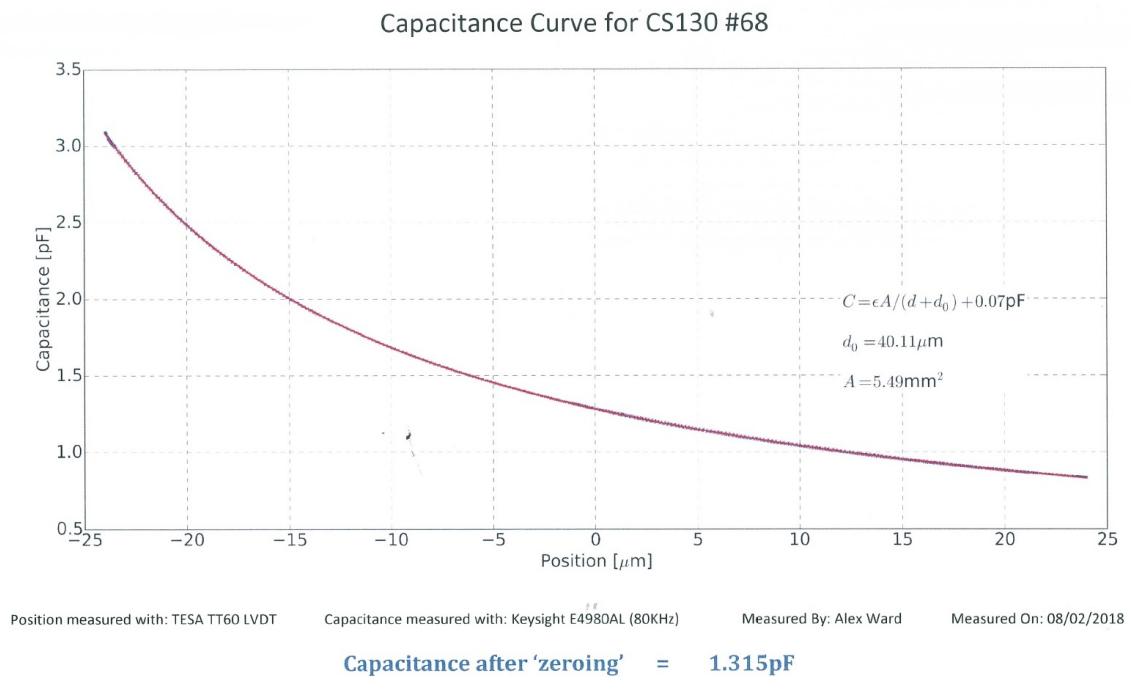


FIGURE 4.10 – Courbe de calibration capacité-déplacement de la cellule CS130 que j'ai utilisée durant ma thèse, établie par Razorbill Instruments.

d'un spectre Raman (dérive de plusieurs fF, voire de quelques dizaines de fF sur le temps d'acquisition). Pour pallier à ce problème, je modifiais manuellement la valeur de la tension (modification de l'ordre de quelques V sur chacune des deux voies) durant les acquisitions

afin de contrebalancer la dérive et de maintenir C constant au fF près pendant la durée de l'acquisition.

4.2.6 Détermination du point neutre de déformation nulle

J'ai évoqué ci-dessus le caractère bijectif de la relation entre la capacitance mesurée et le déplacement de la partie mobile de la cellule. Ceci permet de pallier le problème d'hystérésis des PZT. Cependant, cela ne signifie pas que la déformation réelle de l'échantillon peut être facilement obtenue à partir de la donnée du déplacement. J'ai évoqué précédemment le phénomène d'absorption d'une fraction de la déformation par la colle : je discute en section 4.2.7 de l'évaluation de ce coefficient de transmission de la déformation. Ici, je présente les difficultés d'estimation du point neutre, c'est-à-dire de la valeur de déplacement correspondant à une force appliquée nulle, et à l'absence de contrainte et de déformation dans l'échantillon.

Une première difficulté se présente dans le cas où l'échantillon a une contraction thermique significativement différente de celle du titane. J'ai expliqué précédemment qu'on pouvait limiter les risques de cassure en comprimant l'échantillon avant la descente en température. Dans la pratique, il est difficile d'établir précisément la compression à appliquer pour assurer un état de déformation nulle à basse température, pour des tensions électriques choisies (ne serait-ce que parce que la réponse électrique des PZT et la transmission de la contrainte dans la colle varient avec la température). Également en l'absence de compression préalable, connaître l'état de déformation de l'échantillon à basse température nécessite de connaître précisément les contractions du titane et de l'échantillon. Dans tous les cas, l'effet de contraction différentiel rend le déplacement et la capacitance correspondant au point neutre difficiles à estimer. Pour Co-Ba122, la contraction différentielle avec le titane est très faible, donc l'incertitude sur le point neutre due à ce phénomène est négligeable.

Un deuxième effet complexifiant l'évaluation du point neutre est qu'à déplacement fixé, la mesure de capacitance dépend de la température. Plus précisément, la courbe capacitance-déplacement (figure 4.10) est translationnée¹¹ quand la température varie, avec une capacitance diminuant à déplacement donné quand la température diminue.

Ensuite, au cours de l'utilisation de la cellule, les positions relatives des plaques correspondant au point de tensions électriques nulles varient du fait de l'hystérésis des PZT. Comme la cellule est amenée à tensions nulles à la fin d'une expérience, et qu'elle est maintenue à tensions nulles avant d'être réutilisée, les positions relatives des plaques au moment du collage suivant ne correspondent pas nécessairement à la valeur de capacitance calibrée au déplacement nul de la figure 4.10. C'est ainsi cette nouvelle valeur de capacitance au moment du collage qui (en l'absence d'une forte contraction différentielle) doit être considérée comme celle correspondant au déplacement relatif des plaques nul. Il faut donc considérer un second décalage de la courbe de calibration.

Enfin, malgré la bijectivité entre la capacitance et le déplacement, j'ai observé durant mes expériences sur Co-Ba122 que la déformation réelle de l'échantillon présente une hystérésis par rapport à la capacitance. Ceci est illustré en figure 4.11. Elle présente trois spectres élasto-Raman obtenus sur un échantillon de Co-Ba122 monté sur la cellule CS130, à la même température et pour la même capacitance correspondant normalement à une déformation très faible, très proche du point neutre réel. Entre les trois spectres, j'ai effectué des dépendances en capacitance selon des cycles : spectre 1 (neutre), mise en traction puis retour au neutre,

11. D'après Razorbill Instruments, cet effet serait dû à de légers désalignements des plaques du condensateur lorsque la température diminue. La translation de la courbe correspond alors à un décalage de déplacement, plutôt qu'un décalage de capacitance (translation selon l'axe des abscisses plutôt que l'axe des ordonnées). Cependant, dans la zone de faibles déplacements, la réponse est relativement linéaire, donc ces deux décalages sont équivalents.

spectre 2, mise en compression puis retour au neutre, spectre 3. Les différences d'allure¹² entre les spectres sont plus importantes qu'un simple bruit de mesure, et trahissent un état de déformation réelle de l'échantillon différent pour chaque spectre. Comme la capacitance est une image fidèle de la position de la partie mobile de la cellule, et que les plaques sont rigidement attachées à la cellule, je ne peux expliquer ce phénomène que via un effet de la colle. On peut ainsi imaginer qu'au cours du déplacement de la partie mobile, la contrainte sur l'échantillon l'amène parfois à glisser dans la colle¹³, sur de faibles distances, sans se déformer. Ce phénomène est assez gênant, car il nous empêche a priori d'accéder avec confiance à une valeur de déformation à partir de la donnée expérimentale de C . Une autre observation liée sans doute au même phénomène est qu'en maintenant la capacitance à des tensions électriques nulles et en changeant la température, on ne retrouve pas toujours exactement le même spectre lorsqu'on revient à la température de départ.

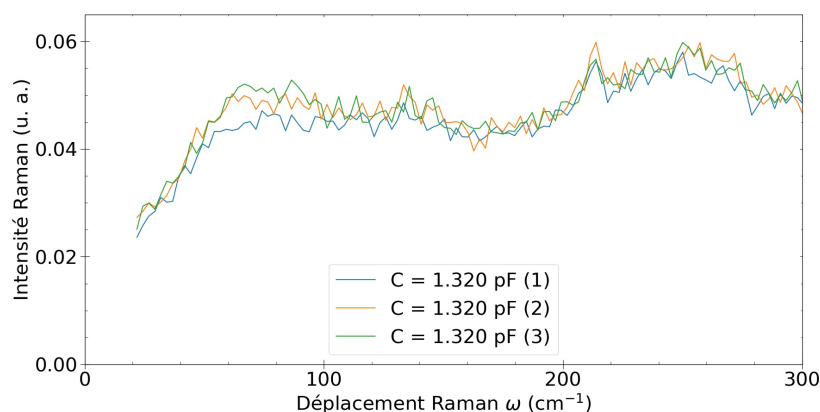


FIGURE 4.11 – Hystérésis du dispositif dans la mesure de capacitance. Les trois spectres élasto-Raman ont été acquis au même $C = 1.320$ pF, mais avec des passages en traction entre (1) et (2) et en compression entre (2) et (3). Spectres acquis sur BaFe_2As_2 dopé 7 % Co, en symétrie B_{2g} à 7 K.

Pour limiter l'impact de ce phénomène sur mes résultats, j'ai considéré uniquement les résultats obtenus en effectuant des séries de dépendances en capacitance de façon monotone, et pas selon des allers-retours. Également, j'ai privilégié les séries d'acquisition en dépendance en capacitance à température constante plutôt qu'en dépendance en température à capacitance constante, pour lesquelles l'incertitude sur le déplacement est plus grande.

Tous ces effets induisent une barre d'erreur sur l'estimation de la valeur de capacitance correspondant au point neutre de déformation nulle. Cette incertitude quantitative sur la position du point neutre limite l'interprétation quantitative précise de mes résultats. Dans la pratique, j'ai considéré comme point neutre à température ambiante la valeur de capacitance au moment du collage. J'ai négligé la contraction différentielle, très faible pour Co-Ba122, et ai pris en compte la modification de C avec la température à déplacement fixé¹⁴, pour avoir la valeur de capacitance au point neutre à toute température.

Dans les articles traitant de mesures sous contrainte uniaxiale avec des dispositifs de type Razorbill, ces difficultés d'estimation du point neutre ne sont pas toujours évoquées,

12. Je montrerai au chapitre 5 que pour BaFe_2As_2 dopé 7 % Co, le mode large situé autour de 90 cm^{-1} , correspondant à la supraconductivité, perd de l'intensité sous déformation.

13. Un tel glissement dans la colle a également été observé par Barber [14], qui remarque que ce phénomène a tendance après coup à améliorer l'adhérence entre l'échantillon et la colle ; il s'estomperait donc après quelques rampes de contrainte.

14. Cette considération s'est faite à l'aide d'une calibration préalable de la variation de capacitance avec la température en plaçant la cellule dans le cryostat sans échantillon monté.

et la méthode d'obtention du point neutre de déformation nulle n'est pas systématiquement expliquée. En élastorésistivité, les auteurs des références [175, 224] indiquent qu'ils comparent la résistivité de l'échantillon déformé avec celle du même échantillon non déformé. En RMN, Kissikov et collaborateurs [133] mesurent des grandeurs s'égalisant théoriquement au point neutre, ce qui leur permet de l'estimer.

Pour mes mesures, a posteriori, l'obtention de résultats relativement symétriques en compression et en tension valide mon estimation du point neutre¹⁵, avec un écart maximal de 0,5 ‰ entre le point neutre calculé et le point neutre réel symétrisant les données. Ainsi, pour les séries de résultats que je présente en dépendance en déformation, j'estime une incertitude inférieure à 0,5 ‰, commune à tous les points expérimentaux d'une même série.

4.2.7 Déformation réelle de l'échantillon : estimations par simulations numériques

4.2.7.1 Importance de l'estimation de la déformation réelle

Au cours d'une expérience de déformation uniaxiale avec un dispositif du type de la cellule CS130, on accède à la déformation nominale appliquée sur l'échantillon, calculée à partir du déplacement de la plaque mobile. Cependant, l'échantillon n'est pas rigidement attaché à ses extrémités aux plaques. La présence de la colle comme milieu médiateur de la contrainte, qui est une matière relativement souple par rapport à l'échantillon, implique l'existence d'un coefficient μ de transmission de la déformation : la déformation réelle de l'échantillon n'est a priori qu'une fraction de la déformation nominale. Il apparaît nécessaire d'évaluer ce coefficient pour au moins deux raisons.

La première raison, assez évidente, est que la déformation réelle a plus de signification physique que la déformation nominale. Les différentes grandeurs d'intérêt extraites des expériences (par exemple une susceptibilité par rapport à la déformation) ne peuvent être quantitativement évaluées qu'à partir de la déformation réelle. Comme μ dépend a priori du matériau, mais aussi pour un matériau donné des paramètres géométriques du montage de l'échantillon (dimensions de l'échantillon, épaisseur de colle...), la comparaison quantitative de résultats obtenus sur différents échantillons montés n'est possible qu'après avoir déterminé la déformation réelle.

Cet aspect est souvent pris en compte par les différents articles qui étudient des échantillons déformés par des cellules de type Razorbill. La déformation réelle est estimée à l'aide de simulations en éléments finis, comparables à celles que j'ai menées, que je présente ci-après et en annexe A.2. Dans les travaux pionniers pour Sr_2RuO_4 [100], les auteurs estiment $\mu \sim 70\text{--}80\%$. Des pourcentages équivalents sont obtenus sur ce même matériau dans les références [11, 239], mais présentés différemment : une longueur effective est estimée, supérieure à la longueur suspendue L_s , correspondant à la longueur à vide qu'aurait l'échantillon si toute la déformation était transmise ; μ correspond alors au rapport entre la longueur réelle L_s et la longueur effective. Des estimations analogues ont été effectuées pour Co-Ba122, avec μ variant entre 70 et 90 % [112, 175, 269].

La seconde raison est plus subtile, et concerne la variation de μ avec la température pour un même échantillon monté. Ce phénomène est possible si le module d'Young de l'échantillon dans la direction de contrainte présente une forte dépendance en température. Ceci est notamment pertinent dans le cas d'une force appliquée selon la direction [110] sur Co-Ba122, car C_{66} se ramollit significativement entre la température ambiante et T_s [77] (voir l'équa-

15. Je montre au chapitre 5 que l'effet symétrique en tension et en compression est attendu dans le cas où la composante B_{2g} de la déformation domine sur la composante A_{1g} .

tion (4.7) reliant C_{66} et $Y_{[110]}$ ¹⁶). La transmission est d'autant plus grande que l'échantillon est souple par rapport à la colle. Autrement dit, à contraintes égales ou à déformations nominales égales, la déformation réelle est bien plus grande proche de T_s que loin de T_s . Ce phénomène rend par exemple ambiguë la comparaison de susceptibilités à différentes températures si la déformation considérée est la déformation nominale : une part de la potentielle différence entre ces susceptibilités pourrait être due à la modification de la transmission.

Dans Sr_2RuO_4 , l'absence de transition structurale rend cet effet très secondaire. Par contre dans Co-Ba122, selon les gammes de températures et de dopage explorées, il peut être incontournable. Dans la majorité des différents articles sus-cités au chapitre 2 présentant des expériences sous déformation sur Co-Ba122, cet effet ne semble pas être discuté : mais les conditions d'expérience (contrainte selon [100] ou loin de T_s) permettent cette omission. Il est en revanche considéré par Sanchez et collaborateurs [221], qui mènent des mesures d'élastorésistivité sur Co-Ba122 dopé à 4 %, en contrainte selon [110] sur une large gamme de température traversant T_s . Pour ma part, j'ai également dû le prendre en compte dans l'analyse de mes résultats.

Également, connaître plusieurs composantes du tenseur de déformation réelle de l'échantillon permet de calculer $\epsilon_{B_{2g}}$, qui est la déformation la plus significative dans les expériences sur Co-Ba122 : c'est elle qui est le paramètre d'ordre structural, qui se conjugue avec le paramètre d'ordre nématique.

Des simulations numériques permettent d'accéder à la déformation réelle des échantillons. Dans la suite, j'en présente le principe et l'application dans un cas simple (échantillon relativement rigide). Pour l'analyse des résultats de spectroscopie élasto-Raman dans Co-Ba122, il faut prendre en compte la présence de la transition structurale : les simulations complètes correspondantes sont présentées en annexe A.2.

4.2.7.2 Simulations numériques par éléments finis : définition du système

Le principe d'une simulation numérique par éléments finis est de calculer localement, en un nombre fini de points de l'échantillon formant un maillage, la contrainte et la déformation en résolvant directement les équations fondamentales de la mécanique des milieux continus. Dans cette section, je ne présente pas plus en détail les aspects théoriques de la simulation, mais seulement son implémentation pratique et ses résultats dans le cas d'un échantillon relativement rigide. J'utilise le logiciel Comsol Multiphysics pour effectuer ces simulations.

Dans le logiciel, je renseigne les paramètres des dimensions géométriques nécessaires (trois dimensions de l'échantillon L_t , w et e , longueur suspendue L_s de l'échantillon, épaisseur de colle d , dimensions des plaques de montage) puis construis la géométrie du système. Pour simplifier, je ne représente pas le fait que la colle englobe l'échantillon sur les tranches au niveau des extrémités, ce qui ne change pas quantitativement les résultats obtenus. Les dimensions des plaques de montage renseignées sont des dimensions fictives permettant de fixer les limites du système : leur largeur correspond à la largeur de l'échantillon, leur longueur doit être supérieure à la longueur de contact colle-échantillon L_c , leur épaisseur est arbitraire. Du fait de la façon dont j'astreins leur déplacement, comme expliqué dans la suite, ces choix de dimensions n'affectent pas les résultats. La figure 4.12 représente le système construit.

Je définis le matériau correspondant à chacun des sept domaines : quatre de titane, deux de colle et un d'échantillon. Dans ce système, le titane et la colle sont des matériaux isotropes, dont je définis la masse volumique¹⁷, le module d'Young et le coefficient de Poisson. Pour

16. Par exemple, pour Ba122 pur de $T_s = 138$ K, je calcule à l'aide des résultats de la référence [77] et l'équation (4.7) que $Y_{[110]} = 84/69/47/28$ GPa pour $T = 300/190/154/145$ K.

17. Pour des matériaux suffisamment denses comme ceux utilisés ici, la valeur précise de la masse volumique n'a pas d'impact sur les résultats. Mais dans la pratique il est nécessaire de les rentrer dans le logiciel que j'ai utilisé.

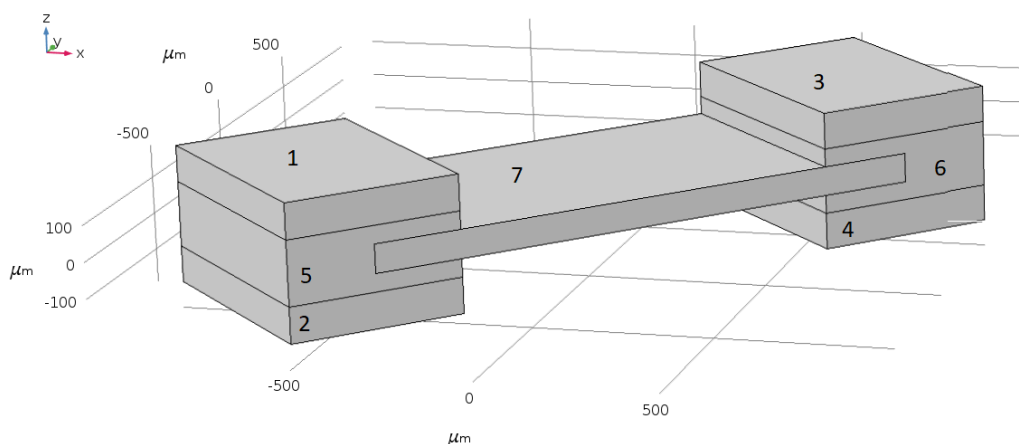


FIGURE 4.12 – Géométrie du système simulé. Les attributions des domaines sont les suivantes : 1 à 4 : plaques en titane ; 5 et 6 : colle ; 7 : échantillon.

le titane, je tire la densité de l’[article Wikipedia correspondant](#) (4510 kg/m^3), le module d’Young et le coefficient de Poisson de la référence [112] (respectivement 105 GPa et 0.33). Pour la colle (Stycast 2850FT et catalyst 24LV), je déduis la densité de la documentation du fabricant (environ 2300 kg/m^3), le module d’Young et le coefficient de Poisson de la thèse de Barber [14] (respectivement 15 GPa et 0.3). Je prends ces grandeurs comme indépendantes de la température¹⁸.

Je définis l’échantillon comme un matériau anisotrope, dont je renseigne la densité et la matrice des coefficients élastiques (tenseur de raideur). Je tire la densité de l’article sur BaFe_2As_2 de Materials Project [207] (6450 kg/cm^3), et les coefficients élastiques de la référence [77]. Pour la simulation présentée ici, je prends les coefficients élastiques à 300 K , valant pour C_{11} , C_{12} , C_{13} , C_{33} , C_{44} et C_{66} respectivement¹⁹ 93 , 17 , 17 , 73 , 36 et 35 GPa .

Dans les définitions qui précèdent, pour simuler le cas de mes deux expériences sur CoBa122 , il faut impérativement prendre en compte le fait que la contrainte s’exerce à 45° par rapport aux axes cristallographiques de la maille tétragonale. C’est d’une part par rapport à ces axes tétragonaux que sont définis les coefficients élastiques, et d’autre part ceux-ci sont définis par rapport au repère (xyz) du logiciel–laboratoire dans lequel j’ai construit le système. Pour assurer la cohérence entre ces deux définitions, deux voies sont possibles. Dans la première, on construit le système le long des axes du repère (xyz) (par exemple en associant les axes de longueur, de largeur et d’épaisseur de la barrette–échantillon respectivement à x , y et z). La maille tétragonale est alors à 45° des axes du repère, et il faut donc appliquer la rotation correspondante au tenseur de raideur²⁰. La seconde voie consiste à construire le système à 45° des axes du repère. Dans ce cas, le tenseur de raideur défini par les coefficients élastiques habituels est correct. C’est cette seconde voie que j’ai empruntée pour mes simulations, en définissant un repère $(x'y'z)$ obtenu par rotation de (xyz) d’angle -45° et d’axe z ,

18. D’après les différentes mesures accessibles citées dans la référence [14], la colle a cependant tendance à se raidir quand la température diminue. Les valeurs que j’ai utilisées correspondent plutôt à l’état de la colle estimé à basse température (entre 100 et 200 K), donc les utiliser également à haute température (300 K) conduit a priori à une légère surestimation de la transmission de la déformation à haute température.

19. Certains coefficients élastiques ne sont pas mesurés dans la référence [77] à 300 K , dans ce cas je les estime par extrapolation linéaire.

20. La référence [175] présente un calcul de la rotation du tenseur de souplesse.

et en prenant l'axe x' comme direction de contrainte²¹.

Je définis le maillage sur lequel est effectué le calcul des éléments finis. Pour l'échantillon, je règle un maillage avec des éléments de taille maximale 20 μm . Pour la colle et le titane, la précision du calcul est moins importante, donc je choisis un maillage plus large (« maillage fin » dans les tailles prédéfinies du logiciel). Le maillage est représenté en figure 4.13. Avec ce maillage, le calcul de la simulation sur mon ordinateur est rapide, entre 3 et 4 minutes.

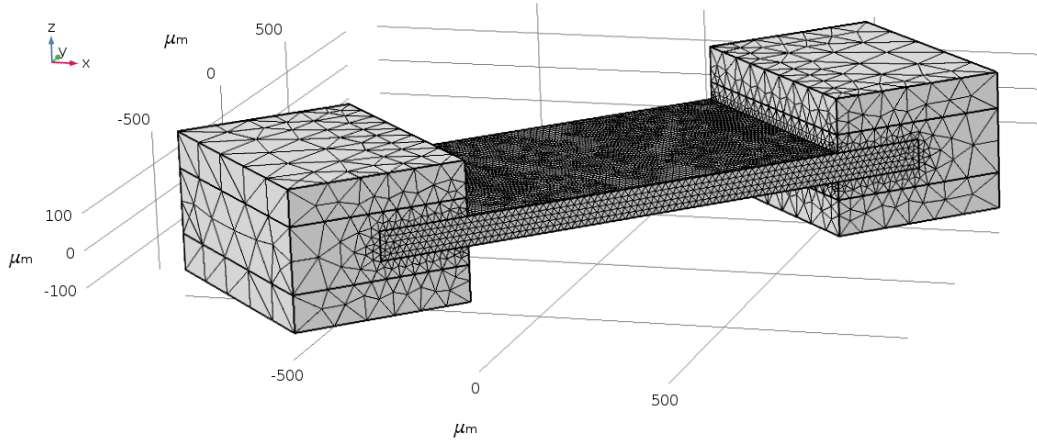


FIGURE 4.13 – Maillage du système.

Enfin, je définis un encastrement sur les plaques de titane à une extrémité (domaines 3 et 4) (celles-ci sont alors rigidement fixées au repère), et un déplacement d'ensemble u_{imp} imposé pour celles à l'autre extrémité selon la direction x' (domaines 1 et 2).

Le logiciel permet d'accéder à plusieurs grandeurs, celles qui m'intéressent sont les composantes du tenseur de déformation. Pour obtenir le coefficient de transmission de la déformation μ , je dois accéder à la déformation dans la direction de la contrainte, soit $\epsilon_{x'x'}$. Vue l'orientation du système dans le repère xyz , avec la contrainte appliquée dans la direction x' , on a les relations suivantes :

$$\epsilon_{A_{1g}} = \frac{1}{2}(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy}) \quad (4.17)$$

$$\epsilon_{B_{2g}} = \epsilon_{xy} \quad (4.18)$$

$$\epsilon_{x'x'} = \epsilon_{A_{1g}} + \epsilon_{B_{2g}} \quad (4.19)$$

À partir de ϵ_{xx} , ϵ_{yy} et ϵ_{xy} (composantes du tenseur de déformation calculées par la simulation), je peux donc obtenir $\epsilon_{x'x'}$. Je définis la déformation nominale $\epsilon_{x'x'}^{nom}$ par :

$$\epsilon_{x'x'}^{nom} = \frac{u_{imp}}{L_s}. \quad (4.20)$$

avec L_s la longueur suspendue de l'échantillon²². μ est alors défini par $\epsilon_{x'x'} = \mu \epsilon_{x'x'}^{nom}$.

21. Dans l'analyse des résultats au chapitre 5, pour alléger les notations, j'ai noté x la direction de contrainte au lieu de x' .

22. Dans la note 9 de ce chapitre, j'ai expliqué qu'il était ambigu d'utiliser L_s ou L_t (longueur suspendue ou longueur totale de l'échantillon) pour calculer le coefficient de raideur k . Cette ambiguïté revient ici dans l'estimation de la déformation nominale. En réalité, comme je l'explique en annexe A.2, cette grandeur est relativement arbitraire par rapport à $\epsilon_{x'x'}$, qui a davantage de sens physique. Donc le choix entre L_s ou L_t , tant qu'il est cohérent avec les études antérieures, n'importe pas.

4.2.7.3 Simulations numériques par éléments finis : résultats

Dans cette section, je présente les résultats des simulations obtenus pour un système correspondant au collage de l'échantillon de Ba122 à 300 K, avec un déplacement imposé compressif $u_{imp} = -1 \mu\text{m}$, donc $\epsilon_{x'x'}^{nom} = -9.1 \times 10^{-4}$.

La figure 4.14 indique les valeurs du module du champ de déplacement \mathbf{u} sur le système. Le déplacement en valeur absolue décroît le long de la barrette, de la plaque mobile vers la plaque fixe.

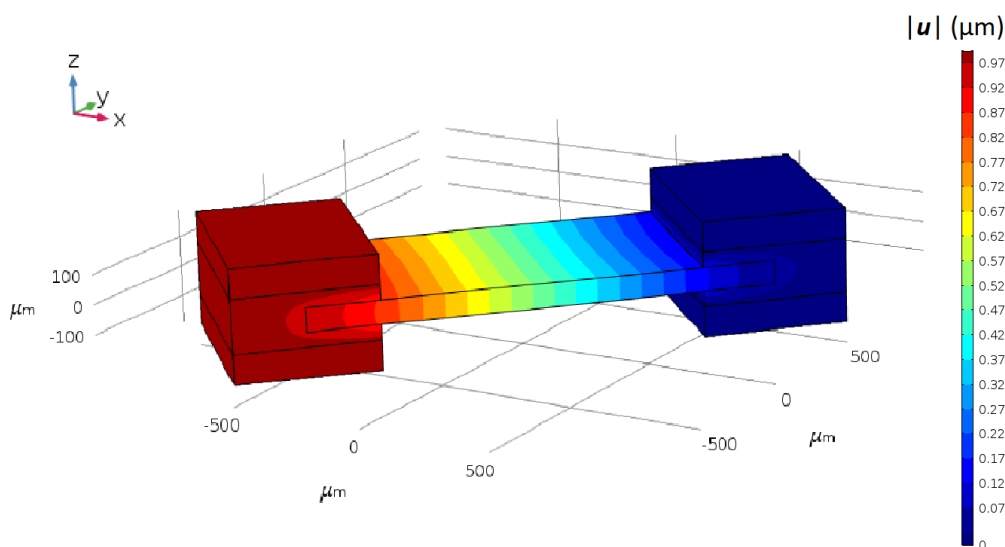


FIGURE 4.14 – Champ de déplacement $\mathbf{u} = u_x \mathbf{e}_x + u_y \mathbf{e}_y$, pour un déplacement imposé compressif de module $1 \mu\text{m}$, à 300 K.

La figure 4.15 représente les valeurs de $\epsilon_{x'x'}$ et $\epsilon_{B_{2g}}$ le long de la barrette (donc en fonction de x'). Ces déformations réelles présentent un profil symétrique variable sur la longueur de l'échantillon. Ce profil comporte une région centrale présentant un champ de déformation quasiment constant, et deux régions périphériques dans lesquelles la déformation décroît fortement en s'éloignant de la région centrale. Le pourcentage de transmission dans la région centrale vaut environ 75 %. Ce type de profil symétrique et ce pourcentage de transmission correspondent à ceux obtenus par simulations dans les précédents articles de contrainte uniaxiale avec une cellule de type Razorbill sus-cités. La part de $\epsilon_{B_{2g}}$ dans $\epsilon_{x'x'}$ est légèrement supérieure à 50 % : pour un échantillon relativement raide avec un coefficient de Poisson significativement inférieur à 1, une part non négligeable de la déformation réelle est de symétrie A_{1g} .

Vue cette variabilité de la déformation réelle, μ acquiert une dépendance spatiale, et on a $\epsilon_{x'x'}(x') = \mu(x') \epsilon_{x'x'}^{nom}$. Cependant, à 300 K, la région centrale correspond en fait à la longueur suspendue de l'échantillon, donc on peut négliger cette dépendance spatiale de μ . L'homogénéité de la déformation dans les directions y' (bonne homogénéité au centre de l'échantillon) et z (homogénéité parfaite) est illustrée par la figure 4.16.

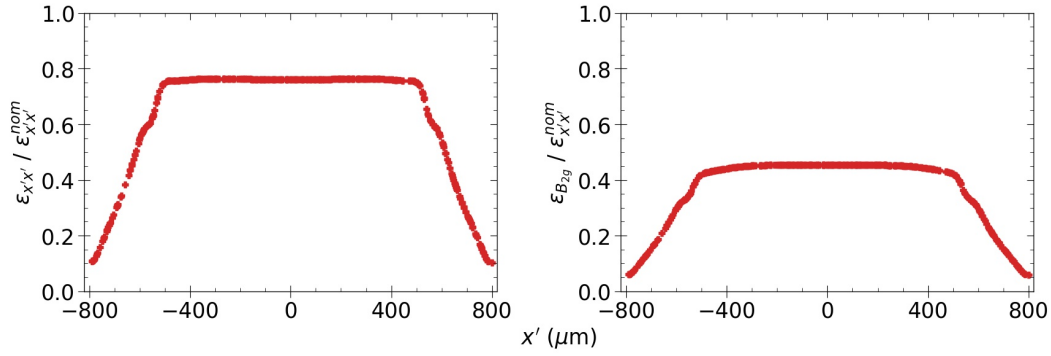


FIGURE 4.15 – Profil de déformations réelles $\epsilon_{x'x'}$ et $\epsilon_{B_{2g}}$ (renormalisées par rapport à la déformation nominale) le long de l'échantillon à 300 K.

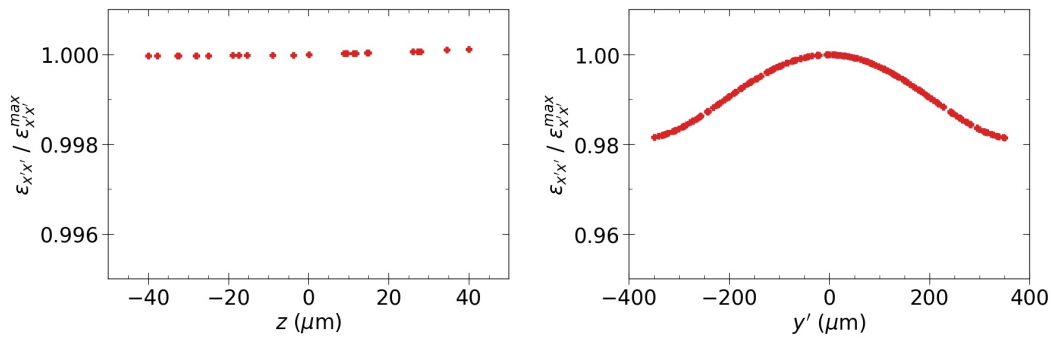


FIGURE 4.16 – Profil de la déformation réelle $\epsilon_{x'x'}$ dans les directions transverses y' et z à 300 K. $\epsilon_{x'x'}$ est renormalisée par rapport à sa valeur maximale (autour de $(x',y',z) = (0,0,0)$) dans la figure 4.15. Plus précisément, le résultat selon (Oz) est obtenu le long de la ligne verticale à $(x',y') = (0,0)$, mais j'ai vérifié que le résultat est similaire pour les autres lignes verticales. De même, le résultat selon (Oy') est obtenu le long de la ligne horizontale « de coeur » à $(x',z) = (0,0)$, mais j'ai vérifié que le résultat est identique pour une ligne (Oy') en surface.

4.3 Bref état de l'art de la spectroscopie Raman sous contrainte uniaxiale

Mes résultats de déformation uniaxiale sur Co-Ba122 constituent à ma connaissance les premiers résultats de spectroscopie Raman sous contrainte uniaxiale utilisant un dispositif du type Razorbill. Mais la littérature scientifique contient de nombreux exemples d'études Raman expérimentales de divers matériaux sous contrainte uniaxiale, avec des dispositifs plus anciens. Une recherche sur la base de données [Scopus](#)²³ donne près de 300 résultats publiés entre 1970 et 2021.

Les études expérimentales pionnières en 1969 et 1970 sont celles de Harker et collaboratrices [93, 94] et Anastassakis et collaboratrices [4], respectivement sur le quartz- α et le silicium. Iels utilisent des dispositifs de contrainte uniaxiale à base d'enclume écrasant les échantillons à température ambiante, et étudient la dépendance en contrainte des caractéristiques des modes de phonon (énergie, largeur). Les études de spectroscopie Raman sous contrainte uniaxiale se sont en effet principalement intéressées à l'influence de la contrainte sur les phonons, comme cela ressort de la revue d'Anastassakis en 1981 [5]. Les aspects théo-

23. Recherche sur Scopus avec la quête TITLE-ABS-KEY(("Raman spectroscopy" OR "Raman spectra" OR "Raman scattering") AND ("uniaxial stress" OR "uniaxial strain")).

riques des effets de contrainte sur les spectres Raman ont été étudiés concomitamment aux expériences [6, 7, 82]. Les auteurices de ces références étudient les « effets morphiques », c'est-à-dire les effets résultant de l'abaissement de la symétrie du système par l'application d'un champ externe, notamment une contrainte. Avec une approche de théorie des groupes, iels montrent la possibilité d'activation de modes sous contrainte, avec des modifications des règles de polarisations ; également, l'énergie d'un mode peut être modifiée, ou sa dégénérescence levée.

Les articles les plus récents de spectroscopie Raman sous contrainte uniaxiale sont des études extrêmement diverses, assez éloignées des enjeux correspondant à ma thèse, que sont le régime de liquide de Fermi, la supraconductivité et la nématicité. Je n'ai pas trouvé d'article concernant l'état de liquide de Fermi étudié par spectroscopie Raman sous contrainte uniaxiale²⁴, comparable à mon étude de Sr_2RuO_4 . Le seul article que j'ai trouvé mêlant spectroscopie Raman, contrainte uniaxiale et étude de la nématicité ou de la supraconductivité²⁵ est celui de Ren et collaborateurices [216], qui s'intéresse justement à BaFe_2As_2 ²⁶.

Dans la référence [216], une contrainte est appliquée selon le canal nématique (direction [110]), à l'aide d'un dispositif où l'échantillon est mécaniquement écrasé entre un support en cuivre et une feuille de BeCu, avec une contrainte constante d'environ 5 MPa, réglée par une vis. Il n'est pas précisé par les auteurices comment iels déterminent que la contrainte reste constante lorsque la température est variée. Iels étudient le dédoublement du phonon E_g sous contrainte, qui se déroule normalement sans contrainte lors du passage de la transition structurale, pour montrer que la transition structurale s'élargit largement sous contrainte en un « *crossover* nématique ».

Ce bref état de l'art montre les lacunes concernant l'étude par spectroscopie Raman des effets d'une contrainte uniaxiale sur les propriétés des matériaux nématiques ou supraconducteurs. Cette constatation a motivé mon travail de thèse, pour sonder ces effets avec les spécificités de la spectroscopie Raman.

24. Pas de résultats sur Scopus pour la requête ("Raman spectroscopy" OR "Raman spectra" OR "Raman scattering") AND ("uniaxial stress" OR "uniaxial strain") AND ("Fermi liquid" OR "Fermi-liquid").

25. Trois articles seulement ressortent de la requête Scopus ("Raman spectroscopy" OR "Raman spectra" OR "Raman scattering") AND ("uniaxial stress" OR "uniaxial strain") AND ("superconductivity" OR "superconductor" OR "nematicity" OR "nematic"), dont deux ne sont pas pertinents.

26. La référence [18] constitue également une étude des propriétés nématiques de BaFe_2As_2 par spectroscopie Raman sous contrainte uniaxiale. Mais dans cette étude, le seul intérêt de la contrainte, qui est fixée à une valeur estimée à 35 MPa, est d'avoir un échantillon sans domaine dans la phase orthorhombique.

Chapitre 5

Spectroscopie élasto-Raman de $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$

And then Pete skvatted these three books from him and handed them round real skorry. Being three, we all had one each to viddy at except for Dim. The one I had was called *Elementary Crystallography*, so I opened it up and said: “Excellent, really first-class,” keeping turning the pages. Then I said in a very shocked type goloss: “But what is this here? What is this filthy slovo, I blush to look at this word. You disappoint me brother, you do really.”

Anthony Burgess, *A Clockwork Orange* (1962)

Ce chapitre rend compte des résultats obtenus en utilisant le dispositif expérimental de spectroscopie élasto-Raman décrit au chapitre précédent sur le composé $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$, à deux dopages x différents. Je présente d’abord en section 5.1 les détails expérimentaux de ces mesures. J’ai analysé mes résultats principalement selon deux axes, qui touchent tous deux à la nématicité de ce matériau. Le premier axe, développé en section 5.2, est consacré à l’analyse des modes de phonons, qui constituent une mesure indirecte du paramètre d’ordre nématique. Le second axe, développé en section 5.3, est consacré au continuum : les réponses Raman caractéristiques des fluctuations nématiques et de la supraconductivité acquièrent une dépendance en déformation, révélant la suppression des fluctuations nématiques. La section 5.3.1.5 est une courte ouverture sur les effets de la déformation que j’ai observés sur l’ordre magnétique.

Sommaire

5.1	Échantillons et conditions expérimentales	118
5.1.1	Échantillons, repères et collages	118
5.1.2	Conditions expérimentales et symétries sondées	120
5.1.3	Détermination de l’échauffement laser	121
5.2	Modes de phonons et sonde de la nématicité via l’effet de contrainte sur le phonon de l’arsenic	122
5.2.1	Phonons actifs en spectroscopie Raman	122
5.2.2	Règles de sélection et définition du paramètre d’ordre nématique du phonon de l’arsenic	124
5.2.3	Orientation des domaines nématiques sous T_s	126
5.2.4	Mesures du paramètre d’ordre nématique autour de T_s	128
5.2.4.1	Dépendance en déformation à température fixée	129

5.2.4.2	Dépendance en température à déformation fixée	133
5.2.5	Conclusions sur la spectroscopie élasto-Raman du phonon de l'As	135
5.3	Effets de la déformation sur le continuum : suppression des fluctuations nématiques	135
5.3.1	Continuum électronique de BFA0 sous déformation autour de T_s	135
5.3.1.1	Spectres Raman obtenus	135
5.3.1.2	Extrapolations à basse énergie des spectres	137
5.3.1.3	Susceptibilité nématique dans BFA0	139
5.3.1.4	Évaluation du préfacteur quadratique en déformation de la susceptibilité nématique	141
5.3.1.5	Effet de la déformation sur l'ordre magnétique SDW	143
5.3.2	Continuum électronique de BFA7 sous déformation	145
5.3.2.1	Spectres Raman obtenus	145
5.3.2.2	Susceptibilité nématique dans BFA7	147
5.3.3	Évolution du couplage nématé-élastique avec le dopage	150
5.3.3.1	Intérêts de la comparaison des deux échantillons	150
5.3.3.2	Comparaison des susceptibilité nématiques entre BFA0 et BFA7	151
5.4	Conclusions et perspectives de la spectroscopie élasto-Raman dans les supraconducteurs à base de fer	152

5.1 Échantillons et conditions expérimentales

5.1.1 Échantillons, repères et collages

Les résultats présentés dans ce chapitre sont issus de la spectroscopie élasto-Raman de deux échantillons de $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$. Le premier provient du composé parent avec $x = 0$ ($T_{s/N} = 138$ K, pas de phase supraconductrice), le second d'un composé légèrement surdopé, avec $x \approx 7\%$ (pas de transition magnéto-structurale, $T_c \approx 25$ K). Je noterai ces échantillons respectivement BFA0 et BFA7. Je note $T_{s,0}$ la température de transition structurale dans BFA0 en l'absence de contrainte appliquée. J'ai choisi ces deux dopages car chacun présente un intérêt particulier : BFA0 présente $T_{s,0}$ la plus élevée et le paramètre d'ordre nématique le plus grand à basse température, quand BFA7 présente un ordre supraconducteur avec T_c parmi les plus élevées et sans transition structurale.

Ces deux échantillons ont été synthétisés par mes collaboratrices Dorothée Colson et Anne Forget au CEA-Saclay. Elles les ont également coupés à la scie à fil sous forme de barrettes, compatibles avec les expériences de contrainte uniaxiale, avec la grande surface accessible optiquement correspondant au plan (ab) . Afin de les soumettre à des déformations B_{2g} , les arêtes correspondent aux côtés de la maille orthorhombique : les directions de la grande dimension correspondent à la direction planaire des liaisons Fe-Fe (figure 5.1). Contrairement à Sr_2RuO_4 , je n'ai pas eu besoin de recourir à la diffraction des rayons X pour déterminer les axes des échantillons, car ceux de Co-Ba122 s'obtiennent naturellement avec des faces (ab) et des arêtes correspondant à la maille tétragonale. Les échantillons ont été sondés sans traitement préliminaire de la surface de type polissage ou clivage. Des photographies au microscope des échantillons montés sont présentées en figure 5.2.

Pour les deux échantillons, je note a , b et c les paramètres de la maille tétragonale (dite à 2 Fe, avec les axes selon les liaisons Fe-As, et $a = b$), et a' , b' et c ceux de la maille orthorhombique (dite à 1 Fe, avec les axes selon les liaisons Fe-Fe), avec $a' \leq b'$. Les deux échantillons ont été successivement montés sur la même cellule de contrainte uniaxiale CS130 de Razorbill Instruments, orientés de façon à ce que la direction de contrainte soit le long

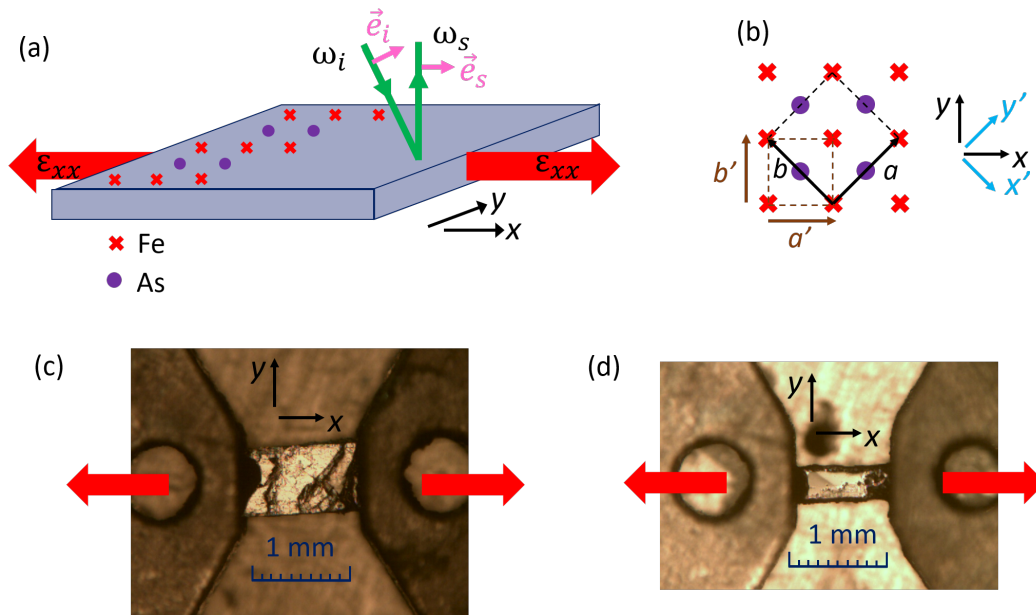


FIGURE 5.1 – (a) Représentation schématique en perspective du dispositif expérimental. Le bloc gris est l'échantillon. Les flèches vertes représentent le faisceau incident et le faisceau diffusé dans la direction de collection, de pulsations $\omega_{i/s}$ et de polarisations $e_{i/s}$ (flèches roses). À noter que dans la géométrie de l'expérience, la direction de contrainte est orthogonale au plan d'incidence. Les flèches rouges représentent la direction de contrainte, selon l'axe x du repère du laboratoire. (b) Orientation des axes cristallographiques par rapport aux repères du laboratoire (xy) et $(x'y')$. a et b sont les paramètres de la maille tétragonale à 2 Fe (notée en traits noirs), a' et b' sont les paramètres de la maille orthorhombique à 1 Fe (notée en traits marron). (c) et (d) Photographies au microscope en vue du dessus des échantillons ((c) : BFA0, (d) : BFA7), avec la même échelle, montés sur la cellule de contrainte uniaxiale, avec précision du repère du laboratoire et de la direction de contrainte (flèches rouges).

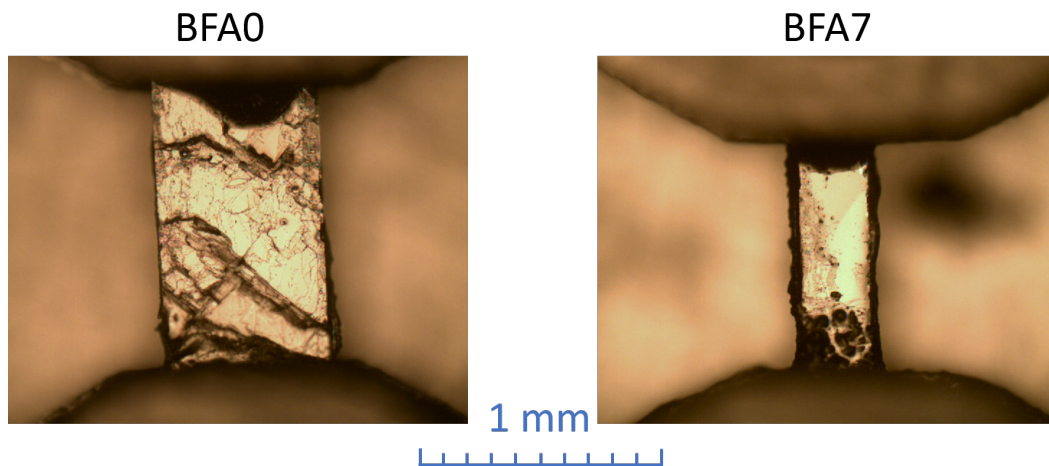


FIGURE 5.2 – Photographies au microscope des deux échantillons BFA0 et BFA7.

des axes orthorhombiques. Je définis (xyz) le repère cartésien du laboratoire, avec x et y les axes planaires (contenus dans le plan (ab) de l'échantillon) et x la direction de contrainte, et $(x'y'z)$ le repère obtenu par rotation de xyz d'angle -45° et d'axe z .

Les dimensions des échantillons et les grandeurs géométriques des collages sont données

dans le tableau 5.1. À partir des dimensions, je calcule les constantes de raideur k des deux échantillons (équation (4.15)), en prenant le module d'Young dans la direction de contrainte $Y_{x'} = 83/90$ GPa pour BFA0/BFA7, à température ambiante¹. Les valeurs obtenues sont plus petites que la valeur maximale permise par la cellule, et comme $Y_{x'}$ décroît quand la température diminue, cette exigence est également respectée à plus basse température. De même, je calcule les longueurs caractéristiques de transmission de la contrainte λ_t avec $Y_{x'}$ à température ambiante (équation (4.16)), qui apparaissent suffisamment faibles par rapport à la longueur de contact L_c (et qui également décroissent quand la température diminue).

	Longueur totale L_t	Longueur suspendue L_s	Longueur de contact L_c	Largeur w	Épaisseur e
BFA0	1600	1100	250	700	80
BFA7	1500	950	275	300	50

	Épaisseur de colle d	Raideur k (N/ μ m)	Longueur caractéristique de transmission λ_t
BFA0	50	4.2	166
BFA7	50	1.4	137

TABLEAU 5.1 – Dimensions des échantillons et paramètres caractéristiques des collages sur la cellule de contrainte uniaxiale. Toutes les grandeurs de dimension longueur sont données en μ m. k et λ_t sont données à température ambiante, elles décroissent quand la température diminue.

Comme définie au chapitre 4, je prends $\epsilon_{xx}^{nom} = \Delta L_s / L_{s,0}$, avec $L_{s,0}$ la longueur suspendue en l'absence de contrainte, et ΔL_s la variation de L_s sous contrainte. J'ai souligné précédemment la différence entre la déformation nominale ϵ_{xx}^{nom} , définie de façon externe, la déformation réelle de l'échantillon ϵ_{xx} et la déformation de symétrie nématique $\epsilon_{B_{2g}}$ (à noter que ces trois quantités partagent cependant leur signe). Dans ce chapitre, l'ensemble des grandeurs physiques étant modifiées sous déformation sont considérées en fonction de ϵ_{xx}^{nom} . Même si le sens physique est plutôt porté par ϵ_{xx} et $\epsilon_{B_{2g}}$ qui sont théoriquement bien définies, leur détermination quantitative, effectuée par simulations numériques, peut être limitée. Durant l'analyse des résultats, je discuterai de l'impact des facteurs correctifs sur ϵ_{xx}^{nom} , parfois quantitativement non négligeable.

5.1.2 Conditions expérimentales et symétries sondées

Les deux échantillons ont été étudiés dans le dispositif de spectroscopie Raman 1, le seul adapté à la technique élasto-Raman au moment où les expériences ont été menées, avec uniquement un laser émettant à 532 nm.

En l'absence de contrainte appliquée, BFA0 est tétragonal pour $T > T_s$ et orthorhombique pour $T < T_s$, et BFA7 est tétragonal à toute température. Dans la suite, je note les configurations de polarisation en notation de Porto simplifiée (e_i, e_s), en me plaçant dans une géométrie de type pseudorétrodiffusion (les polarisations sont donc majoritairement dans le plan (ab)). Le tableau 5.2 représente les polarisations possibles et leurs symétries associées.

Les symétries² sondables dans BFA7 et dans BFA0 tétragonal avec des polarisations

1. Je calcule $Y_{x'}$ à partir des valeurs de coefficients élastiques mesurées dans la référence [77], avec la formule donnée dans la référence [29]. Pour BFA7, je prends les moyennes des coefficients élastiques entre $x = 6$ % et $x = 8,4$ %.

2. La décomposition des symétries des deux phases est présentée aux équations (3.11) et (3.12).

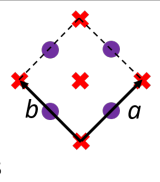
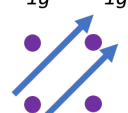
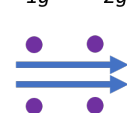
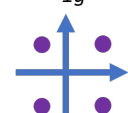
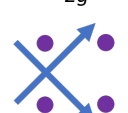
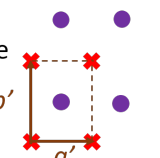
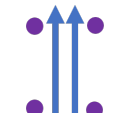
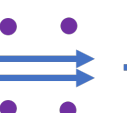
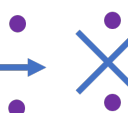

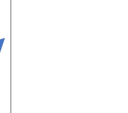
Structure	Polarisations (e_i, e_s)				
Tétragonale D_{4h}  × Fe ● As	$A_{1g} + B_{1g}$ 	$A_{1g} + B_{2g}$ 	B_{1g} 	B_{2g} 	
Orthorhombique D_{2h}  ● As	A_g 	A_g 	B_{1g} 	A_g 	A_g 

TABLEAU 5.2 – Définition des configurations de polarisations possibles et des symétries associées dans les deux phases structurales existant dans Co-Ba122.

rectilignes sont : B_{1g} et B_{2g} pures en polarisations croisées respectivement $(a + b, a - b)$ et (a, b) , $A_{1g} + B_{2g}$ et $A_{1g} + B_{1g}$ en polarisations parallèles respectivement $(a + b, a + b)$ et (a, a) (ou de façon équivalente $(a - b, a - b)$ et (b, b)).

Pour BFA0 dans l'état orthorhombique, il n'y a plus que deux représentations irréductibles dans le plan, A_g et B_{1g} . La distortion orthorhombique rend ambiguë l'utilisation de configurations de polarisations non alignées avec les axes cristallographiques a' et b' : l'angle entre un côté et une diagonale du rectangle ne vaut pas strictement 45° . De plus, du fait de la présence de domaines, les axes orthorhombiques varient spatialement. Cependant, la distortion orthorhombique est suffisamment faible pour qu'on puisse la négliger géométriquement, et considérer valable l'utilisation des configurations parallèles $(a' + b', a' + b')$ et croisées « à 45° » $(a' + b', a' - b')$. La symétrie B_{1g} est sondée en polarisations (a', b') , et A_g est sondée dans les autres configurations classiques. Néanmoins, même si la même symétrie est sondée, l'intensité Raman ne sera pas identique dans les différentes configurations de polarisations sondant A_g , car les composantes du tenseur $\tilde{\gamma}^{A_g}$ ne seront pas sélectionnées pareillement. Par exemple, les configurations de polarisations (a', a') , (b', b') et $(a' + b', a' - b')$ amènent respectivement les coefficients $\tilde{\gamma}_{11}^{A_g}$, $\tilde{\gamma}_{22}^{A_g}$ et $\tilde{\gamma}_{11}^{A_g} - \tilde{\gamma}_{22}^{A_g}$, qui ne sont pas égaux.

Dans le cas de mes expériences, une contrainte est exercée sur les échantillons. Hormis précisément au point neutre où la cellule n'exerce pas de contrainte, ils sont donc toujours dans un état orthorhombique, dont les axes cristallographiques dépendent du sens (traction ou compression) et de l'intensité de la contrainte. Dans la suite, pour limiter les ambiguïtés, je préciserai dans chaque cas les configurations de polarisations adoptées ou les symétries sondées, en utilisant les axes des repères xyz et $x'y'z$ pour désigner les polarisations.

5.1.3 Détermination de l'échauffement laser

Pour estimer l'échauffement laser, une méthode habituellement utilisée sur les FeSC aux dopages présentant une transition structurale est d'observer la diffusion élastique sur l'échantillon au passage de cette transition [179]. En effet, l'apparition des domaines en proportions équivalentes augmente l'intensité de la diffusion élastique, les parois de domaines diffusant particulièrement. Ceci indique que la température réelle sur l'échantillon est égale à T_s . En relevant la température indiquée par la sonde, on peut accéder à l'échauffement laser. Cependant, pour BFA0, je n'ai pas pu utiliser cette méthode, car je n'ai pas observé de variation sensible de l'intensité de la diffusion élastique au voisinage de T_s . Ceci peut être dû à l'état de

surface de l'échantillon BFA0, pas assez régulière pour que la variation de diffusion élastique due aux domaines soit visible. Une autre explication possible est la présence d'une contrainte non nulle au passage de T_s , qui réduirait significativement le nombre de parois de domaines.

Pour estimer l'échauffement laser, je me suis basé sur la figure 5.9, en considérant que la diminution du paramètre d'ordre quand la température augmente était située autour de T_s , pour la courbe à contrainte faible (voir plus loin le texte associé à la figure pour l'explication des grandeurs représentées). Les spectres correspondants ont été acquis à 10 mW, et j'ai estimé un échauffement entre 10 et 20 K, soit environ 1–2 K/mW. Dans la suite, j'ai considéré un échauffement de 1 K/mW, à toute température et pour les deux échantillons.

Cet échauffement est de l'ordre de celui estimé pour Co-Ba122 dans les expériences de spectroscopie Raman rapportées dans la thèse de Ludivine Chauvière [47]. La différence principale entre mes expériences et celles rapportées dans cette référence est l'utilisation de la cellule de contrainte uniaxiale. Comme l'échantillon n'est fixé au support qu'à ses extrémités, la surface de contact est plus faible, et on pourrait s'attendre à première vue à une thermalisation plus réduite, donc un échauffement plus important, que dans le cas où l'échantillon est simplement fixé au support en cuivre par de la laque d'argent. De plus, le titane composant la cellule CS130 a une conductivité thermique plus faible que le cuivre. Vu l'échauffement que j'estime, cela ne semble cependant pas être le cas. La bonne thermalisation de l'échantillon collé à ses extrémités, comparable au cas du collage direct sur le support en cuivre malgré une surface de contact plus petite, pourrait être expliquée par le fait que la conductivité thermique dans le plan est meilleure que selon l'axe c .

5.2 Modes de phonons et sonde de la némativité via l'effet de contrainte sur le phonon de l'arsenic

Dans cette section, j'analyse exclusivement les modes de phonons sondés par spectroscopie Raman, principalement celui correspondant à l'arsenic. Je présente dans un premier temps des spectres issus des deux échantillons, mais j'analyse ensuite seulement les résultats concernant l'échantillon BFA0, qui présente la transition némato-structurale et le phonon de l'arsenic.

Je présente d'abord quelques spectres représentatifs dans différentes configurations présentant les modes de phonons. Je me focalise ensuite sur le phonon de l'arsenic, et présente les différentes règles de sélection Raman pour celui-ci. Je montre comment l'intensité du mode peut être reliée à un paramètre d'ordre nématique. J'interprète ensuite le comportement de cette intensité sous déformation à basse température ($T \ll T_s$) comme révélateur de l'orientation des domaines nématiques. Enfin, je rapporte l'effet de déformation sur le mode autour de T_s , et en déduis une analyse qualitative de l'évolution de la susceptibilité nématique.

5.2.1 Phonons actifs en spectroscopie Raman

Quatre modes de phonons sont actifs en spectroscopie Raman dans Co-Ba122 dans sa phase tétragonale, étudiés (sans déformation) notamment dans les références [45, 46]. Je représente les mouvements d'atomes qu'ils impliquent en figure 5.3.

Deux modes ont la symétrie E_g , et impliquent des déplacements des ions Fe et As dans le plan (ab). Ces modes E_g sont centrés respectivement aux énergies 124 et 264 cm^{-1} . Un mode B_{1g} , centré vers 209 cm^{-1} implique le déplacement des ions Fe selon l'axe c . Enfin, un mode A_{1g} , centré vers 180 cm^{-1} , implique le déplacement des ions As selon l'axe c . Dans la suite, je désignerai de « phonons E_g », « phonon du fer » et « phonon de l'arsenic » respectivement ces modes E_g , B_{1g} et A_{1g} . Au passage de la transition structurale tétragonale–orthorhombique,

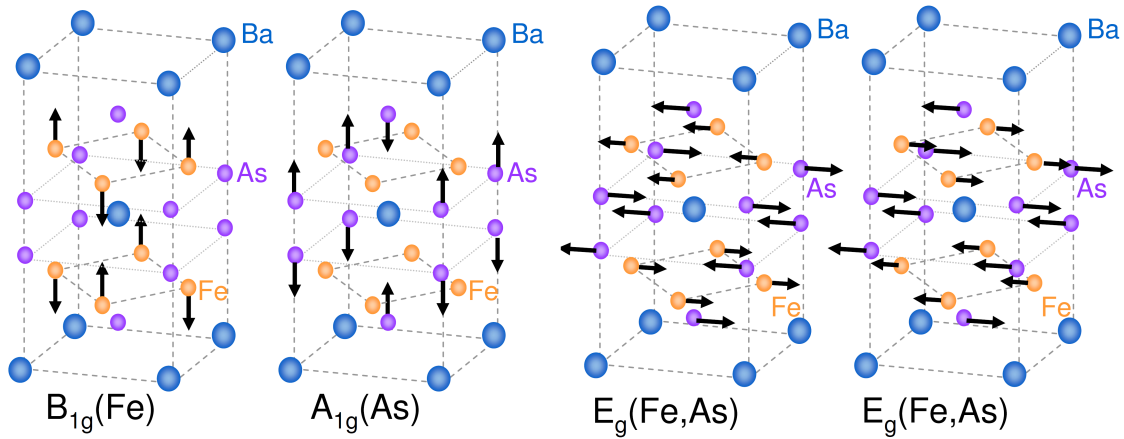


FIGURE 5.3 – Mouvements des ions impliqués dans chacun des quatre modes de phonons actifs en spectroscopie Raman dans Co-Ba122, avec les symétries associées (dans le cas de la phase tétragonale). (Figure issue de [47].)

le nombre de représentations irréductibles diminue. Le phonon de l'arsenic devient un mode A_g , le phonon du fer reste un mode B_{1g} . Chacun des deux phonons E_g se sépare en deux phonons (B_{2g} et B_{3g}), avec un écart énergétique pouvant atteindre 10 cm^{-1} à faibles dopage et température.

La figure 5.4 illustre les différents modes de phonons visibles dans mes résultats. Dans ma configuration expérimentale, l'angle d'incidence d'environ 45° est plus faible que celui utilisé dans la référence [46], amenant une plus faible composante de polarisation selon l'axe c : les modes E_g sont de plus faible intensité, voire indétectables selon les configurations. BFA0 subit une transition structurale à 138 K impactant notamment le phonon de l'As, d'où ma représentation de deux températures (7 et 300 K) pour cet échantillon. Le phonon de l'As est de symétrie A_{1g} à 300 K (structure tétragonale), et A_g à 7 K (structure orthorhombique). Ce mode est activé en spectroscopie Raman dans les polarisations parallèles (x,x) et (y,y) dans les deux phases. Les polarisations croisées (x',y') sondent uniquement B_{2g} pur dans la phase tétragonale et A_g dans le phase orthorhombique, donc en (x',y') le mode apparaît sous T_s . Le durcissement du phonon du Fe quand la température diminue est cohérent avec les résultats de la référence [47]. Un mode est clairement visible à basse température en symétrie (y,y) dans BFA0 vers 160 cm^{-1} , que je n'ai pas réussi à interpréter : son énergie ne correspond pas à des modes de phonons connus dans ce matériau (elle est notamment trop grande pour correspondre à un phonon E_g) ; sa présence semble robuste en fonction de la position du point laser sur l'échantillon (dont la surface n'est néanmoins pas de la meilleure qualité possible) ; son intensité et son énergie (sur une amplitude de $2\text{--}3 \text{ cm}^{-1}$) présentent une dépendance en déformation erratique. Dans ma configuration géométrique, le plan d'incidence est le plan (yz) , donc une polarisation incidente qui n'est pas selon x a une composante non nulle selon z , d'où une différence expérimentale possible entre (x,x) et (y,y) , même sans contrainte.

Dans BFA7, qui est tétragonale à toute température, je n'observe pas le phonon de l'As, en cohérence avec la référence [47]. Le phonon du fer B_{1g} fuit significativement dans les configurations (x',y') , (x,x) et (y,y) , et le phonon E_g de basse énergie fuit dans les configurations (x',y') et (y,y) (pour lesquelles la polarisation incidente a une composante selon z).

Dans la suite de mon analyse des phonons, je me focalise sur le phonon de l'arsenic, donc uniquement sur l'échantillon BFA0.

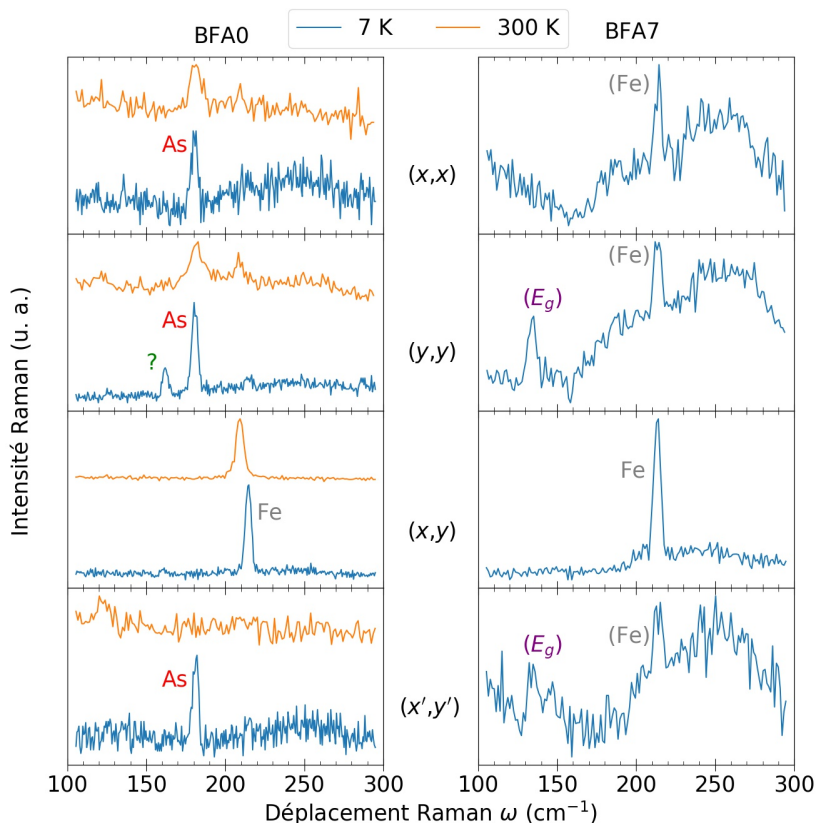


FIGURE 5.4 – Spectres Raman obtenus sur les deux échantillons entre 100 et 300 cm^{-1} , pour quatre configurations de polarisation et deux températures. Les échelles des axes des ordonnées ne sont pas les mêmes pour les huit graphiques; pour BFA0, à chaque configuration, les spectres aux deux températures sont décalés verticalement l'un par rapport à l'autre pour la visibilité.

