



HAL
open science

Non liquide de Fermi dans les conducteurs organiques unidimensionnels

Joel Moser

► **To cite this version:**

Joel Moser. Non liquide de Fermi dans les conducteurs organiques unidimensionnels. Supraconductivité [cond-mat.supr-con]. Université Paris Sud - Paris XI, 1999. Français. NNT: . tel-00002152

HAL Id: tel-00002152

<https://theses.hal.science/tel-00002152>

Submitted on 16 Dec 2002

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.

ORSAY

n° d'ordre :

UNIVERSITE DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

THESE

Présentée

Pour obtenir

Le grade de DOCTEUR EN SCIENCES

Spécialité Physique des Solides

Par

Joel Moser

**SUJET : Non liquide de Fermi
dans les conducteurs organiques quasi-unidimensionnels.**

Soutenu le	13 octobre 1999	devant la Commission d'examen
MM.	M Héritier	Président
	F. Mila	Rapporteur
	A. Audouard	Rapporteur
	D. Jérôme	Directeur
	J. R. Cooper	
	C. Bourbonnais	

Remerciements

Les résultats rapportés dans les pages qui suivent sont le fruit d'un travail commun. Voici l'occasion de reconnaître le rôle déterminant des uns et des autres dans l'aboutissement de cette thèse.

Une majeure partie de ce travail a été effectuée au Laboratoire de Physique des Solides de l'Université d'Orsay, et je remercie chaleureusement le Pr. M. Héritier de m'y avoir accueilli. L'intérêt qu'il a manifesté à l'égard de mes résultats expérimentaux a été pour moi une grande source de motivation.

Je remercie les Pr. F. Mila, du laboratoire de physique quantique de l'université Paul Sabatier de Toulouse, et A. Audouard, du Service National des Champs Magnétiques Pulsés de Toulouse, de l'honneur qu'ils me font en acceptant d'être les rapporteurs de mon travail de thèse. Je remercie également les Pr. C. Bourbonnais et J.-P. Pouget pour leur participation à mon jury.

Je témoigne ma reconnaissance à tous les membres du groupe Hautes Pressions. Denis Jérôme a dirigé avec ma thèse avec beaucoup d'enthousiasme. Marc Nardone m'a introduit à la technologie des hautes pressions et aux systèmes cryogéniques. Jean-Paul Cromières a toujours fait preuve à mon égard d'une gentillesse et d'une grande disponibilité malgré son planning chargé. Je remercie Pawel Wzietek pour son aide cruciale en informatique et nos fréquentes discussions très enrichissantes. Je remercie Pascale Auban-Senzier et Claude Pasquier pour leur aide et leurs conseils au cours des mesures. Enfin je salue bien amicalement mes camarades du "peuple de l'abîme", Sylvie Lefèbvre, Barbara Simovic, Ileana Nedelcu, Tomislav Vuletic, Cuong Pham-Phu, Stephan Friemel, Youri Piskunov.

Ma collaboration avec le Pr. J. R. Cooper a été une expérience scientifique et humaine très enrichissante. Son savoir-faire expérimental est unique, et l'excellence de ses étudiants témoigne de ses grands talents de pédagogue. Je le remercie de m'avoir invité dans son laboratoire, et lui suis reconnaissant des très nombreuses discussions que nous avons eues tout au long de ma thèse.

J'ai eu le plaisir de travailler avec le Pr. W. Kang de Séoul dans le cadre d'un projet mené au Laboratoire des Champs Magnétiques Intenses de Grenoble. Woun est bien connu à Orsay pour ses facultés à développer des montages soignés et astucieux. J'ai beaucoup appris a son contact et l'en remercie très chaleureusement.

La tradition théorique du 510 est propice à une collaboration expérience- théorie très fructueuse. Je suis reconnaissant à Antoine Georges pour son soutien et sa contribution essentielle dans le projet Effet Hall ainsi que pour son interprétation originale du transport transverse. Je remercie vivement Marc Gabay pour sa collaboration décisive au projet "transport transverse et effet tunnel dans les Liquides de Luttinger". Je remercie Thierry Giamarchi pour ses explications patientes de la transition Mott-Hubbard et la réponse optique d'un système de Luttinger, et Claude Bourbonnais pour nos discussions sur les non-liquides de Fermi et l'approche de la renormalisation. J'exprime toute ma reconnaissance à Nicolas Dupuis, Michel Héritier, Pascal Lederer, Claude Berthier, Hadrien Mayaffre et G. Montambaux pour l'intérêt qu'ils ont porté à mes travaux sur le sel perchlorate et leur contribution à l'interprétation des mesures.

Je remercie chaleureusement l'équipe technique de M. Demianozuk, en particulier André Le Moullec ainsi que Pascal et Marc, pour leur aide cruciale et leur flexibilité: les mesures présentées dans la suite leur doivent beaucoup.

Je remercie K. Bechgaard, J.-M. Fabre et A. Moradpour pour leurs échantillons.

Je remercie chaleureusement Kamran Behnia.

Je remercie M. Ribault pour ses conseils.

Je remercie l'équipe administrative du 510 pour leur efficacité, en particulier Marie-France Mariotto, Sophie Tourlet, Christiane Séguy, Jacqueline Houeix, Brigitte Le Guevel, Yvette Dufour, Anne-Marie Warnet, Annie Calteau, Marie-France Cozic et Pierre Jodry.

Je salue Silvia Tomić, Neven Biskup, Luis Balicas, Tom Timusk, Dimitri Basov, Stuart Brown, Barakat Alavi.

Je remercie Stephan Baumhoff, Olga Bogdanova, Stéphane Belin, Jean Herrmann, Olivier Ley, Stéphane Munier, Cuong Pham-Phu, Jeff McGuire, Sofia et Céline, Yves Noat, Torsten Becker, Luc Pastur, Tristan Albaret, Laurent Limot, Bernard Amadon, Anna-Lisa Paolone, Paola Giura, May Chiao, Anna-Maria, Patrick Donohue, Michel Henriot, Olivier Giboulot, André Deluzet, Fatih Gulener, Didier Monier, Richard, Laurent Martel, Bertrand Reulet, Hélène Bouchiat, Luc Fruchter, Ana Ezzine, Catherine Even, Philippe Gogol, Mathieu Kociak, Joe Sanchez, Philippe Aymard, Vincent Klein, Julien Bobroff, Jean-Pierre Sauvage, Olivier Pelletier, Stéphane Deude. Je remercie le gang de IRC in Superconductivity et notamment James, Steve, Patrick, Vaughan, Seb. Je remercie l'équipe de Grenoble: Louis Jansen, Peter van der Linden, David Jullien, Eric Mossang, Uwe Beyer, Jan Zeman, G. Martinez, E. Balthes, J.-C. Portal, Claude Mollard, Bernard Ferrari, ainsi que les opérateurs de nuit: Laurent (tu fumes?) et Régis (tu dors?).

Je pense à Amélie, Dorothée, Vincent, Andréa, Zorica, Cigdem.

Tuesday 22nd June. Therm.r 48 to 50. Lat. in South 44° 41'. Long. in West Reck.g 162° 39' Watch 162° 47'. A very great Swell from the South such as makes it probable that no land can be near in that direction at least not on this side of 50° Latitude.

(Captain James Cook, 'The Second Voyage [in the Pacific Ocean], 1773').

學而時習之 不亦說乎
有朋自遠方來 不亦樂乎
人不知而不慍 不亦君子乎

(Confucius).

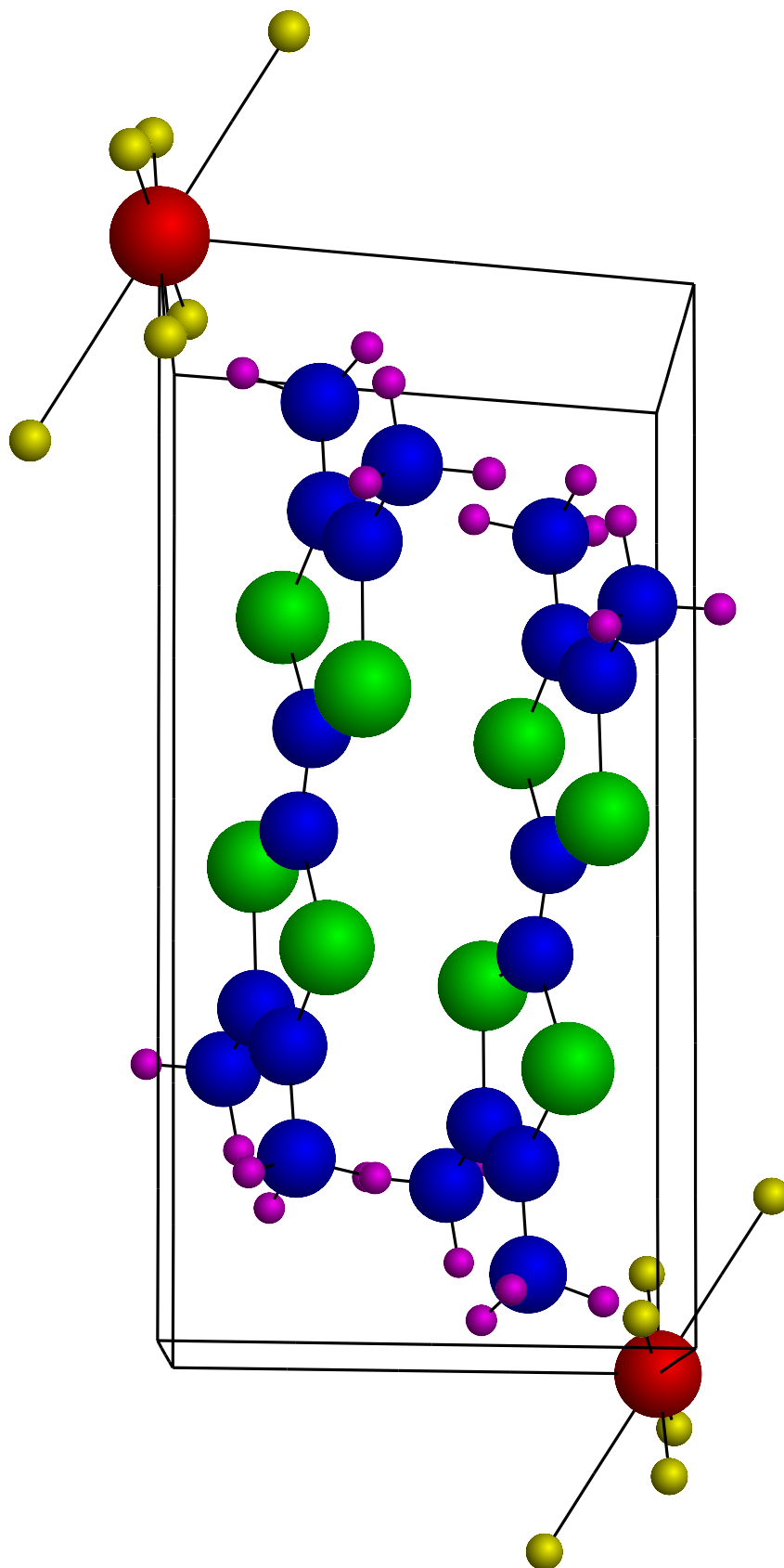


Figure 1: *La maille cristallographique du conducteur organique $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$.*

Table des matières

Liste des figures	xii
1 Présentation du sujet	1
1.1 Introduction	1
1.2 Deux écoles antagonistes	5
1.2.1 Un liquide de Fermi à haute température	6
1.2.2 L'approche de la renormalisation à dimension 1	7
1.3 Les acquis expérimentaux	11
1.4 Organisation de la thèse	14
2 Eléments de technique des Hautes Pressions	17
2.1 Introduction	17
2.2 Une cellule "clamp" standard	18
2.3 Principe de la technique "clamp"	20
2.3.1 Modèle du cylindre simple à paroi épaisse	20
2.3.2 Modèle du double cylindre	21
2.3.3 Application pratique	23
3 Du liquide de Fermi au non-liquide de Fermi	25
3.1 Introduction	25
3.2 La quasiparticule de Landau [42]	26
3.2.1 La théorie de Landau des liquides de Fermi	26
3.2.2 Le spectre des excitations élémentaires	28
3.3 Le modèle de g -ologie	33

3.3.1	Présentation [21]	33
3.3.2	La méthode de bosonisation	35
3.4	Du continuum au réseau discret	38
4	Mesures de transport transverse	43
4.1	Comment mesurer une résistance?	43
4.1.1	Le transport local	43
4.1.2	Formalisme	44
4.2	Transport transverse suivant la direction b	50
4.2.1	Résultats expérimentaux	50
4.2.2	Discussion	55
4.3	Transport transverse suivant la direction c	58
4.3.1	Considérations préliminaires	58
4.3.1.1	Le point de vue des supraconducteurs HT_c	58
4.3.1.2	Premiers éléments expérimentaux dans les organiques quasi-1D	61
4.3.2	Mesures de transport sous pression	63
4.3.3	Formalisme de l'effet tunnel inter-plans	66
4.3.4	Discussion	69
4.3.4.1	Première approche	69
4.3.4.2	Deuxième approche	71
4.4	Conclusion	77
5	Effet Hall dans la phase normale de $(TMTSF)_2PF_6$	81
5.1	Introduction	81
5.1.1	Position du problème	81
5.1.2	Le point de vue des supraconducteurs HT_c	82
5.1.3	Premiers résultats dans les organiques	84
5.2	Protocole expérimental et Résultats	85
5.2.1	Configuration des contacts	86
5.2.2	Principe de la mesure	90
5.2.3	Résultats	91

5.2.3.1	Une valeur de référence	92
5.2.3.2	Les résultats expérimentaux	95
5.3	Discussion	100
5.3.1	Le liquide de Fermi	100
5.3.1.1	Présentation du modèle	100
5.3.1.2	Comparaison avec l'expérience	105
5.3.2	Une alternative au liquide de Fermi	105
5.3.2.1	Idées générales	105
5.3.2.2	Confrontation avec l'expérience	107
5.4	Conclusion	110
6	La phase métallique de $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$ sous haute pression	113
6.1	Introduction	113
6.2	Résultats expérimentaux	116
6.3	Effet de la pression sur la phase métallique	119
7	Synthèse et possibles perspectives	123
7.1	Ce que l'on cherchait	123
7.2	Ce que l'on a trouvé	124
8	Propriétés quantiques de $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$	127
8.1	Présentation	127
8.2	Considérations préliminaires	129
8.2.1	Le Nesting quantifié	129
8.2.2	Spécificités de $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$	130
8.3	La question des Oscillations Rapides	132
8.3.1	Acquis expérimentaux	132
8.3.2	Interprétations théoriques des Oscillations Rapides	134
8.3.2.1	Oscillations dans la phase métallique	134
8.3.2.2	Le rôle des états de bord	136
8.4	Nouveaux résultats expérimentaux	137
8.4.1	Mesures $R_{zz}(T)_H$ entre 16 et 23T	139

8.4.2	Mesures $R_{zz}(H)_T$ entre 4.2K et 400mK	139
8.5	Discussion	146
9	Summary	153
	Bibliographie	157

Liste des figures

1	<i>Maille cristallographique de $(TMTSF)_2PF_6$.</i>	vii
1.1	<i>Vue tridimensionnelle du conducteur organique $(TMTSF)_2PF_6$.</i>	3
2.1	<i>Exemple d'une cellule clamp.</i>	19
2.2	<i>Coupe transversale d'un cylindre composite.</i>	24
4.1	<i>Le transformateur de flux modifié.</i>	45
4.2	<i>Variation sous champ du rapport d'anisotropie à la température de l'Hélium liquide dans la phase métallique de $(TMTSF)_2PF_6$ sous 8kbar.</i>	51
4.3	<i>Dépendance en température de ρ_b dans $(TMTSF)_2PF_6$ sous 1bar et 9kbar.</i>	52
4.4	<i>Sous 9kbar, comparaison entre $\rho_b(T)$ et $\rho_a(T)$.</i>	53
4.5	<i>Rapport d'anisotropie $\rho_b/\rho_a(T)$ à pression ambiante.</i>	54
4.6	<i>Anisotropie $\rho_b/\rho_a(T)$ sous 9kbar.</i>	56
4.7	<i>Anisotropie $\rho_b/\rho_a(T)$ sous 1bar.</i>	57
4.8	<i>Sous 9kbar, dépendance en température de $\rho_b(T)$ sous champ.</i>	59
4.9	<i>Sous 9kbar, dépendance en température de $\rho_a(T)$ sous champ.</i>	60
4.10	<i>Courbes $\rho_c(T)$ sous pression dans $(TMTSF)_2PF_6$ et $(TMTTF)_2PF_6$.</i>	64
4.11	<i>$\rho_c(T)$ dans $(TMTSF)_2PF_6$ sous pression.</i>	65
4.12	<i>Loi de puissance pour $\rho_c(T)$ dans $(TMTTF)_2PF_6$ sous 19kbar.</i>	71
4.13	<i>$\rho_c(T)$ corrigé à volume constant dans $(TMTSF)_2PF_6$.</i>	74
4.14	<i>Comparaison à l'expérience de la loi en $T^{1-2\alpha}$ affectée d'un facteur exponentiel.</i>	75
4.15	<i>$\rho_a(T)$ sous basse pression dans $(TMTTF)_2PF_6$.</i>	76

4.16	<i>Activation de $\rho_c(T)$ sous 11kbar dans $(TMTTF)_2PF_6$.</i>	77
4.17	<i>Evolution de $\rho_a(T)$ dans $(TMTTF)_2PF_6$ sous pression.</i>	78
4.18	<i>Diagramme de phase de $(TMTSF)_2PF_6$ et $(TMTTF)_2PF_6$.</i>	79
5.1	<i>Inhomogénéité de la distribution de courant dans les plans (ab).</i>	89
5.2	<i>Dépendance angulaire du signal transverse à diverses températures.</i> . .	92
5.3	<i>Premières mesures d'effet Hall.</i>	96
5.4	<i>Premier échantillon UCLA mesuré en effet Hall.</i>	97
5.5	<i>Dépendance en température de la constante de Hall.</i>	98
5.6	<i>Désagrégation des échantillons au-delà de 40 degrés Celsius.</i>	99
5.7	<i>Linéarité en champ de la constante de Hall.</i>	100
5.8	<i>Correction à volume constant de la résistivité.</i>	101
5.9	<i>Dépendance en température de la magnétorésistance.</i>	102
5.10	<i>Dépendance en température de la mobilité.</i>	109
6.1	<i>Flot de renormalisation pour les couplages g_3 et $g_1 - 2g_2$.</i>	115
6.2	<i>Variation en pression de la conductivité longitudinale de $(TMTTF)_2PF_6$.</i>	117
6.3	<i>Résistivité de $(TMTTF)_2PF_6$ sous haute pression.</i>	118
6.4	<i>Diagramme de phase (T,P) de $(TMTTF)_2PF_6$.</i>	121
8.1	<i>Dernier diagramme de phase du sel perchlorate par Chaikin et al..</i> . . .	128
8.2	<i>Surface de Fermi du sel perchlorate.</i>	131
8.3	<i>Représentation schématique des états de bord.</i>	138
8.4	<i>Mesures de McKernan et al. en fonction de la température.</i>	140
8.5	<i>Mesures $R_{zz}(T)_H$.</i>	141
8.6	<i>$R_{zz}(H)$, échelle linéaire.</i>	142
8.7	<i>$R_{zz}(H)$, échelle Log.</i>	143
8.8	<i>$R_{zz}(H)$, mesure exhaustive.</i>	144
8.9	<i>Transformée de Fourier des oscillations rapides.</i>	145
8.10	<i>Diagramme de phase (H,T) du sel perchlorate.</i>	146
8.11	<i>Premier diagramme de phase du sel perchlorate par Naughton et al..</i> .	147

8.12	<i>Dépendance en champ magnétique de la vitesse du son dans le sel perchlorate.</i>	148
8.13	<i>Mesures de McKernan en fonction du champ.</i>	152

Chapitre 1

Présentation du sujet

1.1 Introduction

A l'échelle élémentaire du monde vivant, l'extraordinaire diversité des molécules ou complexes de molécules biologiques telles qu'acides aminés, protéines ou virus témoignent de la grande faculté de l'élément Carbone à réaliser des combinaisons avec d'autres entités chimiques, générant ainsi des macro-structures *fonctionnelles*. C'est le cas de la molécule d'Acide DésoxyriboNucléique (ADN), brique originelle du code génétique, dont la structure en double hélice a inspiré l'idée d'un stockage de la mémoire sous forme de courants permanents dans le cerveau [1]. Malgré son caractère peu académique, il s'agit sans doute de l'un des premiers arguments signalés dans la littérature évoquant la possibilité d'un état supraconducteur *organique*. A la même époque Little [2] songe à appliquer la théorie BCS au cas d'un matériau hypothétique dont les électrons se propagent dans un milieu suffisamment polarisable pour que la condensation des paires de Cooper ait lieu à température ambiante. Puisqu'un candidat idéal doit être un substrat sur lequel sont greffés des groupements fortement polarisables, on songe naturellement à un matériau carboné: c'est une première étape vers l'*électronique organique*. Cependant l'existence d'un état conducteur nécessite une bande non-totalement remplie, ce qui à son tour conduit à des instabilités chimiques et des réarrangements structuraux [3]. Il est apparu qu'une façon de surmonter cette difficulté est de privilégier certains matériaux présentant un caractère

de *basse dimensionnalité*.

Archétypes des conducteurs basés sur une structure de carbone, les sels de Bechgaard de formule générique $(\text{TMTSF})_2X$ [4] et les sels de Fabre $(\text{TMTTF})_2X$ [5], où X désigne un contre anion inorganique, développent la plupart des états fondamentaux électroniques existants sur Terre. Il est possible de stabiliser ces phases en ajustant certains paramètres physiques extérieurs tels que la température, la pression et le champ magnétique [6]. Ces matériaux manifestent tous les modes de transport accessibles, qu'il s'agisse de modes collectifs d'ondes de densité [6], de supraconductivité [7], de transport de quasi-particules dans la phase métallique ou même d'effet Hall quantifié [61].

Ces deux familles de composés sont des sels à transfert de charge: on compte un trou par molécule TMTSF ou TMTTF, l'électronneutralité étant assurée par l'anion X . Ceci correspond *a priori* à un quart remplissage, mais le positionnement des anions dans la maille engendre une faible dimérisation. Celle-ci produit l'ouverture d'un "gap d'anion" dans la relation de dispersion, de façon plus particulièrement notable dans le cas des composés TMTTF. La bande peut alors être considérée comme demi-remplie. Une conséquence en est la coïncidence du vecteur $4k_F$ avec le vecteur du réseau réciproque, favorisant les processus de diffusion Umklapp et engendrant un gap de Mott pour des interactions suffisamment fortes [9]. La valeur du gap de Mott effectivement observé dans $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$ est à pression ambiante bien supérieure aux couplages transverses, ce qui confère au composé soufré un caractère très anisotrope par confinement des charges.

La structure cristallographique des sels de Bechgaard $(\text{TMTSF})_2X$ (quatre atomes de Sélénium par molécule TMTSF) et $(\text{TMTTF})_2X$ (quatre atomes de Soufre par molécule TMTTF) suggère une collection de chaînes (fig. 1.1). Les molécules organiques TMTSF ou TMTTF sont planes et s'agencent en colonne par recouvrement des orbitales p_z des atomes de carbone centraux le long d'un axe a . Les colonnes sont faiblement couplées dans une direction b définissant des plans (ab) qui alternent dans une direction c avec les plans constitués par les anions X . Le fort recouvrement orbitalaire dans la direction a d'empilement des molécules organiques est suggestif

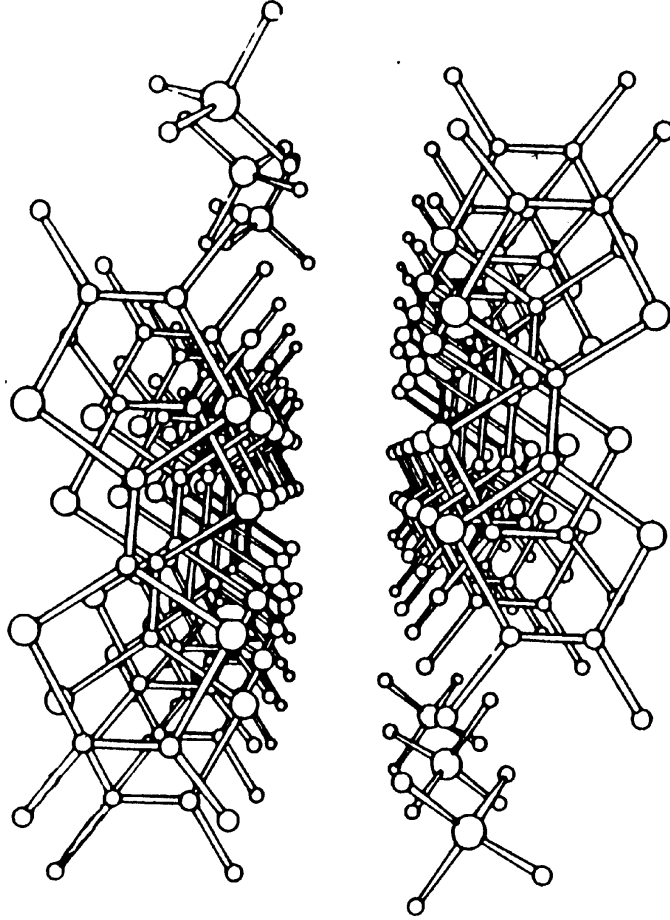


Figure 1.1: *Vue tridimensionnelle du conducteur organique $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$. Les molécules organiques TMTSF sont empilées en zig-zag et forment des colonnes dans la direction a .*

d'une anisotropie prononcée. Ceci est clairement mis en évidence par la valeur absolue des intégrales de transfert t_i suivant les différentes directions cristallographiques [6]:

$$4t_a/4t_b/4t_c \simeq 1\text{eV}/0.1\text{eV}/0.003\text{eV}. \quad (1.1)$$

Une telle anisotropie des intégrales de transfert suggère que les sels de Bechgaard puissent manifester des propriétés intrinsèquement unidimensionnelles, *même si les forces coulombiennes et le spectre des phonons sont de nature tridimensionnelle*. En qualifiant les sels de Bechgaard de conducteurs unidimensionnels, on fait exclusive-

ment référence à *l'anisotropie de transport*.

En réalité, l'absence d'ordre à longue distance à une dimension et l'existence de phases à symétrie brisée dans les sels de Bechgaard et les sels de Fabre signifie qu'au moins à basse température ces composés constituent des systèmes bi ou tridimensionnels. Ceci est bien-entendu une conséquence de la valeur finie des intégrales de transfert transverses, qui justifient une description en terme de chaînes faiblement couplées caractérisant un système *quasi*-unidimensionnel.

Il est possible de faire varier continuellement les couplages intra et inter-chaînes par l'application d'une pression hydrostatique dont l'effet va être naturellement de rapprocher les colonnes organiques et de favoriser l'itinérance des porteurs de charge dans toutes les directions cristallographiques. Un exemple significatif est celui de $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ dont la phase métallique à pression ambiante est instable vers 12K, laissant place à plus basse température à une phase antiferromagnétique d'onde de densité de spin. L'effet de la pression est de déformer la surface de Fermi et de détériorer la qualité du nesting: la divergence de la susceptibilité de spin a donc lieu à plus basse température. Sous 8kbar l'état antiferromagnétique a complètement disparu et le système stabilise une phase supraconductrice à 1K [7]. Un effet de la pression est donc de favoriser la stabilisation d'un état métallique en augmentant la largeur de bande dans toutes les directions; notamment, on s'attend à ce que le transport dans la direction c passe sous pression d'un régime diffusif à un régime de sauts cohérents. D'une manière générale, et ainsi que nous le voyons plus en détail dans la suite, l'augmentation des couplages transverses réduit les effets à N corps intra-chaînes responsables à dimension 1 d'un pseudo-gap au niveau de Fermi dans la densité d'états des quasiparticules [10][11][12][13].

On voit qu'il est possible de décrire les effets de la pression (augmentation de la largeur de bande, réduction des corrélations intra-chaînes) en terme d'un "changement continu de la dimensionnalité effective": du point de vue des propriétés de transport, on tend vers un système de dimension 2 ou 3. Les manifestations de cette dimensionnalité variable est clairement visible dans la partie basse température d'un diagramme (*Température, Pression*) pour les conducteurs organiques quasi-1D, où

l'on observe successivement en fonction de la pression la stabilisation puis la disparition d'un gap de Mott et d'une phase Spin-Peierls (sels de Fabre) [108][109] [16], d'une phase onde de densité de spin, et d'un état supraconducteur (sels de Fabre et sels de Bechgaard). Il est par conséquent tout à fait légitime de se demander si la pression influe également sur les propriétés de l'état métallique.

La phase métallique des nouveaux supraconducteurs non-conventionnels fait l'objet d'une intense activité de recherche expérimentale et théorique depuis que des expériences de transport, d'optique et de magnétisme y ont révélé certaines anomalies caractéristiques d'un non-liquide de Fermi. Un aspect commun à tous ces composés étant la dimensionnalité réduite conjuguée à l'existence d'interactions fortes, l'influence de ces deux paramètres sur la stabilité du liquide de Fermi est un problème tout à fait pertinent qui constitue une ligne de recherche d'actualité.

Les conducteurs organiques $(\text{TMTSF})_2X$ et $(\text{TMTTF})_2X$ sont par conséquent de bons substrats pour l'examen de la validité d'une description conventionnelle en terme de liquide de Fermi: leur structure cristallographique en colonne favorise un confinement électronique suivant des quasi-droites qui, ajouté à de fortes corrélations, est susceptible de briser le liquide classique de Fermi et de donner naissance à un *liquide de Luttinger* [17][18]. Une argumentation heuristique considère l'état métallique précurseur des phases à symétrie brisée comme un état nécessairement bi ou tridimensionnel; cette description resterait valable tant que les couplages transverses sont des quantités pertinentes par rapport à la température et qu'un transport cohérent est possible dans au moins deux directions. Lorsque la température correspond à une échelle d'énergie plus grande que le couplage transverse le plus significatif (ici $t_b \simeq 150 - 200\text{K}$), on s'attendrait à un régime métallique unidimensionnel [114]. Ce point de vue est cependant incomplet puisqu'il ne prend pas en compte l'effet des interactions intra-chaînes.

1.2 Deux écoles antagonistes

Il est important d'avoir une connaissance précise de la température de changement de régime 1D-2D si l'on cherche à interpréter les observations expérimentales dans

les conducteurs organiques en terme d'effets purement unidimensionnels. Le débat est ouvert et oppose essentiellement deux écoles théoriques, l'une considérant le rôle du nesting de la surface de de Fermi sur les processus Umklapp, l'autre prévoyant une forte renormalisation des corrélations par les interactions intra-chaînes.

1.2.1 Un liquide de Fermi à haute température

Le premier modèle mentionné, dû à Gor'kov, s'intéresse à l'effet des propriétés de nesting sur le taux de diffusion électron-électron [105]. Ce point de vue est *a priori* justifié par le succès du modèle de nesting à rendre compte des phases onde de densité, ce qui incite à le prolonger dans la phase métallique. L'idée est alors de voir dans quelle mesure la théorie du liquide de Fermi rend compte de la dépendance en température de la résistance longitudinale ρ_a .

La relation de dispersion d'un conducteur quasi-unidimensionnel linéarisée dans la direction k_a au voisinage du niveau de Fermi s'écrit dans le modèle des liaisons fortes:

$$\varepsilon(k) = v_F(\pm k_a - k_F) - 2t_b \cos k_b b - 2t_c \cos k_c c - 2t'_b \cos 2k_b b \quad (1.2)$$

où a, b, c sont les pas du réseau direct dans les directions \mathbf{a}, \mathbf{b} et \mathbf{c} respectivement. Si l'on fait abstraction du dernier terme dans (1.2) qui est une correction de deuxième ordre à la relation de dispersion ($t'_b \sim t_b^2/t_a$) et mesure l'écart au nesting parfait, on voit que les deux feuilles de la surface de Fermi sont connectées par le vecteur de nesting $\mathbf{Q} = (2k_F, \pi/b, \pi/c)$, soit encore $\varepsilon(\mathbf{k} + \mathbf{Q}) = -\varepsilon(\mathbf{k})$. Gor'kov a intégré cette propriété d'antisymétrie de la relation de dispersion dans le calcul du taux de diffusion Umklapp caractérisant l'échange d'impulsion avec le réseau. Ceci conduit à une résistivité $\rho_a(T)$ quadratique en température corrigée par un facteur logarithmique dépendant du couplage t_b :

$$\rho_a \propto T^2 \ln^2(t_b/T) \quad (1.3)$$

ou encore si le couplage t'_b est pris en compte:

$$\rho_a \propto T^2 \ln^2(t_b/T) \ln(t_b/t'_b). \quad (1.4)$$

De nombreuses mesures de $\rho_a(T)$ dans $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ sous 8kbar, c'est-à-dire dans le cas d'une phase métallique stabilisée jusqu'à basse température, sont bien compatibles avec les comportements (1.3) et (1.4), au moins sur une gamme de température s'étendant de quelques Kelvin à 60K au moins. Ceci est en faveur du modèle basé sur le liquide de Fermi conventionnel et suggère des interactions intra-chaînes plutôt faibles.

1.2.2 L'approche de la renormalisation à dimension 1

Si l'on souhaite avoir une connaissance plus fine des processus de basse énergie, une difficulté majeure réside dans les divergences logarithmiques infrarouge en $\ln(\omega/E_0)$ lorsque $\omega/E_0 \ll 1$ (où E_0 est la largeur de bande) qui apparaissent dans le développement des diverses fonctions de réponses en perturbation de l'Hamiltonien d'interactions [21]. Ceci conduit également à corriger les couplages nus par des vertex, ou couplages effectifs, dans lesquels s'expriment ces divergences. De façon plus précise le développement en perturbation des vertex fait intervenir divers processus de diffusion: à dimension 1, deux d'entre eux se traduisent en perturbation par une divergence logarithmique. Il s'agit du canal de Peierls, qui décrit la création d'une paire électron-trou avec transfert d'une impulsion à $2k_F$, et du canal de Cooper, qui exprime la création d'une paire de particules dont l'impulsion totale est nulle [21]. Dans le cas d'un système de dimension supérieure à 1, les couplages transverses sont pertinents et la condition de nesting parfait ne se trouve généralement vérifiée que localement sur la surface de Fermi. Ceci coupe la divergence logarithmique du canal de Peierls mais n'affecte pas la divergence du canal de Cooper: les processus à deux particules liées sont toujours possibles.