5.2.2 Règles de sélection et définition du paramètre d'ordre nématique du phonon de l'arsenic

Pour limiter l'ambiguïté sur les notations, je réécris ici les tenseurs Raman précédemment introduits aux équations (3.11) et (3.12). Je note γ_{As}^T et γ_{As}^O les tenseurs Raman pour les représentations auxquelles appartient le phonon de l'arsenic, respectivement dans la phase tétragonale (T , groupe D_{4h}) et la phase orthorhombique (O , groupe D_{2h}). Ces représentations sont respectivement A_{1g} et A_g . On a donc :

$$\gamma_{As}^T = \begin{pmatrix} \alpha_{aa}^T & 0 & 0 \\ 0 & \alpha_{aa}^T & 0 \\ 0 & 0 & \alpha_{cc} \end{pmatrix} \quad (5.1)$$

$$\gamma_{As}^O = \begin{pmatrix} \alpha_{a'a'}^O & 0 & 0 \\ 0 & \alpha_{b'b'}^O & 0 \\ 0 & 0 & \alpha_{cc} \end{pmatrix} \quad (5.2)$$

Sous les formes matricielles (5.1) et (5.2), γ_{As}^T est écrit dans le référentiel de la maille tétragonale (abc), et γ_{As}^O dans celui de la maille orthorhombique ($a'b'c$). Les composantes diagonales planaires sont égales dans γ_{As}^T ; la brisure de la symétrie C_4 les rend différentes

dans γ_{As}^O . En spectroscopie Raman phononique, les composantes du tenseur Raman correspondent à la dérivée de la susceptibilité diélectrique par rapport aux coordonnées du phonon. L'intensité Raman du mode de phonon de l'arsenic pour une configuration de polarisation donnée (e_i, e_s) s'écrit :

$$I_{As}^{e_i, e_s} = |e_i^* \gamma_{As} e_s|^2 \quad (5.3)$$

en prenant γ_{As}^O ou γ_{As}^T selon la phase. Avec cette formule, dans la phase tétragonale, pour des polarisations parallèles selon toute direction et pour des polarisations perpendiculaires, on obtient respectivement $I_{As}^{\parallel} = |\alpha_{aa}^T|^2$, et $I_{As}^{\perp} = 0$. Dans la phase orthorhombique, $I_{As}^{a'a'} = |\alpha_{a'a'}^O|^2$ et $I_{As}^{b'b'} = |\alpha_{b'b'}^O|^2$, et donc $I_{As}^{a'a'} \neq I_{As}^{b'b'}$.

La différence entre $\alpha_{a'a'}^O$ et $\alpha_{b'b'}^O$ est très grande pour $T < T_s$ [18, 45]. L'origine de cette anisotropie peut a priori être liée à la distortion structurale, ou bien à la nématicité électronique. Les phonons sont des modes de vibration du réseau, donc l'interprétation structurale apparaît au premier abord comme la plus pertinente. Néanmoins, en spectroscopie Raman, le couplage des modes de phonons avec le faisceau incident est un processus indirect (voir la section 3.1.1) médié par les électrons, ce qui est en faveur de l'interprétation nématique électronique de l'anisotropie. Des résultats de calculs *ab initio* indiquent en effet le rôle majoritaire des degrés de liberté électroniques dans l'anisotropie des composantes du tenseur Raman [18]. Ainsi, on peut définir un paramètre d'ordre ϕ_{nem}^{As} à partir des composantes du tenseur Raman, qui sera mesuré par l'intensité du mode du phonon de l'arsenic, et que j'interprète comme révélateur de la nématicité électronique :

$$\phi_{nem}^{As} = \frac{\alpha_{a'a'}^O - \alpha_{b'b'}^O}{\alpha_{a'a'}^O + \alpha_{b'b'}^O} \quad (5.4)$$

Cette quantité s'annule bien dans la phase tétragonale (quand $a' = b'$), et elle a la bonne symétrie nématique B_{2g} . ϕ_{nem}^{As} s'obtient à partir des mesures d'intensités Raman des modes du phonon de l'arsenic par :

$$I_{As}^{a'a'} - I_{As}^{b'b'} = \zeta^2 \phi_{nem}^{As} \quad (5.5)$$

avec $\zeta = \alpha_{a'a'}^O + \alpha_{b'b'}^O$.

L'égalité (5.5) n'est pas exploitable expérimentalement si les deux domaines nématiques sont présents au point laser focalisé sur l'échantillon. Dans ce cas, les intensités mesurées I_{As}^{xx} ou I_{As}^{yy} ne sont pas confondues avec les intensités théoriques $I_{As}^{a'a'}$ ou $I_{As}^{b'b'}$. Dans le cas extrême où les deux domaines sont présents dans des proportions identiques, on a $I_{As}^{xx} - I_{As}^{yy} = 0$, alors que $\phi_{nem}^{As} \neq 0$. Inversement, $I_{As}^{xx} - I_{As}^{yy}$ peut être utilisée comme une sonde des proportions des domaines.

De façon alternative, l'intensité du mode du phonon de l'arsenic activé en polarisations croisées $(a' + b', a' - b') = (a, b)$ peut également servir de paramètre d'ordre nématique. En effet, $I_{As}^{ab} = |\alpha_{a'a'}^O - \alpha_{b'b'}^O|^2$, et donc :

$$I_{As}^{ab} = \zeta^2 |\phi_{nem}^{As}|^2 \quad (5.6)$$

Ainsi, I_{As}^{ab} se transforme comme le carré du paramètre d'ordre nématique. De ce fait, elle n'est pas sensible à la présence de domaines nématiques.

L'avantage pratique de I_{As}^{ab} est qu'elle s'obtient à l'aide d'un seul spectre, contre $I_{As}^{a'a'} - I_{As}^{b'b'}$ qui en nécessite deux. Dans la suite, j'utilise $I_{As}^{a'a'} - I_{As}^{b'b'}$ pour sonder la population des domaines nématiques (section 5.2.3), et I_{As}^{ab} comme sonde locale du paramètre d'ordre nématique (section 5.2.4).

5.2.3 Orientation des domaines nématiques sous T_s

Dans cette section, l'observation de l'orientation des domaines nématiques a été effectuée à 17 K, c'est-à-dire dans la phase orthorhombique à une température bien inférieure à la température de transition structurale T_s . À cette température, le paramètre d'ordre nématique a une valeur relativement élevée.

La figure 5.5 (a) présente les modes du phonon de l'arsenic pour différentes déformations et pour deux configurations de polarisations parallèles, (x,x) et (y,y) : une forte dépendance de l'intensité des modes avec la déformation apparaît. La figure 5.5 (b) montre la dépendance des intensités I_{As}^{xx} et I_{As}^{yy} avec la déformation, avec une vérification de la répétabilité sur trois séries d'application de contrainte. Je rappelle que j'emploie les notations I_{As}^{xx} et I_{As}^{yy} au lieu de $I_{As}^{a'a'}$ et $I_{As}^{b'b'}$ du fait de la présence de domaines sous le point laser sur l'échantillon et de la dépendance a priori de leur orientation avec la contrainte appliquée.

I_{As}^{xx} et I_{As}^{yy} sont les aires des modes obtenues par ajustements avec une forme gaussienne³. Ces intensités ajustées ont une forte dépendance en déformation, avec $I_{As}^{xx} < I_{As}^{yy}$ en compression $\epsilon_{xx}^{nom} < 0$, et l'ordre inverse en traction. La transition entre les deux ordres est continue, avec un transvasement d'intensité quand la déformation varie, et un comportement global symétrique. À l'inverse, l'intensité du mode B_{1g} de phonon du fer ne varie guère avec la déformation (encart de la figure 5.5 (b)).

Le comportement symétrique de la figure 5.5 peut être interprété comme la modification graduelle de la population des domaines nématiques sous compression et traction. Je note $\beta(\epsilon_{B_{2g}})$ la fraction de domaines avec l'axe court a' orienté dans la direction de déformation x . On a alors :

$$I_{As}^{xx} = \beta |\alpha_{a'a'}^O|^2 + (1 - \beta) |\alpha_{b'b'}^O|^2 \quad (5.7)$$

$$I_{As}^{yy} = \beta |\alpha_{b'b'}^O|^2 + (1 - \beta) |\alpha_{a'a'}^O|^2 \quad (5.8)$$

À déformation nulle, les domaines nématiques sont équiprobables, donc $\beta(\epsilon_{B_{2g}} = 0) = 0,5$. L'intensité du phonon est alors indépendante de la polarisation : $I_{As}^{xx} = I_{As}^{yy} = 0,5(|\alpha_{a'a'}^O|^2 + |\alpha_{b'b'}^O|^2)$, ce qui est observé expérimentalement. Sous forte déformation, la zone de l'échantillon éclairée par le laser incident devient essentiellement monodomaine, avec l'axe court a' parallèle (respectivement perpendiculaire) à la direction x en compression (respectivement traction), résultant en $\beta = 1$ (respectivement $\beta = 0$). On a ainsi $I_{As}^{xx} \propto |\alpha_{a'a'}^O|^2$ et $I_{As}^{yy} \propto |\alpha_{b'b'}^O|^2$ sous forte compression, et $I_{As}^{yy} \propto |\alpha_{a'a'}^O|^2$ et $I_{As}^{xx} \propto |\alpha_{b'b'}^O|^2$ sous forte traction. Comme le rapport entre l'intensité exacerbée et l'intensité réduite vaut environ 3 dans les régions de forte déformation, je déduis que la composante du tenseur Raman phononique A_g est plus grande selon la grande dimension orthorhombique, avec $|\alpha_{b'b'}^O|^2 \approx 3|\alpha_{a'a'}^O|^2$. Ceci est en accord quantitatif avec les mesures Raman obtenues sous contrainte compressive fixée [18].

3. Pour un mode de phonon, comme expliqué en section 3.5.3, on s'attend plutôt à une forme lorentzienne, qui peut être déformée en forme de Voigt si la largeur du mode est comparable à la largeur gaussienne de la résolution expérimentale. Cependant, de fait, les ajustements gaussiens sont globalement meilleurs (plus faible écart-type entre les données et l'ajustement) que les ajustements de Voigt pour les modes du phonon de l'arsenic et du phonon du fer étudiés dans cette section.

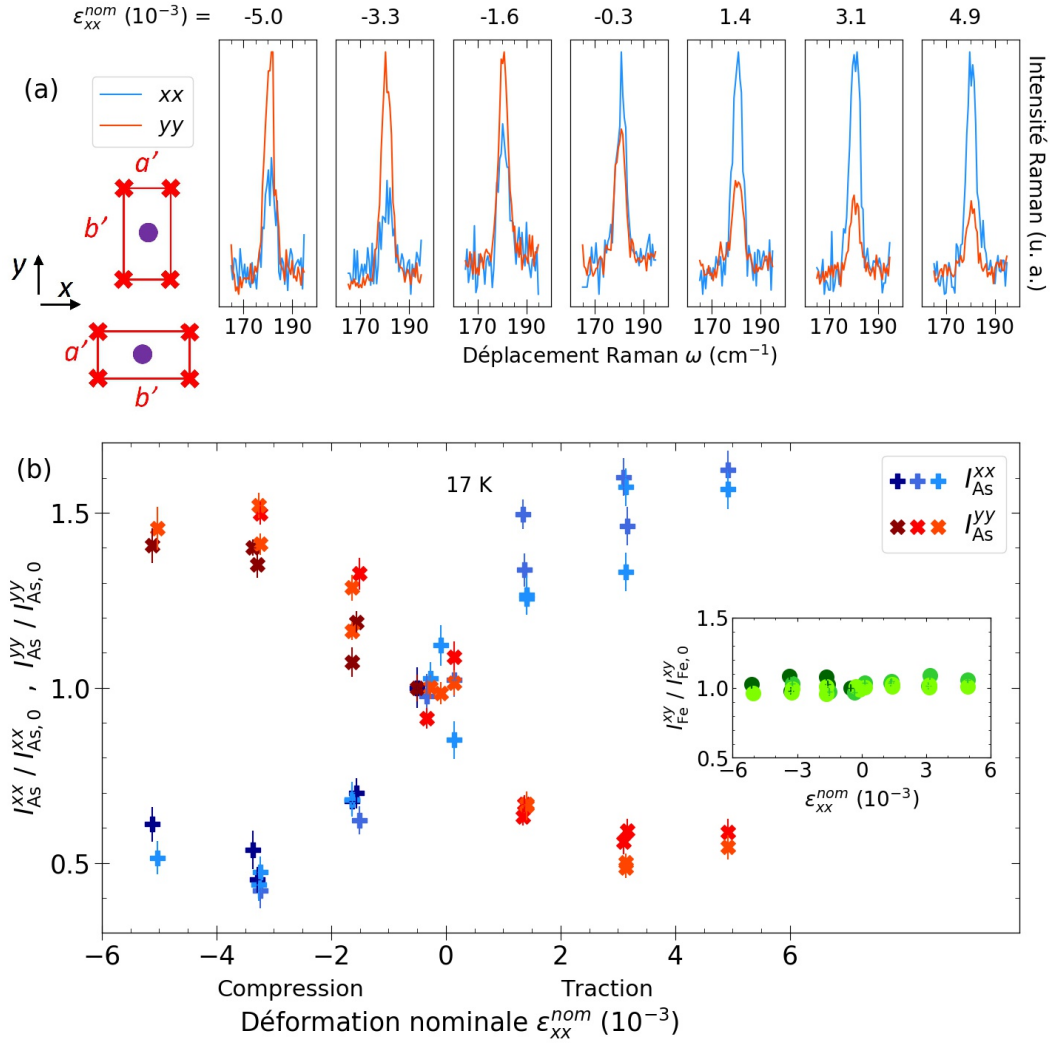


FIGURE 5.5 – Orientation des domaines nématiques sous contrainte. (a) Mode du phonon de l'As en polarisations (x,x) et (y,y) pour différentes valeurs de déformation nominale. Le schéma en bas à gauche du graphique (a) précise les orientations des domaines orthorhombiques par rapport au repère (x,y) . (b) Dépendance en déformation nominale des intensités du mode du phonon de l'As dans les deux configurations de polarisations, pour trois séries de mesures. Encart : dépendance en déformation nominale de l'intensité du mode du phonon du Fe dans la configuration (x,y) , pour trois séries de mesures. Les intensités sont renormalisées par rapport à la moyenne des intensités mesurées proches de $\epsilon_{xx}^{nom} = 0$.

L'évolution globale des intensités I_{As}^{xx} et I_{As}^{yy} dans le régime de coexistence des domaines peut être écrite de façon explicite, via la dépendance linéaire de β en déformation. Celle-ci se montre de la façon suivante. Je note pour ce calcul a le paramètre de la maille tétragonale selon les liaisons Fe–Fe (direction x) (soit $\sqrt{2}$ fois plus grand que le paramètre de maille tétragonale habituel). Si tous les domaines présentent l'axe court a' selon x , alors $\epsilon_{xx} = \frac{a'-a}{a}$, et $\epsilon_{yy} = \frac{b'-a}{a}$. Donc $\epsilon_{B_{2g}} = \frac{1}{2}(\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy}) = -\frac{b'-a'}{2a} = -\epsilon_s$, avec ϵ_s la distortion orthorhombique⁴ $\frac{b'-a'}{2a}$. Inversement, si tous les domaines présentent l'axe court a' selon y , alors $\epsilon_{B_{2g}} = \epsilon_s$. Donc si on retrouve ces deux domaines dans les proportions β et $1 - \beta$, alors

4. La distortion orthorhombique est habituellement définie comme $\frac{b'-a'}{b'+a'}$. La définition que j'adopte est théoriquement valable. Vues les valeurs de a , a' et b' et la faible distortion orthorhombique, les deux définitions possibles de ϵ_s sont en tout cas quantitativement similaires.

$\epsilon_{B_{2g}} = (1 - 2\beta)\epsilon_s$. En inversant cette relation, on obtient : $\beta = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{\epsilon_{B_{2g}}}{\epsilon_s}\right)$. On obtient alors :

$$I_{As}^{xx} = I_{As}^{xx}(\epsilon_{B_{2g}} = 0) + \frac{\epsilon_{B_{2g}}}{2\epsilon_s} \zeta^2 \phi_{nem}^{As} \quad (5.9)$$

La relation ci-dessus est valide uniquement pour $\epsilon_{B_{2g}} < \epsilon_s$, c'est-à-dire dans le régime de coexistence des domaines. Dans ce régime, la déformation du cristal induite par la contrainte appliquée se déroule principalement via le mouvement des parois de domaines, sans modification des constantes de réseau orthorhombiques a' et b' , ni du paramètre d'ordre nématique. Si on considère que le mouvement d'orientation des domaines sous contrainte se fait sans aucune friction, alors la contrainte dans ce régime s'effectue sur un échantillon de module d'Young nul. Dans l'analyse de leurs résultats de transport sur FeSe, Bartlett et collaboratrices [15] considèrent que l'absence d'hystérésis dans le régime d'orientation des domaines indique que la barrière énergétique associée est faible. Je n'observe également pas de comportement hystérique flagrant dans la figure 5.5. Vu autrement, le coefficient élastique C_{66} correspondant à la déformation B_{2g} prend une valeur effective nulle dans le régime d'orientation des domaines : la distortion orthorhombique globale de l'échantillon, donc sa déformation globale, est non nulle, mais il ne subit aucune contrainte interne.

Ce comportement d'élasticité parfaite de l'échantillon induit une transmission totale de la contrainte appliquée dans l'échantillon, donc une déformation purement B_{2g} , soit $\epsilon_{xx}^{nom} = \epsilon_{xx} = \epsilon_{B_{2g}}$. Il est sans doute plus réaliste de considérer une certaine friction dans l'orientation des domaines, et donc une certaine rigidité de l'échantillon même dans ce régime : mais cette rigidité, comme la barrière énergétique d'orientation des domaines, est a priori faible, surtout par rapport à celle de l'échantillon dans le régime monodomaine. L'égalité entre ϵ_{xx}^{nom} , ϵ_{xx} , et $\epsilon_{B_{2g}}$, est probablement une approximation correcte dans le régime d'orientation des domaines.

Pour les déformations $\epsilon_{B_{2g}} > \epsilon_s$, un nouveau régime s'établit, dans lequel la déformation macroscopique implique une modification de la distortion orthorhombique elle-même, ainsi que du paramètre d'ordre nématique. Dans ce régime, β se fixe à 0 ou 1, la modification d'intensité du mode du phonon sous déformation reflète le changement de valeur du paramètre d'ordre nématique sondé par l'anisotropie du tenseur Raman phononique A_g : autrement dit, on accède à une forme de susceptibilité nématique comparable à l'élastorésistivité mesurée en transport. Comme la température est ici très inférieure à T_s , l'ordre orthorhombique est bien établi, le paramètre d'ordre est saturé : on s'attend donc à ce que la susceptibilité nématique soit faible. Cette interprétation explique le passage du comportement linéaire de I_{As}^{xx} à un régime où la variation est bien plus faible, et permet d'estimer $\epsilon_s \approx 3\%$, une valeur très proche de celle obtenue par mesures de la diffraction des rayons X [219].

De plus, dans le régime monodomaine, le cristal recouvre un comportement élastique habituel, avec un module d'Young non nul et une déformation macroscopique du cristal sous contrainte, avec un coefficient élastique C_{66} de valeur similaire à celle à haute température, ce qui réduit sensiblement la transmission de la déformation et sa composante B_{2g} . Cet effet fournit une seconde explication, qualitative, de la variation plus faible de I_{As}^{xx} et I_{As}^{yy} en fonction de ϵ_{xx}^{nom} dans le régime monodomaine.

5.2.4 Mesures du paramètre d'ordre nématique autour de T_s

Dans cette section, je rapporte l'effet de la déformation sur le mode du phonon de l'arsenic pour des températures proches de T_s . Comme nous allons le voir, la proximité de la transition némato-structurale rend les effets très différents de ceux à basse température.

5.2.4.1 Dépendance en déformation à température fixée

La figure 5.6 présente le mode du phonon de l'arsenic sondé dans la configuration de polarisations (x',y') , pour quatre températures autour de $T_{s,0} = 138$ K. Il faut bien noter que, en présence de domaines, contrairement à I_{As}^{xx} et I_{As}^{yy} , le facteur de population β n'entre pas dans l'expression de $I_{As}^{x'y'} = |\alpha_{a'a'}^O - \alpha_{b'b'}^O|^2$. Cette configuration n'est ainsi pas sensible à la différence des directions des domaines. Concentrons nous d'abord sur la dépendance à 145 K. Cette température est très légèrement supérieure à $T_{s,0}$, donc le mode du phonon de l'As n'est pas censé être visible à déformation nulle en (x',y') . Effectivement, à faible déformation, aucun mode n'est détectable à l'œil, ce qui est cohérent avec le fait que la distortion orthorhombique induite par la contrainte est très faible. En augmentant la déformation, que ce soit en compression ou en traction, le mode du phonon est activé de manière approximativement symétrique, indiquant l'activation, induite par la déformation, du paramètre d'ordre nématique au-dessus de $T_{s,0}$.

Contrairement aux spectres acquis à 17 K dans les configuration (x,x) , (y,y) ou (x',y') , la forme du mode du phonon est ici asymétrique, avec une allure de type Fano, ce qui suggère un couplage significatif entre le phonon et les excitations électroniques de basse énergie. L'allure Fano est également observée aux températures inférieures mais proches de T_s à déformation nulle [45].

En augmentant la température, j'observe une diminution significative de l'activation du mode du phonon par la déformation. Il est toujours visible aux fortes déformations à 154 K, mais n'est plus résolu par rapport au bruit à 188 K, excepté éventuellement à la compression maximale de $\epsilon_{xx}^{nom} = -5,3 \text{ ‰}$, pour laquelle un pic faible et large est détectable. Sous $T_{s,0}$, à 118 K, le phonon est visible à toute déformation. L'activation du phonon en traction à 154 K n'a pas pu être explorée car le cristal s'est brisé durant la mesure⁵.

L'intensité $I_{As}^{x'y'}$ du mode du phonon de l'arsenic dans les différents spectres a été évaluée de deux façons différentes. La première est un ajustement de l'ensemble du spectre (phonon et continuum) par une forme Fano additionnée d'une constante autour du mode du phonon. La seconde est une simple intégration du mode, après soustraction du continuum. Chacune des deux méthodes présente des inconvénients, liés à la faiblesse globale des intensités, qui alimentent la barre d'erreur : l'ajustement Fano présente un nombre important de paramètres en plus de l'intensité, qu'on ne peut pas forcément tous fixer ; pour l'intégration, la soustraction du continuum est délicate, et plusieurs soustractions différentes et gammes d'intégration doivent être considérées pour évaluer les barres d'erreur. Aux barres d'erreur près, les deux méthodes donnent néanmoins des résultats similaires. Je présente directement les résultats des ajustements Fano en figure 5.7. Je détaille la procédure d'ajustement Fano, illustrée par les ajustements obtenus, en annexe A.1.

Plus précisément, la figure 5.7 présente $|\phi_{nem}^{As}|$, obtenu comme la racine carrée de l'intensité du phonon (voir l'équation (5.6), j'omets ici le facteur ζ , et exprime de toute façon $|\phi_{nem}^{As}|$ en unité arbitraire) extraite des ajustements Fano. Les barres d'erreur importantes

5. Durant cette phase de l'expérience, les spectres ont été acquis dans l'ordre des températures suivant : 145, 188, 118, 154 K, avec pour chaque température l'ordre de déformation compression–neutre–traction, et des changements de températures à tensions électriques nulles sur les piézoélectriques, donc proches du point de déformation nulle. La présence du mode du phonon aux fortes tractions à 145 K montre que l'échantillon était intact à la fin des mesures à cette température. Il n'a donc pu se briser que durant les mesures à fortes tractions à 188 ou 118 K. Comme je le montre à la figure 5.7, la position du point à 118 K à la traction la plus élevée (plus élevée que celle à 145 K) apparaît en-dehors de la tendance décroissante, et son intensité est comparable à celles autour du point neutre : on peut alors supposer que l'échantillon s'est brisé juste avant ce dernier point en traction à 118 K. Il est remarquable que malgré la cassure, l'échantillon pouvait toujours être soumis à une compression, sans diminution significative de la transmission de la déformation (comme cela est visible sur les spectres obtenus dans la suite de l'expérience, notamment les mesures de dépendance en température à déformation fixée).

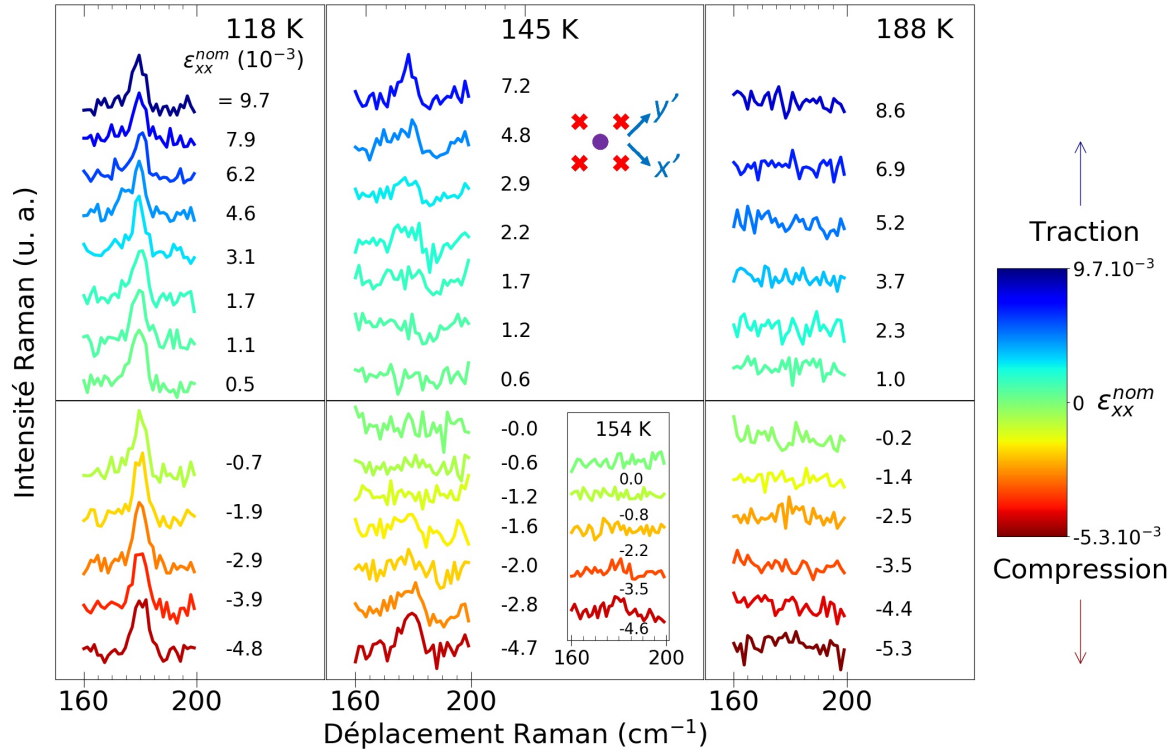


FIGURE 5.6 – Dépendance en déformation du mode du phonon de l'As, pour quatre températures, pour des spectres en configuration (x', y') . Les échelles en ordonnée sont identiques pour les spectres à 118, 145 et 188 K, avec un décalage additif des spectres pour une meilleure clarté. Les spectres à 145 K ont été renormalisés par un coefficient multiplicatif de $1/1.45$ (voir la justification en section 5.3.1).

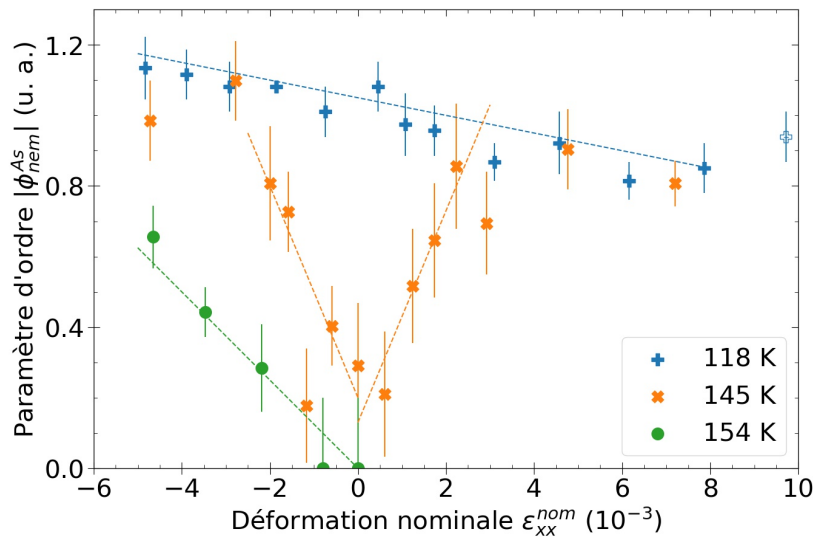


FIGURE 5.7 – Dépendance en déformation de l'intensité du mode du phonon de l'As, obtenue par ajustements des modes (présentés en figure 5.6) en allure Fano, pour quatre températures, pour des spectres en configuration (x', y') . Le symbole vide à 118 K à forte traction a été utilisé pour signifier que je suspecte l'échantillon d'être brisé au moment de l'acquisition de ce point. Les lignes tiretées sont des guides visuels et non des ajustements quantitatifs des points expérimentaux.

dans cette figure limitent l'interprétation quantitative. Dans les cas où les ajustements Fano étaient trop difficiles du fait de la faiblesse du phonon, l'intensité a été fixée à 0, avec une barre d'erreur correspondant à la limite de résolution, obtenue en considérant les points de plus basse intensité où le phonon est malgré tout détecté.

On peut exprimer la dépendance d'un paramètre d'ordre nématique $\phi_{B_{2g}}$ avec la déformation selon :

$$(\phi_{B_{2g}})^2 = \alpha\epsilon_{A_{1g}} + \beta\epsilon_{B_{2g}}^2 + \dots \quad (5.10)$$

J'établis cette dépendance avec un raisonnement analogue à celui utilisé dans la référence [112] pour exprimer la dépendance de T_s avec la contrainte B_{1g} . $(\phi_{B_{2g}})^2$ est de représentation $B_{2g} \otimes B_{2g} = A_{1g}$, donc la déformation antisymétrique B_{2g} ne peut l'affecter que par des puissances paires. J'obtiens l'équation (5.10) en me limitant à l'ordre principal en $\epsilon_{A_{1g}}$ et $\epsilon_{B_{2g}}$ à faible déformation.

À 145 K, l'activation de $|\phi_{nem}^{As}|$ est symétrique en déformation autour du point neutre. Ce caractère symétrique montre que l'intensité du mode du phonon est très majoritairement sensible à la composante B_{2g} de la déformation, ce qui est en accord qualitatif avec la forte susceptibilité nématique mesurée proche de T_s dans les études antérieures. À 118 K, la dépendance de l'intensité avec la déformation est bien plus faible, avec un comportement asymétrique indiquant un effet dominant de la composante isotropique A_{1g} de la déformation. Je relie cette dépendance à la variation monotone de T_s et T_N (diminution sous déformation A_{1g} en traction et augmentation en compression) observée en transport [112]. Ainsi, les coefficients α et β de l'équation (5.10) semblent varier avec la température, avec $|\alpha| \ll |\beta|$ pour $T > T_s$ et T proche de T_s , et l'ordre inverse pour $T < T_s$. Ceci qui peut s'expliquer qualitativement si $|\beta|$ est une fonction croissante de la susceptibilité nématique.

Avec l'incertitude sur mes points expérimentaux, le comportement quadratique attendu de $I_{As}^{x'y'}$ en fonction de $\epsilon_{B_{2g}}$, résultant en un comportement linéaire en valeur absolue de $|\phi_{nem}^{As}|$, ne ressort pas de façon univoque. Je note également qu'à 118 K, la présence de domaines nématiques à faible déformation peut a priori altérer la dépendance attendue; néanmoins, le régime d'orientation des domaines est probablement limité à $|\epsilon_{xx}^{nom}| < 2 \%$, ce qui limite l'impact sur les résultats de la figure 5.7.

L'activation à 154 K en compression a une pente $\frac{\partial \phi_{nem}^{As}}{\partial \epsilon_{xx}^{nom}}$ de 2 à 3 fois plus faible qu'à 145 K. Étant donnée l'absence de mode du phonon de l'As résolu à 188 K jusqu'à au moins $\epsilon_{xx}^{nom} = 4 \%$, j'estime une borne inférieure de 4 pour le ratio entre les pentes à 145 et 188 K. Je définis la susceptibilité nématique du phonon de l'As aux petites déformations par :

$$\chi_{nem}^{As} = \frac{\partial \phi_{nem}^{As}}{\partial \epsilon_{B_{2g}}} \quad (5.11)$$

En prenant la pente initiale $\frac{\partial \phi_{nem}^{As}}{\partial \epsilon_{xx}^{nom}} (\epsilon_{xx}^{nom} \rightarrow 0)$ comme marqueur de cette susceptibilité nématique χ_{nem}^{As} , ce résultat peut être interprété qualitativement en lien avec la susceptibilité nématique électronique χ_{nem} , qui augmente fortement lorsqu'on s'approche de T_s par valeurs supérieures.

La réserve principale dans l'utilisation des résultats de la figure 5.7 pour évaluer quantitativement χ_{nem}^{As} aux trois températures représentées est la différence entre ϵ_{xx}^{nom} et $\epsilon_{B_{2g}}$. En effet, en raison de la modification des propriétés élastiques de l'échantillon en s'approchant de T_s , la transmission de la déformation par la colle et la décomposition de la déformation

selon A_{1g} et B_{2g} sont toutes deux modifiées. La suppression de C_{66} quand la température se rapproche de la température de transition structurale modifie significativement les propriétés mécaniques de l'échantillon, qui devient beaucoup plus souple. Également, le coefficient de Poisson planaire change avec C_{66} , ce qui modifie la décomposition de ϵ_{xx} selon A_{1g} et B_{2g} .

Ce phénomène a été expérimentalement quantifié récemment par le groupe de Jiun-Haw Chu à l'Université de Washington, qui a mis en place un dispositif combinant mesures d'élastorésistivité et de diffraction des rayons X, avec une cellule Razorbill CS100. Cette plateforme permet de mesurer les constantes de réseau, donc la distortion orthorhombique, en fonction de la déformation nominale. Des premiers résultats utilisant cette plateforme sont présentés dans les références [175, 221]. Les auteures de [221] expliquent en détail le comportement de ϵ_{xx} et ϵ_{yy} par rapport à ϵ_{xx}^{nom} . Iels étudient un échantillon de Co-Ba122 dopé à 4 % : les températures de transition diffèrent de celles dans Ba122 non dopé que j'ai étudié, mais l'analyse de leurs résultats reste qualitativement valable. En notant a et b les constantes orthorhombiques mesurables, iels mesurent directement les déformations réelles $\epsilon_{xx} = \frac{\Delta a}{a}$ et $\epsilon_{yy} = \frac{\Delta b}{b}$.

La figure 5.8 illustre les mesures directes de ϵ_{xx} et ϵ_{yy} par cette méthode d'élasto-rayons X. Considérons d'abord les petites déformations nominales ($|\epsilon_{xx}^{nom}| \leq 1 \%$). Dans ce régime, ϵ_{xx} varie linéairement avec ϵ_{xx}^{nom} (figure 5.8 (a)). À haute température (140 K, pour un échantillon de température structurale à déformation nulle $T_{s,0} = 74$ K), la pente est plus faible qu'à $T_{s,0}$, ce qui est cohérent avec la diminution de C_{66} et le ramollissement de l'échantillon. Le coefficient de Poisson $\nu_{xy} = -\epsilon_{yy}/\epsilon_{xx}$ vaut environ 0,3 à 140 K, et augmente jusqu'à 1 à mesure que T décroît jusqu'à $T_{s,0}$ (figure 5.8 (b)), ce qui est également attendu avec la diminution de C_{66} .

Je considère maintenant des déformations nominales plus grandes. À 140 K, la relation entre ϵ_{xx} et ϵ_{xx}^{nom} (et de même entre ϵ_{yy} et ϵ_{xx}^{nom}) est purement linéaire dans toute la gamme de déformations nominales sondées. En revanche, à $T_{s,0}$, les dérivées $|d\epsilon_{xx}/d\epsilon_{xx}^{nom}|$ et $|d\epsilon_{yy}/d\epsilon_{xx}^{nom}|$ décroissent significativement au-delà de $|\epsilon_{xx}^{nom}| \approx 1-2 \%$. Elles se stabilisent pour $|\epsilon_{xx}^{nom}| \in [2; 5] \%$ à des valeurs correspondant aux pentes globales à 140 K. Également, le coefficient de Poisson « local » $-d\epsilon_{yy}/d\epsilon_{xx}$ acquiert une forte dépendance en déformation à mesure que T décroît vers $T_{s,0}$: aux plus fortes déformations, il atteint la valeur commune d'environ 0,3 à toutes les températures sondées, correspondant au coefficient de Poisson à haute température. On peut interpréter ces effets non linéaires comme le durcissement de l'échantillon sous contrainte, avec une augmentation de C_{66} jusqu'à sa valeur à haute température ; ce phénomène est donc beaucoup plus marqué proche de $T_{s,0}$ qu'à 140 K, où l'échantillon est déjà suffisamment raide. Je présente en annexe A.3 un raisonnement expliquant le durcissement de l'échantillon sous contrainte comme un effet de l'activation du paramètre d'ordre nématique.

Ces mesures directes de la déformation réelle par diffraction des rayons X montrent ainsi d'une part les effets expérimentaux de température sur la transmission de la contrainte et le coefficient de Poisson, avec une augmentation de μ et de ν quand T se rapproche de $T_{s,0}$, conséquente à la dépendance en température de C_{66} . D'autre part, ils révèlent des effets non linéaires plus subtils de durcissement de C_{66} sous contrainte.

Pour quantifier l'effet du ramollissement de C_{66} avec la température à faible contrainte dans le cas de mes expériences, j'ai effectué des simulations numériques, présentées en annexe A.2. Leurs résultats montrent que le ratio $\epsilon_{B_{2g}} / \epsilon_{xx}^{nom}$ est plus grand à 145 qu'à 154 K d'un facteur environ égal à 1,3, et qu'à 188 K d'un facteur environ égal à 1,7. Bien que ces corrections soient significatives et doivent être prises en compte dans les discussions quantitatives de la pente, elles ne rendent pas entièrement compte de sa dépendance en température. Ceci montre qu'il y a un effet clair d'augmentation de χ_{nem}^{As} lorsque la température décroît de 188 à 145 K.

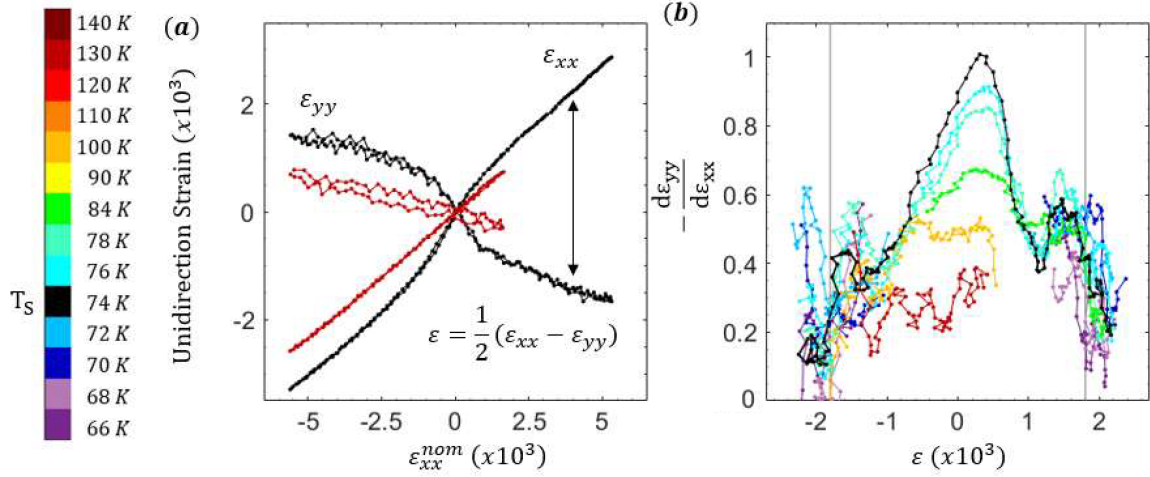


FIGURE 5.8 – Résultats d'élasto-rayons X [221]. (a) Détermination directe des déformations réelles ϵ_{xx} et ϵ_{yy} à 140 K et proche de $T_{s,0}$. (b) Évaluation du coefficient de Poisson « local » $-\mathrm{d}\epsilon_{yy}/\mathrm{d}\epsilon_{xx}$ selon la température et la déformation réelle. (Figure issue de [221].)

Pour $|\epsilon_{xx}^{nom}| \geq 3 \text{ ‰}$, l'intensité du phonon à 145 K montre une saturation en atteignant des valeurs proches de celles à 118 K. Cette saturation à des valeurs communes aux deux températures peut être reliée à l'effet de réduction substantielle sous forte contrainte du ramollissement de C_{66} en température approchant de T_s , révélé par les mesures d'élasto-rayons X discutées précédemment. L'augmentation de C_{66} sous contrainte diminue fortement la transmission, ainsi que la part de $\epsilon_{B_{2g}}$ dans ϵ_{xx}^{nom} , ce qui participe à la forte diminution de la pente du paramètre d'ordre selon ϵ_{xx}^{nom} . Il se peut également que χ_{nem}^{As} diminue quand $|\epsilon_{B_{2g}}|$ augmente. Ces deux effets, s'ils existent de façon concomitante, sont difficiles à démêler.

5.2.4.2 Dépendance en température à déformation fixée

Dans cette section, je discute de l'origine de l'activation par la déformation du mode du phonon de l'arsenic en configuration de polarisations (x', y') . Dans ce qui précède, je l'ai relié à un paramètre d'ordre nématique, à partir d'arguments de symétrie. Cependant, l'activation de ce mode a en général été attribuée à l'émergence de l'ordre magnétique SDW à T_N (égale à T_s pour $x = 0$), avec un rôle seulement mineur joué par l'ordre nématique lui-même. En principe, cette alternative entre l'effet nématique à T_s et l'effet magnétique à T_N pourrait être résolue en utilisant des échantillons dopés pour lesquels ces deux températures se séparent. Malheureusement l'intensité du phonon de l'arsenic est en général trop faible dans ces échantillons pour régler définitivement cette question. Ici, je l'aborde en remarquant que la dépendance en température de cette intensité sous déformation fixée est différente selon les deux scénarios. En effet, la transition nématique sous contrainte B_{2g} n'est plus bien définie, comme pour un ferromagnétique sous champ magnétique, alors que la transition SDW reste nette, comme la déformation ne se couple pas directement au paramètre d'ordre magnétique.

La dépendance en température de $|\phi_{nem}^{As}|$ sous déformation constante et les spectres correspondants sont représentés en figure 5.9. Comme pour la figure 5.7, les modes du phonon ont été ajustés par une allure Fano pour extraire l'intensité, et je renvoie à l'annexe A.1 pour plus de détails sur la procédure d'ajustement. À contrainte faible, l'intensité du mode du phonon augmente de manière relativement brusque proche de $T_{s,0}$, avec une queue limitée au-dessus de 140 K. Exceptée pour cette extension au-delà de 140 K, sans doute due à la

présence d'une faible déformation, cette observation est en accord avec les études Raman sans contrainte [45]. À contrainte plus élevée, cette transition s'élargit significativement, avec une large queue s'étirant aux températures bien supérieures à $T_{s,0}$. Je remarque que les résultats de RMN sur Ba122 sous contrainte uniaxiale montrent un effet relativement faible de la déformation sur T_N , avec une augmentation inférieure à 10 K pour $\epsilon_{xx}^{nom} = -6\%$ [133]. Avec l'incertitude expérimentale de mes mesures, aucune anomalie liée à T_N n'est détectée dans la dépendance en température de $|\phi_{nem}^{As}|$, ce qui indique un impact faible de l'ordre magnétique sur l'intensité du mode du phonon.

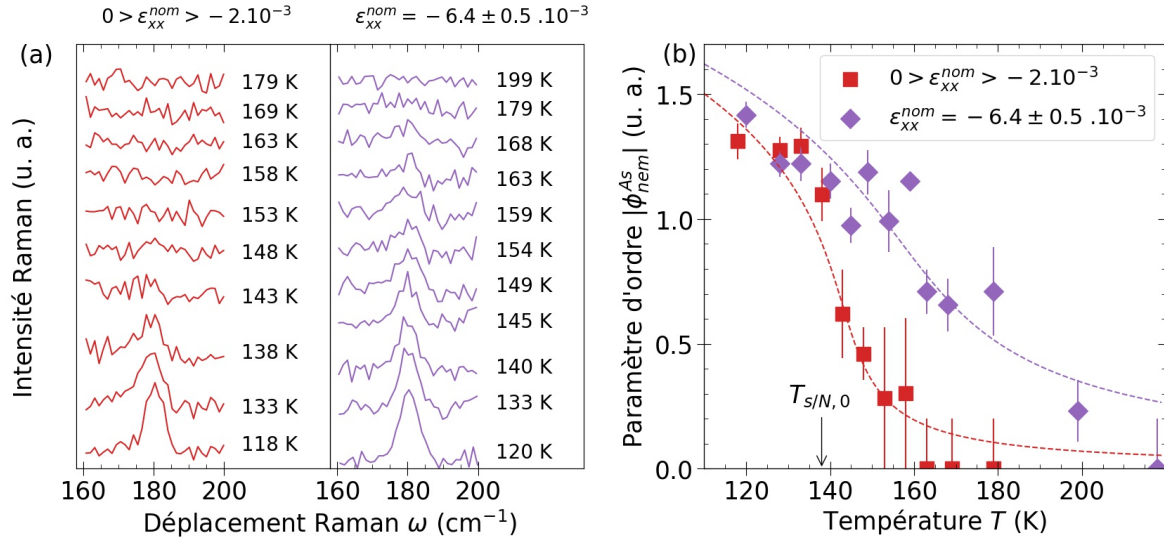


FIGURE 5.9 – Dépendance en température à déformation fixée du mode du phonon de l'As en configuration (x',y') (a) et de son intensité obtenue par ajustements des modes (b). Les lignes tiretées sont des guides qualitatifs suivant un comportement selon le formalisme de Landau d'un paramètre d'ordre de type Ising, et pas des ajustements quantitatifs des points expérimentaux.

Les ajustements Fano révèlent cependant une légère anomalie sur l'énergie du phonon ω_0 pour les spectres sous forte déformation, avec un saut d'environ 1 cm^{-1} vers 145 K (voir l'annexe A.1). Un ramollissement similaire a été observé dans des études Raman sans contrainte à $T_{s,N}$ [214]. J'en déduis que cet effet est dû à la transition magnétique, qui reste bien définie même en présence de la déformation, qui l'affecte peu.

Le comportement en température de $|\phi_{nem}^{As}|$ correspond qualitativement à la dépendance en température d'un paramètre d'ordre de type Ising sous un champ brisant la symétrie, pour lequel la transition de phase nette en l'absence de champ se modifie en une transition plus lisse à fort champ. Ceci est illustré par les lignes tiretées de la figure 5.9 (b). Je précise en annexe A.4 la forme mathématique de ces lignes et le raisonnement pour l'obtenir. Je conclus de ces résultats que l'anisotropie des composantes du tenseur Raman du phonon de l'As mesurée via $I_{As}^{x'y'}$ reflète les degrés de liberté nématiques plutôt que ceux magnétiques.

De même que dans la discussion des résultats en dépendances en déformation à température fixée, une complication possible dans l'analyse quantitative de ces résultats est que, malgré le fait de travailler sous déformation ϵ_{xx}^{nom} relativement constante, la déformation $\epsilon_{B_{2g}}$ dépend de la température, du fait du ramollissement du réseau. Cependant, le réseau se durcit significativement quand la contrainte appliquée est suffisamment forte, du fait de l'activation du paramètre d'ordre nématique, de sorte que C_{66} ne varie plus que faiblement avec la température. À la forte déformation nominale de la figure 5.9, la dépendance en température de C est probablement très limitée (voir l'annexe A.3). Ainsi, cet effet de ramollissement

ne joue qu'un rôle marginal dans la dépendance en température observée.

5.2.5 Conclusions sur la spectroscopie élasto-Raman du phonon de l'As

L'étude de la réponse Raman du phonon de l'As sous contrainte uniaxiale dans le composé Ba122 non dopé fournit plusieurs enseignements.

D'abord, sous T_s , dans les configurations parallèles orientées le long des axes orthorhombiques, ce mode révèle les proportions des domaines nématiques. Le suivi de leur évolution avec la déformation indique un régime d'orientation des domaines, à faible déformation, et un régime monodomaine à forte déformation.

Ensuite, au-dessus de T_s , l'activation du phonon sous déformation en configuration B_{2g} permet d'accéder à une forme de susceptibilité nématique. Je montre avec une dépendance en température à contrainte fixée que l'intensité du phonon apparaît comme un bon paramètre d'ordre nématique ϕ_{nem}^{As} . Comme la spectroscopie Raman active les phonons, liés au réseau, de manière indirecte via le système électronique, ce paramètre d'ordre représente, au moins partiellement, la nématicité électronique.

Une question ouverte reste le lien entre ϕ_{nem}^{As} et le paramètre d'ordre élastique $\epsilon_{B_{2g}}$. À première vue, je considérerais un comportement proportionnel, au moins à faible déformation. Contrairement à l'aimantation d'un ferromagnétique qui sature à champ fort à cause du nombre fini de spins contenus dans le matériau, la déformation $\epsilon_{B_{2g}}$ induite par la contrainte n'a théoriquement pas de limite. Dans ce cas, il serait intéressant de relier précisément les comportements de ϕ_{nem}^{As} et de $\epsilon_{B_{2g}}$, par exemple avec un dispositif combinant spectroscopie Raman, diffraction des rayons X et contrainte uniaxiale.

5.3 Effets de la déformation sur le continuum : suppression des fluctuations nématiques

Après m'être intéressé dans la section précédente aux modes de phonons et à ce qu'ils révèlent de la nématicité dans BFA0, j'étudie maintenant le continuum électronique des spectres Raman dans les deux échantillons BFA0 et BFA7. Je m'intéresse dans un premier temps à BFA0, puis à BFA7, avant de comparer les deux échantillons. Pour chacun des deux échantillons, je présente les spectres obtenus, en les discutant qualitativement ; puis j'extrais des susceptibilités nématiques et étudie leurs dépendances en température et déformation. J'étudie également de manière plus spécifique l'effet de la déformation sur l'ordre magnétique SDW dans BFA0 et sur le signal Raman supraconducteur dans BFA7.

5.3.1 Continuum électronique de BFA0 sous déformation autour de T_s

5.3.1.1 Spectres Raman obtenus

La figure 5.10 présente les réponses Raman obtenues expérimentalement sur BFA0, en dépendance en déformation à température fixée, pour quatre températures autour de T_s , dans la configuration de polarisation (x', y') (symétrie nématique B_{2g}), dans une gamme d'énergie correspondant à l'utilisation du spectromètre en mode triple (entre 12 et 540 cm^{-1}). Sur ces spectres, j'ai soustrait une composante constante en intensité que je considère comme extrinsèque, responsable d'environ 60 % du continuum. L'estimation de cette composante extrinsèque et son influence sur les résultats est discutée en annexe A.5.

Des quatre températures sondées, l'effet de la déformation est le plus intense à 145 K, c'est-à-dire à la température la plus proche de $T_{s,0} = 138$ K. Le poids spectral à basse énergie (jusqu'à 400 cm^{-1} environ) diminue significativement sous déformation, de manière qualitativement similaire en compression et en traction. Cet effet à basse énergie est également

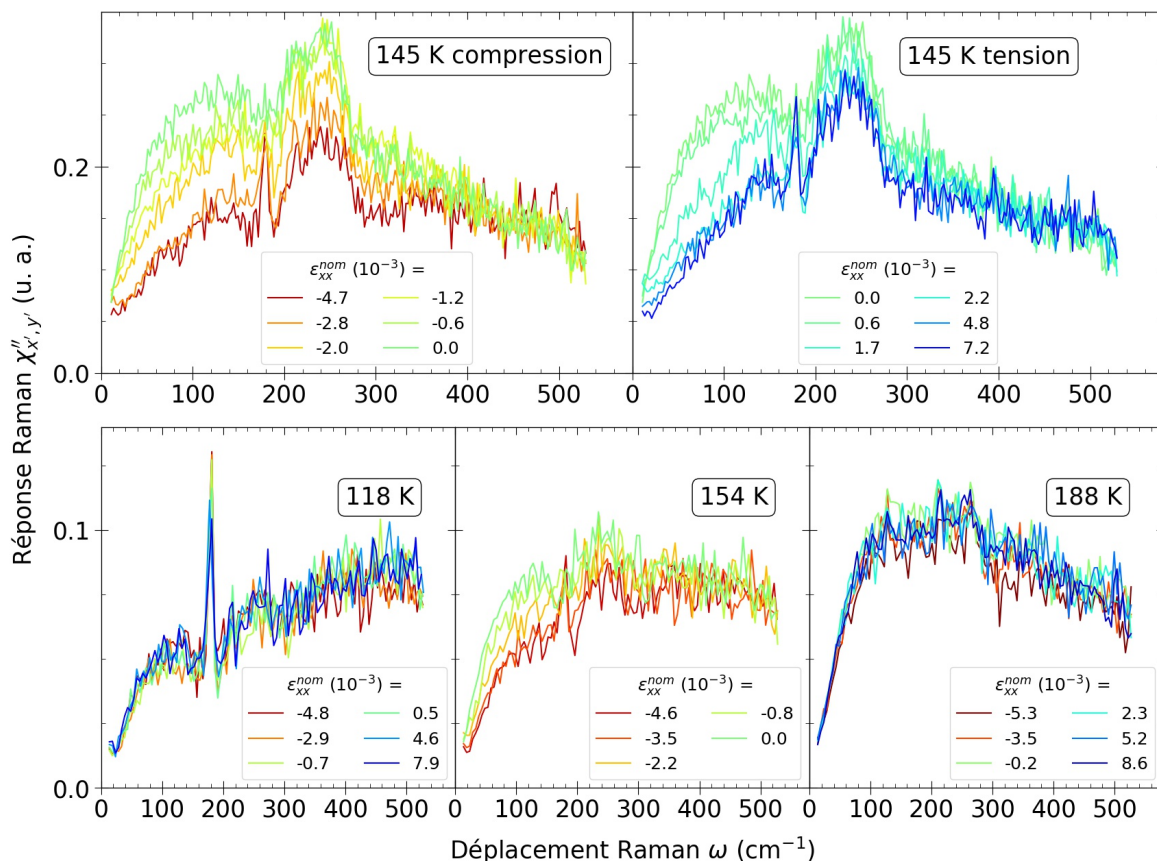


FIGURE 5.10 – Dépendance en déformation nominale à température fixée des réponses Raman dans le canal nématique (polarisations (x', y')), pour l'échantillon BFA0. Le mode à 180 cm^{-1} visible à 118 K et sous déformation à 145 et 154 K est le mode du phonon de l'As, discuté en section 5.2.4. La bosse entre 200 et 300 cm^{-1} , visible principalement à 145 K , est d'origine indéterminée.

visible à 154 K , mais amoindri. Enfin, à 118 et 188 K , loin de $T_{s,0}$, l'effet de la déformation est très faible, avec un effet global sur l'ensemble de la gamme d'énergie à peine plus grand que le bruit de mesure.

Je rappelle que la susceptibilité nématique Raman χ_{nem} s'obtient à partir des spectres expérimentaux en intégrant la conductivité Raman (réponse Raman divisée par le déplacement Raman) sur l'ensemble du spectre (équation (3.48)). Ces observations indiquent donc une diminution de la susceptibilité nématique sous déformation, avec une diminution relative d'autant plus importante que la température est proche de $T_{s,0}$. Comme pour $T > T_{s,0}$ la contrainte appliquée brise la symétrie de rotation C_4 et force l'échantillon à passer dans la phase orthorhombique, il est cohérent intuitivement qu'elle diminue les fluctuations nématiques, quantifiées par χ_{nem} . De même, on s'attend à une diminution des fluctuations nématiques pour $T < T_{s,0}$ lorsque la contrainte augmente l'orthorhombicité, mais avec un effet plus faible comme montré expérimentalement. Dans la suite, j'essaie de préciser ces observations qualitatives en tentant de calculer $\chi_{nem}(T, \epsilon_{xx}^{nom})$.

Je remarque sur la figure 5.10 que l'intensité globale est plus importante à 145 K que dans les autres températures. J'ai estimé qu'il s'agissait d'un effet extrinsèque au matériau, car la réponse Raman à haute énergie ne doit pas dépendre significativement de la température. Cet effet, sans doute dû à un alignement différent entre 145 K et les autres températures (une autre possibilité est la présence d'un dépôt sur la vitre du crostat, voir la note 12 de ce chapitre et le texte correspondant), nécessite de renormaliser par un coefficient multiplicatif

les spectres entre eux, si l'on souhaite comparer les différentes températures, en prenant comme référence le signal à haute énergie (entre 400 et 500 cm^{-1}). J'ai estimé ce coefficient multiplicatif à $1,45 \pm 0,05$ (non appliqué sur la figure 5.10, mais pris en compte dans la suite).

Également, l'allure des spectres est différente à haute énergie, avec un signal plutôt croissant à 118 K et décroissant à 188 K. À 145 K, le signal s'aplatit quand la déformation augmente en valeur absolue, avec un léger gain à haute énergie sous forte compression. Par contre, à 154 K, le signal est globalement plat à toute compression. Il est difficile de tirer de ces observations une conclusion cohérente avec la présence de la transition némato-structurale à 138 K. Cette différence d'allure pourrait être due à un effet extrinsèque d'alignement optique légèrement différent entre les quatre séries d'acquisitions. Les études Raman antérieures sans contrainte obtiennent plutôt un continuum plat à haute énergie (entre 450 et 600 cm^{-1}) pour $T > T_s$ [78].

Une autre observation argumentant en faveur de l'explication extrinsèque est la différence globale d'allure entre 154 et 188 K, avec un pic quasi élastique moins développé à 154 K qu'à 188 K pour toute déformation. Ceci n'est pas en accord avec le fait que χ_{nem} augmente lorsque la température est abaissée de 188 à 138 K. Ainsi, pour connaître $\chi_{nem}(T)$ à ϵ fixé, j'utilise dans la suite des spectres en dépendance en température à déformation fixée, qui ont été acquis dans la foulée et qui sont donc a priori davantage comparables.

5.3.1.2 Extrapolations à basse énergie des spectres

Pour obtenir la susceptibilité nématique Raman, il faut intégrer la conductivité Raman correspondant au pic quasi élastique nématique, sur une gamme d'énergie entre 0 et une énergie de coupure ω_c . ω_c doit être choisie comme l'énergie au-delà de laquelle les contributions à la réponse Raman autres que le pic quasi élastique (transitions interbandes par exemple) deviennent non négligeables. Dans la pratique, je la choisis comme l'énergie au-delà de laquelle l'effet de déformation n'est plus significatif, soit 400 cm^{-1} .

Comme la susceptibilité nématique est obtenue en intégrant la conductivité Raman, le signal à basse énergie en-deçà de l'énergie de coupure expérimentale inférieure y contribue fortement ; il est donc en théorie nécessaire d'extrapoler le signal à basse énergie jusqu'à 0 cm^{-1} pour accéder à une valeur de susceptibilité plus pertinente. La démarche serait ici la même que celle que j'ai utilisée pour Sr_2RuO_4 , que je présenterai en section 6.3.3.1 au chapitre suivant : ajuster la réponse expérimentale basse énergie avec une forme adéquate, et utiliser cette réponse ajustée pour extrapoler la réponse expérimentale jusqu'à 0 cm^{-1} . Dans l'état métallique, je rappelle que la réponse Raman a théoriquement une forme de Drude, exacerbée par les fluctuations nématiques.

Cependant, en voulant mettre en place cette procédure d'extrapolation, je me suis rendu compte que la réponse Raman à basse énergie que j'ai obtenue expérimentalement déviait dans certains cas significativement de la forme de Drude. Ces déviations sont systématiques à 118 K. À 145 K, la déviation est faible proche du point neutre, mais augmente significativement avec la déformation. À 154 K, l'allure dévie de la forme de Drude sous déformation suffisamment élevée⁶. Ce phénomène est visible sur les spectres en figure 5.10, et est illustré plus précisément à 145 K en figure 5.11. Je remarque qu'une telle déviation à la forme de Drude est également discernable dans les spectres Raman de Ba122 obtenus sans contrainte à 120 K (température proche et inférieure à T_s) [78].

La dépendance de cette déviation à la fois en déformation et en température indique qu'elle n'est très probablement pas due à la présence d'un signal extrinsèque à basse énergie

6. Sur les spectres bruts sans soustraction d'une composante extrinsèque putative, cette déviation apparaît beaucoup moins clairement à 118 et 154 K, mais elle est nette à 145 K sous déformation.

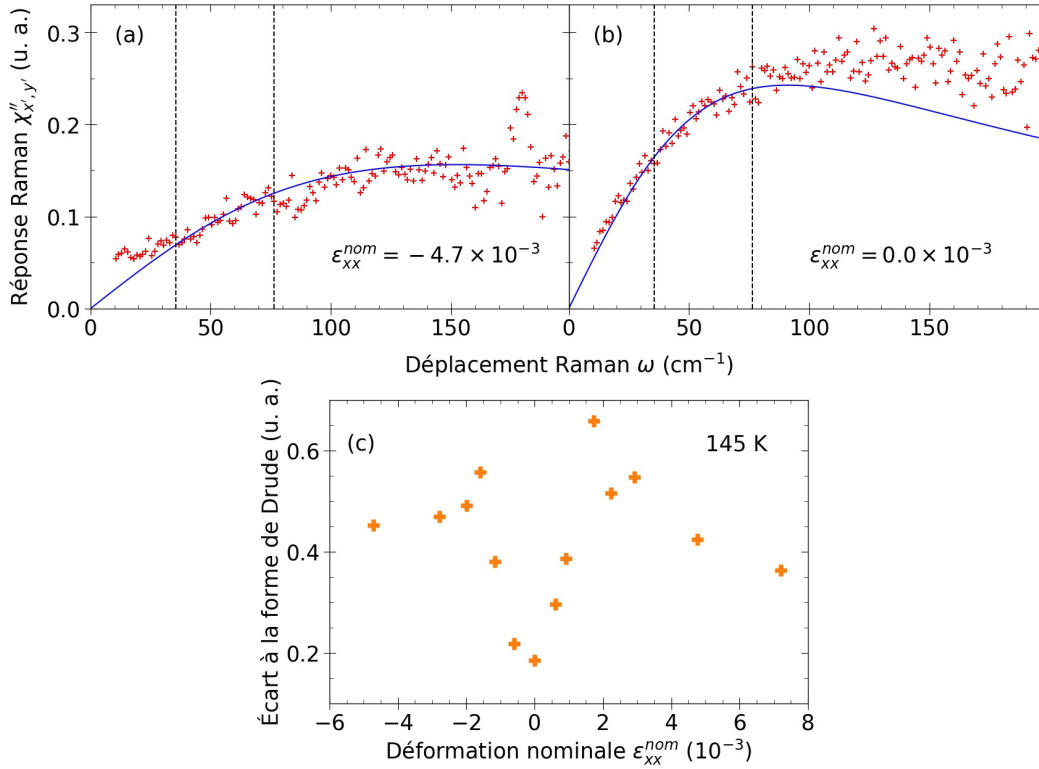


FIGURE 5.11 – (a) et (b) Ajustement par une forme de Drude (ligne continue bleue) des points expérimentaux (rouge) dans la gamme d'énergie contenue entre les deux lignes tiretées noires ($\omega_{fit,min}$ et $\omega_{fit,max}$ respectivement égaux à 35 et 75 cm⁻¹), à forte déformation (a) et proche du point neutre (b) à 145 K, pour l'échantillon BFA0. (c) Évolution en déformation de l'écart à la forme de Drude à 145 K. Cet écart est calculé comme l'intégrale de la différence entre les points expérimentaux et la forme de Drude, dans la gamme d'énergie entre 12 cm⁻¹ et $\omega_{fit,min}$. Les valeurs absolues de cet écart dépendent du choix de $\omega_{fit,min}$ et $\omega_{fit,max}$, mais l'allure globale reste qualitativement la même.

(par exemple une fuite de la diffusion élastique), mais qu'elle est intrinsèque à l'échantillon. Je n'ai pas d'hypothèse précise sur le mécanisme à l'origine de cette déviation, mais son existence sous T_s et son apparition à forte déformation pour T supérieure et proche de T_s indiquent qu'elle est liée à l'établissement de l'ordre nématique. Il est d'ailleurs remarquable que l'évolution en déformation de cet écart à la forme de Drude à 145 K est qualitativement similaire à celles de l'intensité du phonon de l'arsenic et de la susceptibilité nématique tronquée que je calcule dans la suite, avec notamment un effet de saturation à forte déformation, pour $|\epsilon_{xx}^{nom}| \geq 2-3 \text{ ‰}$.

Une étude théorique de la réponse Raman dans le canal nématique sous déformation indique un effet de diminution du poids spectral dû à l'augmentation de l'écrantage lorsque la symétrie B_{2g} de la phase tétragonale devient A_g dans la phase orthorhombique [257]. Cette suppression du signal est accompagnée d'une déviation de la forme de Drude à basse énergie. Cette possible explication de mes résultats expérimentaux n'est cependant pas tout à fait satisfaisante : la forme théorique de la déviation calculée dans la référence [257] sous déformation correspond à un creusement du pic, quand dans mon cas il s'agit plutôt d'une composante additionnelle par rapport à la forme de Drude.

Une explication possible de cette composante additionnelle est qu'elle pourrait être due à l'apparition d'une composante de Drude de long temps de vie (petit taux de relaxation Γ), possiblement associée à la modification de la surface de Fermi par l'ordre nématique.

Ainsi, la forme de Drude est clairement incorrecte à 118 K, et à 145 et 154 K sous défor-

mation. Il est donc malaisé d'extrapoler les points expérimentaux, sans hypothèse robuste sur le comportement précis de la réponse Raman à basse énergie. En particulier, une simple extrapolation linéaire pourrait être assez éloignée de la réalité. J'ai donc décidé, pour calculer χ_{nem} dans BFA0, d'intégrer seulement la conductivité Raman à partir de l'énergie minimale expérimentale, soit 12 cm^{-1} . Cette approximation amène une certaine sous-estimation des susceptibilités, vraisemblablement plus forte pour 145 K que pour les autres températures.

5.3.1.3 Susceptibilité nématique dans BFA0

Je définis la susceptibilité nématique tronquée $\tilde{\chi}_{nem} = \int_{\omega_{min}}^{\omega_{max}} \frac{\chi''}{\omega} d\omega$, avec $(\omega_{min}, \omega_{max}) = (12, 400) \text{ cm}^{-1}$, que je nomme simplement dans la suite susceptibilité nématique. $\tilde{\chi}_{nem,0} = \tilde{\chi}_{nem}(\epsilon = 0)$, et dans la pratique, je choisis pour $\tilde{\chi}_{nem,0}$ la susceptibilité nématique pour la déformation ϵ_{xx}^{nom} la plus proche du point neutre. Enfin, je définis la variation de susceptibilité nématique $\delta\tilde{\chi}_{nem}(\epsilon_{xx}^{nom}) = \tilde{\chi}_{nem}(\epsilon_{xx}^{nom}) - \tilde{\chi}_{nem,0}$, et donc $\delta\tilde{\chi}_{nem}/\tilde{\chi}_{nem,0}$ la variation relative. Pour calculer $\tilde{\chi}_{nem}$, je soustrais au préalable le mode du phonon de l'As, ainsi que pour 145 K la bosse large entre 200 et 300 cm^{-1} ; j'interpole linéairement la conductivité dans les gammes d'énergie de ces modes.

La figure 5.12 (graphiques (a) et (b)) représente le comportement en déformation de la susceptibilité nématique et de sa variation relative aux quatre températures sondées. Pour référence, je renvoie aux figures 3.7 et 3.8 qui représentent l'évolution en température de la susceptibilité nématique extraite des spectres Raman sans contrainte à différents dopages.

À déformation nulle, la susceptibilité nématique est plus intense à 145 K qu'aux températures plus éloignées de $T_{s,0}$. J'ai appliqué ici le facteur de renormalisation 1,45 entre 145 K et les autres températures estimé à partir des spectres. Comme exprimé plus haut, les quatre températures ne sont probablement pas cohérentes entre elles à déformation donnée pour χ_{nem} (avec notamment χ_{nem} plus petite à 154 qu'à 188 K, ce qui n'est pas attendu). La variation relative apparaît comme une grandeur comparative plus pertinente, au moins qualitativement.

À 118 K, aucun comportement systématique n'apparaît. Le comportement est légèrement asymétrique en compression et en traction à 145 et 188 K, avec une diminution de susceptibilité légèrement plus forte en compression qu'en traction. À faible compression, la variation relative de susceptibilité est proche à 145 et 154 K, avec une pente à l'origine d'environ 8–10 % par 10^{-3} de déformation nominale. La différence entre ces deux pentes pourrait néanmoins être plus grande concernant la susceptibilité nématique non tronquée. Ces pentes sont supérieures d'un ordre de grandeur à celle à 188 K. À plus forte déformation à 145 K, pour $|\epsilon_{xx}^{nom}| > 3 \text{ ‰}$, j'observe une rupture nette de pente, avec éventuellement une saturation, comme pour l'activation du phonon de l'As sous déformation. La saturation apparaît sur deux points en compression, avec une valeur saturée d'environ -40 ‰ ; elle est légèrement moins claire en traction, mais le point à la plus forte traction ne dépasse également pas -40 ‰ . Une diminution de la pente advient également à 154 K en compression sous -3 ‰ , mais sans nette saturation. L'atteinte de la saturation n'apparaît également pas clairement à 188 K, mais la variation relative est globalement plus faible : elle ne dépasse pas -12 ‰ aux plus fortes compressions.

Comme pour l'activation du phonon de l'As sous déformation, il est pertinent de considérer la différence entre ϵ_{xx}^{nom} et $\epsilon_{B_{2g}}$ dans l'analyse des données. Je rappelle que le ratio $\epsilon_{B_{2g}}/\epsilon_{xx}^{nom}$ est plus grand à 145 K qu'à 154 K d'un facteur environ 1,3 : néanmoins, vue l'incertitude sur les valeurs mesurées des pentes, je ne peux pas démêler l'effet réel de température sur la variation relative de susceptibilité et l'effet artificiel de ratio $\epsilon_{B_{2g}}/\epsilon_{xx}^{nom}$. Par contre, la différence des pentes entre 154 et 188 K est trop grande pour être expliquée seulement par l'effet du ratio $\epsilon_{B_{2g}}/\epsilon_{xx}^{nom}$ (plus grand à 154 K qu'à 188 K d'un facteur environ

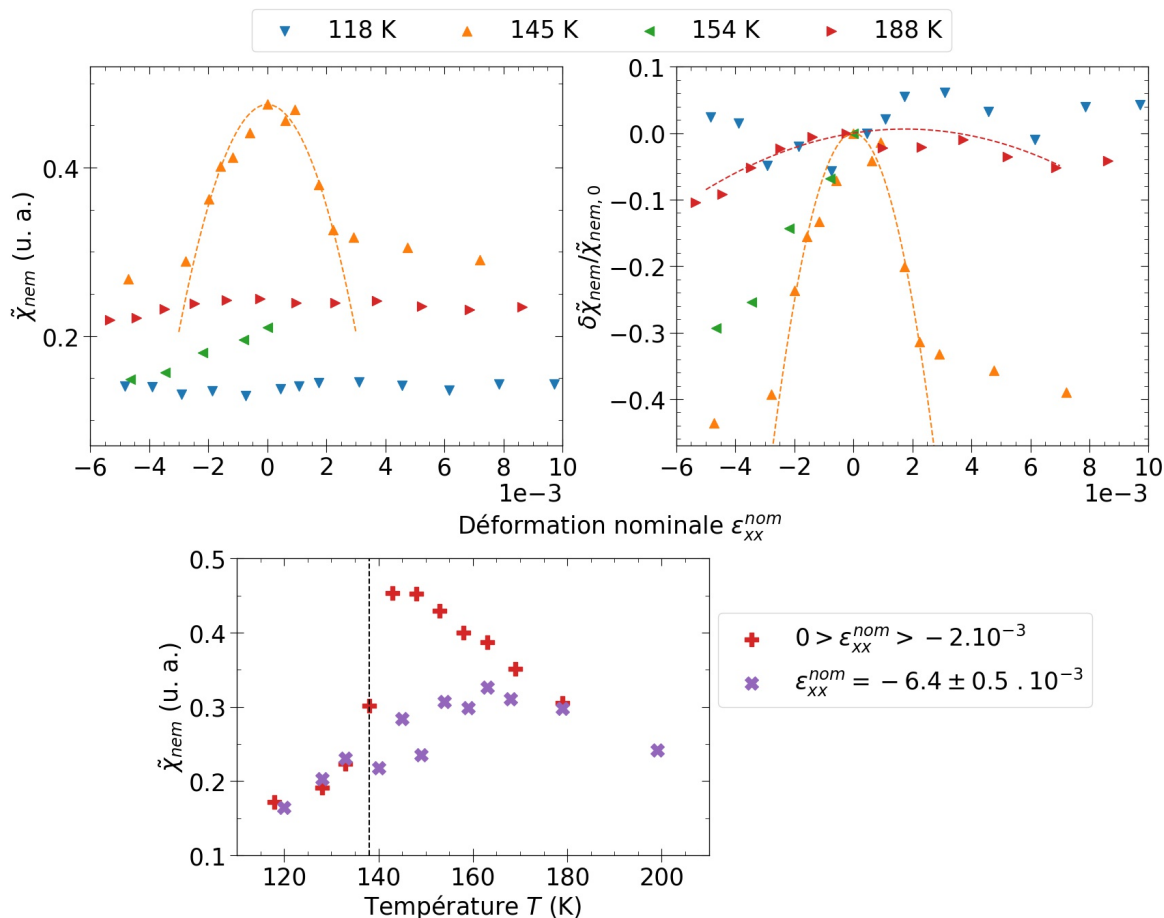


FIGURE 5.12 – Susceptibilité nématique (tronquée à 12 cm^{-1}) (a) et ses variations relatives (b) selon la déformation nominale pour les quatre températures sondées, pour l'échantillon BFA0. Pour (a), la susceptibilité à 145 K a été renormalisée par le facteur $1/1,45$ pour améliorer la comparaison avec les trois autres températures. Les lignes tiretées sont des ajustements à la main des points expérimentaux, selon une loi quadratique (pour 145 K) ou une somme de lois linéaire et quadratique (pour 118 et 188 K). (c) Susceptibilité nématique (tronquée à 16 cm^{-1}) selon la température autour de $T_{s,0}$ (marquée par la ligne tiretée noire) pour deux états de déformation, pour l'échantillon BFA0.

1,3).

Le comportement global de χ_{nem} en fonction de la déformation peut théoriquement s'écrire comme :

$$\chi_{nem}(\epsilon) = \chi_{nem,0}(1 + \alpha' \epsilon_{A_{1g}} + \beta' \epsilon_{B_{2g}}^2 + \dots) \quad (5.12)$$

en suivant un raisonnement sur les symétries identique à celui discuté ci-avant pour l'équation (5.10). J'ai noté α' et β' les coefficients, car comme ils notent la dépendance des fluctuations, ils sont a priori différents de ceux de l'équation (5.10), qui notent la dépendance de l'ordre. En particulier, expérimentalement $\beta > 0$ et $\beta' < 0$: la déformation B_{2g} active le paramètre d'ordre nématique mais supprime les fluctuations. Je discute ci-après des grandeurs physiques contenues dans β' . J'ai tenté d'ajuster les points expérimentaux en suivant l'équation (5.12), et les résultats sont présentés en lignes tiretées en figure 5.12. Je précise que j'ai effectué ces ajustements à la main et non avec un algorithme informatique : ils ne

constituent donc qu'un test qualitatif de la validité de l'équation (5.12), et le nombre réduit de points expérimentaux empêche d'écarter d'autres types de dépendance.

Le comportement relativement symétrique de χ_{nem} à 145 K s'ajuste très correctement avec une allure purement quadratique pour $|\epsilon_{xx}^{nom}| < 2,5 \text{ ‰}$. Le coude à faible compression peut être contenu dans l'incertitude expérimentale, mais je remarque qu'un coude similaire a été observé dans la dépendance de T_s en déformation B_{1g} [112]. Pour ajuster au mieux le comportement à 188 K, j'ai dû prendre en compte une composante linéaire correspondant à l'effet de $\epsilon_{A_{1g}}$ au premier ordre.

Sur cet échantillon, j'ai également acquis des spectres en dépendance en température à déformation fixée⁷, pour une déformation faible (compression inférieure à 2 ‰ en valeur absolue) et une déformation forte (compression d'environ $-6,5 \text{ ‰}$). À partir de ces spectres, je calcule⁸ $\tilde{\chi}_{nem}(T)$ à ϵ_{xx}^{nom} constant, en soustrayant le mode du phonon de l'As et la bosse entre 200 et 300 cm^{-1} . Le résultat est représenté sur le graphique (c) de la figure 5.12.

Pour une déformation faible, j'obtiens un maximum de $\tilde{\chi}_{nem}$ proche de $T_{s,0}$, autour de 145 K. Sous forte déformation, la variation de $\tilde{\chi}_{nem}$ est fortement amoindrie, et le maximum est déplacé vers les températures supérieures. Ce maximum est situé entre 150 et 170 K ; la dispersion des points rend son évaluation précise difficile. Ces modifications du comportement de la susceptibilité sous contrainte sont cohérentes avec celles affectant le paramètre d'ordre nématique, attendues théoriquement et obtenues ci-avant dans l'étude du phonon de l'As (figure 5.9). Le décalage du maximum de susceptibilité vers les températures croissantes sous compression justifie le fait que le maximum à faible déformation semble légèrement au-dessus de 138 K. Pour T suffisamment loin de $T_{s,0}$ ($T \leq 130$ et $T \geq 170$ K environ), $\tilde{\chi}_{nem}$ est similaire pour les deux états de déformation, ce qui est cohérent avec le graphique (a) de la figure 5.12 qui montre que le comportement de $\tilde{\chi}_{nem}(\epsilon)$ est relativement plat à 118 et 188 K.

Les résultats de la dépendance en température (graphique (c)) permettent de confirmer que, dans les dépendances en déformation à température fixée (graphique (a)), $\chi_{nem}(\epsilon)$ à 154 K est globalement sous-estimée par rapport aux autres températures. En revanche, les valeurs relatives de $\chi_{nem,0}$ à 118, 145 et 188 K sur le graphique (a) sont en accord avec celles sur le graphique (c).

5.3.1.4 Évaluation du préfacteur quadratique en déformation de la susceptibilité nématique

Pour discuter de façon plus profonde du sens physique du coefficient quadratique β' de la susceptibilité nématique χ (dans la suite, je n'écris pas l'indice « *nem* » pour alléger l'écriture), je cherche à écrire sa dépendance avec la déformation $\epsilon_{B_{2g}}$. Je pars d'une expression de l'énergie libre suivant un formalisme de Landau, décrivant la transition némat-structurale en présence d'une contrainte externe (je suis en les adaptant des calculs rapportés en référence [148]) :

$$F = \frac{1}{2}C_0\epsilon^2 + \frac{1}{2}r\phi^2 + \frac{u}{4}\phi^4 - \lambda\epsilon\phi - \sigma\epsilon \quad (5.13)$$

Cette expression de F suit une extension d'ordre 2 en les paramètres d'ordre élastique ϵ et nématique ϕ , couplés par λ , sous l'application d'un champ externe σ se couplant à ϵ . En

7. Il s'agit des spectres sur lesquels j'ai étudié l'activation du phonon de l'As, en figure 5.9.

8. Pour ces spectres, mon énergie de coupure expérimentale était plus élevée que pour les spectres à température fixée, à 16 au lieu de 12 cm^{-1} . La susceptibilité nématique est donc ici davantage tronquée. J'effectue aussi la soustraction de l'intensité extrinsèque sur ces spectres, avec le même ratio que pour les spectres en dépendance en déformation à température fixée.

minimisant cette énergie libre respectivement par rapport aux paramètres d'ordre ϕ et ϵ , j'obtiens :

$$r\phi + u\phi^3 = \lambda\epsilon \quad (5.14)$$

$$C_0\epsilon - \lambda\phi - \sigma = 0 \quad (5.15)$$

soit :

$$r\phi + u\phi^3 = \frac{\lambda\sigma}{C_0} + \frac{\lambda^2\phi}{C_0} \quad (5.16)$$

Je définis $\tilde{r} = r - \frac{\lambda^2}{C_0}$ et le champ $h = \frac{\lambda\sigma}{C_0}$, et j'obtiens :

$$\tilde{r}\phi + u\phi^3 = h \quad (5.17)$$

Fondamentalement, la susceptibilité nématique inverse r est renormalisée par le couplage avec le réseau en \tilde{r} , comme dans le raisonnement de la section 2.2.3.1. Je définis la susceptibilité nématique au champ h comme $\chi_h = \frac{\partial\phi}{\partial h}$, et \tilde{r} apparaît comme cette susceptibilité à champ nul : $\tilde{r} = \chi_h(h=0) = \chi_{h,0}$.

Je différentie l'équation (5.17) par rapport au champ h et obtiens :

$$(\tilde{r} + 3u\phi^2)\chi_h = 1 \quad (5.18)$$

donc :

$$\chi_h = \frac{1}{\tilde{r} + 3u\phi^2} \approx \chi_{h,0}(1 - 3u\chi_{h,0}\phi^2) \quad (5.19)$$

Dans la limite des petits champs h et paramètres d'ordre ϕ , l'équation (5.17) donne également :

$$\phi = h\chi_{h,0} + \mathcal{O}(h^3, \phi^3) \quad (5.20)$$

d'où on déduit :

$$\chi_h \approx \chi_{h,0}(1 - 3u\chi_{h,0}^3 h^2) \quad (5.21)$$

Cette dernière équation concerne le champ de contrainte h , et il faut maintenant la transformer pour faire apparaître la déformation ϵ . Par définition à partir de l'équation (5.13), $\frac{\partial\sigma}{\partial\epsilon} = C_0$, donc $\frac{\partial h}{\partial\epsilon} = \lambda$, et $\frac{\partial\phi}{\partial\epsilon} = \lambda\tilde{r}^{-1} = \lambda\chi$. χ est définie ici comme la susceptibilité nématique à la déformation ϵ , qui correspond à la susceptibilité nématique mesurée en spectroscopie élasto-Raman. On a alors : $\chi_h = \frac{\partial\phi}{\partial h} = \frac{\partial\phi}{\partial\epsilon} \frac{\partial\epsilon}{\partial h} = \chi$. Cette égalité entre χ_h et χ est en réalité immédiate, car de par sa définition, h est le champ de contrainte qui s'applique sur le système électronique, renormalisé par le réseau.

Dans la limite des petites déformations et petits champs h , on a aussi $h = \lambda\epsilon$. On a donc alors $\chi_{h,0} = \chi(\epsilon \rightarrow 0)$, qui est la susceptibilité nématique sans contrainte (ou sans déformation), que je note χ_0 . En remplaçant dans l'équation (5.21), on obtient :

$$\chi = \chi_0(1 - 3u\lambda^2\chi_0^3\epsilon^2) \quad (5.22)$$

La déformation ϵ apparaissant dans cette dernière équation est bien $\epsilon_{B_{2g}}$, le paramètre d'ordre de la transition structurale. Cette équation précise donc l'expression du coefficient β' de l'équation (5.12), avec :

$$\beta' = -3u\lambda^2\chi_0^3 \quad (5.23)$$

Comme le raisonnement n'a pas considéré de déformation supplémentaire isotrope, je n'obtiens qu'une dépendance en $\epsilon_{B_{2g}}$ et pas en $\epsilon_{A_{1g}}$.

Ce résultat théorique permet d'expliquer qualitativement les observations expérimentales de la figure 5.12. Comme u et χ_0 sont positifs, il justifie d'abord la décroissance de la susceptibilité nématique sous déformation. Ensuite, le fait que $\chi_{nem}(\epsilon)$ à T constante s'aplatisse en s'éloignant de $T_{s,0}$ (ou de façon équivalente, que la décroissance de la variation relative à faible déformation est plus grande à 145 K qu'à 154 K, et plus grande à 154 K qu'à 118 et 188 K), s'explique par la présence du facteur χ_0^3 dans β' ⁹. En effet, les diverses expériences extrayant la susceptibilité à déformation nulle, ainsi que le résultat du graphique (c) de la figure 5.12, indiquent bien que χ_0 augmente significativement en approchant de $T_{s,0}$.

Enfin, l'évolution de la dépendance en température à ϵ fixée entre faible et forte déformation s'explique également avec l'équation (5.22). L'activation du paramètre d'ordre nématique (ou de façon équivalente, du paramètre d'ordre élastique) sous contrainte amène dans la susceptibilité χ la composante $-3u\phi^2\chi_0^2$. Celle-ci amoindrit l'augmentation de χ quand T se rapproche de T_s , par rapport au cas sans contrainte.

5.3.1.5 Effet de la déformation sur l'ordre magnétique SDW

J'ai obtenu quelques résultats relatifs à l'effet de la déformation sur l'ordre magnétique dans BFA0, dont je rends compte dans cette section. Je précise que ces résultats sont relativement préliminaires (résultats obtenus pour un seul échantillon, à une seule température, exclusivement sous compression), et je n'en tire que des conclusions qualitatives. Il serait intéressant de les compléter en sondant des échantillons à des dopages différents, à plusieurs températures et en traction.

L'ordre magnétique advenant dans Co-Ba122 sous T_N (avec $T_N = T_s = 138$ K pour le composé non dopé) produit des traits particuliers sur la réponse Raman sans contrainte appliquée [45]. Je les ai retrouvés dans mes spectres à déformation nominale nulle (figure 5.13 graphique supérieur). La perte de poids spectral sous 700 cm^{-1} entre 145 et 24 K est une combinaison des effets nématiques (diminution d'intensité du pic quasi élastique) et magnétiques. Les traits spécifiques au magnétisme, dus à l'ouverture du gap SDW sous T_N , sont identifiés comme les suivants : une marche se creusant entre 300 et 450 cm^{-1} , et un pic large se développant entre 700 et 1000 cm^{-1} .

La figure 5.13 rend compte de l'évolution sous déformation compressive de ces traits de l'ordre magnétique. J'observe un décalage en énergie de la marche et du pic large SDW, tous les deux se durcissant quand la déformation augmente. Il est difficile de quantifier précisément cet effet, mais je tente une quantification en considérant le point de rupture de pente marquant la chute de signal au niveau de la marche (graphique de droite de la figure 5.13). À faible compression, il est situé vers 380 cm^{-1} . À la compression maximale,

9. Je suppose, en accord avec le formalisme de Landau, que u n'a pas de dépendance significative en température. Également, je n'envisage pas de forte dépendance de λ entre 188 et 118 K.

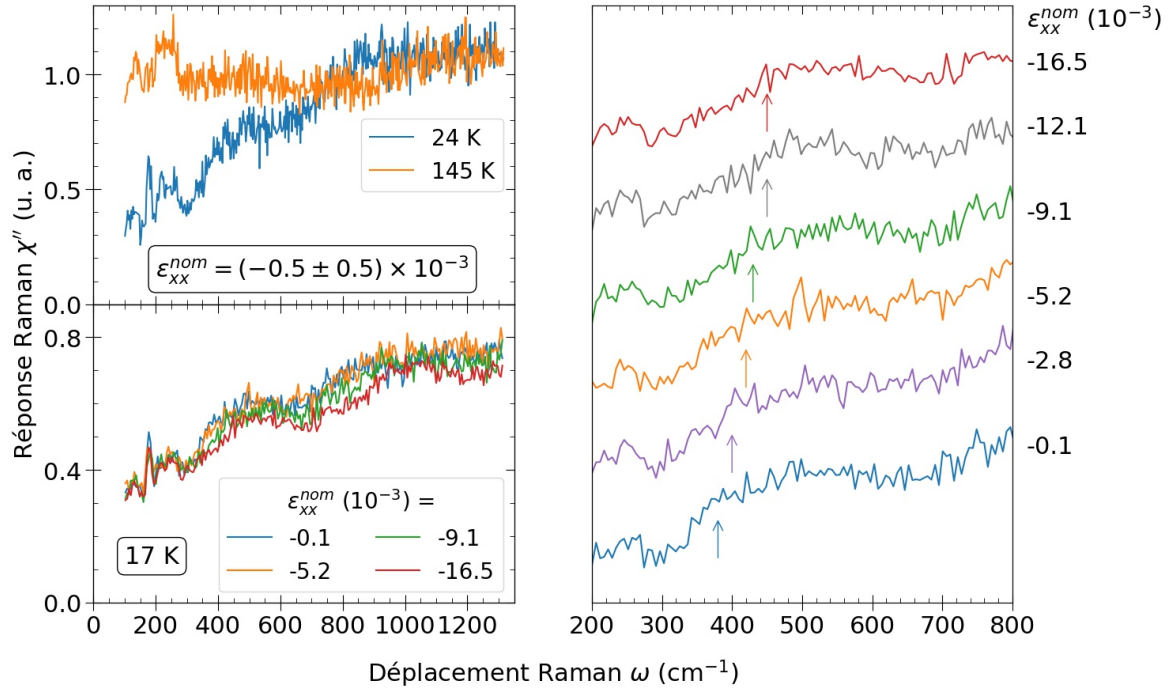


FIGURE 5.13 – (Gauche Haut) Développement du gap SDW dans BFA0 entre 145 K (température légèrement supérieure à T_N) et 24 K, marqué par la marche et le pic large respectivement vers 400 et 900 cm^{-1} . Les spectres acquis dans cette dépendance en température sont vraisemblablement sous très faible compression. Pour cette figure, afin d'étendre la gamme spectrale, les spectres ont été acquis avec le spectromètre en mode simple. (Gauche Bas) Effet de fortes compressions sur la réponse Raman à 17 K. (Droite) Agrandissement au niveau de la marche, avec décalage des spectres pour améliorer la visibilité. Les flèches indiquent la zone la rupture de pente entraînant la chute du signal.

je le mesure à environ 450 cm^{-1} , ce qui correspond à un durcissement d'environ 20 % à $\epsilon_{xx}^{nom} = -16,5 \%$.

Je note qu'à cette température très petite devant T_s , le pic quasi élastique n'est pas développé, et la susceptibilité nématique est très faible, ce qui explique que, comme à 118 K, je n'observe pas de modification du signal basse énergie avec la déformation autre que de celui relatif à l'ordre SDW.

Cet effet de la déformation sur l'ordre magnétique s'explique comme l'augmentation de la valeur du gap SDW sous compression, ce qui implique l'existence d'un couplage entre les ordres magnétique et nématique. Je note que cet effet est cohérent avec l'augmentation de T_N sous compression observée par RMN [133]. Je souligne que les spectres sous déformation représentés en figure 5.13 correspondent à de très fortes compressions, jusqu'à -16% . En particulier, il n'y a aucun effet visible pour les compressions inférieures (en valeur absolue) à 5 %, alors que j'ai montré que les effets sur le pic quasi élastique dans cette gamme des « petites » déformations sont très grands. Ceci indique que la déformation n'agit qu'indirectement sur l'ordre magnétique, et possiblement via sa composante A_{1g} . Même si les spectres acquis en mode simple du spectromètre ne sont pas très adéquats pour suivre l'évolution des modes de phonons, je note également que l'intensité du phonon de l'As semble saturée à ces fortes déformations : ce comportement à basse température est cohérent avec celui observé à 118 K.

5.3.2 Continuum électronique de BFA7 sous déformation

Dans cette section, j'étudie les spectres obtenus sur BFA7 d'une façon similaire à ceux obtenus sur BFA0, analysés ci-avant. Cependant, deux différences majeures existent entre les deux dopages. La première est que BFA7 ne présente pas de transition structurale : ceci ne l'empêche cependant pas de présenter des fluctuations nématiques significatives, mesurées notamment en spectroscopie Raman [78]. La seconde est la présence d'un ordre supraconducteur dans BFA7 sous $T_c \approx 24$ K.

5.3.2.1 Spectres Raman obtenus

La figure 5.14 présente les réponses Raman obtenues expérimentalement sur BFA7, en dépendance en déformation à température fixée, dans les mêmes configurations de polarisation et de déplacement Raman¹⁰ que pour BFA0, pour quatre températures. J'ai choisi une température la plus basse possible dans l'état supraconducteur (9 K, dont 2 K d'échauffement laser), une température vers T_c (26 K, dont 6 K d'échauffement laser), et deux températures plus élevées dans l'état normal (46 et 76 K, dont 6 K d'échauffement laser). Instruit de la brisure de BFA0 sous traction, j'ai restreint les valeurs de mise sous traction de BFA7. Contrairement à BFA0, pour BFA7, la comparaison avec des spectres de référence indique l'absence d'une composante extrinsèque significative. Ceci est cohérent avec le meilleur état de surface pour cet échantillon.

J'ai choisi un dopage proche du dopage optimal (vers 6,5 %). Néanmoins, l'intensité du pic supraconducteur varie très rapidement avec le dopage autour de ce dopage optimal, avec notamment un pic significativement plus faible à 7,5 %, malgré une variation faible de T_c [44]. Ainsi, le développement du pic de supraconductivité à 9 K par rapport à 26 K, visible sur la figure 5.14, pourrait être davantage marqué avec un dopage plus proche de l'optimal.

L'effet de la déformation est le plus visible à 9 et 26 K. À faible déformation dans la phase supraconductrice à 9 K, on observe un pic supraconducteur, entre 50 et 130 cm^{-1} environ, en accord avec les études antérieures [44, 191]. Ce pic perd notablement du poids spectral sous déformation, à la fois en compression et en traction¹¹. Aux plus fortes déformations, le pic disparaît. La réponse Raman dans l'état normal aux trois températures a une allure de Drude, et, comme pour BFA0, le pic quasi élastique à basse énergie perd du poids spectral sous déformation. À 46 et 76 K, aux trop faibles valeurs de traction atteintes, la baisse du poids spectral n'est pas clairement visible sur les spectres par rapport au point neutre.

Sur la figure 5.14, j'ai précisé les valeurs quantitatives des réponses Raman mesurées : il apparaît une très forte dépendance de l'intensité globale selon la température. En réalité, cet effet est d'origine extrinsèque, lié à un dépôt sur la fenêtre du cryostat qui se développe au cours du temps, atténuant le signal incident et diffusé. Cette perte de signal, relativement constante au cours du temps, nécessite de renormaliser les spectres entre eux, y compris au sein d'une même série à température donnée¹² : j'ai décidé de prendre comme référence les gammes de haute énergie, entre 400 et 500 cm^{-1} .

10. J'ai cependant fixé une énergie de coupure expérimentale inférieure légèrement plus élevée pour BFA7 que pour BFA0 (20 contre 10–15 cm^{-1}).

11. Le maximum de développement du pic supraconducteur à 9 K semble plutôt advenir à faible compression, entre $-1,2$ et $-0,6$ %, que plus proche du point neutre à 0,1 %. Je reviens sur ce point lorsque je décris le comportement de la susceptibilité, mais je rappelle dès maintenant que l'évaluation quantitative précise de la déformation n'est pas aisée.

12. Je n'ai pas noté ce phénomène au cours des expériences menés sur Sr_2RuO_4 (expériences menées 18 mois avant celles sur Co-Ba122). Pour BFA0, j'utilisais des puissances de laser plus élevées, donc les temps d'acquisition étaient plus réduits, ce qui explique peut-être que je n'ai pas observé ce phénomène ; il pourrait néanmoins expliquer l'intensité moindre à 154 K par rapport à 118 et 188 K, et celles moindres à ces trois températures par rapport à 145 K.

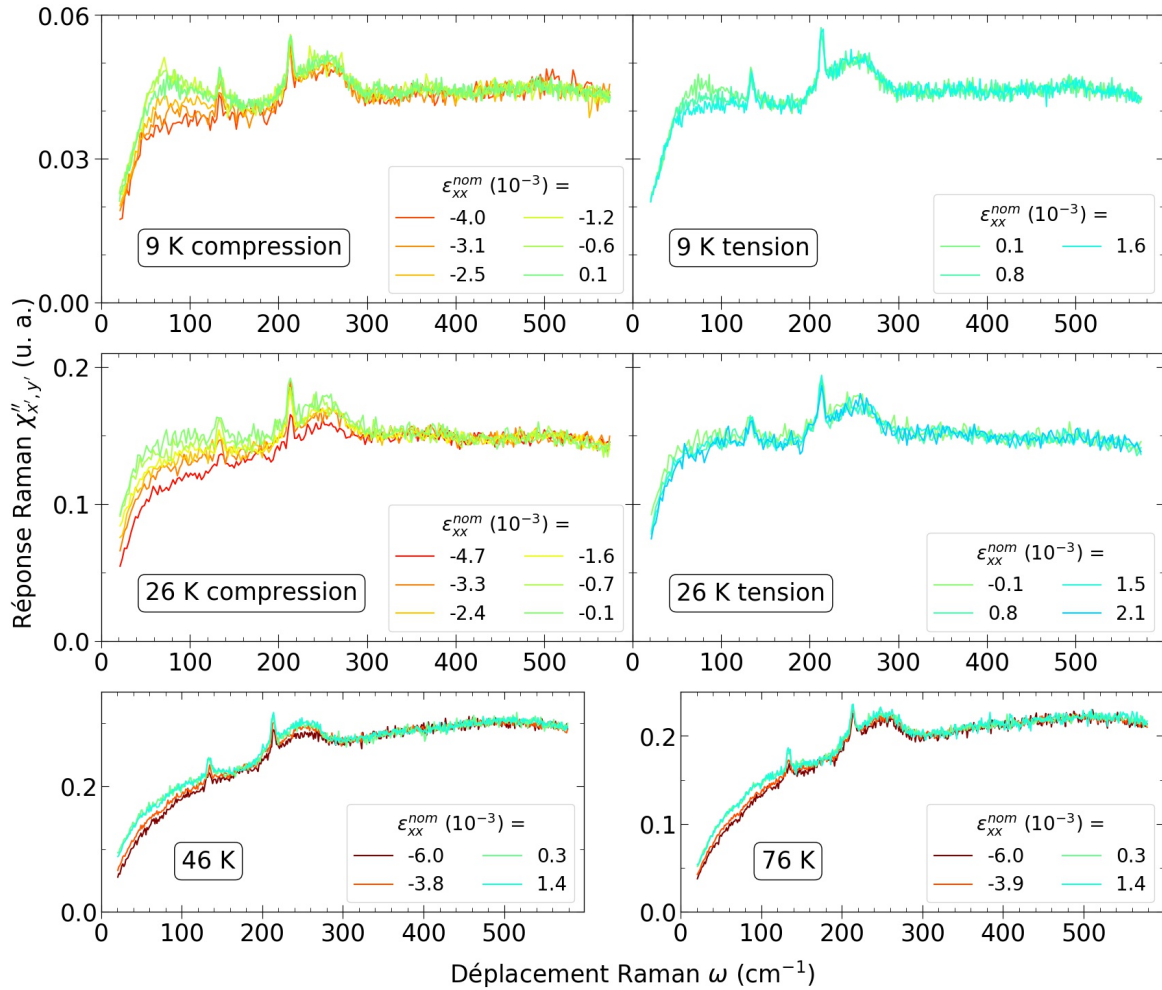


FIGURE 5.14 – Dépendance en déformation nominale à température fixée des réponses Raman dans le canal nématique (polarisations (x', y')), pour l'échantillon BFA7. Les modes à 135 et 210 cm^{-1} visibles aux quatre températures sont des fuites respectivement du phonon E_g et du phonon du fer. La bosse visible entre 200 et 300 cm^{-1} a probablement la même origine non identifiée que pour BFA0. À chaque température, les spectres ont été renormalisés entre eux en prenant comme référence le signal à haute énergie (entre 400 et 500 cm^{-1} , voir le texte pour la justification), mais sur la figure, je n'ai pas renormalisé les différentes températures entre elles.

Comme pour BFA0, j'extrais dans la suite des valeurs quantitatives de susceptibilités nématiques à partir des spectres. Il est cependant instructif de discuter d'abord qualitativement de cette susceptibilité. La figure 5.14 indique que l'effet de la déformation aux quatre températures est de diminuer la susceptibilité nématique. Pour les trois températures supérieures à T_c , les différentes mesures antérieures de susceptibilité nématique indiquent effectivement que, bien qu'à ce dopage le matériau ne présente de phase orthorhombique à aucune température, la susceptibilité nématique est significativement non nulle. Après la discussion des résultats de BFA0, il apparaît cohérent que la déformation ait un effet similaire sur BFA7. Concernant l'état supraconducteur, la discussion est plus subtile, et j'y reviens ci-après.

5.3.2.2 Susceptibilité nématique dans BFA7

Contrairement aux spectres acquis dans BFA0, la réponse Raman dans BFA7 au-dessus de T_c est ajustable de façon satisfaisante par une allure de Drude à basse énergie¹³. Ceci m'a permis d'extrapoler les spectres à basse énergie afin de calculer la susceptibilité nématique, en intégrant la conductivité Raman entre 0 et 400 cm^{-1} . Dans l'état supraconducteur, la forme de la réponse Raman à basse énergie n'est pas précisément connue : elle dépend de la forme et de la topologie du gap supraconducteur, et n'a pas été obtenue précisément dans Co-Ba122 [47]. J'ai choisi néanmoins d'extrapoler la réponse Raman également à 9 K, de façon simplement linéaire. La pente prise pour l'extrapolation correspond à celle entre l'origine et la moyenne des trois premiers points expérimentaux. J'obtiens de même la susceptibilité nématique en intégrant la conductivité Raman entre 0 et 400 cm^{-1} .

La figure 5.15 représente la susceptibilité nématique aux quatre températures sondées, ainsi que ses variations relatives. Pour la variation relative à 9 K, je prends comme spectre de référence du point neutre celui à $-0,6\text{ ‰}$. Le spectre à $0,1\text{ ‰}$ a une déformation nominale calculée plus faible, mais le maximum de susceptibilité apparaît clairement à $-0,6\text{ ‰}$: ce plus grand écart à 0 est compatible avec l'incertitude sur ϵ_{xx}^{nom} . Ici, je renvoie de nouveau pour référence à la figure 3.8 du chapitre 3, qui rend compte du comportement $\chi_{nem}(T)$ à différents dopages sans contrainte. BFA7 correspond à un intermédiaire entre les dopages 6,5 et 7,5 ‰ sur cette figure.

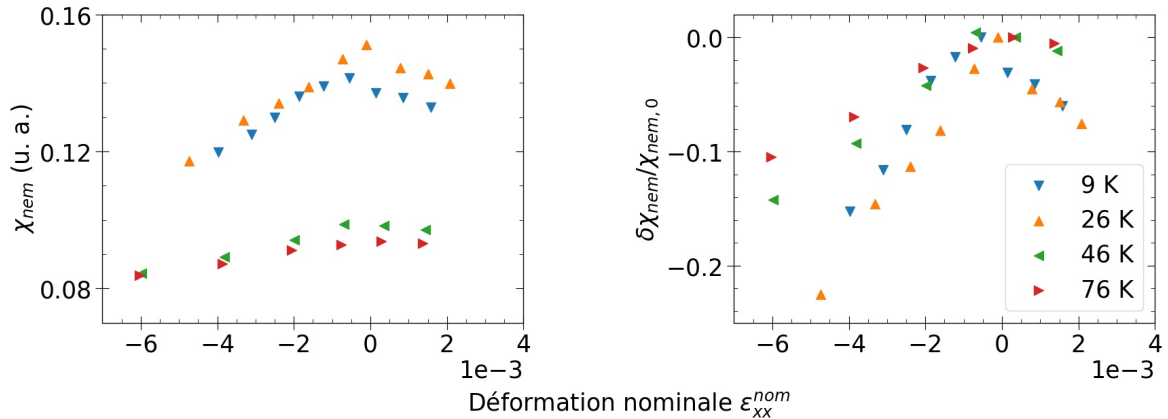


FIGURE 5.15 – Susceptibilité nématique (calculée avec extrapolation) (a) et ses variations relatives (b) selon la déformation nominale dans BFA7 pour les quatre températures sondées. Avant le calcul des susceptibilités, les spectres à 26, 46 et 76 K ont été renormalisés par rapport à 9 K, en prenant comme référence le signal à haute énergie entre 400 et 500 cm^{-1} .

Comme pour BFA0, utiliser $\chi_{nem}(\epsilon)$ à température fixée pour comparer les différentes températures semble trompeur. La susceptibilité nématique au point neutre diminue bien de 26 à 76 K, ce qui est en accord qualitatif avec la figure 3.8, mais avec un écart important entre 9 et 26 K d'une part, et 46 et 76 K d'autre part. La présence de ces deux groupes de température interroge aussi sur la pertinence de la renormalisation globale des spectres en prenant pour référence le signal à haute énergie : l'allure globale peut avoir été modifiée à cause d'un alignement légèrement différent. Ainsi, comme pour BFA7, la comparaison des différentes températures est plus pertinente via la variation relative de susceptibilité.

De plus, l'extrapolation linéaire pose une incertitude sur les valeurs de susceptibilité

13. Cette observation est une justification supplémentaire de l'interprétation nématique de la déviation de Drude, comme BFA7 à $T > 25\text{ K}$ est plus éloigné de l'ordre orthorhombique que BFA0 à 118, 145 et 154 K.

obtenues à 9 K. Pour la quantifier, je compare cette extrapolation linéaire, qui constitue a priori un cas extrême, avec l'autre cas extrême qu'est la suppression totale de réponse Raman sous 20 cm^{-1} , due à l'ouverture du gap supraconducteur. Dans ce second cas par rapport au cas d'extrapolation linéaire, la susceptibilité est réduite de $13 \pm 1\%$ pour toutes les valeurs de déformations : les points à 9 K sont significativement réduits par rapport à ceux à 26 K, mais la modification de la courbe de la variation relative est très faible. Ceci confirme la difficulté de raisonner sur χ_{nem} par rapport à $\delta\chi/\chi_{nem,0}$. Le fait que la diminution de χ_{nem} dans le cas d'extrapolation nulle par rapport au cas d'extrapolation linéaire est quantitativement proche pour toute déformation s'explique par la grande similitude des spectres dans la zone d'énergie entre 20 et 40 cm^{-1} , avec une perte de poids spectral avec la déformation très faible.

χ_{nem} chute sous déformation à toute température, de façon relativement symétrique. Le peu de points en traction à 46 et 76 K m'empêche d'observer un comportement asymétrique aussi clair que dans BFA0. Par rapport à BFA0, le comportement de $\chi_{nem}(\epsilon)$ à 9 et 26 K n'apparaît pas autant quadratique à faible déformation, mais plutôt linéaire, même si je manque de points pour conclure. Je n'observe également pas de rupture de pente, mais je ne suis pas allé aussi loin en déformation que pour le précédent échantillon. La pente de la variation relative de susceptibilité diminue quand la température augmente, ce qui est cohérent avec l'éloignement de la phase nématique.

La perte de poids spectral à basse énergie sous déformation à 9 K s'interprète comme une diminution de χ_{nem} dans cette phase supraconductrice. Cette diminution peut être rapprochée de celle, forte, de T_c sous déformation observée en transport [175]. Ces deux observations réunies montrent l'existence d'un lien entre fluctuations nématiques et supraconductivité.

La variation relative susceptibilité nématique à 9 K est proche de celle dans l'état normal à 26 K, ce qui indiquerait l'absence de discontinuité dans cette variation relative au passage de T_c . Je manque néanmoins de points intermédiaires entre 9 et 26 K pour conclure définitivement sur cet aspect. La figure 5.15 montre que la variation relative de susceptibilité nématique décroît à déformation donnée quand la température augmente de 26 à 76 K, ce qui est cohérent avec l'éloignement de la phase nématique, comme dans BFA0.

Comme pour BFA0, l'interprétation pertinente de la figure 5.15 nécessite d'évoquer la conversion de ϵ_{xx}^{nom} vers $\epsilon_{B_{2g}}$. Comme C_{66} se ramollit significativement entre les hautes et les basses températures, le ratio entre ces deux déformations dépend de la température. Cependant, cet effet de ramollissement est moindre dans BFA7 que dans BFA0 [77], il est notamment moins abrupt proche de T_s . Pour un composé légèrement surdopé (à 8,4 % pour la référence [77], de $T_c = 20\text{ K}$), la valeur minimale de C_{66} à T_c , correspond à 75 % de sa valeur à 300 K. Pour un composé légèrement sous-dopé (à 6,0 % pour la référence [77], de $T_c = 22\text{ K}$ et $T_s = 37\text{ K}$), le ratio entre les valeurs à T_s et à 300 K est de 30 %. En considérant que mon échantillon est intermédiaire entre les deux dopages, j'estime que la valeur de C_{66} à 9 et 26 K est de l'ordre de 60 % de celle à 76 K. Je rappelle que pour BFA0, $C_{66}(145\text{ K}) \approx 0,3 C_{66}(188\text{ K})$. Ainsi, l'effet de $\epsilon_{B_{2g}}$, même s'il tend à rapprocher les points de variation relative aux différentes températures dans BFA7, est relativement faible par rapport à BFA0, pour une variation de température équivalente.

Au-delà de la diminution de χ_{nem} , la perte d'intensité du pic supraconducteur peut être interprétée selon deux phénomènes. Ces deux explications reposent sur l'existence d'un couplage entre la nématicité et la supraconductivité et sont des conséquences de la diminution de χ_{nem} , mais elles diffèrent dans l'interprétation faite du mode supraconducteur observé en spectroscopie Raman.

Dans la première explication, cette diminution d'intensité est liée à la diminution de T_c sous déformation. Une telle diminution a été observée expérimentalement en transport [175]. Le pic de paires brisées émerge sous T_c en augmentant d'intensité à mesure que T diminue

jusqu'à 0 K. Si T_c diminue sous déformation, on s'attend donc réciproquement à ce que l'intensité du pic de paires brisées décroisse en augmentant la déformation à température fixée, comme on se rapproche de fait de T_c . La seconde explication possible suppose que le mode Raman supraconducteur observé expérimentalement ne correspond pas à un pic de paires brisées habituel, mais à un mode de résonance nématique (voir la section 3.4.2 au chapitre 3). L'intensité de ce mode est, comme le pic quasi élastique, directement liée aux fluctuations nématiques, donc leur diminution sous déformation induit la disparition progressive du mode de résonance nématique. Les études Raman antérieures dans Co-Ba122 [80] ont montré la possibilité d'assignation du mode supraconducteur à un mode de résonance nématique, mais cette attribution est moins évidente que dans d'autres FeSC.

Concernant mes résultats, j'estime que l'explication par la chute de T_c n'est probablement pas suffisante pour expliquer la disparition du mode supraconducteur. Une première justification est que pour un échantillon de dopage 7 %, la T_c que j'atteins en compression à -4 ‰ est supérieure à 13 K [175]. À moins d'avoir singulièrement sous-estimé l'échauffement, et que celui-ci vaut plutôt 3 que 1 K/mW, cette T_c minimale est supérieure à la température de l'échantillon. Ensuite, de façon plus subtile, la forme même du signal à 9 K sous forte déformation est assez différente d'une allure de Drude : ceci montre qu'on n'atteint pas l'état normal même à forte déformation. En particulier, pour toute déformation, une rupture brusque de pente est présente vers 40 cm^{-1} , avec un signal linéaire entre 25 et 40 cm^{-1} . Enfin, l'aire du pic supraconducteur décroît significativement, même à petite déformation (cela est visible sur la figure 5.14, et je le montre plus précisément en figure 5.16) : en particulier, la décroissance de l'aire du pic est linéaire avec la déformation, alors que le mode supraconducteur s'active sous T_c sans contrainte de façon significativement non linéaire [44].

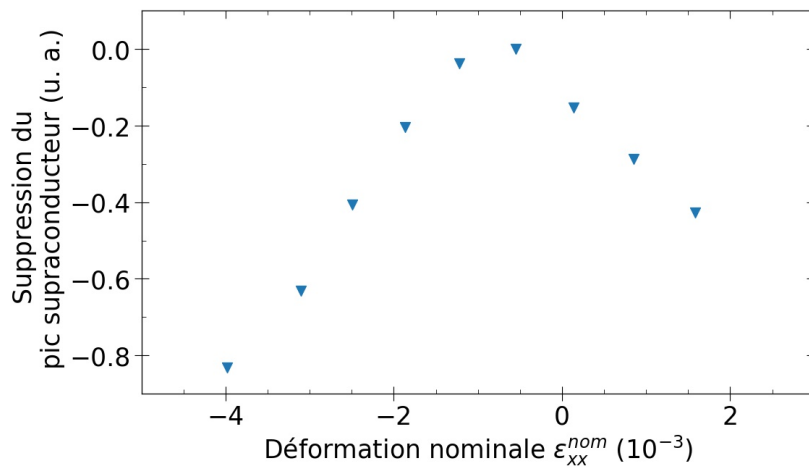


FIGURE 5.16 – Dépendance en déformation de l'aire intégrée du pic supraconducteur dans BFA7 à 9 K. La grandeur représentée sur la figure est l'intégrale entre 40 et 160 cm^{-1} de la différence entre la réponse Raman à ϵ et celle de référence au point neutre (considéré à $-0,6$ ‰) : $\int_{40}^{160} (\chi''(\omega, \epsilon) - \chi''(\omega, \epsilon = 0)) d\omega$. Les énergies 40 et 160 cm^{-1} sont choisies comme celles encadrant le pic supraconducteur.

Ainsi, même si un effet additionnel de diminution de la T_c est possiblement présent, notamment si le mode observé est une combinaison du pic de paires brisées et du mode de résonance nématique, j'estime que la diminution du pic supraconducteur sous déformation est cohérente avec son interprétation comme un mode de résonance nématique.

5.3.3 Évolution du couplage némato-élastique avec le dopage

5.3.3.1 Intérêts de la comparaison des deux échantillons

J'ai montré un effet clair de diminution de la susceptibilité nématique sous déformation dans les deux échantillons, correspondant à deux dopages clés de Co-Ba122 : le composé pur, non supraconducteur, et un composé à 7 %, proche du dopage optimal. Je rappelle que la susceptibilité nématique dépend quadratiquement de $\epsilon_{B_{2g}}$, avec un préfacteur valant $-3u\lambda^2\chi_0^3$ (équation (5.22)). u est le préfacteur du terme quartique en ϕ dans le développement de Landau, λ est le terme de couplage némato-élastique, et χ_0 est la susceptibilité nématique à déformation nulle. Plus précisément, ce facteur entre directement dans la dépendance quadratique de la variation relative de susceptibilité :

$$\frac{\delta\chi_{nem}}{\chi_{nem,0}} = -3u\lambda^2\chi_0^3\epsilon_{B_{2g}}^2 \quad (5.24)$$

Ainsi, la chute de susceptibilité nématique dans les deux échantillons est liée à la valeur que prend le préfacteur $-3u\lambda^2\chi_0^3$ respectivement dans chacun des deux échantillons. Leur comparaison va me permettre de discuter de l'évolution en dopage du couplage némato-élastique λ , qui influe sur le lien entre nématicité et supraconductivité.

En effet, dans les FeSC en général, et Co-Ba122 en particulier, il est prévu théoriquement que, dans le voisinage d'un point critique quantique nématique, les fluctuations nématiques influent l'ordre supraconducteur en augmentant T_c [149]. Mais si le couplage entre les électrons et le réseau, représenté par λ , est trop important, cette exacerbation de l'ordre supraconducteur est limitée [142]. L'enjeu est donc de voir si λ diminue en s'approchant du point critique. Cette question est largement débattue. Les mesures de coefficient élastique [29] et de spectroscopie Raman [78] indiquent une dépendance faible de λ en dopage. En revanche, les mesures d'élastocalorimétrie [113] permettent à leurs auteurices d'affirmer que λ décroît significativement avec le dopage, et devient ainsi relativement faible proche du point critique. Mes mesures sur les deux échantillons à deux dopages différents me permettent d'apporter un nouvel élément de réponse à cette question. Avant d'analyser mes résultats dans le cadre de cette discussion, je détaille plus précisément ce que chaque technique expérimentale mesure, pour poser plus clairement le débat.

Dans la suite, je note χ_0 la susceptibilité nématique à déformation nulle. Les mesures d'élasticité [29] extraient $\lambda^2\chi_0/C_0$, avec λ le coefficient de couplage némato-structural et C_0 le coefficient élastique à haute température. La spectroscopie Raman (sans contrainte uniaxiale) donne $|\gamma|^2\chi_0$, avec γ l'amplitude du vertex Raman dans la symétrie nématique. Enfin, le lien entre le coefficient d'élastorésistivité $2m_{66}$ et la susceptibilité nématique χ_0 est [221] :

$$2m_{66} = k\lambda\chi_0 \quad (5.25)$$

avec k le coefficient de couplage némato-transport, défini par $\eta = k\phi$, avec η l'anisotropie de résistivité et ϕ le paramètre d'ordre nématique. Je rappelle également que l'on définit le coefficient a par $\chi_0 = (a(T-T_0))^{-1}$; il apparaît donc dans les trois techniques expérimentales.

C_0 varie peu pour x allant de 0 à 8,4 % (il varie entre 35 et 38 GPa) [77]. $T_s - T_0$ varie également peu en dopage (figure 2.8) [29]. Or, $T_s - T_0 = \frac{\lambda^2}{aC_0}$, donc λ^2/a varie peu en dopage.

À l'inverse, en élastorésistivité $k\lambda/a$ a une forte dépendance en dopage (multiplié par 5 entre $x = 0$ et 6 %) [221]¹⁴.

Je suppose de plus que a varie peu en dopage : cette hypothèse est vraisemblable, vu par exemple que la susceptibilité Raman à 300 K $|\gamma|^2\chi_0(300\text{ K}) \approx \frac{|\gamma|^2}{300a}$ varie peu avec le dopage^{15, 16}.

De ces observations, on peut conclure que k varie fortement, et λ plus faiblement avec le dopage. Cette conclusion permet d'expliquer qualitativement la forte augmentation de $2m_{66}$ avec le dopage le long de la ligne de T_s [54], alors que sur ce même chemin les variations de $\lambda^2\chi/C_0$ et $\gamma\chi$, telles que mesurées via C et en spectroscopie Raman, sont limitées, voire décroissantes. Les résultats récents d'élastocalorimétrie [113] contredisent cependant cette conclusion : leurs auteurices affirment déduire de leurs résultats expérimentaux et de l'analyse des résultats des autres techniques que λ décroît fortement (d'un facteur 5) entre $x = 0$ et le dopage optimal.

5.3.3.2 Comparaison des susceptibilité nématiques entre BFA0 et BFA7

J'ai précédemment calculé χ_{nem} et $\delta\chi_{nem}/\chi_{nem,0}$ pour mes deux échantillons BFA0 et BFA7. Cependant, dans le premier cas j'ai évalué une susceptibilité $\tilde{\chi}_{nem}$ tronquée sous 12 cm^{-1} , du fait des difficultés d'extrapolation des spectres à basse énergie ; dans le second cas, l'extrapolation était plus aisée, et j'ai évalué une susceptibilité complète. Ainsi, la comparaison directe des figures 5.12 et 5.15 n'est pas pertinente.

Je réévalue χ_{nem} dans BFA7 en extrapolant les spectres uniquement jusqu'à 12 cm^{-1} . Ce cadre d'analyse n'est pas non plus optimal, car le signal sous 12 cm^{-1} concentre de fortes variations de la susceptibilité nématique dans BFA7, surtout dans l'état normal. Sur la figure 5.17, je représente la variation relative de susceptibilité nématique dans BFA0 et BFA7 aux différentes températures en fonction du carré de la déformation¹⁷, afin de comparer $-3u\lambda^2\chi_0^3$ dans les deux échantillons.

Je considère d'abord le graphique de gauche de la figure 5.17, présentant les résultats selon la déformation nominale ϵ_{xx}^{nom} . La pente aux petites compressions (entre 0 et -2%) de la variation relative de susceptibilité à 26 K dans BFA7 est environ 2,5 fois plus faible que celle à 145 K dans BFA0. Ce rapport atteint environ 5 entre BFA0 à 145 K et BFA7 à 9 K.

Pour discuter de façon plus pertinente du préfacteur quadratique, il est cependant plus pertinent de considérer $\epsilon_{B_{2g}}$ (qui rentre dans l'équation (5.22)) que ϵ_{xx}^{nom} . Les simulations numériques présentées en annexe A.2 montrent que le ratio $\epsilon_{B_{2g}}/\epsilon_{xx}^{nom}$ vaut 81 % dans BFA0 à 145 K. J'ai effectué des simulations similaires pour BFA7 à 9 et 26 K, et j'obtiens un ratio $\epsilon_{B_{2g}}/\epsilon_{xx}^{nom}$ de 61 % à ces températures pour cet échantillon¹⁸. Ainsi, comme il apparaît sur le graphique de droite de la figure 5.17, les points de BFA0 et BFA7 sont davantage rapprochés

14. T_0 est obtenue via la spectroscopie Raman ou la mesure de C en considérant un comportement purement de type Curie–Weiss pour la dépendance en température de la susceptibilité. Les mesures d'élastorésistivité [54, 221], qui ont plus de points expérimentaux en température que la spectroscopie Raman, indiqueraient une déviation du comportement Curie–Weiss pour les dopages proches de l'optimal, qui pourrait être liée au voisinage du point critique quantique. Cette déviation explique qu'avec ces mesures, on obtient une augmentation de la susceptibilité avec le dopage le long de la ligne de T_s . Si cette déviation est réelle, alors utiliser $T_s - T_0$ est limité pour évaluer λ .

15. Le vertex Raman γ dépend notamment de la dispersion électronique au niveau de Fermi, il peut donc varier avec le dopage, mais cette variation est probablement faible.

16. Cette faible variation de la susceptibilité Raman est rapportée par Gallais et collaborateurs [78]. Pour mes expériences, le signal Raman peut varier selon l'échantillon et la température, mais pour des raisons majoritairement extrinsèques (voir la note 12 et le texte correspondant).

17. Pour alléger la figure, je ne représente que les points en compression.

18. Pour simuler BFA7 sous contrainte, j'ai pris comme valeurs pour les coefficients élastiques C_{11} , $C_{12} = C_{13}$, C_{33} , $C_{44} = C_{55}$, C_{66} respectivement 112, 28, 80, 43 et 20 GPa [77].

en considérant $\epsilon_{B_{2g}}$. Pour ce graphique, j'ai limité la fenêtre aux faibles compressions, pour considérer la susceptibilité à l'origine. De plus, mes simulations ne prennent pas en compte le durcissement de C_{66} sous forte déformation.

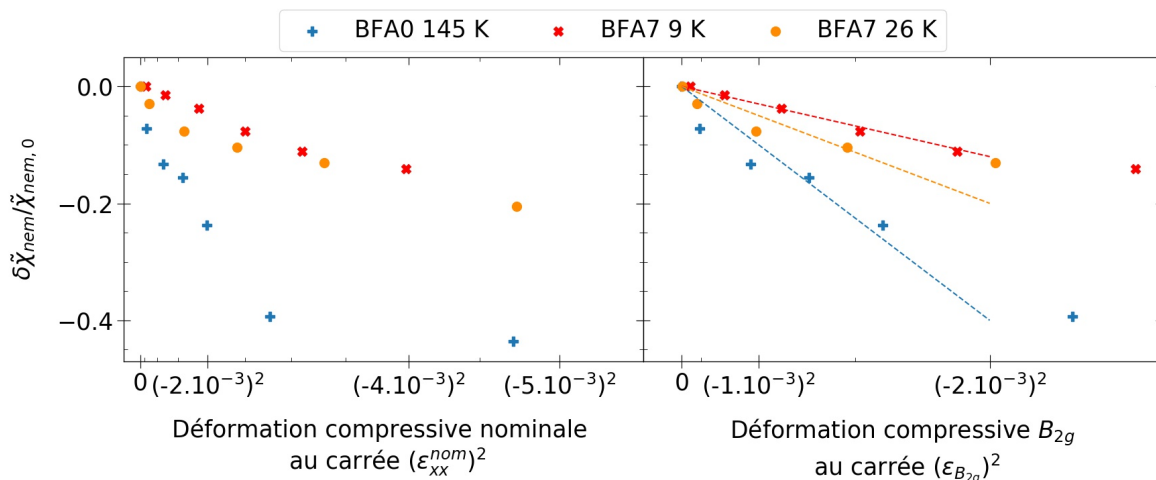


FIGURE 5.17 – Variations de la susceptibilité nématique calculée entre 12 et 400 cm^{-1} dans BFA0 à 145 K et BFA7 à 9 et 26 K selon la déformation compressive (prise au carré) (déformation nominale à gauche, déformation B_{2g} à droite). Les lignes tiretées sont des ajustements quadratiques à la main des données aux couleurs correspondantes, pour $|\epsilon_{B_{2g}}| < 2,0\%$.

En considérant $\epsilon_{B_{2g}}$, les pentes sont beaucoup plus proches pour BFA0 et BFA7. Le ratio des pentes à faible déformation entre BFA0 à 145 K et BFA7 à 26 K ne vaut plus que 2.

Je déduis donc de mes résultats que le préfacteur $u\lambda^2\chi_0^3$ est similaire entre BFA0 proche de T_s et BFA7 dans l'état normal à 26 K, leur ratio ne dépassant pas 2. Plus précisément, χ_0 est similaire dans les deux cas, à un facteur 1,5–2 près [78]. L'accord entre mon résultat et celui d'élastocalorimétrie [113] n'est possible qu'en supposant que u admet une dépendance significative en dopage. En effet, si je considère que χ_0 ne varie pas entre $x = 0$ et 7 %, et si parallèlement λ diminue d'un facteur 5 [113], alors $\lambda^2\chi_0^3$ diminue d'un facteur 25. Donc u doit augmenter d'un facteur environ 10–15 pour retrouver le ratio des pentes. Ce facteur d'augmentation de u est encore plus grand si je considère que χ_0 est divisé par 2 entre $x = 0$ et 7 %, ce qui est a priori plus raisonnable. Cette forte dépendance de u avec le dopage n'est pas encore théoriquement documentée. Mes résultats peuvent également indiquer une dépendance plus faible de λ avec le dopage que conclue dans la référence [113], ce que j'estime comme davantage probable. Des calculs microscopiques pour analyser le comportement théorique de u apparaissent nécessaires pour vérifier la pertinence de sa dépendance en dopage, et donner un nouvel élément de réponse dans ce débat.

5.4 Conclusions et perspectives de la spectroscopie élasto-Raman dans les supraconducteurs à base de fer

Ce chapitre a rendu compte des résultats de spectroscopie élasto-Raman effectuée sur deux échantillons de $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$, notés BFA0 et BFA7, avec respectivement $x = 0$ et 7 %.

J'ai dans un premier temps détaillé l'analyse du mode du phonon de l'arsenic dans BFA0. En effet, l'intensité de ce mode se développant sous T_s peut servir de grandeur intermédiaire pour le paramètre d'ordre nématique (en notant plus précisément $|\phi_{nem}^{As}|$ la racine

carrée de l'intensité du mode). À basse température, profondément dans la phase nématorthorhombique, la sonde Raman de ce phonon dans les configurations de polarisations parallèles est sensible à la présence de domaines à faible déformation : elle peut donc être utilisée pour le suivi de l'orientation de ces domaines sous déformation. Autour de T_s , j'ai utilisé les polarisations croisées de symétrie B_{2g} pour suivre l'évolution de ϕ_{nem}^{As} , à la fois en déformation pour les températures fixées inférieures ou supérieures à T_s , et en température sous déformation fixée. Ces résultats donnent des valeurs qualitatives de $\frac{\partial \phi_{nem}^{As}}{\partial \epsilon}(T) \propto \chi_{nem}(T)$, et la dépendance en température à déformation fixée est cohérente avec le comportement d'un paramètre d'ordre de type Ising. Ce dernier résultat rend discutable l'interprétation magnétique de l'apparition de ce mode.

Je me suis ensuite focalisé sur le continuum électronique, en suivant son évolution sous déformation dans les deux échantillons. J'obtiens un effet clair de suppression du poids spectral à basse énergie, interprété comme une diminution de la susceptibilité nématique, due à la suppression des fluctuations nématiques sous déformation. L'analyse quantitative est complexifiée par différents obstacles expérimentaux (présence possible d'une intensité extrinsèque, difficultés d'extrapolation de la réponse Raman à basse énergie), mais j'arrive néanmoins à plusieurs conclusions. Proche de T_s et à faible déformation, le comportement de la susceptibilité est descriptible avec une loi quadratique, en accord avec la prédiction théorique. La comparaison des susceptibilités des deux échantillons indique que le couplage némato-élastique ne varie probablement que peu avec le dopage. L'effet de la déformation sur le mode supraconducteur s'interprète comme un effet de la suppression des fluctuations nématiques dans cette phase, qui entraîne également la chute de T_c . J'ai également noté un effet sensible mais faible de la déformation sur le gap SDW, montrant le couplage entre nématicité et magnétisme.

Plusieurs perspectives s'ouvrent face à ces différents résultats. La première correspond à l'enjeu d'harmoniser les interprétations de différentes techniques expérimentales. En effet, plusieurs techniques permettent d'accéder à la susceptibilité nématique, mais avec des préfacteurs dépendant de chacune, ce qui amène des discordances dans les interprétations. Un effort d'interprétation théorique des résultats expérimentaux est encore nécessaire pour harmoniser les interprétations de ces techniques, tout en profitant de leurs singularités pour accéder à différentes informations sur le matériau. Par exemple, le comportement en dopage du coefficient de couplage némato-élastique λ est sujet à débat [113].

Également, j'ai appliqué dans mes expériences une contrainte selon la direction de la distortion orthorhombique. La composante antisymétrique de la déformation correspondante est de la même symétrie B_{2g} que le paramètre d'ordre nématique. Une autre possibilité est l'application d'une contrainte transverse, à 45° de la direction de distortion spontanée. Dans ce cas, la déformation induite est de symétrie B_{1g} . On s'attend à ce que les effets en spectroscopie élasto-Raman soient plus spectaculaires en déformation B_{2g} , car la contrainte se couple directement au paramètre d'ordre nématique, ce qui induit son activation et la suppression des fluctuations. Cependant, plusieurs expériences notamment en transport [112, 269] ont montré des effets notables de la contrainte B_{1g} , notamment sur les propriétés liées à la criticalité nématique. Ainsi, il serait intéressant de poursuivre l'exploration de la spectroscopie élasto-Raman dans Co-Ba122 en appliquant cette contrainte transverse pour ajuster finement les propriétés à travers le point critique quantique nématique.

Co-Ba122 apparaît comme un matériau archétypal des FeSC : abondamment étudié dès sa découverte, c'est également sur ce représentant de la famille qu'a été obtenue la majorité des résultats expérimentaux récents sous déformation uniaxiale. Il sera essentiel d'étudier par spectroscopie élasto-Raman d'autres FeSC. Deux pistes intéressantes dans un premier temps me semblent être FeSe et $(\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x)\text{Fe}_2\text{As}_2$ (K-Ba122). Dans FeSe, l'absence d'ordre magnétique permet indirectement de préciser son impact sur la nématicité et la supracon-

ductivité. Ces deux matériaux et Co-Ba122 présentent des comportements différents de T_c avec le dopage : le dôme supraconducteur est relativement plat dans $FeSe_{1-x}S_x$, avec une T_c maximale ne dépassant pas 10 K ; à l'inverse, la T_c maximale est plus élevée dans K-Ba122 (37 K) que dans Co-Ba122 (25 K). À la lumière des résultats théoriques sur le lien entre nématicité et supraconductivité [142, 148], ces différences dans l'exaltation de la T_c sous dopage pourraient être la marque de différences dans les propriétés du coefficient de couplage némato-élastique λ . Cette interprétation pourrait être discutée à partir de spectres élasto-Raman.

Également dans K-Ba122, les spectres Raman expérimentaux dans la phase supraconductrice ont été interprétés comme révélateurs de la compétition entre un appariement supraconducteur dominant de symétrie s et un appariement sous-dominant de symétrie d [28]. Ce dernier est indiqué par la présence de deux modes d'énergies inférieures à celle du pic de paires brisées, interprétés dans la référence [28] comme des modes de Bardasis–Schrieffer, correspondant aux oscillations du paramètre d'ordre dominant provoquées par les interactions d . On s'attend à ce que la réponse à la déformation uniaxiale soit différente entre les modes de symétries s et d : sonder ce matériau par spectroscopie élasto-Raman permettrait ainsi de valider cette interprétation de l'appariement dans ce FeSC.