L'approche de ce problème par un traitement de renormalisation suppose que les fluctuations à haute énergie apportent une contribution similaire dans l'Hamiltonien 1D. L'idée est alors de se ramener à un problème n'impliquant que les phénomènes de basse énergie, donc de petits vecteurs d'onde, en intégrant les processus à grands vecteurs d'onde et réduisant la taille du système dans l'espace réciproque par un changement d'échelle pertinent [25].

Le mécanisme général de la renormalisation ainsi formulé par Kadanoff et Wilson peut être schématisé de la façon suivante. Les propriétés d'équilibre d'un système décrit par un Hamiltonien H sont déterminées par la fonction de partition Z qui somme sur toutes les configurations possibles les termes $\exp(-\beta H)$, où l'argument βH , appelé *action*, contient tous les degrés de liberté du système jusqu'à un vecteur d'onde de coupure Λ , qui est de l'ordre de la zone de Brillouin, ou encore de l'ordre de la largeur de bande en terme d'énergie. La renormalisation s'intéresse aux degrés de liberté pertinents, et cherche donc à déterminer une action S qui rend compte de ces degrés de liberté tout en intégrant les degrés de liberté à plus grand vecteur d'onde. Pour sonder les processus à basse énergie on cherche à traiter le problème au voisinage de la surface de Fermi et pour des excitations de petit vecteur d'onde $q/k_F \ll 1$. Considérant les vecteurs d'onde dont la norme correspond à la valeur de coupure Λ on élimine tous les degrés de liberté entre Λ et Λ/s par intégration de $\exp(-\beta H)$ sur la tranche $\Lambda/s < k < \Lambda$, s étant un facteur plus grand que 1. On obtient donc une nouvelle action S' avec la nouvelle coupure $\Lambda' = \Lambda/s$. Pour que le système transformé conserve les mêmes propriétés que le système initial, on effectue un changement d'échelle sur les vecteurs d'onde: $\mathbf{k} \longrightarrow s\mathbf{k}$ qui ramène la coupure Λ' à sa valeur initiale Λ . On peut alors itérer ces deux étapes en choisissant un facteur d'échelle s supérieur mais très proche de l'unité de façon à transformer continuellement le système. Ceci revient donc à réduire continuellement la largeur de bande E_0 et à rendre les développements en perturbation mentionnés plus haut de moins en moins divergents. Au cours de cette transformation les couplages sont renormalisés pour que les propriétés physiques du système initial et du système finalement transformé soient identiques. Physiquement, diminuer la largeur de bande revient à observer les corrélations du liquide d'électrons sur des longueurs de plus en plus grandes: les processus à haute énergie, donc à petite échelle de longueur, sont intégrés entre deux changements d'échelle.

La mise en oeuvre du groupe de renormalisation dans le contexte des chaînes faiblement couplées a conduit Bourbonnais à caractériser l'existence d'un changement de régime dimensionnel dans la phase métallique d'un tel système.

Une description en terme de régime *strictement unidimensionnel* est appropriée sur une gamme de température où le couplage transverse t_{\perp} n'est pas pertinent: t_{\perp} est sans effet sur le confinement des "entités itinérantes", qu'il s'agisse de quasi-particules ou de modes collectifs. Intuitivement et sans précaution aucune on conçoit que ce régime existe à des températures "suffisamment élevées" pour que la cohérence transverse soit détruite par déphasage thermique. On pourrait également s'attendre à ce que cette description "strictement 1D" ne soit plus valide à partir d'une température voisine de t_{\perp}/π , qui désignerait l'échelle d'énergie à laquelle le système électronique devient sensible aux courbures de la surface de Fermi [114]. On entrerait alors dans un régime véritablement *bidimensionnel* caractérisé par une cohérence des ondes de Bloch dans la direction transverse. Entre ces deux régimes, on imagine un intervalle de température dans lequel la cohérence transverse n'est que progressive: c'est un régime *quasi-unidimensionnel*.

Ceci est bien-entendu un point de vue correct *en l'absence d'interactions*, et dans le paragraphe précédent t_{\perp} et $t_{\perp}^{(0)}$, le couplage transverse "nu", sont confondus. Bourbonnais [10][22][23][24] a montré que les modes collectifs inhérents à un liquide unidimensionnel peuvent radicalement modifier la température $T_{\times 1}$ à laquelle on passe d'un régime quasi-undimensionnel à un régime bidimensionnel *au sens de la cohérence de phase d'une fonction d'onde à une particule*. Ces modes collectifs ramènent $T_{\times 1}$ à une valeur plus faible que la température du cross-over en absence d'interactions $t_{\perp}^{(0)}/\pi$. La température $T_{\times 1}$ correspond à l'énergie vers laquelle converge le processus de changement d'échelle et qui signale la fin de la divergence du canal de Peierls en raison de l'apparition de cohérence transverse.

L'analyse de Bourbonnais *dans le régime strictement unidimensionnel* [22][23] conduit à une fonction de Green à une particule G_1 renormalisée de façon substantielle par les interactions intra-chaînes en G'_1 :

$$G'_1(l + dl) = \frac{1}{Z_1(dl)} G_1(l) \quad (1.5)$$

avec

$$Z_1 \propto \left(\frac{E'}{E_0} \right)^{-\alpha} \quad (1.6)$$

La variable l est l'échelle de longueur du système dans l'espace réel qui croît continuellement au cours du processus de renormalisation: $dl > 0$. Dans l'expression (1.6) l'exposant α contient toutes les interactions du système; E' est l'énergie de coupure renormalisée qui dans le régime unidimensionnel est comprise dans l'intervalle $]E_{\perp}, E_0]$, et $E_0 = 4t_{\parallel}$ est la largeur de bande dans la direction des chaînes et $E_{\perp} = 4t_{\perp}$ la largeur de bande dans la direction transverse.

Dans le régime *quasi*-unidimensionnel [22][23], l'énergie de coupure dans le processus de renormalisation est comprise dans l'intervalle $]T_{\times 1}, E_{\perp}]$ et les corrélations transverses doivent également être intégrées. Bourbonnais montre que les corrections à l'action sont encore unidimensionnelles et une transformation du type (1.5) est encore valide sous la forme:

$$G'_1(l + dl) = \frac{1}{Z_1(dl)} G_1(l) + 2t_{\perp}(q_{\perp}, l) \quad (1.7)$$

où $t_{\perp}(q_{\perp})$ est la transformée de Fourier de la relation de dispersion dans la direction transverse. Bourbonnais et Caron ont considéré le problème du couplage suivant q_{\perp} en utilisant non plus une énergie de coupure mais une *impulsion* de coupure, et en intégrant la dépendance en q_{\parallel} des interactions. Ceci révèle la réduction par renormalisation du couplage transverse en

$$t_{\perp}(l) \rightarrow t'_{\perp}(l + dl) = t_{\perp}(l)/Z_1(dl) \quad (1.8)$$

(Z_1 garde la même forme qu'en(1.6)).

Les effets collectifs contribuent également à la diminution de la densité d'états de quasi-particules (au sens de Landau, *cf.* chapitre 3) au niveau de Fermi qui est renormalisée d'un facteur $(T/E_0)^{\alpha}$ et devient:

$$N(T) \sim \frac{1}{\pi v_F} \left(\frac{T}{E_0} \right)^{\alpha} \quad (1.9)$$

où $1/\pi v_F$ est la densité d'états d'un gaz d'électrons sans interactions. L'effet des interactions à dimension 1 est donc de produire un *pseudo-gap* dans la densité d'états de quasiparticules à température finie, qui en toute rigueur se transforme en un gap complet à température nulle. Ceci tend à confiner les quasi-particules sur les chaînes et réduit le nombre de quasi-particules susceptibles de participer à un transport

transverse, qu'il s'agisse de sauts cohérents inter-chaînes ou de transferts par effet tunnel. L'existence de ce pseudo-gap dans la densité d'états au niveau de Fermi induit par les corrélations explique que la température de cross-over $T_{\times 1}$ d'un régime quasi-unidimensionnel vers un régime bidimensionnel soit réduite par rapport à $t_{\perp}^{(0)}/\pi$. Au terme de la renormalisation, cette température se différencie de $T_{\times 1}^{(0)} = t_{\perp}^{(0)}/\pi$ et s'exprime suivant (1.8) comme:

$$T_{\times 1} \sim T_{\times 1}^{(0)} \left(\frac{T_{\times 1}}{E_F} \right)^{\alpha} \quad (1.10)$$

soit encore:

$$T_{\times 1} \sim T_{\times 1}^{(0)} \left(\frac{t_{\perp}^{(0)}/\pi}{E_F} \right)^{\alpha/1-\alpha} \quad (1.11)$$

Comme on le voit dans la suite, il est possible d'accéder expérimentalement à l'exposant α . L'application de (1.11) aux sels de Bechgaard en considérant le couplage nu suivant la direction b calculé dans un modèle de Hückel ($t_b = 150 - 200\text{K}$), conduit à une température de cross-over dimensionnel de l'ordre de 10K au mieux [26], voire une température plus faible encore. Le groupe de renormalisation dans le liquide 1D prévoit donc une réduction d'un facteur 10 par rapport aux prédictions d'un modèle de bande, ce qui signe un effet substantiel des interactions. L'application d'une pression, en augmentant les couplages transverses, va réduire l'effet de la renormalisation: on s'attend à ce que le domaine unidimensionnel soit réduit en température, donc que $T_{\times 1}$ augmente. Il appartiendra à l'expérience d'estimer le degré de renormalisation effectif et de comparer la pertinence des deux échelles d'énergie correspondant aux couplages transverses nus et aux couplages transverses réduits par les corrélations intra-chaînes.

1.3 Les acquis expérimentaux

Un certain nombre de résultats expérimentaux ont mis très tôt en évidence le caractère non conventionnel de la phase métallique. C'est le cas des mesures de spectroscopie infrarouge réalisées sur $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ originellement par Jacobsen *et al.*

[27][28][29] et sur $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ par Timusk *et al.* [30]. Dans le spectre optique de ces deux composés séléniés, une large structure centrée sur 200cm^{-1} est observée qui contient la majorité du poids spectral et par conséquent rend compte de la majorité des transitions optiques. Ces mesures ont été revisitées récemment par Schwartz *et al.* [31][32] et Vescoli *et al.* [33], à la lumière du formalisme de la transition métal-isolant de Mott dans les systèmes 1D dû à Giamarchi [34]. Il apparaît que les structures observées dans la région de haute énergie du spectre optique sont compatibles avec un liquide de Luttinger développant un gap de Mott vers 200cm^{-1} tandis qu'à plus basse énergie la théorie unidimensionnelle est mise en défaut [31].

La spectroscopie de photoémission résolue en angle est également une technique de première importance dans ce contexte puisqu'elle procure un accès direct à la densité spectrale à une particule. Ainsi que nous le verrons dans la suite, la densité spectrale $A(\mathbf{k}, \omega)$ dans un liquide de Fermi mesure la probabilité d'existence d'une quasi-particule d'impulsion \mathbf{k} et d'énergie ω . Ceci donne lieu dans le spectre de photoémission dans la direction \mathbf{k} à un pic centré autour de ω et dont la largeur représente l'inverse du temps de vie moyen de la quasi-particule. Le pic est donc *a priori* d'autant mieux défini que la température de mesure est basse. Les mesures réalisées à 50K par Dardel *et al.* [35] sur $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ ont montré l'absence de poids spectral au voisinage du niveau de Fermi, et donc un gap dans la densité d'états des quasi-particules à \mathbf{k}_F , en sérieuse contradiction avec un liquide de Fermi.

Enfin la dépendance en température des temps de relaxation de spin T_1 obtenue par Creuzet *et al.* [26][120] et Wzietek *et al.* [37] sur $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ à pression ambiante et $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ sous 8kbar est en conformité avec les prédictions d'un modèle unidimensionnel; ce n'est que pour une température de 10K environ qu'un comportement compatible avec un liquide de Fermi, soit $1/T_1$ proportionnel à T , est finalement retrouvé.

On peut également mentionner les mesures de magnétorésistance effectuées par Danner et Chaikin dans $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ sous 8kbar et $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ à pression ambiante [38], suggérant qu'à 500mK le transport perpendiculaire aux plans (ab) est rendu incohérent par l'application d'une faible composante de champ magnétique dans la direction b . Lorsque H_b dépasse 0.5T la magnétorésistance $\rho_{xx}(H)$ varie

comme $H_{\perp(ab)}^{1/2}$ et $\rho_{zz}(H)$ comme $H_{\perp(ab)}^{3/2}$, en contradiction avec la loi de Kohler qui prédit une dépendance quadratique en champ dans un liquide de Fermi. $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ n'est décidément pas un métal conventionnel dans ces conditions expérimentales puisque même lorsque H_b est nul la magnétorésistance ρ_{zz} est maximale lorsque le champ est orienté suivant c , et minimale lorsqu'il est orienté suivant les plans (ab) .

Ces quelques exemples sont remarquables pour au moins deux raisons: (i) ils témoignent tous, et par diverses techniques expérimentales, du caractère hautement *non-conventionnel* de la phase métallique des conducteurs organiques quasi-unidimensionnels; (ii) ils signalent tous des anomalies associées à un non-liquide de Fermi, mais sur des échelles d'énergie *totalelement différentes*. Malheureusement ce point de vue assez évocateur est largement incomplet, car il dissimule la plus surprenante des propriétés: un certain nombre d'expériences révèlent que la phase normale des conducteurs organiques quasi-unidimensionnels est en fait un liquide de Fermi *des plus conventionnels*, décrit par une théorie "nue" faisant complètement abstraction des interactions coulombiennes! C'est le cas des oscillations 'Danner-Chaikin' en l'absence de composante du champ suivant b [38]: dans $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ sous 8kbar et à basse température, les oscillations de la magnétorésistance $\rho_{zz}(\theta)$ observées lorsque l'orientation du champ magnétique varie dans le plan (ac) se plient à une analyse tout à fait classique basée sur l'équation de Boltzmann. Cette analyse prévoit des paramètres physiques tels que le rapport d'anisotropie t_c/t_a en accord avec la théorie des bandes, sans aucun effet de renormalisation ($K_\rho \simeq 1$), alors qu'une très faible composante du champ suivant l'axe b découple immédiatement les plans (ab) indiquant que t_c est au moins un facteur 10 plus faible (forte renormalisation et $K_\rho \simeq 0.2$). Dans le même esprit on peut aussi mentionner le cas des phases Onde de Densité de Spin induites sous champ, pour lesquelles expérience et théorie s'accordent parfaitement à condition d'injecter dans les calculs les valeurs *nues* des couplages suivant b et c , ce qui nécessite un état normal de Fermi des plus conventionnels. On voit notamment à travers ces deux exemples combien l'effet du champ est paradoxal: découplage de plans, restauration des interactions intra-chaînes, cascade de phases induites compatibles avec une théorie (de liquide de Fermi) du nesting quantifié. Tout se passe

comme si il persistait une surface de Fermi quelque peu fantomatique avec des paramètres nus qui régiraient les orbites cyclotrons lesquelles seraient insensibles aux interactions et aux effets 1D. On peut certainement élargir le sujet en affirmant que ce paradoxe est plus généralement lié à la basse dimensionnalité du système puisque il n'est pas limité aux organiques et qu'il existe même dans les supraconducteurs à haute température critique dont la phase métallique est des plus non-liquide de Fermi. Lorsque l'on entre dans la phase supraconductrice, on voit réapparaître des quasi-particules à la BCS, des rapports d'anisotropie de la longueur de pénétration, qui reflètent une structure de bande assez banale avec peu de trace de l'état normal fortement corrélé.

Comment dans ces conditions élaborer une conception unifiée des cross-over dimensionnels supportée par des évidences expérimentales? Le travail de thèse exposé dans les pages qui suivent propose une modeste contribution à ce très curieux problème.

1.4 Organisation de la thèse

La partie principale de ce mémoire est consacrée à la mise en évidence expérimentale d'un cross-over dimensionnel en température et pression dans la phase métallique de certains conducteurs organiques quasi-unidimensionnels.

Le premier chapitre est un rappel des concepts théoriques importants dans ce contexte: on introduit le modèle de Landau des liquides de Fermi, puis on évoque certaines idées générales qui montrent l'effet des interactions sur le temps de vie des quasi-particules de Landau au niveau de Fermi. On s'intéresse alors au transport à dimension 1 et on mentionne la dépendance en température de la résistivité calculée dans un modèle de liquide de Luttinger.

Le deuxième chapitre est une description des techniques de pression mises en oeuvre au cours de cette étude.

Le troisième chapitre présente des mesures de transport transverses en fonction de la température et à diverses pressions. Les deux systèmes considérés sont $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ et $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$ en raison de leur anisotropie très différente. On

souligne le caractère diffusif du transport dans certaines directions cristallographiques et on présente les premières manifestations d'un changement de régime dimensionnel.

Le quatrième chapitre rapporte des mesures quantitatives de constante de Hall en fonction de la température réalisées sur $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ à pression ambiante. On y compare diverses échelles d'énergie significatives à la température de cross-over mesurée expérimentalement.

Le cinquième chapitre s'intéresse à la dépendance en pression du coefficient de corrélation de Luttinger dans $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$. Partant d'un isolant de Mott à pression ambiante on montre comment on peut tendre vers une phase supraconductrice au-delà de 40kbar.

Le dernier chapitre de ce mémoire est consacré aux propriétés du conducteur organique $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ sous haut champ magnétique et basse température. On revisite le diagramme de phase de ce composé et on propose quelques perspectives intéressantes.

Chapitre 2

Eléments de technique des Hautes Pressions

2.1 Introduction

La forte compressibilité des composés organiques en fait des matériaux de choix pour l'étude de la dépendance en pression des propriétés physiques. L'application d'une pression hydrostatique fait varier les distances inter-chaînes dans les directions b et c , et influe également sur les distances inter-molécules à l'intérieur d'une même chaîne. Il s'agit donc d'un accès expérimental à la dimensionnalité du système que l'on peut faire varier continuellement pour favoriser la stabilisation de nombreuses phases électroniques.

L'objet de ce chapitre est de présenter la technique de pression "clamp" utilisée au cours de cette thèse. Suivant la nature des matériaux utilisés et la structure composite de la cellule à clamp, on peut couvrir une plage de pression dont la limite supérieure varie entre 15 et 40kbar. Nous présentons dans la suite les principaux éléments constitutifs d'une cellule de pression standard en Cuivre-Béryllium. Nous mentionnons la technique du cylindre composite et les limites mécaniques d'utilisation théoriques et pratiques.

2.2 Une cellule "clamp" standard

Un certain nombre de mesures de transport présentées à l'appui de cette thèse s'intéressent à une gamme de pressions relativement basses, inférieures à 15kbar. C'est le cas des mesures de résistivités transverses dans $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ qui sont déjà révélatrices en-dessous de 10kbar. La cellule utilisée ainsi que ses éléments amovibles sont entièrement usinés dans un barreau de Cuivre-Béryllium recuit (voir plus loin). Le corps de la cellule consiste en un cylindre épais dans lequel est embouti un second cylindre, ou frette, qui tient lieu de "receptacle de la pression" dont le maintien mécanique est assuré par le corps massif externe. L'espace disponible à l'intérieur de la frette constitue le volume utile occupé par le porte-échantillon. Ce porte-échantillon est un contre-piston muni d'un passage étanche conique et d'une isolation électrique de pyrophyllite, maintenue à l'une des extrémités de la cellule par une vis de blocage. En cours de mesure l'échantillon sera thermalisé principalement par les fils de mesure [40]. Le porte-échantillon est scellé hermétiquement par une capsule de téflon vierge (non régénéré) dont l'extrémité est usinée sur sa face interne à l'aide d'un outil hémisphérique afin que les contraintes extérieures soient réparties uniformément et éviter les amorces de rupture à la compression. Le milieu transmetteur de pression n'est pas de la stéatite comme dans le cas des enclumes, mais un liquide qui peut être une huile de silicone, l'isopentane, le fluor inerte, voire de l'huile pour transformateur d'électricité coupée au kerosen [106]. L'intérêt d'un fluide est sa très faible résistance au cisaillement qui confère à la pression transmise un caractère iso-statique. L'huile de silicone gèle sous haute pression (au-delà de 20kbar) et à la différence des autres produits cités elle gèle à basse température de façon isotrope: ce genre de milieu sera donc préférentiellement utilisé dans les expériences basse pression. Enfin, un système de pistons en Cuivre-Béryllium et en Carbure de Tungstène permet de transmettre la force générée par une presse hydraulique sur le sommet de la capsule de téflon, de surface 28mm^2 pour une cellule 15kbar. Cette force est alors maintenue par la résistance mécanique du filetage d'une pièce à vis. Un schéma d'une cellule clamp standard est donné dans la Figure 2.1.

On peut généralement incorporer un manomètre à la mesure, tel qu'un échan-

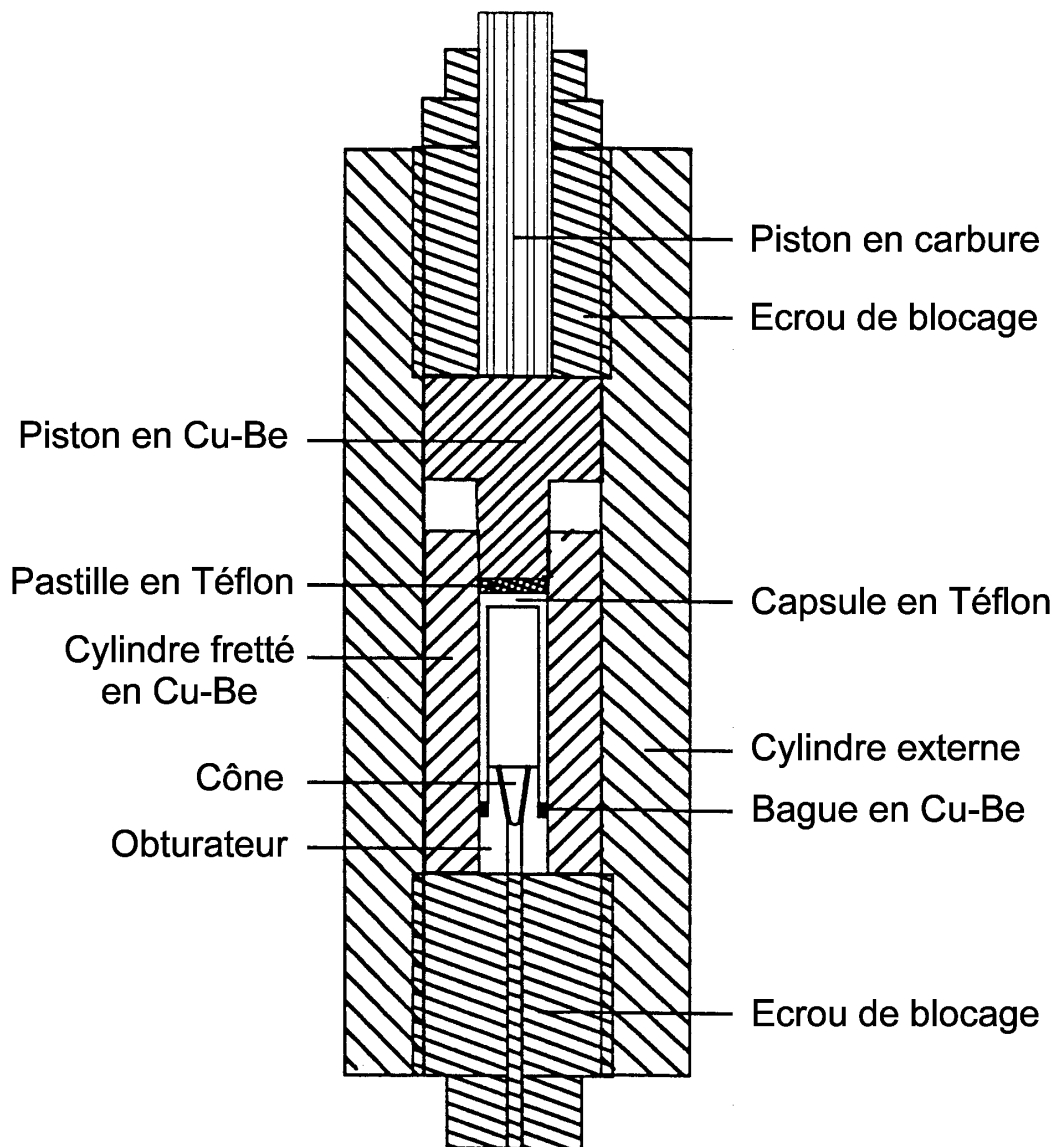


Figure 2.1: Schéma de la cellule utilisée au cours de cette thèse pour les expériences à basse pression.

tillon de Plomb ou d'Etain dont la température de transition supraconductrice varie avec la pression. Pour de plus hautes pressions on peut également utiliser un monocristal de InSb dopé à Te dont le gap semiconducteur est également sensible à la pression. De façon habituelle on étalonne la cellule à température ambiante en mesurant la résistance d'un fil de manganin (Cu: 82%; Ni: 2%; Mg: 1.2%, par exemple) dont la variation en pression est bien connue et a été déterminée jusqu'à

80kbar dans un système à enclumes Bridgman, jusqu'à 220kbar dans un système à enclumes multiples, et jusqu'à 392kbar par ondes de choc. Dans la cas d'une bobine de manganin cyclée, il apparait que la variation $\Delta R/R$ est pratiquement linéaire en pression avec une pente de $2.4 \cdot 10^{-3}$ par kilobar.

2.3 Principe de la technique "clamp"

2.3.1 Modèle du cylindre simple à paroi épaisse

Pour comprendre la logique de la technique "clamp", on peut d'un premier abord s'intéresser aux déformations d'un cylindre creux de paroi épaisse, soumis à des forces radiales interne et externe, respectivement notées p_i et p_e (fig. 2.2), uniformément réparties suivant l'axe de révolution. Les conditions d'équilibre mécanique s'écrivent simplement en supposant un régime élastique et en considérant les contraintes s'exerçant sur un élément infinitésimal du cylindre de surface $rdrd\theta$, situé à une distance comprise entre r et $r+dr$ de l'axe du cylindre (avec les notations usuelles d'une symétrie cylindrique). On note σ_r et σ_θ les contraintes respectivement radiales et tangentielles. L'équation d'équilibre limitée au premier ordre des déplacements infinitésimaux dr et $d\theta$ s'écrit:

$$\sigma_\theta - \sigma_r = r \frac{d\sigma_r}{dr}. \quad (2.1)$$

Si l'on désigne par a et b le rayon interne et externe (respectivement) du cylindre, la loi de Hooke généralisée conduit à l'expression des contraintes:

$$\begin{aligned} \sigma_r &= \frac{a^2 p_i - b^2 p_e}{b^2 - a^2} - \frac{(p_i - p_e) a^2 b^2}{r^2 (b^2 - a^2)} \\ \sigma_\theta &= \frac{a^2 p_i - b^2 p_e}{b^2 - a^2} + \frac{(p_i - p_e) a^2 b^2}{r^2 (b^2 - a^2)} \end{aligned} \quad (2.2)$$

La formule de Lamé donne l'épaisseur minimum de la paroi e permettant de rester en-deçà de la limite d'écoulement plastique, connaissant la pression interne p_i et la limite élastique R_e du matériau [39][41]:

$$e = a \left[\sqrt{\frac{R_e + p_i}{R_e - p_i}} - 1 \right] \quad (2.3)$$

mais l'augmentation de cette épaisseur ne permettrait pas de dépasser une valeur de pression interne typique $p_i = R_e/2$ sans détérioration de la cellule. Pour repousser la limite de la pression interne accessible, on pense à maintenir la cohésion mécanique du cylindre simple et lui ajoutant une enveloppe massive de façon à générer des contraintes de sens opposé à celles créées par la pression interne p_i . C'est l'intérêt principal des cellules à cylindres composites, dont on peut formaliser les caractéristiques les plus élémentaires par le modèle du double cylindre.

2.3.2 Modèle du double cylindre

Le cylindre interne, ou frette, est généralement inséré en force dans l'enveloppe massive à l'aide d'un patin de Cuivre-Béryllium, ou plus rarement à l'aide d'un traitement thermique: la frette de diamètre légèrement supérieur au diamètre interne de l'enveloppe à température ambiante, est préalablement refroidie à l'azote liquide pour pouvoir être introduite dans l'enveloppe; à l'équilibre thermique la frette y reste bloquée. Dans les deux cas, le cylindre externe travaille donc en extension et le cylindre interne en compression.

On montre que l'effet de support de la frette par l'enveloppe est d'autant plus efficace que les deux cylindres tendent à atteindre simultanément leur limite de rupture [39][41]. La pression de frettage optimale et la pression interne maximale doivent conduire à l'égalité suivante:

$$\sigma_\theta(r = a) = \sigma_\theta(r = c) \quad (2.4)$$

où l'on ne considère que les contraintes tangentielles puisque $\sigma_\theta > \sigma_r$. Il importe donc de connaître le lien entre les pressions de frette et interne et les contraintes mécaniques. Ceci est facilement accessible grâce à la deuxième expression (2.2). Le cylindre-enveloppe subit une contrainte d'extension σ_θ^{ext} générée par la pression interne p_i et une contrainte de compression σ_θ^{comp} générée par la pression de frette p_f à l'interface des deux cylindres serrés:

$$\sigma_\theta^{ext}(r = c) = \frac{a^2}{b^2 - a^2} p_i \left(1 + \frac{b^2}{c^2} \right) \quad (2.5)$$

avec $p_e = 0$ dans (2.2);

$$\sigma_{\theta}^{comp}(r = c^+) = \frac{b^2 + c^2}{b^2 - c^2} p_f \quad (2.6)$$

avec $p_e = 0$, $p_i = p_f$ et a remplacé par c dans (2.2). De même le cylindre-frette subit une contrainte d'extension et de compression pour des raisons identiques:

$$\sigma_{\theta}^{ext}(r = a) = \frac{b^2 + a^2}{b^2 - a^2} p_i \quad (2.7)$$

avec $p_e = 0$ dans (2.2);

$$\sigma_{\theta}^{comp}(r = a) = \frac{-2c^2}{c^2 - a^2} p_f \quad (2.8)$$

avec $p_e = p_f$, $p_i = 0$ et b remplacé par c dans (2.2). La somme totale des contraintes tangentielles σ_{θ}^{tot} vaut donc (2.7) + (2.8) en $r = a$ et (2.5) + (2.6) en $r = c$. L'égalité (2.4) s'écrit ainsi

$$\sigma_{\theta}^{tot}(r = a) = \sigma_{\theta}^{tot}(r = c) = R \quad (2.9)$$

où R est la limite de rupture du matériau. Les équations (2.9) permettent de déterminer la pression de frettage optimale et la pression interne limite en fonction des paramètres géométriques a , b , c et de la limite élastique. Par une argumentation sur la limite élastique des deux cylindres, on peut montrer [39] [41] que la pression interne limite est optimale lorsque le rapport des rayons extérieur sur intérieur est le même pour les deux cylindres, soit:

$$\frac{b}{c} = \frac{c}{a} \Leftrightarrow c = \sqrt{ab} \quad (2.10)$$

On en déduit la pression de frette optimale:

$$p_f^{opt} = R \frac{(b-a)^2 / (b^2 + a^2)}{(b+a) \left(\frac{1}{b} + \frac{2a}{b^2 + a^2} \right)} \quad (2.11)$$

et la pression interne maximale:

$$p_i^{max} = \left(R + \frac{2b}{b-a} p_f \right) \frac{b^2 - a^2}{b^2 + a^2}. \quad (2.12)$$

2.3.3 Application pratique

Pour les pressions inférieures à 15kbar on utilise généralement un alliage écroui ou demi-écroui de cuivre et de 5% de béryllium. Sans traitement thermique sa charge de rupture est de 90 kg par mm^2 . Après traitement thermique à 315°C pendant 3 heures la charge de rupture est augmentée et passe à 155 kg par mm^2 , soit 47 sur l'échelle Rockwell C au diamant. Cette valeur diminue très lentement si l'on dépasse la durée de 3 heures à cette température. Pour une température supérieure à 750°C le Cuivre-Béryllium est régénéré et sa charge de rupture reprend sa valeur de 90 kg par mm^2 .

Une application numérique de (2.12) avec les paramètres usuels donne une pression interne maximale de moins de 10kbar. Cette pression maximale est dépassée en pratique, en raison d'un effet de support massif: la déformation générée par l'application de pression n'est que localement linéaire en fonction de la force de contrainte, car la matière environnante subit une déformation non-linéaire qui se traduit par un effet de maintien de la région sous pression. Lorsque la pression appliquée est supérieure à la limite élastique, un écoulement plastique se propage dans l'alliage et définit une région qui joue le rôle d'un deuxième cylindre-enveloppe: la cellule est auto-frettée. Des pressions internes importantes sont donc accessibles dans des cellules "clamp" fabriquées dans un matériau de haute limite élastique et constituées de cylindres imbriqués les uns dans les autres. Une structure interne typique pourrait être la suivante: premier cylindre à paroi épaisse dans lequel est emmanché un second cylindre, puis frette emboutie dans le second cylindre par contact cône sur cône.

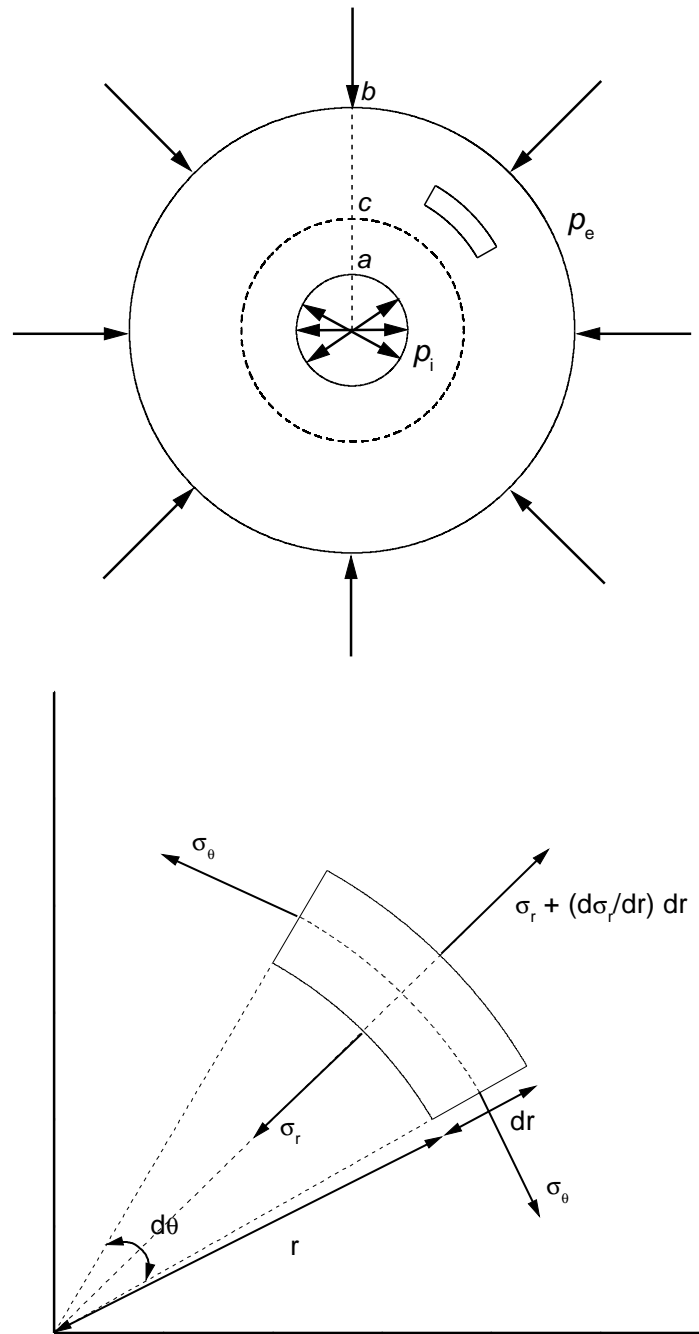


Figure 2.2: Coupe transversale d'un cylindre composite. La vue supérieure représente un cylindre composite en coupe constitué de deux parties: un cylindre interne creux de rayon (a, c) inséré dans un cylindre externe de rayon (c, b) . L'ensemble est soumis à une pression interne p_i et une pression externe p_e . La vue inférieure illustre le bilan des forces sur une surface élémentaire normale à l'axe des cylindres.

Chapitre 3

Du liquide de Fermi au non-liquide de Fermi

3.1 Introduction

L'objet des quelques paragraphes qui suivent est de présenter les idées directrices qui conduisent le physicien à considérer l'existence d'un liquide de Luttinger dans la phase métallique des conducteurs quasi-unidimensionnels. Il est donc important de préciser au préalable dans quelle mesure la notion de quasi-particule de Landau propre à la théorie du liquide de Fermi conventionnel doit être remplacée par d'autres états propres du système qui se trouveront être des modes collectifs de charge et de spin. On commence par exposer les idées fondatrices du modèle de Landau des liquides de Fermi. On évoque ensuite le modèle de g -ologie fréquemment mentionné dans la littérature et qui sert notamment de point de départ au formalisme de la séparation spin-charge à dimension 1. Un dernier paragraphe met l'accent sur le rôle des processus Umklapp dans les systèmes unidimensionnels, et l'influence du gap de Mott dans les propriétés de transport.

3.2 La quasiparticule de Landau [42]

3.2.1 La théorie de Landau des liquides de Fermi

La théorie du liquide de Fermi selon Landau concerne les propriétés d'un système à N fermions sur une échelle d'énergie très petite devant l'énergie de Fermi. L'une des idées fondamentales sous-jacentes est la correspondance biunivoque entre les états propres du système *sans interaction* et ceux du système où l'interaction est *finie*. C'est la raison pour laquelle cette théorie s'intéresse à l'état normal d'un système, c'est-à-dire en l'absence de transition de phase vers un état à symétrie brisée (ou tout au moins dans une gamme de températures plus élevées que les températures de transition).

Le modèle proposé par Landau pour rendre compte des propriétés du liquide de Fermi consiste à considérer au préalable le *gaz* de particules, dans lequel les seules interactions sont les collisions, puis à brancher progressivement un potentiel d'interaction entre ces particules. On peut considérer un état obtenu en ajoutant une particule de moment $|\mathbf{p}| > k_F$ à l'état fondamental sans interaction:

$$|\mathbf{p}, N + 1\rangle = a_{\mathbf{p}}^+ |0, N\rangle \quad (3.1)$$

où $a_{\mathbf{p}}^+$ est un opérateur de création de fermion pour l'état de moment \mathbf{p} , et $|0, N\rangle$ est l'état fondamental à N particules du système sans interactions. Si l'on ajoute à présent un terme d'interaction entre particules, l'état résultant sera toujours de moment \mathbf{p} car le système est supposé invariant par translation et les interactions y conservent donc l'impulsion totale. Cependant l'interaction entre la particule ajoutée et la mer de Fermi, ainsi d'ailleurs que les interactions interparticules à l'intérieur de la mer de Fermi, va perturber la distribution des particules dans l'espace des vecteurs d'onde \mathbf{k} et modifier l'énergie de l'état $a_{\mathbf{p}}^+ |0, N\rangle$ par rapport à l'état $|0, N\rangle$. On appellera *quasi-particule de Landau* l'entité formée par la particule ajoutée de moment \mathbf{p} et la distribution perturbée résultante des autres particules. On note que le principe de Pauli requiert $|\mathbf{p}| > k_F$ en l'absence d'interactions, et une hypothèse de continuité sous-jacente dans le modèle de Landau implique que cette restriction soit encore valide dans le cas d'un système de particules en interaction: les états

propres du système idéal (sans interaction) se transformeraient en états propres du système réel lorsque l'interaction se développe, et ceci de façon continue. Notamment le vecteur d'onde de Fermi k_F est *inchangé par les interactions*. On montre que la durée de vie de l'état ainsi obtenu n'est longue qu'au "voisinage immédiat" du niveau de Fermi, et donc que *le concept de quasi-particule n'est valable que près de la surface de Fermi*.

L'énergie du système total E est alors une fonctionnelle de la distribution des états $n(k)$ (la distribution ne dépendant que de la magnitude de l'impulsion): $E = E[n(k)]$, qui ne se limite pas à la somme des énergies des particules. De façon plus précise, on peut considérer l'ajout d'une particule de vecteur d'onde $k > k_F$ et exprimer la variation d'énergie du système lorsque, une fois la particule ajoutée, on branche une interaction entre particules. Celle-ci s'écrit à l'aide de la perturbation de la fonction de distribution $n(k)$, $\delta n(k) = n(k) - n_0(k)$, en ces termes:

$$\delta E[n(k)] = \sum_k \varepsilon_{\mathbf{k}}^0 \delta n(k) + \frac{1}{2\Omega} \sum_{k,k'} f(k, k') \delta n(k) \delta n(k') \quad (3.2)$$

où le premier terme fait intervenir $\varepsilon_{\mathbf{k}}^0$ la dérivée fonctionnelle première de l'énergie du système et énergie de la quasi-particule unique (sans interaction avec les autres particules de la mer de Fermi), et le second terme traduit l'interaction entre quasi-particules dans le potentiel f . Cette écriture montre que l'énergie $\varepsilon_{\mathbf{k}}$ de la quasi-particule d'impulsion \mathbf{k} baignant parmi les autres quasi-particules s'exprime comme

$$\varepsilon_{\mathbf{k}} = \varepsilon_{\mathbf{k}}^0 + \frac{1}{\Omega} \sum_{k'} f(k, k') \delta n(k'). \quad (3.3)$$

Evoquant le même argument que précédemment, et sachant que les particules sans interaction suivent la statistique de Fermi-Dirac, il en va de même des quasi-particules dont la distribution d'état s'écrit:

$$n(k) = \frac{1}{e^{\beta \varepsilon_{\mathbf{k}}} + 1} \quad (3.4)$$

et s'exprime donc de façon "self-consistante" à l'aide de (3.3) et (3.4).

On peut aussi transformer le potentiel d'interaction entre quasi-particules en exprimant la symétrie et l'antisymétrie de la fonction f :

$$\begin{aligned} f(\mathbf{k} \uparrow, \mathbf{k}' \uparrow) &= f^s(\mathbf{k}, \mathbf{k}') + f^a(\mathbf{k}, \mathbf{k}') \\ f(\mathbf{k} \uparrow, \mathbf{k}' \downarrow) &= f^s(\mathbf{k}, \mathbf{k}') - f^a(\mathbf{k}, \mathbf{k}') \end{aligned} \quad (3.5)$$

Puisque l'écart à l'équilibre des fonctions de distribution $n(k)$ et $n(k')$ est très proche d'un pic de Dirac centré sur l'impulsion k_F on peut poser $|\mathbf{k}| = |\mathbf{k}'| = k_F$, et en raison de l'invariance de symétrie par rotation les fonctions f ne peuvent dépendre que de l'angle θ entre \mathbf{k} et \mathbf{k}' . Un développement de la fonction f en série de polynômes de Legendre $P_L(\cos \theta)$ conduit à:

$$f^{a,s}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = \sum_{L=0}^{\infty} f_L^{a,s} P_L(\cos \theta) \quad \cos \theta = \frac{\mathbf{k} \cdot \mathbf{k}'}{k_F^2} \quad (3.6)$$

On introduit alors les coefficients sans dimension $F_L^{a,s}$:

$$F_L^{a,s} = \frac{k_F m^*}{\pi^2} f_L^{a,s} \quad (3.7)$$

où l'on a exprimé la masse effective m^* qui, *dans notre système invariant par translation, dépend donc des interactions*. En calculant par exemple la chaleur spécifique à volume constant C_V on déduit une expression de la masse effective:

$$\frac{m^*}{m} = 1 + \frac{F_1^s}{3}. \quad (3.8)$$

Pour illustrer l'intérêt de ce formalisme, on peut considérer le calcul de C_V à l'équilibre dont le résultat est:

$$C_V = \frac{m^* k_F}{3} k_B^2 T. \quad (3.9)$$

Par conséquent à basse température la chaleur spécifique reste linéaire en température même en présence des interactions. De même on peut montrer que la susceptibilité de spin tend vers une constante quand la température tend vers zéro.

3.2.2 Le spectre des excitations élémentaires

On s'intéresse à préciser la notion de quasi-particule en terme d'évolution temporelle au voisinage du niveau de Fermi. Le formalisme adéquat est donc celui des fonctions de Green (ici à une particule):

$$G(\mathbf{r}, t; \mathbf{r}', t') = i \langle \varphi_0 | T \{ \psi(\mathbf{r}, t) \psi^*(\mathbf{r}', t') \} | \varphi_0 \rangle \quad (3.10)$$

où ψ, ψ^* sont les opérateurs de destruction et de création d'une particule, $|\varphi_0\rangle$ est l'état de base du système à N particules où toutes les interactions sont prises en

compte, et T est l'opérateur chronologique. T assure que la propagation s'effectue du passé vers l'avenir; dans le cas des fermions la propagation d'un trou est équivalente à celle d'une particule en arrière dans le temps. G contient l'amplitude de probabilité pour que l'on retrouve en (\mathbf{r}, t) une particule ajoutée à l'état de base en (\mathbf{r}', t') ; pour $t > t'$, G décrit donc la propagation d'une particule supplémentaire, sans autre modification de l'état de base $|\varphi_0\rangle$. L'idée est de suivre l'évolution de cette déformation élémentaire de la fonction d'onde jusqu'à l'incohérence irréversible.

La transformée de Fourier $G(\mathbf{k}, t; \mathbf{k}', t')$ de la fonction de Green à une particule $G(\mathbf{r}, t; \mathbf{r}', t')$ peut s'exprimer à l'aide des opérateurs création et annihilation du formalisme de la Seconde Quantification:

$$G(\mathbf{k}, t; \mathbf{k}', t') = i \langle \varphi_0 | T \{ a_{\mathbf{k}}(t) a_{\mathbf{k}'}^*(t') \} | \varphi_0 \rangle \quad (3.11)$$

qui est identiquement nulle si $\mathbf{k} \neq \mathbf{k}'$ de sorte que l'on se remène à l'expression suivante:

$$G(k, t) = G(\mathbf{k}, t; \mathbf{k}, 0) = i \langle \varphi_0 | T \{ a_{\mathbf{k}}(t) a_{\mathbf{k}}^*(0) \} | \varphi_0 \rangle. \quad (3.12)$$

On a notamment fait apparaître la superposition d'états $a_{\mathbf{k}}^* |\varphi_0\rangle$ obtenue en ajoutant au système à N particules dans l'état de base $|\varphi_0\rangle$ une particule d'impulsion \mathbf{k} .

On peut ré-exprimer la fonction de Green dans la représentation d'Heisenberg des opérateurs de création et d'annihilation:

$$\begin{aligned} G(k, t) &= i \langle \varphi_0 | e^{iHt} a_{\mathbf{k}} e^{-iHt} a_{\mathbf{k}}^* | \varphi_0 \rangle \quad \text{si } t > 0 \\ \text{ou} &= -i \langle \varphi_0 | a_{\mathbf{k}}^* e^{iHt} a_{\mathbf{k}} e^{-iHt} | \varphi_0 \rangle \quad \text{si } t < 0 \end{aligned} \quad (3.13)$$

L'ensemble des états propres $\{|\varphi_n\rangle\}$ du système est complet ($\sum_n |\varphi_n\rangle \langle \varphi_n| = 1$) de sorte que l'on peut réécrire (3.13) sous la forme suivante:

$$\begin{aligned} G(k, t) &= i \sum_n |\langle \varphi_n | a_{\mathbf{k}}^* | \varphi_0 \rangle|^2 \exp(-i\omega_{n0}t) \quad \text{si } t > 0 \\ \text{ou} &= -i \sum_m |\langle \varphi_m | a_{\mathbf{k}} | \varphi_0 \rangle|^2 \exp(+i\omega_{m0}t) \quad \text{si } t < 0 \end{aligned} \quad (3.14)$$

où l'énergie d'excitation $\omega_{n0} = E_n - E_0$, différence des énergies E_n et E_0 des états propres $|\varphi_n\rangle$ et $|\varphi_0\rangle$ soit encore $\omega_{n0} = \mu + \xi_{n0}$ où μ est le potentiel chimique et ξ_{n0} la contribution énergétique de l'excitation. Dans le cas de la propagation d'un trou

($t < 0$), on écrira: $\omega_{m0} = -\mu + \xi_{m0}$. L'idée est de rendre visible le rôle des fonctions spectrales $A_+(k, \omega)$ et $A_-(k, \omega)$ définies par:

$$A_+(k, \omega) = \sum_n |\langle \varphi_n | a_{\mathbf{k}}^* | \varphi_0 \rangle|^2 \delta(\omega - \xi_{n0}) \quad (3.15)$$

$$A_-(k, \omega) = \sum_m |\langle \varphi_m | a_{\mathbf{k}} | \varphi_0 \rangle|^2 \delta(\omega - \xi_{m0}) \quad (3.16)$$

Ces fonctions traduisent la distribution en fréquence de la norme des états $a_{\mathbf{k}}^* | \varphi_0 \rangle$ et $a_{\mathbf{k}} | \varphi_0 \rangle$. La fonction de Green devient:

$$\begin{aligned} G(k, t) &= i \int_0^{\infty} A_+(k, \omega) \exp[-i(\mu + \omega)t] d\omega \quad \text{pour } t > 0 \\ &= -i \int_0^{\infty} A_-(k, \omega) \exp[-i(\mu - \omega)t] d\omega \quad \text{pour } t < 0 \end{aligned} \quad (3.17)$$

et la transformée de Fourier $G(k, \omega)$ s'exprime comme:

$$G(k, \omega) = \int_0^{\infty} d\omega' \left(\frac{A_+(k, \omega')}{\omega' - \omega + \mu - i\eta} - \frac{A_-(k, \omega')}{\omega' + \omega - \mu - i\eta} \right) \quad (3.18)$$

où η est une quantité réelle positive infiniment petite. La formulation (3.18) est la représentation spectrale, ou développement de Lehmann, de la fonction de Green. On peut intégrer la partie imaginaire de (3.18) ce qui conduit à

$$\begin{aligned} \Im G &= i\pi A_+(k, \omega - \mu) \quad \text{si } \omega > \mu \\ \text{ou} &= -i\pi A_-(k, \mu - \omega) \quad \text{si } \omega < \mu \end{aligned} \quad (3.19)$$

La partie imaginaire de G est donc simplement proportionnelle à A_+ et A_- .

Si $A_+(k, \omega)$ présente un maximum dans une bande de largeur $2\Gamma_k$ centrée sur ξ_k les composantes spectrales de l'état $a_{\mathbf{k}}^* | \varphi_0 \rangle$ qui entrent dans ce pic oscillent à une fréquence $\mu + \xi_k$ et leurs phases restent cohérentes sur un temps proche de $1/\Gamma_k$. Si l'on ne considère que le pic dans la fonction spectrale en "filtrant" l'état $a_{\mathbf{k}}^* | \varphi_0 \rangle$ autour de la fréquence ξ_k , on obtient un état propre approché du système, d'énergie $\mu + \xi_k$ et de durée de vie $1/\Gamma_k$.

Plus précisément on peut utiliser (3.17) pour calculer explicitement $G(k, t)$:

$$-iG(k, t) = e^{-i\mu t} \int_0^{\infty} A_+(k, \omega) e^{-i\omega t} d\omega. \quad (3.20)$$

L'application du théorème des résidus pour une variable d'intégration $z = \omega - i\alpha$, avec $\alpha \gg 1/t$ (pour que $\exp(-\alpha t) \ll 1$) et un contour convenable dans le quadrant inférieur ($-\alpha < 0$) droit ($\omega > 0$) du plan complexe conduit à :

$$-iG(k, t)e^{i\mu t} \simeq \int_0^{-i\alpha} A_+(k, \omega)e^{-i\omega t} d\omega - 2i\pi \sum_j \zeta_j e^{-i\omega_j t} \quad (3.21)$$

où ω_j sont les pôles de $A_+(k, \omega)$ à l'intérieur du contour et ζ_j leurs résidus. Le pic dans le spectre de $A_+(k, \omega)$ provient d'un des pôles ω_p le plus proche de l'axe réel :

$$\omega_p = \xi_k - i\Gamma_k \quad \text{avec } \Gamma_k \ll 1. \quad (3.22)$$

Lorsque $1 \ll t \leq \Gamma_k^{-1}$, le premier terme de (3.21) qui rend compte du fond continu incohérent dans la représentation spectrale disparaît vite de $G(k, t)$ (précisément en raison de l'incohérence des phases), mais le second terme qui provient du pôle $\xi_k - i\Gamma_k$ subsiste et la fonction de Green à une particule devient :

$$-iG(k, t) = -2i\pi\zeta_k \exp[(-i\xi_k - i\mu - \Gamma_k)t]. \quad (3.23)$$

La variation périodique de $G(k, t)$ correspond à un état excité de vecteur d'onde \mathbf{k} , d'énergie $\mu + \xi_k$ et de durée de vie Γ_k^{-1} très supérieure à l'échelle de temps des fluctuations locales. L'état $a_{\mathbf{k}}^* |\varphi_0\rangle$, superposition d'états de base du système, possède donc une partie cohérente manifestée par le pic de la distribution spectrale et qui représente une *quasi-particule*. La surface du pic, égale au résidu de $A_+(k, \omega)$ correspondant $\zeta_{\mathbf{k}}$, donne la fraction de quasiparticule dans l'état composite $a_{\mathbf{k}}^* |\varphi_0\rangle$. Une argumentation similaire pour l'état $a_{\mathbf{k}} |\varphi_0\rangle$ (état composite résultant de la perturbation provoquée par l'annihilation d'une particule dans le système à N particules pris dans l'état de base $|\varphi_0\rangle$) et la distribution spectrale $A_-(k, \omega)$ conduirait à la définition d'un *quasi-trou*.

Une prolongation de $G(k, t)$ dans le plan complexe montre que ses pôles coïncident avec ceux des fonctions spectrales. La fonction de Green contient donc toute l'information pour définir une quasi-particule ou un quasi-trou. Les interactions sont prises en compte dans le formalisme de la fonction de Green à deux particules qui contient des facteurs de propagations et un facteur d'interaction γ . Dans une phase

normale, la fonction γ traduit une interaction localisée: elle contient une portée et un temps de relaxation caractéristiques au-delà desquels elle devient négligeable. La fonction de Green à deux particules se révèle plus riche en information que la fonction à une particule et permet d'affiner notre conception de la quasi-particule de Landau telle que nous l'avons vu jusqu'à présent. Etudier la dynamique des fonctions de Green (à deux particules) permet ainsi d'obtenir l'expression des distributions spectrales A_+ et A_- et de distinguer à nouveau deux contributions dans $G(k, \omega)$. L'une d'elles est incohérente et provient de plusieurs excitations élémentaires. L'autre apparaît dans l'une ou l'autre des fonctions spectrales (suivant que l'on se trouve légèrement en-dessous ou au-dessus de la surface de Fermi) sous forme d'un pic correspondant à une seule excitation élémentaire de vecteur d'onde \mathbf{k} , centré sur une fréquence $\xi_k \simeq v(k - k_F)$ (v désigne la vitesse de groupe de la quasi-particule, quantité continue à la traversée de la surface de Fermi) et de largeur Γ_k d'ordre $(k - k_F)^2$. L'aire du pic est le résidu z de la densité spectrale, et la partie cohérente de la fonction de Green s'écrit au voisinage de la surface de Fermi:

$$G_{coh}(k, \omega) = \frac{z}{\mu + v(k - k_F) - \omega \pm iu(k - k_F)^2} \quad (3.24)$$

(u est une constante positive).

Considérer l'état résultant de l'ajout au temps t d'une particule d'impulsion \mathbf{k} au système à N particules dans l'état de base $|\varphi_0\rangle$, soit $a_{\mathbf{k}}^*(t)|\varphi_0\rangle$, filtrer cet état et ne conserver que la partie correspondant au pôle $\xi_k - i\Gamma_k$, puis calculer la fonction de Green dans ce nouvel état, permet de déterminer les propriétés du système excité à $N + 1$ particules contenant la quasi-particule de vecteur d'onde \mathbf{k} . On montre notamment que le résidu z_k de la fonction de Green G représente la fraction de particule nue d'impulsion \mathbf{k} contenue dans la quasi-particule, et donc que $1 - z_k$ représente ce que pour reprendre une image empruntée à la polarisation d'un milieu nous pouvons appeler le nuage de particules entourant la particule injectée et résultant des interactions locales du système avec cette particule. Puisqu'à la traversée de la surface de Fermi, les excitations passent du type quasi-particule au type quasi-trou, on a toujours une discontinuité de la fonction de distribution des quasi-particules qui est une marche d'escalier à k_F (à $T = 0$). La distribution des particules nues présente quant

à elle également une discontinuité à k_F , mais égale au résidu z_k . On voit par là que le potentiel d'interaction affecte dramatiquement la proportion de particules nues par rapport au cas dans lequel les particules n'interagiraient que par l'intermédiaire de collisions. On s'attend donc à ce que pour de fortes corrélations la fraction de particule nue dans la quasi-particule soit réduite, et qu'à la limite: $z_k \ll 1$. Enfin, ainsi que nous le verrons plus en détail, la dimensionnalité du système influe significativement sur l'existence des quasi-particules. Dans les métaux ordinaires tri-dimensionnels le principe de Pauli restreint les possibilités de diffusions à la proximité de la surface de Fermi, de sorte que les répulsions coulombiennes ont peu d'effet sur les excitations de basses énergies et les quasi-particules peuvent être considérées indépendantes. A dimension 1 la restriction de l'espace de phase contraint les particules à interagir plus fortement et les quasi-particules disparaissent du spectre des excitations de basse énergie. Elles sont remplacées par deux modes collectifs d'excitations de spin et de charge décorrélés constituant un liquide de Luttinger.

3.3 Le modèle de g -ologie

3.3.1 Présentation [21]

Pour décrire les excitations de basse énergie dans un gaz d'électrons en interaction à dimension 1, et calculer les fonctions de réponse (ou de corrélation), on utilise un modèle dans lequel on distingue la nature des interactions impliquées dans les processus de diffusion des électrons au voisinage de la surface de Fermi. On caractérise chaque processus par une constante de couplage g_n qui correspond à la transformée de Fourier d'un potentiel d'interaction. Ce modèle, dit de g -ologie, est supposé rendre compte de la compétition entre phases à symétrie brisée (supraconductivité, ondes de densité) mais également des fluctuations purement unidimensionnelles. Dans la suite nous n'ébaucherons qu'une description très générale de ce modèle et enjoignons le lecteur à consulter la littérature consacrée à ce sujet. Le modèle de g -ologie est un fondement de la physique théorique unidimensionnelle: il est sous-jacent à la théorie du transport 1D et formalise la notion de séparation spin-charge. Il est donc

important de le mentionner ici.

Au voisinage du niveau de Fermi, en raison du principe d'exclusion de Pauli et de la conservation de l'impulsion, on ne considère essentiellement que trois types de processus de diffusion pour traduire une interaction à deux particules.

- L'un d'eux, caractérisé par le paramètre de couplage g_1 , permute deux électrons de part et d'autre de la surface de Fermi. Chaque électron voit donc un transfert d'impulsion de $2k_F$ mais le transfert total d'impulsion est nul.

- Dans un second processus chaque électron reste sur sa branche et le transfert d'impulsion d'un électron est proche de zéro. On associe à ce processus le paramètre g_2 .

- Dans le troisième processus deux électrons de spins opposés sur une même branche sont transférés sur l'autre branche. Chaque électron subit donc un transfert d'impulsion de $2k_F$ et le transfert total d'impulsion vaut $4k_F$ (processus Umklapp). Pour conserver l'impulsion il faut qu'une telle quantité de mouvement soit cédée par le réseau atomique, donc que $4k_F$ coïncide avec un vecteur du réseau réciproque $Q = 2\pi/a$ (a étant le pas du réseau réel). Le processus g_3 ne sera donc significatif que si la bande est demi-remplie ($k_F = \pi/2a$), et sera gelé dans les autres cas. On verra que l'écart à la commensurabilité du vecteur d'onde de Fermi et du vecteur unitaire du réseau réciproque est déterminant dans les propriétés de transport. On note pour l'instant qu'en raison de l'antisymétrie des spins le processus g_3 *net* n'affecte que les degrés de liberté de charge.

On note qu'un quatrième processus de paramètre g_4 à quatre électrons décrit la permutation de deux électrons sur chacune des deux feuilles de la surface de Fermi. g_4 entre dans la renormalisation de la largeur de bande πv_F .

Les interactions sont supposées être plus petites que la largeur de bande dans la direction des chaînes de sorte qu'il est pleinement justifié de ne considérer que les états à proximité du niveau de Fermi et de linéariser autour de k_F la composante suivant a de la relation de dispersion 1D. L'Hamiltonien de g -ologie en champ nul va contenir un terme cinétique H_0 (sans interactions) et un terme d'interaction H_{int}

qui s'exprime en fonction des paramètres de couplage g_n :

$$H_0 = v_F \sum_{k,s} k (a_{ks}^+ a_{ks} - b_{ks}^+ b_{ks}) \quad (3.25)$$

où v_F est la vitesse de Fermi des électrons sans interactions, et les opérateurs a_{ks}^+ et b_{ks}^+ créent des électrons d'impulsion k et de spin s , sur la branche ($k > 0$) pour a_{ks}^+ , sur la branche ($k < 0$) pour b_{ks}^+ .

$$\begin{aligned} H_{int} = & \frac{1}{2} \sum_{k,k',q} g_1 a_{k,s}^+ b_{k',s'}^+ a_{k'+q,s'} b_{k-q,s} \\ & + g_2 a_{k,s}^+ b_{k',s'}^+ b_{k'+q,s'} a_{k-q,s} \\ & + \frac{1}{2} g_3 (b_{k,s}^+ b_{k',s'}^+ a_{k'+q,s'} a_{k-q,s} + c.c.) \\ & + g_4 (a_{k,s}^+ a_{k',s'}^+ a_{k'+q,s'} a_{k-q,s} + b_{k,s}^+ b_{k',s'}^+ b_{k'+q,s'} b_{k-q,s}) \end{aligned} \quad (3.26)$$

En supposant constants les coefficients g_n on fait l'hypothèse d'une interaction delta dans l'espace réel.

Enfin pour fixer les idées il est intéressant de comparer l'Hamiltonien de g -ologie à l'Hamiltonien de Hubbard H_H [43] qui donne une représentation plus directement physique:

$$H_H = \sum_{i,s} -t (C_{i,s}^+ C_{i+1,s} + c.c.) + \frac{1}{2} U n_{i,s} n_{i,-s} + \frac{1}{2} V n_{i,s} n_{i+1,s} \quad (3.27)$$

où $n_{i,s} = C_{i,s}^+ C_{i,s}$ et la sommation se fait sur tous les sites i du réseau. En approximant $V(q)$ par $V(0)$ ou $V(2k_F)$ l'identification donne [108]:

$$\begin{aligned} g_1 = g_3 &= U + 2V \cos 2k_F a \\ g_2 &= U + 2V \end{aligned} \quad (3.28)$$

Le modèle ainsi décrit est appelé modèle de Tomonaga-Luttinger lorsque $g_3 = 0$ (pas de transfert de charge) et $g_1 = 0$ (pas de transfert de spin, car notamment il n'y a pas de permutation de deux électrons de spins opposés de part et d'autre de la surface de Fermi).

3.3.2 La méthode de bosonisation

On ré-exprime souvent l'Hamiltonien de g -ologie à l'aide d'opérateurs Densité $\rho = \psi^+ \psi$ (quasi-bosons), où $\psi(x) = \sum_k \exp(ikx) a_{ks}$ ou $\sum \exp(ikx) b_{ks}$ (opérateurs fermions) [21]. Ceci revient à considérer les oscillations du gaz d'électrons comme de

bons états propres du système car $\rho(x)$ est en réalité la déviation à la valeur moyenne de la densité. Si ϕ est l'opérateur conjugué à ρ : $[\rho(x), \phi(x')] = i\delta(x - x')$, on montre que ϕ s'exprime comme

$$\phi(x) = 2\pi \int \rho(x) dx. \quad (3.29)$$

Puisque ρ et ϕ sont deux opérateurs conjugués, un théorème de Mécanique Quantique [45] montre que l'opérateur $\exp(i\phi(x))$ est un opérateur de translation qui translate la valeur propre de $\rho(x)$ d'une unité, et qui agit donc comme *un opérateur de création ou d'annihilation de particule au point x*. Il s'en suit que $\exp(i\phi(x))$ simule les opérateurs Fermions ψ , que l'on peut donc ré-écrire ainsi:

$$\psi(x) \propto e^{i\phi(x)}. \quad (3.30)$$

On peut alors obtenir une forme bosonisée de l'Hamiltonien d'interaction, séparable en trois termes: une composante liée aux processus Umklapp g_3 , une composante n'agissant que sur les degrés de liberté de charge, et une composante n'agissant que sur les degrés de liberté de spin [21][11][12][46]. Ceci est rendu possible parce qu'au lieu de manipuler des produits d'opérateurs Fermions, on fait apparaître dans l'Hamiltonien des sommes d'opérateurs Bosons. A la suite de ce traitement séparé des variables de charge et de spin, on montre dans la littérature [11][12][46] que *les états propres du système à dimension 1 n'est plus l'électron ou la quasi-particule de Landau, mais deux modes collectifs indépendants de basse énergie, transportant l'un les degrés de liberté de charge et l'autre ceux de spin*. Ces deux modes ont des vitesses distinctes u_ρ et u_σ qui est une conséquence directe des effets d'interactions, car sans eux les vitesses de propagation des deux modes seraient identiques et égales à la vitesse de Fermi [25]. C'est là une manifestation spectaculaire d'un non-liquide de Fermi dans un système unidimensionnel de particules en interactions. On peut préciser cet aspect [25] en considérant les opérateurs densité de charge ρ et de spin σ , et en ajoutant une particule en x_0 à l'état fondamental $|0\rangle$ du système unidimensionnel:

$$\begin{aligned} \langle 0 | \psi(x_0) \rho(x) \psi^\dagger(x_0) | 0 \rangle &= \delta(x - x_0), \\ \langle 0 | \psi(x_0) \sigma(x) \psi^\dagger(x_0) | 0 \rangle &= \delta(x - x_0). \end{aligned} \quad (3.31)$$

Sachant que $u_\rho \neq u_\sigma$, la dynamique de la particule ajoutée vérifie:

$$\begin{aligned}\langle 0 | \psi(x_0) \rho(x, t) \psi^\dagger(x_0) | 0 \rangle &= \delta(x - x_0 - u_\rho t), \\ \langle 0 | \psi(x_0) \rho(x, t) \psi^\dagger(x_0) | 0 \rangle &= \delta(x - x_0 - u_\sigma t).\end{aligned}\quad (3.32)$$

On voit donc qu'au bout d'un certain temps la charge et le spin de la particule initialement introduite seront localisés dans l'espace à des endroits totalement différents: les corrélations dans un système unidimensionnel induisent formellement une *séparation spin-charge*.

Du point de vue des fonctions de corrélation charge-charge et spin-spin, le terme en $1/x^2$ présent dans le liquide de Fermi est complété par une oscillation à $2k_F$ et des harmoniques plus élevés [25]:

$$\langle \rho(x) \rho(0) \rangle \simeq \frac{K_\rho}{(\pi x)^2} + A \cos(2k_F x) x^{-1-K_\rho} \ln^{-3/2}(x) + B \cos(4k_F x) x^{-4K_\rho} + \dots \quad (3.33)$$

$$\langle \sigma(x) \cdot \sigma(0) \rangle \simeq \frac{1}{(\pi x)^2} + C \cos(2k_F x) x^{-1-K_\sigma} \ln^{1/2}(x) + \dots \quad (3.34)$$

où les exposants K_ρ et K_σ contiennent les paramètres d'interaction g_n et décrivent la décroissance des fonctions de corrélation à longue distance. Notamment [11] [46][25]:

$$K_\rho = \left\{ \frac{1 + \tilde{g}_4 - (\tilde{g}_2 - \tilde{g}_1/2)}{1 + \tilde{g}_4 + (\tilde{g}_2 - \tilde{g}_1/2)} \right\}^{1/2} \quad (3.35)$$

où les paramètres \tilde{g}_i sont normalisés par la largeur de bande: $\tilde{g}_i = g_i/\pi v_F$. Vitesses des modes et coefficients de corrélation sont reliés par la relation [11][25]:

$$u_\rho K_\rho = u_\sigma K_\sigma = v_F \quad (3.36)$$

et le produit $u_\rho K_\rho$ détermine le poids du pic de Drude (dc) dans la conductivité optique. Pour un système sans interactions on a dit que les deux vitesses coïncident en v_F , et (3.36) montre que $K_\rho = K_\sigma = 1$. Lorsque $K_\rho < 1$ les interactions sont répulsives et les fluctuations de densité à $2k_F$ dominant et divergent à basse température, alors que $K_\rho > 1$ favorise l'appariement des particules [11].