Chapitre 6

Dichotomie orbitalaire des propriétés de liquide de Fermi de Sr_2RuO_4 révélée par spectroscopie Raman

“I will tell you three things. If I tell them to you, and they come true, then will you believe me?”

“Who’s that?”

“Think of me as a friend.”

Mark Frost et David Lynch, *Twin Peaks: Episode 8* (1990)

Ce chapitre est consacré à l’étude du caractère de liquide de Fermi de Sr_2RuO_4 révélé par la spectroscopie Raman. Après une présentation des conditions expérimentales en section 6.1, et une étude succincte en section 6.2 des modes de phonons sondés, je présente en section 6.3 les spectres du continuum électronique, que j’analyse par la méthode de la fonction mémoire. Cette analyse me permet d’obtenir les paramètres des quasiparticules : taux de relaxation et renormalisation de masse. Par une interprétation orbitalaire de la résolution en symétrie des spectres, que je détaille en section 6.4, je conclus sur le degré relatif de corrélation des quasiparticules originant des orbitales t_{2g} . Mes résultats s’inscrivent dans la représentation de Sr_2RuO_4 comme un métal de Hund présentant une forte différenciation orbitalaire.

Les résultats présentés dans ce chapitre ont fait l’objet d’une publication [210].

Sommaire

6.1 Échantillons et conditions expérimentales	156
6.1.1 Échantillons sondés	156
6.1.2 Conditions expérimentales	158
6.1.3 Détermination de l’échauffement laser	159
6.2 Phonons	159
6.3 Continuum électronique : dynamique des quasiparticules et propriétés de liquide de Fermi	162
6.3.1 Réponse électronique dans le plan	162
6.3.2 Réponse électronique hors plan	165
6.3.3 Différenciation B_{1g} / B_{2g} des paramètres de liquide de Fermi	166
6.3.3.1 Extrapolation à basse énergie des spectres	166
6.3.3.2 Taux de relaxation	168

	Dépendance en énergie	168
	Dépendance en température du taux de relaxation statique	169
	Comportement biquadratique et rapport d'échelle	171
	Comparaison avec les résultats de conductivité optique	171
6.3.3.3	Masse effective	173
6.3.3.4	Bilan sur la différentiation B_{1g}/B_{2g}	175
6.3.4	Anisotropie plan – hors plan des paramètres de liquide de Fermi	175
6.4	Interprétation orbitale de la différentiation B_{1g}/B_{2g}	177
6.4.1	Bandes et orbitales	177
6.4.2	Calcul des vertex Raman	178
6.4.2.1	Modèle de liaisons fortes	178
6.4.2.2	Approximation de la masse effective	179
6.4.3	Première discussion qualitative	179
6.4.4	Poids des vertex orbitaux le long de la surface de Fermi	180
6.4.5	Interprétation orbitale des résultats	182
6.4.6	Comparaison à l'état de l'art	182
6.4.7	Différentiation magnétique	184
6.5	Conclusions et perspectives de la spectroscopie Raman électro-	
	nique de Sr_2RuO_4	184

6.1 Échantillons et conditions expérimentales

6.1.1 Échantillons sondés

Les données expérimentales présentées dans ce chapitre ont été obtenues en sondant deux échantillons de Sr_2RuO_4 , nommés dans la suite SRO-A et SRO-B. Ces deux échantillons sont issus du même monocristal synthétisé par mes collaborateurs Chanchal Sow et Yoshiteru Maeno à l'Université de Kyoto, selon la méthode décrite en référence [25]. Dans ce cristal, $T_c \approx 1,33$ K, par une mesure de susceptibilité AC effectuée par Chanchal Sow et Yoshiteru Maeno. Des photos au microscope des échantillons sont présentées en figure 6.1.

L'échantillon SRO-A présente une face (a, b) . Je l'ai clivé à la lame à partir du monocristal. Il n'a pas été nécessaire après clivage de le soumettre à des traitements particuliers pour améliorer son état de surface.

L'échantillon SRO-B présente une face (\tilde{a}, c) . \tilde{a} désigne un axe intermédiaire entre a et b , avec $(\tilde{a}, a) \approx 30\text{--}40^\circ$. Il a été découpé à la scie à fil à partir du monocristal par mes collaboratrices Anne Forget et Dorothee Colson au CEA-Saclay. Après découpage, il a été nécessaire de polir la surface à la pâte diamantée (avec une taille minimale de grains de $0,1 \mu\text{m}$), celle-ci étant trop rugueuse après le passage de la scie pour effectuer la spectroscopie. Au cours du polissage, l'échantillon découpé au CEA-Saclay s'est clivé selon la direction \tilde{a} , l'un des deux morceaux obtenus a été choisi pour SRO-B. Il présente une surface quasi rectangulaire de dimensions $3 \times 1 \text{ mm}^2$.

Pour orienter les échantillons (c'est-à-dire connaître les axes directeurs de la surface ainsi que les directions précises de ces axes), j'ai utilisé le diffractomètre de rayons X 4-cercles géré par Benoît Baptiste sur la plateforme de l'IMPMC de Sorbonne Université.

De par leur géométrie, les deux échantillons permettent d'accéder à différentes symétries μ du cristal. SRO-A permet de sonder les symétries pures¹ B_{1g} et B_{2g} , ainsi que les symétries

1. Dans ce chapitre, je néglige la contribution A_{2g} théoriquement présente dans les configurations de polarisation perpendiculaires dans le plan (ab) , qui sondent formellement les symétries mixtes $A_{2g} + B_{1g}$ et $A_{2g} + B_{2g}$. Je discute de l'intensité de la composante A_{2g} en section 6.3.1.

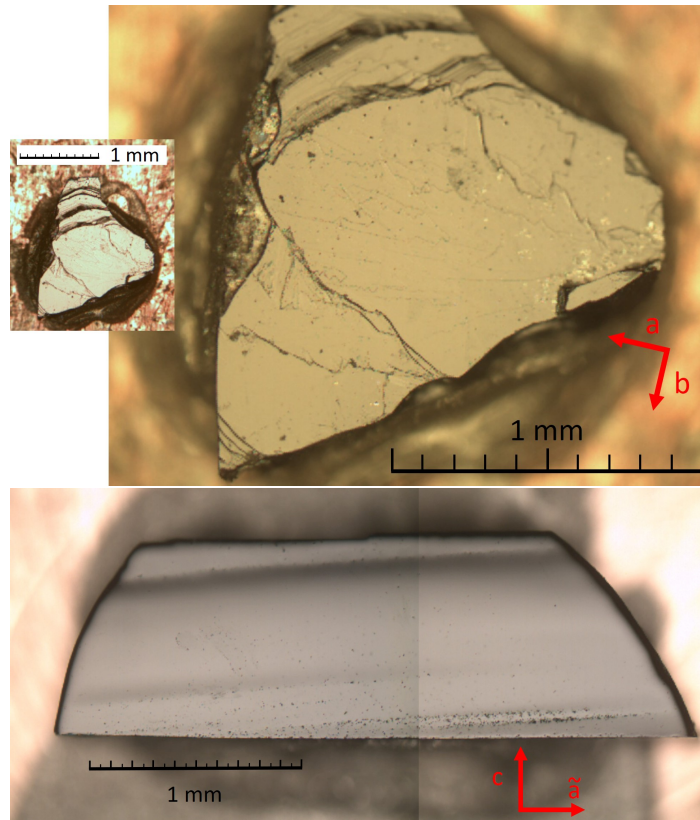


FIGURE 6.1 – Photographies au microscope des échantillons SRO-A (haut) et SRO-B (bas), avec précision des axes cristallographiques en surface.

mixtes $A_{1g} + B_{1g}$ et $A_{1g} + B_{2g}$. Pour sonder ces quatre symétries, les configurations de polarisations sont respectivement selon les directions : $(a+b, a-b)$, (a, b) , (a, a) et $(a+b, a+b)$. SRO-B permet de sonder les symétries pures E_g et A_{1g} , ainsi que la symétrie mixte $A_{1g} + B_{1g} + B_{2g}$, avec les configurations de polarisations respectivement : (\tilde{a}, c) , (c, c) et (\tilde{a}, \tilde{a}) . En sondant la symétrie pure A_{1g} via SRO-B, on accède plus précisément au coefficient hors plan² $\gamma_{33}^{A_{1g}}$ du tenseur Raman correspondant à la représentation A_{1g} ; pour les symétries mixtes $A_{1g} + B_{1g}$ et $A_{1g} + B_{2g}$ sondées avec SRO-A, ainsi que pour la symétrie mixte $A_{1g} + B_{1g} + B_{2g}$ sondée avec SRO-B, il s'agit en revanche du coefficient planaire $\gamma_{11}^{A_{1g}} = \gamma_{22}^{A_{1g}}$. Comme ces deux coefficients $\gamma_{33}^{A_{1g}}$ et $\gamma_{11}^{A_{1g}}$ ne correspondent pas a priori à des propriétés identiques des excitations sondées, j'écrirai dans la suite $A_{1g}(c)$ pour désigner la symétrie pure A_{1g} sondée dans la configuration de polarisations (c, c) sur SRO-B, et A_{1g} sans précision dans le cas planaire.

De plus, la direction de propagation des photons perpendiculairement à la surface sondée en géométrie de pseudorétrodiffusion n'est pas la même dans les deux échantillons : selon c pour SRO-A, selon \tilde{b} (axe perpendiculaire à \tilde{a} dans le plan (a, b)) pour SRO-B. La direction de propagation des photons n'influe pas sur la symétrie sondée, mais peut tout de même modifier les propriétés physiques des quasiparticules sondées si le vecteur d'onde transféré dans le matériau n'est pas négligeable.

Les tableaux 6.1 et 6.2 résument les différentes symétries accessibles dans les deux échantillons et les configurations géométriques correspondantes. Il définit également les notations

2. J'utilise ici la notation γ_{kl}^μ pour représenter le coefficient de la k -ième ligne et l -ième colonne du tenseur Raman dans la symétrie μ .

utilisées dans la suite pour faire référence aux différentes géométries.

Comme en spectroscopie Raman les directions de polarisation ont fondamentalement plus d'importance que celles de propagation, je qualifierai les quatre configurations avec propagation selon c sondées avec SRO-A, ainsi que la configuration $A_{1g} + B_{1g} + B_{2g} - \tilde{b}$ sondée avec SRO-B de configurations « dans le plan », ou « planaires », car les polarisations appartiennent aux plans RuO_2 . À l'inverse, je qualifierai les deux autres configurations sondées avec SRO-B, de « hors plan » : elles ont une polarisation au moins selon c .

Échantillon	Configuration (Notation de Porto)	Symétries sondées	Notation
SRO-A	$c(a+b, a-b)c$	B_{1g}	B_{1g}
	$c(a, b)c$	B_{2g}	B_{2g}
	$c(a, a)c$	$A_{1g} + B_{1g}$	$A_{1g} + B_{1g} - c$
	$c(a+b, a+b)c$	$A_{1g} + B_{2g}$	$A_{1g} + B_{2g} - c$
SRO-B	$\tilde{b}(c, c)\tilde{b}$	$A_{1g}(c)$	$A_{1g}(c) - \tilde{b}$
	$\tilde{b}(\tilde{a}, c)\tilde{b}$	E_g	E_g
	$\tilde{b}(\tilde{a}, \tilde{a})\tilde{b}$	$A_{1g} + B_{1g} + B_{2g}$	$A_{1g} + B_{1g} + B_{2g} - \tilde{b}$

TABLEAU 6.1 – Tableau récapitulatif des symétries sondées et des configurations géométriques des faisceaux lumineux et de l'échantillon correspondantes. La notation utilisée est « symétrie sondée », ou « symétrie sondée » - « direction de propagation des photons » en cas de trop grande ambiguïté.

6.1.2 Conditions expérimentales

Trois campagnes de mesures ont fourni les spectres présentés dans ce chapitre, qui diffèrent par certains paramètres et conditions expérimentaux.

La première campagne a été effectuée sur le dispositif de spectroscopie Raman 1, avec le spectromètre en configuration triple, sur l'échantillon SRO-A. J'ai sondé l'échantillon selon les quatre symétries accessibles, dans une gamme de température de 7 à 206 K, sur une plage d'énergie³ de 1 à 71 meV. J'ai principalement utilisé un laser émettant à 532 nm (vert), mais j'ai acquis quelques spectres supplémentaires à 488 nm (bleu) et 660 nm (rouge).

La deuxième campagne a été effectuée sur le dispositif de spectroscopie Raman 2, avec le spectromètre en configuration simple, sur l'échantillon SRO-A. J'ai acquis des spectres dans une plage d'énergie allant jusqu'à 500 meV environ dans deux symétries ($A_{1g} + B_{2g} - c$ et B_{1g}), entre 15 et 200 K, pour quatre longueurs d'onde de laser incident : 488, 514, 532 et 647 nm.

La troisième campagne a été effectuée sur le dispositif de spectroscopie Raman 1, avec le spectromètre en configuration triple, sur l'échantillon SRO-B. Les spectres ont été acquis entre 7 et 200 K, avec un laser émettant à 532 nm, sur une plage d'énergie similaire à la première campagne, dans les trois symétries accessibles.

Je présente dans ce chapitre essentiellement les spectres obtenus à 532 nm sous 71 meV. Les spectres obtenus à d'autres longueurs d'onde et à haute énergie permettent de discuter la validité des hypothèses à la base de l'analyse des résultats. Ils sont présentés, ainsi que la discussion sur la validité des hypothèses, en annexe B.1.

Pour l'analyse des spectres, j'ignore la différence de géométrie entre les deux dispositifs expérimentaux, en considérant dans tous les cas une géométrie de pseudorétrodiffusion :

3. Dans ce chapitre, pour faciliter la comparaison avec d'autres techniques expérimentales, je choisis d'exprimer les déplacements Raman en meV. Je rappelle la conversion : $1 \text{ meV} = 8,06 \text{ cm}^{-1}$.

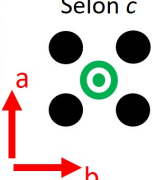
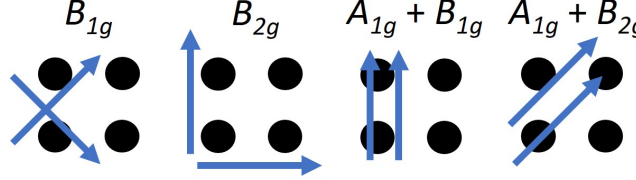
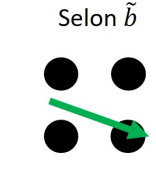
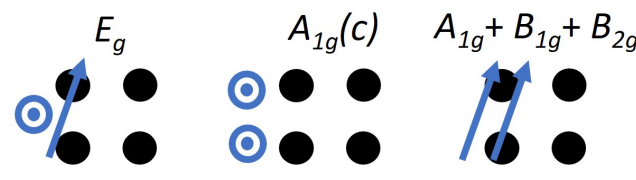
Échantillon	Propagation k_i	Polarisations (e_i, e_s)
SRO-A	Selon c 	
SRO-B	Selon \tilde{b} 	

TABLEAU 6.2 – Définition des directions de propagation (rouge) et de polarisation (bleu) des photons dans les sept symétries sondées, pour les deux échantillons. Les points noirs représentent le réseau plan carré des ions ruthénium sur une face (a, b).

directions de polarisations contenues dans le plan de la surface, direction de propagation des photons normale à la surface.

6.1.3 Détermination de l'échauffement laser

La connaissance de la température réelle sur l'échantillon est nécessaire pour calculer la réponse Raman χ'' via le facteur de Bose. Dans le cadre particulier de mon analyse des spectres de Sr_2RuO_4 dans le modèle de Drude étendu, elle permet également d'être précis sur les dépendances en température des paramètres de liquide de Fermi.

Je définis T_m la température mesurée par le capteur de température, fixé sur le même support en cuivre que l'échantillon à proximité de ce dernier (quelques cm). Pour un échantillon donné, l'échauffement dépend de la puissance P du faisceau incident⁴. Pour estimer l'échauffement, je compare en figure 6.2 des spectres d'intensité Raman obtenus à la même T_m de 10 K pour différentes P (2, 4 et 6 mW) et des spectres obtenus à la même P de 2 mW pour différentes T_m entre 9 et 17 K.

L'augmentation de P de 2 mW a le même effet sur les spectres que l'augmentation de T_m de 4 K, au bruit expérimental près. Je conclus sur un échauffement laser de 4 ± 1 K pour les spectres obtenus à 2 mW. Je considère que dans la gamme de température considérée dans le cœur de l'analyse (pour T_m entre 3 et 40 K), l'échauffement laser reste constant dans l'incertitude ± 1 K.

6.2 Phonons

L'essentiel de ce chapitre est consacré à l'étude du continuum électronique des spectres Raman de Sr_2RuO_4 , et de ce qu'il révèle du caractère de liquide de Fermi de ce matériau. Cependant, comme attendu avec cette technique expérimentale, les spectres Raman que j'ai obtenus présentent également des modes étroits, principalement d'origine phononique, dont il faut faire abstraction lorsqu'on souhaite se consacrer uniquement au continuum électronique. La diffusion Raman phononique dans Sr_2RuO_4 a été rapportée dans plusieurs articles [114,

4. Il dépend plus précisément de la puissance surfacique, mais je considère une taille de point laser focalisé sur l'échantillon constante durant toute l'expérience.

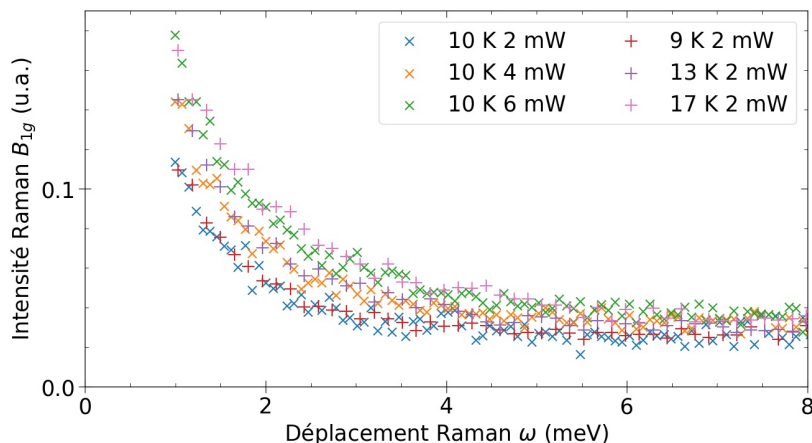


FIGURE 6.2 – Détermination de l'échauffement laser à partir de spectres B_{1g} à différentes températures mesurées et différentes puissance de faisceau incident. Les spectres ont été renormalisés entre eux par une constante multiplicative, afin de comparer des spectres obtenus à différentes puissances de faisceau incident.

220, 255, 256] ainsi que dans la thèse de Damien Stricker [244]. Dans cette partie, j'étudie concisément ces modes, en insistant notamment sur les vérifications et nouveautés qualitatives par rapport à l'état de l'art, sans pousser plus avant l'analyse physique quantitative.

La figure 6.3 présente les phonons visibles sur des spectres obtenus dans cinq configurations différentes, à 7 K. On pourra également se reporter à la figure 6.4 pour un zoom sur les modes se dégageant peu du continuum.

Pour la structure-type K_2NiF_4 , dans laquelle s'inscrit Sr_2RuO_4 , quatre modes de phonon sont actifs en spectroscopie Raman : deux modes A_{1g} et deux modes E_g [256]. Les deux modes A_{1g} correspondent aux vibrations de Sr et de l'oxygène apical selon la direction c ; les deux modes E_g correspondent aux vibrations de ces mêmes atomes selon la direction a .

Les deux modes A_{1g} que je note P1 et P2 ont été observés par les différents auteurs, respectivement centrés vers 25 et 68 meV. Un seul mode E_g , que je note P4, a été observé, centré vers 31 meV. P1 et P2 sont attribués respectivement à Sr et à l'oxygène apical, et P4 est attribué à l'oxygène apical.

J'observe P1, P2 et P4 aux énergies attendues. En E_g , j'observe également un mode peu intense centré vers 15 meV, qui pourrait correspondre au second mode E_g , que je nomme P3. Je n'observe aucun phonon dans les symétries B_{1g} et B_{2g} , comme attendu.

Certains phonons sont présents, fortement atténués, dans des configurations a priori interdites : P1 en B_{2g} et E_g , P2 en E_g (et possiblement en B_{1g} et B_{2g}), et P3 et P4 en $A_{1g}(c) - \tilde{b}$. Cela s'explique probablement comme des fuites dues à de légers désalignements des axes de polarisation ou à la géométrie qui n'est pas strictement en rétrodiffusion et qui induit pour SRO-A une composante des polarisations selon l'axe c non nulle.

Les allures des modes varient selon les configurations. P1 est symétrique en $A_{1g} + B_{1g} - c$ et en $A_{1g} + B_{2g} - c$ mais asymétrique en $A_{1g}(c) - \tilde{b}$ et $A_{1g} + B_{1g} + B_{2g} - \tilde{b}$. Cela semble cohérent avec les mesures de la référence [220]. Pour P2, j'observe une légère asymétrie dans toutes les configurations, mais comme le mode est en bord de la gamme spectrale, il est difficile d'affirmer ce point. P3 est trop peu intense pour distinguer une claire asymétrie. P4 est en revanche clairement asymétrique, ce qui ne ressort pas des études antérieures. Une forte asymétrie est la marque d'un couplage électron-phonon significatif. Dans le cas de P1, on observe un effet remarquable : l'asymétrie, donc le couplage électron-phonon, dépend de la direction de propagation du photon, donc vraisemblablement de la direction du vecteur

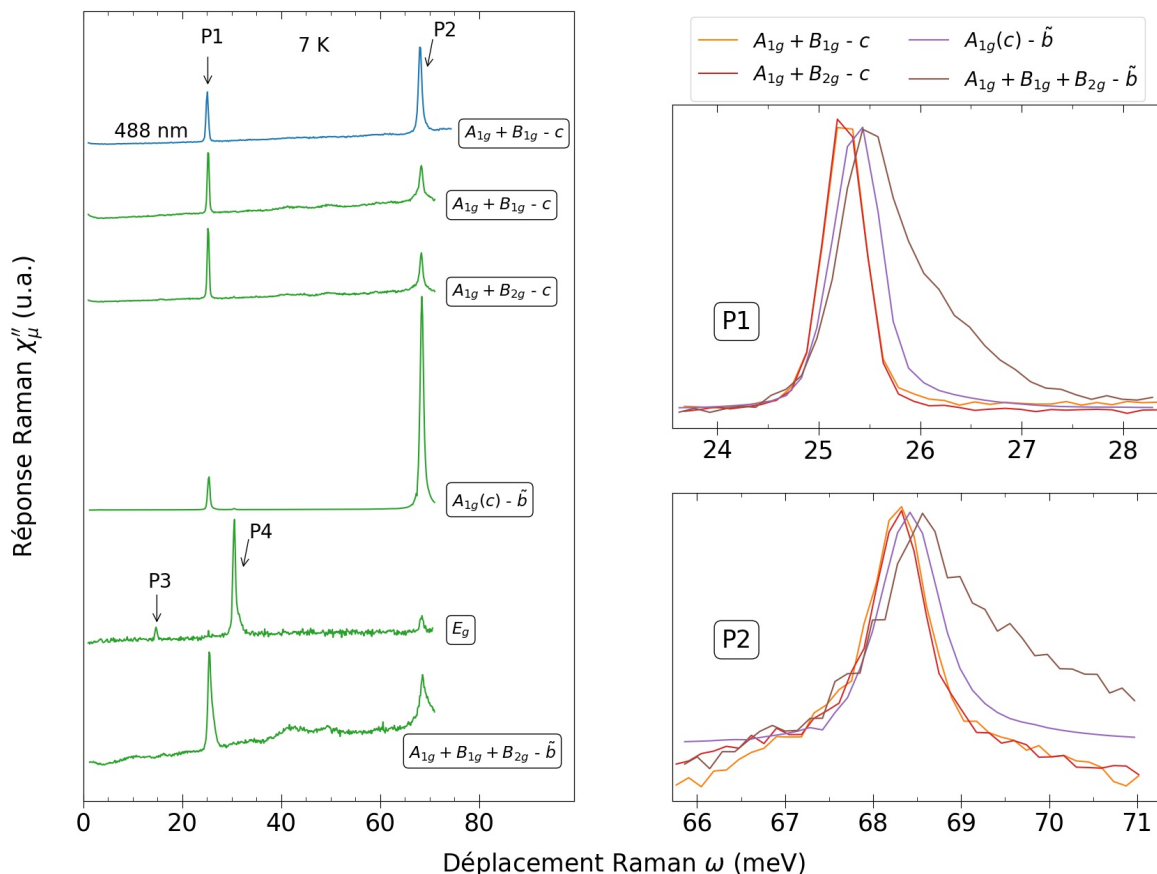


FIGURE 6.3 – (Gauche) Phonons sondés dans les différentes symétrie. Si non précisé, les spectres ont été acquis à 532 nm. (Droite) Différentes allures de mode pour P1 et P2 selon la configuration.

d'onde transféré par le photon au système électronique, qui est habituellement négligé.

En plus des phonons précités, et du mode M1 d'origine sans doute électronique que je décris en section 6.3.2, les spectres présentent quelques modes larges (de largeur supérieure à 5 meV). Deux bosses B1 et B2 centrées respectivement vers 42 et 50 meV sont principalement visibles dans les trois configurations sondant A_{1g} dans le plan, mais on peut également les deviner dans les autres configurations. On peut tenter de les associer à des modes de doubles phonons : ce sont des processus de création ou destruction de deux phonons, moins probables qu'un processus n'impliquant qu'un phonon, donc d'intensité plus faible, de symétrie A_{1g} , et dont les énergies sont proches⁵ des sommes ou différences de celles des phonons concernés. Par exemple, l'énergie de B2 correspond à deux fois l'énergie de P1, et celle de B1 est proche de la somme de celles de P1 et de P3. D'autres bosses sont visibles dans les quatre configurations en propagation selon c entre 56 et 65 meV. Un pic très peu intense apparaît vers 16 meV dans les trois configurations sondant A_{1g} dans le plan, dont l'énergie est légèrement trop grande pour correspondre à une fuite de P3.

5. La dispersion des phonons optiques, soit la dépendance de leur énergie avec le vecteur d'onde q , n'intervient pas en spectroscopie Raman pour des modes de simple phonon sondés à $q = 0$. Mais pour des modes de doubles phonons, chacun peut adopter $q \neq 0$ tant que la somme des vecteurs d'ondes s'annule, d'où des énergies pouvant différer légèrement de celle à $q = 0$.

6.3 Continuum électronique : dynamique des quasiparticules et propriétés de liquide de Fermi

La figure 6.4 représente les réponses Raman dans les sept configurations, à 7 K, avec une échelle centrée sur le continuum électronique. L'intensité globale du continuum varie selon la configuration. Les réponses hors plan ($A_{1g}(c)$ et E_g) sont globalement moins intenses que les réponses planaires. Dans cette section, j'étudie successivement les réponses électroniques dans le plan et hors plan.

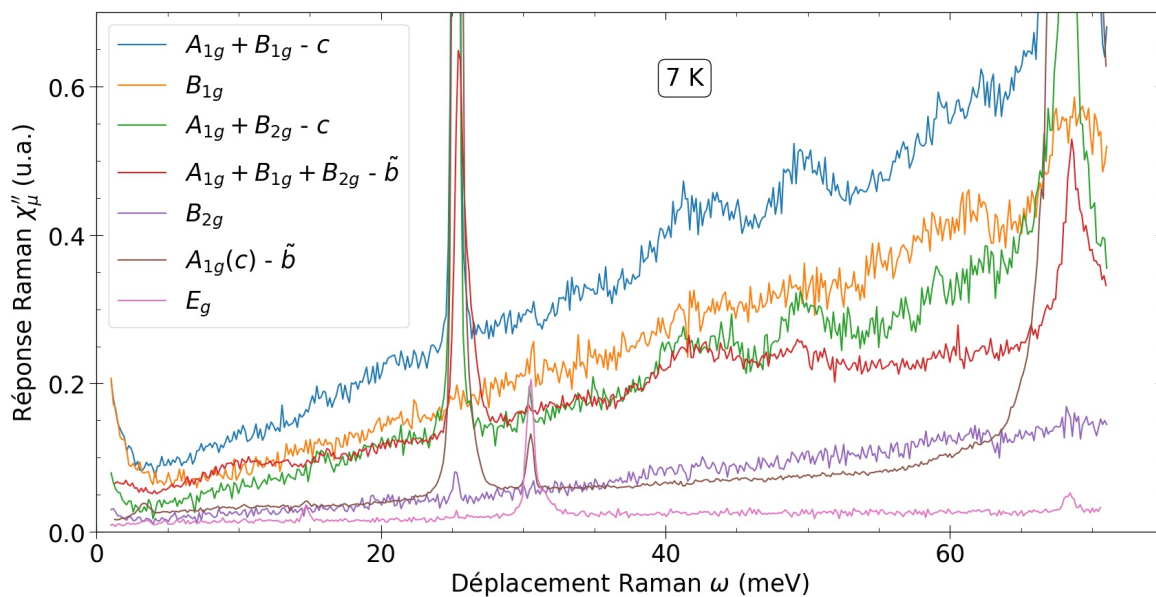


FIGURE 6.4 – Réponse Raman (zoomée sur le continuum) dans les sept configurations accessibles, à 7 K.

6.3.1 Réponse électronique dans le plan

La figure 6.5 représente les réponses Raman électroniques χ'' sous 75 meV, pour une sélection de températures, dans les cinq configurations dans le plan. La figure 6.6 présente des spectres complémentaires en B_{1g} et B_{2g} pour des températures majoritairement supérieures à 50 K. Également en figure 6.5, je rappelle la forme attendue pour la réponse Raman d'un liquide de Fermi, discutée précédemment en section 3.2.3.3.

Le continuum varie fortement avec la température à basse énergie, sous 50 meV, tandis qu'à plus haute énergie le continuum est indépendant de la température.

Dans les cinq configurations, j'interprète la réponse basse énergie et son évolution avec la température comme une réponse métallique, avec un décalage du maximum d'un pic de Drude, vers les énergies croissantes quand la température augmente. Cependant, les formes du continuum à basse énergie varient beaucoup selon la configuration. Ici, j'analyse qualitativement les spectres, à la lumière de la description du modèle de Drude étendu faite en section 3.2.3.3. L'analyse quantitative fait l'objet d'une section ultérieure.

Je rappelle que la réponse Raman à la température T en modèle de Drude étendu se caractérise par un pic de Drude à basse énergie vers $\omega \approx \widetilde{\Gamma}_0(T)$ (position correspondant au taux de relaxation statique, ramollie par la renormalisation de la masse), et un creux puis une remontée à plus haute énergie, respectivement creux et pied de liquide de Fermi, liés à

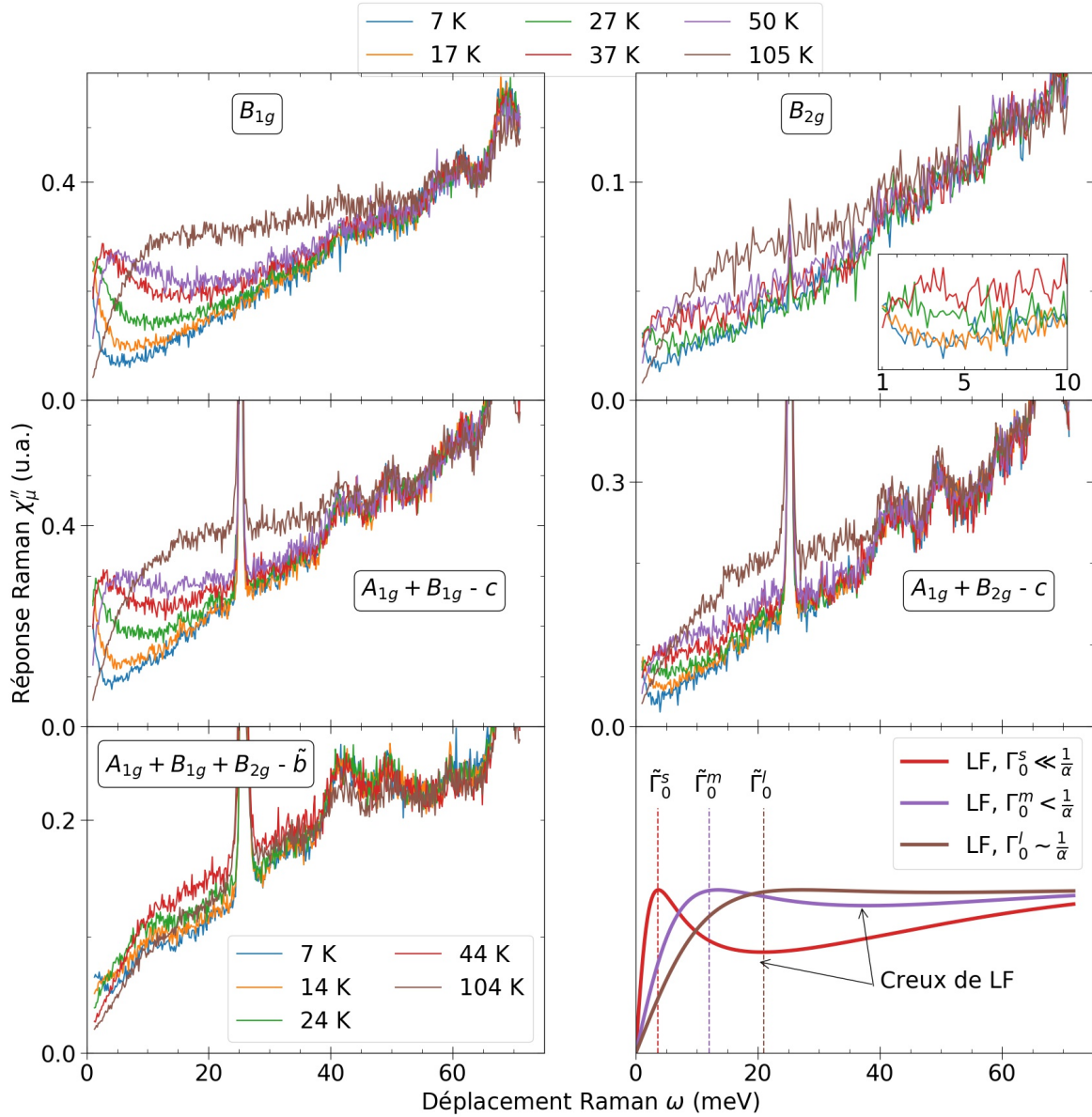


FIGURE 6.5 – Réponse Raman (continuum électronique) dans les cinq configurations dans le plan, pour une sélection de températures. (Bas droite) Réponse Raman théorique attendue pour un liquide de Fermi, avec trois taux de relaxation statiques différents. Je rappelle que le taux de relaxation suit la loi $\Gamma(\omega, T) = \tilde{\Gamma}_0^{s/m/l}(T) + \alpha\omega^2$, avec $\tilde{\Gamma}_0^{s/m/l} = \Gamma_0^{s/m/l}/(1 + \lambda)$, et $1 + \lambda$ le facteur de renormalisation de la masse pris identique pour les trois courbes.

la dépendance en ω^2 de Γ . Le creux tend à disparaître quand la température augmente, et le pic de Drude fusionne avec le pied de liquide de Fermi. Du fait de la possible décroissance en énergie de $1 + \lambda$ au-delà du régime de liquide de Fermi, la réponse est amoindrie à basse énergie, d'autant plus que $1 + \lambda(\omega \rightarrow 0)$ est élevée et que $1 + \lambda(\omega)$ décroît fortement.

La réponse B_{1g} apparaît comme la plus directement analysable qualitativement en termes de modèle de Drude étendu. Elle contient clairement à la fois un pic de Drude et un creux de liquide de Fermi. Pour $T \leq 25$ K, le maximum du pic de Drude se situe en-deçà de l'énergie de coupure expérimentale valant 1 meV, ce qui indique que le taux de relaxation résiduel dû au désordre est extrêmement faible. Quand la température augmente, la composante du taux de relaxation due à la température augmente, décalant le pic de Drude vers les énergies

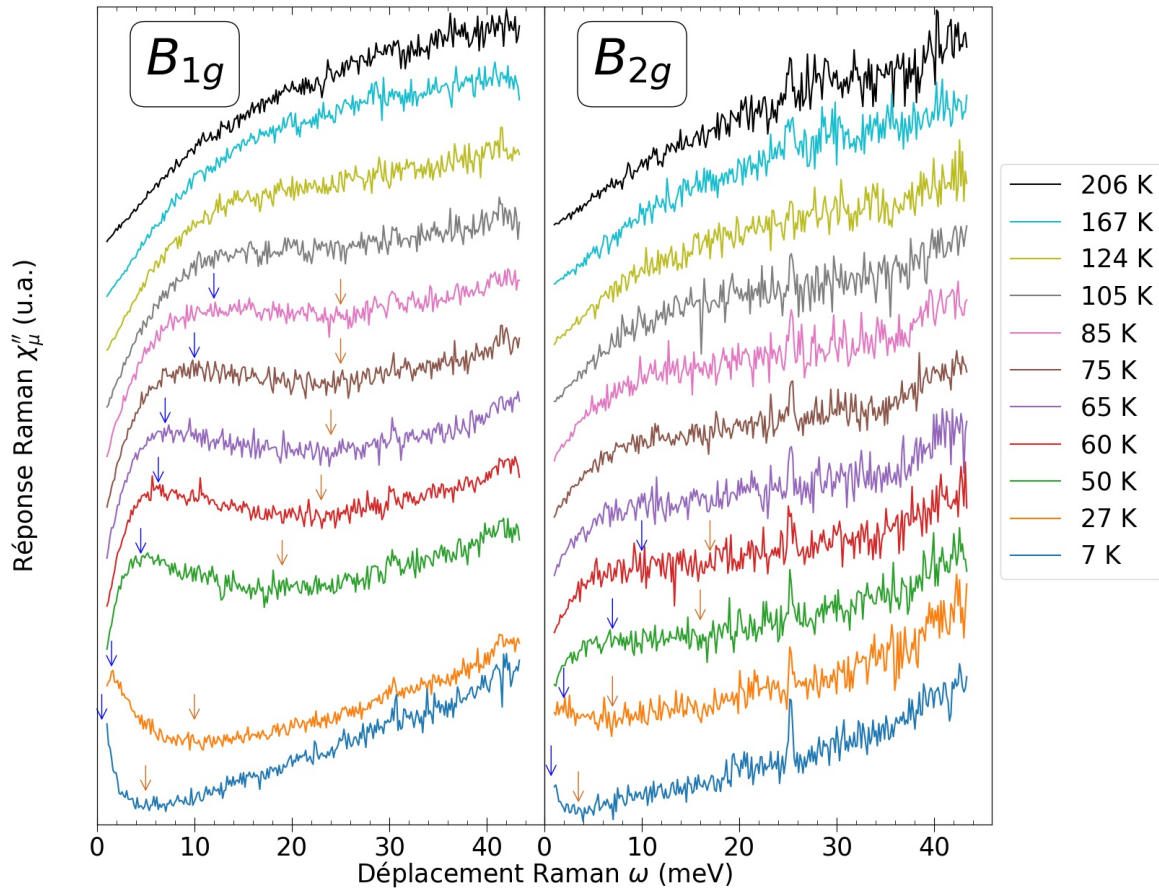


FIGURE 6.6 – Comportement de la réponse Raman en B_{1g} et B_{1g} entre 50 et 200 K. Les flèches bleues et marron indiquent respectivement le maximum du pic de Drude et minimum du creux de liquide de Fermi, quand ils sont visibles. Les spectres ont été décalés en ordonnée pour une meilleure visibilité de chacun.

croissantes. Il apparaît dans la fenêtre expérimentale, puis, pour $T \geq 80\text{--}100$ K, il rejoint le pied de liquide de Fermi, faisant disparaître le creux de liquide de Fermi.

En B_{2g} , le pic de Drude est visible, mais est fortement réduit par rapport au continuum à haute énergie, comparativement à B_{1g} . Le creux de liquide de Fermi n'est résolu que pour $T \leq 50$ K. L'analyse en B_{2g} est complexifiée par l'intensité très faible de la réponse Raman, dont la conséquence est un important bruit expérimental. La réponse Raman est globalement plus faible en B_{2g} qu'en B_{1g} , mais l'allure de la réponse est également différente : le pic de Drude est beaucoup plus écrasé par rapport au continuum à haute énergie en B_{2g} qu'en B_{1g} . Cet écrasement du pic de Drude par rapport au pied de liquide de Fermi indique une plus forte décroissance du facteur de renormalisation de masse en B_{2g} qu'en B_{1g} , ou un régime de liquide de Fermi moins robuste en énergie.

En $A_{1g} + B_{1g} - c$, la réponse à basse énergie est qualitativement similaire à celle en B_{1g} , et respectivement entre $A_{1g} + B_{2g} - c$ et B_{2g} . Ceci indiquerait que la forme caractéristique du modèle de Drude étendu dans les réponses Raman de ces symétries mixtes est principalement dû à leur composante B_g , et qu'une réponse pure A_{1g} planaire n'exposerait pas de pic de Drude clair. Ceci confirme la claire différenciation des formes de spectres et des paramètres de liquide de Fermi entre B_{1g} et B_{2g} .

En $A_{1g} + B_{1g} + B_{2g} - \tilde{b}$, le spectre à 7 K exhibe un pic de Drude dont le maximum est atteint entre 1 et 2 meV et un creux de liquide de Fermi bien visible ; pour les spectres à

24 K et au-delà, le pic de Drude a rejoint le pied de liquide de Fermi. L'analyse de cette configuration par rapport aux autres n'est pas triviale (mélange de trois symétries, direction différente du vecteur d'onde transféré), donc je ne m'y étendrai pas.

Le poids d'une potentielle composante A_{2g} dans les spectres B_{1g} et B_{2g} peut être estimé à partir de la figure 6.5. L'intensité du spectre B_{2g} donne une limite supérieure pour la composante A_{2g} dans le spectre B_{1g} , cette limite correspond à environ 1/4 du spectre B_{1g} . De plus, la grande ressemblance entre $A_{1g} + B_{1g} - c$ et B_{1g} , et entre $A_{1g} + B_{2g} - c$ et B_{2g} , est une indication que la composante A_{2g} (absente de $A_{1g} + B_{1g} - c$ et $A_{1g} + B_{2g} - c$) est négligeable en B_{1g} et B_{2g} . D'un point de vue théorique, dans le modèle de la masse effective en ne prenant en compte que des contribution intrabandes, le vertex Raman $\gamma^{A_{2g}}$ est nul. Ces différentes considérations expérimentales et théoriques m'ont amené à omettre la mention de A_{2g} dans les symétries sondées pour mon étude de Sr_2RuO_4 , comme je l'avais fait au chapitre précédent pour Co-Ba122.

6.3.2 Réponse électronique hors plan

La figure 6.7 représente les réponses Raman électroniques χ'' sous 75 meV, pour une sélection de températures, dans les deux configurations hors plan.

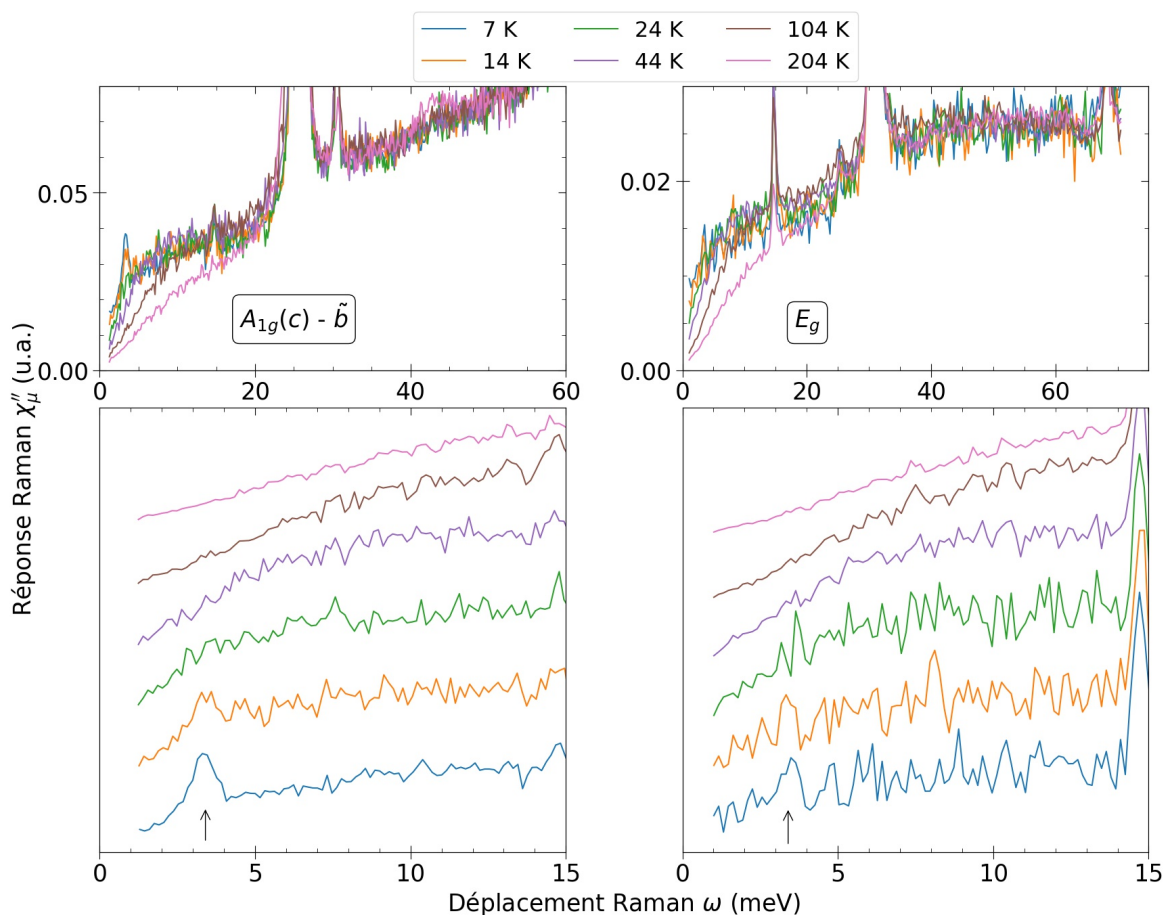


FIGURE 6.7 – Réponse Raman (continuum électronique) dans les trois configurations hors plan, pour l'ensemble des températures sondées. (Bas) Zoom à basse énergie avec empilement des spectres pour une meilleure clarté. La flèche noire pointe vers le mode M1, à 3,4 meV.

Les réponses $A_{1g}(c) - \tilde{b}$ et E_g sont qualitativement différentes des réponses dans le plan,

avec, nonobstant le bruit expérimental, des spectres monotones sur l'ensemble de la gamme spectrale, sans démarquage du creux de liquide de Fermi et avec un pic de Drude très large, noyé dans le pied de liquide de Fermi. Ceci indique des taux de relaxation significativement plus grands dans ces canaux hors plan, cohéremment avec les mesures de transport. En l'absence d'un pic de Drude clair à toute température, la diminution de la pente extrapolée à l'origine quand la température augmente est la marque de l'augmentation du taux de relaxation.

Les mesures de résistivité DC [169, 276] indiquent la transition d'un comportement conducteur vers un comportement isolant selon l'axe c à 130 K quand la température augmente, avec notamment ρ_c plus grand à 104 qu'à 204 K. Mes spectres en $A_{1g}(c) - \tilde{b}$, qui sondent également le comportement électronique hors plan, indiquent à l'inverse que le taux de relaxation est plus grand à 204 et qu'à 104 K. Ce désaccord pourrait découler de ce que le transport selon c et la spectroscopie Raman dans les configurations hors plan ne sondent pas identiquement les mêmes feuilletts de la surface de Fermi, avec une possible forte dépendance orbitalaire pour le transport selon c . L'acquisition de davantage de spectres dans cette gamme de température serait néanmoins nécessaire pour discuter plus précisément ce point.

Pour $T \leq 20$ K, un pic très étroit que je note M1 se développe dans les spectres $A_{1g}(c) - \tilde{b}$ autour de 3,5 meV. On pourrait également le percevoir dans les spectres E_g pour $T \leq 25$ K, mais sans certitude du fait du bruit du continuum. On ne le distingue pas dans les configurations planaires. De par sa forme (symétrique et étroite, avec une largeur à mi-hauteur d'environ 1 meV à 7 K), je ne l'attribue pas à une réponse de type Drude ou à une transition interbande. Son activation à faible température montre qu'il est intrinsèque à l'échantillon. La dépendance en température que j'ai effectuée indique qu'il pourrait être activé sous T_{FL} . On pourrait l'associer à une excitation collective, possiblement un plasmon selon l'axe c . Cela correspondrait à l'amorce du transport cohérent selon l'axe c de type liquide de Fermi observé dans les mesures de transport sous $T_{FL} \approx 25$ K.

Des mesures récentes de spectroscopie de perte d'énergie des électrons résolue en moment (en anglais *momentum-resolved electron energy loss spectroscopy*) indiqueraient l'existence d'un mode collectif dispersif d'origine électronique [107], que les auteurs associent à un mode de type plasmon lié à l'établissement du comportement de liquide de Fermi. Pour un moment transféré q nul, l'énergie de ce mode est inférieure à 10 meV, ce qui pourrait correspondre à M1.

6.3.3 Différentiation B_{1g} / B_{2g} des paramètres de liquide de Fermi

J'utilise la méthode de la fonction mémoire (voir la section 3.2.3) pour extraire des spectres les grandeurs caractéristiques de liquide de Fermi $\Gamma_\mu(\omega, T)$ et $1 + \lambda_\mu(\omega, T)$ (voir la section 3.2.3). J'approfondis dans un premier temps l'analyse quantitative pour les symétries B_{1g} et B_{2g} . En effet, comme je le montrerai en section 6.4, ces deux symétries sont complémentaires du point de vue des orbitales sondées : leur comparaison permet de révéler la différenciation orbitalaire des propriétés des quasiparticules.

Je rappelle que la méthode de la fonction mémoire nécessite de choisir une énergie de coupure ω_c dans l'analyse. Pour l'analyse présentée dans cette section, j'ai pris $\omega_c = 71$ meV. La discussion autour du choix de ω_c et de son influence sur les résultats est l'objet de l'annexe B.2.

6.3.3.1 Extrapolation à basse énergie des spectres

Dans la méthode de la fonction mémoire, il faut intégrer des grandeurs en énergie entre 0 et ω_c . Ainsi, il est nécessaire d'extrapoler les spectres à basse énergie, entre 0 meV et l'énergie de coupure expérimentale inférieure ω_{inf} (1 meV pour la majorité des spectres étudiés dans

ce chapitre). Les spectres obéissent théoriquement au modèle de Drude étendu, mais à ces énergies suffisamment faibles, on peut négliger la dépendance en énergie de Γ et $1 + \lambda$, et extrapoler les spectres en utilisant la formule du modèle de Drude simple (équation (3.20)).

Techniquement, j'ajuste la réponse Raman entre ω_{inf} et une énergie b , par la formule de Drude simple. Il faut choisir b suffisamment grande pour améliorer la précision de l'ajustement, mais suffisamment petite pour ne pas sortir de la zone où les approximations de Γ et $1 + \lambda$ constants sont valables. J'ai choisi $b = 2,5$ meV. L'ajustement est difficile si le maximum du pic de Drude est situé à une énergie très inférieure à ω_{inf} , ce qui est le cas pour les plus basses températures. Dans cette situation, soit l'algorithme informatique d'ajustement n'arrive pas à ajuster la réponse Raman, soit l'ajustement est réussi, mais avec une marge d'incertitude importante. Dans le premier cas, j'écarte les spectres de l'analyse. Dans le second cas, j'observe a posteriori que les paramètres de liquide de Fermi obtenus sont davantage dispersés que ceux à plus haute température. Je garde ces paramètres dans l'analyse, mais il faudra se souvenir que leur dispersion est probablement due aux difficultés d'extrapolation, et non à un phénomène physique intrinsèque.

La figure 6.8 compare l'extrapolation pour différentes températures en B_{1g} et B_{2g} . Pour les trois plus basses températures (7, 9 et 11 K) en B_{1g} , l'ajustement échoue ou est peu précis. En B_{2g} , l'incertitude d'extrapolation est majoritairement due au bruit expérimental. Je présente seulement des spectres en B_{1g} et B_{2g} , mais j'ai appliqué la procédure présentée ici dans les cinq autres configurations également.

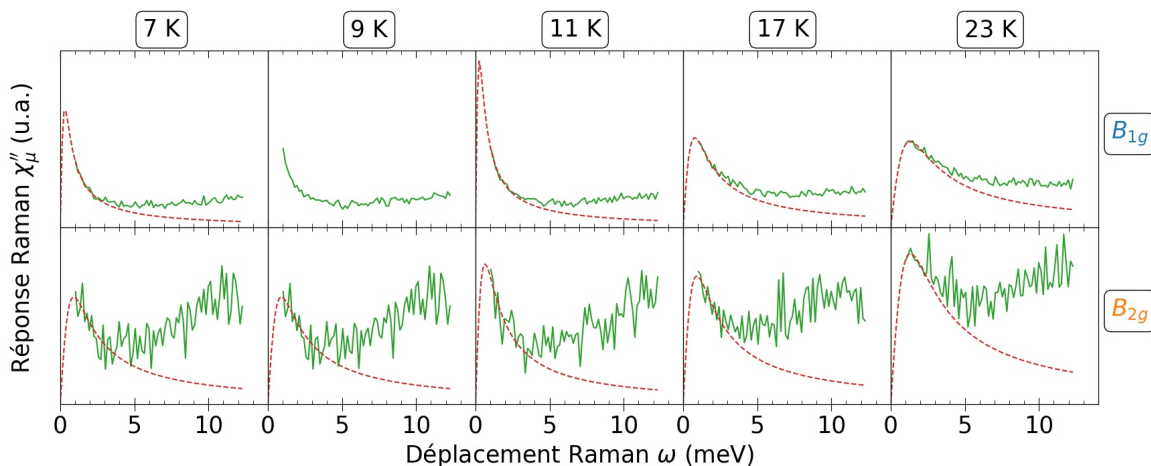


FIGURE 6.8 – Extrapolation basse énergie des spectres, en ajustant par une réponse Drude sous $b = 2,5$ meV. Les lignes continues sont les spectres expérimentaux, les lignes tiretées sont les ajustements.

Grâce à ces ajustements, j'extrapole les spectres sous 1 meV avec un pas de 0,12 meV, jusqu'à 0 meV. Je précise que ces points virtuels sont introduits uniquement pour les calculs de la méthode de la fonction mémoire nécessitant d'intégrer jusqu'à 0 meV : numériquement, du fait de l'extrapolation, je peux obtenir le taux de relaxation et le facteur de renormalisation de la masse des quasiparticules $\Gamma(\omega)$ et $1 + \lambda(\omega)$ également pour $0 \leq \omega \leq 1$ meV. Mais j'écarte ces points basse énergie comme étant des points artificiellement créés par l'extrapolation basse énergie des spectres : leur prise en compte biaiserait l'analyse du comportement basse énergie de ces quantités (par exemple l'ajustement quadratique de $\Gamma(\omega)$).

6.3.3.2 Taux de relaxation

Dépendance en énergie La figure 6.9 présente le taux de relaxation $\Gamma_\mu(\omega)$ dans les symétries B_{1g} et B_{2g} selon différentes températures. $\Gamma_\mu(\omega)$ est systématiquement plus grand en B_{2g} qu'en B_{1g} , d'un facteur au moins égal à 2 sous 30 K. Ce facteur tend à décroître quand la température augmente : la dichotomie B_{1g}/B_{2g} s'atténue quand la température augmente.

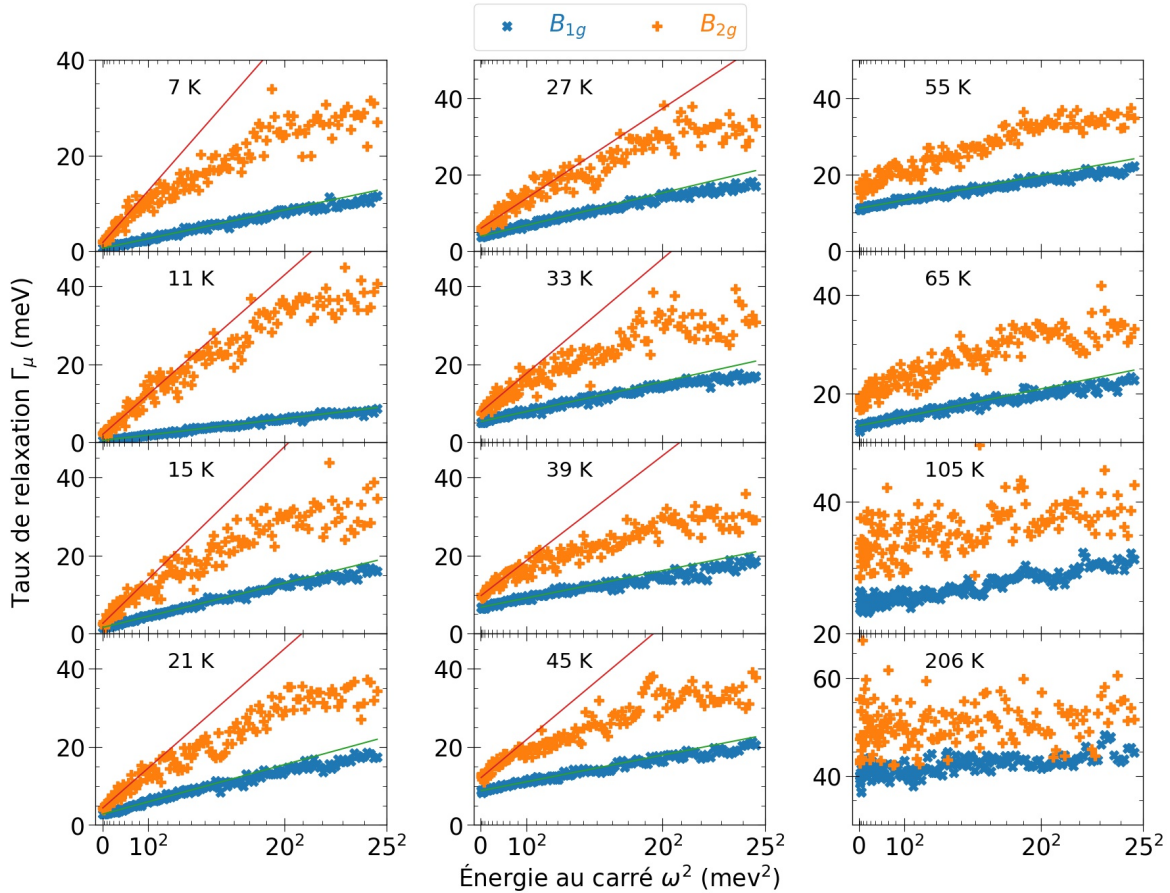


FIGURE 6.9 – Taux de relaxation obtenu par la méthode de la fonction mémoire en B_{1g} et B_{2g} pour une sélection de températures. Les lignes continues sont des ajustements quadratiques des points expérimentaux sous 15 et 7 meV respectivement pour B_{1g} et B_{2g} .

L'utilisation d'axes quadratiques pour ω permet de constater immédiatement qu'à suffisamment basse énergie et basse température, Γ_μ suit une loi quadratique en énergie, prévue par le modèle de liquide de Fermi. Dans les deux configurations, quand l'énergie augmente, $\Gamma_\mu(\omega)$ s'écarte progressivement du comportement quadratique, avec une diminution de l'exposant n de ω^n . Ce changement de comportement se fait sans rupture nette à une énergie bien définie, ce qui est cohérent avec le fait que le passage du comportement de liquide de Fermi à non liquide de Fermi quand la température augmente n'est pas une transition de phase, mais un *crossover* autour de T_{FL} . Quand la température augmente, le comportement quadratique est de moins en moins clair, avec davantage de dispersion des points expérimentaux, jusqu'à disparaître complètement pour $T \geq 50$ K en B_{2g} , et $T \geq 70$ K en B_{1g} .

Pour illustrer plus quantitativement ce phénomène, la figure 6.10 représente l'écart à un ajustement quadratique des données dans les deux symétries. En B_{1g} , le comportement

quadratique à basse température s'observe jusqu'à $\omega_{FL,B_{1g}} \sim 15\text{--}20$ meV, quand en B_{2g} l'écart avec la loi quadratique se situe à des énergies bien plus faibles, vers $\omega_{FL,B_{2g}} \sim 8\text{--}12$ meV.

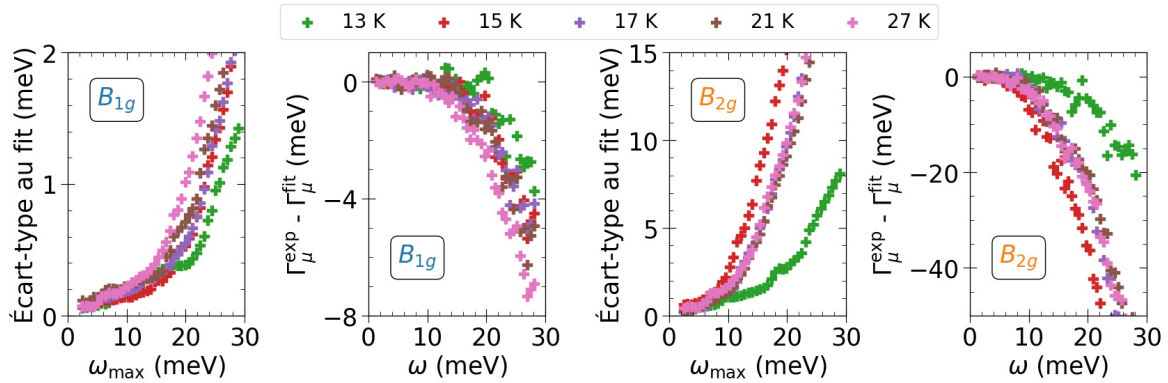


FIGURE 6.10 – Déviations par rapport à l’ajustement quadratique en B_{1g} et B_{2g} pour une sélection de température. Pour cette figure, je choisis d’ajuster les points expérimentaux avec $\omega_{FL,\mu}$ faible par rapport à sa valeur estimée visuellement : 10 et 5 meV respectivement en B_{1g} et B_{2g} . Je calcule l’écart-type à l’ajustement sur la gamme d’énergie entre 1 meV et ω_{\max} , et représente l’écart-type en fonction de ω_{\max} .

Pour $T \leq 40$ K, il est aisé d’ajuster les données expérimentales par un comportement quadratique, pour $\omega \leq 15$ et 8 meV respectivement en B_{1g} et B_{2g} , selon $\Gamma_{\mu}(\omega, T) = \Gamma_{\mu,0}(T) + \alpha_{\mu}(T)\omega^2$, avec $\Gamma_{\mu,0}(T)$ et $\alpha_{\mu}(T)$ comme paramètres d’ajustement. Dans le modèle théorique du liquide de Fermi, α_{μ} est indépendant de la température pour $T \leq T_{FL}$, mais pour tenir compte des incertitudes expérimentales, je laisse ce paramètre libre pour tous les ajustements, et α_{μ} acquiert de fait une dépendance en température. La figure 6.11 illustre cependant que cette dépendance en température est faible dans les deux symétries. La plus grande dispersion pour $T \leq 12$ K est liée aux incertitudes d’extrapolations à basse énergie expliquées en section 6.3.3.1. La légère diminution de $\alpha_{B_{1g}}$ au-delà d’environ 25 K peut être associée à la sortie progressive du régime de liquide de Fermi : l’exposant de ω diminue, et pour ajuster correctement avec ω^2 , l’algorithme d’ajustement choisit $\alpha_{B_{1g}}$ plus petit. La plus grande dispersion de $\alpha_{B_{2g}}(T)$ empêche de constater un phénomène similaire en B_{2g} .

Malgré une plus grande dispersion et de plus grandes barres d’erreur en B_{2g} , l’ordre $\alpha_{B_{1g}} < \alpha_{B_{2g}}$ tient sur toute la gamme de température. En considérant la moyenne des valeurs entre 12 et 25 K, j’obtiens les valeurs finales de α_{μ} : $(3,0 \pm 0,2) \cdot 10^{-2}$ et $(10 \pm 3) \cdot 10^{-2}$ meV $^{-1}$ respectivement en B_{1g} et B_{2g} , et donc $\alpha_{B_{2g}} \approx 3\text{--}4\alpha_{B_{1g}}$.

La figure 6.11 présente également la dépendance en température de la susceptibilité statique χ_{μ}^0 (équation (3.42)). Depuis les hautes températures, elle augmente légèrement dans les deux symétries entre 200 et 60 K, puis est globalement constante pour $T \leq 60$ K. L’absence de divergence ou tout du moins de forte augmentation indique l’absence de toute instabilité significative à basse température réduisant la symétrie, par exemple de type nématique, en B_{1g} et B_{2g} .

Dépendance en température du taux de relaxation statique À énergie fixée, Γ_{μ} augmente avec la température. Pour étudier le comportement quadratique de Γ_{μ} en température, je considère le taux de relaxation statique $\Gamma_{\mu,0}(T)$ issu des ajustements quadratiques de $\Gamma_{\mu}(\omega, T)$. La figure 6.12 présente $\Gamma_{\mu,0}(T)$ en B_{1g} et B_{2g} sous 40 K. À toute température, $\Gamma_{\mu,0}$ est plus grand en B_{2g} qu’en B_{1g} , mais la différentiation des pentes est plus faible que

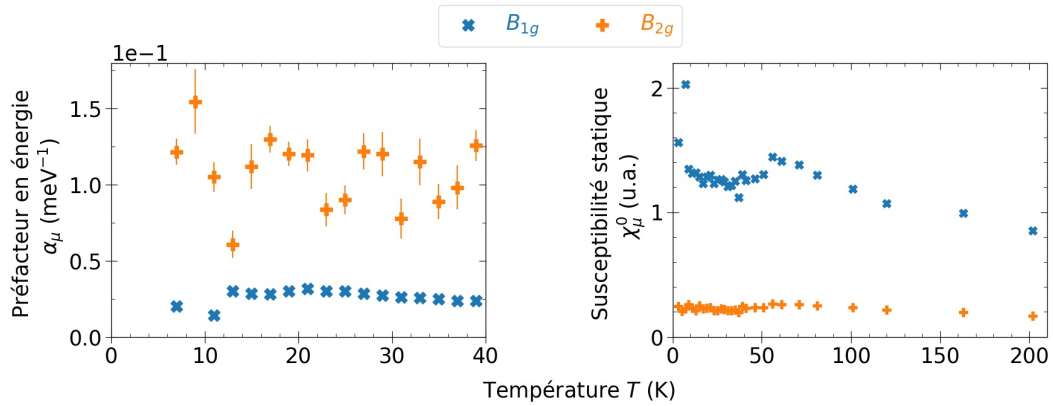


FIGURE 6.11 – Dépendance en température en B_{1g} et B_{2g} : (Gauche) du paramètre α_μ dans les ajustements quadratiques de $\Gamma_\mu(\omega)$; (Droite) de la susceptibilité statique χ_μ^0 .

pour $\Gamma_\mu(\omega)$ à T donnée.