Au voisinage du niveau de Fermi, la fonction de distribution d'une particule nue d'impulsion k au sens du paragraphe (1.2) est donnée par [11]:

$$n_k \simeq n_{k_F} - C^{ste} \times \text{signe}(k - k_F) |k - k_F|^\delta \quad (3.37)$$

et la densité d'états pour les quasi-particules au sens de Landau s'exprime comme:

$$N(\omega) \sim |\omega|^\delta \quad (3.38)$$

où $\delta = (K_\rho + 1/K_\rho - 2)/4$. Ceci exprime notamment que pour toute interaction non nulle ($K_\rho \neq 1$), n_k et $N(\omega)$ présentent une singularité en loi de puissance au niveau de Fermi. L'absence de quasi-particules à k_F et un pôle nul de la fonction de Green à une particule ($z_{k_F} = 0$) est en effet la manifestation d'un non-liquide de Fermi.

Un liquide d'électrons unidimensionnel est donc le substrat d'un non-liquide de Fermi. L'existence de modes collectifs à dimension 1 au détriment d'un transport à une particule se conçoit intuitivement si l'on imagine un système de particules confinées sur une droite, dans lequel une impulsion donnée initialement à l'une des particules se transmet aux autres et construit *a priori* un mouvement collectif cohérent. Dès lors que la dimension est supérieure à 1 on peut imaginer que la particule incidente repousse les autres particules de part et d'autre de sa trajectoire, créant ainsi un *retro-courant* propre aux systèmes de dimension 2 ou 3.

3.4 Du continuum au réseau discret

L'impulsion de porteurs de charge à l'intérieur d'un métal parfait est conservée aux cours des diffusions, et la conductivité y est nulle. L'existence d'un réseau cristallographique sous-jacent autorise des transferts d'impulsion avec ces porteurs de charge: il s'agit des processus Umklapp déjà mentionnés, et qui *a priori* sont significatifs dans le cas d'un demi-remplissage (voir précédemment). En l'absence d'impuretés c'est la condition nécessaire à la dissipation du moment, donc à la valeur finie de la conductivité. En réalité à dimension 1 les processus Umklapp peuvent se manifester pour des commensurabilités supérieures au demi-remplissage, dès lors qu'un nombre de particules supérieur à 2 est transféré d'une branche à l'autre dans la relation de dispersion électronique prise au voisinage du niveau de Fermi. La contribution des processus Umklapp à l'Hamiltonien bosonisé s'écrit dans le cas des commensurabilités n paires (demi-remplissage: $n = 1$; quart-remplissage: $n = 2$; ...) [47][48]:

$$H_{\frac{1}{2n}} = g_{\frac{1}{2n}} \int \cos \left(n\sqrt{8}\phi_\rho(x) + \delta x \right) dx \quad (3.39)$$

où ϕ_ρ possède la même signification qu'en (3.29), δ est la déviation effective par rapport à la commensurabilité n , et $g_{\frac{1}{2n}}$ est le paramètre Umklapp d'ordre n . Dans la limite de Hubbard la constante de couplage Umklapp vaut $g_{1/2} \sim U(D/E_F)$ pour un demi-remplissage de la bande (où D est le gap de dimérisation et U l'échelle d'énergie des interactions); dans le cas d'un quart-remplissage, la constante Umklapp vaut $g_{1/4} \sim U(U/E_F)^3$ [34]. Dans le cas d'interactions suffisamment fortes, les processus Umklapp à dimension 1 induisent dans un système commensurable un état isolant dans lequel les charges sont localisées: on passe d'un liquide de Luttinger à un *isolant de Mott*. Pour un système commensurable ($\delta = 0$), la valeur critique du coefficient de corrélation K_ρ est $1/n^2$; elle est de $1/2n^2$ pour un système non strictement commensurable ($\delta \neq 0$) [34]. Dans le cas d'une bande quart-remplie ($n = 2$) la valeur critique de K_ρ est 0.25; des valeurs proches de celle-ci sont trouvées expérimentalement dans les conducteurs organiques quasi-1D (TMTTF)₂PF₆ et (TMTSF)₂PF₆. Bien que dans ces deux composés on compte un trou par molécule TMTTF ou TMTSF, d'où une bande *a priori* quart-remplie ($n = 2$), la dimérisation des anions dans (TMTTF)₂PF₆ ouvre un gap en milieu de bande d'où un remplissage effectif $n = 1$. Ceci devrait conduire à une valeur de K_ρ proche de l'unité, en désaccord avec la valeur plus faible de 0.3 mesurée en RMN [37]. L'application d'une pression hydrostatique comprime la maille notamment dans la direction des chaînes, et réduit ainsi la possibilité de dimérisation: les processus Umklapp pertinents seront donc ceux du quart-remplissage.

La proximité du gap de Mott influe considérablement sur les propriétés de transport que l'on peut au moins qualitativement interpréter en terme de transitions entre deux bandes de Hubbard séparées par le gap de Mott $|\Delta|$ [34]. Giamarchi a montré par des arguments de renormalisation du couplage g_3 et du coefficient de corrélation K_ρ [34] que sur un intervalle de températures où $|\Delta| \ll T$, donc dans la phase Liquide de Luttinger, la résistivité dc dans la direction des chaînes suit une loi de puissance non-universelle (*i.e.* dépendante des interactions) en:

$$\rho_a(T) \propto T^{4n^2 K_\rho - 3}. \quad (3.40)$$

Lorsque $T < |\Delta|$, la résistivité $\rho_a(T)$ est thermiquement activée. A dopage fini ($\delta \neq 0$)

la conductivité optique $\sigma(\omega)$ présente trois structures caractéristiques: un pic de Drude (dc) dont le poids est proportionnel à $\delta/|\Delta|$, une dépendance en ω^3 entre 0 et $2|\Delta|$, suivie d'une décroissance en ω^ν où $\nu = 4n^2K_\rho - 5$ au delà de $2|\Delta|$. Les structures à $\omega < 2|\Delta|$ sont significatives d'un effet de dopage fini; la structure $\sigma(\omega) \sim \omega^3$ est la manifestation de processus de faible énergie, donc de transitions intra-bandes. La contribution à plus haute énergie est indépendante du dopage et correspond à des transitions inter-bandes. C'est un grand avantage de l'optique que de pouvoir se placer à suffisamment basse température et d'explorer en fréquence une gamme d'énergie très élevée par rapport à la valeur du gap de Mott, centrée autour de 200cm^{-1} selon les mesures de Vescoli *et al.* réalisées sur $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ [33][31]. Ces auteurs montrent que la dépendance de $\sigma(\omega)$ pour $\omega > 2|\Delta|$ vérifie une loi de puissance dont l'exposant de valeur -1.3, comparé à $4n^2K_\rho - 5$, fournit un coefficient de corrélation $K_\rho = 0.23$, soit légèrement inférieur au coefficient critique de 0.25.

On peut apporter quelques précisions à la discussion qui précède. Sur une échelle d'énergie E où certains couplages transverses t_\perp deviennent pertinents, $E \sim t_\perp$, le saut cohérent de particules d'une chaîne à une chaîne adjacente agit comme un dopage fini ($\delta \neq 0$), c'est-à-dire un écart à la commensurabilité. Il conviendrait donc *a priori* de considérer le coefficient de corrélation critique à dopage fini en $1/2n^2$ qui correspond à des interactions plus fortes que celles mesurées expérimentalement. En réalité l'image du liquide unidimensionnel commensurable tient toujours pour une raison importante que nous détaillerons plus tard. Nous verrons ainsi que dans $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ la valeur du gap de Mott coïncide avec une température T^* de changement de régime 1D-2D (ou éventuellement $T^* \geq |\Delta|$), de sorte que pour $T > |\Delta|$ le transport transverse est incohérent et les couplages t_\perp correspondent à une échelle d'énergie non pertinente. Lorsque $T < T^*$ la cohérence des couplages transverses favorise le développement d'une composante de liquide de Fermi et le modèle 1D devient caduc. Dans ce cas on tend à retrouver une résistivité quadratique en température, manifestation des processus Umklapp dans un liquide de Fermi à 2D ou 3D. En d'autres termes, le *pseudo*-dopage symbolisé par des couplages transverses finis signifie en pratique que le système n'est plus dans un état d'isolant de Mott, mais

dans un état métallique.

Le cas de $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$ requiert quant à lui une argumentation quelque peu différente. A pression ambiante le gap de Mott est si grand ($|\Delta| \simeq 450\text{K}$) devant les couplages transverses que ceux-ci sont totalement non-pertinents et la résistivité croît continuellement lorsque diminue la température. Lorsque l'on augmente la pression, les couplages transverses s'accroissent et par conséquent la renormalisation des interactions *intra-chaînes* par les fluctuations unidimensionnelles est amoindrie: les interactions intra-chaînes, dont les processus Umklapp, sont moins fortes et l'amplitude du gap de Mott diminue (voir le chapitre d'introduction). La question de la pertinence des couplages transverses dans $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$ sera abordée d'un point de vue expérimental dans la suite.

L'objet de cette courte discussion est d'introduire l'esprit dans lequel nous analyserons les mesures de transport dans les deux familles de conducteurs quasi-1D $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$ et $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$. Nous verrons que la proximité du gap de Mott sur l'échelle d'énergie accessible par le transport est susceptible d'influer sur le transport transverse. Nous nous intéresserons à la pertinence des couplages transverses suivant b et c en fonction de la température et de la pression, et donc également en fonction de la distance au gap de Mott sur l'échelle d'énergie explorée. Nous estimerons alors sur cette échelle d'énergie la température de changement de régime 1D-2D déduite expérimentalement.

On le voit, notre objectif est de comparer trois énergies caractéristiques: la magnitude du gap de Mott, la température de cross-over dimensionnel 1D-2D, et les couplages transverses (nus et renormalisés).

Chapitre 4

Mesures de transport transverse

4.1 Comment mesurer une résistance?

4.1.1 Le transport local

L'une des méthodes les plus immédiates pour caractériser un échantillon est sans doute la mesure de transport. Néanmoins la quantité extraite d'une telle mesure est souvent la réalisation d'une moyenne sur le volume de l'échantillon. Ainsi la présence d'impuretés, de régions inhomogènes ou de cavités affectent de façon drastique la qualité de la mesure [49]. Si l'on dispose à présent d'un échantillon parfaitement homogène et dépourvu de défauts de structure macroscopiques tels que joints de grains ou cavités, on peut s'intéresser à la façon de mesurer les éléments du tenseur de conductivité suivant les deux axes cristallographiques (a, b) . Dans le cas d'un échantillon bidimensionnel anisotrope, une méthode couramment employée est la configuration à 8 contacts qui, par une rotation appropriée des contacts de tension et de l'injection de courant, autorise *a priori* la détermination de la conductivité suivant les deux axes du système. Une telle configuration est représentée dans l'insert de la Figure 4.1. En raison de l'anisotropie σ_a/σ_b les lignes parallèles à la direction a ne sont pas des équipotentielles, ce qui implique que la quantité mesurée expérimentalement V_b/I_b , obtenue en imposant un courant dans la direction b et en mesurant la tension qui se développe suivant cette même direction, n'est pas en réalité la résistance R_b suivant l'axe b mais un mélange des deux résistances pures suivant les directions a

et b , $R_b [1 + f(\sigma_a/\sigma_b)]$.

Selon l'anisotropie σ_a/σ_b la correction $f(\sigma_a/\sigma_b)$ est plus ou moins significative. Il est possible d'avoir accès à cette correction par un choix convenable de la géométrie des contacts. Cette méthode, appelée "transformateur de flux", a été largement mise en oeuvre pour mesurer la résistivité de la phase métallique et de l'état mixte des cuprates [50][51]: comme l'explique l'insert de la Figure 4.1, on injecte un courant sur une face de l'échantillon et on mesure les différences de potentiel générées entre deux contacts de tension sur cette face (V_{sup}) et la face opposée (V_{inf}). Le rapport V_{sup}/V_{inf} de ces tensions permet de remonter à l'anisotropie dès lors que la distribution $V(x, y)$ dans l'échantillon est connue comme solution de l'équation de Laplace pour le potentiel V . On songe immédiatement à appliquer cette méthode dans le cas de $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ pour déterminer rigoureusement les éléments du tenseur de résistivité ρ_a , ρ_b et ρ_c . Malheureusement l'expérience prouve que les rapports d'anisotropie ρ_b/ρ_a et ρ_c/ρ_a des conducteurs organiques quasi-1D sont bien plus forts que ceux des cuprates [52] et l'algorithme de transformateur de flux est immédiatement saturé. Nous développons dans ce qui suit une méthode rigoureusement analogue au transformateur de flux mais basée sur une géométrie appropriée qui évite la saturation de l'algorithme et permet d'accéder proprement aux éléments du tenseur. L'idée est d'imposer une distribution de courant hautement non-uniforme dans l'échantillon et de sonder localement la distribution de potentiel résultante qui est vue comme un effet de l'anisotropie.

A ce niveau il faut noter que si l'on s'intéresse uniquement au tenseur de conductivité on peut bien-entendu utiliser la méthode de Montgomery [92] qui est sans doute la plus appropriée dans le cas d'un solide anisotrope. L'intérêt de la méthode que nous allons exposer est surtout d'accéder directement aux rapports d'anisotropie.

4.1.2 Formalisme

On considère un échantillon de géométrie bidimensionnelle, généré par une maille orthogonale d'axes α (indexé par la variable x) et β (indexé par la variable y). On se restreint au cas du régime ohmique où le tenseur de résistivité est diagonal, ou à la

limite $\rho_{\alpha\beta} \ll \rho_{\alpha}, \rho_{\beta}$. En particulier ce qui suit n'est pas valide dans un régime d'effet Hall quantique.

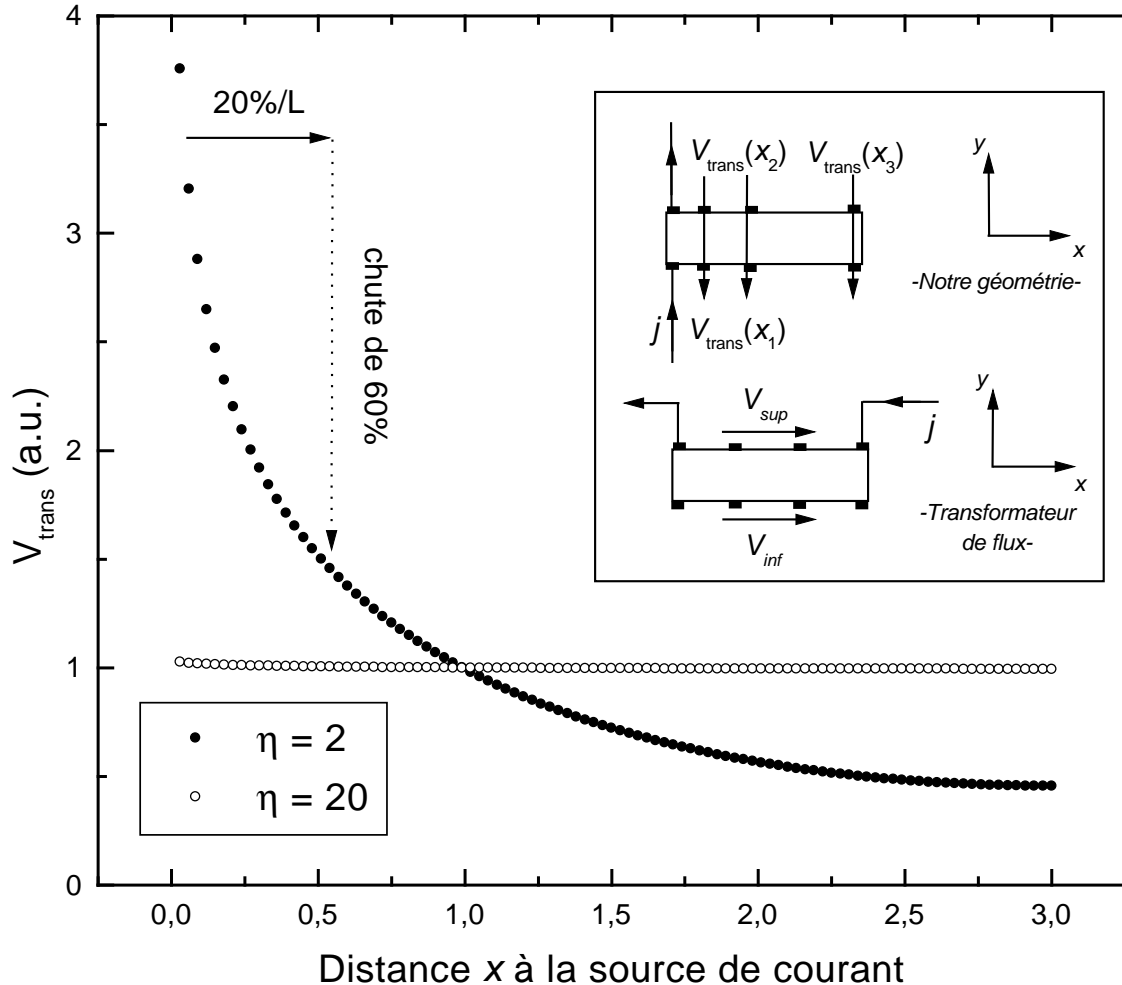


Figure 4.1: Le transformateur de flux modifié. La figure principale illustre la variation de la tension suivant β en fonction de la distance à la source de courant ($x = 0$), pour deux valeurs de la racine du rapport d'anisotropie $\rho_{\beta}/\rho_{\alpha}$. Dans le cas d'une forte anisotropie les lignes $\beta = Cste$ sont des équipotentiels. Dans le cas d'une anisotropie plus modérée la tension suivant β diminue rapidement lorsque l'on s'éloigne de la source de courant. L'insert présente la configuration du transformateur de flux standard et transformé.

L'idée est d'injecter un courant suivant la direction β à une extrémité $x = 0$ de l'échantillon et d'observer l'effet de l'anisotropie en mesurant la différence de potentiel

suivant la même direction β à différentes distances x de la source de courant (voir l'insert de la Figure 4.1). La distribution du potentiel $V(x, y)$ dans l'échantillon est complètement déterminée par la géométrie de l'injection de courant et l'équation de continuité pour le vecteur densité de courant $\text{div}\mathbf{j}(x, y) = 0$ qui conduit à l'équation de Laplace:

$$\frac{1}{\rho_\alpha} \frac{\partial^2 V}{\partial x^2} + \frac{1}{\rho_\beta} \frac{\partial^2 V}{\partial y^2} = 0. \quad (4.1)$$

L'équation (4.1) se résoud en considérant les conditions aux limites

$$j_\alpha(x = 0) = j_\alpha(x = L) = 0 \quad (4.2)$$

et l'injection ponctuelle de courant

$$j_\beta(x, y = \pm \frac{w}{2}) = -j\delta(x). \quad (4.3)$$

où L et w désignent respectivement les dimensions suivant α et β de l'échantillon. L'injection de courant étant uniforme dans la troisième direction de l'échantillon (typiquement, l'épaisseur), j est par définition la densité de courant par unité de longueur de la troisième direction, et toutes les équations qui suivent sont bien homogènes.

La géométrie du système est telle que:

$$\begin{aligned} j_\alpha(x, -y) &= -j_\alpha(x, y) \\ j_\beta(x, -y) &= j_\beta(x, y) \end{aligned} \quad (4.4)$$

ce qui, avec les conditions (4.2) et (4.3) conduit à une expression du potentiel V :

$$V(x, y) = K + \sum_{n \geq 1} V_n \sinh\left(\xi \frac{\pi n y}{L}\right) \cos\left(\frac{\pi n x}{L}\right) \quad (4.5)$$

Le facteur en sinus hyperbolique traduit la diffusion du courant suivant la direction β et fait intervenir une longueur de pénétration typique $\lambda = L/\pi\xi$ que l'on détermine en injectant (4.5) dans (4.1). Il vient:

$$\xi = \sqrt{\frac{\rho_\beta}{\rho_\alpha}} \quad \text{et} \quad \lambda = \frac{L}{\pi} \sqrt{\frac{\rho_\alpha}{\rho_\beta}}. \quad (4.6)$$

Bien entendu, plus l'anisotropie suivant α est forte, plus la longueur de pénétration typique suivant β est faible. D'autre part la quantité K additionnelle ne peut par symétrie qu'être une fonction de la variable y seule, vérifiant les conditions suivantes:

$$\begin{aligned} K(-y) &= -K(y) \\ \frac{\partial K}{\partial y}(-y) &= \frac{\partial K}{\partial y}(y) \\ \frac{\partial^2 K}{\partial y^2}(y) &= 0. \end{aligned} \quad (4.7)$$

Autrement dit la fonction K est linéaire en y :

$$K(y) = \kappa y \quad (4.8)$$

On extrait facilement les coefficients V_n :

$$\begin{aligned} \int_0^L j_\beta \left(x, y = +\frac{w}{2} \right) \cos \left(\frac{\pi n' x}{L} \right) dx &= -\frac{1}{\rho_\beta} \sum_{n \geq 1} V_n \xi \frac{\pi n}{L} \cosh \left(\xi \frac{\pi n w}{2L} \right) \frac{L}{2} \delta(n - n') \\ &= -\frac{1}{\rho_\beta} \xi \frac{\pi n'}{2} V_{n'} \cosh \left(\xi \frac{\pi n w}{2L} \right). \end{aligned} \quad (4.9)$$

D'où:

$$V_n = \frac{2j\rho_\beta}{\xi\pi n \cosh \left(\xi \frac{\pi n w}{2L} \right)}. \quad (4.10)$$

La tension $V_\beta(x)$ mesurée suivant β vaut donc

$$\begin{aligned} V_\beta(x) &= V \left(x, y = \frac{w}{2} \right) - V \left(x, y = -\frac{w}{2} \right) \\ &= \kappa w + 2 \sum_{n \geq 1} V_n \cos \left(\frac{\pi n x}{L} \right) \sinh \left(\xi \frac{\pi n w}{2L} \right) \end{aligned} \quad (4.11)$$

i.e.

$$V_\beta(x) = \kappa w + \frac{4j}{\pi} \sqrt{\rho_\alpha \rho_\beta} \sum_{n \geq 1} \frac{1}{n} \cos \left(\frac{\pi n x}{L} \right) \tanh \left(\xi \frac{\pi n w}{2L} \right). \quad (4.12)$$

Le problème qui survient alors est que la différence de potentiel $V_\beta(x)$ est donnée par une série infinie qui converge très lentement et ne peut en aucun cas être approximée par troncature, quelle que soit l'anisotropie ξ . Un problème similaire est également rencontré dans l'algorithme du transformateur de flux, que Levin [51]

a résolu en séparant les termes d'une série du type (4.12) en une série *rapidement convergente*, que l'on peut approximer par la somme des quelques premiers termes, et une série lentement convergente mais que l'on peut *calculer exactement*. En appliquant la même méthode dans notre géométrie il vient:

$$V_\beta(x) = \kappa w + \frac{4j}{\pi} \sqrt{\rho_\alpha \rho_\beta} \left\{ \sum_{n \geq 1} \frac{1}{n} \cos\left(\frac{\pi n x}{L}\right) + \sum_{n \geq 1} \frac{1}{n} \cos\left(\frac{\pi n x}{L}\right) \left[\tanh\left(\xi \frac{\pi n w}{2L}\right) - 1 \right] \right\}.$$

La série de droite converge rapidement et il suffit de retenir les premiers termes pour en obtenir une bonne approximation. La série de gauche se calcule exactement:

$$\sum_{k=1}^{\infty} \frac{\cos kx}{k} = \frac{1}{2} \ln \frac{1}{2(1 - \cos x)} = -\ln\left(2 \sin \frac{x}{2}\right) \quad \text{pour } 0 < x < 2\pi. \quad (4.13)$$

La différence de potentiel suivant β vaut donc:

$$V_\beta(x) = \kappa w - \frac{4j}{\pi} \sqrt{\rho_\alpha \rho_\beta} \left\{ \ln \left[2 \sin \left(\frac{\pi x}{2L} \right) \right] + \sum_{n=1}^3 \frac{1}{n} \cos \left(\frac{\pi n x}{L} \right) \left[1 - \tanh \left(\xi \frac{\pi n w}{2L} \right) \right] \right\}$$

On voit que, à x fixé, $V_\beta(x, \xi)$ converge très lentement vers sa valeur limite κw pour de grandes valeurs de l'anisotropie ξ :

$$V_\beta(x, \xi) - \kappa w \sim \frac{L}{\pi w \xi} = \frac{L}{\pi w} \sqrt{\frac{\rho_\alpha}{\rho_\beta}} \quad (4.14)$$

Ceci correspond donc au développement d'équipotentiels parallèles à la direction α , ce qui implique que la valeur limite κw vaut $j\rho_\beta w/L$ et finalement:

$$V_\beta(x, \xi) = \frac{j\rho_\beta w}{L} \left\{ 1 - \frac{4L}{\pi w \xi} \ln \left[2 \sin \left(\frac{\pi x}{2L} \right) \right] - \frac{4L}{\pi w \xi} \sum_{n=1}^3 \frac{1}{n} \cos \left(\frac{\pi n x}{L} \right) \left[1 - \tanh \left(\xi \frac{\pi n w}{2L} \right) \right] \right\} \quad (4.15)$$

On en conclut que la correction dans $V_\beta(x)$ liée aux effets d'anisotropie n'est négligeable que lorsque $\rho_\alpha \ll \rho_\beta$, typiquement $\rho_\beta \geq 10^4 \rho_\alpha$. Dans le cas contraire, la différence de potentiel suivant β diminue très rapidement lorsque l'on s'éloigne de la source de courant. La Figure 4.1 donne l'allure de la variation de V_β en fonction de x (distance à la source de courant) pour deux valeurs de l'anisotropie, $\xi\pi w/L = 2$ et $\xi\pi w/L = 20$. On voit que dans le cas d'une anisotropie modérée ($\xi\pi w/L = 2$), il suffit de s'éloigner de la source de courant d'une distance correspondant à 20% de

la longueur totale de l'échantillon, pour perdre jusqu'à 60% du signal. Ceci est bien vérifié expérimentalement et suggère immédiatement une configuration de contact spécifique: injection à une extrémité de l'échantillon suivant la direction de plus faible conductivité, contacts de petite taille (typiquement 50 μm , car il est difficile de faire des contacts plus petits à la main) et de préférables situés dans la première moitié de la longueur de l'échantillon (côté source de courant) afin de pouvoir collecter un signal mesurable. L'expérience montre que l'on obtient des résultats satisfaisants avec deux paires de contacts de tensions éloignés de moins de 500 μm de la source de courant. Une troisième paire plus éloignée fournit rarement une information exploitable à basse température car elle ne voit qu'une faible densité de courant.

En définitive on extrait numériquement l'anisotropie ξ en cherchant le zéro de la fonction g définie par

$$g(x_1, x_2, \xi) = \frac{V_\beta(x_2, \xi)}{V_\beta(x_1, \xi)} - \frac{V_\beta^{exp}(x_2)}{V_\beta^{exp}(x_1)} \quad (4.16)$$

où $V_\beta^{exp}(x)$ est la tension suivant β mesurée expérimentalement à la distance x de la source de courant ($x_1 < x_2$).

On voit que cette méthode permet de déterminer directement l'anisotropie ξ sans mesurer de résistances individuelles. Connaissant ξ on en tire ρ_β grâce à l'expression (4.15), puis $\rho_\alpha = \rho_\beta/\xi^2$.

On peut illustrer cette technique par l'exemple suivant: considérant $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ sous 8kbar; c'est-à-dire lorsque la phase métallique est stabilisée jusqu'à basse température, on se place à la température de l'Hélium 4 liquide (4.2K) et on applique progressivement un champ magnétique H jusqu'à 12T dans la direction perpendiculaire aux plans (ab) . A 4.2K, le champ seuil des phases SDW induites par le champ est de 15T, de sorte que l'on se trouve très loin de l'effet Hall quantique et le tenseur de résistivité est raisonnablement diagonal. La méthode du transformateur de flux modifié donne la variation de l'anisotropie σ_a/σ_b en fonction de H représentée dans la Figure 4.2. On voit que σ_a/σ_b commence par augmenter quasi-linéairement avec H : c'est une manifestation de l'*unidimensionnalisation induite par le champ*.

Quelque chose de très surprenant survient à 4T : le rapport d'anisotropie σ_a/σ_b sature, et reste constant jusqu'à 12T. Bien-entendu ce changement de régime n'est pas attribuable aux Phases SDW induites sous champ. La saturation de $\sigma_a/\sigma_b(H)$ au-delà de 4T sous 9kbar rappelle la saturation de $\rho_{xx}(H_b)$ lorsque la composante du champ suivant la direction b augmente [150]. A 4K le champ H_b qui conduit à la saturation de la magnétorésistance est de 2T environ. Le système cristallin triclinique de $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ et une orientation approximative de l'échantillon sont systématiquement responsables d'une composante H_b finie. On peut donc penser que les saturations de $\sigma_a/\sigma_b(H)$ et $\rho_{xx}(H_b)$ ont la même origine physique, et qu'il doit vraisemblablement exister également une saturation de $\rho_{yy}(H_b)$. En présence d'un champ magnétique suivant b , la force de Lorentz oriente la trajectoire des électrons dans la direction k_z suivant l'équation du mouvement $dk_z/dt = ev_F H_b/\hbar s$, où s est la vitesse de la lumière. Les électrons balayent les zones de Brillouin avec une fréquence $\Omega_c = c(dk_z/dt) = ev_F H_b c/s$. Dans l'espace réel les électrons se déplacent à la vitesse de Fermi dans la direction des chaînes et oscillent sinusoïdalement dans la direction c avec une excursion d'amplitude $(4t_c/\hbar\Omega_c)c$. Autrement dit la fonction d'onde est étendue suivant a et localisée suivant c . On voit donc classiquement que lorsque $\hbar\Omega_c > t_c$ les électrons sont effectivement confinés dans les plans (ab) qui sont alors découplés. Strong et Clarke [151] ont montré que ce découplage de plans peut aussi se produire pour $\hbar\Omega_c \ll t_c$ en raison des corrélations fortes intra-plans. Dans ce cas le transport suivant c est incohérent.

4.2 Transport transverse suivant la direction b

4.2.1 Résultats expérimentaux

La méthode du transport local est particulièrement appropriée si l'on s'intéresse par exemple à la dépendance en température des éléments du tenseur de résistivité bidimensionnel dans les plans (ab) de $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$; il suffit d'appliquer ce qui précède avec $\alpha = a$ et $\beta = b$. En pratique la mesure des trois tensions transverses $V_\beta(x_1)$, $V_\beta(x_2)$, $V_\beta(x_3)$ permet d'accéder aux éléments du tenseur de résistivité bi-

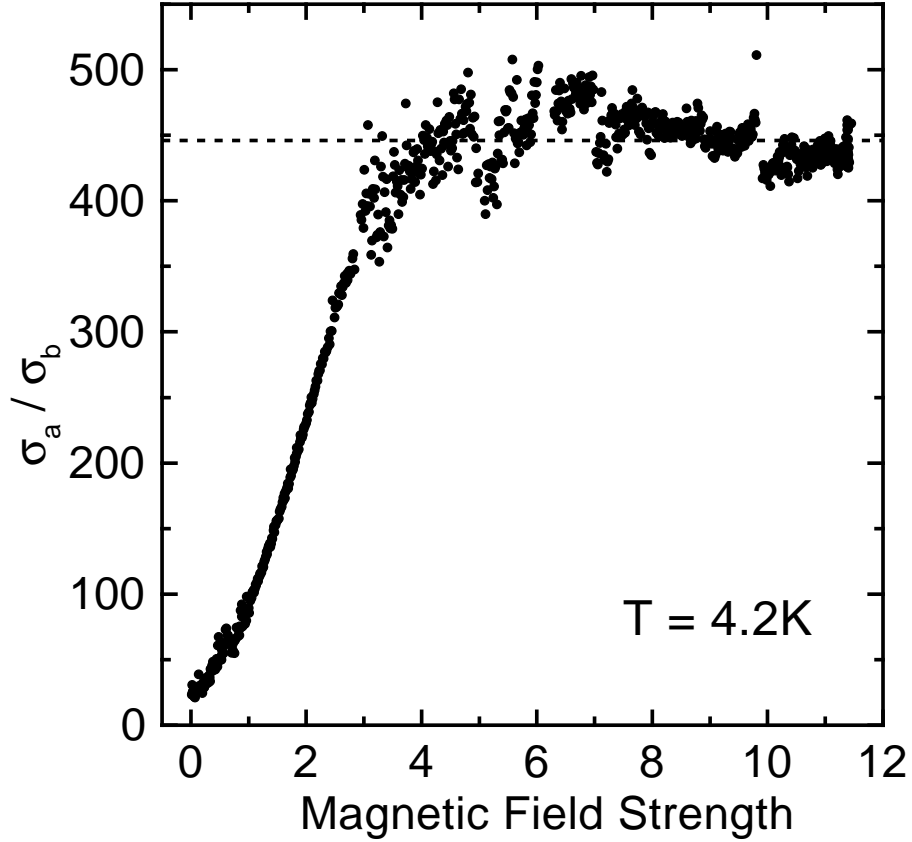


Figure 4.2: Variation sous champ du rapport d'anisotropie à la température de l'Hélium liquide dans la phase métallique de $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ sous 8kbar. Noter la saturation au-delà de $4T$.

dimensionnel par l'intermédiaire des trois rapports $V_\beta(x_3)/V_\beta(x_2)$, $V_\beta(x_3)/V_\beta(x_1)$, $V_\beta(x_2)/V_\beta(x_1)$, avec $x_1 < x_2 < x_3$. Avant de lancer la mesure on s'assure que ces trois rapports conduisent à trois valeurs identiques de ρ_b/ρ_a d'une part, et de ρ_b d'autre part. Ceci peut ne plus être vrai dès lors que se produisent des micro-cassures dans l'échantillon au cours du refroidissement: c'est la principale difficulté de cette méthode.

La mesure a été effectuée à pression ambiante et sous 9 kbar. Les résultats sont très surprenants. A pression ambiante on constate que la résistivité $\rho_b(T)$ varie linéairement de la température ambiante jusqu'aux premières fluctuations antiferromagnétiques à 17K (voir fig. 4.3), tandis que $\rho_a(T)$ obtenu simultanément est clairement quadratique en température au moins à partir de 140K. Un tel comportement de

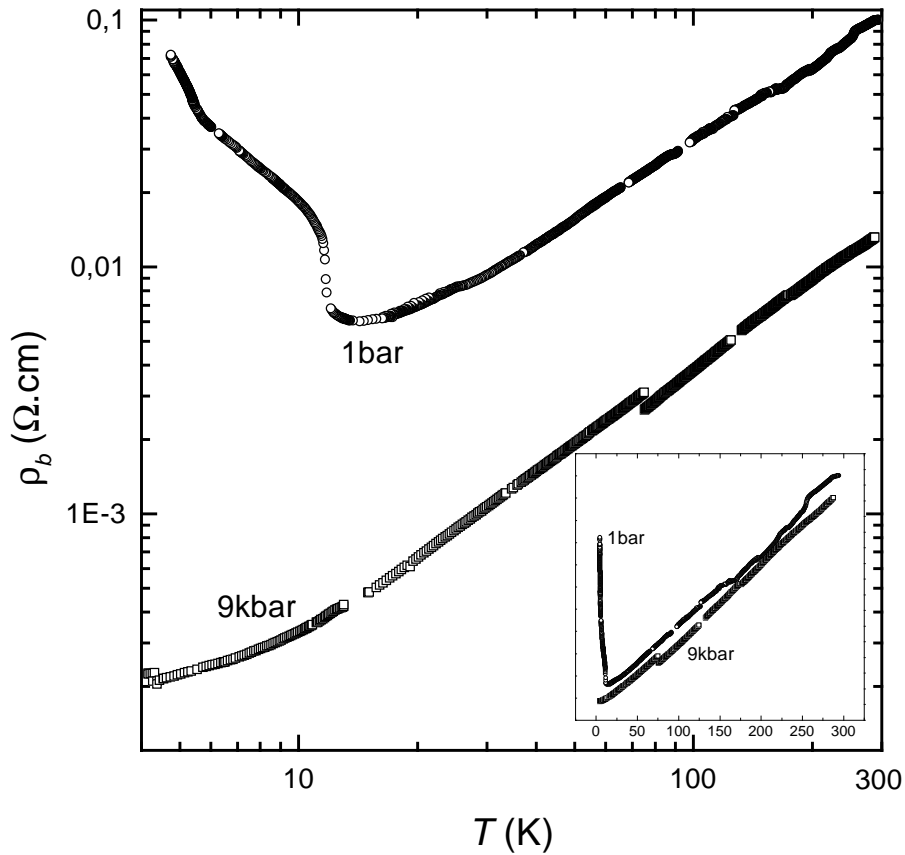


Figure 4.3: *Dépendance en température de la résistivité suivant l'axe b dans $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ sous 1bar et 9kbar. Noter la linéarité sur une large gamme de température. L'insert donne l'allure de $\rho_b(T)$ en échelle linéaire sans précaution sur les valeurs absolues.*

$\rho_b(T)$ dans le même composé a été simultanément observé à pression ambiante par B. Hamzić à Zagreb [54] par la méthode de Montgomery. Même si toutes ces mesures devraient être corrigées pour tenir compte de la contraction thermique, les comportements de ρ_a et ρ_b sont certainement corrects au moins en dessous de 100K et ne laissent aucun doute sur les dépendances en température de la résistivité *qui diffèrent suivant la direction cristallographique*. La linéarité de ρ_b sur une large plage de température est également observée sous 9 kbar et on ne distingue réellement une courbure positive proche de T^2 qu'en-dessous de 10K environ (voir fig. 4.3 et 4.4).

Le comportement du rapport d'anisotropie ρ_b/ρ_a est lui aussi très révélateur. A

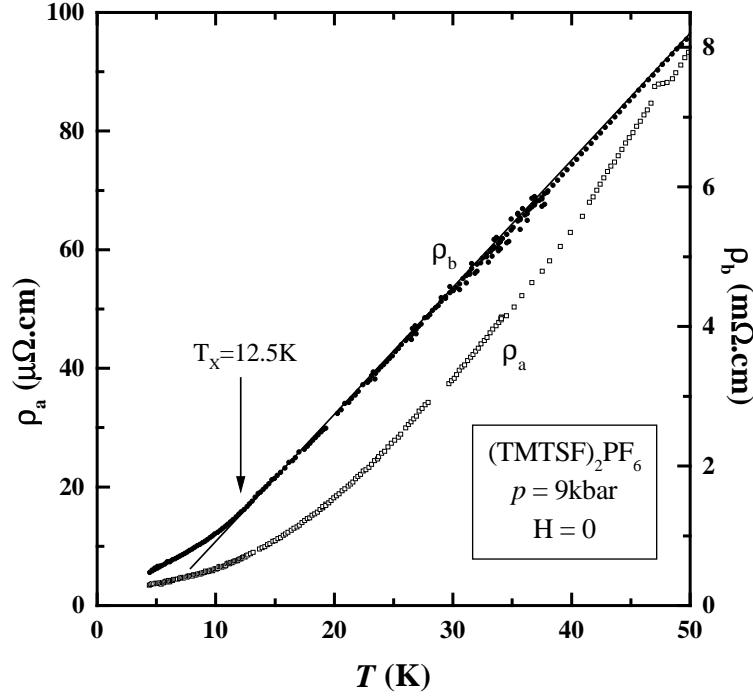


Figure 4.4: Sous 9kbar, comparaison entre $\rho_b(T)$ et $\rho_a(T)$. La linéarité de la résistivité suivant b contraste avec la dépendance quadratique en température de la résistivité suivant a .

température et pression ambiante on trouve généralement suivant les échantillons un éventail de valeurs comprises entre 25 et 100 (voir fig. 4.5). Sous pression ce rapport diminue de 60% entre 1 bar et 4 kbars, puis de 30-40% entre 5 et 9 kbars (insert de la fig. 4.6). Le fait qu'il existe une dépendance en pression de l'anisotropie des plans (ab) peut naïvement impliquer une variation en pression différente des intégrales de transfert t_a et t_b suivant a et b , puisque dans un modèle de bande:

$$\frac{\rho_a}{\rho_b} = \left(\frac{b t_b}{a t_a} \right)^2 \frac{1}{2 \sin^2 k_F a}. \quad (4.17)$$

On note cependant que la diminution du rapport σ_a/σ_b sous pression est trop forte pour être attribuée à la dépendance en pression des paramètres structuraux a et b ou de leur rapport a/b . Il en est de même des intégrales de transfert t_a , t_b ou t_a/t_b qui varient de moindre façon. Dans les archétypes des conducteurs 1D que sont TTF-TCNQ et TSeF-TCNQ le rapport σ_a/σ_b a été trouvé indépendant de la pression jusqu'à 9kbar [152]. Dans (TMTTF)₂Br, σ_a/σ_b varie de 60% entre 0 et 10kbar [154].

La variation de $\rho_b/\rho_a(T)$ est surprenante car on trouve que le rapport d'anisotropie

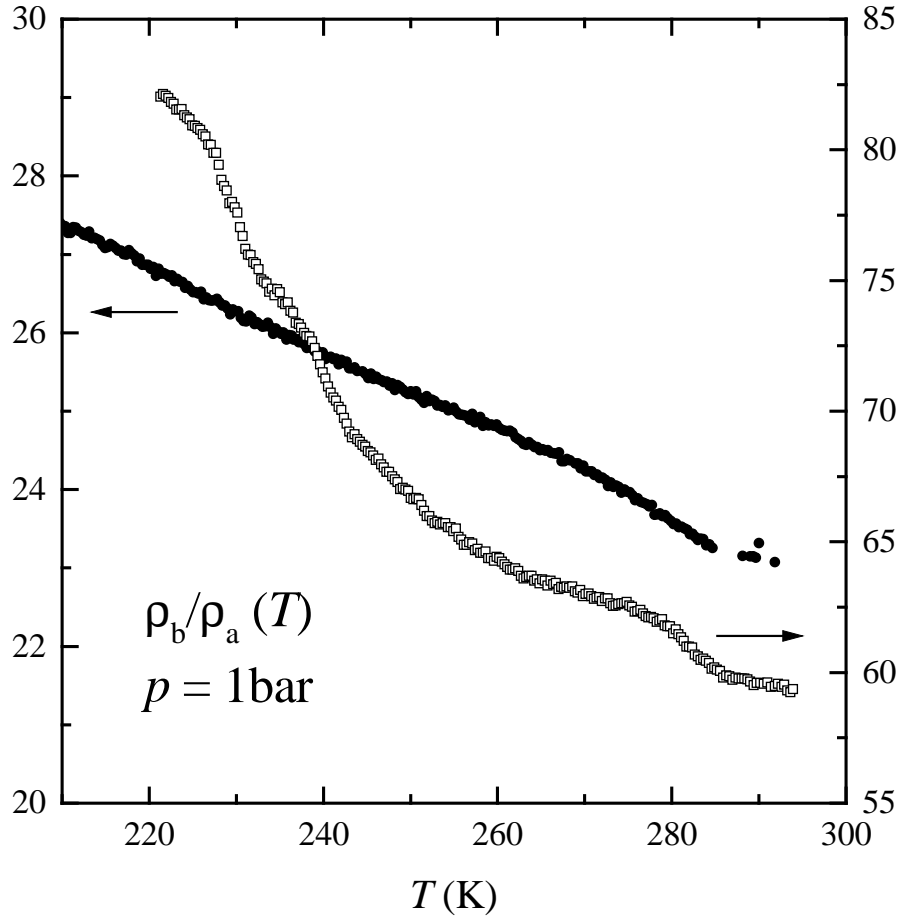


Figure 4.5: Rapport d'anisotropie $\rho_b/\rho_a(T)$ à pression ambiante. Ce rapport est facilement mesurable entre 200 et 300K et montre une claire dépendance en température. A plus basse température des micro-cassures altèrent souvent la qualité de la mesure.

est une fonction décroissante de la température (voir fig. 4.5 et 4.7). Ceci signifie simplement que la résistivité suivant a décroît plus vite que la résistivité suivant b , bien que le système tende à être bidimensionnel à l'approche de l'état fondamental à symétrie brisée. $\sigma_a/\sigma_b(T)$ a été mesuré dans $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ à pression ambiante en hyperfréquence (35 GHz) [153]. Les auteurs mesurent un rapport σ_a/σ_b de 100 à 300K, atteignant plus de 1500 à 20K. Ceci confirme quantitativement nos résultats actuels. Une nouvelle fois, la dépendance en température de a/b ou t_a/t_b ne peut rendre compte de la forte variation de $\sigma_a/\sigma_b(T)$, et on est tenté de proposer que la

forte dépendance en température et pression du rapport d'anisotropie dans les plans (ab) n'est pas compatible avec un modèle de bande. Sous 9 kbar la situation est encore plus frappante puisque les tensions transverses mesurées à diverses distances de la source de courant tendent à se rejoindre, et l'algorithme est saturé dès 50K (fig. 4.6). Ceci implique que pour $T < 50\text{K}$ la correction de la résistivité liée à l'anisotropie est négligeable et dans ce cas la résistance R_b vaut simplement V_b/I_b .

On remarque enfin qu'à pression ambiante $\rho_b/\rho_a(T)$ cesse de varier en $1/T$ pour $T \leq 17\text{K}$, et qu'un changement de régime est clairement observé à 5.5K sous la forme d'un maximum local qui coïncide avec la sous-phase Onde de Densité de Spin découverte par Takahashi en RMN (fig. 4.7).

4.2.2 Discussion

La variation linéaire en température de ρ_b quand ρ_a varie en T^2 indique clairement l'absence d'un liquide de Fermi bidimensionnel dans lequel l'inverse du temps moyen de diffusion a une dépendance en température isotrope [55]. Ceci montre bien que la seule variation quadratique de $\rho_a(T)$ *ne suffit pas* à prouver l'existence d'un liquide de fermions conventionnel, tout au moins jusqu'à 9kbar. Ceci est confirmé par des mesures de $\rho_b(T)$ en hyperfréquence par Fertey [156], qui montrent l'absence de cohérence suivant b en-dessous de 40K au-moins.

Comme on l'a déjà signalé, la dépendance en température de $\rho_b(T)$ est certainement correcte pour $T < 100\text{K}$; à plus haute température il faut tenir compte des effets de contraction (ou dilatation) thermique du réseau cristallographique qui faussent la mesure de $\rho(T)$ [56][96]. Une conversion des quantités physiques de pression constante à volume constant est donc nécessaire. En l'absence d'une série de mesures exhaustives de $\rho_b(T)$ à un très grand nombre de pressions différentes, il est difficile d'estimer l'allure du profil $\rho_b(T)$ corrigé à volume constant à 1bar. La correction n'étant pas significative à $T < 100\text{K}$ on peut néanmoins affirmer que la dépendance linéaire en température cesse d'être valable au-delà de 100K, et que $\rho_b(T)$ varie très peu au-delà de 100K.

Le fait que $\rho_b(T)$ varie en T^2 à basse température à partir de 10K suggère que le

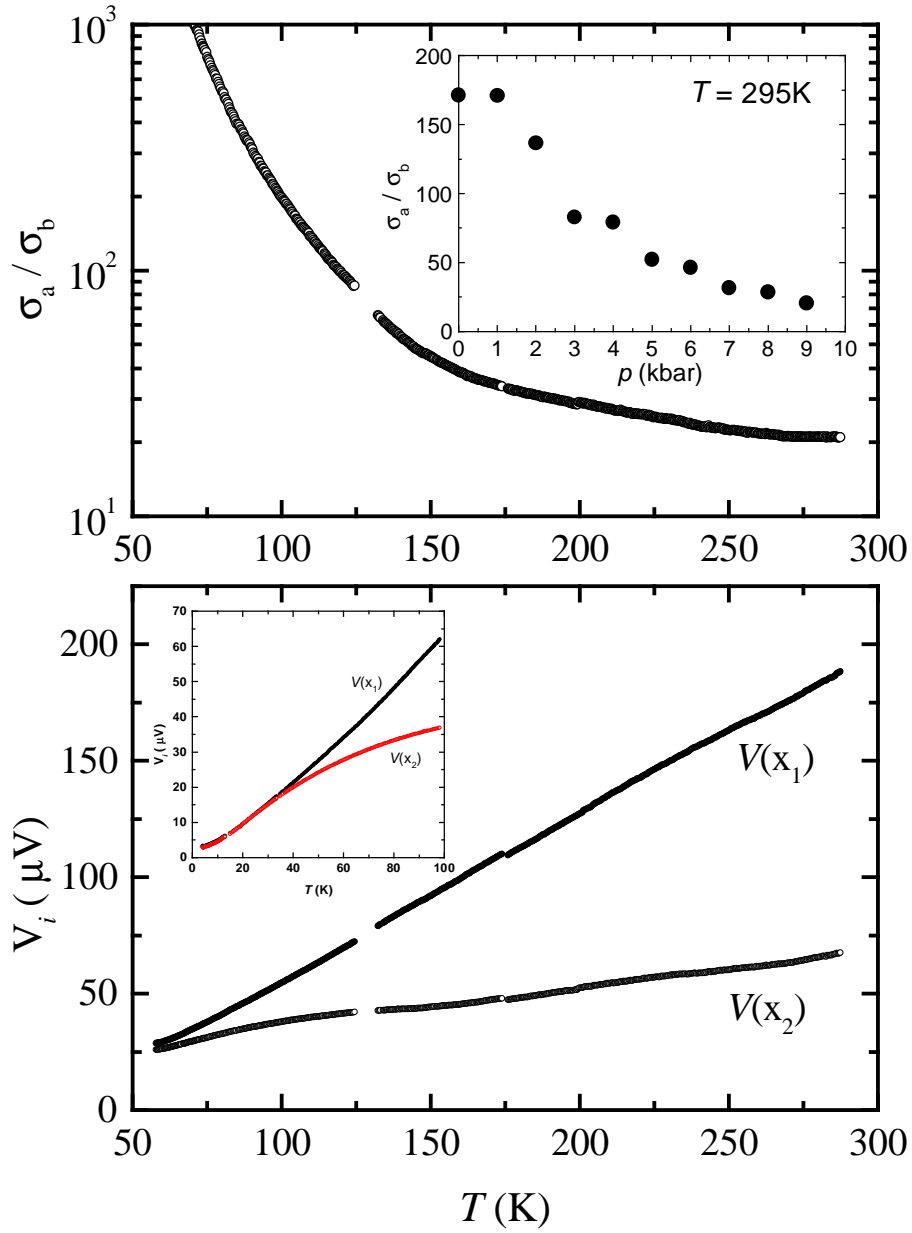


Figure 4.6: Anisotropie $\rho_b/\rho_a(T)$ sous 9kbar. La figure du haut montre la dépendance en température du rapport d'anisotropie dans les plans (ab), et l'insert donne la variation en pression de ce rapport à 300K. La figure inférieure donne la variation correspondante des tensions suivant b à différentes distances de la source de courant ($x_2 > x_1$).

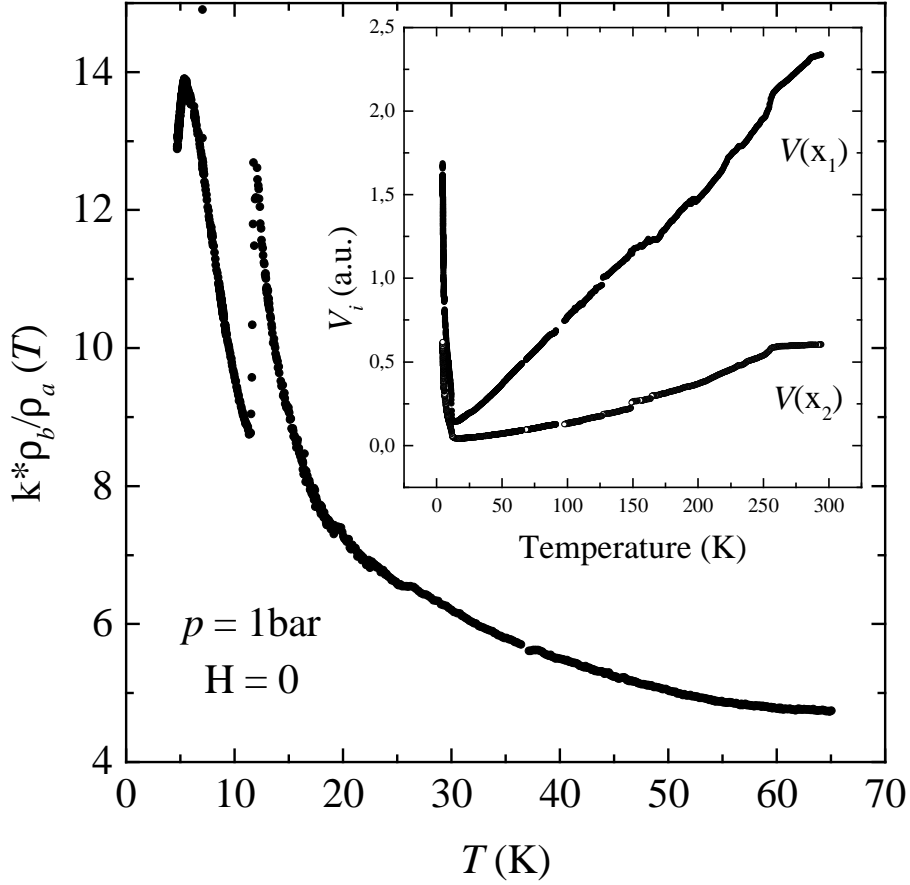


Figure 4.7: Anisotropie $\rho_b/\rho_a(T)$ sous 1bar. La figure principale donne l'allure de $\rho_b/\rho_a(T)$ entre 4 et 70K (le coefficient k est un facteur de proportionnalité). On distingue l'anomalie associée à la transition antiferromagnétique ainsi qu'une autre anomalie à plus basse température. A pression ambiante et sous 9kbar l'anisotropie augmente en refroidissant. L'insert montre la variation correspondante des tensions suivant b à différentes distances de la source de courant ($x_2 > x_1$).

liquide de Fermi bi- ou tridimensionnel est pleinement retrouvé. La valeur de température de 10K est elle-même réminiscente du couplage suivant c , estimé à $t_c \simeq 8$ K [59]. Une telle manifestation d'un transport 3D cohérent à cette température est observée dans les mesures $\rho_a(T)$ et $\rho_b(T)$ sous un champ magnétique pointant dans une direction quelconque hors des plans (ab). Une forte magnétorésistance apparaît vers 50K, quelle que soit la valeur du champ et de la pression (le développement d'une magnétorésistance est observé expérimentalement à 50K dans $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$

à pression ambiante et sous 8 et 9kbar). Le profil de $\rho_{a,b}(T)$ présente alors un minimum à une température $T_{min}(H)$ linéaire en champ au premier ordre et variant approximativement comme la fréquence cyclotron (fig. 4.8 et 4.9); ce minimum a été interprété comme une localisation de charge induite par le champ [60], signe d'une restauration magnétique de l'unidimensionnalité et par suite des processus Umklapp. Lorsque $T < T_{min}(H)$ la dérivée $d\rho_{a,b}/dT$ est négative et $\rho_{a,b}(T)$ présente un maximum local vers $T_{max} = 8K$. A plus basse température le comportement de $\rho_{a,b}(T)$ dépend crucialement de l'orientation du champ [61], c'est à dire de la composante du champ dans les plans (ab) : tout se passe comme si le transport dans la direction perpendiculaire aux plans devenait cohérent à T_{max} et qu'une composante $H_{a,b}$ non nulle découplait les plans (ab) et rendait le transport inter-plans diffusif [100]. La température T_{max} se trouve être indépendante du champ et correspond effectivement au couplage suivant c , supportant l'idée d'un liquide tridimensionnel à $T < t_c$.

4.3 Transport transverse suivant la direction c

4.3.1 Considérations préliminaires

4.3.1.1 Le point de vue des supraconducteurs HT_c

Un travail considérable a été consacré à l'étude de la résistivité planaire ρ_{ab} et perpendiculaire aux plans ρ_c des supraconducteurs à haute température critique. Si l'on fait abstraction de la phase supraconductrice, il a été observé dans le supraconducteur prototypique YBaCuO que $\rho_c(T)$ présente une dérivée négative alors que $\rho_a(T)$ est constamment linéaire [62]. Ioffe, Larkin, Varlamov et Yu ont interprété le comportement semiconducteur de la résistivité transverse en terme de courant tunnel entre les plans [63]. Un fait remarquable est que la règle de Mott-Ioffe-Regel ($l_\alpha \geq \alpha$, où α est la distance inter-plans dans la direction $\hat{\alpha}$ et l_α le libre parcours moyen des électrons suivant $\hat{\alpha}$) que l'on invoque d'habitude pour caractériser le passage d'un régime diffusif à un régime cohérent [64], se trouve être mise en défaut par l'expérience et ne rend pas compte du caractère métallique ou diffusif du transport transverse. On peut pour illustrer ce point considérer le composé Bi 2212 dans le-

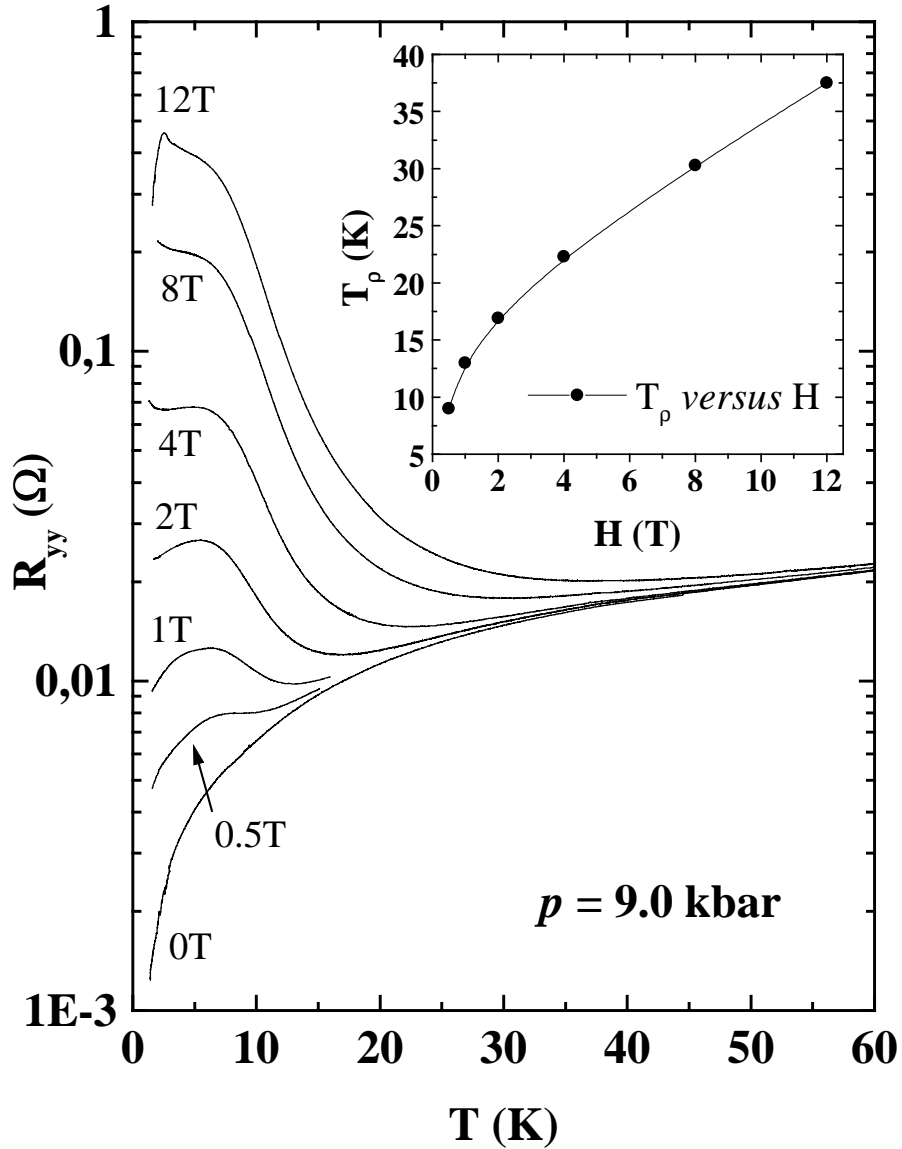


Figure 4.8: Sous 9kbar , dépendance en température de $\rho_c(T)$ sous champ.

quel il est possible de contrôler le dopage en oxygène pour passer d'un régime sous à sur-dopé. Dans les régions sous-dopées et à dopage optimal, la dérivée $d\rho_c/dT$ est négative, mais dans le régime sur-dopé (où T_c décroît lorsqu'on augmente le dopage en oxygène) $\rho_c(T)$ diminue avec la température mais garde une valeur absolue très grande ($1\text{-}2 \Omega\cdot\text{cm}$) au regard de la valeur de ρ_c dans certains membres de la famille YBaCuO (soit environ $5 \text{ m}\Omega\cdot\text{cm}$ dans les cristaux complètement oxygénés). Ce large éventail des valeurs absolues de ρ_c suggère qu'il n'existe pas de valeur universelle

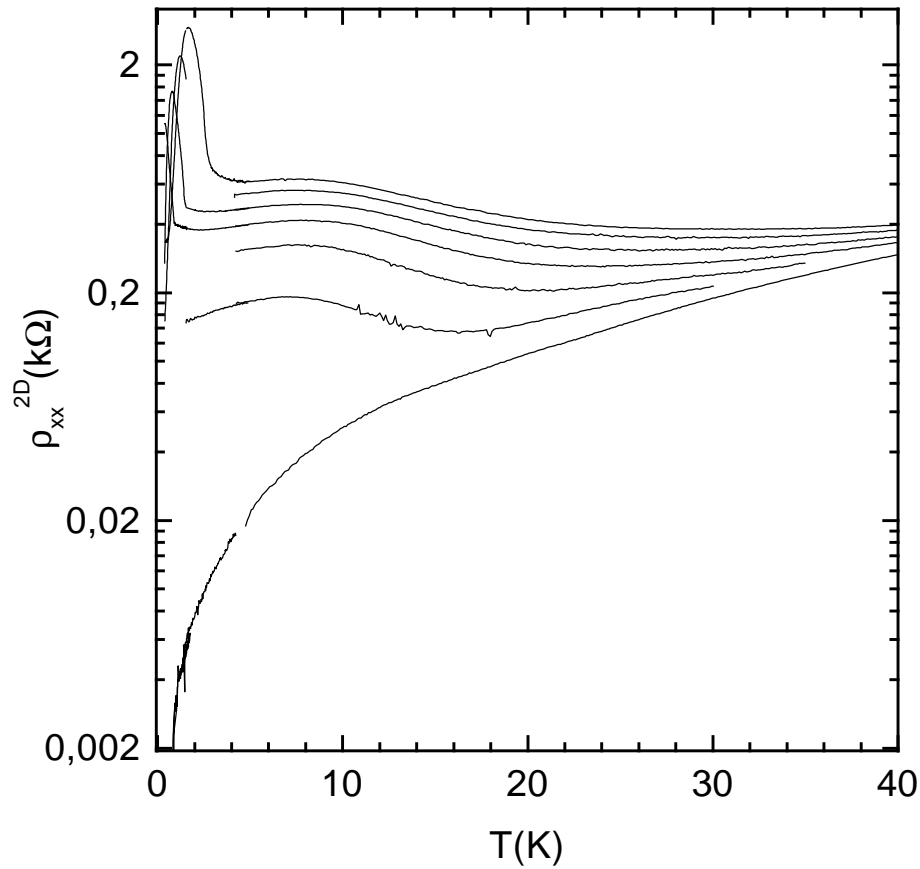


Figure 4.9: Sous 9kbar, dépendance en température de $\rho_a(T)$ sous champ (d'après N. Biskup).

pour le critère de Mott-Ioffe-Regel dans les supraconducteurs HT_c qui caractériserait le passage d'un comportement localisé à un comportement itinérant; la seule valeur pertinente semble être celle de l'élément de matrice tunnel inter-plans. Ong *et al.* [86] ont proposé que le comportement activé de $\rho_c(T)$ soit une manifestation des corrélations de spins entre plans adjacents qui ouvrent un gap (de spin) affectant le transport suivant c mais restent sans effet sur le transport dans les plans. Ce point de vue est supporté par l'observation d'une magnétorésistance négative lorsque champ et courant sont perpendiculaires aux plans: la force de Lorentz est nulle et le champ agit principalement sur les degrés de liberté de spin. Le signe négatif de la magnétorésistance montre bien que le champ appliqué tend à supprimer la barrière inter-plans.

Une interprétation de la conductivité transverse s'inscrivant dans un formalisme de liquide de Luttinger a été développée par Clarke, Strong et Anderson [61] dans le cas du régime de "confinement" où le transport entre chaînes de Luttinger est complètement incohérent. Un modèle similaire a été proposé par Gabay [56] dans le cadre du transport suivant c dans les conducteurs organiques quasi-unidimensionnels.

4.3.1.2 Premiers éléments expérimentaux dans les organiques quasi-1D

Pour introduire le caractère hautement inhabituel du transport suivant la direction c dans les organiques quasi-unidimensionnels, je mentionnerai trois résultats essentiels qui ont constitué la principale source de motivation des études ultérieures.

- Les mesures de magnétorésistance à pression ambiante [66] réalisées par J. R. Cooper, L. Forro et B. Korin-Hamzić suggèrent un régime de transport hautement diffusif suivant c dans $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$. Calculant au préalable le tenseur de conductivité pour une surface de Fermi ouverte dans le modèle des liaisons fortes et l'approximation du temps de relaxation indépendant du vecteur d'onde:

$$\sigma_{ij} = -\frac{e^2}{4\hbar^3} \int \frac{ds}{\hbar |v_F|} \int v_i(0)v_j(t) \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) dt \quad (4.18)$$

on retrouve qu'un champ magnétique orienté suivant b' influe sur la conductivité suivant c^* :

$$\sigma_{c^*c^*}(H) = \sigma_{c^*c^*}(0) [1 - \Omega^2 \tau^2] \quad (4.19)$$

avec

$$\Omega \tau \propto H v_a \tau = H l_{\parallel} \quad (4.20)$$

(v_a la vitesse des électrons dans la direction des chaînes, et l_{\parallel} le libre parcours moyen suivant cette même direction). D'après (4.18) on a également

$$\frac{\sigma_{c^*c^*}}{\sigma_{aa}} = \left(\frac{t_{c^*}}{t_a}\right)^2 \frac{c^2}{a^2} \quad (4.21)$$

qui autorise une détermination expérimentale des intégrales de transfert et du libre parcours moyen, toujours dans un modèle de bande où le taux de diffusion $1/\tau$ est constant sur la surface de Fermi, ce qui constitue une première approche.

Les auteurs en déduisent une valeur de t_c comprise entre 0.10 et 0.16 meV dans $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$, ce qui est environ 6 fois plus petit que la valeur 1 meV prédite par un modèle de Hückel [59]. Or il se trouve que, d'après la structure-même des sels $(\text{TM})_2\text{X}$, on peut considérer que les hétéroatomes n'interviennent pas dans le transport transverse [56]. Par conséquent on doit s'attendre à une valeur de t_c raisonnablement identique pour tous les membres de la série. D'ailleurs de récentes modélisations basées sur le modèle de Hückel confortent cette hypothèse et conduisent à des valeurs de t_c proches de 0.65 meV dans $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ et $(\text{TMTTF})_2\text{Br}$ [67], deux composés pourtant très éloignés dans le diagramme générique (T, P) des conducteurs moléculaires quasi-1D.

Enfin le libre parcours moyen suivant c^* peut-être évalué à partir des mesures de magnétorésistance [66] qui conduisent pour $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ (toujours à pression ambiante) à la valeur $l_c \sim c/40$ à 21K. Ceci suggère qu'un modèle de bande n'est pas applicable pour rendre compte du transport dans la direction c^* , lequel est diffusif sur toute la gamme de température jusqu'aux premières fluctuations antiferromagnétiques de la phase SDW. Par contre les auteurs soulignent que la situation est apparemment différente pour $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ puisque le régime $l_c > c$ est atteint à la température de l'hélium liquide. Il est fort probable dans ce cas que la situation soit similaire dans le cas de $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ sous une pression de 9kbar car l'anisotropie de la phase métallique σ_a/σ_b ou σ_a/σ_c y est comparable à celle du composé perchlorate à pression ambiante.

- Les premières mesures de spectroscopie optique dans l'infrarouge lointain [27][28][29] réalisées par Jacobsen ont notamment montré qu'il y a réflectance totale de la lumière suivant c . Le modèle de Drude de la conductivité optique

$$4\pi\sigma(\omega) = \frac{\omega_p^2\tau}{1 + \omega^2\tau^2} \quad (4.22)$$

n'est donc pas valide et on ne peut déterminer aucune force d'oscillateur qui révélerait un transport cohérent dans cette direction.

- Enfin le comportement de $\rho_c(T)$ dans $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ à pression ambiante est connu depuis les travaux de Jacobsen [27][28] qui rapportent un maximum bien défini

vers 80K, alors que la résistivité suivant a et b semble métallique au premier abord (voir paragraphe précédent). Ceci a également été noté par J. R. Cooper, L. Forro et B. Korin-Hamzić à Zagreb [79] lors de leurs études sur les changements de régime cohérence-incohérence dans la phase métallique de certains organiques quasi-1D.