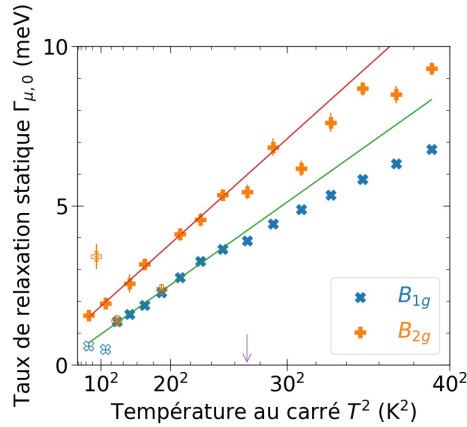


FIGURE 6.12 – Dépendance en température du taux de relaxation statique $\Gamma_{\mu,0}$ en B_{1g} et B_{2g} . Les lignes continues sont des ajustements quadratiques des points expérimentaux sous 27 K (flèche violette), en écartant les symboles vides.

Le nombre limité de points expérimentaux en dépendance en température par rapport à la dépendance en énergie rend le comportement quadratique pour $T \leq T_{FL,\mu}$ moins net que pour $\omega \leq \omega_{FL,\mu}$. La dispersion de certains points à basse température est, comme pour α_μ , due probablement aux difficultés d'extrapolation à basse énergie. Si j'écarte ces points pathologiques, je peux ajuster un comportement quadratique sur quelques points sous $T_{FL,fit} = 27$ K dans les deux symétries, selon $\Gamma_{\mu,0}(T) = \Gamma_{\mu,00} + \beta_\mu(k_B T)^2$, avec $\Gamma_{\mu,00}$ et β_μ comme paramètres. J'obtiens $\Gamma_{B_{1g}} = 0,4$ meV et $\Gamma_{B_{2g},00} = 1,2$ meV; $\beta_{B_{1g}} = (7,0 \pm 0,2) 10^{-1}$ meV⁻¹ et $\beta_{B_{2g}} = (9,2 \pm 0,2) 10^{-1}$ meV⁻¹. Avec ces données expérimentales, la dichotomie B_{1g}/B_{2g} est donc moins importante pour β que pour α . Le taux de relaxation résiduel $\Gamma_{\mu,00}$ dû au désordre est au plus de l'ordre de 1 meV : cette valeur très faible est la marque de la grande pureté des échantillons sondés⁶.

6. Ces valeurs de $\Gamma_{\mu,00}$ sont probablement légèrement sous-évaluées du fait du choix de ω_c (voir la discussion en annexe B.2 et en section 6.4.6). Mais même en prenant en compte le facteur correctif, il reste très faible, de l'ordre de quelques meV au maximum.

Comportement biquadratique et rapport d'échelle Le comportement biquadratique de $\Gamma_\mu(\omega, T)$ est également illustré sur la figure 6.13, qui adopte des axes logarithmiques : la pente vaut l'exposant n de $\Gamma \sim \omega^n, T^n$. À la température exemple de 15 K, le comportement quadratique en énergie est très clair en B_{1g} jusqu'à 20 meV. En B_{2g} , les points sont trop dispersés pour observer clairement $n = 2$, même si le comportement ω^2 semble plus pertinent que $\omega^{1,5}$ ou $\omega^{2,5}$; au-delà de 8–9 meV, une déviation vers $n = 1,5$ est nette. Concernant le comportement en température, en écartant les points très dispersés à basse température, le comportement T^2 apparaît clairement pour $T \leq 30$ K dans les deux symétries.

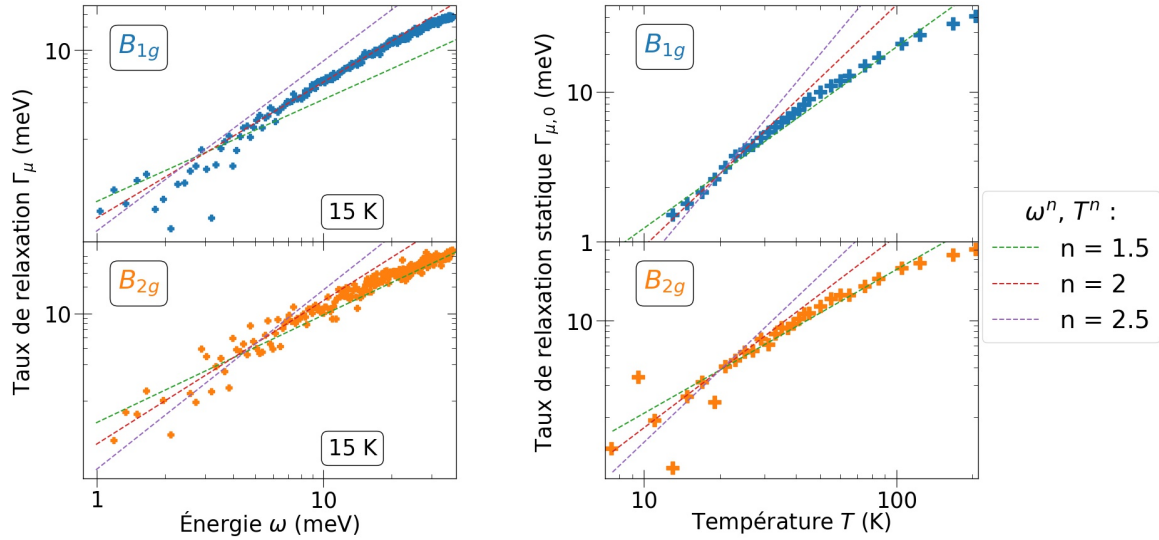


FIGURE 6.13 – (Gauche) Dépendance en énergie du taux de relaxation Γ_μ à 15 K en B_{1g} et B_{2g} . (Droite) Dépendance en température du taux de relaxation statique $\Gamma_{\mu,0}$ en B_{1g} et B_{2g} . Les lignes tiretées sont des guides visuels à différentes pentes.

Le rapport théorique entre T_{FL} et ω_{FL} est $\omega_{FL} = 2\pi k_B T_{FL}$, d'après la règle de la première fréquence de Matsubara [178]. En considérant $T_{FL} \approx 25$ –30 K (valeur donnée par la littérature, et cohérente aux incertitudes près à ce que j'obtiens), cela correspond à $\omega_{FL} \approx 14$ –19 meV, ce qui est le bon intervalle en B_{1g} , et pourrait indiquer que je surestime T_{FL} en B_{2g} .

En complément à ces deux ajustements successifs de $\Gamma_\mu(\omega, T)$ pour obtenir α_μ et β_μ , je cherche à directement vérifier la loi d'échelle reliant les deux dépendances en ω et T via le rapport de Gurzhi. Sur la figure 6.14, je représente $\Gamma_\mu(\omega, T)$ en fonction de $\omega^2 + (p_\mu \pi k_B T)^2$. Pour déterminer le p_μ optimal, noté p_μ^* , qui permet le rapport d'échelle, j'ajuste $\Gamma_\mu(\omega, T)$ de façon affine en fonction de $\omega^2 + (p_\mu \pi k_B T)^2$, pour $7 \leq T \leq 25$ K et pour p_μ variant entre 0,2 et 2. Je représente la déviation standard de l'ajustement σ en fonction de p_μ et choisis p_μ^* qui minimise σ . J'obtiens 1,6 et 0,85 respectivement pour B_{1g} et B_{2g} , avec une incertitude de $\pm 0,1$.

Comparaison avec les résultats de conductivité optique Il est instructif de comparer les valeurs quantitatives de $\Gamma(\omega, T)$ obtenues dans mon cas par spectroscopie Raman et obtenues par conductivité optique par Stricker et collaborateurs [243].

Pour $T \leq 100$ K, j'obtiens $\Gamma(\omega) \sim 10$ –40 meV pour $\omega = 20$ meV dans les deux symétries, ce qui est cohérent avec les données de conductivité optique. À 206 K, j'obtiens des valeurs plus faibles d'un facteur 1,5–2. Le comportement quadratique clair en spectroscopie Raman

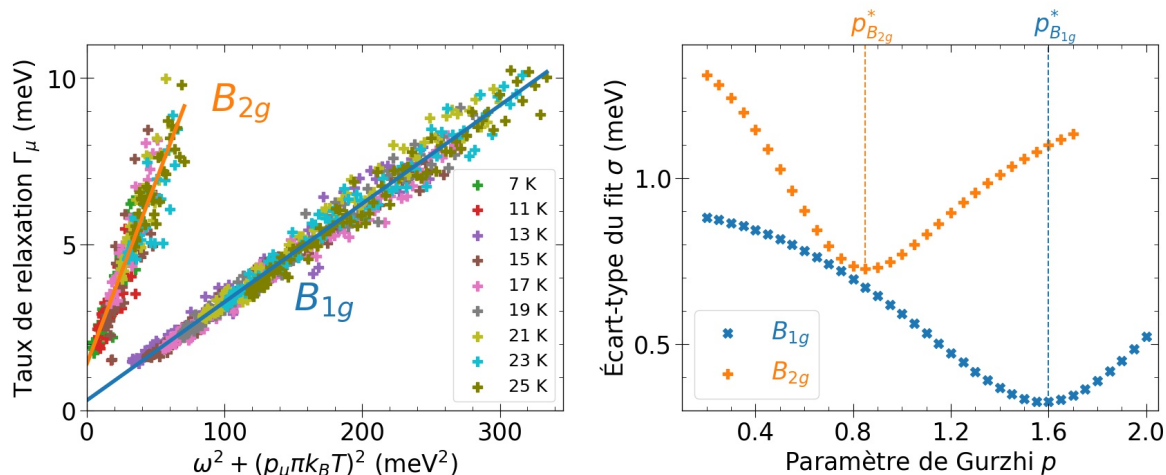


FIGURE 6.14 – (Gauche) Vérification du rapport d'échelle de Gurzhi en B_{1g} et B_{2g} , en prenant $p_\mu = 1.6/0.85$ respectivement en B_{1g} et B_{2g} . Les lignes continues sont des ajustements linéaires de $\Gamma_\mu(\omega, T)$ en fonction de $\omega^2 + (p_\mu \pi k_B T)^2$. (Droite) Minimisation de l'écart-type σ lors de l'ajustement linéaire vérifiant le rapport d'échelle de Gurzhi, permettant d'obtenir les valeurs optimales de p_μ .

sous $\omega_{FL,\mu}$ pour $T \leq 40$ K n'est pas visible dans les données de conductivité optique, qui sont sans doute trop bruitées dans cette gamme d'énergie. Concernant le taux de relaxation statique, mes valeurs de $\Gamma_{\mu,0}(T)$ variant de 1 à 10 meV entre 10 et 40 K sont plus faibles d'un facteur environ 2 que celles extrapolées des données de conductivité optique. La divergence peut s'expliquer par le fait que ces deux techniques ne sondent pas pareillement les quasiparticules, mais il faut noter qu'elle est moins marquée en prenant en compte le facteur correctif dû au choix de ω_c (voir l'annexe B.2 et la section 6.4.6).

Mes résultats de p sont différents de ceux de conductivité optique, qui obtiennent $p = 2$. L'obtention de cette valeur correspondait à la première vérification expérimentale du rapport d'échelle de Gurzhi dans un liquide de Fermi. Une première tentative pour réconcilier les deux techniques est de considérer la résolution en symétrie, prise en compte en spectroscopie Raman mais pas en conductivité optique. Je discute spécifiquement de ce point en section 6.4.6, après avoir interprété mes résultats en termes de différenciation orbitalaire.

Ici, j'insiste sur les différences de procédure dans la vérification du rapport d'échelle entre la conductivité optique [243] et mon travail. Les auteures de la référence [243] présentent une procédure d'ajustement de $\Gamma(\omega, T)$ directement selon les deux variables : iels ajustent $\Gamma(\omega, T)$ de façon linéaire selon la variable à deux composantes $\omega^2 + (p\pi k_B T)^2$. Iels choisissent d'ajuster sous $\omega_{max} = 36$ meV, ce qui est une valeur élevée⁷ par rapport à ω_{FL} . L'ajustement est effectué pour T entre 9 K et T_{max} , avec T_{max} prise comme un paramètre variant entre 100 et 35 K. p est également pris comme un paramètre variant entre 1 et 3. Pour chaque couple (p, T_{max}) , l'écart quadratique de l'ajustement est calculé. Cette procédure leur permet d'estimer p^* , qui minimise l'écart quadratique pour chaque T_{max} .

En abaissant T_{max} de 100 à 35 K, p^* augmente de 1,5 vers 2, avec une saturation à un plateau où $p^* \approx 2$ pour $T_{max} \leq 50$ K. Iels concluent donc que la loi d'échelle $p = 2$ est bien vérifiée. Cela constituerait la première validation expérimentale du rapport d'échelle (et pour l'instant la seule), tous matériaux confondus. Cette procédure de détermination de p^* est illustrée en figure 6.15.

L'établissement apparemment clair de $p = 2$ en conductivité optique me paraît cependant

7. Malgré les différences de sonde entre la conductivité optique et la spectroscopie Raman, on s'attend à ce que ω_{FL} et T_{FL} soient similaires dans les deux cas.

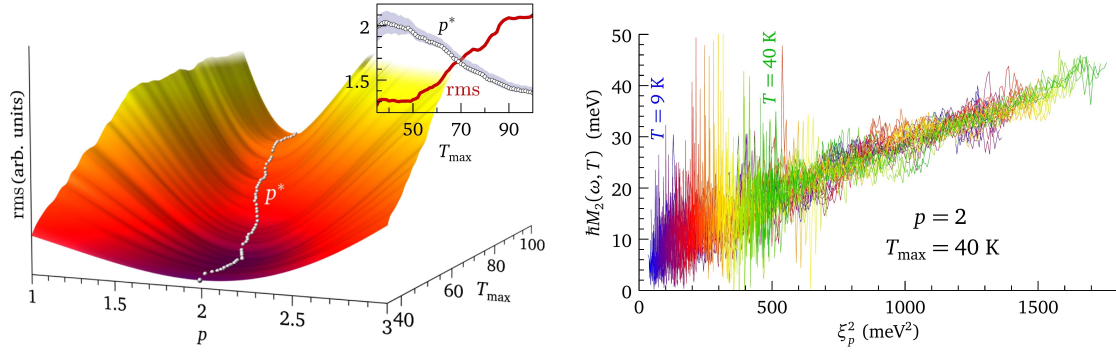


FIGURE 6.15 – Procédure de détermination du rapport d'échelle de Gurzhi avec les résultats de conductivité optique. (Figure issue de [243].)

devoir être soumis à quelques commentaires. En effet, il n'est pas du tout clair qu'à T fixée, sous 50 K, $\Gamma(\omega, T)$ présente un comportement quadratique en fonction de ω à basse énergie (au moins sous ω_{FL}) (figure 1.9). Ensuite, les données présentées en figure 6.15 censées montrer la relation affine entre $\Gamma(\omega, T)$ et $\omega^2 + (p\pi k_B T)^2$ sont extrêmement bruitées. Elles ne montrent un comportement linéaire que pour $\omega^2 + (p\pi k_B T)^2 \geq 500 \text{ meV}^2$, c'est-à-dire au-delà de ω_{FL} et T_{FL} . Dans mon cas, j'ai la vérification claire du comportement quadratique en énergie, et la figure 6.14 montre que, dans les deux symétries, le rapport d'échelle est net pour $\omega^2 + (p\pi k_B T)^2 \leq 200 \text{ meV}^2$. Également, il semble quelque peu artificiel d'effectuer l'ajustement pour $T_{\max} > 50 \text{ K}$, bien au-delà du régime de liquide de Fermi. Ces observations jettent un voile trouble sur leur affirmation de $p = 2$, certes donnée par une méthode numérique quantitative, mais sans précision d'incertitudes sur le p^* obtenu et sans vérification claire des marques les plus directes du comportement de liquide de Fermi.

6.3.3.3 Masse effective

La figure 6.16 présente le facteur de renormalisation de masse $1 + \lambda_\mu(\omega)$ dans les symétries B_{1g} et B_{2g} selon différentes températures. $1 + \lambda_\mu(\omega)$ est systématiquement plus grand en B_{2g} qu'en B_{1g} , d'un facteur au moins égal à 1,5 sous 30 K et 10 meV. Comme pour le taux de relaxation, le facteur de différentiation B_{1g}/B_{2g} décroît quand la température augmente : la dichotomie B_{1g}/B_{2g} n'émerge clairement que pour $T \leq 65 \text{ K}$. La différentiation diminue également à température fixée quand l'énergie augmente.

Dans les deux symétries, $1 + \lambda_\mu(\omega)$ décroît quand l'énergie augmente, tout en restant largement supérieur à 1, à 25 meV sous 100 K. La décroissance en énergie est plus rapide en B_{2g} , si bien qu'à basse température sous 10 meV, $1 + \lambda_\mu(\omega)$ en B_{1g} peut quasiment être estimé constant. Pour B_{2g} , le comportement constant à basse température n'est observable que sous 4–5 meV. Ce dernier point est cohérent avec le modèle du liquide de Fermi, pour lequel le facteur de renormalisation de masse devrait rester constant sous ω_{FL} [23]. À haute température, les points deviennent très dispersés, mais on peut noter une décroissance globale de $1 + \lambda_\mu(\omega)$ avec la température, avec une tendance vers $1 + \lambda_\mu(\omega) \rightarrow 1$.

Les valeurs de renormalisation de la masse obtenues en conductivité optique [243] sous 25 meV sont d'environ 3,3 à 9 K et 2,7 à 200 K. Le bruit de mesure empêche de constater un comportement décroissant net sur cette gamme d'énergie. Ces valeurs à 9 K sont proches de mes valeurs en B_{2g} sous T_{FL} pour $\omega \rightarrow 0$, mais le comportement monotone est plus proche de celui de B_{1g} . Par contre, les valeurs de renormalisation de la masse obtenues par oscillations quantiques, ARPES et chaleur spécifique sont supérieures à 3, pour les 3 feuillets, et même supérieures à 5 pour γ ; elles indiquent donc des augmentations de masse plus élevées que

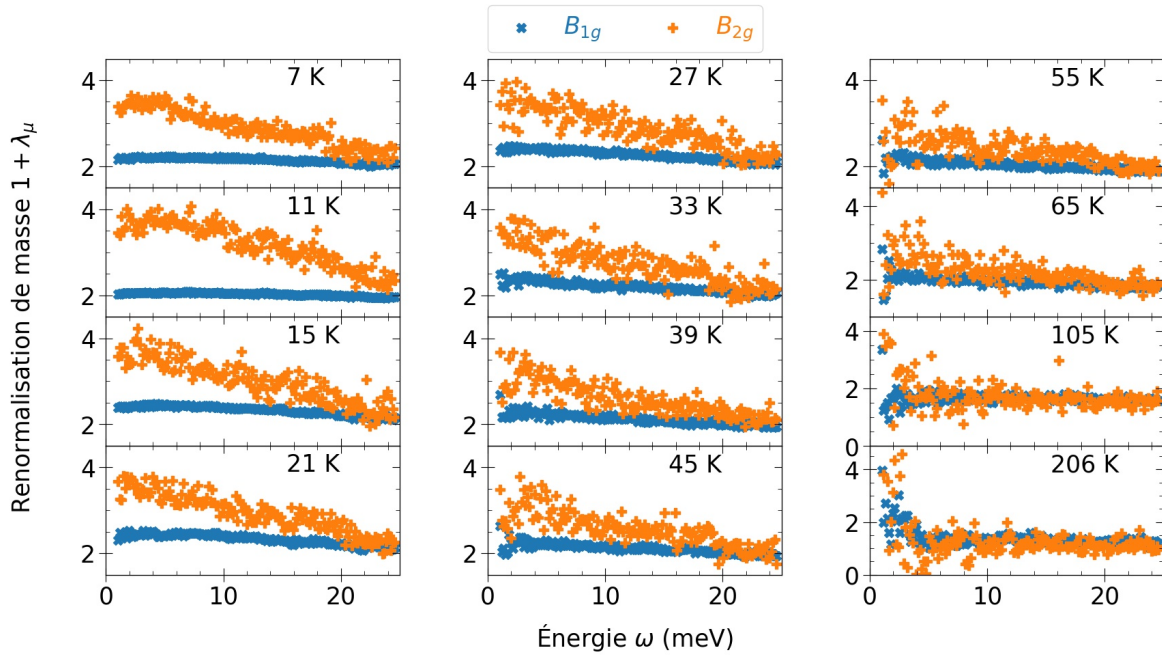


FIGURE 6.16 – Facteur de renormalisation de la masse obtenu par la méthode de la fonction mémoire en B_{1g} et B_{2g} pour une sélection de températures.

dans mes résultats. Je discute en section 6.4.6 de la possible réconciliation de mes résultats de renormalisation de masse avec les autres techniques expérimentales en prenant en compte le facteur correctif dû à ω_c .

Pour quantifier plus précisément la dichotomie B_{1g}/B_{2g} , je calcule les valeurs basse énergie de $1 + \lambda_\mu(\omega, T)$ en prenant leur moyenne sur les dix premiers points expérimentaux ($\omega \leq 2,2$ meV), que je note $1 + \lambda_\mu^0(T)$. L'évolution en température de cette quantité sous 40 K pour les deux symétries est présentée en figure 6.17. La dépendance en température est faible, mais la différenciation en symétrie est nette, $1 + \lambda_{B_{2g}}^0 \approx 1,5(1 + \lambda_{B_{1g}}^0)$, avec plus précisément $1 + \lambda^0 = 2,50 \pm 0,05$ et $3,5 \pm 0,5$ respectivement en B_{1g} et B_{2g} .

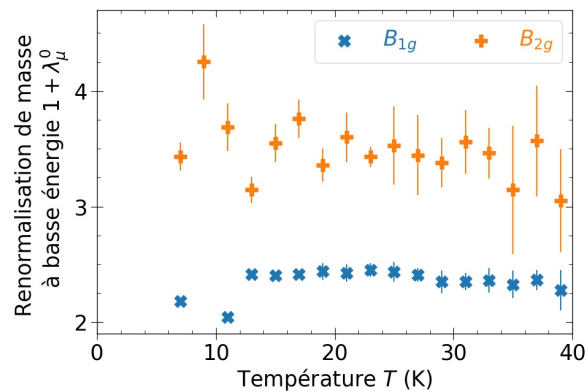


FIGURE 6.17 – Dépendance en température en B_{1g} et B_{2g} du facteur de renormalisation de la masse extrapolé à énergie nulle.

	ω_{FL} (meV)	T_{FL} (K)	α (10^{-2} meV $^{-1}$)	β (10^{-1} meV $^{-1}$)
B_{1g}	15–20	≈ 25 –30	$3,0 \pm 0,2$	$7,0 \pm 0,2$
B_{2g}	8–12	≈ 25 –30	10 ± 3	$9,2 \pm 0,2$
B_{2g}/B_{1g}	0,4–0,8	≈ 1	3–4,5	$\approx 1,3$

	Γ_{00} (meV)	p	$1 + \lambda(\omega \rightarrow 0)$
B_{1g}	0,4	$1,6 \pm 0,1$	$2,5 \pm 0,05$
B_{2g}	1,2	$0,85 \pm 0,1$	$3,5 \pm 0,5$
B_{2g}/B_{1g}	≈ 3	$\approx 0,5$	1,2–1,6

TABLEAU 6.3 – Différentiation des paramètres de liquide de Fermi en B_{1g} et B_{2g} .

6.3.3.4 Bilan sur la différenciation B_{1g}/B_{2g}

Le tableau 6.3 donne le bilan des paramètres de liquide de Fermi en B_{1g} et B_{2g} , avec précision du ratio entre les deux symétries. Pour tous les paramètres, la différenciation entre les deux symétries est claire.

Les ordres $\alpha_{B_{1g}} < \alpha_{B_{2g}}$, $\beta_{B_{1g}} < \beta_{B_{2g}}$ et $\omega_{FL,B_{1g}} > \omega_{FL,B_{2g}}$ montrent que l'état de liquide de Fermi est plus robuste en B_{1g} qu'en B_{2g} : quand l'énergie ou la température augmentent, les quasiparticules sondées en B_{2g} tendent plus rapidement à perdre leur caractère de liquide de Fermi que celles sondées en B_{1g} . Ceci montre de plus grandes corrélations électroniques dans le cas B_{2g} , ces corrélations entrant en concurrence avec l'établissement d'un état fondamental de liquide de Fermi. De façon cohérente, la renormalisation de masse due aux corrélations est plus importante en B_{2g} qu'en B_{1g} : $1 + \lambda_{B_{2g}}^0 > 1 + \lambda_{B_{1g}}^0$, et la gamme à basse énergie dans laquelle $1 + \lambda(\omega)$ est constant est plus réduite en B_{2g} qu'en B_{1g} .

Concernant le rapport d'échelle de Gurzhi, le plus grand éloignement de 2 pour $p_{B_{2g}}$ indique de nouveau des propriétés de liquide de Fermi moins établies pour les quasiparticules sondées en B_{2g} . Cependant, le résultat $p < 2$ dans les deux configurations montre la présence d'effets non triviaux influençant le comportement des quasiparticules dans les deux symétries. En particulier, $p \neq 2$ peut être lié aux effets de diffusion élastique dépendants de l'énergie, qui contribuent à une dépendance en énergie de l'auto-énergie mais pas à une dépendance en température [178]. La différenciation B_{1g}/B_{2g} pour p pourrait indiquer que ces effets de diffusion élastique présentent une dépendance orbitalaire.

6.3.4 Anisotropie plan – hors plan des paramètres de liquide de Fermi

Pour l'analyse des spectres via la méthode de la fonction mémoire, je me suis ci-avant intéressé uniquement aux symétries B_{1g} et B_{2g} . Via un modèle simple de liaisons fortes et l'approximation de la masse effective, je relierai dans la section 6.4 ces symétries à certaines orbitales sondées : ces deux canaux sont complémentaires de ce point de vue.

Il est cependant intéressant d'extraire les paramètres de liquide de Fermi dans les configurations hors plan pour discuter de l'anisotropie entre les réponses dans le plan (ab) et selon l'axe c . Dans cette section, je présente les résultats de l'analyse des spectres en $A_{1g}(c)$ - \tilde{b} et E_g , que je compare aux réponses planaires B_{1g} et B_{2g} .

La figure 6.18 présente le taux de relaxation et le facteur de renormalisation de la masse à 15 K, comparés entre les réponses planaires B_{1g} et B_{2g} et les réponses hors plan $A_{1g}(c)$ - \tilde{b} et E_g . La figure 6.19 présente le taux de relaxation et le facteur de renormalisation de masse dans les configurations hors plan, pour l'ensemble des températures sondées.

Dans les configurations hors plan, $\Gamma_\mu(\omega)$ est globalement plus élevé que dans les confi-

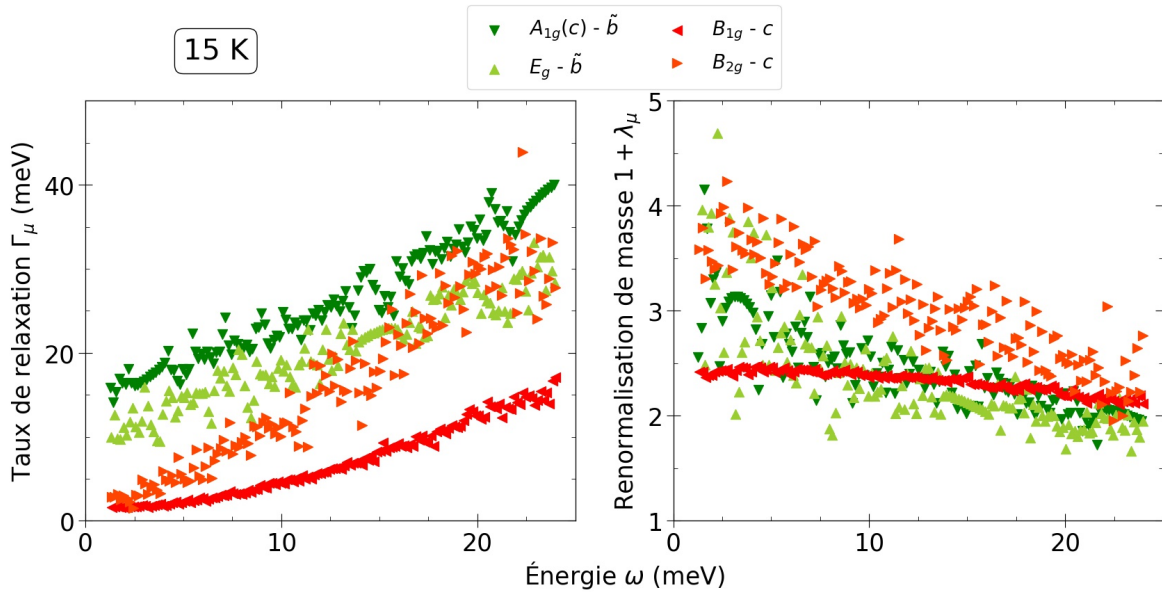


FIGURE 6.18 – Taux de relaxation (gauche) et renormalisation de la masse (droite) obtenus par la méthode de la fonction mémoire en B_{1g} , B_{2g} , $A_{1g}(c) - \tilde{b}$ et E_g à 15 K. En $A_{1g}(c) - \tilde{b}$, le mode M1 a été soustrait des spectres avant analyse. Dans la légende, je précise la symétrie sondée et la direction de propagation des photons pour chaque configuration.

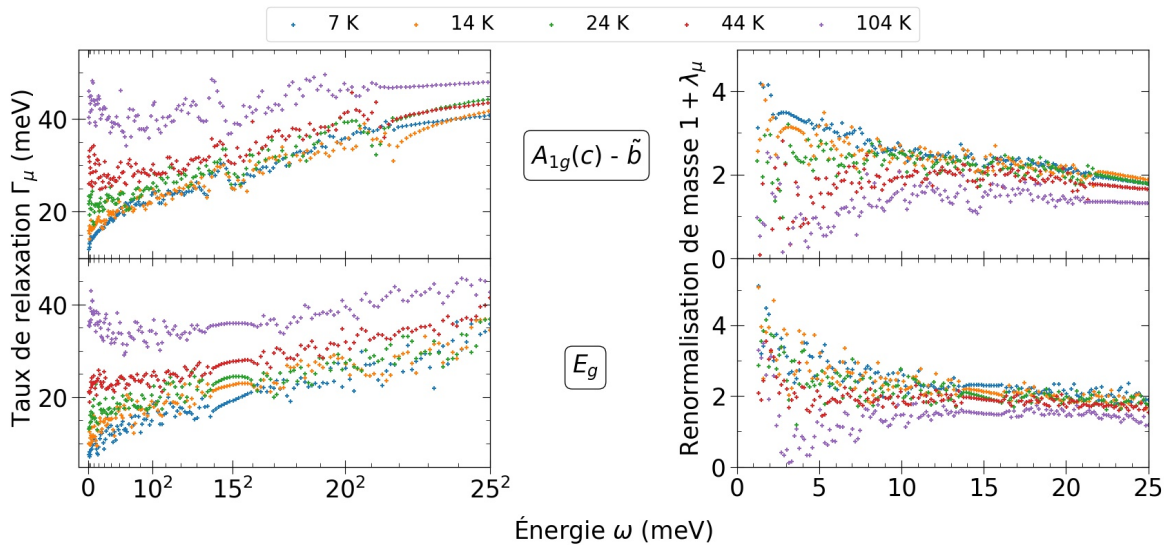


FIGURE 6.19 – Taux de relaxation (gauche) et facteur de renormalisation de la masse (droite) obtenus par la méthode de la fonction mémoire dans les configurations hors plan pour l'ensemble des températures sondées.

gurations planaires, comme la forme des spectres le suggérait, avec un pic de Drude à plus haute énergie dans les premières que dans les secondes. Le comportement quadratique n'est pas apparent à basse énergie. Le facteur d'anisotropie Γ^c/Γ^{ab} entre le taux de relaxation hors plan et planaire dépend de l'énergie, il vaut environ 5 pour le taux de relaxation statique et diminue quand l'énergie augmente. $\Gamma(\omega, T)$ augmente normalement avec la température, mais avec mes données je ne peux pas extraire $\Gamma_0(T)$ et vérifier son comportement quadratique, ni le rapport d'échelle de Gurzhi.

Concernant $1 + \lambda(\omega)$, celui-ci décroît rapidement entre 0 et 10 meV pour les réponses hors plan ; cette forte décroissance est cohérente avec le taux de relaxation élevé, comme c'est le cas en B_{1g} et B_{2g} à haute température. Les valeurs de $1 + \lambda(\omega)$ à basse énergie sont similaires à B_{2g} , indiquant de fortes corrélations. Je n'obtiens pas de claire anisotropie, les valeurs de renormalisation de masse dans le plan et hors plan étant du même ordre de grandeur. $1 + \lambda(\omega, T)$ décroît globalement avec la température, avec un comportement semblable à celui des configurations planaires.

6.4 Interprétation orbitalaire de la différentiation B_{1g}/B_{2g}

Dans cette section, je tente d'assigner à chaque symétrie sondée, B_{1g} et B_{2g} , un ou plusieurs processus d'excitations intra ou interorbitaux. Pour cela, je calcule les vertex Raman dans chaque symétrie. J'utilise un modèle de liaisons fortes et l'approximation de la masse effective. Ainsi j'interprète la différentiation B_{1g}/B_{2g} que j'obtiens expérimentalement comme une dichotomie des propriétés de liquides de Fermi des quasiparticules selon la composition orbitalaire des feuillets de la surface de Fermi.

6.4.1 Bandes et orbitales

Avant de détailler les calculs, je précise le cadre du modèle en revenant sur une subtilité dans la description du matériau, déjà discutée au chapitre 1, mais importante pour bien comprendre la suite : les propriétés des quasiparticules peuvent être étudiées en termes de bandes, ou en termes d'orbitales, ou, comme les deux sont liées, via une vision hybride.

Les résultats expérimentaux montrent que la surface de Fermi est multibandes, trois bandes traversant le niveau de Fermi créant dans la zone de Brillouin trois feuillets α , β et γ . Les calculs de structure de bande sont en accord avec les expériences, et précisent que ces trois bandes sont construites à partir des orbitales t_{2g} du ruthénium, à savoir d_{xy} , d_{xz} et d_{yz} : les processus d'excitation à la base des propriétés électroniques sont fondamentalement des transitions entre ces orbitales. Le contenu orbitalaire des bandes est complexe : α est quasi purement $d_{xz/yz}$; β et γ sont principalement composées respectivement de $d_{xz/yz}$ et d_{xy} , mais leur composition orbitalaire est parfaitement mélangée selon la direction diagonale de la zone de Brillouin. Les modèles théoriques peuvent discuter du comportement des quasiparticules selon leur origine orbitalaire, mais dans le matériau réel, les quasiparticules issues de différents processus orbitaux se côtoient au sein des bandes. Les techniques expérimentales accédant aux propriétés électroniques de façon discriminée entre plusieurs régions de la zone de Brillouin (ARPES, oscillations quantiques, spectroscopie Raman notamment) sondent les quasiparticules d'un cristal réel, donc des quasiparticules dans des bandes. Pour relier les résultats expérimentaux au modèle orbitalaire, il faut considérer le contenu orbitalaire des bandes. C'est ce que font par exemple Tamai et collaborateurs dans leur analyse de résultats d'ARPES, en discutant leurs résultats de bandes à la lumière du contenu orbitalaire de celles-ci, obtenu par calculs en théorie de la fonctionnelle de la densité (en anglais *density-functional theory*, DFT) [248].

Dans le cas de la spectroscopie Raman, la considération des représentations irréductibles du groupe ponctuel cristallin me permet de calculer les vertex Raman dans la base orbitalaire, via un modèle de liaisons fortes de sauts orbitaux et l'approximation de la masse effective. Dans ce modèle, au sein d'une même bande sondée dans une symétrie μ , je peux discriminer des quasiparticules provenant de différents processus orbitaux.

6.4.2 Calcul des vertex Raman

6.4.2.1 Modèle de liaisons fortes

Je considère un modèle de liaisons fortes bidimensionnel entre les trois orbitales t_{2g} de la sous-couche d du ruthénium, qui gouvernent les propriétés électroniques de Sr₂RuO₄, d_{xy} , d_{xz} et d_{yz} , médiées par les orbitales p de l'oxygène. Je définis les énergies de transition intraorbitales $\epsilon_n(\mathbf{k})$ dans l'orbitale n , et les transitions interorbitales $\epsilon_{m,n}(\mathbf{k})$ entre les orbitales m et n .

La figure 6.20 représente les orbitales dans un plan RuO₂, et définit les intégrales de saut t_i modélisant les différentes transitions intra et interorbitales possibles. Pour les orbitales unidimensionnelles d_{xz} et d_{yz} , je considère uniquement les sauts premiers voisins via les orbitales p de l'oxygène, avec des sauts beaucoup plus favorables dans la direction de l'orbitale, d'où $t_1 \gg t_2$. Pour les orbitales bidimensionnelles d_{xy} , je considère à la fois des sauts premiers voisins via les orbitales p de l'oxygène, et des sauts seconds voisins, représentés respectivement par t_3 et t_4 , avec $t_3 > t_4$. Je considère enfin des transitions interorbitales uniquement entre d_{xz} et d_{yz} , avec t_5 . Je ne prends pas ici en compte le couplage spin-orbite, j'en explique la raison plus bas. Les expressions des énergies de transitions sont ⁸ :

$$\epsilon_{xz}(\mathbf{k}) = -2t_1 \cos(k_x) - 2t_2 \cos(k_y) \quad (6.1)$$

$$\epsilon_{yz}(\mathbf{k}) = -2t_2 \cos(k_x) - 2t_1 \cos(k_y) \quad (6.2)$$

$$\epsilon_{xy}(\mathbf{k}) = -2t_3(\cos(k_x) + \cos(k_y)) - 4t_4 \cos(k_x) \cos(k_y) \quad (6.3)$$

$$\epsilon_{xz,yz}(\mathbf{k}) = -4t_5 \sin(k_x) \sin(k_y) \quad (6.4)$$

$$\epsilon_{xz,xy}(\mathbf{k}) = \epsilon_{yz,xy}(\mathbf{k}) = 0 \quad (6.5)$$

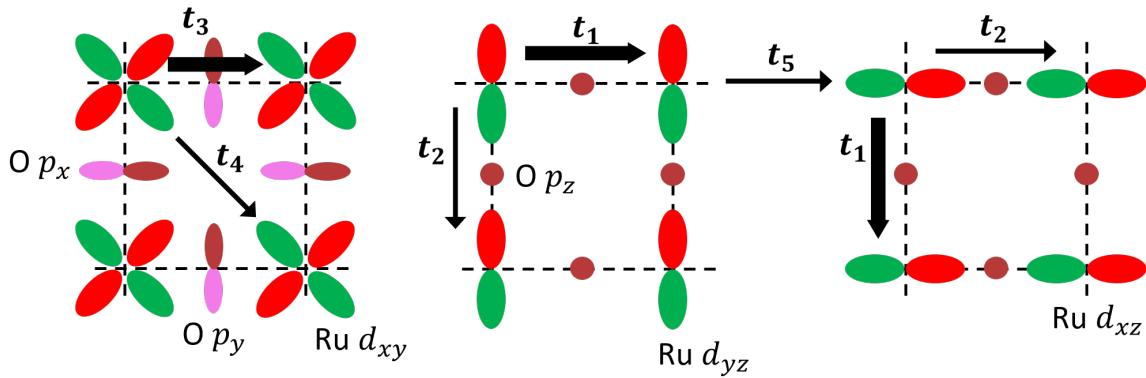


FIGURE 6.20 – Représentation des intégrales de saut t_i entre les orbitales d du ruthénium. L'épaisseur des flèches représente qualitativement la valeur du saut t_i correspondant.

Le tableau 6.4 présente les valeurs de t_i prises dans différentes références. Dans la suite, je reprends les valeurs de la référence [22].

8. Dans la référence[218], un terme en $-2t_6(\cos(2k_x) + \cos(2k_y))$ est ajouté à $\epsilon_{xy}(\mathbf{k})$, avec $t_6 = 0,06t_1$.

Référence	t_1	t_2	t_3	t_4	t_5
[22]	1	0.09	1.4	0.57	0.14
[272]	1	0.13	0.67	0.27	/
[57, 218]	1	0.1	0.91	0.45	/
[181]	1	/	1.6	0.48	/
[197]	1	/	0.94	0.44	0.11
[200]	1	0.1	0.8	0.32	0.16
[188]	1	0.15	1.42	0.45	0.32

TABLEAU 6.4 – Paramètres du modèle de liaisons fortes choisis dans la littérature, en unités de t_1 . Deux groupes de références sont séparés par une ligne horizontale : dans le premier, les paramètres sont obtenus par comparaison avec des résultats expérimentaux, dans le second par comparaison avec des calculs théoriques de structures de bandes.

6.4.2.2 Approximation de la masse effective

Dans l'approximation de la masse effective, les vertex Raman en B_{1g} et B_{2g} sont donnés par les équations (3.17) et (3.18). J'obtiens les vertex Raman $\gamma_{orb}^\mu(\mathbf{k})$ dans la base orbitale (d_{xz} , d_{yz} , d_{xy}). La composante de la matrice aux coordonnées (m,n) ou (n,m) correspond aux processus intra ou interorbitaux entre les orbitales m et n .

$$\gamma_{orb}^{B_{1g}}(\mathbf{k}) = \begin{pmatrix} t_1 \cos(k_x) - t_2 \cos(k_y) & 0 & 0 \\ 0 & t_2 \cos(k_x) - t_1 \cos(k_y) & 0 \\ 0 & 0 & t_3(\cos(k_x) - \cos(k_y)) \end{pmatrix} \quad (6.6)$$

$$\gamma_{orb}^{B_{2g}}(\mathbf{k}) = \begin{pmatrix} 0 & -4t_5 \cos(k_x) \cos(k_y) & 0 \\ -4t_5 \cos(k_x) \cos(k_y) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -4t_4 \sin(k_x) \sin(k_y) \end{pmatrix} \quad (6.7)$$

Dans le modèle de liaisons fortes, je n'ai pas pris en compte le couplage spin-orbite. Celui-ci se manifesterait par des coefficients non diagonaux couplant les trois orbitales, et sa prise en compte nécessiterait de prendre une base orbitale découplée en spin, donc à six composantes. Cela aurait alourdi le calcul, pour un résultat complètement équivalent au niveau des expressions (6.6) et (6.7). En effet, le terme de couplage spin-orbite est indépendant de \mathbf{k} : dans l'approximation de la masse effective, il disparaîtrait du calcul au moment des dérivations par rapport aux composantes de \mathbf{k} . Cependant, ceci ne signifie ni que je néglige le couplage spin-orbite, ni que celui-ci ne joue aucun rôle dans la discussion, comme je l'explique dans la suite.

6.4.3 Première discussion qualitative

Pour la discussion qui suit, je rappelle que la réponse Raman est proportionnelle au carré du module du vertex Raman (équation (3.7)). Pour une symétrie μ , les processus d'excitation électronique sondés sont ceux pour lesquels la composante correspondante de γ_{orb}^μ est non nulle, et la réponse Raman correspondante est proportionnelle au carré de cette composante.

Les expressions des vertex Raman (6.6) et (6.7) montrent que les canaux B_{1g} et B_{2g} sondent des processus différents. B_{1g} sonde uniquement des transitions intraorbitales, pour les trois orbitales, quand B_{2g} sonde les transitions intraorbitales de d_{xy} uniquement, et les

transitions interorbitales $d_{xz} \leftrightarrow d_{yz}$. L'absence de contribution intraorbitale $d_{xz,yz}$ en B_{2g} provient de l'absence de couplage seconds voisins considéré entre ces orbitales.

J'ignore dans un premier temps l'impact de la dépendance en \mathbf{k} des vertex et considère uniquement les valeurs relatives des t_i . C'est une approximation assez grossière, mais elle me permet d'évaluer très qualitativement les poids relatifs des différents processus au sein d'une même symétrie. Comme les vertex interviennent au carré dans la réponse Raman, les ratios pertinents à considérer sont les rapports des t_i au carré. Comme $t_3 \sim t_1$, on peut s'attendre à ce que B_{1g} sonde de façon équivalente les trois processus intraorbitaux. Selon les auteurs, t_4 est de 1,5 à 4 fois plus élevé que t_5 , ce qui indique que le processus interorbital est faible par rapport au processus intraorbital en B_{2g} . Enfin, le fait que t_1 et t_3 sont deux fois plus élevés que t_4 explique l'intensité globale plus élevée en B_{1g} qu'en B_{2g} .

Cette première discussion qualitative permet de justifier que la différenciation B_{1g}/B_{2g} peut être ramenée à une différenciation orbitalaire. On n'a pas de résolution orbitalaire en B_{1g} , et on accède à des propriétés des quasiparticules moyennées selon les trois orbitales. En revanche, le canal B_{2g} est beaucoup plus sensible à d_{xy} qu'aux deux autres. Pour être plus quantitatif, je considère dans la suite la dépendance en \mathbf{k} des vertex.

6.4.4 Poids des vertex orbitaux le long de la surface de Fermi

Dans la première discussion qualitative, j'ai négligé la dépendance en \mathbf{k} des vertex. Celle-ci peut cependant avoir un impact important, que je discute maintenant. J'ai indiqué plus haut que la réponse Raman est proportionnelle au carré du vertex Raman : plus précisément, pour un vertex variant dans la zone de Brillouin, elle est proportionnelle à l'intégrale du carré du module du vertex selon \mathbf{k} (voir l'équation (3.7)). Cette intégration est également pondérée par les fonctions spectrales : cela signifie que, comme je sonde des excitations de faibles énergie et moment, proches du niveau de Fermi, la réponse Raman est très majoritairement dominée par les régions de la zone de Brillouin où passe la surface de Fermi. Autrement dit, la réponse Raman est d'autant plus intense que les vertex Raman prennent des valeurs importantes le long de la surface de Fermi.

La discussion qui suit reste semi-quantitative. Je m'intéresse uniquement au poids des vertex, et pas à celui des fonctions spectrales. Je représente les dépendances en \mathbf{k} des vertex, mais ne discute quantitativement que leurs valeurs maximales, alors que c'est l'intégrale en \mathbf{k} des vertex qui intervient dans la réponse Raman. De plus, toute la discussion se fonde sur un modèle de liaisons fortes et sur l'approximation de la masse effective, qui ne sont pas des modélisations parfaites. Même au sein d'un modèle de liaisons fortes, des paramétrisations différentes amènent des modifications dans la forme et l'intensité des vertex.

La figure 6.21 représente l'intensité des différentes composantes des vertex Raman dans la première zone de Brillouin, superposée à la surface de Fermi. Pour pouvoir comparer des vertex Raman calculés dans la base orbitalaire avec une surface de Fermi constituée de bandes, il faut considérer le contenu orbitalaire des bandes. Une complexité supplémentaire est que ce caractère multiorbital de chaque bande varie également avec \mathbf{k} .

J'ai expliqué ci-avant que la contribution du couplage spin-orbite disparaît dans le calcul des vertex Raman. Ici, je le prends indirectement en compte : seule l'influence du couplage spin-orbite permet d'expliquer la forme précise de la surface de Fermi expérimentale et sa distribution orbitalaire.

Dans la discussion qui suit, j'écris $|\gamma_{orb}^\mu|^2$ en omettant le module et le carré pour ne pas alourdir l'écriture.

Je décris d'abord la symétrie B_{1g} . Les maxima de $\gamma_{xy,xy}^{B_{1g}}$ sont situés aux points M , près desquels se situe le feuillet γ , dont le contenu est à 80 % d_{xy} dans la direction $\Gamma-M$. Le feuillet β est plus éloigné de M , et son contenu n'est que 20 % d_{xy} dans la direction $\Gamma-M$.

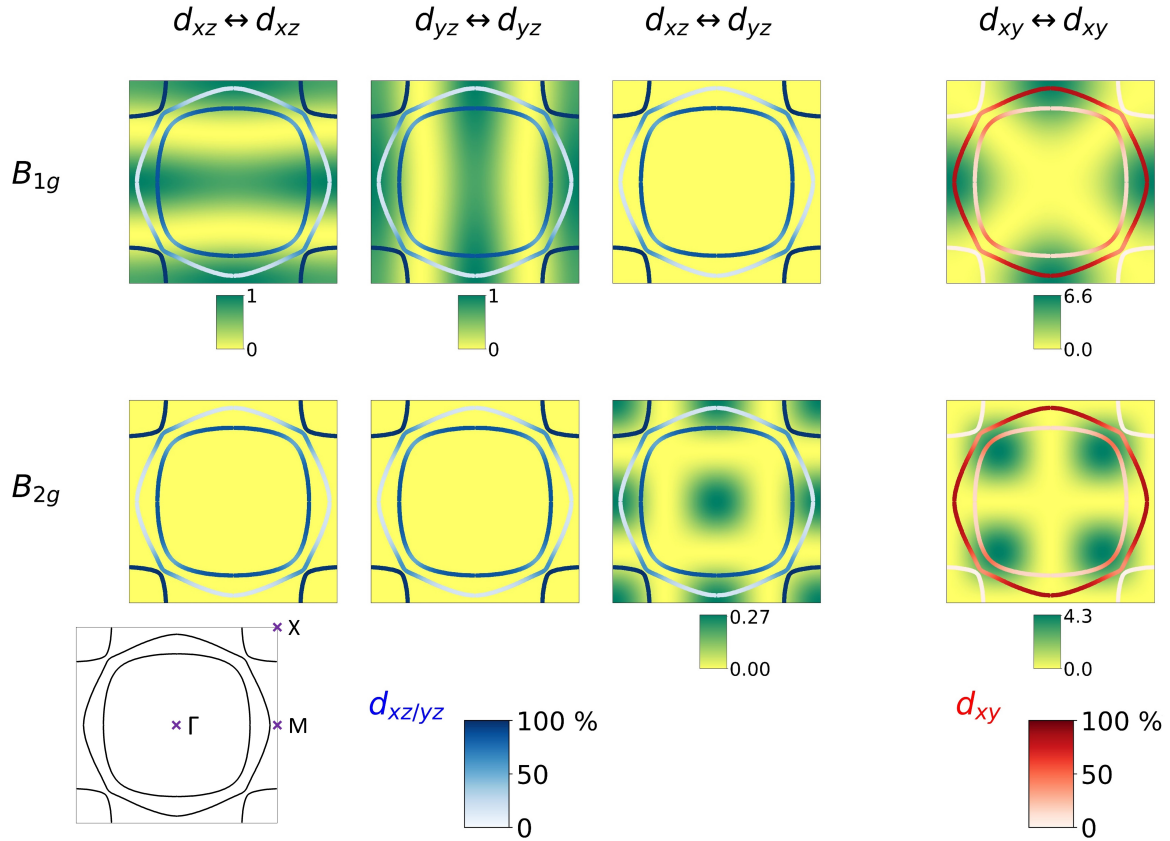


FIGURE 6.21 – Intensité des vertex Raman orbitaux en B_{1g} et B_{2g} , pour chaque processus intra ou interorbitaire. L'échelle de couleur recouvrant l'entièreté de chaque zone de Brillouin représente l'intensité du vertex Raman (module au carré), dans la symétrie et pour le processus correspondants. Les valeurs numériques correspondantes sont précisées sous chaque sous-graphique, sauf quand le vertex est identiquement nul (couleur jaune). Ces valeurs sont renormalisées par rapport au maximum du vertex $\gamma_{xz,xz}^{B_{1g}}$. La surface de Fermi est représentée en traits pleins : la couleur locale de la ligne représente le contenu orbitalaire. Pour les colonnes correspondant à des processus concernant d_{xz} ou d_{yz} , il s'agit du contenu orbitalaire dans ces orbitales, dont le pourcentage de présence est donné par la barre de couleur dans les teintes de bleu. Respectivement, pour la colonne correspondant aux processus intraorbitaires d_{xy} , il s'agit du contenu orbitalaire dans cette orbitale, dont le pourcentage de présence est donnée par la barre de couleur dans les teintes de rouge. L'encart en bas à gauche rappelle la position des points Γ , M et X dans la zone de Brillouin. Les intensités des vertex dépendent des paramètres de liaisons fortes considérés. Ici, j'ai pris les paramètres de la référence [22]. En prenant les paramètres de la référence [218], les valeurs maximales des vertex $\gamma_{xy,xy}^{B_{1g}}$, $\gamma_{xz,yz}^{B_{2g}}$ et $\gamma_{xy,xy}^{B_{2g}}$, normalisées par rapport à $\gamma_{xz,xz}^{B_{1g}}$, valent respectivement 2,7, 0,03 et 2,7. Également, la transition supplémentaire considérée par la référence [218] modifie légèrement la forme du vertex $\gamma_{xy,xy}^{B_{1g}}$, avec des lobes amincis et rapprochés de Γ .

La symétrie B_{1g} sonde donc des processus intraorbitaux d_{xy} , majoritairement sur le feuillet γ . Les vertex $\gamma_{xz,xz}^{B_{1g}}$ et $\gamma_{yz,yz}^{B_{1g}}$ ont une symétrie de rotation d'ordre 2, l'un étant l'image de l'autre par une rotation de 90° : ces deux vertex sondent des régions équivalentes de la zone de Brillouin carrée, et donc des régions équivalentes de la surface de Fermi. Les régions maximales de ces vertex se superposent à la fois à : α , qui est quasi totalement $d_{xz/yz}$; β dans la direction Γ - M , qui est majoritairement (80 %) $d_{xz/yz}$ selon cette direction ; et γ dans la direction Γ - M , qui est minoritairement (20 %) $d_{xz/yz}$ selon cette direction. La symétrie B_{1g} sonde donc également des processus intraorbitaux $d_{xz/yz}$, majoritairement sur les feuillets

α et β . Comme vu plus haut, les processus interorbitaux ne sont pas sondés en B_{1g} . Enfin, avec les paramètres de la référence [22], la valeur maximale de $\gamma_{xy,xy}^{B_{1g}}$ est plus de 6 fois plus grande⁹ que celle de $\gamma_{xz,xz}^{B_{1g}}$ ou $\gamma_{yz,yz}^{B_{1g}}$.

Je m'intéresse maintenant à la symétrie B_{2g} . Elle ne sonde pas les processus intraorbitaux $d_{xz/yz}$. En ce qui concerne les processus interorbitaux entre d_{xz} et d_{yz} , les maxima du vertex $\gamma_{xz,yz}^{B_{2g}}$ sont éloignés des régions de la surface de Fermi contenant majoritairement ces orbitales. De plus, le maximum de $\gamma_{xz,yz}^{B_{2g}}$ est plus de 15 fois plus faible que celui de $\gamma_{xy,xy}^{B_{2g}}$. Les maxima de ce dernier sont situés dans la direction $\Gamma-X$, proche de la région d'hybridation entre β et γ , où le contenu d_{xy} est d'environ 50 %. Ces maxima se recouvrent plus favorablement avec β qu'avec γ , mais le contenu d_{xy} de ce dernier est globalement plus important.

Dans ce cadre semi-quantitatif d'interprétation, où je prends en compte les poids des vertex mais où je néglige les effets de la dépendance en \mathbf{k} de la densité d'état au niveau de Fermi, je conclus que : la symétrie B_{1g} sonde majoritairement les processus intraorbitaux d_{xy} , et minoritairement les processus intraorbitaux des deux autres orbitales ; la symétrie B_{2g} sonde très majoritairement les processus intraorbitaux d_{xy} , avec des poids probablement équivalents entre β et γ , et très minoritairement les processus interorbitaux $d_{xz} \leftrightarrow d_{yz}$.

6.4.5 Interprétation orbitale des résultats

Dans la section 6.3.3, j'ai montré une différenciation quantitative expérimentale claire entre B_{1g} et B_{2g} concernant le taux de relaxation des quasiparticules et leur renormalisation de masse : B_{2g} sonde des quasiparticules davantage corrélées que B_{1g} , avec un caractère de liquide de Fermi moins robuste.

La discussion semi-quantitative de la section 6.4.4 indique que la différenciation expérimentale peut être interprétée comme une différenciation orbitale. En effet, B_{2g} sonde quasi uniquement des quasiparticules issues de l'orbitale d_{xy} , alors que pour B_{1g} , les influences des trois orbitales sont davantage équilibrées. En se basant uniquement sur la discussion précédente, on pourrait estimer que B_{1g} sonde majoritairement d_{xy} . Cependant, cela paraît contradictoire avec la très grande différenciation expérimentale entre B_{1g} et B_{2g} , qui semble indiquer que le poids de $d_{xz/yz}$ dans B_{1g} domine. Pour déterminer précisément les poids respectifs des orbitales en B_{1g} , des calculs plus réalistes que le modèle semi-quantitatif que j'ai utilisé sont nécessaires, avec notamment une prise en compte de l'effet de l'intégration sur \mathbf{k} des vertex et des fonctions spectrales.

Dans tous les cas, le fait que B_{1g} sonde de façon non négligeable $d_{xz/yz}$ quand B_{2g} ne les sonde quasiment pas, indique que les quasiparticules sont davantage corrélées selon l'orbitale d_{xy} que selon les orbitales d_{xz} et d_{yz} . Cette différenciation orbitale est cohérente avec la description de Sr₂RuO₄ comme un métal de Hund.

6.4.6 Comparaison à l'état de l'art

Comme je l'ai indiqué ci-avant, les résultats de la littérature expérimentale sur Sr₂RuO₄ s'intéressant à des différenciations de comportement des quasiparticules dans la zone de Brillouin considèrent le plus souvent les bandes. Ce sont en effet celles-ci auxquelles on accède expérimentalement. La discussion en termes d'orbitales ne concerne que les articles les plus récents, pour lesquels la détermination du caractère orbitale des bandes a été faite. Ainsi, la comparaison de mes résultats, interprétés en termes de différenciation orbitale, avec d'autres résultats de la littérature peut être limitée, quand il s'agit d'articles ne considérant que les bandes, et pas leur contenu orbitale.

9. Ce ratio n'est que de 2,7 avec les paramètres de la référence [218].

La comparaison avec les résultats de la littérature doit prendre en compte la possible sous-estimation des paramètres de liquide de Fermi dans mes résultats, du fait du choix de ω_c relativement faible (voir l'annexe B.2). On peut contourner cette sous-estimation en considérant uniquement des ratios de renormalisation de masse entre bandes ou entre orbitales. Ceci nous permettra également de jauger cette sous-estimation.

Je prends comme référence les ratios de renormalisation de la masse mesurés par oscillations quantiques et ARPES : $\frac{1+\lambda_\gamma}{1+\lambda_\alpha} \approx 1,8$. On sait qu' α est quasi purement $d_{xz/yz}$, quand γ est majoritairement composé de d_{xy} . J'en déduis que le ratio $\frac{1+\lambda_{xy}}{1+\lambda_{xz/yz}}$ devrait être légèrement supérieur à 1,8. De mon côté, j'obtiens un ratio $\frac{1+\lambda_{B_{2g}}}{1+\lambda_{B_{1g}}} \approx 1,5$. Comme B_{2g} est purement d_{xy} , et que B_{1g} est un mélange des trois orbitales, ce ratio légèrement plus faible que $\frac{1+\lambda_{xy}}{1+\lambda_{xz/yz}}$ est cohérent. De plus, contrairement à ce qu'on peut déduire des paramètres du modèle de liaisons fortes, le fait que $\frac{1+\lambda_{B_{2g}}}{1+\lambda_{B_{1g}}} \approx \frac{1+\lambda_\gamma}{1+\lambda_\alpha}$ indique que B_{1g} est davantage sensible à $d_{xz/yz}$ qu'à d_{xy} . Ainsi, je conclus que le ratio de masses entre B_{1g} et B_{2g} est, dans l'interprétation orbitaire, cohérent avec les résultats d'oscillations quantiques.

Par contre, mes valeurs absolues de $1 + \lambda_\mu$ sont plus faibles que les valeurs obtenues par mesures des oscillations quantiques. Je considère que cet écart est dû à ω_c : $1 + \lambda_{B_{1g}}$ devrait être compris entre $1 + \lambda_\alpha$ et $1 + \lambda_\gamma$, et $1 + \lambda_{B_{2g}}$ légèrement plus élevé que $1 + \lambda_\gamma$. Je vérifie que cet écart disparaît si je multiplie $1 + \lambda_{B_{1g}}^0$ et $1 + \lambda_{B_{2g}}^0$ par un même facteur correctif d'ordre 1,5–1,7.

Également, $1 + \lambda$ mesuré en conductivité optique [243] vaut environ 3,3 à basses température et énergie. Les calculs des contributions de $d_{xz/yz}$ et d_{xy} à la masse effective sont faits, à température plus élevée (150 K), dans la référence [222]. Malgré une différenciation avec $1 + \lambda_{xy} > 1 + \lambda_{xz/yz}$, ces contributions sont plus grandes que la valeur expérimentale. Comparées aux oscillations quantiques, cette valeur est plus proche de la renormalisation de la masse de α que de γ . J'en déduis que cette valeur a priori moyennée sur l'ensemble de la surface de Fermi est en fait plus représentative de α . Ceci correspond à l'intuition que la conductivité optique est davantage sensible aux bandes plus légères, présentant une vitesse de Fermi v_F plus élevée. Cette valeur devrait être légèrement plus faible que mon $1 + \lambda_{B_{1g}}^0$, ce qui est le cas si celui-ci est corrigé du facteur dû à ω_c .

La prise en compte du facteur correctif permet de réconcilier davantage mes résultats de taux de relaxation avec ceux de conductivité optique [243], en considérant de nouveau que mes résultats de $\Gamma_{B_{1g}}$ sont plus représentatifs des taux de relaxation de conductivité optique, qui sont plus sensibles à α et β .

Pour expliquer le comportement en température de la résistance de Hall, Zingl et collaboratrices [282] calculent par DMFT le ratio ξ des composantes inélastiques des taux de relaxations statiques entre d_{xy} et $d_{xz,yz}$. Dans le régime de liquide de Fermi, $\xi = \beta_{xy}/\beta_{xz,yz}$. Ils obtiennent $\xi = 3,0 \pm 0,3$ à 25 K, ce qui est significativement plus élevé que mon ratio des β entre B_{2g} et B_{1g} . Cette différence ne peut pas s'expliquer par le mélange orbitaire sondé en B_{1g} , mais je note que ma détermination des β est relativement peu précise. Dans l'hypothèse où la loi de Gurzhi serait vérifiée, ξ correspondrait également au ratio des α , qui vaut bien environ 3 dans mes résultats. La différence quantitative des résultats sur le ratio des β entre la DMFT et la spectroscopie Raman peut correspondre au fait que la loi de Gurzhi n'est pas expérimentalement vérifiée dans mon cas. Plus généralement, la diminution de ξ entre 25 et 200 K est cohérente avec la diminution de la différenciation entre les deux symétries que j'obtiens expérimentalement à la fois pour Γ_μ et $1 + \lambda_\mu$.

Je reviens ensuite sur la divergence des résultats de spectroscopie Raman et de conductivité optique [243] concernant le rapport d'échelle de Gurzhi. Au-delà des nuances, liées à l'interprétation des résultats expérimentaux, qu'on peut apporter quant à l'affirmation de

Stricker et collaborateurs que $p = 2$, une autre explication possible repose dans la discrimination orbitalaire que ne sonde que la spectroscopie Raman. En effet, considérant que la conductivité optique sonde préférentiellement les quasiparticules légères, on peut supposer que $p \rightarrow 2$ est valide pour les orbitales $d_{xz/yz}$. L'écart à $p = 2$ peut être dû à des effets de diffusion élastique dépendants de l'énergie. Si je suppose que de tels effets ont une dépendance orbitalaire, en étant par exemple beaucoup plus intenses selon d_{xy} que selon $d_{xz/yz}$, cela explique l'écart à 2 dans les deux symétries, beaucoup plus marqué dans la symétrie B_{2g} qui ne sonde que d_{xy} .

6.4.7 Différentiation magnétique

Dans ce qui précède, j'ai interprété la différenciation expérimentale B_{1g}/B_{2g} dans un cadre orbitalaire. Ce cadre correspond à la vision de métal de Hund de Sr_2RuO_4 . La physique de Sr_2RuO_4 peut être décrite dans des cadres différents du métal de Hund, insistant sur d'autres caractéristiques du matériau. C'est le cas par exemple de l'étude des fluctuations magnétiques¹⁰. Elles présentent également une différenciation orbitalaire entre des fluctuations antiferromagnétiques naissant des bandes α et β et des fluctuations ferromagnétiques attribuées à la bande γ , qui pourrait expliquer la dichotomie B_{1g}/B_{2g} .

Mais cette hypothèse explicative est limitée par plusieurs points. D'abord, dans une représentation en base bandes, le vertex Raman B_{1g} intrabande présente des lignes nodales selon les diagonales, c'est-à-dire précisément selon les directions des vecteurs correspondant aux fluctuations antiferromagnétiques. Le vertex Raman B_{1g} interbande entre α et β ne présente certes pas ces lignes nodales, mais, à basse énergie, on s'attend à ce que cette contribution interbande soit faible. En B_{2g} , les contributions des bandes α et β sont également limitées. Ainsi, les fluctuations antiferromagnétiques sont sans doute sondées très minoritairement dans les deux symétries. B_{1g} et B_{2g} sondent tout deux γ et ses fluctuations ferromagnétiques, qui sont au demeurant très faibles en intensité. Je considère donc que d'une part ces deux canaux ne sondent que très peu les fluctuations magnétiques, et d'autre part ils ne les sondent pas de façon très différenciée. De plus, la sortie du comportement de liquide de Fermi du taux de relaxation quand l'énergie augmente se fait graduellement, sans épaulement ou rupture de pente particuliers qu'on pourrait attribuer aux fluctuations magnétiques, dont les échelles d'énergies sont de l'ordre de 10 meV [238]. Il est donc probable que les fluctuations magnétiques ne jouent pas un rôle important dans la dichotomie B_{1g}/B_{2g} que j'observe expérimentalement.

6.5 Conclusions et perspectives de la spectroscopie Raman électronique de Sr_2RuO_4

J'ai interprété la dichotomie expérimentale B_{1g}/B_{2g} comme originant de la différenciation orbitalaire. Cette interprétation repose sur la description de la structure électronique du matériau à partir de ses orbitales, et peut s'inscrire dans le cadre décrivant Sr_2RuO_4 comme un métal de Hund. Dans cette description, les corrélations électroniques sont gouvernées par le couplage de Hund, et non par l'interaction de Hubbard et la proximité avec un isolant de Mott. Comme le couplage de Hund se fait au niveau atomique entre les orbitales, dans le cas de matériaux multiorbitaux, notamment les oxydes de métaux de transition de la série $4d$, sa présence peut provoquer une différenciation orbitalaire.