4.3.2 Mesures de transport sous pression

Dans ce contexte, nous nous sommes intéressés à la dépendance en température de ρ_c dans les deux composés très anisotropes $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ et $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$, à diverses pressions hydrostatiques. La dimension typique des échantillons étudiés est environ $2000 \times 500 \times 100 \mu\text{m}^3$, et l'amplitude du courant AC utilisé est de $10 \mu\text{A}$. On constate d'emblée que l'algorithme mis en oeuvre pour déterminer ρ_a et ρ_b est ici totalement saturé, ce qui témoigne d'un très grand rapport d'anisotropie $\rho_c/\rho_{a,b}$. Il se trouve que lorsque le courant est injecté suivant c les plans (ab) sont des plans équipotentiels et la résistance suivant c est simplement V_c/I_c .

Malgré la forte différence des rapports d'anisotropie existant entre les deux types de composés, les profils $\rho_c(T)$ de $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ et $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$ sont très similaires: les courbes présentent toutes un maximum très marqué qui se déplace rapidement vers les hautes températures par application d'une pression hydrostatique, tandis que l'amplitude de ce maximum décroît de façon significative (fig. 4.10). Dans le cas des composés séléniés (TMTSF), le maximum de ρ_c à pression ambiante se situe à une température $T_{max} = 80\text{K}$, qui se déplace linéairement en pression de 25% par kilobar vers les hautes températures (fig. 4.11). A 9 kbar, ainsi qu'il est également observé dans le composé $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$, le maximum est très large et mal défini car il se situe au voisinage de la température ambiante. Enfin, si l'on considère la variation en pression de ρ_c à basse température, on constate que $\rho_c(T = 20\text{K})$ est réduit d'un facteur 100 entre 1 bar et 9kbar. Ceci peut être attribué à une transition induite par la pression à basse température, entre un régime de transport *incohérent* et un régime *cohérent* suivant c qui suggère l'existence d'une phase métallique tridimensionnelle dans ces conditions de température et de pression.

Dans le cas des composés soufrés (TMTTF), $\rho_c(T)$ présente un maximum vers

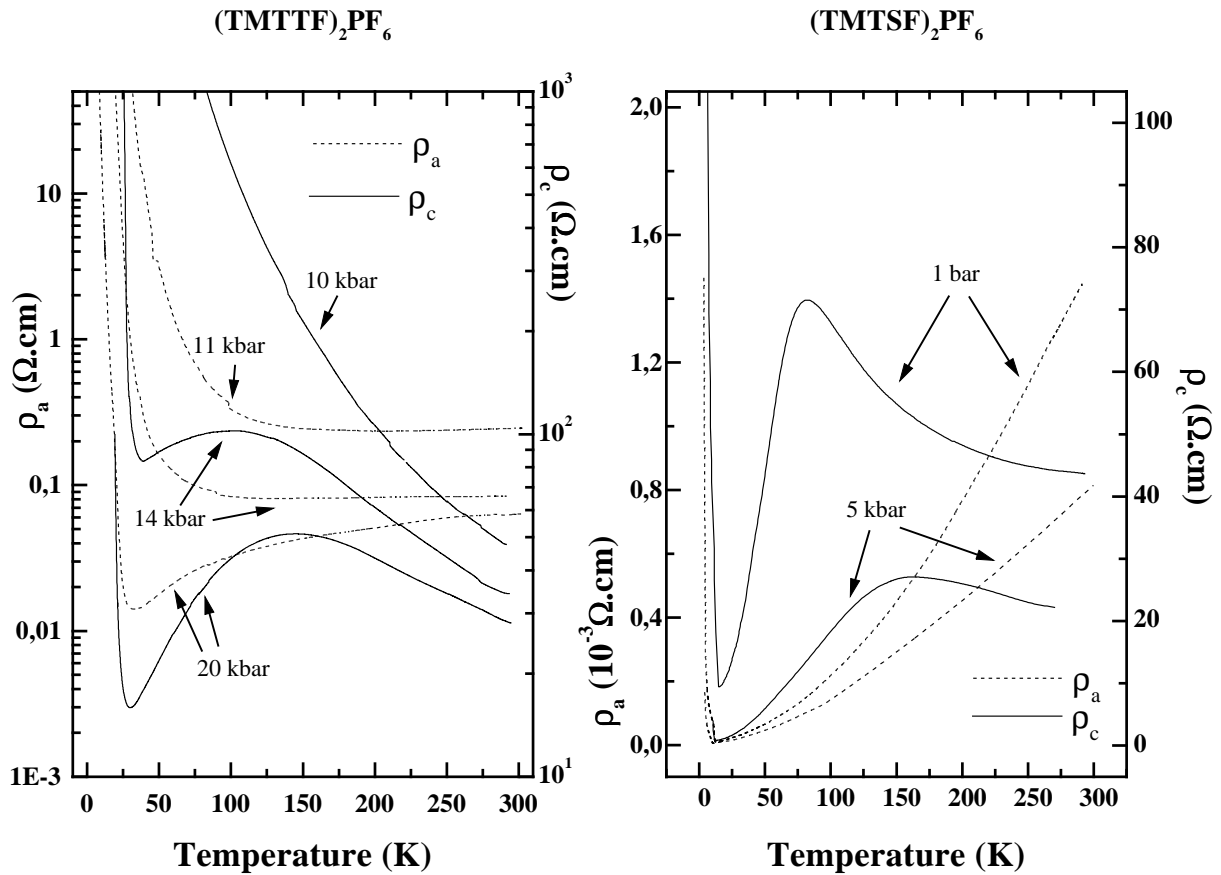


Figure 4.10: Quelques courbes $\rho_c(T)$ sous pression dans $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ et $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$. Noter la variation en pression de la température du maximum de $\rho_c(T)$ dans les deux composés.

150K sous 19kbar. En décompressant ce maximum se fond progressivement dans le profil de la résistivité monotonement activée par l'ouverture du gap de Mott, et finit par disparaître pour des pressions inférieures à 10kbar (fig. 4.10).

La forte dépendance en pression de T_{max} au regard de la dépendance en pression des couplages t_a et t_b (2% par kilobar pour t_a , moins encore pour t_b) peut éventuellement suggérer que l'allure générale de $\rho_c(T)$, si différente de celles de $\rho_a(T)$ ou $\rho_b(T)$ qui sans correction présentent un caractère métallique, a une autre origine que la simple variation en pression de t_b . Le transport suivant c étant incohérent sur toute la plage de température explorée (exception faite de la phase basse température du composé séléné sous pression) on peut imaginer qu'il est équivalent à un processus

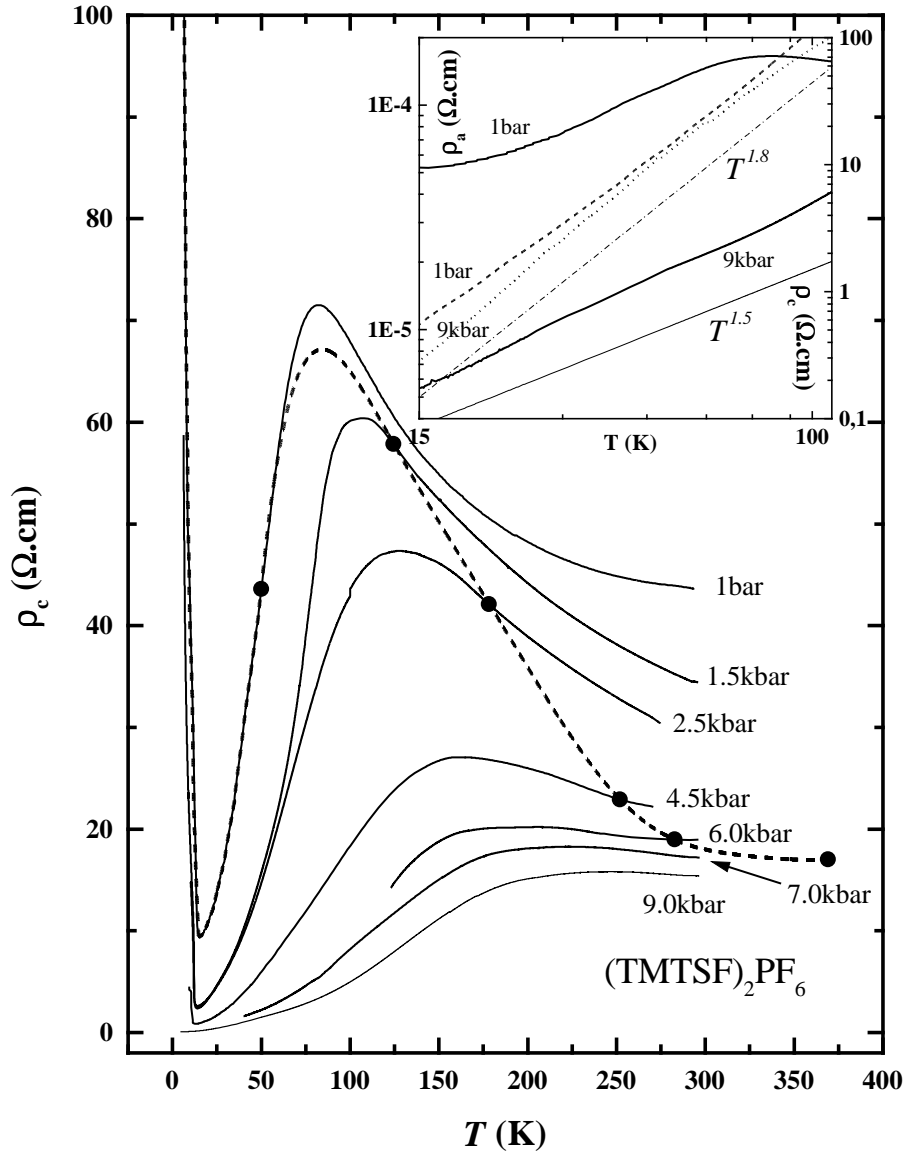


Figure 4.11: $\rho_c(T)$ dans $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ sous pression. La courbe en pointillés donne la dépendance en température corrigée à volume constant (voir le texte). L'insert donne une idée des lois de puissance en température que suit $\rho_c(T)$ en-dessous de la température du maximum.

d'effet tunnel incohérent entre les plans (ab) . Dans ce modèle une anomalie dans la résistivité ρ_c reflète une anomalie dans la densité d'états des quasi-particules des plans (ab) et une expérience de transport transverse suivant c est révélatrice d'éventuels changements de régime dans la phase métallique.

Nous exposons dans la suite un formalisme du transport diffusif entre liquides de Luttinger susceptible de pouvoir rendre compte de nos résultats expérimentaux. Nous verrons notamment que ce modèle se place d'emblée dans un régime unidimensionnel, c'est-à-dire sur une échelle d'énergie très supérieure au cross-over dimensionnel ε^* , et suppose également un gap de Mott très étroit, voire nul:

$$T, \omega \gg \varepsilon^* > |\Delta| \simeq 0. \quad (4.23)$$

Nous discuterons plus loin de l'effet de la proximité du gap de Mott dans ce formalisme.

4.3.3 Formalisme de l'effet tunnel inter-plans

On expose dans ce qui suit un formalisme développé par M. Gabay [56] qui permet d'obtenir une expression de la conductivité transverse suivant le domaine de température considéré.

Dans le régime caractérisé par

$$t_c \ll t_b < T \ll t_a \quad (4.24)$$

la longueur d'onde thermique de l'électron est bien plus courte que les distances inter-chaînes b et c , dans des directions respectivement notées y et z . Le transport suivant y et z est totalement incohérent et correspond à un processus par lequel de vrais électrons transitent par effet tunnel dans ou hors de chaînes de Luttinger. Il vient qu'au plus bas ordre en perturbation, les moyennes thermiques seront calculées en considérant un Hamiltonien H_0 qui correspond à une somme de chaînes de Luttinger suivant x non-couplées. De ce fait l'écriture de H_0 suppose la condition:

$$t_b = t_c = 0. \quad (4.25)$$

Le courant selon z sera un courant tunnel que l'on peut calculer en utilisant le formalisme de Kubo ou l'approche suivie par Clarke *et al.* [69] et Anderson *et al.* [70]. On montre dans la suite que les deux méthodes sont équivalentes.

Commençons par le formalisme de Kubo, et calculons $\sigma_c(\omega)$; la dépendance en température de la conductivité dc est obtenue en substituant ω par T . L'opérateur

de courant dans la direction z est

$$j_z = -i \frac{t_c e c}{\hbar} \sum_{i x \sigma} C_{i+1, \sigma}^+(x) C_{i, \sigma}(x) + H.c \quad (4.26)$$

où i indexe les chaînes suivant z et j_z est le courant traversant les plans (x, y) . Calculer le corrélateur courant-courant $\langle [j_z(\mathbf{r}, t), j_z(\mathbf{r}_1, t_1)] \rangle_{H_0}$ permet d'extraire la partie réelle de la conductivité [71], et il vient:

$$\sigma_c(\omega) = \frac{8e^2}{\hbar} c^2 t_c^2 \int_{-\pi/c}^{\pi/c} \frac{dk_z}{2\pi} \sin^2 k_z c \int dx' \int \frac{d\varepsilon}{2\pi} \frac{f(\varepsilon) - f(\varepsilon + \hbar\omega)}{\hbar\omega} A_e(x', \varepsilon) A_h(x', \varepsilon + \hbar\omega) \quad (4.27)$$

i.e.

$$\sigma_c(\omega) = \frac{4e^2 c t_c^2}{\hbar} \int dx' \int \frac{d\varepsilon}{2\pi} \frac{f(\varepsilon) - f(\varepsilon + \hbar\omega)}{\hbar\omega} A_e(x', \varepsilon) A_h(x', \varepsilon + \hbar\omega). \quad (4.28)$$

A_e (A_h) est la fonction spectrale de l'électron (trou) *réel* dans le liquide de Luttinger, $f(\varepsilon) = 1/(e^{\beta\varepsilon} + 1)$ est la fonction de distribution de Fermi et $x' = x - x_1$ est la distance parcourue par l'électron (le trou) entre deux diffusions.

Dans l'approche de Clarke et Anderson, l'Hamiltonien tunnel s'écrit

$$t_c \sum_{i x \sigma} C_{i+1, \sigma}^+(x) C_{i, \sigma}(x) + H.c. \quad (4.29)$$

et conduit à un courant tunnel [71]

$$I = \frac{4e c t_c^2}{\hbar} \int dx' \int \frac{d\varepsilon}{2\pi} (f(\varepsilon) - f(\varepsilon + \hbar\omega)) A_e(x', \varepsilon) A_h(x', \varepsilon + \hbar\omega). \quad (4.30)$$

La conductance g dans la direction z est alors

$$g \sim \frac{4e^2 c t_c^2}{\hbar} \int dx' \int \frac{d\varepsilon}{2\pi} \frac{f(\varepsilon) - f(\varepsilon + \hbar\omega)}{\hbar\omega} A_e(x', \varepsilon) A_h(x', \varepsilon + \hbar\omega) \quad (4.31)$$

en accord avec (4.28) pour σ_c .

Le processus physique associé à (4.28, 4.31) se décrit comme suit: un électron est diffusé hors d'une chaîne de Luttinger m , se propage sur une chaîne n adjacente et est plus tard à nouveau diffusé vers la chaîne m . Ainsi A_e se réfère à la chaîne n tandis

que A_h concerne la chaîne m , et par définition (d'après (4.25)) les sous-systèmes m et n sont découplés à l'équilibre.

La seule différence entre (4.28) et (4.31) et l'expression standard pour le courant tunnel provient de l'intégrale sur x' . Cette intégrale exprime la conservation du moment du trou et de l'électron qui se propagent respectivement sur les chaînes m et n . En d'autres termes il existe un transport cohérent des électrons et des trous dans les deux chaînes.

Si les sous-systèmes étaient des métaux ordinaires, une coupure naturelle pour l'intégrale sur x' serait le libre parcours moyen $l \sim v_F \tau_a$. Dans ce cas on s'attendrait à [71]

$$\sigma_c = N_m(0)N_n(0)\frac{\tau_a t_a}{\hbar} \quad (4.32)$$

où $N_{m,n}(0)$ est la densité d'états du sous-système m, n .

Pour un "liquide de Fermi unidimensionnel" $\tau \sim 1/\omega$ ou $\tau \sim 1/T$ (en négligeant les corrections logarithmiques). Si, au lieu de chaînes découplées nous avons des plans découplés, et si ces plans se comportaient comme des liquides de Fermi bidimensionnels, nous trouverions $\sigma_c \sim 1/T^2$. Cependant dans la présente situation, les états "électrons" ou "trous" ne sont pas des états propres des chaînes; on ne doit pas s'attendre à un transport cohérent de l'électron et du trou si $x' \geq a$, puisque ces entités se séparent en excitations collectives de spin et de charge au-delà de cette distance. Il vient:

$$\sigma_c(\omega) \sim \frac{4e^2}{\hbar} a c t_c^2 \int \frac{d\varepsilon}{2\pi} \frac{f(\varepsilon) - f(\varepsilon + \hbar\omega)}{\hbar\omega} A_e(0, \varepsilon) A_h(0, \varepsilon + \hbar\omega). \quad (4.33)$$

Dans le composé $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ les mesures de susceptibilité indiquent que l'énergie de Hubbard U est comparable à la largeur de bande, de sorte que la vitesse de charge sur une chaîne v_c est bien plus grande que la vitesse de spin. Dans le régime de Luttinger on écrit

$$A(x, t) = \frac{1}{t^{\alpha+1}} h\left(\frac{x}{v_c t}\right) \quad (4.34)$$

où h est une fonction d'échelle qui conduit à

$$A(x, \varepsilon) = \frac{1}{v_c} \left(\frac{\varepsilon}{\hbar v_c}\right)^\alpha \tilde{h}\left(\frac{\omega x}{v_c}\right). \quad (4.35)$$

En injectant (4.35) dans (4.33) on obtient une expression pour σ_c :

$$\sigma_c(\omega) \sim t_c^2 \frac{e^2}{\hbar} \frac{ac}{v_c^2} \left(\frac{\omega}{v_c} \right)^{2\alpha}. \quad (4.36)$$

La conductivité $d\sigma_c(T)$ vérifie donc

$$\sigma_c(T) \sim T^{2\alpha}. \quad (4.37)$$

Par essence cette expression est le résultat de la règle d'or de Fermi pour un système 1D de densité d'états $N(\varepsilon) \sim \varepsilon^\alpha$. σ_c sonde donc directement la densité d'états du liquide de Luttinger.

Quand $t_c \ll \omega, T < t_b < t_a$, on peut appliquer le formalisme de l'effet tunnel pour les plans au lieu des chaînes. Pour un système anisotrope avec des libres parcours moyens de l'ordre de $\tau_a t_a / \hbar$ et $\tau_b t_b / \hbar$ suivant a et b respectivement, l'intégrale sur x' produit une contribution de l'ordre de $\sqrt{\tau_a t_a \tau_b t_b / \hbar^2}$, pourvu que l'on puisse définir des états de quasiparticules pour les plans (ab) . Dans cette limite, $\sigma_c \sim \sqrt{\sigma_a \sigma_b}$. De plus si les plans se comportent comme des liquides de Fermi bidimensionnels, il suffit de poser $\alpha = 0$ dans (4.36). Puisque $\tau \sim 1/T^2$, $\sigma_c(T) \sim 1/T^2$ de sorte que $\sigma_c(T)/\sigma_a(T)$ est constant dans ce régime.

4.3.4 Discussion

4.3.4.1 Première approche

L'analyse du transport dans la direction c requiert une transformation des mesures $\rho_c(T)$ de pression constante à volume de la maille constant [56]. On considère que cette transformation n'affecte pas les mesures sous hautes pressions car les variations de longueurs y sont amoindries par la compressibilité du matériau. Notamment toutes les mesures relatives à $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$ présentées ici sont directement obtenues à volume constant. L'algorithme de conversion permet d'obtenir la dépendance en température de ρ_c d'un échantillon équivalent mesuré sous 1bar et dont le volume de la maille cristallographique serait constant quelle que soit la température. La mesure des paramètres structuraux [95] montre que le volume de la maille élémentaire ne varie plus à $T < 50\text{K}$. Le volume $(a \times b \times c)$ pris à 50K sera donc notre

volume de référence. Pour $T > 50\text{K}$ la dilatation du réseau peut être compensée par l'application d'une pression $p(T)$ qui ramène le volume de la maille à sa valeur de 50K. $p(T)$ est déterminée par les dépendances en température et en pression des paramètres de maille. L'intérêt de corriger la résistivité à volume constant est de séparer la dépendance en température du temps moyen de diffusion inter-particules et la dépendance en température de la composante structurale (volumique) de la résistivité. A pression ambiante la contraction suivant a du réseau cristallographique due au refroidissement de la température ambiante à 4K est équivalente à l'application d'une pression de 8kbar à 300K. On peut se demander si l'application d'une pression pour conserver le volume de la maille ne change pas également la force des interactions, et notamment l'énergie U de Hubbard. Des mesures d'optique sous pression ont été réalisées par Welber *et al.* sur TSeF-TCNQ dans le proche infrarouge [155], révélant que la fréquence de plasma ω_p est peu affectée par la pression. ω_p étant une mesure de la largeur de bande, les auteurs déduisent un accroissement de l'intégrale de transfert dans la direction des chaînes de 0.47% par kbar. En l'absence de telles mesures dans les sels de Bechgaard on ne peut que supposer qu'il en est de même pour $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ et qu'à défaut de connaître la variation sous pression de l'énergie de Hubbard, on peut légitimement supposer que la largeur de bande est seulement modérément affectée par la pression, au moins jusqu'à 8kbar. Par contre il ne fait aucun doute que l'algorithme de conversion à volume constant dépend fortement du modèle choisi pour la résistivité. Ainsi dans le cas de ρ_c on peut *a priori* conserver le pas du réseau suivant c , ou le pas dans la direction des chaînes, ou encore un mélange des deux impliquant également le pas du réseau dans la direction b . Dans notre cas on souligne que ρ_c est une mesure de la densité d'états des chaînes faiblement couplées, et par conséquent on prend plutôt en compte la dépendance en température $a(T)$ du pas du réseau dans la direction des chaînes.

On peut comparer le modèle du transport suivant l'axe c présenté dans le paragraphe (4.3) à l'exemple représentatif de $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$ sous 19kbar (fig. 4.12). Il n'y a pas de correction à volume constant à effectuer dans ce cas et la comparaison est immédiate. On voit qu'un ajustement de $\rho_c(T)$ par une loi en $T^{2\alpha}$ est satisfaisant, mais de nombreuses valeurs de K_ρ , typiquement comprises entre 0.22 et 0.30,

semblent rendre compte tout aussi bien des données expérimentales. Or des valeurs aussi différentes de K_ρ ne décrivent pas la même physique: dans le cas d'une bande quart-remplie notamment, $K_\rho = 0.25$ correspond à une valeur critique au-delà de laquelle la phase 'localisation de Mott' a disparu. On voit donc que la comparaison à l'expérience du formalisme exposé en (4.3) est difficile.

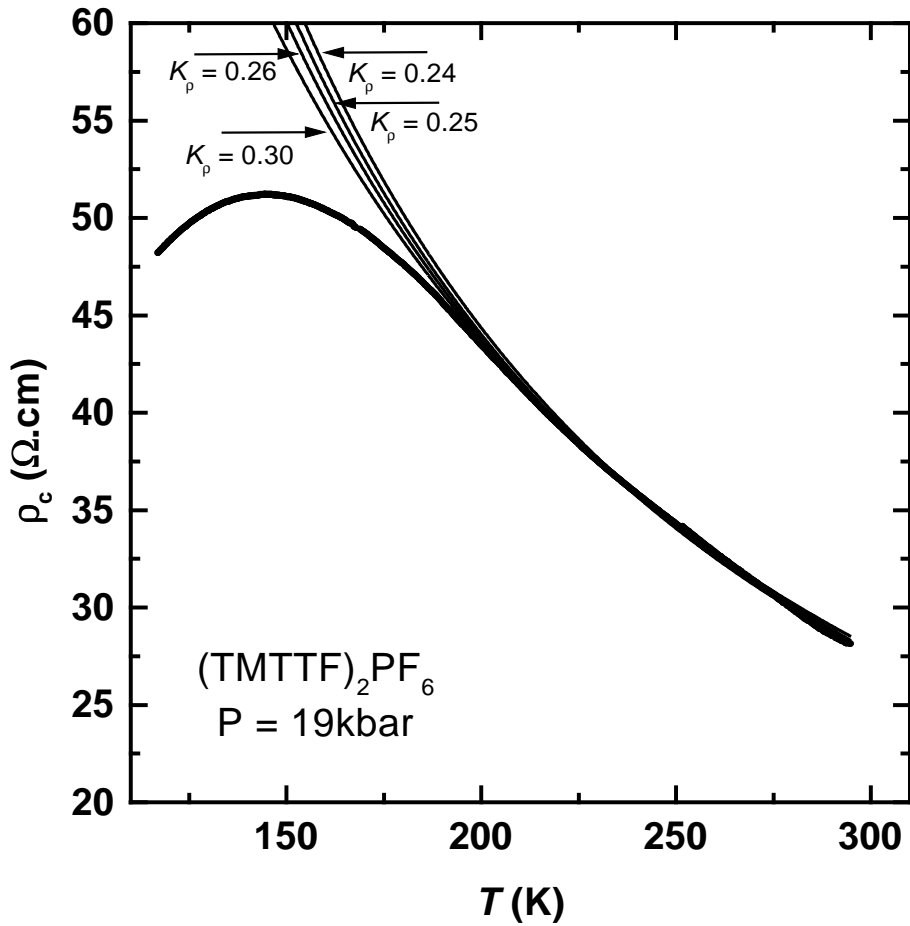


Figure 4.12: Loi de puissance pour $\rho_c(T)$ dans $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$ sous 19kbar. De nombreuses valeurs pour K_ρ rendent tout aussi bien compte de l'expérience, alors que $K_\rho = 0.2$ et $K_\rho = 0.3$ correspondent à une physique complètement différente.

4.3.4.2 Deuxième approche

Le point de vue qui vient d'être exposé suppose que l'électron diffusé évolue de façon cohérente sur une distance x' dans la chaîne avant d'être rediffusé sur la chaîne de

départ. L'intégrale sur x' dans (4.27), est limitée par une longueur de coupure que l'on suppose être le pas a de la chaîne, la forme fermionique de l'électron n'étant pas un état propre stable du système 1D. L'intégrale sur x' se simplifie et la conductivité σ_c prend un facteur a dans l'expression (4.33). L'expression (4.27) ne rend donc pas réellement compte de la conservation du moment de l'électron dans la direction des chaînes. La perte de mémoire du moment de l'électron serait certainement une hypothèse valide dans le cas d'un système désordonné ou présentant des impuretés entre les chaînes, ce qui correspond difficilement à la réalité puisque des échantillons de provenance différente développent des réponses physiques sensiblement identiques.

On peut s'intéresser à intégrer de façon explicite la conservation du moment suivant a dans l'expression de σ_c . On modélise la collection de chaînes découplées [72] par un nombre infini de directions transverses ($d_{\perp} = \infty$), et un courant dans ces directions $j_{\perp} \propto t_{\perp} \sin k_{\perp}$. Si on ignore les corrections de vertex il vient pour la partie réelle de $\sigma_{\perp}(\omega)$:

$$\Re\sigma_{\perp}(\omega) \propto t_{\perp}^2 \int D(\varepsilon_{\perp}) d\varepsilon_{\perp} \int \frac{dk}{2\pi} \int \rho(\varepsilon_{\perp}, k, \nu + \omega) \rho(\varepsilon_{\perp}, k, \nu) \times \frac{f(\nu) - f(\nu + \omega)}{\omega} d\nu \quad (4.38)$$

où $D(\varepsilon_{\perp})$ est la densité d'état de quasiparticules dans les directions transverses, f est la fonction de distribution de Fermi-Dirac, et ρ est la fonction spectrale du liquide de Luttinger:

$$\rho(\varepsilon_{\perp}, k, \omega) = -\frac{1}{\pi} \Im G(\varepsilon_{\perp}, k, \omega). \quad (4.39)$$

Pour des électrons physiques, la densité spectrale est la partie imaginaire de la fonction de Green. Dans un liquide de Luttinger, elle acquiert une forme du type $\{1/[\omega - v_F(k - k_F)]\}^{1-\alpha}$. Plus précisément, à température et fréquence finie, on aura une forme d'échelle:

$$\rho \sim \frac{1}{t} \left(\frac{t}{T}\right)^{1-\alpha} h\left(\frac{\omega}{T}, \frac{k - k_F}{T}\right) \quad (4.40)$$

où t est l'intégrale de transfert dans la direction des chaînes, $\alpha = (K_{\rho} + 1/K_{\rho} - 2)/4$ est l'exposant de Luttinger, et h est une fonction d'échelle. La fonction spectrale de Luttinger contient *déjà* l'information sur l'instabilité de l'électron à l'intérieur d'une

chaîne qui était décrite dans l'approche précédente par la coupure de l'intégrale sur x' . L'expression (4.38) ne diffère de (4.27) que par l'intégrale sur k qui rend compte de la conservation du moment. En se plaçant à $\omega = 0$ et en posant $s = \nu/T$ et $q = (k - k_F)/T$, $\sigma_c(T)$ s'écrit:

$$\sigma_c(T) \propto \left(\frac{t_\perp}{t}\right)^2 \left(\frac{t}{T}\right)^{2(1-\alpha)} \frac{T}{t} \int \frac{dq}{2\pi} \int \frac{h(s, q)^2}{\cosh^2(s/2)} ds. \quad (4.41)$$

Dans (4.41) l'intégrale double converge, de sorte que finalement:

$$\sigma_c(T) \sim \left(\frac{t_\perp}{t}\right)^2 \left(\frac{t}{T}\right)^{1-2\alpha}. \quad (4.42)$$

Il y a donc une puissance de T de différence entre (4.42) et (4.37): les données expérimentales vont être *a priori* très défavorables à l'expression (4.42). Comment résoudre ce paradoxe?

Les mesures de conductivité optique sur $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ et $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ révèlent un gap de Mott d'amplitude finie et correspondant à une échelle d'énergie de l'ordre de 150K. L'échelle d'énergie explorée en transport dc n'est donc jamais très supérieure à celle du gap de Mott, et il est légitime de s'attendre en pratique à des déviations par rapport au modèle strictement 1D. On peut par exemple proposer que la loi (4.42) soit effectivement valide à dimension 1, mais qu'elle soit en pratique affectée par la proximité du gap de Mott [72] par l'intermédiaire d'un facteur correctif de la forme $\exp(-2|\Delta|/T)$:

$$\rho_c(T) \sim \exp\left(\frac{2|\Delta|}{T}\right) T^{1-2\alpha}. \quad (4.43)$$

Il se trouve que cette expression empirique est en bon accord avec l'expérience. Le profil $\rho_c(T)/\rho_c(300\text{K})$ de $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ à 1bar corrigé à volume constant n'est que moyennement bien approximé par une loi de puissance en $T^{-1.4}$ car la courbe corrigée entre 80 et 300K est estimée à l'aide de seulement 5 points, dont l'un est extrapolé à 370K. On voit sur la figure (fig. 4.13) que (4.43) rend tout aussi bien compte des données expérimentales qu'une loi en $T^{-2\alpha} = T^{-1.4}$, en posant $1 - 2\alpha = -0.38$ pour retrouver $K_\rho = 0.22$ sous l'hypothèse d'une bande quart-remplie, et $2|\Delta| = 50\text{K}$. Le cas de $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$ sous 19kbar (fig. 4.14) est un exemple encore plus significatif:

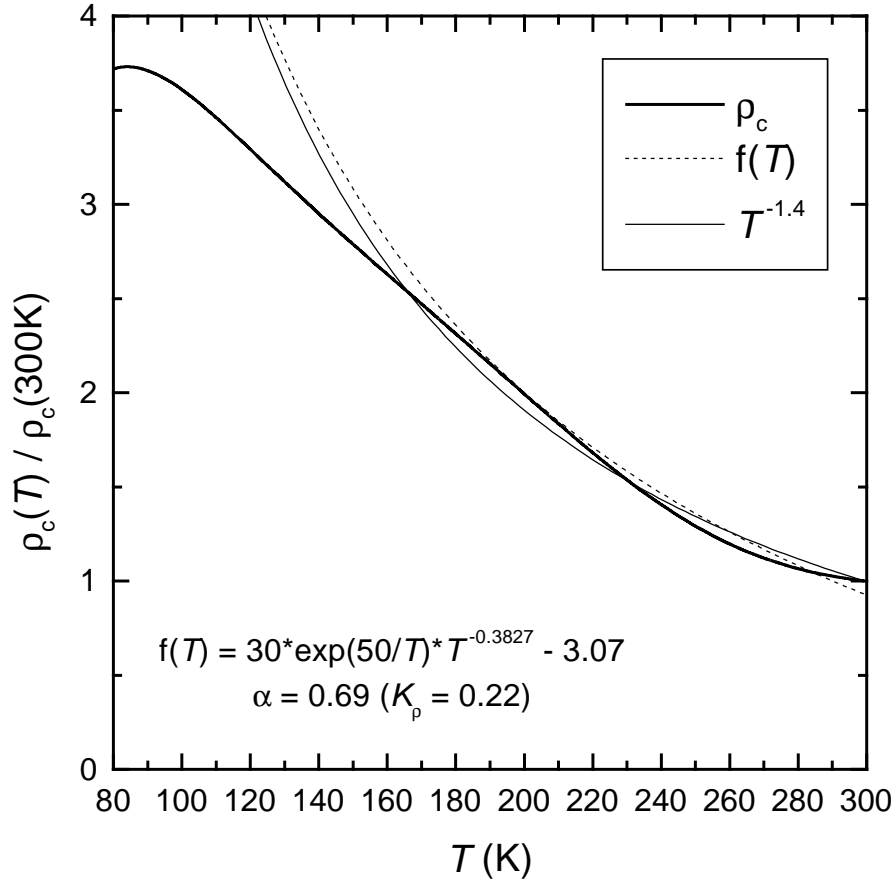


Figure 4.13: $\rho_c(T)$ corrigé à volume constant dans $(TMTSF)_2PF_6$. La loi de puissance en $T^{-2\alpha}$, où $\alpha = 0.69$, ne rend pas mieux compte de l'expérience que la loi en $T^{1-2\alpha}$ affectée d'un facteur exponentiel correctif.

si une loi de puissance en $T^{-2\alpha} = T^{-1.12}$ donne un accord très satisfaisant, il en va de même de la loi (4.43) avec $K_\rho = 0.22$, et $2|\Delta| = 50K$, soit un gap de Mott de 25K qui n'est pas du tout incompatible avec le prolongement en pression des données $|\Delta|(p)$. Il faut noter à ce niveau qu'en pratique, le facteur de (4.43) en $T^{1-2\alpha}$ a peu d'influence sur l'allure de $\rho_c(T)$ qui est essentiellement contrôlée par le facteur exponentiel. Dans cette optique c'est donc l'activation exponentielle à travers le gap de Mott qui rend compte du comportement de $\rho_c(T)$ entre 80K et la température ambiante.