Mes résultats sont cohérents au moins qualitativement avec la représentation de Sr_2RuO_4 comme un métal de Hund dans lequel coexistent des quasiparticules fragiles et robustes dans

10. Des travaux théoriques [241] utilisent néanmoins l'approche en métal de Hund pour prédire les fluctuations magnétiques.

leur comportement de liquide de Fermi, c'est-à-dire des quasiparticules présentant des degrés de corrélation divers. La comparaison avec l'état de l'art indique un accord qualitatif, voire quantitatif en prenant en compte un facteur correctif, nonobstant la difficulté de comparer des techniques différemment sensibles aux bandes ou aux orbitales, dans le cadre d'un matériau multibandes où la composition orbitalaire des bandes est complexe.

L'apport unique de la spectroscopie Raman dans l'étude des propriétés de liquide de Fermi réside dans la résolution en symétries, qui permet, selon certaines hypothèses, de discriminer les contributions des différentes orbitales. Pour tester de façon plus quantitative la cohérence de mes résultats avec le modèle de métal de Hund, en allant plus loin que la simple discussion semi-quantitative en termes de vertex Raman, il serait intéressant de calculer de façon réaliste les spectres Raman résolus en symétrie. Ce calcul devrait inclure la contribution des fonctions spectrales, et une forme plus réaliste des bandes que celles données par le modèle de liaisons fortes. Également, il devrait aller au-delà de l'approximation de la masse effective pour le calcul des vertex Raman, en notant particulièrement que ceux-ci peuvent être renormalisés par les interactions entre électrons du liquide de Fermi¹¹.

Je n'ai pas sondé le matériau dans son état supraconducteur : néanmoins, les apports de connaissance sur son état métallique peuvent également contribuer à la compréhension de l'état supraconducteur qui en émerge. Notamment, la représentation de Sr_2RuO_4 comme un métal de Hund permet d'envisager de nouveaux mécanismes d'appariement supraconducteur, mettant en jeu des interactions entre orbitales [125].

11. Ces renormalisations, appelées corrections de vertex, ont été calculées par DMFT pour la réponse Raman d'un modèle de Hubbard à une bande sur un réseau carré [155]. Leur impact est important proche d'une transition de Mott : leur prise en compte est par exemple essentielle pour reproduire certains traits des spectres Raman expérimentaux des cuprates supraconducteurs. À ma connaissance, des calculs similaires pour des systèmes multibandes ne sont pas encore disponibles.

Conclusion

“Why? Nobody ever knew. Nobody will ever know.”
“Isn’t that rather a sweeping statement, Sir Richard?”
asked Mr Quin, smiling.
Conway stared at him.
“What d’you mean? I don’t understand.”
“A problem is not necessarily unsolvable because it has remained unsolved.”

Agatha Christie, *The Coming of Mr Quin*,
in *The Mysterious Mr Quin* (1930)

Dans cette thèse, j’ai rapporté la mise en place d’un nouveau type de dispositif expérimental combinant spectroscopie Raman et application d’une contrainte uniaxiale. Plusieurs études antérieures de spectroscopie Raman utilisaient différents outils pour appliquer une contrainte sur l’échantillon sondé : elles souffraient de plusieurs limites inhérentes aux procédés employés. Ici, l’utilisation des nouvelles cellules développées par Clifford Hicks et collaboratrices [99], qui appliquent une contrainte uniaxiale avec un niveau de contrôle sans précédent et peuvent induire des déformations élevées, me permet d’accéder à de nouveaux faits expérimentaux. J’ai appliqué ce dispositif de spectroscopie élasto-Raman sur un représentant archétypique des supraconducteurs à base de fer, $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$, dont j’ai étudié le composé pur et le dopage à 7 %.

Le composé non dopé présente la température de transition structurale T_s et le paramètre d’ordre nématique à basse température les plus élevés, ce qui en fait un composé de choix pour l’étude de l’influence de la contrainte uniaxiale sur l’ordre et les fluctuations nématiques. J’ai montré, par l’étude de la réponse Raman phononique, que le mode du phonon de l’arsenic pouvait constituer un intermédiaire pertinent du paramètre d’ordre nématique. Dans la phase nématique, il permet de mesurer les proportions de domaines orthorhombiques. Ce paramètre d’ordre est activé au dessus de T_s par la déformation, selon une susceptibilité croissante à mesure que l’on se rapproche de T_s . Proche de cette température, la déformation supprime significativement les fluctuations nématiques, mesurées via le continuum électronique.

Dans le composé dopé à 7 %, j’ai comparé la suppression des fluctuations nématiques dans l’état supraconducteur et dans l’état normal. J’explique la suppression du pic supraconducteur sous déformation de façon cohérente avec son interprétation comme un mode de résonance nématique, exalté par les fluctuations nématiques que la déformation inhibe. La suppression des fluctuations nématiques pourrait également expliquer la diminution de T_c observée en mesures de transport.

Enfin, la comparaison entre les deux dopages me permet de discuter des paramètres théoriques décrivant la nématicité dans ce matériau. L’analyse de mes résultats indique qu’il n’y a pas d’affaiblissement du paramètre de couplage némato-élastique en s’approchant du dopage optimal. Il doit donc être pris en compte pour l’étude des phénomènes liés à la criticalité quantique, comme par exemple l’augmentation de T_c ou encore le comportement

non liquide de Fermi.

Mes résultats pourront être complétés par des études de spectroscopie élasto-Raman sur $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ à d'autres dopages. Également, l'effet d'une contrainte transverse (à 45° de la direction de distortion orthorhombique), dont plusieurs études expérimentales ont montré l'efficacité pour contrôler les températures de transitions structurale et magnétique, pourrait être étudié. Plusieurs autres matériaux apparaissent prometteurs pour des expériences de spectroscopie élasto-Raman. On peut déjà citer d'autres représentants de la famille des supraconducteurs à base de fer, comme $(\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x)\text{Fe}_2\text{As}_2$ ou encore $\text{FeSe}_{1-x}\text{S}_x$. Leur réponse Raman expérimentale sans contrainte est déjà bien connue, des éclaircies rapides dans leur compréhension pourraient donc être rapidement obtenues. Au-delà des supraconducteurs à base de fer, la spectroscopie élasto-Raman pourrait être appliquée sur $\text{Cu}_x\text{Bi}_2\text{Se}_3$, qui présente une supraconductivité nématique [180, 252, 275], ou sur Sr_2RuO_4 , dont des effets colossaux de la contrainte uniaxiale ont déjà été montrés par d'autres techniques.

C'est justement dans l'optique d'étudier Sr_2RuO_4 par spectroscopie élasto-Raman que s'inscrit le second ensemble de résultats présenté dans cette thèse : la réponse Raman électronique de ce matériau sans contrainte, qui était auparavant mal connue. Comme Sr_2RuO_4 est un liquide de Fermi, j'ai montré que la réponse Raman que j'obtiens expérimentalement s'interprète parfaitement dans le cadre de ce modèle. J'ai extrait des spectres les grandeurs caractéristiques d'un liquide de Fermi que sont le taux de relaxation des quasiparticules et la masse effective renormalisée par les corrélations électroniques. La réponse Raman varie significativement selon les symétries sondées, ce que j'interprète comme la marque de propriétés électroniques différentes selon les orbitales constituant la surface de Fermi. Mes résultats s'inscrivent dans le cadre de l'interprétation de Sr_2RuO_4 comme un métal de Hund. Ces résultats ont fait l'objet d'une publication [210].

Les résultats expérimentaux sous contrainte uniaxiale sur ce matériau, notamment en transport, montrent des modifications significatives du comportement de liquide de Fermi au passage de la transition de Lifshitz, quand la densité d'état atteint la singularité de van Hove. La spectroscopie élasto-Raman de ce matériau permettrait d'accéder à la dépendance en déformation du taux de relaxation et du facteur de renormalisation de la masse, pour connaître leur comportement en s'approchant de cette singularité. Ceci améliorerait la compréhension des mécanismes physiques à l'oeuvre dans Sr_2RuO_4 , notamment celui de son ordre supraconducteur, encore bien mystérieux.

Seconde Conclusion

If we dig precious things from the land, we will invite disaster.

Prophétie amérindienne Hopi, traduite et citée dans :
Godfrey Reggio, *Koyaanisqatsi* (1982)

La recherche en matériaux quantiques consiste à explorer les propriétés, notamment électroniques et magnétiques, d'alliages d'éléments chimiques. Mon travail s'inscrit dans cette recherche, en ayant porté sur trois tels matériaux : Sr_2RuO_4 , BaFe_2As_2 et $\text{BaFe}_{1,86}\text{Co}_{0,14}\text{As}_2$.

Pour justifier une telle recherche, selon l'endroit et l'interlocutrice, on choisira entre deux types d'arguments, mélangeables à loisir. Dans le premier, on mettra en valeur la quête désintéressée de la connaissance des lois physiques gouvernant la nature : comment telle structure, tel dopage, tel changement de température ou de contrainte uniaxiale modifient les propriétés du matériau ? C'est la recherche des causes contenues dans un modèle mathématique, étant présupposé que la nature est descriptible par un tel système auto-cohérent. Dans le second, on insistera sur les applications débouchant de cette recherche, et de leur impact sur le bonheur global de l'humanité, ou sur le chiffre d'affaires de certaines entreprises.

En matière condensée, si certain·e·s chercheuse·s sont davantage sensibles au premier type d'arguments pour motiver leur quotidien, et ne s'abaissent au second que pour amener les chaland·e·s, ou les décideuse·s politiques, la question de l'applicabilité de la recherche se pose tout particulièrement, et motive la recherche de beaucoup, dans l'académique ou l'industrie. On peut déjà noter un paradoxe, seulement apparent sans doute, mais révélateur : les matériaux quantiques sujets à l'étude des lois de la nature sont le plus souvent, et par exemple les trois sus-cités, des objets tout à fait artificiels, savamment synthétisés par des chimistes à partir des éléments les constituant¹. Cela n'empêche pas que les lois générales de la nature s'y appliquent ; mais se serait-on intéressé financièrement à la fabrication de nouveaux matériaux, si l'étude antérieure des matériaux naturels ne nous avait pas montré la possibilité de propriétés époustouflantes, par exemple la supraconductivité, qui fut découverte dans le très simple et naturel mercure ?

Je ne vois dans cette distinction nature–synthèse qu'un argument symbolique, de même que l'opposition nature–culture n'est souvent qu'une poudre aux yeux. Mais elle me permet, via la visée applicative de cette recherche qui en est le moteur suprême, d'évoquer maintenant un enjeu qui leur est commun : la matière première.

La troisième révolution énergétique que connaît l'humanité depuis le tournant du millénaire, et qui permet notamment l'essor des technologies numériques, se fonde sur une matière première bien plus discrète que le charbon ou le pétrole : appelés métaux rares, ce ne sont autres que les éléments à la base de ces matériaux quantiques dont la recherche académique a, progressivement depuis un petit siècle, montré tout l'intérêt technologique. Je renvoie

1. Les réactifs en source de la chaîne de synthèse sont les éléments purs ou des alliages naturels, par exemple SrCO_3 pour Sr_2RuO_4 .

aux multiples sources disponibles rendant compte de leur enjeu géopolitique et leur impact écologique désastreux (excavation, raffinage, transport, assemblage...) ².

Comme pour d'autres avancées technologiques dangereuses mais à l'impact économique sans pareil (les visées applicatives dont je parlais plus haut), l'enjeu est de trouver, de façon démocratique et mondiale, le compromis acceptable. Je n'ai évidemment pas la prétention dans présenter un ici. Il me paraissait seulement utile, voire nécessaire, de conclure une thèse de matière condensée sur l'évocation de ces thématiques. Les matériaux que j'ai étudiés présentent quelques éléments rares : strontium, ruthénium, cobalt, barium... dont les réserves s'épuisent, et dont l'utilisation, vues les conditions d'extraction et de manufacture, pose des questions d'éthique. Évidemment, si en proportions de la production mondiale, 64 % du cobalt, 93 % du ruthénium et 44 % de la baryte (à la base du barium) sont extraits respectivement en République démocratique du Congo, en Afrique du Sud et en Chine ³, la part qu'en occupent mes échantillons, ou même tous les échantillons de Sr_2RuO_4 et de Co-Ba122 étudiés par des physiciens et physiciennes académiques de la matière condensée, est probablement ultranégligeable, par rapport à ce qu'utilisent les industries, à côté desquelles tout sentiment de culpabilité serait dérisoire. La seule question pertinente est : si nous développons indirectement aujourd'hui les outils technologiques de demain, ou si, rêvons, nous découvrons que les câbles supraconducteurs alimentant les industries du futur puissent être à base de Sr_2RuO_4 ou de Co-Ba122 sous contrainte uniaxiale, pourrions nous en assumer les prix ?

2. Voir par exemple, le livre-enquête de Guillaume Pitron, *La Guerre des métaux rares*, éd. Les liens qui libèrent. Pour un témoignage cinématographique, de plus de trente ans mais toujours d'actualité, et pour rester dans le thème de l'épigraphe, voir les premières minutes de *Powaqqatsi* (Godfrey Reggio, 1988).

3. Voir le livre de G. Pitron sus-cité.

Annexes

Annexe A

Compléments sur l'analyse des résultats de spectroscopie élasto-Raman de $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$

Dans cette annexe, je précise plusieurs éléments de l'analyse des spectres élasto-Raman de $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ présentés au chapitre 5. En section A.1, je détaille le processus d'ajustement Fano des modes du phonon de l'arsenic proche de T_s et montre les ajustements obtenus. En section A.2, je discute de la déformation réelle dans l'échantillon, en montrant mes résultats de simulations numériques par éléments finis sur Ba122 autour de T_s . En section A.3, j'indique le raisonnement et les calculs permettant de décrire le comportement du coefficient élastique C_{66} sous contrainte finie. En section A.4, j'explique le comportement en température d'un paramètre d'ordre de type Ising en présence d'un champ externe. Enfin en section A.5, j'étudie l'impact de la soustraction d'une composante extrinsèque dans l'analyse du continuum dans BFA0.

Sommaire

A.1 Ajustements de Fano du phonon de l'arsenic	193
A.2 Simulations numériques par éléments finis autour de la transition structurale	194
A.3 Coefficient élastique sous contrainte finie	199
A.4 Paramètre d'ordre sous champ	201
A.5 Soustraction d'une composante extrinsèque dans BFA0	202

A.1 Ajustements de Fano du phonon de l'arsenic

Proche de T_s (aux températures sondées de 118, 145 et 154 K), le mode Raman du phonon de l'arsenic (visible sous T_s , ou au-dessus de T_s sous déformation), présente une allure significativement asymétrique, ce qui est dû à son couplage avec les degrés de liberté électronique. Ce couplage rend difficile l'extraction de l'intensité propre du phonon. Une première méthode consiste à intégrer directement le signal dans la zone d'énergie du phonon, après avoir soustrait un fond continu. Une seconde méthode est un ajustement précis du mode avec une allure Fano pour désintriquer les contributions phononique et électronique. Je donne au chapitre 5 les avantages et inconvénients des deux méthodes, qui dans les faits ont donné des résultats similaires aux barres d'erreur près. Pour ne pas alourdir l'analyse,

j'ai choisi de ne présenter dans cette thèse que les résultats des ajustements Fano. Dans cette annexe, je détaille le processus d'ajustement Fano.

Le couplage entre un mode discret, ici le phonon de l'arsenic, et un continuum large, ici le continuum d'excitation électronique, conduit à une allure asymétrique caractéristique qui peut être décrite par une analyse de mode couplé décrite dans le modèle de Fano. En suivant l'approche de Klein [136], je considère un mode de phonon nu, décrit par une fonction δ de Dirac d'aire πt_{ph} , couplé à un continuum électronique plat ρ , qui se couple à la lumière par une amplitude t_e . La partie imaginaire de la réponse couplée électron-phonon χ , la quantité qui est mesurée en spectroscopie Raman, prend la forme :

$$\chi''(\epsilon) = \pi t_e^2 \rho \frac{(\omega_0 - \omega - v \frac{t_{ph}}{t_e})^2}{(\omega_0 - \omega)^2 + (v^2 \pi \rho)^2} \quad (\text{A.1})$$

v est la paramètre de couplage électron-phonon et ω_0 est l'énergie effective du phonon (renormalisée par l'interaction).

Pour l'ajustement du phonon de l'arsenic dans Ba122, j'ai utilisé les paramètres suivants : $A = \pi t_e^2 \rho$, $B = \frac{v}{t_e}$, ω_0 et t_{ph} . Cette paramétrisation a l'avantage d'impliquer explicitement la quantité d'intérêt, l'amplitude du phonon nu t_{ph} , dans l'algorithme d'ajustement, ce qui réduit la variance lors de son évaluation. La réponse prend alors la forme suivante, utilisée pour obtenir les intensités représentées en figures 5.7 et 5.9 au chapitre 5 :

$$\chi''(\epsilon) = A \frac{(\omega_0 - \omega - t_{ph} B)^2}{(\omega_0 - \omega)^2 + (A B^2)^2} \quad (\text{A.2})$$

Plus précisément, pour ajuster les données il était nécessaire d'ajouter un terme de fond y_0 , représentant la part du continuum qui n'interagit pas avec le phonon.

Pour les spectres avec des pics intenses et bien définis, notamment ceux pour $T < T_s$ ou à forte déformation, l'algorithme d'ajustement converge convenablement en laissant les quatre paramètres libres. En revanche, pour les spectres présentant un pic plus faible, il s'est avéré nécessaire de fixer au moins un des paramètres pour assurer une convergence plus systématique. J'ai choisi de prendre B constant, en supposant que les quantités v et t_e ne varient pas significativement avec la déformation. J'ai vérifié que les valeurs ajustées de ω_0 et t_{ph} ne varient que faiblement avec les différents choix de B , typiquement au sein de la barre d'erreur standard. Les ajustements des spectres en fonction de la déformation et en fonction de la température sont présentés respectivement en figures A.1 et A.2.

Dans la dépendance en température sous forte déformation, les ajustements révèlent également une petite anomalie de $\omega_0(T)$ (figure A.3), avec un saut d'environ 1 cm^{-1} vers 145 K. Un ramollissement similaire a été observé sans déformation [214], sans doute lié à la transition antiferromagnétique à T_N (dont la valeur légèrement augmentée sous déformation est cohérente avec les résultats de RMN [133]).

A.2 Simulations numériques par éléments finis autour de la transition structurale

J'ai expliqué en section 4.2.7 comment la déformation réelle dans l'échantillon (ϵ_{xx}) diffère de la déformation nominale (ϵ_{xx}^{nom}), du fait de la transmission imparfaite par la colle de la contrainte appliquée : j'avais illustré ce phénomène avec des simulations numériques, dans le cas générique d'un échantillon relativement rigide. Or pour Ba122, la suppression

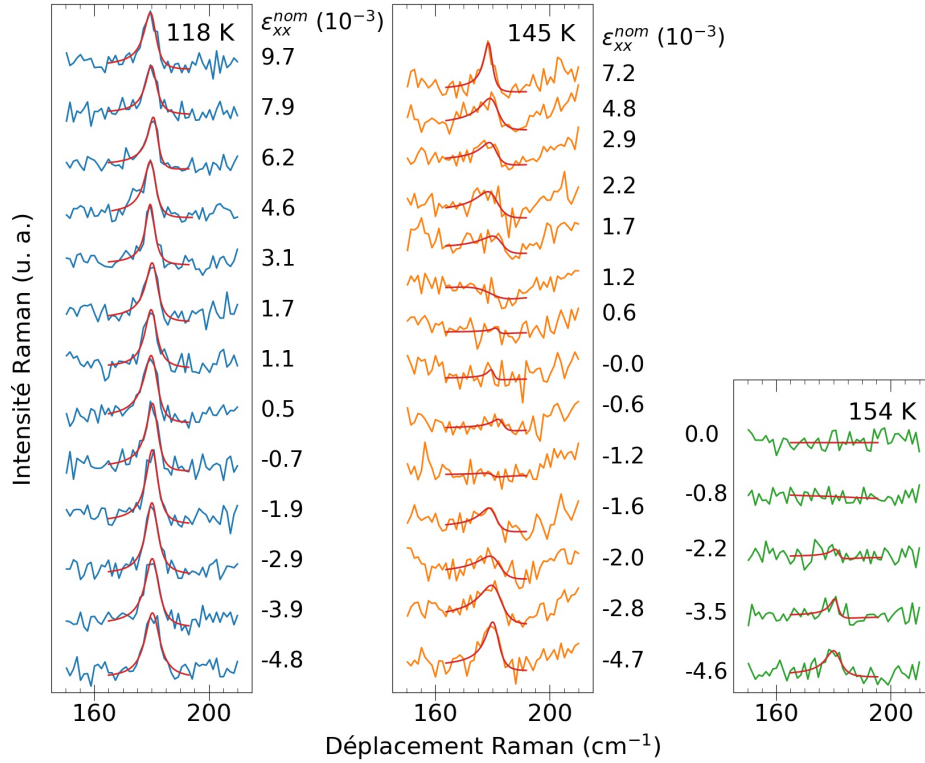


FIGURE A.1 – Ajustements des modes du phonon de l’As par une allure Fano pour les dépendances en déformation à température fixée, à 118, 145 et 154 K (ajustements en lignes rouges).

de C_{66} quand T se rapproche de T_s modifie significativement les propriétés mécaniques de l’échantillon, qui devient beaucoup plus souple. Également, le coefficient de Poisson planaire change avec C_{66} , ce qui modifie la décomposition de ϵ_{xx} selon A_{1g} et B_{2g} . Dans cette section, je discute de l’impact de ce phénomène, en montrant mes résultats de simulations numériques par éléments finis prenant en compte ce ramollissement.

J’ai effectué le même type de simulations qu’en section 4.2.7 qui contient plus de détails sur leur implémentation. J’impose dans le modèle un déplacement compressif de $1\ \mu\text{m}$. Je reprends les mêmes notations, en particulier en définissant la contrainte imposée selon la direction $[110]$, que je note (Ox') (alors que dans la présentation des résultats au chapitre 5, je note (Ox) la direction de contrainte).

Pour prendre en compte le ramollissement en température de l’échantillon, j’effectue plusieurs simulations en modifiant les propriétés élastiques de l’échantillon, c’est-à-dire les composantes de son tenseur de raideur. Je me place aux températures sondées expérimentalement, soit 145, 154 et 188 K, en les comparant avec 300 K. Les valeurs des coefficients aux températures étudiées sont prises dans la référence [77], et listées dans le tableau A.1. Dans la pratique j’ai modifié pour chaque température l’ensemble des coefficients élastiques, même si seul C_{66} change significativement.

La figure A.4 compare les valeurs de $\epsilon_{x'x'}$ et $\epsilon_{B_{2g}}$ le long de la barrette (donc en fonction de x') pour les trois températures sondées au-dessus de $T_{s,0} = 138\ \text{K}$ et la température ambiante. Pour ces quatre températures, je retrouve le profil symétrique, avec une région centrale présentant un champ de déformation quasiment constant, et deux régions périphériques dans lesquelles la déformation décroît fortement en s’éloignant de la région centrale.

Quand on se rapproche de T_s , la taille de la région centrale décroît. Elle a comme longueur minimale $400\ \mu\text{m}$ à 145 K : cette longueur est bien plus grande que les dimensions du point

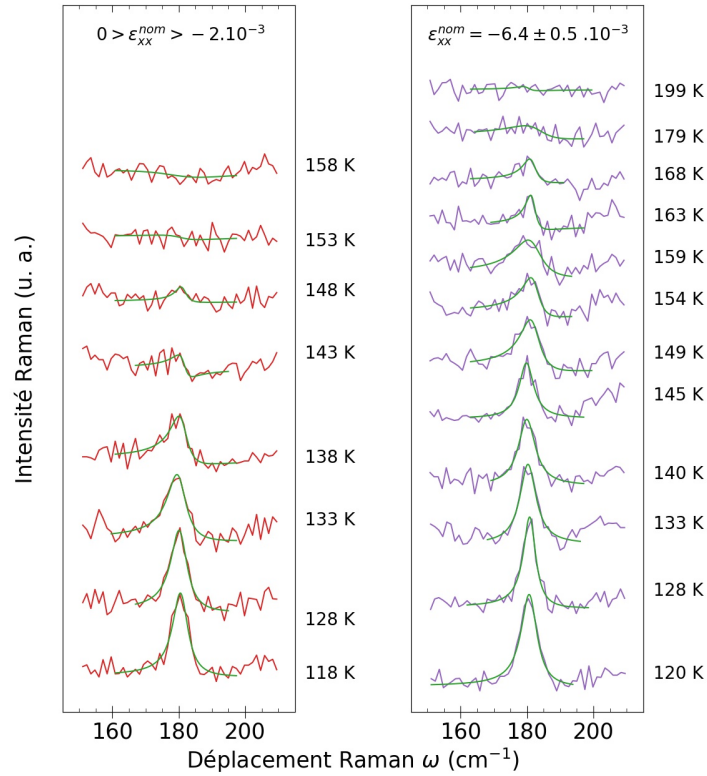


FIGURE A.2 – Ajustements des modes du phonon de l'As par une allure Fano pour les dépendances en température à déformation fixée (ajustements en lignes vertes).

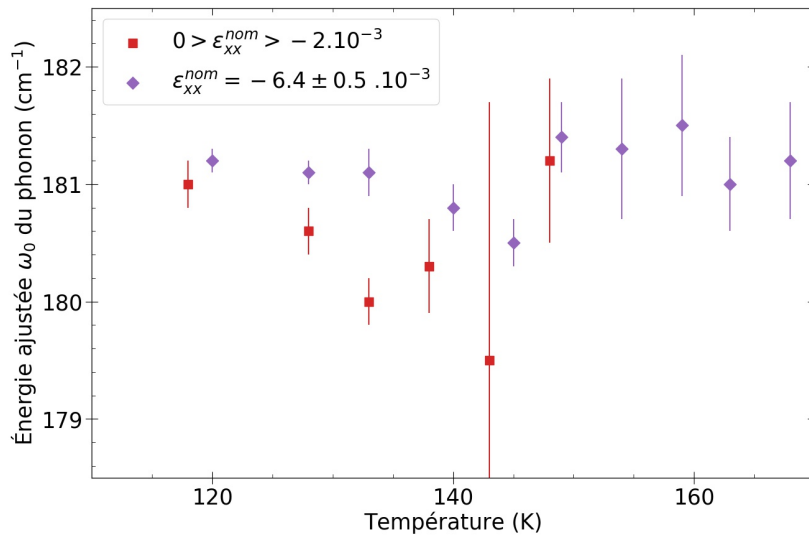


FIGURE A.3 – Énergie du mode du phonon de l'As au passage de $T_{s,0}$ sous faible ou forte déformation, obtenue par ajustements des modes par une allure Fano.

de focalisation laser sur l'échantillon (de taille inférieure à 100 μm). Ainsi, à condition de choisir un point laser suffisamment centré sur l'échantillon, la déformation est homogène dans la zone sondée pour les quatre températures. L'homogénéité de la déformation aux quatre températures dans les directions y' et z est illustrée par la figure A.5. L'homogénéité selon z est parfaite aux quatre températures. Selon y' elle se dégrade quand on se rapproche de T_s ,

Composé	Température (K)	C_{11}	C_E	$C_{12} = C_{13}$ $= C_{11} - 2C_E$	C_{33}	C_{44}	C_{66}
BaFe ₂ As ₂	145	95	39.5	16	75	41	8
	154	95	39.5	16	75	41	15
	188	94	39.5	15	75	41	26
	300	93	38	17	73	36	35

TABEAU A.1 – Valeurs des coefficients élastiques à différentes températures estimées à partir de la référence [77]. Tous les coefficients élastiques sont donnés en GPa.

mais reste très bonne (à 5 %) à 145 K dans la région centrale pour y' entre -150 et 150 μm .

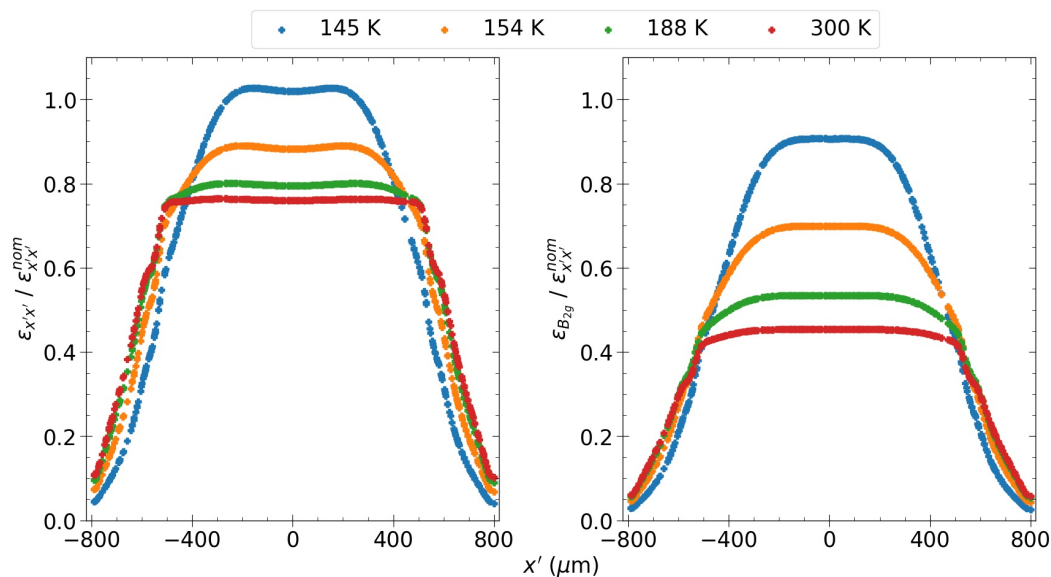


FIGURE A.4 – Profil de déformations réelles $\epsilon_{x'x'}$ et $\epsilon_{B_{2g}}$ (renormalisées par rapport à la déformation nominale) le long de l'échantillon pour quatre températures.

Dans la région centrale, le coefficient de transmission μ augmente quand T se rapproche de $T_{s,0}$, comme attendu. Il ressort cependant un phénomène a priori contre-intuitif : la valeur maximale de μ est supérieure à 1 à 145 K. À cette température, ce dépassement est très léger ($\mu \approx 1,03$), mais on s'attend à ce qu'il augmente quand on se rapproche encore de T_s , soit quand C_{66} décroît encore. Pour évaluer cet effet, j'ai effectué des simulations supplémentaires avec $C_{66} = 4/1/0,1/0$ GPa. Les résultats sont présentés en figure A.6. J'observe une forte augmentation de $\mu(x' = 0)$ quand C_{66} diminue, concomitante à un rétrécissement de la région centrale d'homogénéité¹.

Pour expliquer cet effet de transmission maximale exacerbée, il faut remarquer que la déformation réelle devient très faible dans les régions périphériques à mesure que C_{66} diminue. Ceci permet d'avoir une déformation forte en centre d'échantillon, la seule exigence étant que l'intégrale de la déformation réelle sur la barrette, qui correspond au déplacement maximal dans l'échantillon, soit inférieure au déplacement imposé. Cela est vérifié dans le graphique de droite de la figure A.6. L'augmentation drastique de l'inhomogénéité limite théoriquement la possibilité de sonder l'échantillon, pour des températures trop proches de T_s et avec des

1. Même pour ces très faibles valeurs de C_{66} , la déformation reste homogène selon z ; selon y' , comme selon x' , la région centrale d'homogénéité rétrécit.

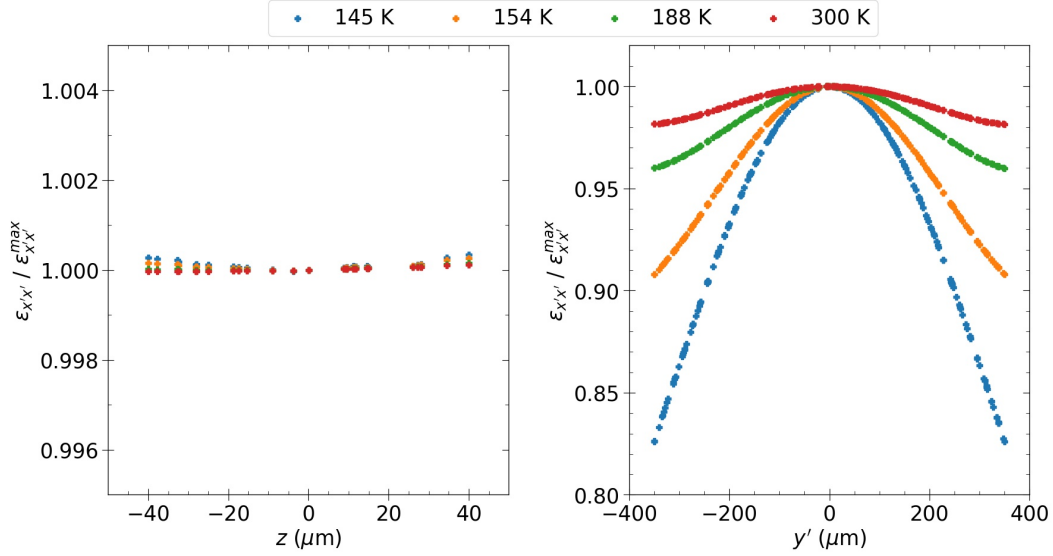


FIGURE A.5 – Profil de la déformation réelle $\epsilon_{x'x'}$ dans les directions transverses y' et z pour quatre températures. Pour chaque température, $\epsilon_{x'x'}$ est renormalisée par rapport à sa valeur maximale (autour de $(x',y',z) = (0,0,0)$) à cette température dans la figure A.4. Plus précisément, le résultat selon (Oz) est obtenu le long de la ligne verticale à $(x',y') = (0,0)$, mais j'ai vérifié que le résultat est similaire pour les autres lignes verticales. De même, le résultat selon (Oy') est obtenu le long de la ligne horizontale « de cœur » à $(x',z) = (0,0)$, mais j'ai vérifié que le résultat est identique pour une ligne (Oy') en surface.

sondes qui ne sont pas purement locales. Ce jugement doit cependant être nuancé. D'abord, l'annulation totale de C_{66} à T_s est expérimentalement toujours en question : elle a été obtenue indirectement par mesures d'élasto-diffraction des rayons X [221], mais des mesures antérieures davantage directes [29, 77] obtenaient un ramollissement incomplet. Également, les résultats de la figure A.6 sont le fruit de simulations numériques : pour un échantillon réel, on peut supposer que des défauts locaux modifient le profil de déformation. De plus, ce profil très inhomogène est limité aux températures proches de $T_{s,0}$ de seulement quelques K. Je n'ai effectué des mesures que pour $C_{66} \geq 8$ GPa, pour lesquelles l'homogénéité en centre d'échantillon est très bonne d'après les simulations.

Plus généralement, le résultat de la figure A.6 (graphique droit) est instructif dans le sens où, même s'il n'est pas pertinent pour la sonde « locale » qu'est la spectroscopie Raman, le ratio entre le déplacement maximal dans l'échantillon et le déplacement imposé apparaît comme une grandeur plus représentative de la transmission de la déformation globale dans l'échantillon.

Les résultats de ces simulations permettent également de nuancer la pertinence de la grandeur $\epsilon_{x'x'}^{nom}$ pour décrire la déformation. J'ai évoqué précédemment (notes 9 et 22 du chapitre 4) qu'il y avait déjà une ambiguïté sur la façon de définir cette déformation nominale : on pourrait considérer de façon également pertinente L_s ou L_t pour la calculer. Mais seule $\epsilon_{x'x'}$ a un sens physique pertinent, sans ambiguïté théorique dans sa définition ou son calcul, et les simulations montrent qu'elle peut être sans problème supérieure à $\epsilon_{x'x'}^{nom}$ en centre d'échantillon si celui-ci est suffisamment souple.

Néanmoins, j'ai choisi de présenter mes résultats en fonction de $\epsilon_{x'x'}^{nom}$, en discutant à part les effets de transmission et de coefficients de Poisson. Ceci permet d'abord de ne pas accorder une confiance aveugle aux résultats des simulations numériques. Ensuite, ceci permet de discuter mes résultats avec ceux d'autres études sous contrainte, en général représentés selon ϵ_{xx}^{nom} (qui est toujours définie de la même façon à partir de la longueur suspendue). Enfin,

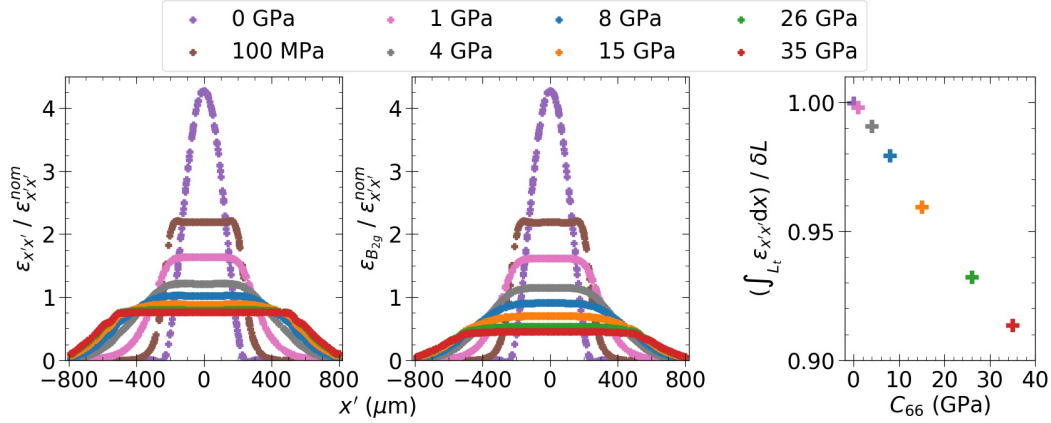


FIGURE A.6 – (Gauche et Milieu) Profil de déformations réelles $\epsilon_{x'x'}$ et $\epsilon_{B_{2g}}$ (renormalisées par rapport à la déformation nominale) le long de l'échantillon pour huit valeurs de C_{66} . Les courbes à 8, 15, 26 et 35 GPa correspondent respectivement aux températures de 145, 154, 188 et 300 K de la figure A.4. (Droite) Comparaison entre le déplacement maximal dans l'échantillon et le déplacement imposé en fonction de C_{66} .

et de façon plus subtile, les simulations que j'ai menées ne permettent pas de prendre en compte la diminution de la transmission à forte contrainte, due à l'augmentation de C_{66} sous forte déformation à température fixée, montrée expérimentalement [221] et que je discute en annexe A.3. En effet, j'ai considéré pour mes simulations un régime purement élastique, avec C_{66} indépendant de la déformation. Considérer $C_{66}(\epsilon)$ dans les simulations est délicat, et de validité quantitative discutable. Ainsi, en présentant mes résultats en fonction de $\epsilon_{x'x'}^{nom}$, j'évite de négliger implicitement ces effets non linéaires qui peuvent être significatifs.

A.3 Coefficient élastique sous contrainte finie

À contrainte infiniment petite, le coefficient élastique de symétrie B_{2g} C_{66} (que je note C dans la suite) diminue avec la température pour s'annuler à T_s . Cette suppression de C complique l'interprétation des résultats sous déformation nominale ϵ_{xx}^{nom} constante, car la transmission de la déformation et sa décomposition selon les symétries est fortement modifiée quand C varie significativement. Notamment, la transmission est parfaite et la déformation est purement B_{2g} pour $C = 0$.

Ce comportement élastique est décrit par l'énergie libre de Landau (équation (2.1)) et les calculs menés en section 2.2.3.1, aboutissant à la relation :

$$C = C_0 - \lambda^2 \chi = C_0 \left(\frac{T - T_s}{T - T_0} \right) \quad (\text{A.3})$$

valable pour $T \geq T_s$, avec annulation de C en T_s . Maintenant, dans l'expression de l'énergie libre de Landau, on peut choisir de pousser le développement en ϕ pour inclure le terme d'ordre 4 $\frac{u}{4} \phi^4$. Dans ce cas, en suivant le même raisonnement qu'en section 2.2.3.1, on obtient pour C :

$$C = C_0 - \frac{\lambda^2}{\chi^{-1} + 3u\phi^2} \quad (\text{A.4})$$

Dans la description de la transition némato-structurale spontanée, pour $T \geq T_s$, $\phi = \epsilon = 0$, donc on retrouve l'expression (A.3). Par contre, en présence d'une contrainte externe σ , les paramètres d'ordre ϵ et ϕ s'activent pour toute température et on ne peut plus simplifier l'expression (A.4). Pour préciser le comportement de C sous contrainte, il faut relier ϕ à σ . Pour cela, je repars de l'expression complète de l'énergie libre némato-structurale sous champ :

$$F = \frac{1}{2}\chi^{-1}\phi^2 + \frac{1}{4}u\phi^4 + \frac{1}{2}C_0\epsilon^2 - \lambda\epsilon\phi - \sigma\epsilon \quad (\text{A.5})$$

Je minimise cette expression respectivement par rapport à ϕ et par rapport à ϵ , et obtiens :

$$\epsilon = \frac{\chi^{-1}\phi + u\phi^3}{\lambda} \quad (\text{A.6})$$

$$\sigma = C_0\epsilon - \lambda\phi \quad (\text{A.7})$$

En combinant ces deux équations, j'obtiens l'équation décrivant le comportement du paramètre d'ordre nématique sous contrainte :

$$\left(\chi^{-1} - \frac{\lambda^2}{C_0}\right)\phi + u\phi^3 - \frac{\lambda\sigma}{C_0} = 0 \quad (\text{A.8})$$

Pour obtenir la dépendance de C en température sous champ, il faut résoudre l'équation fonctionnelle (A.8) d'inconnue $\phi(T)$ (je rappelle que $\chi^{-1} = a(T - T_0)$), et injecter le résultat dans l'équation (A.4). Le résultat est tracé en figure A.7 pour différentes valeurs de contrainte.

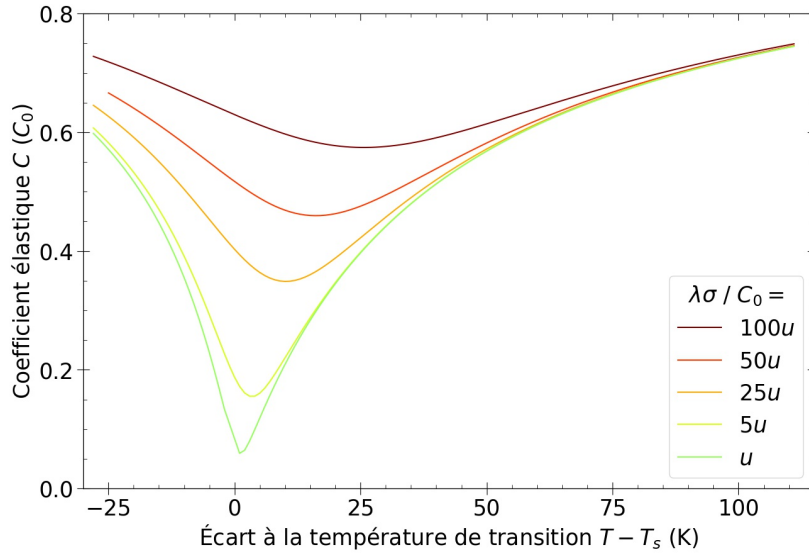


FIGURE A.7 – Dépendance en température du coefficient élastique C sous différentes valeurs du champ externe $h = \frac{\lambda\sigma}{C_0}$, autour de la température de transition T_s . J'ai pris comme paramètres numériques $(a, u, T_0, T_s, C_0) = (1, 1, 100 \text{ (K)}, 138 \text{ (K)}, 30 \text{ (GPa)})$ (ce qui fixe la valeur de λ à 33.8).

Pour une contrainte suffisamment forte, le ramollissement de C est en effet fortement supprimé, ce qui limite la dépendance en température du coefficient de Poisson et de la transmission de la contrainte. La question est maintenant d'estimer à quel régime de contrainte correspondent les mesures en dépendance en température sous forte déformation fixée présentées en figure 5.9. D'après les résultats de diffraction des rayons X sur un cristal de Co-Ba122 dopé à 3 % [221], le coefficient de Poisson et le facteur de transmission deviennent essentiellement indépendants de la température pour les déformations nominales supérieures à 5 ‰. Comme les mesures de la figure 5.9 sous forte déformation ont été effectuées à $|\epsilon_{xx}^{nom}| > 5 ‰$, elles correspondent vraisemblablement au régime dans lequel C est très peu dépendant de la température.

A.4 Paramètre d'ordre sous champ

Le comportement de $|\phi_{nem}^{As}|$ en fonction de la température à déformation fixée est représenté dans le texte principal en figure 5.9. Dans cette annexe, je montre que ce comportement correspond à celui d'un paramètre d'ordre de type Ising.

Le comportement d'un paramètre d'ordre de type Ising (par exemple le paramètre d'ordre nématique) sous un champ brisant la symétrie peut être décrit par le formalisme de l'énergie libre de Landau :

$$F = \frac{r}{2}\phi^2 + \frac{u}{4}\phi^4 + \frac{w}{6}\phi^6 - h\phi \quad (\text{A.9})$$

Dans l'équation (A.9), on retrouve le cas d'une transition nématique à T_s avec le paramètre d'ordre nématique ϕ , la susceptibilité inverse $r = \chi^{-1} = a(T - T_s)$. Je prends ici implicitement en compte la renormalisation de la température de transition nématique T_0 en T_s par le couplage avec le réseau, non explicitement écrit dans l'équation (A.9). h est le champ B_{2g} qui se couple linéairement à ϕ : dans le cas de la transition nématique, il s'agit de la déformation, avec $h = \lambda\epsilon$.

Le raisonnement que je développe ici est simplifié, dans le sens où je ne prends pas en compte la transition structurale. Pour décrire l'expérience réelle de façon plus rigoureuse, il faut considérer la transition némato-structurale complète, et le champ brisant la symétrie est la contrainte σ , qui se couple directement avec ϵ et non avec ϕ . Dans ce cadre, par rapport à l'équation (A.9), en gardant $h = \lambda\epsilon$, l'énergie libre complète contient en plus au minimum le terme élastique $1/2C\epsilon^2$ et le terme de couplage contrainte-déformation $-\sigma\epsilon$. Sous contrainte σ non nulle, on force le paramètre d'ordre élastique ϵ à prendre une valeur non nulle via $-\sigma\epsilon$, ce qui indirectement, via $-\lambda\epsilon\phi$, force ϕ à prendre une valeur non nulle. Pour la suite, je garde la vision simplifiée de l'équation (A.9), qui ne modifie pas l'analyse qualitative.

En minimisant l'énergie libre par rapport à ϕ , on obtient :

$$r(T)\phi + u\phi^3 + w\phi^5 - h = 0 \quad (\text{A.10})$$

La résolution numérique de cette équation fonctionnelle d'inconnue $\phi(T)$ pour différents champs h en gardant u , w et a constants, est présentée en figure A.8. Dans la figure 5.9, je reprends les courbes de la figure A.8 correspondant à $h = 5u$ et $h = 25u$ respectivement à faible et forte déformation.

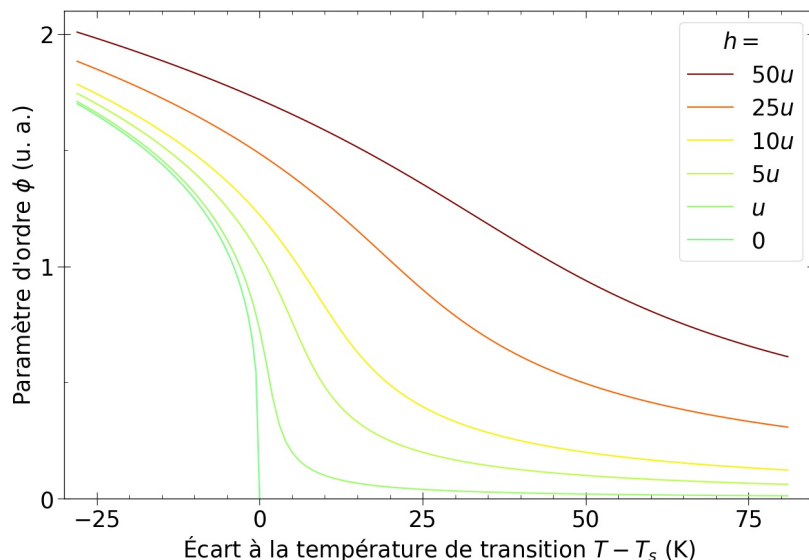


FIGURE A.8 – Dépendance en température d’un paramètre d’ordre ϕ sous différentes valeurs du champ externe h , autour de la température de transition T_s . J’ai pris comme paramètres numériques $(w, u, a) = (3, 1, 1)$.

A.5 Soustraction d’une composante extrinsèque dans BFA0

Au chapitre 5, j’ai présenté les spectres obtenus sur BFA0. En discutant des phonons ou du mode SDW, j’ai considéré les spectres bruts, éventuellement renormalisés par une constante multiplicative. Cependant, pour discuter du continuum électronique, et notamment pour extraire une susceptibilité nématique pertinente, il faut envisager la possibilité de la présence d’une composante extrinsèque non Raman dans l’intensité mesurée. Dans la variation relative de susceptibilité nématique $\delta\tilde{\chi}_{nem}/\tilde{\chi}_{nem,0}$, elle disparaît au numérateur mais contribue au dénominateur, ce qui amène une sous-estimation de la variation relative. Vu l’état de surface de l’échantillon BFA0 (figure 5.2), la présence d’une composante extrinsèque ne peut pas être écartée. De plus, l’utilisation de la cellule CS130 rend l’environnement de l’échantillon encombré par différents composants (cellule, vis, sonde de température...) qui peuvent diffuser des réflexions (sur l’échantillon, sur les vitres du cryostat...) de la lumière incidente. Ces diffusions hors axe proches de l’axe optique peuvent, malgré l’utilisation du spectromètre en mode triple, atteindre le détecteur et amener une intensité extrinsèque. Dans cette section, je considère le cas simple d’une composante extrinsèque constante sur l’ensemble de la gamme d’énergie.

La figure A.9 représente les réponses Raman obtenues sans considérer de soustraction. Le signal est plus élevé, et l’effet relatif de la déformation est plus faible qu’en considérant la soustraction (figure 5.10). Je note également que la déviation du comportement de Drude à basse énergie n’apparaît pas clairement à 118 et 154 K (mais bien à 145 K sous déformation), contrairement au cas avec soustraction.

La composante extrinsèque putative peut être quantitativement estimée en comparant les spectres Raman obtenus au cours de ma série d’expériences avec d’autres spectres acquis dans des conditions suffisamment proches (mais sans l’utilisation de la cellule CS130), sur un échantillon du même matériau (et au mieux du même lot de synthèse), de surface de meilleure qualité. Pour BFA0, je dispose de spectres Raman acquis par Yann Gallais sur un échantillon du même lot. Par contre, ils ont été obtenus en utilisant le dispositif Raman 2 (voir la description des deux dispositifs en section 3.6.1).

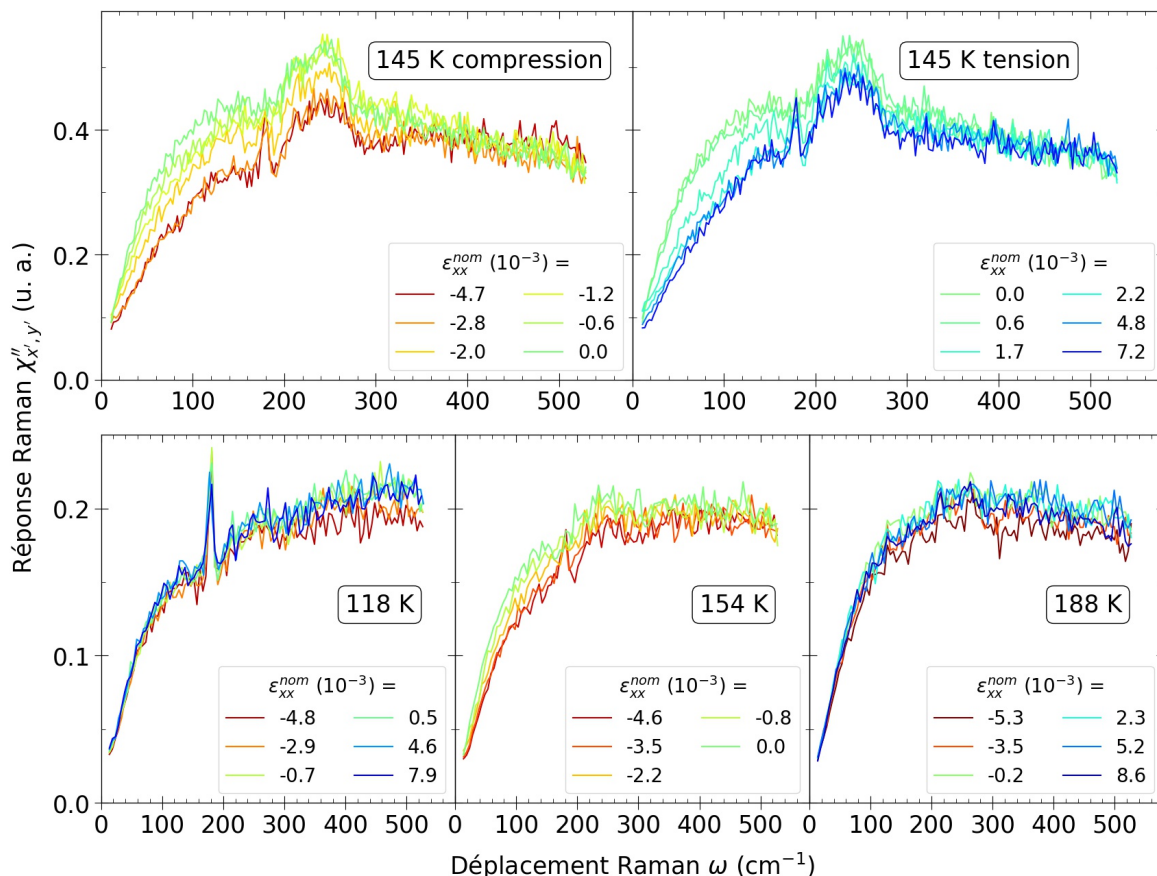


FIGURE A.9 – Réponse Raman selon la déformation nominale à température fixée, dans le canal nématique (polarisations (x',y')), pour l'échantillon BFA0, sans avoir soustrait un signal extrinsèque.

Il est toujours délicat de comparer des spectres Raman obtenus sur des dispositifs différents, qui n'ont pas la même configuration d'incidence ni le même angle solide de collection. Pour effectuer la comparaison dans mon cas, j'ai décidé de prendre en compte deux points de comparaison. Le premier est le rapport entre l'intensité du phonon de l'As et le continuum en polarisation (x',y') . Le deuxième point est l'allure globale d'un spectre (x',y') à 145 K. Dans les deux cas, il s'agit alors de soustraire à mon spectre une composante additive correspondant à l'intensité extrinsèque, puis de renormaliser par une composante multiplicative prenant en compte la différence de dispositif, afin de superposer mon spectre au spectre de référence.

Ces deux méthodes donnent un résultat équivalent, qui est que la composante extrinsèque contribue à environ 55–60 % de l'intensité totale du continuum. Ce ratio, plutôt élevé, peut être considéré comme une barre supérieure du ratio réel. La soustraction de l'intensité extrinsèque doit être faite sur l'intensité Raman et non sur la réponse Raman χ'' , c'est-à-dire avant l'application du facteur de Bose. La figure A.10 illustre la soustraction sur un spectre caractéristique.

J'ai suivi deux cadres d'analyse des spectres pour l'extraction de la susceptibilité nématique. Dans le premier, j'effectue une soustraction d'une composante majoritaire du continuum (60 %). Les résultats sont présentés au chapitre 5. Dans le second, je n'effectue pas de soustraction, et considère que toute l'intensité mesurée est le signal Raman de l'échantillon. Ces deux cadres constituent probablement deux bornes encadrant un cadre d'analyse optimal. La pertinence de la soustraction d'une composante extrinsèque apparaît clairement

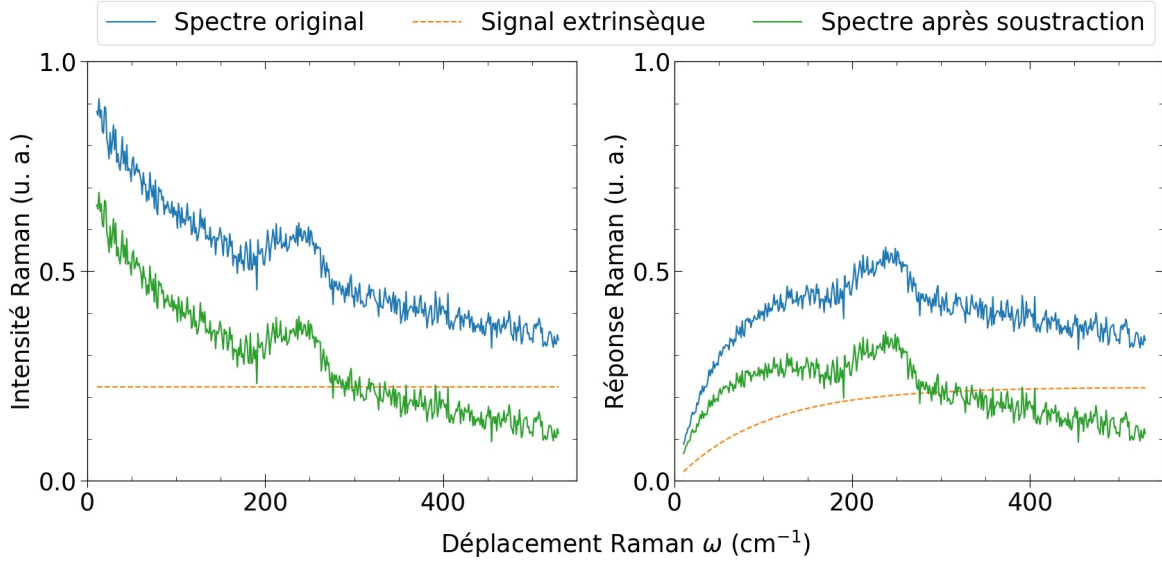


FIGURE A.10 – Effet de la soustraction d’un signal extrinsèque sur l’intensité Raman (gauche) et sur la réponse Raman (droite). Le passage de l’intensité à la réponse Raman se fait par l’application du facteur de Bose.

dans la comparaison de mes spectres avec des spectres de référence. Plus indirectement, dans le cas avec soustraction, le phénomène de la déviation au comportement de Drude semble plus cohérent avec son interprétation nématique.

L’application d’une soustraction, même si elle exacerbe les variations relatives de la susceptibilité sous déformation, ne modifie néanmoins que peu le comportement qualitatif de la susceptibilité nématique extraite des spectres. En particulier, l’allure quadratique de $\chi_{nem}(\epsilon)$ à 145 K et le déplacement du maximum de $\chi_{nem}(T)$ sous déformation sont deux observations essentielles présentes dans les deux cas d’étude. La différence principale réside dans le comportement de $\chi_{nem}(\epsilon)$ à 118 K, plus dispersée dans le cas avec soustraction, ce qui empêche de tirer une tendance claire, alors que dans le cas sans soustraction, on observe un comportement asymétrique proche de celui à 188 K.

Annexe B

Résultats complémentaires de spectroscopie Raman de Sr_2RuO_4

Cette annexe présente des spectres et analyses complémentaires sur Sr_2RuO_4 , obtenus à différentes longueurs d'onde et gammes d'énergie. Ils permettent d'estimer la validité des modèles utilisés, notamment de l'interprétation orbitale de la dichotomie B_{1g}/B_{2g} . La section B.1 présente des spectres obtenus à différentes longueurs d'onde incidente, et la section B.2 discute de l'influence de l'énergie de coupure dans les résultats de l'analyse par la méthode de la fonction mémoire.

Sommaire

B.1 Influence de la longueur d'onde incidente	205
B.1.1 Impacts possibles de la longueur d'onde	205
B.1.2 Spectres selon la longueur d'onde	206
B.1.3 Paramètres de liquide de Fermi à 660 nm	207
B.2 Influence de l'énergie de coupure	208
B.2.1 Réponse Raman à haute énergie	208
B.2.2 Impact de l'énergie de coupure sur les paramètres de liquide de Fermi et la différentiation B_{1g}/B_{2g}	210

B.1 Influence de la longueur d'onde incidente

B.1.1 Impacts possibles de la longueur d'onde

L'interprétation semi-quantitative de la différentiation expérimentale B_{1g}/B_{2g} comme une différentiation orbitale repose sur l'approximation de la masse effective. Or cette approximation n'est pertinente qu'en négligeant l'influence des longueurs d'onde incidente et diffusée sur les vertex Raman.

En effet, la spectroscopie Raman est un processus à deux photons, un incident l'autre diffusé, qui sonde des excitations d'énergie valant la différence des énergies des deux photons. Lorsqu'on trace le spectre Raman en fonction de cette différence des énergies, on suppose que ses attributs ne dépendent pas des longueurs d'onde du photon incident et du photon diffusé. Or formellement, les énergies des photons apparaissent dans l'expression du vertex Raman (équation (3.8)). De plus, lorsque l'énergie du photon incident ou diffusé est égale à la différence d'énergies entre deux états du matériau, on a un effet de résonance¹ : la réponse

1. Formellement, dans le cas non résonant, le photon incident promeut un électron vers un état virtuel. Dans le cas résonant, l'électron est promu vers un état réel.

Raman diverge, le spectre n'est plus représentatif des processus d'excitation à deux photons, et l'approximation de la masse effective comme la description en modèle de Drude étendu des spectres ne sont plus valables. La présence d'effets de résonance à 532 nm, ainsi que la pertinence de la négligence des effets d'énergie des photons dans les vertex, peuvent être évaluées en comparant la réponse Raman à cette longueur d'onde avec des réponses Raman obtenues à d'autres longueurs d'onde de laser incidentes.

Également, des contributions non Raman dans les spectres comme la luminescence ou la fluorescence, peuvent dépendre de l'énergie du photon incident. Le spectre de luminescence d'un métal pouvant être assez complexe, il est cependant difficile d'estimer ces contributions.

B.1.2 Spectres selon la longueur d'onde

La pertinence de la dichotomie expérimentale entre B_{1g} et B_{2g} pour discuter d'une différenciation orbitale est soumise à l'invariance de cette dichotomie avec la longueur d'onde incidente. La figure B.1 permet de comparer les réponses Raman selon la longueur d'onde incidente dans les quatre configurations planaires.

Je considère d'abord simplement le ratio moyen entre les spectres. Plus précisément, je définis le ratio B_{1g}/B_{2g} comme la moyenne du ratio des réponses Raman B_{1g} et B_{2g} sur la gamme d'énergie de 12 à 37 meV. J'obtiens pour trois longueurs d'onde incidentes (488, 532 et 660 nm) des ratios valant respectivement 2,8, 3,7 et 3,4. Cette variation faible est une première indication de la pertinence qualitative de mon interprétation.

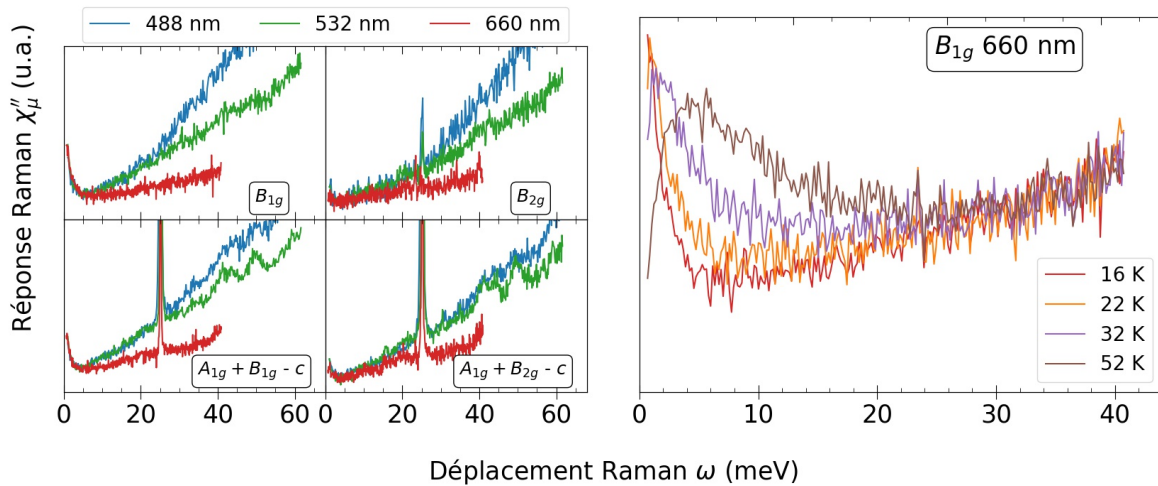


FIGURE B.1 – (Gauche) Réponse Raman dans les quatre configurations planaires pour les trois longueurs d'onde incidentes, en B_{1g} . À noter que les spectres ont été renormalisés entre eux par des constantes multiplicatives de manière à pouvoir comparer les allures, avec comme référence le minimum d'intensité vers 6 meV. (Droite) Réponse Raman en B_{1g} à 660 nm, pour une sélection de température.

À basse énergie, le comportement est similaire entre les trois longueurs d'onde, dans la zone de descente du pic de Drude. Puis, quand l'énergie augmente, les spectres se séparent, avec une plus grande augmentation d'intensité quand la longueur d'onde diminue. Ceci indique soit la présence de contributions non Raman impactant les spectres à haute énergie, dont le poids augmente quand l'énergie des photons augmente, soit une dépendance des processus d'excitation Raman avec la longueur d'onde incidente. Dans ce dernier cas, on peut imaginer que ce sont les contributions interbandes, plutôt situées à haute énergie, qui adoptent une dépendance avec la longueur d'onde incidente, plutôt que les processus

intrabandes, situés à énergie plus faible. L'évolution de la réponse B_{1g} avec la température en incidence 660 nm, présentée figure B.1 montre le décalage du pic de Drude, de façon qualitativement cohérente avec le comportement en incidence 532 nm. Ceci justifie davantage de considérer un impact faible de la longueur d'onde sur les processus intrabandes.

Si l'on s'intéresse uniquement aux processus intrabandes, il faudrait donc opter pour le laser à 660 nm. Travailler à cette longueur d'onde présente cependant certains désavantages pratiques : gamme spectrale plus réduite, rendement du spectromètre plus faible. Également, j'adopte dans mon analyse une démarche surtout comparative, entre les réponses B_{1g} et B_{2g} : or l'augmentation de signal à 532 nm par rapport à 660 nm est quantitativement proche dans ces deux configurations. Ceci rend la démarche comparative pertinente, même en présence de contributions non Raman intrabandes. C'est pourquoi j'ai principalement axé mon analyse sur les spectres obtenus à 532 nm. Je discute dans la section B.2 de la possibilité d'une soustraction du signal non intrabande, à l'aide de l'acquisition de spectres à haute énergie.

B.1.3 Paramètres de liquide de Fermi à 660 nm

La pertinence de l'analyse des spectres via le modèle de la fonction mémoire tient notamment à l'indépendance des résultats pour Γ et $1 + \lambda$ par rapport à la longueur d'onde incidente. Dans cette section, j'effectue l'analyse sur les spectres obtenus à 660 nm en B_{1g} à quatre températures, présentés en figure B.1. Comme la fenêtre expérimentale en énergie est plus réduite à 660 nm, je prends $\omega_c = 41$ meV. Je n'ai pas déterminé les paramètres de liquide de Fermi à 488 nm, car je n'ai sondé l'échantillon avec ce laser qu'à 7 K, qui est une température trop faible pour proprement extrapoler le pic de Drude à basse énergie.

Les résultats de l'analyse, comparés avec ceux pour 532 nm, sont présentés en figure B.2. Pour cette figure, pour avoir une comparaison pertinente entre les deux longueurs d'onde, j'ai réeffectué l'analyse des spectres à 532 nm en prenant le même ω_c que pour 660 nm, soit 41 meV. Ainsi, les résultats pour 532 nm présentés en figure B.2 sont quantitativement différents de ceux présentés ci-avant.

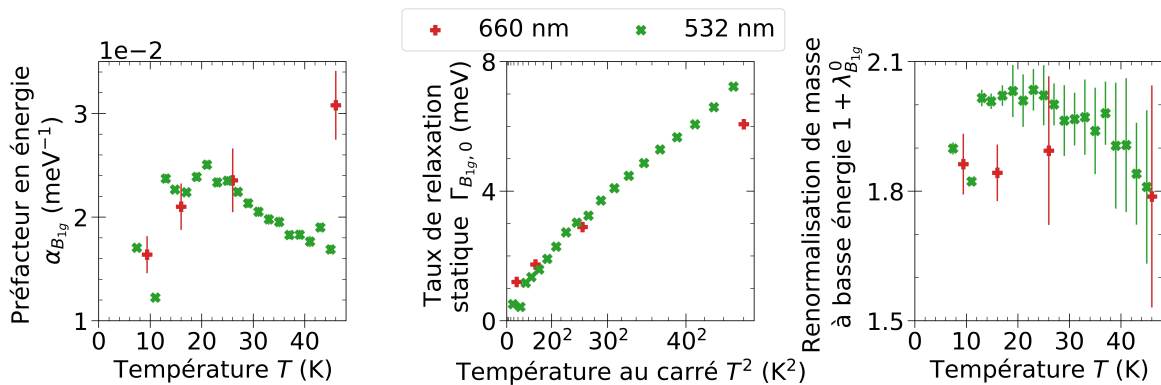


FIGURE B.2 – Comparaison des paramètres de liquide de Fermi extraits des spectres par la méthode de la fonction mémoire pour deux longueurs d'onde incidentes, 532 et 660 nm. Les résultats à 532 nm ont été obtenus avec une autre ω_c que ceux présentés plus haut (voir le texte).

Je n'observe pas de différence qualitative pour les paramètres de liquide de Fermi extraits entre les deux longueurs d'onde. Je constate même un bon recouvrement quantitatif pour $\alpha_{B_{1g}}$ et $\Gamma_{B_{1g},0}$ dans le régime de liquide de Fermi sous 30 K. Ceci confirme de nouveau la pertinence de l'interprétation des spectres dans le modèle de Drude étendu et l'utilisation de l'approximation de la masse effective.

B.2 Influence de l'énergie de coupure

Je reviens maintenant sur l'influence du choix de ω_c sur les résultats présentés ci-avant. Dans la méthode de la fonction mémoire, ω_c intervient dans les calculs de K et χ^0 (équations (3.42) et (3.43)). Pour une réponse Raman expérimentale correspondant purement à une réponse idéale intrabande des quasiparticules en modèle de Drude étendu, les intégrales apparaissant dans les équations (3.42) et (3.43) devraient converger, et prendre ω_c la plus grande possible devrait permettre d'approcher des valeurs réelles de Γ et $1 + \lambda$. Cependant, choisir ω_c trop grande peut conduire à une surestimation des paramètres de liquide de Fermi. Ceci est d'abord dû à la présence de contributions non intrabandes gagnant de l'intensité quand l'énergie augmente (notamment les processus interbandes, ou les processus non Raman comme la luminescence). De plus l'effondrement de la notion de quasiparticule à énergie trop élevée rend illusoire l'espoir que le spectre Raman au-delà d'une certaine échelle d'énergie soit représentatif des propriétés des quasiparticules. Pour ces différentes raisons, il est même a priori possible que les intégrales ne convergent plus.

B.2.1 Réponse Raman à haute énergie

Dans l'analyse qui précède, j'ai pris $\omega_c = 71$ meV, soit la valeur d'énergie maximale dans la fenêtre expérimentale basse énergie permise par le spectromètre en mode triple. Le choix de cette fenêtre expérimentale était avant tout dicté par le fait que je voulais accéder à la plus basse énergie possible, vers 1 meV. Au vu des spectres obtenus, qui ne présentent pas de maximum clair du pied de liquide de Fermi et de diminution de la réponse à haute énergie, on pourrait s'attendre à ce que la réponse Raman intrabande valide pour le modèle de Drude étendu soit sévèrement tronquée.

Pour évaluer la valeur optimale de ω_c , et dans l'optique éventuelle d'extrapoler à haute énergie les spectres acquis à basse énergie pour augmenter ω_c , j'ai acquis des spectres en B_{1g} et $A_{1g} + B_{2g} - c$ au-delà de 75 meV. Également, comme la réponse haute énergie non-intrabande liquide de Fermi peut changer avec l'énergie du photon incident, j'ai acquis ces spectres haute énergie à différentes longueurs d'onde. Ces spectres sont présentés en figure B.3.

À 532 nm, le comportement est similaire à haute énergie dans les deux configurations. Entre 75 et 110 meV se trouvent plusieurs modes qui produisent une large bosse ; j'associe ces modes à des procédés double phonons. Puis au-delà de 110 meV, le signal croît de façon quasi linéaire jusqu'à 500 meV. Quand la température augmente, le poids spectral à haute énergie diminue. L'allure des spectres et le comportement en température sont similaires à 647 nm. En revanche, à 488 nm, les modes entre 75 et 110 meV sont moins intenses par rapport au continuum, le poids spectral à haute énergie augmente avec la température, et à 15 K j'observe une légère décroissance du signal au-delà de 400 meV. Cette différence de comportement à 488 nm pourrait être expliquée par la présence d'une contribution non ou moins sondée aux autres longueurs d'onde, moins énergétiques que 488 nm.

La croissance linéaire à haute énergie n'est pas explicable en considérant uniquement les processus intrabandes dans le cadre du modèle de Drude étendu. Elle pourrait être due à des processus non Raman (luminescence, fluorescence) ou à des transitions interbandes. Pour établir un spectre brut définitif sur la gamme d'énergie $0 \leq \omega \leq 500$ meV, en B_{1g} à 15 K, je concatène à 75 meV le spectre obtenu à basse énergie sur le spectromètre en configuration triple et le spectre obtenu à haute énergie en configuration simple, en les renormalisant à l'énergie de concaténation. À partir de ce spectre, en soustrayant l'augmentation linéaire, j'obtiens un spectre d'intensité grossièrement constante à haute énergie, ce qui pourrait être cohérent avec un taux de relaxation se comportant comme $\Gamma \sim \omega$ à haute énergie. Je dois préciser que cette soustraction n'est qu'un test qualitatif, et certainement pas un moyen bien

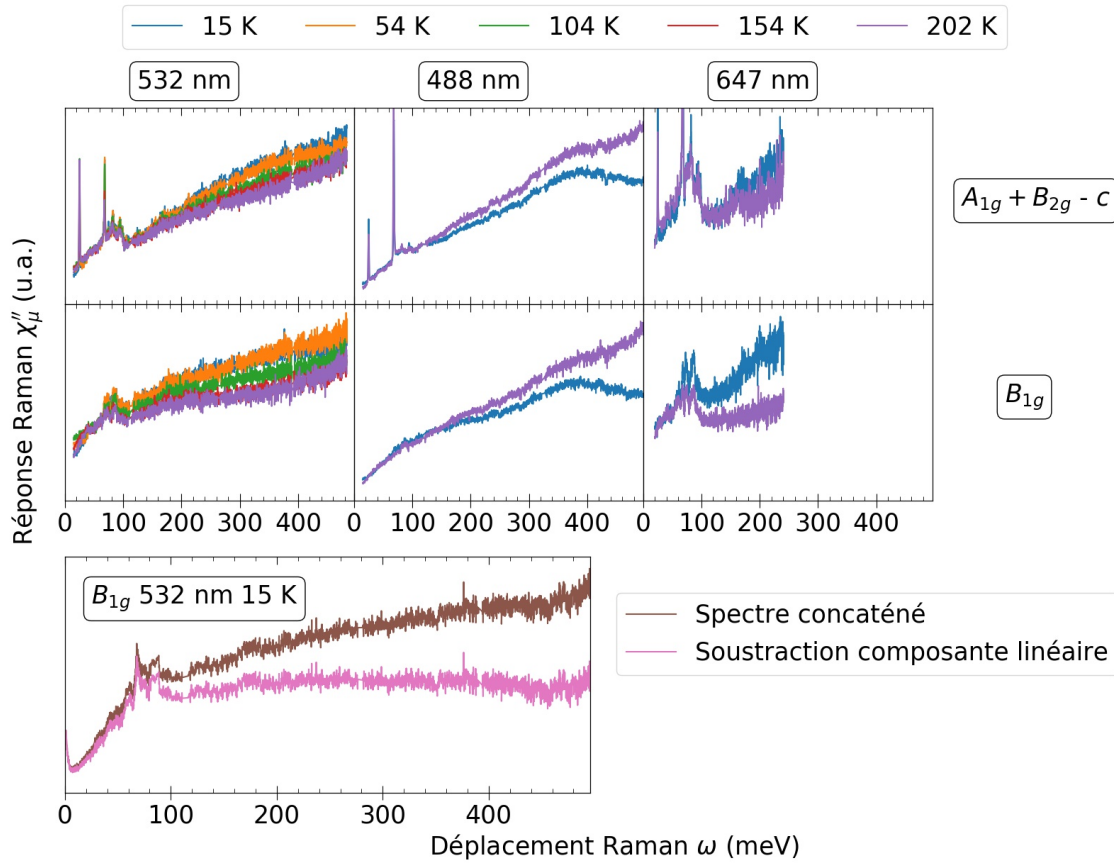


FIGURE B.3 – (Haut) Réponse Raman en $A_{1g} + B_{2g} - c$ et B_{1g} à trois longueurs d’onde incidentes, pour une sélection de température. (Bas) Spectre concaténé et soustraction de la composante linéaire en B_{1g} à 15 K et 532 nm. Les flèches noires indiquent les limites supérieures de la gamme de basse énergie pour les spectres acquis sur le spectromètre en mode triple.

contrôlé d’obtenir quantitativement la réponse Raman intrabande à haute énergie. J’utilise ce spectre dans la suite pour tester l’impact de cette soustraction sur χ^0 .

Ainsi, sans connaissance précise ni de la forme spectrale des contributions à soustraire, ni a priori du comportement à haute énergie du taux de relaxation et du facteur de renormalisation de la masse, une extrapolation correcte des spectres à haute énergie n’est pas immédiate, et le choix optimal de ω_c n’est pas trivial. En prenant ω_c trop faible, on risque de négliger une partie de la réponse intrabande, et donc de sous-estimer les grandeurs caractéristiques de liquide de Fermi, mais a contrario, en la prenant trop élevée, on donne un poids trop important à des contributions probablement non intrabandes.

Pour l’analyse présentée dans le chapitre 6, j’ai choisi $\omega_c = 71$ meV, comme compromis a priori raisonnable entre les deux risques expliqués ci-avant². La discussion en section 6.4.6 concernant la comparaison de mes résultats avec ceux d’autres techniques expérimentales indique cependant que ce choix conduit probablement à une sous-estimation des paramètres de liquide de Fermi, d’un facteur 1,5–2.

2. De plus, choisir ω_c plus élevée aurait nécessité d’acquérir au moins deux fois plus de spectres, car la limite haute énergie de la fenêtre expérimentale permettant de descendre le plus bas possible en énergie est justement 71 meV.

B.2.2 Impact de l'énergie de coupure sur les paramètres de liquide de Fermi et la différentiation B_{1g}/B_{2g}

La figure B.4 illustre l'influence de ω_c sur K et χ^0 , pour les spectres extrapolés jusqu'à 500 meV, avec et sans la soustraction de la composante linéaire suspecte.

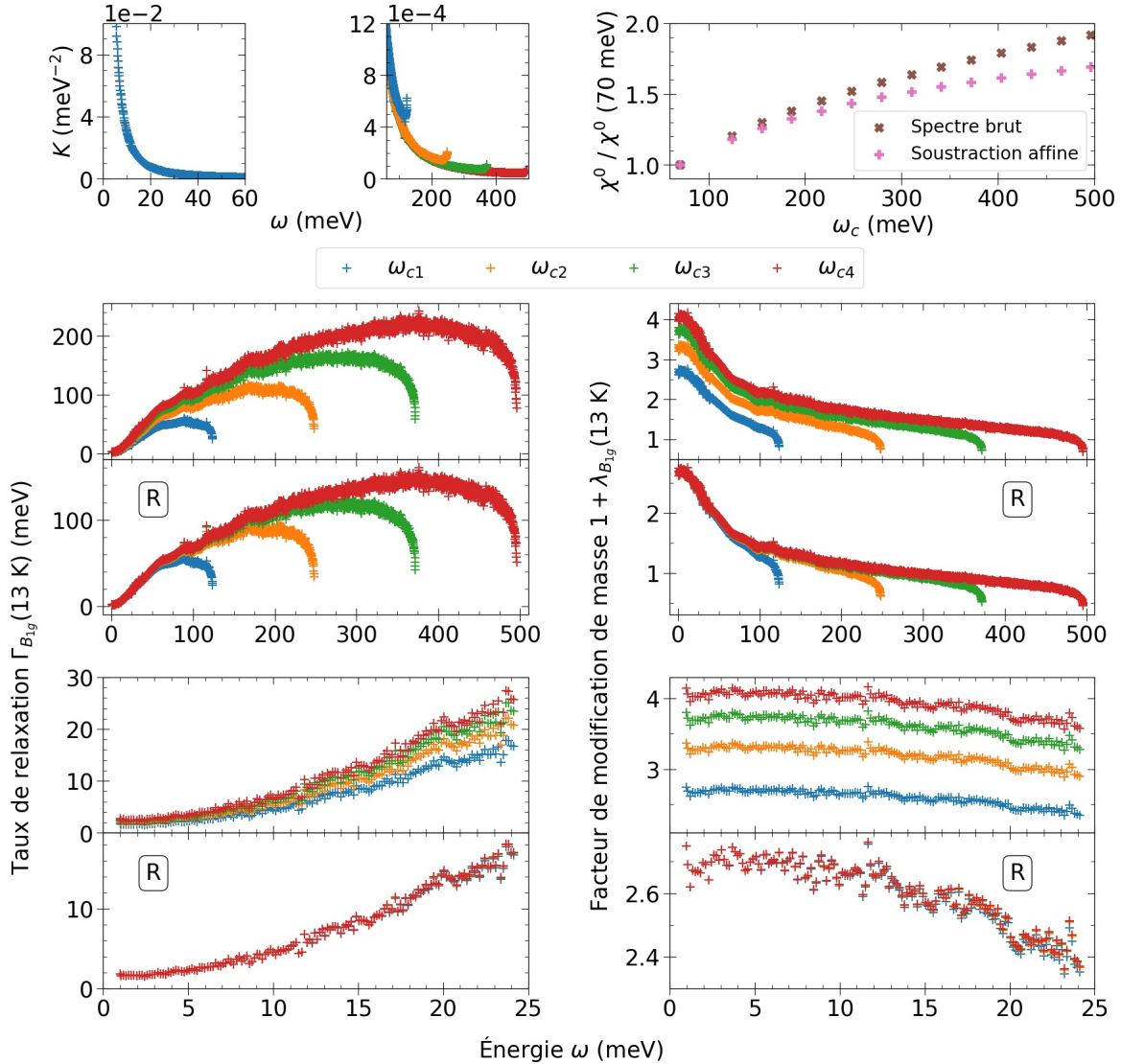


FIGURE B.4 – Influence de l'énergie de coupure ω_c sur K , χ^0 et les paramètres de liquide de Fermi. Dans le premier graphique $K(\omega)$, les points des quatre ω_c sont superposés. Dans les graphiques notés R, les grandeurs ont été renormalisées par les rapports de χ^0 entre chaque ω_c . Les valeurs de $\omega_{c1/2/3/4}$ sont respectivement 124, 248, 375 et 496 meV.

L'influence de ω_c sur $K(\omega)$ est négligeable tant que ω est suffisamment petit devant ω_c : l'impact est inférieur à 5 % pour $\omega \leq \omega_c/3$. Considérant uniquement l'influence sur K , avec $\omega_c = 71$ meV, si je considère $\Gamma(\omega)$ et $1 + \lambda(\omega)$ pour $\omega \leq 25$ meV, alors prendre ω_c plus élevée donnerait des résultats identiques à moins de 5 % près. Sur la figure B.4, cela est illustré par exemple de la façon suivante : pour $K(\omega)$, les points à ω_{c2} , ω_{c3} et ω_{c4} sont bien superposés si je choisis $\omega < \omega_{c2}/3$.

En revanche, l'influence de ω_c sur χ^0 est bien plus importante. Si le signal Raman est

constant à haute énergie, alors χ^0 croît de façon logarithmique avec ω_c ; la croissance est linéaire dans le cas d'un signal Raman augmentant linéairement à haute énergie. $\Gamma(\omega)$ et $1 + \lambda(\omega)$ sont directement proportionnels à χ^0 , donc toutes les grandeurs extraites le seront également : Γ_{00} , α , β , $1 + \lambda^0$.

Le fait que l'influence de χ^0 domine sur celle de K à suffisamment basse énergie est illustré sur la figure B.4. Sur les graphiques notés R, les points ont été renormalisés par le rapport des χ^0 : $\Gamma_{\omega_{c2}}(\omega)$ renormalisé par $\chi_{\omega_{c2}}^0/\chi_{\omega_{c1}}^0$, $\Gamma_{\omega_{c3}}(\omega)$ renormalisé par $\chi_{\omega_{c3}}^0/\chi_{\omega_{c1}}^0$, et de même pour $\Gamma_{\omega_{c4}}(\omega)$. J'obtiens sous 20 meV des points parfaitement superposés, montrant que l'influence de χ^0 domine à basse énergie.

Cette sensibilité quantitative des résultats de l'analyse avec le choix de ω_c , due à l'influence sur χ^0 , est l'inconvénient principal de la méthode de la fonction mémoire appliquée à la spectroscopie Raman, dans le cas où il est difficile d'écarter les composantes non intrabandes des spectres. En ce qui concerne mon travail, cet inconvénient, qui se répercute sur les valeurs des grandeurs dans chaque symétrie, est limité si je m'intéresse surtout à une comparaison des valeurs entre elles. Comme l'influence de ω_c sur χ^0 est similaire dans les différentes configurations, elle s'annulera au moins partiellement si je considère les ratios B_{1g}/B_{2g} .

Le résultat principal de mon analyse, à savoir la dichotomie expérimentale B_{1g}/B_{2g} , est au moins qualitativement robuste par rapport au choix de ω_c . Cela est illustré sur la figure B.5 et le tableau B.1, qui comparent les valeurs des paramètres de liquide de Fermi pour $\omega_c = 50, 60$ et 71 meV.

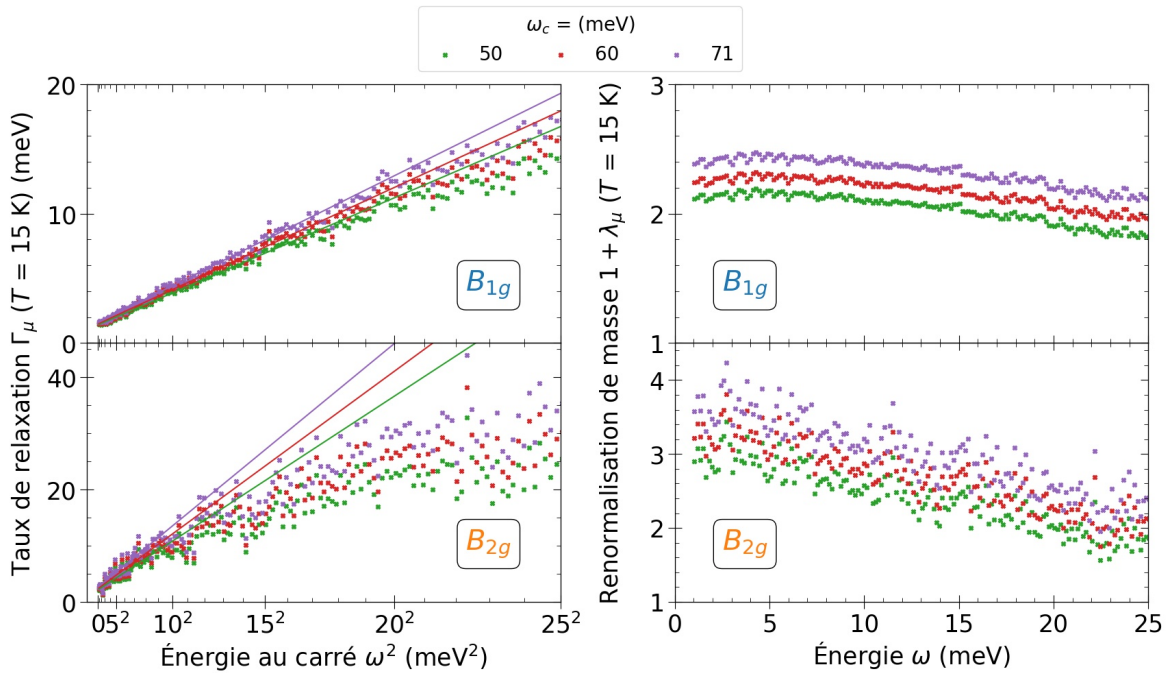


FIGURE B.5 – Influence de l'énergie de coupure ω_c sur le taux de relaxation et le facteur de renormalisation de la masse en B_{1g} et B_{2g} , pour $\omega_c = 50, 60$ et 71 meV

ω_c (meV)	Symétrie	Γ_{00} (meV)	α (10^{-2} meV $^{-1}$)	$1 + \lambda(\omega \rightarrow 0)$
50	B_{1g}	1,4	2,4	2,1
	B_{2g}	2,2	8,6	2,9
	B_{2g}/B_{1g}	1,5	3,5	1,4
60	B_{1g}	1,5	2,6	2,3
	B_{2g}	2,4	9,6	3,2
	B_{2g}/B_{1g}	1,6	3,7	1,4
71	B_{1g}	1,6	2,8	2,4
	B_{2g}	2,6	11	3,5
	B_{2g}/B_{1g}	1,7	3,8	1,5

TABLEAU B.1 – Influence de l'énergie de coupure ω_c sur les paramètres de liquide de Fermi à 15 K en B_{1g} et B_{2g} et sur le ratio des deux symétries. Γ_{00} et α sont donnés par les ajustements quadratiques sous 15 et 9 meV respectivement pour B_{1g} et B_{2g} à toute ω_c .

Bibliographie

“We’re building something here detective. We’re building it from scratch. All the pieces matter.”

David Simon et Ed Burns, *The Wire* (2002)

- [1] E. ABRAHAMS et Q. SI. « Quantum criticality in the iron pnictides and chalcogenides ». *Journal of Physics : Condensed Matter* 23(22) (2011), p. 223201. DOI : [10.1088/0953-8984/23/22/223201](https://doi.org/10.1088/0953-8984/23/22/223201) (cf. p. 46).
- [2] T. ADACHI, M. NAKAJIMA, Y. GALLAIS, S. MIYASAKA et S. TAJIMA. « Superconducting gap and nematic resonance at the quantum critical point observed by Raman scattering in $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ ». *Physical Review B* 101(8) (2020), p. 085102. DOI : [10.1103/PhysRevB.101.085102](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.101.085102) (cf. p. 43, 76).
- [3] D. F. AGTERBERG, T. M. RICE et M. SIGRIST. « Orbital dependent superconductivity in Sr_2RuO_4 ». *Physical Review Letters* 78(17) (1997), p. 3374-3377. DOI : [10.1103/PhysRevLett.78.3374](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.78.3374) (cf. p. 21).
- [4] E ANASTASSAKIS, A PINCZUK et E BURSTEIN. « Effect of static uniaxial stress on the Raman spectrum of silicon ». *Solid State Communications* 8(2) (1970), p. 133-138. DOI : [10.1016/0038-1098\(93\)90294-w](https://doi.org/10.1016/0038-1098(93)90294-w). (Republié dans : *Solid State Communications* 88(11/12) (1993), p. 1053-1058) (cf. p. 115).
- [5] E. ANASTASSAKIS. « Inelastic light scattering in the presence of uniaxial stresses ». *Journal of Raman Spectroscopy* 10(1) (1981), p. 64-76. DOI : [10.1002/jrs.1250100112](https://doi.org/10.1002/jrs.1250100112) (cf. p. 115).
- [6] E. ANASTASSAKIS et E. BURSTEIN. « Morphic effects I - Effects of external forces on photon-optical phonon interactions ». *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 32(3) (1971), p. 563-570. DOI : [10.1016/0022-3697\(71\)90005-9](https://doi.org/10.1016/0022-3697(71)90005-9) (cf. p. 116).
- [7] E. ANASTASSAKIS et E. BURSTEIN. « Morphic effects II - Effects of external forces on the frequencies of the $q \approx 0$ optical phonons ». *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 32(3) (1971), p. 563-570. DOI : [10.1016/0022-3697\(71\)90005-9](https://doi.org/10.1016/0022-3697(71)90005-9) (cf. p. 116).
- [8] Neil William ASHCROFT et Nathaniel David MERMIN. *Solid State Physics*. Saunders College Publishing, 1976. (Traduction française par F. Biet et H. Kachkachi, 2002, EDP Sciences.) (Cf. p. 8, 16).
- [9] Ian AUPIAIS. « Ordres et couplages dans les pérovskites multiferroïques étudiés par spectroscopie Raman ». Thèse de doctorat. Université Paris Diderot, 2019 (cf. p. 89).
- [10] Nicolas AUVRAY. « Ordres électroniques sous-jacents du diagramme de phases des cuprates étudiés par spectroscopie Raman ». Thèse de doctorat. Université de Paris, 2020 (cf. p. 52, 56, 59, 60, 69, 74, 89).

- [11] M. E. BARBER, A. S. GIBBS, Y. MAENO, A. P. MACKENZIE et C. W. HICKS. « Resistivity in the vicinity of a van Hove singularity : Sr_2RuO_4 under uniaxial pressure ». *Physical Review Letters* 120(7) (2018), p. 076602. DOI : [10.1103/PhysRevLett.120.076602](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.120.076602) (cf. p. 22, 98, 110).
- [12] M. E. BARBER, F. LECHERMANN, S. V. STRELTSOV, S. L. SKORNYAKOV, S. GHOSH, B. J. RAMSHAW, N. KIKUGAWA, D. A. SOKOLOV, A. P. MACKENZIE, C. W. HICKS et al. « Role of correlations in determining the Van Hove strain in Sr_2RuO_4 ». *Physical Review B* 100(24) (2019), p. 245139. DOI : [10.1103/PhysRevB.100.245139](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.100.245139) (cf. p. 98).
- [13] M. E. BARBER, A. STEPPKE, A. P. MACKENZIE et C. W. HICKS. « Piezoelectric-based uniaxial pressure cell with integrated force and displacement sensors ». *Review of Scientific Instruments* 90(2) (2019), p. 023904. DOI : [10.1063/1.5075485](https://doi.org/10.1063/1.5075485) (cf. p. 97).
- [14] Mark Edward BARBER. « Uniaxial stress technique and investigations of correlated electron systems ». Thèse de doctorat. University of St Andrews, St Andrews, United Kingdom, 2018 (cf. p. 90, 93, 96, 100, 102, 109, 112).
- [15] J. M. BARTLETT, A. STEPPKE, S. HOSOI, H. NOAD, J. PARK, C. TIMM, T. SHIBAUCHI, A. P. MACKENZIE et C. W. HICKS. « Relationship between transport anisotropy and nematicity in FeSe ». *Physical Review X* 11(2) (2021), p. 021038. DOI : [10.1103/PhysRevX.11.021038](https://doi.org/10.1103/PhysRevX.11.021038) (cf. p. 50, 128).
- [16] G. BASKARAN. « Why is Sr_2RuO_4 not a high T_c superconductor? Electron correlation, Hund's coupling and p -wave instability ». *Physica B* 223-224 (1996), p. 490-495. DOI : [10.1016/0921-4526\(96\)00155-X](https://doi.org/10.1016/0921-4526(96)00155-X) (cf. p. 19).
- [17] D. N. BASOV, R. D. AVERITT, D. van der MAREL, M. DRESSEL et K. HAULE. « Electrodynamics of correlated electron materials ». *Reviews of Modern Physics* 83(2) (2011), p. 471-541. DOI : [10.1103/RevModPhys.83.471](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.83.471) (cf. p. 62).
- [18] A. BAUM, Y. LI, M. TOMIĆ, N. LAZAREVIĆ, D. JOST, F. LÖFFLER, B. MUSCHLER, T. BÖHM, J.-H. CHU, I. R. FISHER et al. « Interplay of lattice, electronic, and spin degrees of freedom in detwinned BaFe_2As_2 : A Raman scattering study ». *Physical Review B* 98(7) (2018), p. 075113. DOI : [10.1103/PhysRevB.98.075113](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.98.075113) (cf. p. 116, 125, 126).
- [19] J. G. BEDNORZ et K. A. MÜLLER. « Possible High T_c Superconductivity in the Ba-La-Cu-O System ». *Zeitschrift für Physik B* 64 (1986), p. 189-193 (cf. p. 3).
- [20] S. BENHABIB, C. LUPIEN, I. PAUL, L. BERGES, M. DION, M. NARDONE, A. ZITOUNI, Z. Q. MAO, Y. MAENO, A. GEORGES et al. « Ultrasound evidence for a two-component superconducting order parameter in Sr_2RuO_4 ». *Nature Physics* 17(2) (2021), p. 194-198. DOI : [10.1038/s41567-020-1033-3](https://doi.org/10.1038/s41567-020-1033-3) (cf. p. 20).
- [21] C. BERGEMANN, S. R. JULIAN, A. P. MACKENZIE, S. NISHIZAKI et Y. MAENO. « Detailed topography of the Fermi surface of Sr_2RuO_4 ». *Physical Review Letters* 84(12) (2000), p. 2662-2665. DOI : [10.1103/PhysRevLett.84.2662](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.84.2662) (cf. p. 15).
- [22] C. BERGEMANN, A. P. MACKENZIE, S. R. JULIAN, D. FORSYTHE et E. OHMACHI. « Quasi-two-dimensional Fermi liquid properties of the unconventional superconductor Sr_2RuO_4 ». *Advances in Physics* 52(7) (2003), p. 639-725. DOI : [10.1080/00018730310001621737](https://doi.org/10.1080/00018730310001621737) (cf. p. 4, 9, 11, 14, 16, 17, 24, 25, 178, 179, 181, 182).
- [23] C. BERTHOD, J. MRAVLJE, X. DENG, R. ŽITKO, D. van der MAREL et A. GEORGES. « Non-Drude universal scaling laws for the optical response of local Fermi liquids ». *Physical Review B* 87(11) (2013), p. 115109. DOI : [10.1103/PhysRevB.87.115109](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.87.115109) (cf. p. 6, 11, 12, 68, 173).

- [24] E. C. BLOMBERG, M. A. TANATAR, R. M. FERNANDES, I. I. MAZIN, B. SHEN, H.-H. WEN, M. D. JOHANNES, J. SCHMALIAN et R. PROZOROV. « Sign-reversal of the in-plane resistivity anisotropy in hole-doped iron pnictides ». *Nature Communications* 4 (2013), p. 1914. DOI : [10.1038/ncomms2933](https://doi.org/10.1038/ncomms2933) (cf. p. 50).
- [25] J. S. BOBOWSKI, N. KIKUGAWA, T. MIYOSHI, H. SUWA, H. XU, S. YONEZAWA, D. A. SOKOLOV, A. P. MACKENZIE et Y. MAENO. « Improved single-crystal growth of Sr_2RuO_4 ». *Condensed Matter* 4(1) (2019), p. 6. DOI : [10.3390/condmat4010006](https://doi.org/10.3390/condmat4010006) (cf. p. 156).
- [26] L. BOEHNKE, P. WERNER et F. LECHERMANN. « Multi-orbital nature of the spin fluctuations in Sr_2RuO_4 ». *Europhysics Letters* 122(5) (2018), p. 57001. DOI : [10.1209/0295-5075/122/57001](https://doi.org/10.1209/0295-5075/122/57001) (cf. p. 17, 18).
- [27] L. BOERI, O. V. DOLGOV et A. A. GOLUBOV. « Is $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ an electron-phonon superconductor ? » *Physical Review Letters* 101(2) (2008), p. 026403. DOI : [10.1103/PhysRevLett.101.026403](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.101.026403) (cf. p. 35).
- [28] T. BÖHM, F. KRETZSCHMAR, A. BAUM, M. REHM, D. JOST, R. HOSSEINIAN AHANGHARNEJHAD, R. THOMALE, C. PLATT, T. A. MAIER, W. HANKE et al. « Microscopic origin of Cooper pairing in the iron-based superconductor $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ ». *npj Quantum Materials* 3 (2018), p. 48. DOI : [10.1038/s41535-018-0118-z](https://doi.org/10.1038/s41535-018-0118-z) (cf. p. 154).
- [29] A. E. BÖHMER, P. BURGER, F. HARDY, T. WOLF, P. SCHWEISS, R. FROMKNECHT, M. REINECKER, W. SCHRANZ et C. MEINGAST. « Nematic susceptibility of hole-doped and electron-doped BaFe_2As_2 iron-based superconductors from shear modulus measurements ». *Physical Review Letters* 112(4) (2014), p. 047001. DOI : [10.1103/PhysRevLett.112.047001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.112.047001) (cf. p. 41, 93, 120, 150, 198).
- [30] A. E. BÖHMER et A. KREISEL. « Nematicity, magnetism and superconductivity in FeSe ». *Journal of Physics : Condensed Matter* 30(2) (2018), p. 023001. DOI : [10.1088/1361-648X/aa9caa](https://doi.org/10.1088/1361-648X/aa9caa) (cf. p. 39).
- [31] A. E. BÖHMER et C. MEINGAST. « Electronic nematic susceptibility of iron-based superconductors ». *Comptes Rendus Physique* 17(1-2) (2016), p. 90-112. DOI : [10.1016/j.crhy.2015.07.001](https://doi.org/10.1016/j.crhy.2015.07.001) (cf. p. 39, 40, 42).
- [32] M. BRADEN, O. FRIEDT, Y. SIDIS, P. BOURGES, M. MINAKATA et Y. MAENO. « Incommensurate magnetic ordering in $\text{Sr}_2\text{Ru}_{1-x}\text{Ti}_x\text{O}_4$ ». *Physical Review Letters* 88(19) (2002), p. 197002. DOI : [10.1103/PhysRevLett.88.197002](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.88.197002) (cf. p. 18).
- [33] M. BRADEN, Y. SIDIS, P. BOURGES, P. PFEUTY, J. KULDA, Z. MAO et Y. MAENO. « Inelastic neutron scattering study of magnetic excitations in Sr_2RuO_4 ». *Physical Review B* 66(6) (2002), p. 064522. DOI : [10.1103/PhysRevB.66.064522](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.66.064522) (cf. p. 17).
- [34] M. BRADEN, P. STEFFENS, Y. SIDIS, J. KULDA, P. BOURGES, S. HAYDEN, N. KIKUGAWA et Y. MAENO. « Anisotropy of the Incommensurate Fluctuations in Sr_2RuO_4 : A Study with Polarized Neutrons ». *Physical Review Letters* 92(9) (2004), p. 097402. DOI : [10.1103/PhysRevLett.92.097402](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.92.097402) (cf. p. 17).
- [35] Henrik BRUUS et Karsten FLENSBERG. *Many-body quantum theory in condensed matter physics*. Oxford University Press, 2004 (cf. p. 6).
- [36] Jonathan BUHOT. « Ordres cachés et magnétisme étudiés par spectroscopie Raman en conditions extrêmes ». Thèse de doctorat. Université Paris Diderot, 2015 (cf. p. 83).
- [37] A. CALLAGHAN, C. W. MOELLER et R. WARD. « Magnetic interactions in ternary ruthenium oxides ». *Inorganic Chemistry* 5(9) (1966), p. 1572-1576. DOI : [10.1021/ic50043a023](https://doi.org/10.1021/ic50043a023) (cf. p. 3, 17).

- [38] P. C. CANFIELD et S. L. BUD'KO. « FeAs-Based Superconductivity : a Case Study of the Effects of Transition Metal Doping on BaFe₂As₂ ». *Annual Review of Condensed Matter Physics* 1(1) (2010), p. 27-50. DOI : [10.1146/annurev-conmatphys-070909-104041](https://doi.org/10.1146/annurev-conmatphys-070909-104041) (cf. p. 30, 34).
- [39] A. CANO, M. CIVELLI, I. EREMIN et I. PAUL. « Interplay of magnetic and structural transitions in iron-based pnictide superconductors ». *Physical Review B* 82(2) (2010), p. 020408. DOI : [10.1103/PhysRevB.82.020408](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.82.020408) (cf. p. 39).
- [40] J. P. CARLO, T. GOKO, I. M. GAT-MALUREANU, P. L. RUSSO, A. T. SAVICI, A. A. ACZEL, G. J. MACDOUGALL, J. A. RODRIGUEZ, T. J. WILLIAMS, G. M. LUKE et al. « New magnetic phase diagram of (Sr,Ca)₂RuO₄ ». *Nature Materials* 11(4) (2012), p. 323-328. DOI : [10.1038/nmat3236](https://doi.org/10.1038/nmat3236) (cf. p. 18).
- [41] M. A. CARPENTER, D. M. EVANS, J. A. SCHIEMER, T. WOLF, P. ADELMANN, A. E. BÖHMER, C. MEINGAST, S. E. DUTTON, P. MUKHERJEE et C. J. HOWARD. « Ferroelasticity, anelasticity and magnetoelastic relaxation in Co-doped iron pnictide : Ba(Fe_{0.957}Co_{0.043})₂As₂ ». *Journal of Physics : Condensed Matter* 31(15) (2019), p. 155401. DOI : [10.1088/1361-648X/aafe29](https://doi.org/10.1088/1361-648X/aafe29) (cf. p. 41).
- [42] R. J. CAVA, B. BATLOGG, K. KIYONO, H. TAKAGI, J. J. KRAJEWSKI, W. F. PECK, L. W. RUPP et C. H. CHEN. « Localized-to-itinerant electron transition in Sr₂Ir_{1-x}Ru_xO₄ ». *Physical Review B* 49(17) (1994), p. 11890-11894. DOI : [10.1103/PhysRevB.49.11890](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.49.11890) (cf. p. 4, 17).
- [43] R. J. CAVA, R. B. van DOVER, B. BATLOGG et E. A. RIETMAN. « Bulk superconductivity at 36 K in La_{1.8}Sr_{0.2}CuO₄ ». *Physical Review Letters* 58(4) (1987), p. 408-410. DOI : [10.1103/PhysRevLett.58.408](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.58.408) (cf. p. 3).
- [44] L. CHAUVIÈRE, Y. GALLAIS, M. CAZAYOUS, M. A. MÉASSON, A. SACUTO, D. COLSON et A. FORGET. « Impact of the spin-density-wave order on the superconducting gap of Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂ ». *Physical Review B* 82(18) (2010), p. 180521. DOI : [10.1103/PhysRevB.82.180521](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.82.180521) (cf. p. 77, 145, 149).
- [45] L. CHAUVIÈRE, Y. GALLAIS, M. CAZAYOUS, M.-A. MÉASSON, A. SACUTO, D. COLSON et A. FORGET. « Raman scattering study of spin-density-wave order and electron-phonon coupling in Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂ ». *Physical Review B* 84(10) (2011), p. 104508. DOI : [10.1103/PhysRevB.84.104508](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.84.104508) (cf. p. 50, 122, 125, 129, 134, 143).
- [46] L. CHAUVIÈRE, Y. GALLAIS, M. CAZAYOUS, A. SACUTO, M.-A. MÉASSON, D. COLSON et A. FORGET. « Doping dependence of the lattice dynamics in Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂ studied by Raman spectroscopy ». *Physical Review B* 80(9) (2009), p. 094504. DOI : [10.1103/PhysRevB.80.094504](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.80.094504) (cf. p. 50, 122, 123).
- [47] Ludivine CHAUVIÈRE. « Magnétisme et supraconductivité dans les pnictures de fer étudiées par diffusion Raman ». Thèse de doctorat. Université Paris Diderot, 2011 (cf. p. 30, 33, 35, 52, 59, 74, 84, 122, 123, 147).
- [48] S. CHIBANI, D. FARINA, P. MASSAT, M. CAZAYOUS, A. SACUTO, T. URATA, Y. TANABE, K. TANIGAKI, A. E. BÖHMER, P. C. CANFIELD et al. « Lattice-shifted nematic quantum critical point in FeSe_{1-x}S_x ». *npj Quantum Materials* 6 (2021), p. 37. DOI : [10.1038/s41535-021-00336-3](https://doi.org/10.1038/s41535-021-00336-3) (cf. p. 46).
- [49] Soumaya CHIBANI. « Fluctuations et point quantiques critique nématiques dans le supraconducteur au fer FeSe_{1-x}S_x ». Thèse de doctorat. Université de Paris, 2020 (cf. p. 30, 52, 69).

- [50] O. CHMAISSEM, J. D. JORGENSEN, H. SHAKED, S. IKEDA et Y. MAENO. « Thermal expansion and compressibility of Sr_2RuO_4 ». *Physical Review B* 57(9) (1998), p. 5067-5070. DOI : [10.1103/PhysRevB.57.5067](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.57.5067) (cf. p. 13, 105).
- [51] A. CHRONISTER, A. PUSTOGOW, N. KIKUGAWA, D. A. SOKOLOV, F. JERZEMBECK, C. W. HICKS, A. P. MACKENZIE, E. D. BAUER et S. E. BROWN. « Evidence for even parity unconventional superconductivity in Sr_2RuO_4 ». *Proceedings of the National Academy of Sciences* 118(25) (2021), e2025313118. DOI : [10.1073/pnas.2025313118](https://doi.org/10.1073/pnas.2025313118) (cf. p. 20).
- [52] J.-H. CHU, J. G. ANALYTIS, K. DE GREVE, P. L. MCMAHON, Z. ISLAM, Y. YAMAMOTO et I. R. FISHER. « In-plane resistivity anisotropy in an underdoped iron arsenide superconductor ». *Science* 329(5993) (2010), p. 824-826. DOI : [10.1126/science.1190482](https://doi.org/10.1126/science.1190482) (cf. p. 38).
- [53] J.-H. CHU, J. G. ANALYTIS, D. PRESS, K. DE GREVE, T. D. LADD, Y. YAMAMOTO et I. R. FISHER. « In-plane electronic anisotropy in underdoped $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ revealed by partial detwinning in a magnetic field ». *Physical Review B* 81(21) (2010), p. 214502. DOI : [10.1103/PhysRevB.81.214502](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.81.214502) (cf. p. 39).
- [54] J.-H. CHU, H.-H. KUO, J. G. ANALYTIS et I. R. FISHER. « Divergent nematic susceptibility in an iron arsenide superconductor ». *Science* 337(6095) (2012), p. 710-712. DOI : [10.1126/science.1221713](https://doi.org/10.1126/science.1221713) (cf. p. 44, 45, 50, 151).
- [55] T.-M. CHUANG, M. P. ALLAN, J. LEE, Y. XIE, N. NI, S. L. BUD'KO, G. S. BOEBINGER, P. C. CANFIELD et J. C. DAVIS. « Nematic electronic structure in the parent state of the iron-based superconductor $\text{Ca}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ ». *Science* 327(5962) (2010), p. 181-184. DOI : [10.1126/science.1181083](https://doi.org/10.1126/science.1181083) (cf. p. 39).
- [56] A. CHUBUKOV. « Pairing mechanism in Fe-based superconductors ». *Annual Review of Condensed Matter Physics* 3(1) (2012), p. 57-92. DOI : [10.1146/annurev-conmatphys-020911-125055](https://doi.org/10.1146/annurev-conmatphys-020911-125055) (cf. p. 46).
- [57] S. COBO, F. AHN, I. EREMIN et A. AKBARI. « Anisotropic spin fluctuations in Sr_2RuO_4 : Role of spin-orbit coupling and induced strain ». *Physical Review B* 94(22) (2016), p. 224507. DOI : [10.1103/PhysRevB.94.224507](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.94.224507) (cf. p. 179).
- [58] A. DAMASCELLI, D. H. LU, K. M. SHEN, N. P. ARMITAGE, F. RONNING, D. L. FENG, C. KIM, Z.-X. SHEN, T. KIMURA, Y. TOKURA et al. « Fermi surface, surface states, and surface reconstruction in Sr_2RuO_4 ». *Physical Review Letters* 85(24) (2000), p. 5194-5197. DOI : [10.1103/PhysRevLett.85.5194](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.85.5194) (cf. p. 15).
- [59] Pierre-Gilles DE GENNES et Jacques PROST. *The Physics of Liquid Crystals*. Clarendon Press, 1993 (cf. p. 36).
- [60] K. DEGUCHI, Z. Q. MAO, H. YAGUCHI et Y. MAENO. « Gap structure of the spin-triplet superconductor Sr_2RuO_4 determined from the field-orientation dependence of the specific heat ». *Physical Review Letters* 92(4) (2004), p. 047002. DOI : [10.1103/PhysRevLett.92.047002](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.92.047002) (cf. p. 21).
- [61] X. DENG, K. HAULE et G. KOTLIAR. « Transport properties of metallic ruthenates : A DFT + DMFT investigation ». *Physical Review Letters* 116(25) (2016), p. 256401. DOI : [10.1103/PhysRevLett.116.256401](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.116.256401) (cf. p. 27).
- [62] C. DHITAL, T. HOGAN, Z. YAMANI, R. J. BIRGENEAU, W. TIAN, M. MATSUDA, A. S. SEFAT, Z. WANG et S. D. WILSON. « Evolution of antiferromagnetic susceptibility under uniaxial pressure in $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ ». *Physical Review B* 89(21) (2014), p. 214404. DOI : [10.1103/PhysRevB.89.214404](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.89.214404) (cf. p. 48).

- [63] C. DHITAL, Z. YAMANI, W. TIAN, J. ZERETSKY, A. S. SEFAT, Z. WANG, R. J. BIRGENEAU et S. D. WILSON. « Effect of uniaxial strain on the structural and magnetic phase transitions in BaFe_2As_2 ». *Physical Review Letters* 108(8) (2012), p. 087001. DOI : [10.1103/PhysRevLett.108.087001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.108.087001) (cf. p. 48).
- [64] A. P. DROZDOV, M. I. EREMETS, I. A. TROYAN, V. KSENOFONTOV et S. I. SHYLIN. « Conventional superconductivity at 203 K at high pressures in the sulfur hydride system ». *Nature* 525(7567) (2015), p. 73-76. DOI : [10.1038/nature14964](https://doi.org/10.1038/nature14964) (cf. p. 89).
- [65] P. DRUDE. « Zur Elektronentheorie der Metalle ». *Annalen der Physik* 306(3) (1900), p. 566-613. DOI : [10.1002/andp.19003060312](https://doi.org/10.1002/andp.19003060312) (cf. p. 9).
- [66] J. A. DUFFY, S. M. HAYDEN, Y. MAENO, Z. MAO, J. KULDA et G. J. MCINTYRE. « Polarized-neutron scattering study of the Cooper-pair moment in Sr_2RuO_4 ». *Physical Review Letters* 85(25) (2000), p. 5412-5415. DOI : [10.1103/PhysRevLett.85.5412](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.85.5412) (cf. p. 20).
- [67] Nicolas DUPUIS. *Fermi liquid theory*. URL : https://www.lptmc.jussieu.fr/files/chap_fl.pdf. (Version datée du 6 septembre 2019, toujours en ligne au 28 Septembre 2021) (cf. p. 5, 7).
- [68] A. DUSZA, A. LUCARELLI, F. PFUNER, J.-H. CHU, I. R. FISHER et L. DEGIORGI. « Anisotropic charge dynamics in detwinned $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ ». *Europhysics Letters* 93(3) (2011), p. 37002. DOI : [10.1209/0295-5075/93/37002](https://doi.org/10.1209/0295-5075/93/37002) (cf. p. 39).
- [69] C. FANG, H. YAO, W.-F. TSAI, J. HU et S. A. KIVELSON. « Theory of electron nematic order in LaFeAsO ». *Physical Review B* 77(22) (2008), p. 224509. DOI : [10.1103/PhysRevB.77.224509](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.77.224509) (cf. p. 37).
- [70] R. M. FERNANDES, E. ABRAHAMS et J. SCHMALIAN. « Anisotropic in-plane resistivity in the nematic phase of the iron pnictides ». *Physical Review Letters* 107(21) (2011), p. 217002. DOI : [10.1103/PhysRevLett.107.217002](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.107.217002) (cf. p. 39).
- [71] R. M. FERNANDES, A. V. CHUBUKOV et J. SCHMALIAN. « What drives nematic order in iron-based superconductors ? » *Nature Physics* 10(2) (2014), p. 97-104. DOI : [10.1038/nphys2877](https://doi.org/10.1038/nphys2877) (cf. p. 37).
- [72] R. M. FERNANDES et J. SCHMALIAN. « Manifestations of nematic degrees of freedom in the magnetic, elastic, and superconducting properties of the iron pnictides ». *Superconductor Science and Technology* 25(8) (2012), p. 084005. DOI : [10.1088/0953-2048/25/8/084005](https://doi.org/10.1088/0953-2048/25/8/084005) (cf. p. 37, 46).
- [73] R. M. FERNANDES, L. H. VANBEBBER, S. BHATTACHARYA, P. CHANDRA, V. KEPPENS, D. MANDRUS, M. A. MCGUIRE, B. C. SALES, A. S. SEFAT et J. SCHMALIAN. « Effects of nematic fluctuations on the elastic properties of iron arsenide superconductors ». *Physical Review Letters* 105(15) (2010), p. 4. DOI : [10.1103/PhysRevLett.105.157003](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.105.157003) (cf. p. 40, 41).
- [74] I. R. FISHER, L. DEGIORGI et Z. X. SHEN. « In-plane electronic anisotropy of underdoped ‘122’ Fe-arsenide superconductors revealed by measurements of detwinned single crystals ». *Reports on Progress in Physics* 74(12) (2011), p. 124506. DOI : [10.1088/0034-4885/74/12/124506](https://doi.org/10.1088/0034-4885/74/12/124506) (cf. p. 37, 38).
- [75] D. FORSYTHE, S. R. JULIAN, C. BERGEMANN, E. PUGH, M. J. STEINER, P. L. ALIREZA, G. J. McMULLAN, F. NAKAMURA, R. K. W. HASSELWIMMER, I. R. WALKER et al. « Evolution of Fermi-liquid interactions in Sr_2RuO_4 under pressure ». *Physical Review Letters* 89(16) (2002), p. 166402. DOI : [10.1103/PhysRevLett.89.166402](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.89.166402) (cf. p. 18).

- [76] E. FRADKIN, S. A. KIVELSON, M. J. LAWLER, J. P. EISENSTEIN et A. P. MACKENZIE. « Nematic Fermi fluids in condensed matter physics ». *Annual Review of Condensed Matter Physics* 1(1) (2010), p. 153-178. DOI : [10.1146/annurev-conmatphys-070909-103925](https://doi.org/10.1146/annurev-conmatphys-070909-103925) (cf. p. 37).
- [77] C. FUJII, S. SIMAYI, K. SAKANO, C. SASAKI, M. NAKAMURA, Y. NAKANISHI, K. KIHOU, M. NAKAJIMA, C.-H. LEE, A. IYO et al. « Anisotropic Grüneisen parameter and diverse order parameter fluctuations in iron-based superconductor $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ ». *Journal of the Physical Society of Japan* 87(7) (2018), p. 074710. DOI : [10.7566/JPSJ.87.074710](https://doi.org/10.7566/JPSJ.87.074710) (cf. p. 41, 110-112, 120, 148, 150, 151, 195, 197, 198).
- [78] Y. GALLAIS, R. M. FERNANDES, I. PAUL, L. CHAUVIÈRE, Y.-X. YANG, M.-A. MÉASSON, M. CAZAYOUS, A. SACUTO, D. COLSON et A. FORGET. « Observation of incipient charge nematicity in $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ ». *Physical Review Letters* 111(26) (2013), p. 267001. DOI : [10.1103/PhysRevLett.111.267001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.111.267001) (cf. p. 42, 43, 73, 137, 145, 150-152).
- [79] Y. GALLAIS et I. PAUL. « Charge nematicity and electronic Raman scattering in iron-based superconductors ». *Comptes Rendus Physique* 17(1-2) (2016), p. 113-139. DOI : [10.1016/j.crhy.2015.10.001](https://doi.org/10.1016/j.crhy.2015.10.001) (cf. p. 43, 69, 72, 73).
- [80] Y. GALLAIS, I. PAUL, L. CHAUVIÈRE et J. SCHMALIAN. « Nematic resonance in the Raman response of iron-based superconductors ». *Physical Review Letters* 116(1) (2016), p. 017001. DOI : [10.1103/PhysRevLett.116.017001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.116.017001) (cf. p. 75-77, 149).
- [81] Yann GALLAIS. « Diffusion Raman électronique dans les cuprates supraconducteurs ». Thèse de doctorat. Université Pierre et Marie Curie, 2003 (cf. p. 52).
- [82] S. GANESAN, A. A. MARADUDIN et J. OITMAA. « A lattice theory of morphic effects in crystals of the diamond structure ». *Annals of Physics* 56(2) (1970), p. 556-594. DOI : [10.1016/0003-4916\(70\)90029-1](https://doi.org/10.1016/0003-4916(70)90029-1) (cf. p. 116).
- [83] L. GAO, Y. Y. XUE, F. CHEN, Q. XIONG, R. L. MENG, D. RAMIREZ, C. W. CHU, J. H. EGGERT et H. K. MAO. « Superconductivity up to 164 K in $\text{HgBa}_2\text{Ca}_{m-1}\text{Cu}_m\text{O}_{2m+2+\delta}$ ($m = 1, 2, \text{ and } 3$) under quasihydrostatic pressures ». *Physical Review B* 50(6) (1994), p. 4260-4263. DOI : [10.1103/PhysRevB.50.4260](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.50.4260) (cf. p. 89).
- [84] M. N. GASTIASORO, I. PAUL, Y. WANG, P. J. HIRSCHFELD et B. M. ANDERSEN. « Emergent defect states as a source of resistivity anisotropy in the nematic phase of iron pnictides ». *Physical Review Letters* 113(12) (2014), p. 127001. DOI : [10.1103/PhysRevLett.113.127001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.113.127001) (cf. p. 39).
- [85] A. GEORGES, L. de'MEDICI et J. MRAVLJE. « Strong Correlations from Hund's Coupling ». *Annual Review of Condensed Matter Physics* 4(1) (2013), p. 137-178. DOI : [10.1146/annurev-conmatphys-020911-125045](https://doi.org/10.1146/annurev-conmatphys-020911-125045) (cf. p. 26).
- [86] S. GHOSH, F. BRÜCKNER, A. NIKITIN, V. GRINENKO, M. ELENDER, A. P. MACKENZIE, H. LUETKENS, H.-H. KLAUSS et C. W. HICKS. « Piezoelectric-driven uniaxial pressure cell for muon spin relaxation and neutron scattering experiments ». *Review of Scientific Instruments* 91(10) (2020), p. 103902. DOI : [10.1063/5.0025307](https://doi.org/10.1063/5.0025307) (cf. p. 98).
- [87] S. GHOSH, A. SHEKHTER, F. JERZEMBECK, N. KIKUGAWA, D. A. SOKOLOV, M. BRANDO, A. P. MACKENZIE, C. W. HICKS et B. J. RAMSHAW. « Thermodynamic evidence for a two-component superconducting order parameter in Sr_2RuO_4 ». *Nature Physics* 17(2) (2021), p. 199-204. DOI : [10.1038/s41567-020-1032-4](https://doi.org/10.1038/s41567-020-1032-4) (cf. p. 20).

- [88] O. GINGRAS, R. NOURAFKAN, A.-M. S. TREMBLAY et M. CÔTÉ. « Superconducting symmetries of Sr_2RuO_4 from first-principles electronic structure ». *Physical Review Letters* 123(21) (2019), p. 217005. DOI : [10.1103/PhysRevLett.123.217005](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.123.217005) (cf. p. 21).
- [89] W. GÖTZE et P. WÖLFLE. « Homogeneous Dynamical Conductivity of Simple Metals ». *Physical Review B* 6(4) (1972), p. 1226-1238. DOI : [10.1103/PhysRevB.6.1226](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.6.1226) (cf. p. 63).
- [90] Romain GRASSET. « Supraconductivité et ordres exotiques : à la recherche du boson de Higgs ». Thèse de doctorat. Université Paris Diderot, 2017 (cf. p. 89).
- [91] V. GRINENKO, S. GHOSH, R. SARKAR, J.-C. ORAIN, A. NIKITIN, M. ELENDER, D. DAS, Z. GUGUCHIA, F. BRÜCKNER, M. E. BARBER et al. « Split superconducting and time-reversal symmetry-breaking transitions in Sr_2RuO_4 under stress ». *Nature Physics* 17(6) (2021), p. 748-754. DOI : [10.1038/s41567-021-01182-7](https://doi.org/10.1038/s41567-021-01182-7) (cf. p. 98).
- [92] R. N. GURZHI. « Mutual electron correlations in metal optics ». *Journal of Experimental and Theoretical Physics* 35 (1958), p. 965-969. (Version russe. Version anglaise traduite par D. ter Haar et publiée dans *Soviet Physics JETP* 8(4) :673-675 (1959)) (cf. p. 12).
- [93] Y. D. HARKER, C. Y. SHE et D. F. EDWARDS. « Stress-dependent Raman frequency and linewidth in α -quartz ». *Applied Physics Letters* 15(8) (1969), p. 272-275. DOI : [10.1063/1.1652997](https://doi.org/10.1063/1.1652997) (cf. p. 115).
- [94] Y. D. HARKER, C. Y. SHE et D. F. EDWARDS. « Raman spectra of α -quartz under uniaxial stress ». *Journal of Applied Physics* 41(13) (1970), p. 5274-5278. DOI : [10.1063/1.1658661](https://doi.org/10.1063/1.1658661) (cf. p. 115).
- [95] E. HASSINGER, P. BOURGEOIS-HOPE, H. TANIGUCHI, S. RENÉ DE COTRET, G. GRISSONNANCHE, M. S. ANWAR, Y. MAENO, N. DOIRON-LEYRAUD et Louis TAILLEFER. « Vertical line nodes in the superconducting gap structure of Sr_2RuO_4 ». *Physical Review X* 7(1) (2017), p. 011032. DOI : [10.1103/PhysRevX.7.011032](https://doi.org/10.1103/PhysRevX.7.011032) (cf. p. 20).
- [96] M. W. HAVERKORT, I. S. ELFIMOV, L. H. TJENG, G. A. SAWATZKY et A. DAMASCELLI. « Strong spin-orbit coupling effects on the Fermi surface of Sr_2RuO_4 and Sr_2RhO_4 ». *Physical Review Letters* 101(2) (2008), p. 026406. DOI : [10.1103/PhysRevLett.101.026406](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.101.026406) (cf. p. 15).
- [97] William HAYES et Rodney LOUDON. *Scattering of light by crystals*. Dover Publications, 1978 (cf. p. 52).
- [98] M. HE, L. WANG, F. HARDY, L. XU, T. WOLF, P. ADELMANN et C. MEINGAST. « Evidence for short-range magnetic order in the nematic phase of FeSe from anisotropic in-plane magnetostriction and susceptibility measurements ». *Physical Review B* 97(10) (2018), p. 104107. DOI : [10.1103/PhysRevB.97.104107](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.97.104107) (cf. p. 50).
- [99] C. W. HICKS, M. E. BARBER, S. D. EDKINS, D. O. BRODSKY et A. P. MACKENZIE. « Piezoelectric-based apparatus for strain tuning ». *Review of Scientific Instruments* 85(6) (2014), p. 065003. DOI : [10.1063/1.4881611](https://doi.org/10.1063/1.4881611) (cf. p. 97, 98, 187).
- [100] C. W. HICKS, D. O. BRODSKY, E. A. YELLAND, A. S. GIBBS, J. A. N. BRUIN, M. E. BARBER, S. D. EDKINS, K. NISHIMURA, S. YONEZAWA, Y. MAENO et al. « Strong increase of T_c of Sr_2RuO_4 under both tensile and compressive strain ». *Science* 344(6181) (2014), p. 283-285. DOI : [10.1126/science.1248292](https://doi.org/10.1126/science.1248292) (cf. p. 18, 90, 97, 98, 110).

- [101] J. E. HIRSCH et F. MARSIGLIO. « Unusual width of the superconducting transition in a hydride ». *Nature* 596(7873) (2021), E9-E10. DOI : [10.1038/s41586-021-03595-z](https://doi.org/10.1038/s41586-021-03595-z) (cf. p. 89).
- [102] P. J. HIRSCHFELD, M. M. KORSHUNOV et I. I. MAZIN. « Gap symmetry and structure of Fe-based superconductors ». *Reports on Progress in Physics* 74(12) (2011), p. 124508. DOI : [10.1088/0034-4885/74/12/124508](https://doi.org/10.1088/0034-4885/74/12/124508) (cf. p. 30).
- [103] C. HODGES, H. SMITH et J. W. WILKINS. « Effect of Fermi surface geometry on electron-electron scattering ». *Physical Review B* 4(2) (1971), p. 302-311. DOI : [10.1103/PhysRevB.4.302](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.4.302) (cf. p. 23).
- [104] A. T. HRISTOV, J. C. PALMSTROM, J. A. W. STRAQUADINE, T. A. MERZ, H. Y. HWANG et I. R. FISHER. « Measurement of elastoresistivity at finite frequency by amplitude demodulation ». *Review of Scientific Instruments* 89(10) (2018), p. 103901. DOI : [10.1063/1.5031136](https://doi.org/10.1063/1.5031136) (cf. p. 98).
- [105] Q. HUANG, Y. QIU, W. BAO, M. A. GREEN, J. W. LYNN, Y. C. GASPAROVIC, T. WU, G. WU et X. H. CHEN. « Neutron-diffraction measurements of magnetic order and a structural transition in the parent BaFe₂As₂ compound of FeAs-based high-temperature superconductors ». *Physical Review Letters* 101(25) (2008), p. 257003. DOI : [10.1103/PhysRevLett.101.257003](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.101.257003) (cf. p. 31, 35).
- [106] Q. HUANG, J. L. SOUBEYROUX, O. CHMAISSEM, I. NATALI SORA, A. SANTORO, R. J. CAVA, J. J. KRAJEWSKI et W. F. PECK Jr. « Neutron powder diffraction study of the crystal structures of Sr₂RuO₄ and Sr₂IrO₄ at room temperature and at 10 K ». *Journal of Solid State Chemistry* 112 (1994), p. 355-361 (cf. p. 13).
- [107] A. A. HUSAIN, M. MITRANO, M. S. RAK, S. I. RUBECK, H. YANG, C. SOW, Y. MAENO, P. E. BATSON et P. ABBAMONTE. « Coexisting Fermi liquid and strange metal phenomena in Sr₂RuO₄ ». *arxiv* (2020), p. 12 (cf. p. 166).
- [108] N. E. HUSSEY, A. P. MACKENZIE, J. R. COOPER, Y. MEANO, S. NISHIZAKI et T. FUJITA. « Normal-state magnetoresistance of Sr₂RuO₄ ». *Physical Review B* 57(9) (1998), p. 5505-5511. DOI : [10.1103/PhysRevB.57.5505](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.57.5505) (cf. p. 22).
- [109] K. IIDA, M. KOFU, N. KATAYAMA, J. LEE, R. KAJIMOTO, Y. INAMURA, M. NAKAMURA, M. ARAI, Y. YOSHIDA, M. FUJITA et al. « Inelastic neutron scattering study of the magnetic fluctuations in Sr₂RuO₄ ». *Physical Review B* 84(6) (2011), p. 060402. DOI : [10.1103/PhysRevB.84.060402](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.84.060402) (cf. p. 17).
- [110] K. IIDA, J. LEE, M. B. STONE, M. KOFU, Y. YOSHIDA et S. LEE. « Two-dimensional incommensurate magnetic fluctuations in Sr₂(Ru_{0.99}Ti_{0.01})O₄ ». *Journal of the Physical Society of Japan* 81(12) (2012), p. 124710. DOI : [10.1143/JPSJ.81.124710](https://doi.org/10.1143/JPSJ.81.124710) (cf. p. 18).
- [111] M. S. IKEDA, J. A. W. STRAQUADINE, A. T. HRISTOV, T. WORASARAN, J. C. PALMSTROM, M. SORENSEN, P. WALMSLEY et I. R. FISHER. « AC elastocaloric effect as a probe for thermodynamic signatures of continuous phase transitions ». *Review of Scientific Instruments* 90(8) (2019), p. 083902. DOI : [10.1063/1.5099924](https://doi.org/10.1063/1.5099924) (cf. p. 45, 98).
- [112] M. S. IKEDA, T. WORASARAN, J. C. PALMSTROM, J. A. W. STRAQUADINE, P. WALMSLEY et I. R. FISHER. « Symmetric and antisymmetric strain as continuous tuning parameters for electronic nematic order ». *Physical Review B* 98(24) (2018), p. 245133. DOI : [10.1103/PhysRevB.98.245133](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.98.245133) (cf. p. 47, 48, 95, 98, 105, 110, 112, 131, 141, 153).