Ce point de vue nous permet de mettre à jour une propriété assez curieuse du composé $(TMTTF)_2PF_6$ qui développe un gap de Mott dc à basse pression. Tant que le gap de Mott est visible en dc , la résistivité suivant c et la résistivité suivant a sont

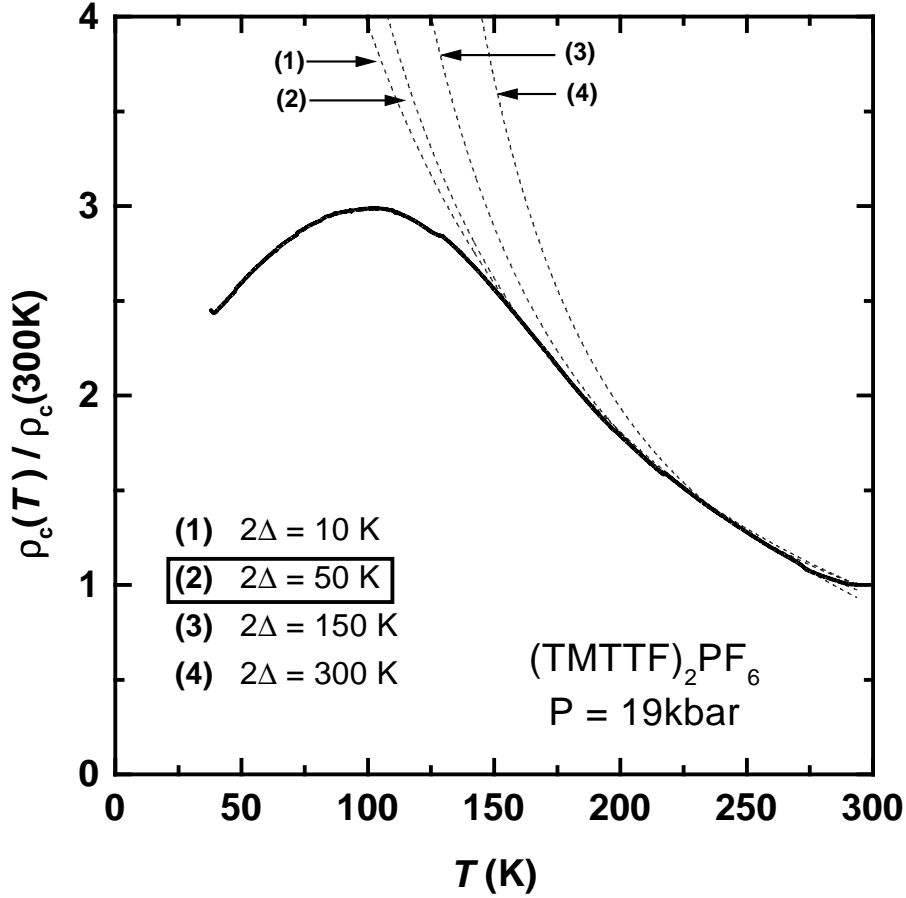


Figure 4.14: Comparaison à l'expérience de la loi en $T^{1-2\alpha}$ affectée d'un facteur exponentiel. Un faible gap de Mott d'environ 25K semble bien rendre compte des résultats.

effectivement activées et rendent compte bien entendu de la même valeur du gap de Mott. Par contre cette activation n'est observable qu'en dessous d'une certaine température: sous une pression de 11kbar, $2|\Delta|$ vaut 230K et l'activation est perçue suivant a (fig. 4.15) et c (fig. 4.16) à partir de 100K environ. Au-delà de 100K $\rho_c(T)$ suit approximativement une loi de type (4.43), tandis que $\rho_a(T)$ est quasi-constante. Lorsque le gap de Mott dc disparaît, ou tout au moins que la physique du système est contrôlée par le gap de la phase Onde de Densité de Spin, la loi (4.43) est suivie de façon satisfaisante par $\rho_c(T)$, tandis que la dérivée $d\rho_a(T)/dT$ est positive (fig. 4.17).

On retient que les données expérimentales du transport suivant c ne sont ja-

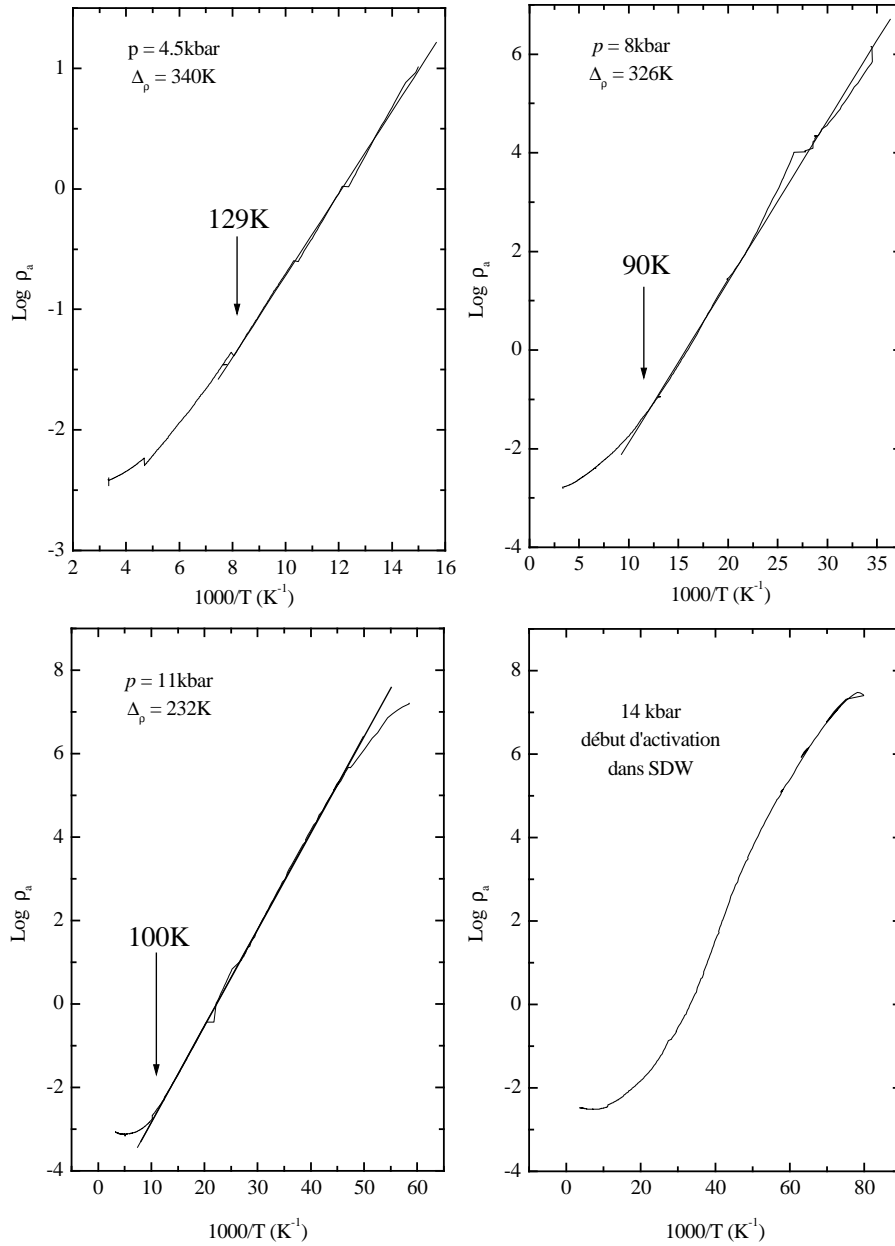


Figure 4.15: $\rho_a(T)$ sous basse pression dans $(TMTTF)_2PF_6$. On suit l'évolution du gap de Mott sous pression dans l'activation de $\rho_a(T)$ (d'après P. Auban-Senzier et S. E. Brown).

mais incompatibles avec l'image d'une activation de $\rho_c(T)$ à travers le gap de Mott. Malheureusement cela implique aussi que les mesures de transport transverse ne permettent pas (dans cette optique) d'accéder au coefficient des corrélations K_ρ .

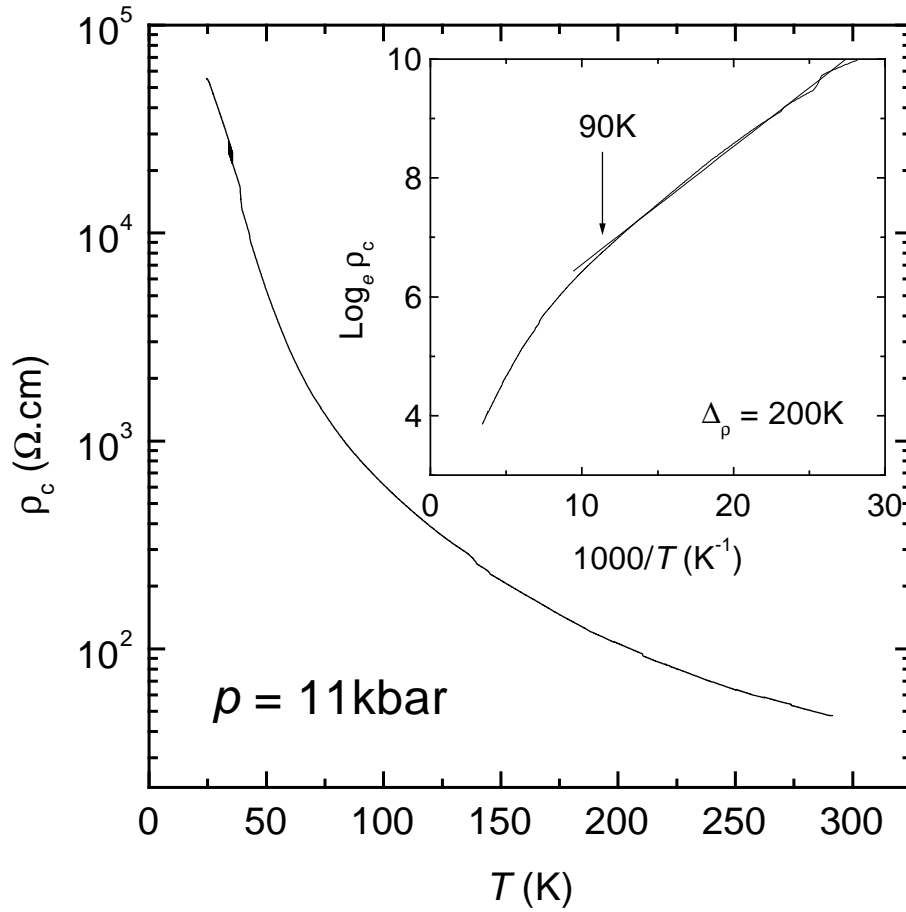


Figure 4.16: Activation de $\rho_c(T)$ sous 11kbar dans $(TMTTF)_2PF_6$. $\rho_c(T)$ est activé en-dessous de 90K. A plus haute température $\rho_c(T)$ suit une loi de puissance.

4.4 Conclusion

Les mesures de transport transverse constituent une première approche expérimentale des propriétés non-conventionnelles de la phase métallique des conducteurs organiques quasi-unidimensionnels. Elles permettent de déterminer une échelle d'énergie de l'ordre de 100K qui limite un régime unidimensionnel à haute température d'un régime faiblement bidimensionnel. Cette échelle d'énergie correspond approximativement à la température pour laquelle $\rho_c(T)$ présente un maximum (fig. 4.18). Si la conductivité suivant c est sans aucun doute une mesure de densité d'états, il faut cependant considérer avec prudence la validité du formalisme unidimensionnel en raison de l'existence du gap de Mott dont la magnitude pourrait ne pas être né-

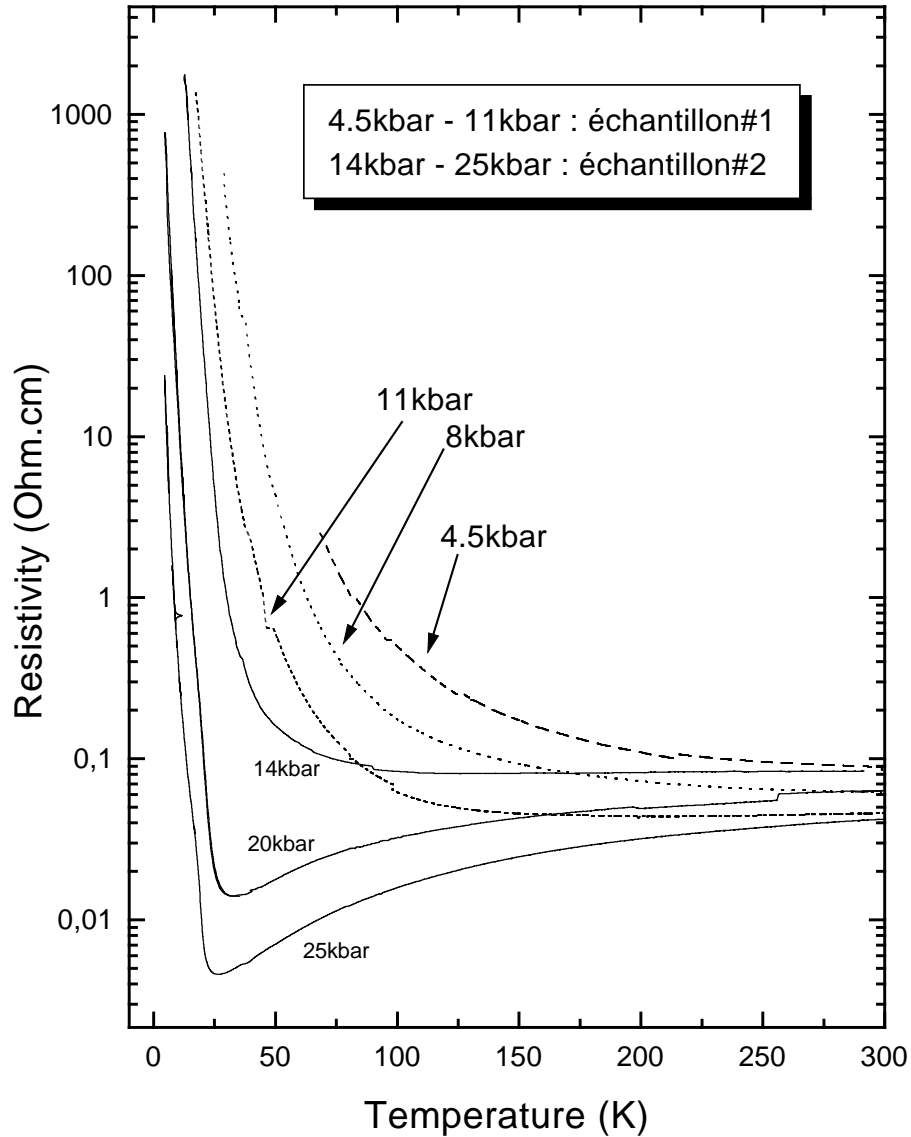


Figure 4.17: Evolution de $\rho_a(T)$ dans $(TMTTF)_2PF_6$ en fonction de la pression. Au-delà de 14kbar l'activation disparaît et $\rho_a(T)$ suit une loi de puissance (d'après P. Auban-Senzier et S. E. Brown).

gligeable devant l'échelle d'énergie explorée expérimentalement en transport. Cette étude préliminaire est essentielle puisque d'emblée elle suggère la coexistence de l'échelle d'énergie associée au gap de Mott et l'échelle d'énergie du cross-over dimensionnel.

Le fait que l'on ne puisse véritablement trancher entre ces deux approches suggère

l'existence de multiples processus impliqués dans le transport suivant c . Il se peut en définitive qu'un mécanisme de dissipation ait lieu à basse fréquence (mais à fréquence finie) dans les mesures optiques qui ferait faussement penser à un gap [157]. Un test expérimental approprié serait la mesure de la réflectivité optique d'une face (ac) et vérifier que cela donne exactement le même résultat $\sigma_{xx}(\omega)$ que pour les faces (ab), avec dans les deux cas $\mathbf{E} \parallel a$.

Dans cet esprit, nous nous proposons à présent d'affiner cette analyse par l'étude de la réponse de Hall dans $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ à pression ambiante.

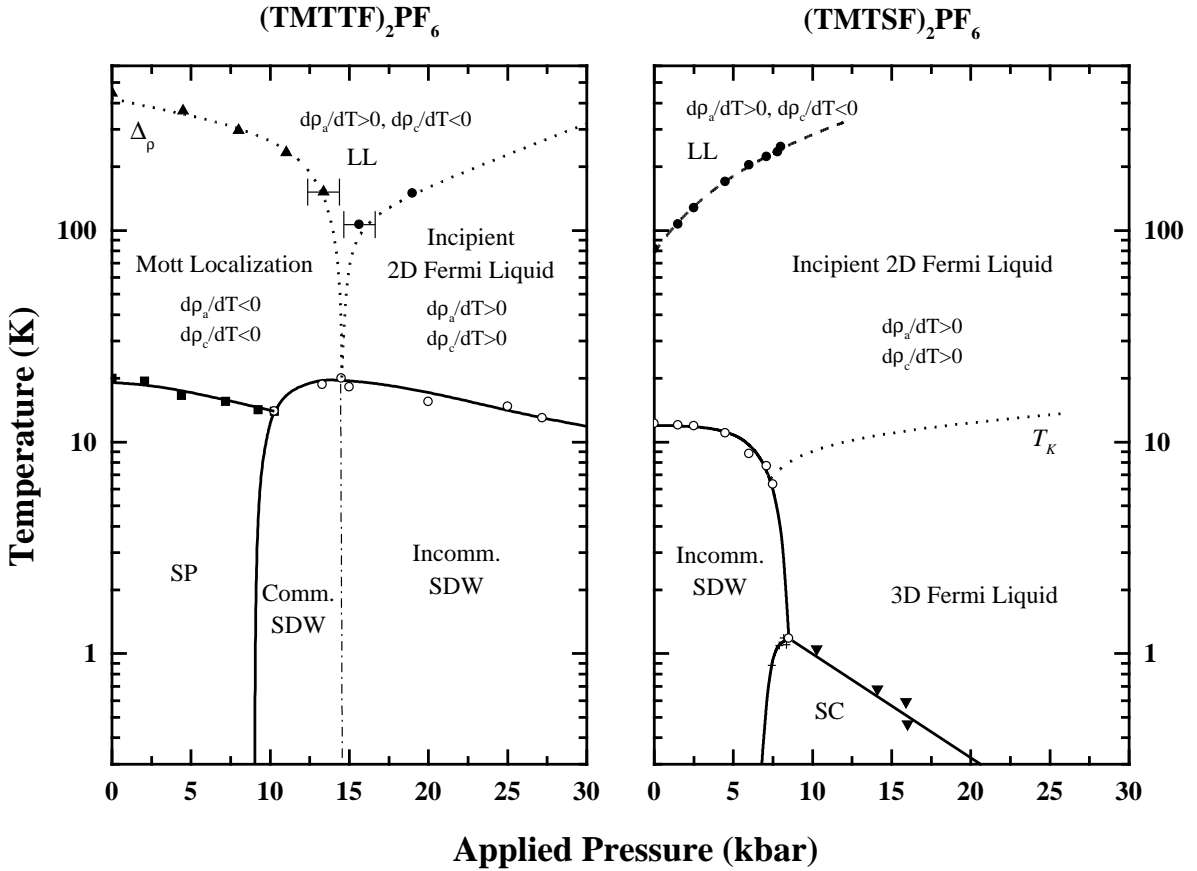


Figure 4.18: Diagramme de phase de $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ et $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$. On a essentiellement complété le diagramme de phase par la ligne $T_{max}(P)$ (cercles pleins) et la ligne T_K qui signale la restauration d'un liquide de Fermi bi ou tridimensionnel.

Chapitre 5

Effet Hall dans la phase normale de (TMTSF)₂PF₆

5.1 Introduction

5.1.1 Position du problème

Les chapitres qui précèdent, essentiellement consacrés à la dépendance en température des éléments du tenseur de conductivité, suggèrent l'évolution graduelle de la phase métallique haute température, bien décrite par un modèle de chaînes de Luttinger indépendantes, vers un état bidimensionnel résultant d'un couplage faible entre ces chaînes. Il s'en suit qu'à l'intérieur d'une large plage de température une description raisonnable des conducteurs quasi-1D est celle d'une collection de plans fortement anisotropes, considérés comme indépendants en première approximation puisque le transport suivant la direction perpendiculaire c est hautement diffusif. A pression ambiante une telle phase "bidimensionnelle-anisotrope" manifestant des propriétés physiques incompatibles avec un liquide de Fermi conventionnel, semble exister entre 100 et 15K dans (TMTSF)₂PF₆. L'application d'une pression quasi-hydrostatique tend à favoriser les interactions inter-chaînes de sorte que ce large domaine transitoire entre une physique 1D et un liquide de Fermi tridimensionnel se rapproche de la température ambiante.

Dans ce contexte il serait intéressant de caractériser l'évolution dimensionnelle

de la phase métallique en terme de densité de quasi-particules de Landau, quantité que l'on pourrait suivre en fonction de la température et donc de l'échelle d'énergie. Dans l'idéal, on conçoit qu'une mesure physique pertinente est par exemple la tension de polarisation induite par effet Hall dans un monocristal organique. Une telle expérience est révélatrice pour diverses raisons: elle fournit une mesure directe de la densité des porteurs de charge et éventuellement de leur mobilité; elle permet de tester les limites du modèle de bande et offre une assise expérimentale à de nouveaux modèles théoriques; enfin, elle invite à réfléchir au rôle des couplages transverses dans la construction d'une tension de Hall. Ce dernier point est essentiel et suscite certaines interrogations:

(i) si l'on considère que la phase métallique haute température est celle d'une collection de chaînes découplées, dont les excitations de basse énergie sont des modes collectifs de charge et de spin décorrélés, par quel mécanisme un champ magnétique peut-il générer une polarisation de type Hall?

(ii) peut-on observer un effet Hall sans quasi-particules de Landau?

(iii) dans quelles conditions l'interprétation en terme de structure de bande devient-elle valide?

5.1.2 Le point de vue des supraconducteurs HT_c

Les mesures d'effet Hall ont révélé récemment la nature exotique de la phase métallique de certains supraconducteurs à haute température critique. Ce sont des résultats essentiels qui ont permis d'asseoir la notion de non-liquide de Fermi dans ces composés et il est important d'y faire référence et d'en rappeler les fondements théoriques.

Dans le cas des films de YBaCuO par exemple, on constate des changements substantiels à la fois de la valeur absolue et de la dépendance en température du coefficient de Hall R_H et de la résistivité bidimensionnelle ρ_{ab} en fonction du dopage en oxygène [73]. Néanmoins la cotangente de Hall $\cotan\theta_H$, qui s'écrit comme le rapport ρ_{ab}/R_H , varie de moindre façon avec le dopage, de seulement 20% environ quand R_H et ρ_{ab} varient au moins d'un facteur 5 [73][74][75]. Il se trouve qu'expérimentalement $\cotan\theta_H$ suit souvent une loi de puissance en T^2 . Cette loi est notamment très bien

vérifiée par les mesures réalisées sur des cristaux de $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Y}_x\text{CuO}_8$ [76], de $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_{8+\delta}$ surdopés [77] et de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ dopés au Zinc [78]. Cependant les mesures effectuées sur des films de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ [73][79] révèlent un changement graduel de cette loi de puissance, passant de T^2 à $T^{1.5}$ quand le dopage δ est réduit de 0.28 à 0.05. Une déviation de la loi quadratique en température est également observée dans les films de YBaCuO dopés au Calcium ainsi que l'ont montré J. R. Cooper *et al.* [73].

La dépendance en température de $\cot\theta_H$ est hautement inhabituelle. En effet, si l'on considère la relation entre la conductivité de Hall σ_{xy} et la conductivité longitudinale σ_{xx} :

$$\sigma_{xy} = \sigma_{xx}\omega_c\tau \quad (5.1)$$

où ω_c est la fréquence cyclotron de l'électron, il vient que

$$\cot\theta_H = \frac{\sigma_{xx}}{\sigma_{xy}} = \frac{1}{\omega_c\tau}. \quad (5.2)$$

Or à bas champ la résistivité se trouve varier linéairement en température sur une très large gamme de température. Notamment dans $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_6$ à dopage optimum la dépendance linéaire en température de la résistivité ρ_{ab} est vérifiée entre 7K et 700K [80]. Par conséquent $1/\tau$ est proportionnel à T , et d'après l'équation (5.2) dans un liquide de Fermi $\cot\theta_H$ devrait également être linéaire en T , contrairement à ce qu'indique l'expérience.

Le modèle à deux temps de relaxation développé par P. W. Anderson [81][78] prévoit quant à lui une dépendance quadratique en température de la cotangente de Hall. Il se propose ainsi d'interpréter les résultats expérimentaux à l'aide de concepts étrangers au liquide de Fermi: la conductivité serait déterminée par le temps de vie des holons τ_h (qui varierait comme $1/T$), et l'angle de Hall par le temps de vie des spinons τ_s (qui varierait comme $1/T^2$). Il s'agirait donc de la manifestation d'une séparation spin/charge [11]. La théorie phénoménologique d'Anderson peut s'intuiter [82] en considérant l'équation de Boltzmann [83] écrite en présence de champs électrique et magnétique uniforme (notations habituelles) [84]:

$$e\mathbf{E} \cdot \mathbf{v}_k \frac{\partial f_k^0}{\partial \varepsilon_k} + \frac{e}{\hbar c} (\mathbf{v}_k \times \mathbf{H}) \cdot \frac{\partial g_k}{\partial \mathbf{k}} = - \left(\frac{\partial f_k}{\partial t} \right)_{\text{collision}}, \quad (5.3)$$

où on écrit la fonction de distribution $f_{\mathbf{k}}$ à l'aide de la fonction d'écart à l'équilibre $g_{\mathbf{k}}$ comme $f_{\mathbf{k}} = f_{\mathbf{k}}^0 + g_{\mathbf{k}}$. Le terme de collision prend la forme

$$-\left(\frac{\partial f_{\mathbf{k}}}{\partial t}\right)_{\text{collision}} = \sum_{\mathbf{k}'} W_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}(g_{\mathbf{k}} - g_{\mathbf{k}'}) \quad (5.4)$$

où $W_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}$ est l'amplitude de probabilité d'une transition $\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k}'$. La suite consiste à chercher une solution de la forme

$$g_{\mathbf{k}} = e \frac{\partial f_{\mathbf{k}}}{\partial \varepsilon_{\mathbf{k}}} \mathbf{v}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{A} \quad (5.5)$$

puis de définir dans l'espace des vecteurs d'onde la composante de $(\mathbf{v}_{\mathbf{k}} - \mathbf{v}_{\mathbf{k}'})$ respectivement parallèle et perpendiculaire au déplacement de la surface de Fermi induit par le champ électrique. L'hypothèse phénoménologique introduite par Anderson est que ces composantes relaxent suivant deux taux de diffusion différents $1/\tau_{\parallel}$ et $1/\tau_{\perp}$ que l'on retrouve dans le terme de collision [85]. On montre alors que la fonction de distribution $g_{\mathbf{k}}$ qui traduit l'écart à l'équilibre s'écrit:

$$g_{\mathbf{k}} = e \frac{\partial f_{\mathbf{k}}}{\partial \varepsilon_{\mathbf{k}}} \left[\frac{\tau_h \mathbf{v} \cdot \mathbf{E} + \tau_h \tau_s \mathbf{v} \cdot (\omega_c \times \mathbf{E})}{1 + \omega_c^2 \tau_h \tau_s} \right] \quad (5.6)$$

avec $\tau_h \equiv \tau_{\parallel}$ et $\tau_s \equiv \tau_{\perp}$. Le tenseur de conductivité σ s'écrit donc

$$\sigma = \frac{\sigma_0}{1 + \omega_c^2 \tau_h \tau_s} \begin{pmatrix} 1 & \omega_c \tau_s \\ -\omega_c \tau_s & 1 \end{pmatrix} \quad (5.7)$$

où σ_0 est proportionnel à τ_h . Il s'en suit qu'à bas champ [86]:

$$\rho_{ab} \propto \frac{1}{\tau_h} \propto T \quad (5.8)$$

$$\cot \theta_H \propto \frac{1}{\tau_s} \propto T^2. \quad (5.9)$$

5.1.3 Premiers résultats dans les organiques

Les premières mesures d'effet Hall dans un composé organique quasi-unidimensionnel ont été réalisées en 1977 par J. R. Cooper et M. Miljak à Orsay et Zagreb. L'étude

portait alors sur la phase métallique des conducteurs bi-chaînes TTF-TCNQ [87] et HMTSF-TCNQ [88], archétypes des conducteurs quasi-1D. La constante de Hall de ces composés était en bon accord avec le modèle de bande de la température ambiante jusqu'à 150K, puis augmentait notablement à l'approche des transitions de Peierls. La technique de mesure consistait à stabiliser la température sur une période suffisamment longue pour pouvoir balayer le champ magnétique d'une polarité à l'autre tout en mesurant dans la configuration de Hall la tension transverse induite. Le signal de Hall étant, dans un régime de champ faible, linéaire en champ magnétique, on tirait la constante de Hall de la pente de la droite obtenue. Enfin, des mesures plus récentes mais non-quantitatives d'effet Hall sous pression ont été réalisées par K. Murata et collaborateurs sur certains composés organiques bidimensionnels ainsi que sur $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ sous 12 kbar [89]. Ces mesures ont été interprétées par Fortune *et al.* en terme de taux de diffusion électron-électron variant sur la surface de Fermi quasi-unidimensionnelle [90].

Les difficultés expérimentales et le faible rapport signal/bruit ont longtemps dissuadé les mesures d'effet Hall dans la phase métallique de $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$. Nous rapportons au cours de ce chapitre les résultats de travaux réalisés à l'université de Cambridge à l'aide d'un montage tournant et d'une installation électronique bas-bruit. Nous discutons en détail le protocole d'acquisition expérimentale, puis comparons la dépendance en température de la constante de Hall à la prédiction d'un modèle de bande basée sur l'anisotropie du taux de diffusion électronique. Enfin nous proposons une interprétation alternative qui rend compte d'un cross-over dimensionnel compatible avec les observations rapportées dans les premiers chapitres.

5.2 Protocole expérimental et Résultats

Nous avons réalisé des mesures d'effet Hall sur plusieurs monocristaux du composé $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ à pression ambiante, dans la configuration traditionnelle qui consiste à injecter un courant suivant l'axe a des chaînes, et mesurer la tension qui se développe suivant l'axe b sous l'effet d'un champ magnétique appliqué suivant l'axe c^* .

Deux types d'échantillons ont été étudiés: un premier bain constitué d'échantillons fins issus du laboratoire de K. Bechgaard à Risø (Danemark), un second bain synthétisé par B. Alavi à l'université de Los Angeles (UCLA). Dans le cas du deuxième groupe les échantillons étaient assez épais mais parfaitement homogènes comme l'ont suggéré les mesures de conductivité longitudinale, en très bon accord avec les valeurs de 500 à 800 $(\Omega\cdot\text{cm})^{-1}$ à température et pression ambiante publiées dans la littérature [91]. Il semblerait que cette homogénéité soit due à la réduction progressive du courant au cours de la synthèse électrochimique. Une technique similaire a été employée par B. Alavi pour obtenir les larges monocristaux qui ont fait l'objet de mesures optiques dans l'infrarouge lointain. On ne saurait trop insister sur cette condition essentielle que les monocristaux doivent être d'une parfaite homogénéité. Toute la discussion qui suit ne repose en fait que sur cette seule hypothèse.

5.2.1 Configuration des contacts

Les échantillons ont été montés dans une configuration 8 contacts sur les faces (*ac*). Afin d'assurer une injection de courant homogène et de réduire au maximum le bruit de grenaille à l'interface contact-échantillon, un dépôt d'or est réalisé au préalable. La technique de montage qui s'en suit est classique; on fait en sorte que le fil de mesure en or soit maintenu en contact direct avec le dépôt d'or avant d'appliquer une faible quantité de laque conductrice à base d'un complexe d'argent.

La principale difficulté des mesures de transport à pression ambiante est d'éviter les micro-cassures qui ne manquent pas de survenir en refroidissant l'échantillon. Bien qu'il ne soit pas établi que ces micro-fractures, visibles dans la résistivité, affectent notablement la mesure de Hall, elles peuvent se propager dans le volume de l'échantillon et modifier de façon substantielle la trajectoire et le libre parcours moyen des porteurs de charge. Pour minimiser les risques il est de bonne pratique de pomper sur l'échantillon pendant environ une heure avant le lancement de la mesure afin de désorber le solvant de laque d'argent déposé sur les contacts. Par ailleurs il est essentiel d'utiliser de véritables monocristaux présentant une certaine cohésion interne: les fractures apparaissent d'autant plus facilement que le matériau possède

une structure stratifiée ou fibreuse comme c'est le cas pour les échantillons de mauvaise qualité. Le fait qu'aucun accident n'ait été observé dans la courbe de résistivité des échantillons ayant développé les tensions de Hall les mieux résolues est sans doute lié à ce dernier point.

L'intérêt de la configuration 8 contacts est de pouvoir se ramener d'une façon ou d'une autre à la mesure équivalente d'un pont de résistances. C'est la raison pour laquelle on incorpore au montage une résistance variable dont le rôle est d'équilibrer le pont. Physiquement ceci permet d'extraire la tension de polarisation de Hall en annulant la composante magnétorésistive issue d'un alignement imparfait, ou "déphasage", des contacts de Hall. Un inconvénient est que ce déphasage dépend de l'anisotropie de l'échantillon qui elle-même varie fortement avec la température. Il faut donc fréquemment ré-équilibrer le pont au cours de la mesure. En pratique deux montages sont possibles: (i) installer la résistance variable en parallèle avec deux contacts de tension, ou (ii) installer la résistance variable au niveau de l'injection de courant. On note que la première méthode nécessite au préalable un adaptateur d'impédance qui permet d'éviter un déphasage du signal au sortir du transformateur.