- [113] M. S. IKEDA, T. WORASARAN, E. W. ROSENBERG, J. C. PALMSTROM, S. A. KIVELSON et I. R. FISHER. « Elastocaloric signature of nematic fluctuations ». *arXiv* (2020) (cf. p. 45, 98, 150-153).
- [114] M. N. ILIEV, V. N. POPOV, A. P. LITVINCHUK, M. V. ABRASHEV, J. BÄCKSTRÖM, Y. Y. SUN, R. L. MENG et C. W. CHU. « Comparative Raman studies of Sr_2RuO_4 , $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ and $\text{Sr}_4\text{Ru}_3\text{O}_{10}$ ». *Physica B* 358(1-4) (2005), p. 138-152. DOI : [10.1016/j.physb.2004.12.069](https://doi.org/10.1016/j.physb.2004.12.069) (cf. p. 159).
- [115] T. IMAI, A. W. HUNT, K. R. THURBER et F. C. CHOU. « ^{17}O NMR evidence for orbital dependent ferromagnetic correlations in Sr_2RuO_4 ». *Physical Review Letters* 81(14) (1998), p. 3006-3009. DOI : [10.1103/PhysRevLett.81.3006](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.81.3006) (cf. p. 18).
- [116] N. J. C. INGLE, K. M. SHEN, F. BAUMBERGER, W. MEEVASANA, D. H. LU, Z.-X. SHEN, A. DAMASCELLI, S. NAKATSUJI, Z. Q. MAO, Y. MAENO et al. « Quantitative analysis of Sr_2RuO_4 angle-resolved photoemission spectra : Many-body interactions in a model Fermi liquid ». *Physical Review B* 72(20) (2005), p. 205114. DOI : [10.1103/PhysRevB.72.205114](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.72.205114) (cf. p. 23).
- [117] K. ISHIDA, H. MUKUDA, Y. KITAOKA, K. ASAYAMA, Z. Q. MAO, Y. MORI et Y. MAENO. « Spin-triplet superconductivity in Sr_2RuO_4 identified by ^{17}O Knight shift ». *Nature* 396(6712) (1998), p. 658-660. DOI : [10.1038/25315](https://doi.org/10.1038/25315) (cf. p. 20, 21).
- [118] S. ISHIDA, M. NAKAJIMA, T. LIANG, K. KIHOU, C. H. LEE, A. IYO, H. EISAKI, T. KAKESHITA, Y. TOMIOKA, T. ITO et al. « Anisotropy of the in-plane resistivity of underdoped $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ superconductors induced by impurity scattering in the antiferromagnetic orthorhombic phase ». *Physical Review Letters* 110(20) (2013), p. 207001. DOI : [10.1103/PhysRevLett.110.207001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.110.207001) (cf. p. 39).
- [119] Mark JARRELL. *The Fermi liquid*. URL : http://www.phys.lsu.edu/~jarrell/COURSES/SOLID_STATE/Chap6/chap6.pdf. (Version datée du 7 février 2017, toujours en ligne au 28 Septembre 2021) (cf. p. 5).
- [120] K. JENNI, S. KUNKEMÖLLER, P. STEFFENS, Y. SIDIS, R. BEWLEY, Z. Q. MAO, Y. MAENO et M. BRADEN. « Neutron scattering studies on spin fluctuations in Sr_2RuO_4 ». *Physical Review B* 103(10) (2021), p. 104511. DOI : [10.1103/PhysRevB.103.104511](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.103.104511) (cf. p. 14, 17).
- [121] D. C. JOHNSTON. « The puzzle of high temperature superconductivity in layered iron pnictides and chalcogenides ». *Advances in Physics* 59(6) (2010), p. 803-1061. DOI : [10.1080/00018732.2010.513480](https://doi.org/10.1080/00018732.2010.513480) (cf. p. 30).
- [122] Y. KAMIHARA, H. HIRAMATSU, M. HIRANO, R. KAWAMURA, H. YANAGI, T. KAMIYA et H. HOSONO. « Iron-based layered superconductor : LaOFeP ». *Journal of the American Chemical Society* 128(31) (2006), p. 10012-10013. DOI : [10.1021/ja063355c](https://doi.org/10.1021/ja063355c) (cf. p. 30).
- [123] Y. KAMIHARA, T. WATANABE, M. HIRANO et H. HOSONO. « Iron-based layered superconductor $\text{La}[\text{O}_{1-x}\text{F}_x]\text{FeAs}$ ($x = 0.05-0.12$) with $T_c = 26$ K ». *Journal of the American Chemical Society* 130(11) (2008), p. 3296-3297. DOI : [10.1021/ja800073m](https://doi.org/10.1021/ja800073m) (cf. p. 30).
- [124] J. KARP, M. BRAMBERGER, M. GRUNDNER, U. SCHOLLWÖCK, A. J. MILLIS et M. ZINGL. « Sr_2MoO_4 and Sr_2RuO_4 : disentangling the roles of Hund's and van Hove physics ». *Physical Review Letters* 125(16) (2020), p. 166401. DOI : [10.1103/PhysRevLett.125.166401](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.125.166401) (cf. p. 27).

- [125] S. KÄSER, H. U. R. STRAND, N. WENTZELL, A. GEORGES, O. PARCOLLET et P. HANSMANN. « Inter-orbital singlet pairing in Sr_2RuO_4 : a Hund's superconductor ». *arXiv :2105.08448 [cond-mat]* (2021) (cf. p. 21, 26, 185).
- [126] T. KATSUFUJI, M. KASAI et Y. TOKURA. « In-plane and out-of-plane optical spectra of Sr_2RuO_4 ». *Physical Review Letters* 76(1) (1996), p. 126-129. DOI : [10.1103/PhysRevLett.76.126](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.76.126) (cf. p. 22-25).
- [127] P. G. KEALEY, T. M. RISEMAN, E. M. FORGAN, L. M. GALVIN, A. P. MACKENZIE, S. L. LEE, D. McK. PAUL, R. CUBITT, D. F. AGTERBERG, R. HEEB et al. « Reconstruction from small-angle neutron scattering measurements of the real space magnetic field distribution in the mixed state of Sr_2RuO_4 ». *Physical Review Letters* 84(26) (2000), p. 6094-6097. DOI : [10.1103/PhysRevLett.84.6094](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.84.6094) (cf. p. 20).
- [128] T. E. KIDD, T. VALLA, A. V. FEDOROV, P. D. JOHNSON, R. J. CAVA et M. K. HAAS. « Orbital dependence of the Fermi liquid state in Sr_2RuO_4 ». *Physical Review Letters* 94(10) (2005), p. 107003. DOI : [10.1103/PhysRevLett.94.107003](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.94.107003) (cf. p. 23).
- [129] N. KIKUGAWA, C. BERGEMANN, A. P. MACKENZIE et Y. MAENO. « Band-selective modification of the magnetic fluctuations in Sr_2RuO_4 : a study of substitution effects ». *Physical Review B* 70(13) (2004), p. 134520. DOI : [10.1103/PhysRevB.70.134520](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.70.134520) (cf. p. 16).
- [130] M. KIM, J. MRAVLJE, M. FERRERO, O. PARCOLLET et A. GEORGES. « Spin-orbit coupling and electronic correlations in Sr_2RuO_4 ». *Physical Review Letters* 120(12) (2018), p. 126401. DOI : [10.1103/PhysRevLett.120.126401](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.120.126401) (cf. p. 16, 27).
- [131] T. KISSIKOV, R. SARKAR, B. T. BUSH, M. LAWSON, P. C. CANFIELD et N. J. CURRO. « Nuclear magnetic resonance probe head design for precision strain control ». *Review of Scientific Instruments* 88(10) (2017), p. 103902. DOI : [10.1063/1.5002631](https://doi.org/10.1063/1.5002631) (cf. p. 98).
- [132] T. KISSIKOV, R. SARKAR, M. LAWSON, B. T. BUSH, E. I. TIMMONS, M. A. TANATAR, R. PROZOROV, S. L. BUD'KO, P. C. CANFIELD, R. M. FERNANDES et al. « Local nematic susceptibility in stressed BaFe_2As_2 from NMR electric field gradient measurements ». *Physical Review B* 96(24) (2017), p. 241108. DOI : [10.1103/PhysRevB.96.241108](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.96.241108) (cf. p. 45, 98).
- [133] T. KISSIKOV, R. SARKAR, M. LAWSON, B. T. BUSH, E. I. TIMMONS, M. A. TANATAR, R. PROZOROV, S. L. BUD'KO, P. C. CANFIELD, R. M. FERNANDES et al. « Uniaxial strain control of spin-polarization in multicomponent nematic order of BaFe_2As_2 ». *Nature Communications* 9 (2018), p. 1058. DOI : [10.1038/s41467-018-03377-8](https://doi.org/10.1038/s41467-018-03377-8) (cf. p. 48, 98, 110, 134, 144, 194).
- [134] S. A. KIVELSON, E. FRADKIN et V. J. EMERY. « Electronic liquid-crystal phases of a doped Mott insulator ». *Nature* 393(6685) (1998), p. 550-553. DOI : [10.1038/31177](https://doi.org/10.1038/31177) (cf. p. 37).
- [135] S. A. KIVELSON, A. C. YUAN, B. RAMSHAW et R. THOMALE. « A proposal for reconciling diverse experiments on the superconducting state in Sr_2RuO_4 ». *npj Quantum Materials* 5(1) (2020), p. 43. DOI : [10.1038/s41535-020-0245-1](https://doi.org/10.1038/s41535-020-0245-1) (cf. p. 19, 21).
- [136] Miles V. KLEIN. *Electronic Raman scattering*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1975. DOI : [10.1007/978-3-540-37568-5](https://doi.org/10.1007/978-3-540-37568-5). (Chapitre 8 de *Light Scattering in Solids*, éditeur Manuel Cardona.) (Cf. p. 194).
- [137] W. D. KOMER et D. J. MACHIN. « Ternary and quaternary oxides of ruthenium and iridium ». *Journal of the Less-Common Metals* 61(1) (1978), p. 91-105. DOI : [10.1016/0022-5088\(78\)90150-9](https://doi.org/10.1016/0022-5088(78)90150-9) (cf. p. 3).

- [138] F. KRETZSCHMAR, T. BÖHM, U. KARAHASANOVIĆ, B. MUSCHLER, A. BAUM, D. JOST, J. SCHMALIAN, S. CAPRARA, M. GRILLI, C. DI CASTRO et al. « Critical spin fluctuations and the origin of nematic order in $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ ». *Nature Physics* 12(6) (2016), p. 560-563. DOI : [10.1038/nphys3634](https://doi.org/10.1038/nphys3634) (cf. p. 43).
- [139] F. B. KUGLER, M. ZINGL, H. U. R. STRAND, S.-S. B. LEE, J. von DELFT et A. GEORGES. « Strongly correlated materials from a numerical renormalization group perspective : How the Fermi-liquid state of Sr_2RuO_4 emerges ». *Physical Review Letters* 124(1) (2020), p. 016401. DOI : [10.1103/PhysRevLett.124.016401](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.124.016401) (cf. p. 27).
- [140] H.-H. KUO et I. R. FISHER. « Effect of disorder on the resistivity anisotropy near the electronic nematic phase transition in pure and electron-doped BaFe_2As_2 ». *Physical Review Letters* 112(22) (2014), p. 227001. DOI : [10.1103/PhysRevLett.112.227001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.112.227001) (cf. p. 44).
- [141] H.-H. KUO, M. C. SHAPIRO, S. C. RIGGS et I. R. FISHER. « Measurement of the elastoresistivity coefficients of the underdoped iron arsenide $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.975}\text{Co}_{0.025})_2\text{As}_2$ ». *Physical Review B* 88(8) (2013), p. 085113. DOI : [10.1103/PhysRevB.88.085113](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.88.085113) (cf. p. 44).
- [142] D. LABAT et I. PAUL. « Pairing instability near a lattice-influenced nematic quantum critical point ». *Physical Review B* 96(19) (2017), p. 195146. DOI : [10.1103/PhysRevB.96.195146](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.96.195146) (cf. p. 46, 47, 150, 154).
- [143] Dimitri LABAT. « Nématicité et supraconductivité ; Jeux d'influence dans les systèmes au fer ». Thèse de doctorat. Université Paris Diderot, 2018 (cf. p. 30).
- [144] J. LABBÉ et J. FRIEDEL. « Instabilité électronique et changement de phase cristalline des composés du type V_3Si à basse température ». *Journal de Physique* 27(3-4) (1966), p. 153-165. DOI : [10.1051/jphys:01966002703-4015300](https://doi.org/10.1051/jphys:01966002703-4015300) (cf. p. 37).
- [145] L. D. LANDAU. « The theory of a Fermi liquid ». *Journal of Experimental and Theoretical Physics* 30 (1956), p. 1058-1064. (Version russe. Version anglaise traduite par R. T. Beyer et publiée dans *Soviet Physics JETP* 3(6) :920-925 (1957)) (cf. p. 5, 9).
- [146] L. D. LANDAU. « Oscillations in a Fermi liquid ». *Journal of Experimental and Theoretical Physics* 32 (1957), p. 59-66. (Version russe. Version anglaise traduite par R. T. Beyer et publiée dans *Soviet Physics JETP* 5(1) :101-108 (1957)) (cf. p. 5).
- [147] L. D. LANDAU. « On the theory of the Fermi liquid ». *Journal of Experimental and Theoretical Physics* 35 (1958), p. 97-103. (Version russe. Version anglaise traduite par W. H. Furry et publiée dans *Soviet Physics JETP* 8(1) :70-74 (1959)) (cf. p. 5).
- [148] S. LEDERER, E. BERG et E.-A. KIM. « Tests of nematic-mediated superconductivity applied to $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Ni}_2\text{As}_2$ ». *Physical Review Research* 2(2) (2020), p. 023122. DOI : [10.1103/PhysRevResearch.2.023122](https://doi.org/10.1103/PhysRevResearch.2.023122) (cf. p. 46, 141, 154).
- [149] S. LEDERER, Y. SCHATTNER, E. BERG et S. A. KIVELSON. « Enhancement of superconductivity near a nematic quantum critical point ». *Physical Review Letters* 114(9) (2015), p. 097001. DOI : [10.1103/PhysRevLett.114.097001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.114.097001) (cf. p. 46, 47, 150).
- [150] J. S. LEE, S. J. MOON, T. W. NOH, S. NAKATSUJI et Y. MAENO. « Orbital-selective mass enhancements in multiband $\text{Ca}_{2-x}\text{Sr}_x\text{RuO}_4$ systems analyzed by the extended Drude model ». *Physical Review Letters* 96(5) (2006), p. 057401. DOI : [10.1103/PhysRevLett.96.057401](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.96.057401) (cf. p. 25).
- [151] A. J. LEGGETT et Y. LIU. « Symmetry properties of superconducting order parameter in Sr_2RuO_4 : a brief review ». *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism* 34(6) (2020), p. 1647-1673. DOI : [10.1007/s10948-020-05717-6](https://doi.org/10.1007/s10948-020-05717-6) (cf. p. 4, 15).

- [152] Y.-S. LI, R. BORTH, C. W. HICKS, A. P. MACKENZIE et M. NICKLAS. « Heat-capacity measurements under uniaxial pressure using a piezo-driven device ». *Review of Scientific Instruments* 91(10) (2020), p. 103903. DOI : [10.1063/5.0021919](https://doi.org/10.1063/5.0021919) (cf. p. 98).
- [153] Y.-S. LI, N. KIKUGAWA, D. A. SOKOLOV, F. JERZEMBECK, A. S. GIBBS, Y. MAENO, C. W. HICKS, J. SCHMALIAN, M. NICKLAS et A. P. MACKENZIE. « High-sensitivity heat-capacity measurements on Sr_2RuO_4 under uniaxial pressure ». *Proceedings of the National Academy of Sciences* 118(10) (2021), e2020492118. DOI : [10.1073/pnas.2020492118](https://doi.org/10.1073/pnas.2020492118) (cf. p. 98).
- [154] F. LICHTENBERG, A. CATANA, J. MANNHART et D. G. SCHLOM. « Sr_2RuO_4 : a metallic substrate for the epitaxial growth of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ». *Applied Physics Letters* 60(9) (1992), p. 1138-1140. DOI : [10.1063/1.106432](https://doi.org/10.1063/1.106432) (cf. p. 3).
- [155] N. LIN, E. GULL et A. J. MILLIS. « Two-particle response in cluster dynamical mean-field theory : formalism and application to the Raman response of high-temperature superconductors ». *Physical Review Letters* 109(10) (2012), p. 106401. DOI : [10.1103/PhysRevLett.109.106401](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.109.106401) (cf. p. 185).
- [156] C. LIU, A. D. PALCZEWSKI, R. S. DHAKA, T. KONDO, R. M. FERNANDES, E. D. MUN, H. HODOVANETS, A. N. THALER, J. SCHMALIAN, S. L. BUD'KO et al. « Importance of the Fermi-surface topology to the superconducting state of the electron-doped pnictide $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ ». *Physical Review B* 84(2) (2011), p. 020509. DOI : [10.1103/PhysRevB.84.020509](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.84.020509) (cf. p. 34).
- [157] D. H. LU, M. SCHMIDT, T. R. CUMMINS, S. SCHUPPLER, F. LICHTENBERG et J. G. BEDNORZ. « Fermi surface and extended van Hove singularity in the noncuprate superconductor Sr_2RuO_4 ». *Physical Review Letters* 76(25) (1996), p. 4845-4848. DOI : [10.1103/PhysRevLett.76.4845](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.76.4845) (cf. p. 15).
- [158] G. M. LUKE, Y. FUDAMOTO, K. M. KOJIMA, M. I. LARKIN, J. MERRIN, B. NACHUMI, Y. J. UEMURA, Y. MAENO, Z. Q. MAO, Y. MORI et al. « Time-reversal symmetry-breaking superconductivity in Sr_2RuO_4 ». *Nature* 394(6693) (1998), p. 558-561. DOI : [10.1038/29038](https://doi.org/10.1038/29038) (cf. p. 20).
- [159] Y. LUO, A. PUSTOGOW, P. GUZMAN, A. P. DIOGUARDI, S. M. THOMAS, F. RONNING, N. KIKUGAWA, D. A. SOKOLOV, F. JERZEMBECK, A. P. MACKENZIE et al. « Normal State O 17 NMR Studies of Sr_2RuO_4 under Uniaxial Stress ». *Physical Review X* 9(2) (2019), p. 021044. DOI : [10.1103/PhysRevX.9.021044](https://doi.org/10.1103/PhysRevX.9.021044) (cf. p. 98).
- [160] A. P. MACKENZIE. « Sr_2RuO_4 : normal-state properties and the effect of disorder ». *Journal of Superconductivity* 12(4) (1999), p. 543-549. DOI : [10.1023/A:1007792420096](https://doi.org/10.1023/A:1007792420096) (cf. p. 4).
- [161] A. P. MACKENZIE, R. K. W. HASELWIMMER, A. W. TYLER, G. G. LONZARICH, Y. MORI, S. NISHIZAKI et Y. MAENO. « Extremely strong dependence of superconductivity on disorder in Sr_2RuO_4 ». *Physical Review Letters* 80(1) (1998), p. 161-164. DOI : [10.1103/PhysRevLett.80.161](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.80.161) (cf. p. 18, 19).
- [162] A. P. MACKENZIE, S. IKEDA, Y. MAENO, T. FUJITA, S. R. JULIAN et G. G. LONZARICH. « The Fermi surface topography of Sr_2RuO_4 ». *Journal of the Physical Society of Japan* 67(2) (1998), p. 385-388. DOI : [10.1143/JPSJ.67.385](https://doi.org/10.1143/JPSJ.67.385) (cf. p. 24, 25).
- [163] A. P. MACKENZIE, S. R. JULIAN, A. J. DIVER, G. G. LONZARICH, N. E. HUSSEY, Y. MAENO, S. NISHIZAKI et T. FUJITA. « Calculation of thermodynamic and transport properties of Sr_2RuO_4 at low temperatures using known Fermi surface parameters ». *Physica C* 263 (1996), p. 510-515. DOI : [10.1016/0921-4534\(95\)00770-9](https://doi.org/10.1016/0921-4534(95)00770-9) (cf. p. 24).

- [164] A. P. MACKENZIE, S. R. JULIAN, A. J. DIVER, G. J. McMULLAN, M. P. RAY, G. G. LONZARICH, Y. MAENO, S. NISHIZAKI et T. FUJITA. « Quantum oscillations in the layered perovskite superconductor Sr_2RuO_4 ». *Physical Review Letters* 76(20) (1996), p. 3786-3789. DOI : [10.1103/PhysRevLett.76.3786](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.76.3786) (cf. p. 15, 16, 24, 25).
- [165] A. P. MACKENZIE et Y. MAENO. « The superconductivity of Sr_2RuO_4 and the physics of spin-triplet pairing ». *Reviews of Modern Physics* 75(2) (2003), p. 657-712. DOI : [10.1103/RevModPhys.75.657](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.75.657) (cf. p. 4, 18).
- [166] A. P. MACKENZIE, T. SCAFFIDI, C. W. HICKS et Y. MAENO. « Even odder after twenty-three years : the superconducting order parameter puzzle of Sr_2RuO_4 ». *npj Quantum Materials* 2 (2017), p. 40. DOI : [10.1038/s41535-017-0045-4](https://doi.org/10.1038/s41535-017-0045-4) (cf. p. 4, 19, 22).
- [167] Y. MAENO, T. ANDO, Y. MORI, E. OHMACHI, S. IKEDA, S. NISHIZAKI et S. NAKATSUJI. « Enhancement of superconductivity of Sr_2RuO_4 to 3 K by embedded metallic microdomains ». *Physical Review Letters* 81(17) (1998), p. 3765-3768. DOI : [10.1103/PhysRevLett.81.3765](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.81.3765) (cf. p. 18).
- [168] Y. MAENO, H. HASHIMOTO, K. YOSHIDA, S. NISHIZAKI, T. FUJITA, J. G. BEDNORZ et F. LICHTENBERG. « Superconductivity in a layered perovskite without copper ». *Nature* 375 (1994), p. 532-534. DOI : [10.1038/372532a0](https://doi.org/10.1038/372532a0) (cf. p. 4, 18).
- [169] Y. MAENO, S. NISHIZAKI, K. YOSHIDA, S. IKEDA et T. FUJITA. « Normal-state and superconducting properties of Sr_2RuO_4 ». *Journal of Low Temperature Physics* 105(5-6) (1996), p. 1577-1586. DOI : [10.1007/BF00753925](https://doi.org/10.1007/BF00753925) (cf. p. 22, 24, 166).
- [170] Y. MAENO, T. M. RICE et M. SIGRIST. « The intriguing superconductivity of strontium ruthenate ». *Physics Today* 54(1) (2001), p. 42-47. DOI : [10.1063/1.1349611](https://doi.org/10.1063/1.1349611) (cf. p. 4).
- [171] Y. MAENO et K. YOSHIDA. « Fermi liquid properties and superconductivity of Sr_2RuO_4 ». *Czechoslovak Journal of Physics* 46(S6) (1996), p. 3097-3104. DOI : [10.1007/BF02548115](https://doi.org/10.1007/BF02548115) (cf. p. 4).
- [172] Y. MAENO, K. YOSHIDA, H. HASHIMOTO, S. NISHIZAKI, S. IKEDA, M. NOHARA, T. FUJITA, A. P. MACKENZIE, N. E. HUSSEY, J. G. BEDNORZ et al. « Two-dimensional Fermi liquid behavior of the superconductor Sr_2RuO_4 ». *Journal of the Physical Society of Japan* 66(5) (1997), p. 1405-1408. DOI : [10.1143/JPSJ.66.1405](https://doi.org/10.1143/JPSJ.66.1405) (cf. p. 24, 25).
- [173] A. V. MAHARAJ, E. W. ROSENBERG, A. T. HRISTOV, E. BERG, R. M. FERNANDES, I. R. FISHER et S. A. KIVELSON. « Transverse fields to tune an Ising-nematic quantum phase transition ». *Proceedings of the National Academy of Sciences* 114(51) (2017), p. 13430-13434. DOI : [10.1073/pnas.1712533114](https://doi.org/10.1073/pnas.1712533114) (cf. p. 47).
- [174] W. MALAEB, T. YOSHIDA, A. FUJIMORI, M. KUBOTA, K. ONO, K. KIHOU, P. M. SHIRAGE, H. KITO, A. IYO, H. EISAKI et al. « Three-dimensional electronic structure of superconducting iron pnictides observed by angle-resolved photoemission spectroscopy ». *Journal of the Physical Society of Japan* 78(12) (2009), p. 123706. DOI : [10.1143/JPSJ.78.123706](https://doi.org/10.1143/JPSJ.78.123706) (cf. p. 33, 34).
- [175] P. MALINOWSKI, Q. JIANG, J. J. SANCHEZ, J. MUTCH, Z. LIU, P. WENT, J. LIU, P. J. RYAN, J.-W. KIM et J.-H. CHU. « Suppression of superconductivity by anisotropic strain near a nematic quantum critical point ». *Nature Physics* 16 (2020), p. 1189-1193. DOI : [10.1038/s41567-020-0983-9](https://doi.org/10.1038/s41567-020-0983-9) (cf. p. 48, 49, 96, 98, 110, 112, 132, 148, 149).

- [176] B. MANSART, D. BOSCHETTO, A. SAVOIA, F. RULLIER-ALBENQUE, F. BOUQUET, E. PAPALAZAROU, A. FORGET, D. COLSON, A. ROUSSE et M. MARSÌ. « Ultrafast transient response and electron-phonon coupling in the iron-pnictide superconductor $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ ». *Physical Review B* 82(2) (2010), p. 024513. DOI : [10.1103/PhysRevB.82.024513](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.82.024513) (cf. p. 35).
- [177] D. L. MASLOV et A. V. CHUBUKOV. « First-Matsubara-frequency rule in a Fermi liquid. II. Optical conductivity and comparison to experiment ». *Physical Review B* 86(15) (2012), p. 155137. DOI : [10.1103/PhysRevB.86.155137](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.86.155137) (cf. p. 12).
- [178] D. L. MASLOV et A. V. CHUBUKOV. « Optical response of correlated electron systems ». *Reports on Progress in Physics* 80(2) (2017), p. 026503. DOI : [10.1088/1361-6633/80/2/026503](https://doi.org/10.1088/1361-6633/80/2/026503) (cf. p. 11-13, 171, 175).
- [179] Pierre MASSAT. « Spectroscopie Raman du supraconducteur FeSe ». Thèse de doctorat. Université Paris Diderot, 2017 (cf. p. 30, 52, 69, 89, 121).
- [180] K. MATANO, M. KRIENER, K. SEGAWA, Y. ANDO et G. ZHENG. « Spin-rotation symmetry breaking in the superconducting state of $\text{Cu}_x\text{Bi}_2\text{Se}_3$ ». *Nature Physics* 12(9) (2016), p. 852-854. DOI : [10.1038/nphys3781](https://doi.org/10.1038/nphys3781) (cf. p. 188).
- [181] I. I. MAZIN et D. J. SINGH. « Ferromagnetic spin fluctuation induced superconductivity in Sr_2RuO_4 ». *Physical Review Letters* 79(4) (1997), p. 733-736. DOI : [10.1103/PhysRevLett.79.733](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.79.733) (cf. p. 16, 179).
- [182] I. I. MAZIN et D. J. SINGH. « Competitions in layered ruthenates : ferromagnetism versus antiferromagnetism and triplet versus singlet pairing ». *Physical Review Letters* 82(21) (1999), p. 4324-4327. DOI : [10.1103/PhysRevLett.82.4324](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.82.4324) (cf. p. 17, 28).
- [183] I. I. MAZIN, D. J. SINGH, M. D. JOHANNES et M. H. DU. « Unconventional Superconductivity with a Sign Reversal in the Order Parameter of $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ ». *Physical Review Letters* 101(5) (2008), p. 057003. DOI : [10.1103/PhysRevLett.101.057003](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.101.057003) (cf. p. 33, 35).
- [184] M. A. MCGUIRE, A. D. CHRISTIANSON, A. S. SEFAT, B. C. SALES, M. D. LUMSDEN, R. JIN, E. A. PAYZANT, D. MANDRUS, Y. LUAN, V. KEPPENS et al. « Phase transitions in LaFeAsO : structural, magnetic, elastic, and transport properties, heat capacity and Mössbauer spectra ». *Physical Review B* 78(9) (2008), p. 094517. DOI : [10.1103/PhysRevB.78.094517](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.78.094517) (cf. p. 32).
- [185] G. J. MCMULLAN, M. P. RAY et R. J. NEEDS. « Comparison of the calculated and observed Fermi surfaces of Sr_2RuO_4 ». *Physica B* 223-224 (1996), p. 529-531. DOI : [10.1016/0921-4526\(96\)00164-0](https://doi.org/10.1016/0921-4526(96)00164-0) (cf. p. 13, 16).
- [186] L. de'MEDICI, J. MRAVLJE et A. GEORGES. « Janus-faced influence of Hund's rule coupling in strongly correlated materials ». *Physical Review Letters* 107(25) (2011), p. 256401. DOI : [10.1103/PhysRevLett.107.256401](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.107.256401) (cf. p. 26).
- [187] C. MIRRI, A. DUSZA, S. BASTELBERGER, J.-H. CHU, H.-H. KUO, I. R. FISHER et L. DEGIORGI. « Scaling of the stress and temperature dependence of the optical anisotropy in $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ ». *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism* 29(12) (2016), p. 3053-3057. DOI : [10.1007/s10948-016-3773-y](https://doi.org/10.1007/s10948-016-3773-y) (cf. p. 48).
- [188] D. MORR, P. TRAUTMAN et M. GRAF. « Resonance peak in Sr_2RuO_4 : signature of spin triplet pairing ». *Physical Review Letters* 86(26) (2001), p. 5978-5981. DOI : [10.1103/PhysRevLett.86.5978](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.86.5978) (cf. p. 179).

- [189] J. MRAVLJE, M. AICHHORN, T. MIYAKE, K. HAULE, G. KOTLIAR et A. GEORGES. « Coherence-incoherence crossover and the mass-renormalization puzzles in Sr_2RuO_4 ». *Physical Review Letters* 106(9) (2011), p. 096401. DOI : [10.1103/PhysRevLett.106.096401](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.106.096401) (cf. p. 26, 27).
- [190] Hk. MÜLLER-BUSCHBAUM et J. WILKENS. « Ein Beitrag über Sr_2RuO_4 und $\text{Sr}_3\text{Ti}_2\text{O}_7$ zur Oktaederstreckung von M^{4+} in K_2NiF_4 - und $\text{Sr}_3\text{Ti}_2\text{O}_7$ -Typ-Verbindungen ». *Zeitschrift für anorganische und allgemeine Chemie* 591 (1990), p. 161-166. DOI : [10.1002/zaac.19905910118](https://doi.org/10.1002/zaac.19905910118) (cf. p. 3, 13).
- [191] B. MUSCHLER, W. PRESTEL, R. HACKL, T. P. DEVEREAUX, J. G. ANALYTIS, Jiun-Haw CHU et I. R. FISHER. « Band- and momentum-dependent electron dynamics in superconducting $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ as seen via electronic Raman scattering ». *Physical Review B* 80(18) (2009), p. 180510. DOI : [10.1103/PhysRevB.80.180510](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.80.180510) (cf. p. 145).
- [192] U. NAGEL, T. ULEKSIN, T. RÖÖM, R. P. S. M. LOBO, P. LEJAY, C. C. HOMES, J. S. HALL, A. W. KINROSS, S. K. PURDY, T. MUNSIE et al. « Optical spectroscopy shows that the normal state of URu_2Si_2 is an anomalous Fermi liquid ». *Proceedings of the National Academy of Sciences* 109(47) (2012), p. 19161-19165. DOI : [10.1073/pnas.1208249109](https://doi.org/10.1073/pnas.1208249109) (cf. p. 13).
- [193] M. NAKAJIMA, T. LIANG, S. ISHIDA, Y. TOMIOKA, K. KIHOU, C. H. LEE, A. IYO, H. EISAKI, T. KAKESHITA, T. ITO et al. « Unprecedented anisotropic metallic state in undoped iron arsenide BaFe_2As_2 revealed by optical spectroscopy ». *Proceedings of the National Academy of Sciences* 108(30) (2011), p. 12238-12242. DOI : [10.1073/pnas.1100102108](https://doi.org/10.1073/pnas.1100102108) (cf. p. 39).
- [194] K. NAKAYAMA, Y. MIYATA, G. N. PHAN, T. SATO, Y. TANABE, T. URATA, K. TANIGAKI et T. TAKAHASHI. « Reconstruction of band structure induced by electronic nematicity in an FeSe superconductor ». *Physical Review Letters* 113(23) (2014), p. 237001. DOI : [10.1103/PhysRevLett.113.237001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.113.237001) (cf. p. 50).
- [195] S. NANDI, M. G. KIM, A. KREYSSIG, R. M. FERNANDES, D. K. PRATT, A. THALER, N. NI, S. L. BUD'KO, P. C. CANFIELD, J. SCHMALIAN et al. « Anomalous suppression of the orthorhombic lattice distortion in superconducting $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ Single Crystals ». *Physical Review Letters* 104(5) (2010), p. 057006. DOI : [10.1103/PhysRevLett.104.057006](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.104.057006) (cf. p. 32, 46).
- [196] J. J. NEUMEIER, M. F. HUNDLEY, M. G. SMITH, J. D. THOMPSON, C. ALLGEIER, H. XIE, W. YELON et J. S. KIM. « Magnetic, thermal, transport, and structural properties of $\text{Sr}_2\text{RuO}_{4+\delta}$: enhanced charge-carrier mass in a nearly metallic oxide ». *Physical Review B* 50(24) (1994), p. 17910-17916. DOI : [10.1103/PhysRevB.50.17910](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.50.17910) (cf. p. 4).
- [197] K. K. NG et M. SIGRIST. « The role of spin-orbit coupling for the superconducting state in Sr_2RuO_4 ». *Europhysics Letters* 49(4) (2000), p. 473-479. DOI : [10.1209/epl/i2000-00173-x](https://doi.org/10.1209/epl/i2000-00173-x) (cf. p. 179).
- [198] F. NING, K. AHILAN, T. IMAI, A. S. SEFAT, R. JIN, M. A. MCGUIRE, B. C. SALES et D. MANDRUS. « Spin susceptibility, phase diagram, and quantum criticality in the electron-doped high T_c superconductor $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ ». *Journal of the Physical Society of Japan* 78(1) (2009), p. 013711. DOI : [10.1143/JPSJ.78.013711](https://doi.org/10.1143/JPSJ.78.013711) (cf. p. 35).
- [199] S. NISHIZAKI, Y. MAENO, S. FARNER, S. IKEDA et T. FUJITA. « Pairing symmetry of superconducting Sr_2RuO_4 from specific heat measurements ». *Physica C* 282-287 (1997), p. 1413-1414 (cf. p. 24).

- [200] T. NOMURA et K. YAMADA. « Detailed investigation of gap structure and specific heat in the p -wave superconductor Sr_2RuO_4 ». *Journal of the Physical Society of Japan* 71(2) (2002), p. 404-407. DOI : [10.1143/JPSJ.71.404](https://doi.org/10.1143/JPSJ.71.404) (cf. p. 179).
- [201] T. OGUCHI. « Electronic band structure of the superconductor Sr_2RuO_4 ». *Physical Review B* 51(2) (1995), p. 1385-1388. DOI : [10.1103/PhysRevB.51.1385](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.51.1385) (cf. p. 13, 14).
- [202] M. OPEL, R. NEMETSCHKEK, C. HOFFMANN, R. PHILIPP, P. F. MÜLLER, R. HACKL, I. TÜTTÖ, A. ERB, B. REVAZ, E. WALKER et al. « Carrier relaxation, pseudogap, and superconducting gap in high- T_c cuprates : A Raman scattering study ». *Physical Review B* 61(14) (2000), p. 9752-9774. DOI : [10.1103/PhysRevB.61.9752](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.61.9752) (cf. p. 64-66).
- [203] J. E. ORTMANN, J. Y. LIU, J. HU, M. ZHU, J. PENG, M. MATSUDA, X. KE et Z. Q. MAO. « Competition between antiferromagnetism and ferromagnetism in Sr_2RuO_4 probed by Mn and Co doping ». *Scientific Reports* 3(1) (2013), p. 2950. DOI : [10.1038/srep02950](https://doi.org/10.1038/srep02950) (cf. p. 18).
- [204] J. PAGLIONE et R. L. GREENE. « High-temperature superconductivity in iron-based materials ». *Nature Physics* 6(9) (2010), p. 645-658. DOI : [10.1038/nphys1759](https://doi.org/10.1038/nphys1759) (cf. p. 30, 31).
- [205] J. C. PALMSTROM, P. WALMSLEY, J. A. W. STRAQUADINE, M. E. SORENSEN, S. T. HANNAHS, D. H. BURNS et I. R. FISHER. « Comparison of temperature and doping dependence of nematic susceptibility near a putative nematic quantum critical point ». *arXiv* (2020) (cf. p. 46).
- [206] I. PAUL et M. GARST. « Lattice effects on nematic quantum criticality in metals ». *Physical Review Letters* 118(22) (2017), p. 227601. DOI : [10.1103/PhysRevLett.118.227601](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.118.227601) (cf. p. 45).
- [207] Kristin PERSSON. *Materials Data on Ba(FeAs)2 (SG :139) by Materials Project*. 2016. DOI : [10.17188/1274845](https://doi.org/10.17188/1274845). Dernière consultation le 5 octobre 2021. (Cf. p. 112).
- [208] H. PFAU, S. D. CHEN, M. HASHIMOTO, N. GAUTHIER, C. R. ROTUNDU, J. C. PALMSTROM, I. R. FISHER, S.-K. MO, Z.-X. SHEN et D. LU. « Anisotropic quasiparticle coherence in nematic BaFe_2As_2 studied with strain-dependent ARPES ». *Physical Review B* 103(16) (2021), p. 165136. DOI : [10.1103/PhysRevB.103.165136](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.103.165136) (cf. p. 48).
- [209] H. PFAU, S. D. CHEN, M. YI, M. HASHIMOTO, C. R. ROTUNDU, J. C. PALMSTROM, T. CHEN, P.-C. DAI, J. STRAQUADINE, A. HRISTOV et al. « Momentum dependence of the nematic order parameter in iron-based superconductors ». *Physical Review Letters* 123(6) (2019), p. 066402. DOI : [10.1103/PhysRevLett.123.066402](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.123.066402) (cf. p. 50).
- [210] J.-C. PHILIPPE, B. BAPTISTE, C. SOW, Y. MAENO, A. FORGET, D. COLSON, M. CAZAYOUS, A. SACUTO et Y. GALLAIS. « Orbital dichotomy of Fermi liquid properties in Sr_2RuO_4 revealed by Raman spectroscopy ». *Physical Review B* 103(23) (2021), p. 235147. DOI : [10.1103/PhysRevB.103.235147](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.103.235147) (cf. p. 155, 188).
- [211] David PINES et Philippe NOZIÈRES. *The Theory of Quantum Liquids : Normal Fermi Liquids*. W. A. Benjamin, Inc., 1966. DOI : [10.4324/9780429492662](https://doi.org/10.4324/9780429492662) (cf. p. 5, 63).
- [212] A. PUSTOGOW, Y. LUO, A. CHRONISTER, Y.-S. SU, D. A. SOKOLOV, F. JERZEMBECK, A. P. MACKENZIE, C. W. HICKS, N. KIKUGAWA, S. RAGHU et al. « Constraints on the superconducting order parameter in Sr_2RuO_4 from oxygen-17 nuclear magnetic resonance ». *Nature* 574(7776) (2019), p. 72-75. DOI : [10.1038/s41586-019-1596-2](https://doi.org/10.1038/s41586-019-1596-2) (cf. p. 20, 98).

- [213] S. RAGHU, S. B. CHUNG et S. LEDERER. « Theory of ‘hidden’ quasi-1D superconductivity in Sr_2RuO_4 ». *Journal of Physics : Conference Series* 449 (2013), p. 012031. DOI : [10.1088/1742-6596/449/1/012031](https://doi.org/10.1088/1742-6596/449/1/012031) (cf. p. 21).
- [214] M. RAHLENBECK, G. L. SUN, D. L. SUN, C. T. LIN, B. KEIMER et C. ULRICH. « Phonon anomalies in pure and underdoped $\text{R}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ (R = Ba, Sr) investigated by Raman light scattering ». *Physical Review B* 80(6) (2009), p. 064509. DOI : [10.1103/PhysRevB.80.064509](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.80.064509) (cf. p. 134, 194).
- [215] J. J. RANDALL et R. WARD. « The preparation of some ternary oxides of the platinum metals ». *Journal of the American Chemical Society* 81(11) (1959), p. 2629-2631. DOI : [10.1021/ja01520a007](https://doi.org/10.1021/ja01520a007) (cf. p. 3).
- [216] X. REN, L. DUAN, Y. HU, J. LI, R. ZHANG, H. LUO, P. DAI et Y. LI. « Nematic crossover in BaFe_2As_2 under uniaxial stress ». *Physical Review Letters* 115(19) (2015), p. 197002. DOI : [10.1103/PhysRevLett.115.197002](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.115.197002) (cf. p. 116).
- [217] T. M. RICE et M. SIGRIST. « Sr_2RuO_4 : an electronic analogue of ^3He ? » *Journal of Physics : Condensed Matter* 7(47) (1995), p. L643-L648. DOI : [10.1088/0953-8984/7/47/002](https://doi.org/10.1088/0953-8984/7/47/002) (cf. p. 19).
- [218] A. T. RØMER, D. D. SCHERER, I. M. EREMIN, P. J. HIRSCHFELD et B. M. ANDERSEN. « Knight shift and leading superconducting instability from spin fluctuations in Sr_2RuO_4 ». *Physical Review Letters* 123(24) (2019), p. 247001. DOI : [10.1103/PhysRevLett.123.247001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.123.247001) (cf. p. 178, 179, 181, 182).
- [219] M. ROTTER, M. TEGEL, D. JOHRENDT, I. SCHELLENBERG, W. HERMES et R. PÖTTGEN. « Spin-density-wave anomaly at 140 K in the ternary iron arsenide BaFe_2As_2 ». *Physical Review B* 78(2) (2008), 020503(R). DOI : [10.1103/PhysRevB.78.020503](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.78.020503) (cf. p. 31, 128).
- [220] S. SAKITA, S. NIMORI, Z. Q. MAO, Y. MAENO, N. OGITA et M. UDAGAWA. « Anisotropic properties of the excitation spectrum of Sr_2RuO_4 crystals ($T_c = 1.4$ K) in the normal state investigated by Raman scattering ». *Physical Review B* 63(13) (2001), p. 134520. DOI : [10.1103/PhysRevB.63.134520](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.63.134520) (cf. p. 159, 160).
- [221] J. J. SANCHEZ, P. MALINOWSKI, J. MUTCH, J. LIU, J.-W. KIM, P. J. RYAN et J.-H. CHU. « The transport-structural correspondence across the nematic phase transition probed by elasto-X-ray diffraction ». *arxiv* (2021). Version 3 (cf. p. 42, 50, 98, 111, 132, 133, 150, 151, 198, 199, 201).
- [222] E. SARVESTANI, G. ZHANG, E. GORELOV et E. PAVARINI. « Effective masses, lifetimes, and optical conductivity in Sr_2RuO_4 and $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$: interplay of spin-orbit, crystal-field, and Coulomb tetragonal tensor interactions ». *Physical Review B* 97(8) (2018), p. 085141. DOI : [10.1103/PhysRevB.97.085141](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.97.085141) (cf. p. 183).
- [223] D. J. SCALAPINO. « A common thread : the pairing interaction for unconventional superconductors ». *Reviews of Modern Physics* 84(4) (2012), p. 1383-1417. DOI : [10.1103/RevModPhys.84.1383](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.84.1383) (cf. p. 46).
- [224] J. SCHMIDT, V. BEKERIS, G. S. LOZANO, M. V. BORTULÉ, M. Marziali BERMÚDEZ, C. W. HICKS, P. C. CANFIELD, E. FRADKIN et G. PASQUINI. « Nematicity in the superconducting mixed state of strain detwinned underdoped $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ ». *Physical Review B* 99(6) (2019), p. 064515. DOI : [10.1103/PhysRevB.99.064515](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.99.064515) (cf. p. 98, 110).
- [225] A. J. SCHOFIELD. « Non-Fermi liquids ». *Contemporary Physics* 40(2) (1999), p. 95-115. DOI : [10.1080/001075199181602](https://doi.org/10.1080/001075199181602) (cf. p. 5).

- [226] F. SERVANT, B. FÅK, S. RAYMOND, J. P. BRISON, P. LEJAY et J. FLOUQUET. « Magnetic excitations in the normal and superconducting states of Sr_2RuO_4 ». *Physical Review B* 65(18) (2002), p. 184511. DOI : [10.1103/PhysRevB.65.184511](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.65.184511) (cf. p. 17).
- [227] M. C. SHAPIRO, P. HLOBIL, A. T. HRISTOV, A. V. MAHARAJ et I. R. FISHER. « Symmetry constraints on the elastoresistivity tensor ». *Physical Review B* 92(23) (2015), p. 235147. DOI : [10.1103/PhysRevB.92.235147](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.92.235147) (cf. p. 44).
- [228] R. SHARMA, S. D. EDKINS, Z. WANG, A. KOSTIN, C. SOW, Y. MAENO, A. P. MACKENZIE, J. C. S. DAVIS et V. MADHAVAN. « Momentum-resolved superconducting energy gaps of Sr_2RuO_4 from quasiparticle interference imaging ». *Proceedings of the National Academy of Sciences* 117(10) (2020), p. 5222-5227. DOI : [10.1073/pnas.1916463117](https://doi.org/10.1073/pnas.1916463117) (cf. p. 20).
- [229] K. M. SHEN, N. KIKUGAWA, C. BERGEMANN, L. BALICAS, F. BAUMBERGER, W. MEEVASANA, N. J. C. INGLE, Y. MAENO, Z.-X. SHEN et A. P. MACKENZIE. « Evolution of the Fermi surface and quasiparticle renormalization through a van Hove singularity in $\text{Sr}_{2-y}\text{La}_y\text{RuO}_4$ ». *Physical Review Letters* 99(18) (2007), p. 187001. DOI : [10.1103/PhysRevLett.99.187001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.99.187001) (cf. p. 16, 17).
- [230] T. SHIBAUCHI, A. CARRINGTON et Y. MATSUDA. « Quantum critical point lying beneath the superconducting dome in iron-pnictides ». *Annual Review of Condensed Matter Physics* 5(1) (2014), p. 113-135. DOI : [10.1146/annurev-conmatphys-031113-133921](https://doi.org/10.1146/annurev-conmatphys-031113-133921) (cf. p. 46).
- [231] N. SHIRAKAWA, K. MURATA, S. NISHIZAKI, Y. MAENO et T. FUJITA. « Pressure dependence of superconducting critical temperature of Sr_2RuO_4 ». *Physical Review B* 56(13) (1997), p. 7890-7893. DOI : [10.1103/PhysRevB.56.7890](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.56.7890) (cf. p. 18).
- [232] Y. SIDIS, M. BRADEN, P. BOURGES, B. HENNION, S. NISHIZAKI, Y. MAENO et Y. MORI. « Evidence for incommensurate spin fluctuations in Sr_2RuO_4 ». *Physical Review Letters* 83(16) (1999), p. 3320-3323. DOI : [10.1103/PhysRevLett.83.3320](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.83.3320) (cf. p. 17).
- [233] D. J. SINGH. « Relationship of Sr_2RuO_4 to the superconducting layered cuprates ». *Physical Review B* 52(2) (1995), p. 1358-1361. DOI : [10.1103/PhysRevB.52.1358](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.52.1358) (cf. p. 13, 16).
- [234] D. J. SINGH. « Electronic structure and doping in BaFe_2As_2 and LiFeAs : density functional calculations ». *Physical Review B* 78(9) (2008), p. 094511. DOI : [10.1103/PhysRevB.78.094511](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.78.094511) (cf. p. 33).
- [235] D. J. SINGH et M.-H. DU. « Density functional study of $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$: a low carrier density superconductor near itinerant magnetism ». *Physical Review Letters* 100(23) (2008), p. 237003. DOI : [10.1103/PhysRevLett.100.237003](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.100.237003) (cf. p. 33, 34).
- [236] E. SNIDER, N. DASENBROCK-GAMMON, R. MCBRIDE, M. DEBESSAI, H. VINDANA, K. VENCATASAMY, K. V. LAWLER, A. SALAMAT et R. P. DIAS. « Room-temperature superconductivity in a carbonaceous sulfur hydride ». *Nature* 586(7829) (2020), p. 373-377. DOI : [10.1038/s41586-020-2801-z](https://doi.org/10.1038/s41586-020-2801-z) (cf. p. 89).
- [237] A. SOMMERFELD. « Zur Elektronentheorie der Metalle auf Grund der Fermischen Statistik ». *Zeitschrift für Physik* 47 (1928), p. 1-32 (cf. p. 9).
- [238] P. STEFFENS, Y. SIDIS, J. KULDA, Z. Q. MAO, Y. MAENO, I. I. MAZIN et M. BRADEN. « Spin fluctuations in Sr_2RuO_4 from polarized neutron scattering : implications for superconductivity ». *Physical Review Letters* 122(4) (2019), p. 047004. DOI : [10.1103/PhysRevLett.122.047004](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.122.047004) (cf. p. 17, 18, 21, 184).

- [239] A. STEPPKE, L. ZHAO, M. E. BARBER, T. SCAFFIDI, F. JERZEMBECK, H. ROSNER, A. S. GIBBS, Y. MAENO, S. H. SIMON, A. P. MACKENZIE et al. « Strong peak in T_c of Sr_2RuO_4 under uniaxial pressure ». *Science* 355(6321) (2017), eaaf9398. DOI : [10.1126/science.aaf9398](https://doi.org/10.1126/science.aaf9398) (cf. p. 18, 98, 110).
- [240] G. R. STEWART. « Heavy-fermion systems ». *Reviews of Modern Physics* 56(4) (1984), p. 755-787. DOI : [10.1103/RevModPhys.56.755](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.56.755) (cf. p. 13).
- [241] H. U. R. STRAND, M. ZINGL, N. WENTZELL, O. PARCOLLET et A. GEORGES. « Magnetic response of Sr_2RuO_4 : quasi-local spin fluctuations due to Hund's coupling ». *Physical Review B* 100(12) (2019), p. 125120. DOI : [10.1103/PhysRevB.100.125120](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.100.125120) (cf. p. 17, 18, 28, 184).
- [242] J. A. W. STRAQUADINE, M. S. IKEDA et I. R. FISHER. « Frequency-dependent sensitivity of AC elastocaloric effect measurements explored through analytical and numerical models ». *Review of Scientific Instruments* 91(8) (2020), p. 083905. DOI : [10.1063/5.0019553](https://doi.org/10.1063/5.0019553) (cf. p. 98).
- [243] D. STRICKER, J. MRAVLJE, C. BERTHOD, R. FITTIPALDI, A. VECCHIONE, A. GEORGES et D. van der MAREL. « Optical response of Sr_2RuO_4 reveals universal Fermi-liquid scaling and quasiparticles beyond Landau theory ». *Physical Review Letters* 113(8) (2014), p. 087404. DOI : [10.1103/PhysRevLett.113.087404](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.113.087404) (cf. p. 12, 23-25, 84, 171-173, 183).
- [244] Damien STRICKER. « The nature of Fermi-liquids, an optical perspective ». Thèse de doctorat. Université de Genève, 2015. DOI : [10.13097/ARCHIVE-OUVERTE/UNIGE:83991](https://doi.org/10.13097/ARCHIVE-OUVERTE/UNIGE:83991) (cf. p. 4, 14, 23, 160).
- [245] V. SUNKO, E. ABARCA MORALES, I. MARKOVIĆ, M. E. BARBER, D. MILOSAVLJEVIĆ, F. MAZZOLA, D. A. SOKOLOV, N. KIKUGAWA, C. CACHO, P. DUDIN et al. « Direct observation of a uniaxial stress-driven Lifshitz transition in Sr_2RuO_4 ». *npj Quantum Materials* 4(1) (2019), p. 46. DOI : [10.1038/s41535-019-0185-9](https://doi.org/10.1038/s41535-019-0185-9) (cf. p. 17).
- [246] H. TAKAGI, S. UCHIDA, K. KITAZAWA et S. TANAKA. « High- T_c superconductivity of La-Ba-Cu oxides. II. – Specification of the superconducting phase ». *Japanese Journal of Applied Physics* 26(2A) (1987), p. L123-L124. DOI : [10.1143/JJAP.26.L123](https://doi.org/10.1143/JJAP.26.L123) (cf. p. 3).
- [247] D. W. TAM, Y. SONG, H. MAN, S. C. CHEUNG, Z. YIN, X. LU, W. WANG, B. A. FRANDSEN, L. LIU, Z. GONG et al. « Uniaxial pressure effect on the magnetic ordered moment and transition temperatures in $\text{BaFe}_{2-x}\text{T}_x\text{As}_2$ ($\text{T} = \text{Co}, \text{Ni}$) ». *Physical Review B* 95(6) (2017), p. 060505. DOI : [10.1103/PhysRevB.95.060505](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.95.060505) (cf. p. 48).
- [248] A. TAMAI, M. ZINGL, E. ROZBICKI, E. CAPPELLI, S. RICCÒ, A. de la TORRE, S. MCKEOWN WALKER, F. Y. BRUNO, P. D. C. KING, W. MEEVASANA et al. « High-resolution photoemission on Sr_2RuO_4 reveals correlation-enhanced effective spin-orbit coupling and dominantly local self-energies ». *Physical Review X* 9(2) (2019), p. 021048. DOI : [10.1103/PhysRevX.9.021048](https://doi.org/10.1103/PhysRevX.9.021048) (cf. p. 11, 15, 24, 25, 61, 177).
- [249] M. A. TANATAR, E. C. BLOMBERG, A. KREYSSIG, M. G. KIM, N. NI, A. THALER, S. L. BUD'KO, P. C. CANFIELD, A. I. GOLDMAN, I. I. MAZIN et al. « Uniaxial-strain mechanical detwinning of CaFe_2As_2 and BaFe_2As_2 crystals : Optical and transport study ». *Physical Review B* 81(18) (2010), p. 184508. DOI : [10.1103/PhysRevB.81.184508](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.81.184508) (cf. p. 38).

- [250] M. A. TANATAR, A. E. BÖHMER, E. I. TIMMONS, M. SCHÜTT, G. DRACHUCK, V. TAUFOR, K. KOTHAPALLI, A. KREYSSIG, S. L. BUD'KO, P. C. CANFIELD et al. « Origin of the resistivity anisotropy in the nematic phase of FeSe ». *Physical Review Letters* 117(12) (2016), p. 127001. DOI : [10.1103/PhysRevLett.117.127001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.117.127001) (cf. p. 50).
- [251] H. TANIGUCHI, K. NISHIMURA, S. K. GOH, S. YONEZAWA et Y. MAENO. « Higher- T_c superconducting phase in Sr_2RuO_4 induced by in-plane uniaxial pressure ». *Journal of the Physical Society of Japan* 84(1) (2015), p. 014707. DOI : [10.7566/JPSJ.84.014707](https://doi.org/10.7566/JPSJ.84.014707) (cf. p. 18, 93).
- [252] R. TAO, Y.-J. YAN, X. LIU, Z.-W. WANG, Y. ANDO, Q.-H. WANG, T. ZHANG et D.-L. FENG. « Direct visualization of the nematic superconductivity in $\text{Cu}_x\text{Bi}_2\text{Se}_3$ ». *Physical Review X* 8(4) (2018), p. 041024. DOI : [10.1103/PhysRevX.8.041024](https://doi.org/10.1103/PhysRevX.8.041024) (cf. p. 188).
- [253] V. K. THORSMØLLE, M. KHODAS, Z. P. YIN, Chenglin ZHANG, S. V. CARR, Pengcheng DAI et G. BLUMBERG. « Critical quadrupole fluctuations and collective modes in iron pnictide superconductors ». *Physical Review B* 93(5) (2016), p. 054515. DOI : [10.1103/PhysRevB.93.054515](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.93.054515) (cf. p. 43, 76).
- [254] Constance TOULOUSE. « Matériaux multiferroïques : structure, ordres et couplages. Une étude par spectroscopie Raman ». Thèse de doctorat. Université Paris-Saclay, 2016 (cf. p. 89).
- [255] M. UDAGAWA, H. HATA, S. NIMORI, T. MINAMI, N. OGITA, S. SAKITA, F. NAKAMURA, T. FUJITA et Y. MAENO. « Phonon Raman scattering study of K_2NiF_4 type oxyde superconductors ». *Journal of the Physical Society of Japan* 67(7) (1998), p. 2529-2533. DOI : [10.1143/JPSJ.67.2529](https://doi.org/10.1143/JPSJ.67.2529) (cf. p. 160).
- [256] M. UDAGAWA, T. MINAMI, N. OGITA, Y. MAENO, F. NAKAMURA, T. FUJITA, J. G. BEDNORZ et F. LICHTENBERG. « Phonon Raman scattering of Sr_2RuO_4 ». *Physica B* 219-220 (1996), p. 222-224. DOI : [10.1016/0921-4526\(95\)00702-4](https://doi.org/10.1016/0921-4526(95)00702-4) (cf. p. 160).
- [257] M. UDINA, M. GRILLI, L. BENFATTO et A. V. CHUBUKOV. « Raman response in the nematic phase of FeSe ». *Physical Review Letters* 124(19) (2020), p. 197602. DOI : [10.1103/PhysRevLett.124.197602](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.124.197602) (cf. p. 138).
- [258] B. VALENZUELA, M. J. CALDERÓN, G. LEÓN et E. BASCONES. « Optical conductivity and Raman scattering of iron superconductors ». *Physical Review B* 87(7) (2013), p. 075136. DOI : [10.1103/PhysRevB.87.075136](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.87.075136) (cf. p. 60).
- [259] C. M. VARMA. « Only Fermi liquids are metals ». *Physical Review Letters* 79(8) (1997), p. 1535-1538. DOI : [10.1103/PhysRevLett.79.1535](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.79.1535) (cf. p. 13).
- [260] C. N. VEENSTRA, Z.-H. ZHU, M. RAICHLE, B. M. LUDBROOK, A. NICOLAOU, B. SLOMSKI, G. LANDOLT, S. KITAKA, Y. MAENO, J. H. DIL et al. « Spin-orbital entanglement and the breakdown of singlets and triplets in Sr_2RuO_4 revealed by spin- and angle-resolved photoemission spectroscopy ». *Physical Review Letters* 112(12) (2014), p. 127002. DOI : [10.1103/PhysRevLett.112.127002](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.112.127002) (cf. p. 15, 19).
- [261] T. VOGT et D. J. BUTTREY. « Low-temperature structural behavior of Sr_2RuO_4 ». *Physical Review B* 52(14) (1995), R9843-R9846. DOI : [10.1103/PhysRevB.52.R9843](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.52.R9843) (cf. p. 13).
- [262] L. WALZ et F. LICHTENBERG. « Refinement of the structure of Sr_2RuO_4 with 100 and 295 K X-ray data ». *Acta Crystallographica Section C* 49 (1993), p. 1268-1270. DOI : [10.1107/S0108270192013143](https://doi.org/10.1107/S0108270192013143) (cf. p. 13).

- [263] Q. H. WANG, C. PLATT, Y. YANG, C. HONERKAMP, F. C. ZHANG, W. HANKE, T. M. RICE et R. THOMALE. « Theory of superconductivity in a three-orbital model of Sr_2RuO_4 ». *Europhysics Letters* 104(1) (2013), p. 17013. DOI : [10.1209/0295-5075/104/17013](https://doi.org/10.1209/0295-5075/104/17013) (cf. p. 18).
- [264] C. A. WATSON, A. S. GIBBS, A. P. MACKENZIE, C. W. HICKS et K. A. MOLER. « Micron-scale measurements of low anisotropic strain response of local T_c in Sr_2RuO_4 ». *Physical Review B* 98(9) (2018), p. 094521. DOI : [10.1103/PhysRevB.98.094521](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.98.094521) (cf. p. 98).
- [265] WIKIPÉDIA. *Supraconductivité*. URL : <https://fr.wikipedia.org/wiki/Supraconductivité>. Page Web visitée le 4 octobre 2021. (Cf. p. 29).
- [266] WIKIPEDIA. *Kramers–Kronig relations*. URL : https://en.wikipedia.org/wiki/Kramers%E2%80%93Kronig_relations. Page Web visitée le 7 octobre 2021. (Cf. p. 6).
- [267] WIKIPEDIA. *Timeline of Superconductivity from 1900 to 2015*. URL : https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Timeline_of_Superconductivity_from_1900_to_2015.svg. Images de PJRay et Gingras.ol. Dernière version mise en ligne le 21 août 2021. (Cf. p. 29).
- [268] S. D. WILSON, Z. YAMANI, C. R. ROTUNDU, B. FREELON, E. BOURRET-COURCHESNE et R. J. BIRGENEAU. « Neutron diffraction study of the magnetic and structural phase transitions in BaFe_2As_2 ». *Physical Review B* 79(18) (2009), p. 184519. DOI : [10.1103/PhysRevB.79.184519](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.79.184519) (cf. p. 32).
- [269] T. WORASARAN, M. S. IKEDA, J. C. PALMSTROM, J. A. W. STRAQUADINE, S. A. KIVELSON et I. R. FISHER. « Nematic quantum criticality in an Fe-based superconductor revealed by strain-tuning ». *Science* 372(6545) (2021), p. 973-977. DOI : [10.1126/science.abb9280](https://doi.org/10.1126/science.abb9280) (cf. p. 46, 98, 110, 153).
- [270] J. XIA, Y. MAENO, P. T. BEYERSDORF, M. M. FEJER et A. KAPITULNIK. « High resolution polar Kerr effect measurements of Sr_2RuO_4 : evidence for broken time-reversal symmetry in the superconducting state ». *Physical Review Letters* 97(16) (2006), p. 167002. DOI : [10.1103/PhysRevLett.97.167002](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.97.167002) (cf. p. 20).
- [271] H. YAMASE et R. ZEYHER. « Superconductivity from orbital nematic fluctuations ». *Physical Review B* 88(18) (2013), p. 180502. DOI : [10.1103/PhysRevB.88.180502](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.88.180502) (cf. p. 46).
- [272] Y. YANASE et M. OGATA. « Microscopic identification of the d -vector in triplet superconductor Sr_2RuO_4 ». *Journal of the Physical Society of Japan* 72(3) (2003), p. 673-687. DOI : [10.1143/JPSJ.72.673](https://doi.org/10.1143/JPSJ.72.673) (cf. p. 179).
- [273] M. YI, D. LU, J.-H. CHU, J. G. ANALYTIS, A. P. SORINI, A. F. KEMPER, B. MORITZ, S.-K. MO, R. G. MOORE, M. HASHIMOTO et al. « Symmetry-breaking orbital anisotropy observed for detwinned $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ above the spin density wave transition ». *Proceedings of the National Academy of Sciences* 108(17) (2011), p. 6878-6883. DOI : [10.1073/pnas.1015572108](https://doi.org/10.1073/pnas.1015572108) (cf. p. 39, 50).
- [274] T. YOKOYA, A. CHAINANI, T. TAKAHASHI, H. DING, J. C. CAMPUZANO, H. KATAYAMA-YOSHIDA, M. KASAI et Y. TOKURA. « Angle-resolved photoemission study of Sr_2RuO_4 ». *Physical Review B* 54(18) (1996), p. 13311-13318. DOI : [10.1103/PhysRevB.54.13311](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.54.13311) (cf. p. 15).
- [275] S. YONEZAWA, K. TAJIRI, S. NAKATA, Y. NAGAI, Z. WANG, K. SEGAWA, Y. ANDO et Y. MAENO. « Thermodynamic evidence for nematic superconductivity in $\text{Cu}_x\text{Bi}_2\text{Se}_3$ ». *Nature Physics* 13(2) (2017), p. 123-126. DOI : [10.1038/nphys3907](https://doi.org/10.1038/nphys3907) (cf. p. 188).

- [276] K. YOSHIDA, Y. MAENO, S. NISHIZAKI, S. IKEDA et T. FUJITA. « Crossover from 3D to 2D metallic conduction in Sr_2RuO_4 ». *Journal of Low Temperature Physics* 105(5-6) (1996), p. 1593-1598. DOI : [10.1007/BF00753927](https://doi.org/10.1007/BF00753927) (cf. p. 22, 166).
- [277] M. YOSHIZAWA, D. KIMURA, T. CHIBA, S. SIMAYI, Y. NAKANISHI, K. KIHOU, C.-H. LEE, A. IYO, H. EISAKI, M. NAKAJIMA et al. « Structural quantum criticality and superconductivity in iron-based superconductor $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ ». *Journal of the Physical Society of Japan* 81(2) (2012), p. 024604. DOI : [10.1143/JPSJ.81.024604](https://doi.org/10.1143/JPSJ.81.024604) (cf. p. 41).
- [278] M. YOSHIZAWA et S. SIMAYI. « Anomalous elastic behavior and its correlation with superconductivity in iron-based superconductor $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ ». *Modern Physics Letters B* 26(19) (2012), p. 1230011. DOI : [10.1142/S0217984912300116](https://doi.org/10.1142/S0217984912300116) (cf. p. 41, 94).
- [279] Y. ZHANG, F. CHEN, C. HE, B. ZHOU, B. P. XIE, C. FANG, W. F. TSAI, X. H. CHEN, H. HAYASHI, J. JIANG et al. « Orbital characters of bands in the iron-based superconductor $\text{BaFe}_{1.85}\text{Co}_{0.15}\text{As}_2$ ». *Physical Review B* 83(5) (2011), p. 054510. DOI : [10.1103/PhysRevB.83.054510](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.83.054510) (cf. p. 34).
- [280] M. E. ZHITOMIRSKY et T. M. RICE. « Interband proximity effect and nodes of superconducting gap in Sr_2RuO_4 ». *Physical Review Letters* 87(5) (2001), p. 057001. DOI : [10.1103/PhysRevLett.87.057001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.87.057001) (cf. p. 21).
- [281] M. ZHU, K. V. SHANAVAS, Y. WANG, T. ZOU, W. F. SUN, W. TIAN, V. O. GARLEA, A. PODLESNYAK, M. MATSUDA, M. B. STONE et al. « Non-Fermi surface nesting driven commensurate magnetic ordering in Fe-doped Sr_2RuO_4 ». *Physical Review B* 95(5) (2017), p. 054413. DOI : [10.1103/PhysRevB.95.054413](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.95.054413) (cf. p. 18).
- [282] M. ZINGL, J. MRAVLJE, M. AICHHORN, O. PARCOLLET et A. GEORGES. « Hall coefficient signals orbital differentiation in the Hund's metal Sr_2RuO_4 ». *npj Quantum Materials* 4(1) (2019), p. 35. DOI : [10.1038/s41535-019-0175-y](https://doi.org/10.1038/s41535-019-0175-y) (cf. p. 15, 27, 183).