Avant d'exposer enfin le principe de la mesure, il est important de considérer l'influence de la forte anisotropie uniaxiale sur nos mesures dans la configuration actuelle. Ainsi une mesure d'effet Hall traditionnelle suppose que la géométrie du système étudié soit effectivement bidimensionnelle. Par conséquent l'échantillon, et plus exactement la distribution de courant, doit être uniforme dans la direction du champ magnétique. Les dimensions typiques ($a \times b \times c$) des échantillons UCLA et Risø étaient de $(3000 \times 250 \times 225) \mu\text{m}^3$ et $(3000 \times 150 \times 75) \mu\text{m}^3$, respectivement. En d'autres termes les premiers échantillons sont très épais et les second plutôt minces. Considérant le résultat des mesures de résistivité suivant l'axe c et du transformateur de flux dans les plans (ab) , on peut raisonnablement prendre pour valeur de σ_a/σ_b et σ_a/σ_c à température et pression ambiante 80 et $3 \cdot 10^4$ respectivement. Ceci conduit d'après Montgomery à un échantillon isotrope équivalent [92] de dimension $(a' \times b' \times c') = (a\sqrt{\sigma/\sigma_a} \times b\sqrt{\sigma/\sigma_b} \times c\sqrt{\sigma/\sigma_c})$, avec $\sigma = (\sigma_a \cdot \sigma_b \cdot \sigma_c)^{1/3}$, c'est-à-dire $(260 \times 200 \times 3300) \mu\text{m}^3$ pour les échantillons UCLA et $(260 \times 120 \times 1100) \mu\text{m}^3$ pour les échantillons

Risø Il est inutile de dire dans ces conditions qu'avec un champ magnétique suivant l'axe c , nous sommes très loin d'un système idéalement bidimensionnel! On peut donc songer *a priori* à une possible distribution de courant non-uniforme dans la direction c [87]. Néanmoins si l'on se souvient que les échantillons sont homogènes, que les dépôts d'or au niveau des contacts électriques assurent une injection de courant uniforme et que finalement le transport suivant c est diffusif, on peut légitimement penser que notre expérience de Hall sonde effectivement une collection de plans (ab) identiques et découplés. Comme on est sur le point de le voir, ceci a pour conséquence que la valeur absolue de la constante de Hall est expérimentalement la même quelle que soit l'épaisseur des échantillons.

Par ailleurs l'incertitude relative sur la mesure $\Delta R_H/R_H$ liée à la largeur finie des contacts n'est pas non plus significative, ainsi qu'on peut le voir en reprenant l'analyse de Van der Pauw [93][94] appliquée à l'échantillon isotrope équivalent:

$$\frac{\Delta R_H}{R_H} = -\frac{2d'}{\pi C'} = -\frac{1}{\pi} \cdot \frac{d}{L + w\sqrt{\sigma_a/\sigma_b}} \quad (5.10)$$

où d' et C' sont respectivement la largeur des contacts et la circonférence de l'échantillon équivalent, et d , L et w sont la largeur des contacts, la longueur et la largeur de l'échantillon réel. A température ambiante l'erreur relative n'est que de 1% environ. En outre le rapport (σ_a/σ_b) est une fonction décroissante de la température comme l'ont montré les mesures de transformateur de flux dans le plan (ab) . Il s'en suit que l'erreur relative liée à la largeur des contacts n'est jamais significative sur toute la plage de température explorée.

Dans le même esprit on peut légitimement s'intéresser à l'effet de l'anisotropie σ_a/σ_b sur la distribution du vecteur densité de courant dans les plans (ab) . La symétrie de la configuration des contacts de courant (fig. 5.1) reflète la symétrie du potentiel électrique qui se développe dans l'échantillon. Un calcul similaire à ceux détaillés dans le chapitre qui précède conduit à une expression de la composante suivant la direction des chaînes du vecteur densité de courant. La figure (fig. 5.1) en donne une représentation en fonction de la variable y qui indexe l'axe b sur toute la largeur de l'échantillon. Il est clair que, pour $\sigma_a/\sigma_b \geq 50$ comme c'est le cas usuellement, j_a est non-uniforme suivant b et que cette distribution varie comme l'anisotropie avec

la température. Ceci n'est absolument pas un problème ainsi que l'a montré Van der Pauw [93][94] dans le cas d'un système vérifiant les conditions suivantes: (i) les contacts se trouvent à la circonférence de l'échantillon; (ii) les contacts sont suffisamment petits; (iii) l'échantillon est homogène en épaisseur; (iv) la surface de l'échantillon est simplement connectée, c'est-à-dire que l'échantillon ne présente pas de cavités isolées; (v) les mesures sont réalisées à bas champ, tel que la constante de Hall est indépendante du champ magnétique. Dans ce cas, tant que l'on peut négliger la courbure des lignes de courant sous l'effet du champ magnétique (c'est-à-dire loin des contacts de courant), la différence de potentiel qui se développe entre deux points arbitraires de la circonférence de l'échantillon par effet Hall ne dépend pas de la distribution du courant dans l'échantillon.

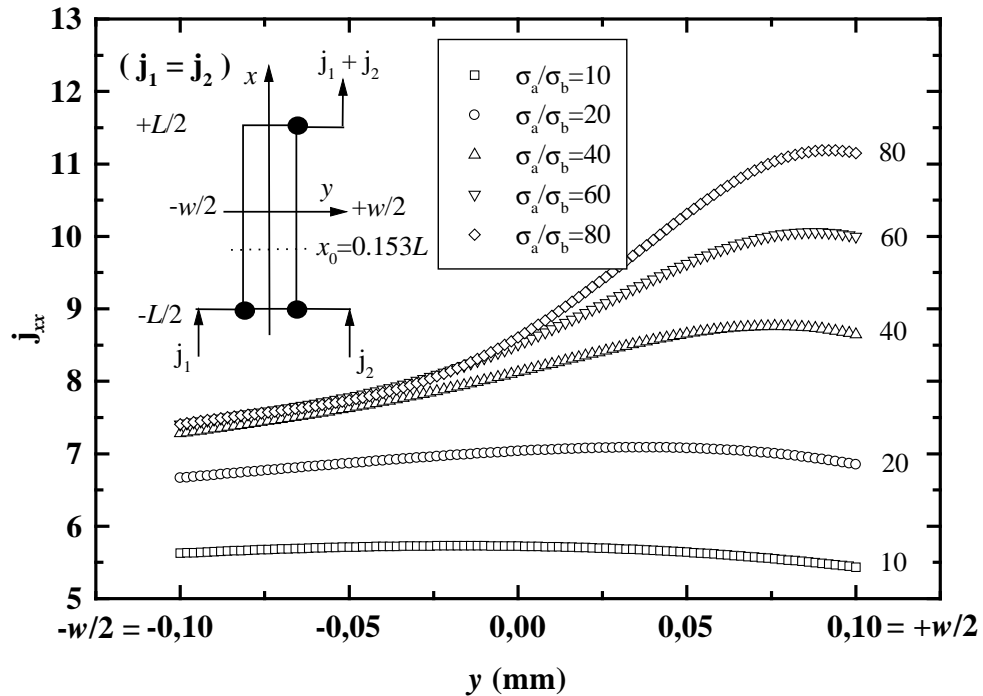


Figure 5.1: *Inhomogénéité de la distribution de courant dans les plans (ab). L'injection du courant dans la configuration 8-contacts n'est pas uniforme.*

5.2.2 Principe de la mesure

L'échantillon est monté sur un plateau tournant installé à l'extrémité d'une canne de mesure que l'on place dans l'insert d'une bobine supraconductrice 13/15 Teslas. Cryostat et bobine partagent le même bain d'hélium liquide mais un système de thermalisation de l'échantillon par circulation d'hélium gazeux à température variable permet de réaliser un thermostat parfaitement stable de 14 à 400 K.

Le principe de mesure consiste en une série d'acquisitions de la tension transverse sous un champ magnétique fixe, le porte-échantillon étant alternativement tourné de 180° entre chaque mesure. L'idée est de mesurer quasi-simultanément la tension transverse dans les deux orientations du champ, $+c^*$ et $-c^*$, afin d'antisymétriser le signal et d'en extraire la seule composante dépendante de l'orientation du champ. On récupère ainsi une tension de Hall pure dépourvue de contribution magnétorésistive. En pratique, si l'on désigne par "haut" (H) et "bas" (B) les deux orientations du champ suivant $+c^*$ et $-c^*$ respectivement, une mesure de Hall consiste en la séquence suivante: acquisition H, acquisition B, acquisition H, acquisition B, acquisition H. Cela nous permet donc d'en tirer 6 signaux antisymétrisés (comptez-les!). Chaque acquisition individuelle H ou B est elle-même le résultat d'un signal amplifié par un transformateur de gain 1: 51 placé en amont d'un amplificateur à détection synchrone routé en sortie vers un voltmètre de type Keithley 2000 puis moyenné sur quelques secondes.

Toutes ces précautions sont rendues nécessaires par la faible amplitude du signal de Hall, typiquement quelques nanoVolts. La mesure de l'effet Hall est ainsi de nature statistique: *a posteriori* un filtre informatique sélectionne les mesures pour lesquelles au moins 4 des 6 acquisitions se retrouvent dans un intervalle de quelques nanoVolts seulement, et on appelle mesure de Hall la moyenne arithmétique des acquisitions ainsi retenues. Il s'en suit que le signal de Hall pur est résolu à 1 ou 2 nanoVolts près, ce qui est suffisant dès lors que les variations du signal en température ont une amplitude de 15 à 20 nanoVolts, ainsi qu'on le voit plus loin. (La valeur absolue du signal étant connue on pourra à la fin de l'expérience mesurer le signe de la constante de Hall grâce à une croix de Hall de référence en cuivre.)

Simultanément on s'assure de la parfaite stabilité de la température; en pratique une excursion de 50 mK est tolérée. Sur de courtes échelles de temps la température peut sembler stable mais sur de plus longues échelles de temps, telles que celles nécessaires à une mesure complète (10 à 15 minutes) les oscillations de température deviennent perceptibles et faussent la statistique. On prend donc soin d'amortir ces oscillations avant de lancer une mesure. En particulier tourner lentement le porte-échantillon dans le champ permet de réduire l'effet de chauffage des courants de Foucault.

Par ailleurs il est important de se convaincre que le processus d'antisymétrisation du signal extrait effectivement une composante de Hall pure, et ce sur toute la gamme de température explorée. Tous les 50K environ on procède donc à une dépendance angulaire du signal transverse, c'est-à-dire qu'à température fixe on effectue une acquisition tous les 2 degrés entre 0 et 360°. La Figure 5.2 montre quelques dépendances angulaires typiques à diverses températures. L'analyse de Fourier de ces dépendances angulaires permet de déterminer les coefficients d'une combinaison linéaire de fonctions trigonométriques. Il s'en suit que pour toutes les températures contrôlées, le signal brut antisymétrisé rend compte de 95 à 99% de l'amplitude du signal de Hall, le reste étant une composante magnétorésistive résiduelle. Il faut noter que l'analyse de Fourier rend compte d'un déphasage de 18 degrés qui correspond précisément à l'angle formé par les axes c et c^* puisque dans le réseau triclinique l'axe c pointe à 72 degrés au-dessus du plan (ab) .

On s'est enfin assuré de la linéarité du signal en champ magnétique, par des mesures comparées sous 4, 8 et 12T. Cependant il se trouve qu'à la fois le signal hors-phase et l'amplitude du second harmonique dans la dépendance angulaire varient comme le carré du champ magnétique. On s'est donc contenté de mesures sous le champ optimal de 8T permettant une résolution de Hall satisfaisante et un faible signal hors-phase.

5.2.3 Résultats

5.2.3.1 Une valeur de référence

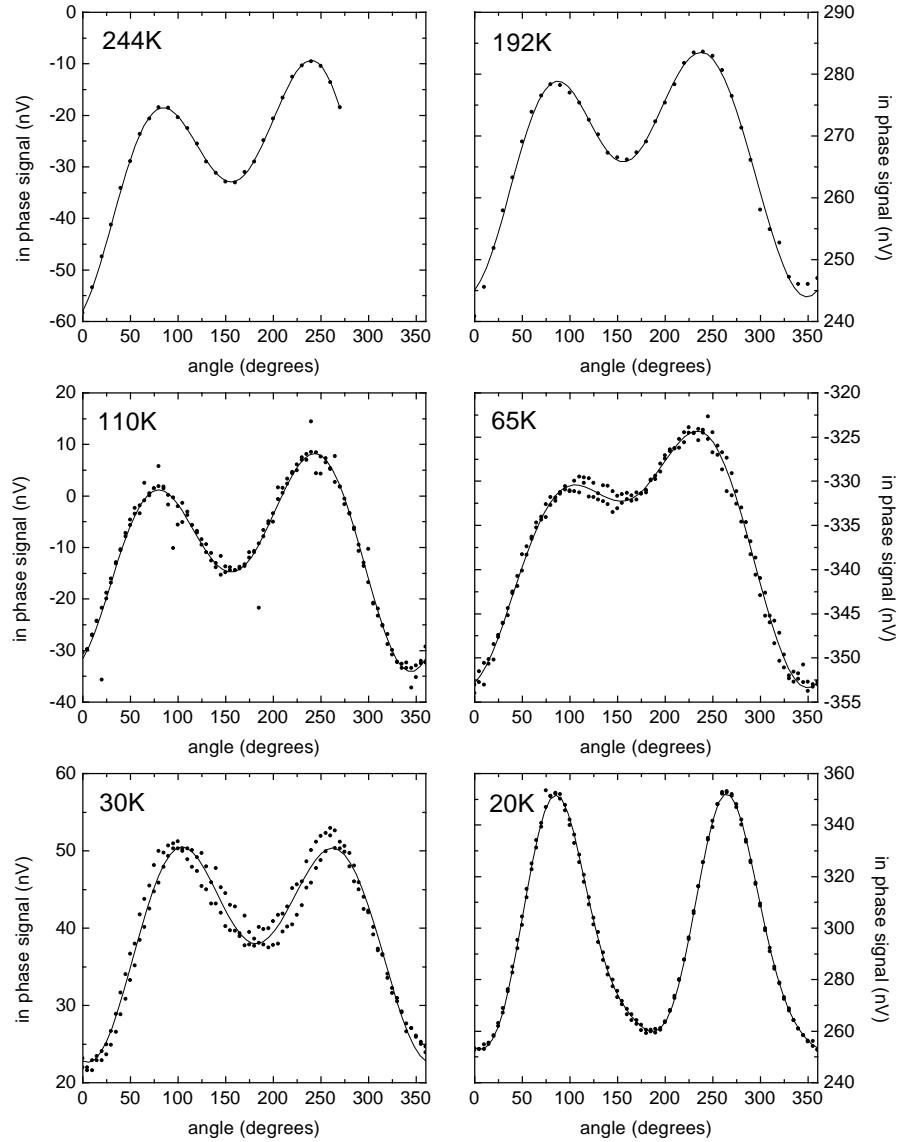


Figure 5.2: *Dépendance angulaire du signal transverse à diverses températures.*

Au moment d'exposer les principaux résultats d'effet Hall dans la phase métallique de $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$, qui sont des résultats *quantitatifs*, il est intéressant de disposer d'une valeur absolue de référence qui permette une première comparaison avec la valeur absolue de la constante de Hall expérimentale. Une bonne référence est par exemple la constante de Hall prédite par un modèle basé sur la structure de bande et un temps de collision isotrope τ dans l'espace des vecteurs d'onde (k_x, k_y) . Partant

de l'expression de la conductivité de Hall σ_{xy} :

$$\sigma_{xy} = \frac{2e^3}{\hbar} H \sum_k - \frac{\partial f}{\partial E} v_y \tau \left(v_y \frac{\partial}{\partial k_x} - v_x \frac{\partial}{\partial k_y} \right) v_x \tau \quad (5.11)$$

on se ramène à la conductivité de Hall à dimension 2:

$$\sigma_{xy} = \frac{e^3 H}{2\pi^2 \hbar} \int dl \frac{dE}{|\nabla E|} \left(-\frac{\partial f}{\partial E} \right) v_y \tau \left(v_y \frac{\partial}{\partial k_x} - v_x \frac{\partial}{\partial k_y} \right) v_x \tau \quad (5.12)$$

c'est-à-dire

$$\sigma_{xy}(T) = \int \left(-\frac{\partial f}{\partial E} \right) \sigma(E) dE \quad (5.13)$$

avec

$$\sigma_{xy}(E_F) = \frac{e^3 H}{2\pi^2 \hbar^2} \int \frac{dl}{|v_\perp|} v_y \tau \left(v_y \frac{\partial}{\partial k_x} - v_x \frac{\partial}{\partial k_y} \right) v_x \tau \quad (5.14)$$

(H désigne le champ magnétique, e , v et E la charge, la vitesse et l'énergie de l'électron, f la distribution de Fermi-Dirac et ℓ la coordonnée curviligne sur la surface de Fermi). De même:

$$\sigma_{xx} = \frac{e^2}{2\pi^2 \hbar} \int v_x^2 \tau \frac{dl}{|v_\perp|} \quad (5.15)$$

$$\sigma_{yy} = \frac{e^2}{2\pi^2 \hbar} \int v_y^2 \tau \frac{dl}{|v_\perp|} \quad (5.16)$$

où $|v_\perp|$ est le module du vecteur vitesse de l'électron orthogonal à la surface de Fermi. Considérant la relation de dispersion d'un système bidimensionnel (avec les notations usuelles):

$$E = -2t_a \cos k_x a - 2t_b \cos k_y b \quad (5.17)$$

il vient:

$$v_x = \frac{2t_a a}{\hbar} \sin k_x a \quad ; \quad v_y = \frac{2t_b b}{\hbar} \sin k_y b \quad (5.18)$$

soit, avec

$$|v_\perp| \simeq v_F = \frac{2t_a a}{\hbar} \sin k_F a \quad \text{et} \quad \int dl = 2 \int_{-\pi}^{+\pi} dk_y \quad (5.19)$$

(où le facteur 2 provient des deux branches de la surface de Fermi), on obtient :

$$\begin{aligned}\sigma_{xy} &= \frac{e^3 H \tau^2}{2\pi^2 \hbar^2} 2 \int_{-\pi}^{+\pi} \frac{dk_y}{2t_a a \sin k_F a} \cdot \frac{4t_b^2 b^2}{\hbar^2} \sin^2 k_y b \cdot 2t_a a^2 \cos k_x a \\ &= \frac{4e^3 H \tau^2}{\pi^2 \hbar^4} a b^2 t_b^2 \int_{-\pi}^{+\pi} dk_y \frac{\sin^2 k_y b}{\tan k_F a}.\end{aligned}\quad (5.20)$$

D'où :

$$\sigma_{xy} = \frac{4e^3}{\pi \hbar^4} H \tau^2 a b \frac{t_b^2}{\tan k_F a}.\quad (5.21)$$

De même :

$$\sigma_{xx} = \frac{e^2}{2\pi^2 \hbar} \int v_x^2 \tau \frac{d\ell}{|v_{\perp}|} = \frac{4e^2}{\pi \hbar^2} \tau \frac{a}{b} t_a \sin k_F a \quad (5.22)$$

$$\begin{aligned}\sigma_{yy} &= \frac{e^2}{2\pi^2 \hbar} \int v_y^2 \tau \frac{d\ell}{|v_{\perp}|} = \frac{e^2}{2\pi^2 \hbar} 2 \int \frac{4t_b^2 b^2}{\hbar} \tau \sin^2 k_y b \frac{dk_y}{2t_a a \sin k_F a} \\ &= \frac{2e^2}{\pi \hbar^2} \tau \frac{b t_b^2}{a t_a} \cdot \frac{1}{\sin k_F a}.\end{aligned}\quad (5.23)$$

On en tire une expression de la résistivité de Hall ρ_{xy} :

$$\rho_{xy} = \frac{\sigma_{xy}}{\sigma_{xx} \sigma_{yy}} = \frac{\pi}{2e} \cdot \frac{ab}{\tan k_F a} \quad (5.24)$$

que l'on exprime plus communément à l'aide du nombre d'états $N = \frac{2}{4\pi^2} \cdot 2k_F \cdot \frac{2\pi}{b}$:

$$\rho_{xy} = \frac{1}{Ne} \frac{k_F a}{\tan k_F a} \quad (5.25)$$

ou en terme de densité de porteurs n dans l'échantillon :

$$\rho_{xy} = \frac{1}{ne} \frac{k_F a}{\tan k_F a} \quad (5.26)$$

c'est-à-dire la constante de Hall d'un système d'électrons libres (force de Lorentz), corrigée par la structure de bande. En pratique on compte un porteur de charge (un trou) par molécule $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$, dont on connaît les paramètres de maille [95]. Il vient que l'inverse de la densité de porteurs est égal à

$$1/n = 7.3 \times 7.71 \times 13.52 \sin 71^\circ \times 10^{-30} \text{m}^{-3} = 7.195 \times 10^{-28} \text{m}^3 \quad (5.27)$$

ce qui pour une bande quart-remplie ($k_F = \pi/4$) conduit à

$$\rho_{xy} \simeq 3.5 \times 10^{-9} \text{m}^3 \cdot \text{C}^{-1}. \quad (5.28)$$

Ceci montre bien que dans un modèle de bande, on doit obtenir un signal de Hall même si le système est extrêmement anisotrope. Mathématiquement ceci vient du fait qu'à la fois σ_{xy} et σ_{yy} varient en t_b^2 ; si le couplage transverse t_b tend vers zéro, le rapport de ces deux quantités est fini et la constante de Hall est mesurable.

5.2.3.2 Les résultats expérimentaux

Des résultats préliminaires suggéraient déjà une dépendance en température de la constante de Hall (fig. 5.3) mais le rapport signal/bruit était clairement trop faible pour en tirer des conclusions définitives. Une dépendance en température plus nette avait été observée par la suite sur un premier échantillon synthétisé à UCLA (fig. 5.4), résultat qui allait encourager à renouveler l'expérience avec de nouveaux échantillons de qualité optimale. Une synthèse lancée par B. Alavi à Los Angeles au début de l'été 1998 devait ainsi fournir les échantillons mesurés en septembre avec un rapport signal/bruit remarquable puisque le signal était résolu à 2 nanoVolts près. Parallèlement un échantillon de très bonne qualité avait été isolé dans une aiguille monocristalline synthétisée par K. Bechgaard à Risø

Les dépendances en température de la constante de Hall mesurée dans ces deux échantillons sont représentées par la figure (fig. 5.5). Les deux profils de Hall révèlent des structures très similaires ainsi que certaines températures caractéristiques. D'un premier abord la constante de Hall dans la phase métallique est positive et semble osciller autour de la valeur de bande calculée précédemment, tout en ne s'en écartant jamais de façon significative. Mais si l'on regarde plus en détail ces dépendances en température on constate que la constante de Hall sature à température ambiante à une valeur tout à la fois proche de la valeur de bande et de la simple force de Lorentz du gaz d'électrons libres. La saturation est observée jusqu'à 310K; au-dessus de 50° Celsius les cristaux organiques se désagrègent et la mesure n'est plus possible (fig. 5.6). Entre 310K et 130K le signal décroît de 45% d'une façon qui éventuellement suggère une loi de puissance en température de la forme T^β avec $\beta = 0.7$. La tension

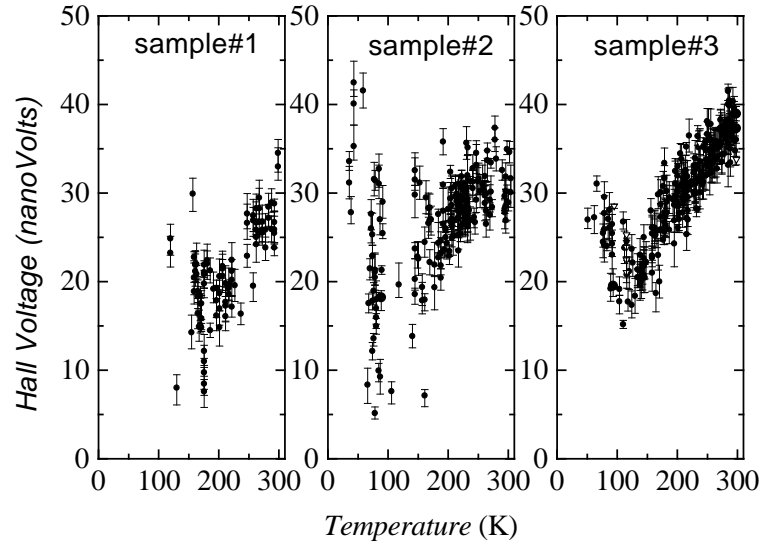


Figure 5.3: *Premières mesures d'effet Hall. Nos essais préliminaires suggéraient une faible dépendance en température de la constante de Hall.*

de Hall présente un minimum local vers 130K puis augmente de 15% jusqu'à la valeur de bande où elle atteint un maximum local vers 60K. Le signal chute alors brutalement et tombe à zéro (résolu à 1 nanoVolt) à 17K, puis change de signe à l'approche de l'état fondamental Onde de Densité de Spin. On note que, comme le montre des résultats additionnels sous 4 et 12T (fig. 5.7) la tension de Hall est bien linéaire en champ magnétique sur toute la gamme de température explorée, y compris en-dessous de 60K où le signal chute soudainement. Il s'en suit que la position en température du minimum (130K), du maximum (60K), et du signal nul (17K) reste inchangée pour au moins ces trois valeurs de champ (4, 8 et 12T) et peuvent donc être vue comme indépendante du champ magnétique. Notamment la température de localisation induite par le champ, qui coïncide avec celle du minimum de résistivité, varie linéairement en fonction du champ magnétique (en première approximation), à la différence de la température de tension de Hall nulle qui est donc insensible au champ. La diminution du rapport signal/bruit vers 100K est probablement due à l'augmentation de rigidité des fils d'or et par suite à l'entrée en résonance de l'échantillon et du courant excitateur. On ne peut malheureusement pas sortir facilement de ce régime d'oscillations forcées car augmenter la fréquence

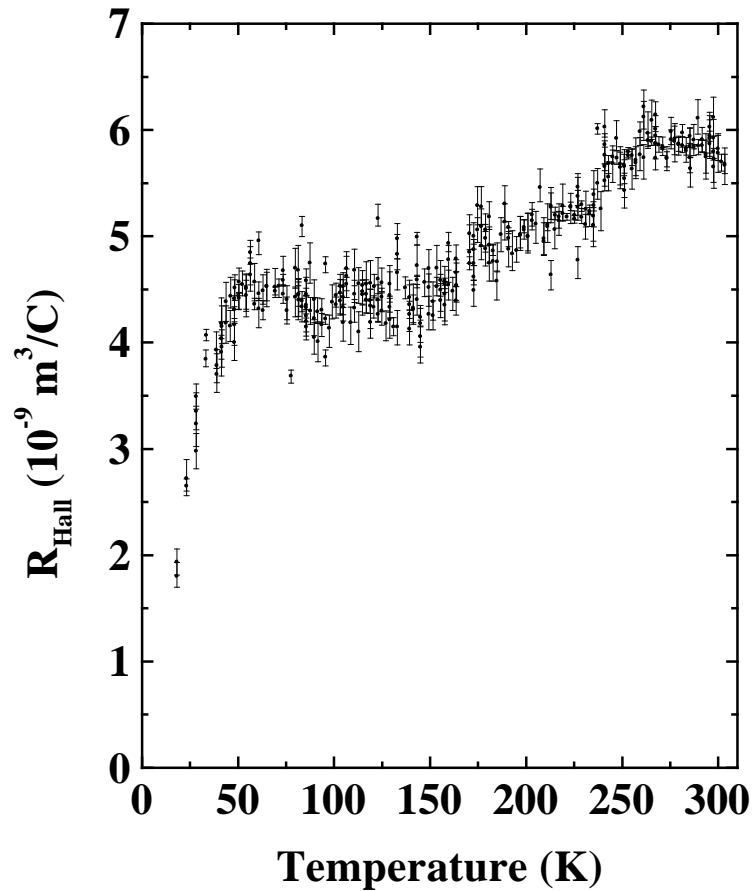


Figure 5.4: *Premier échantillon UCLA mesuré en effet Hall. La dépendance en température est plus nette. On voit une saturation vers 300K, et un changement de régime vers 150K.*

du courant revient à déphaser le signal en sortie du transformateur.

Tout en continuant à se limiter à quelques constatations expérimentales on peut noter que la résistivité des échantillons, mesurée simultanément, révèle également certaines structures intéressantes qui précisément semblent coïncider avec les anomalies de la constante de Hall. Il nous faut au préalable corriger la dépendance en température de la résistivité de façon à conserver quelle que soit la température un volume de maille identique correspondant à la maille du réseau cristallin à l'hélium liquide. La procédure de "correction à volume constant" est quelque peu différente de celle exposée dans le chapitre 4 pour corriger $\rho_b(T)$ ou $\rho_c(T)$. Le paramètre de

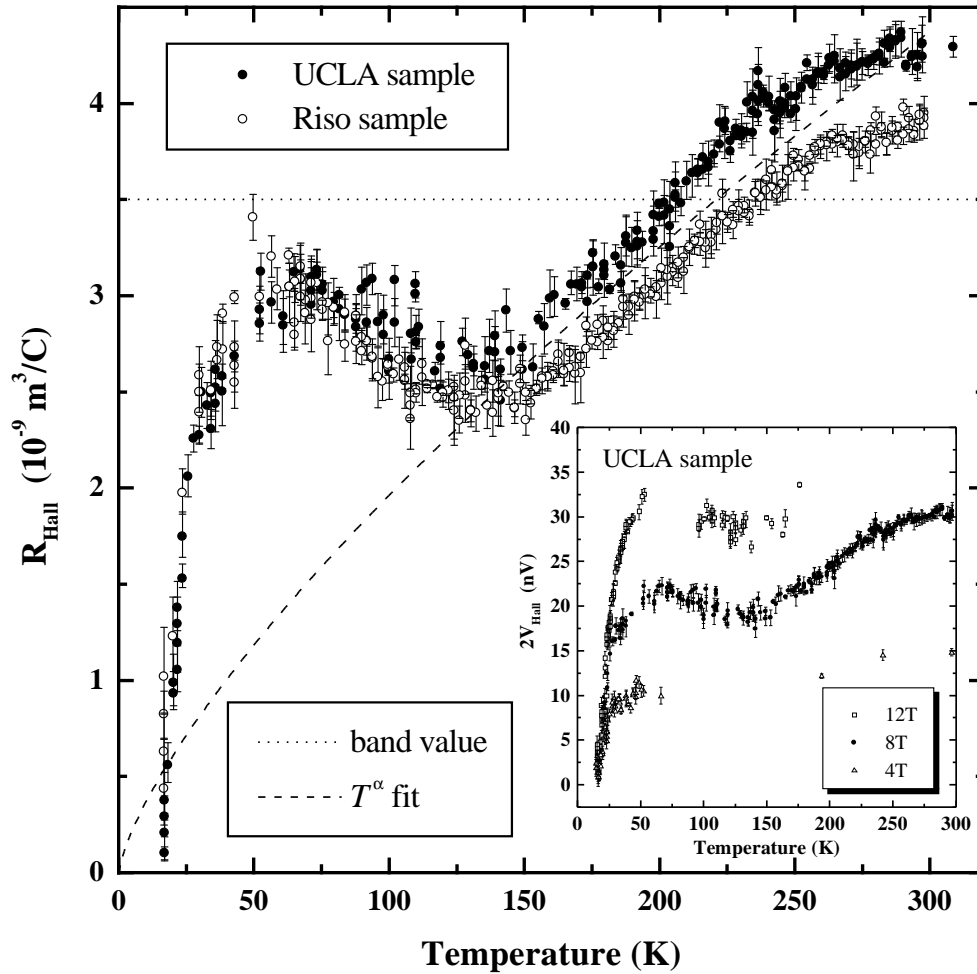


Figure 5.5: *Dépendance en température de la constante de Hall. Signal de Hall enregistré dans un échantillon synthétisé par B. Alavi (UCLA) et un échantillon synthétisé par K. Bechgaard. La ligne pointillée horizontale donne la valeur de la constante de Hall (indépendante de la température) dans un modèle de bande où le temps de diffusion est uniforme sur la surface de Fermi. La courbe en tirets donne l'allure d'une loi de puissance en T^α avec $\alpha = 0.7$.*

maille $a(T)$ diminue avec la température [95]:

$$a(T) \simeq 7.07664 - 1.59695 \cdot 10^{-4}T + 7.53686 \cdot 10^{-6}T^2 - 3.12796 \cdot 10^{-8}T^3 + 5.36104 \cdot 10^{-11}T^4$$

La contraction thermique est équivalente à l'application d'une pression à température ambiante. Connaissant la variation $a(T)$ à 1bar et $a(p)$ à 300K, on détermine à une température T la pression p qui fournit le même paramètre de maille à 300K. La

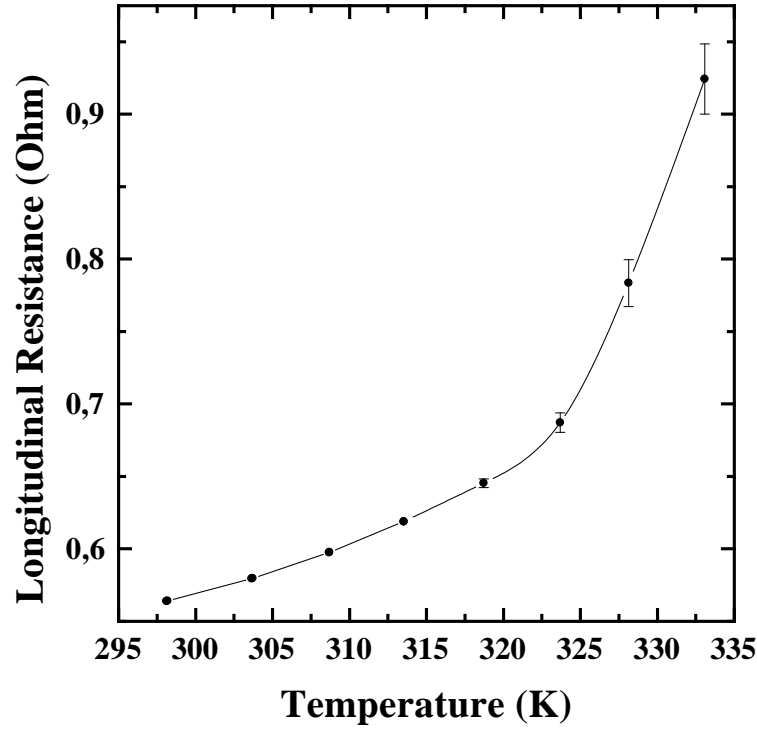


Figure 5.6: *Désagrégation des échantillons au-delà de 40 degrés Celsius.*

pression p_i à appliquer à T pour retrouver le paramètre de maille à 4K est donc la différence entre la pression à appliquer à température ambiante pour atteindre le paramètre de maille équivalent à 4K et la pression p . Sachant que des mesures sous pression gaz ont montré que la conductivité suivant a varie dans la phase métallique de 25% par kbar quelle que soit la température [96], les résistivités brute $\rho_a^{(p)}$ et corrigée à volume constant $\rho_a^{(V)}$ sont liées par:

$$\rho_a^{(V)} = \frac{\rho_a^{(p)}}{1 + 0.25p_i} \quad (5.29)$$

Ces précautions étant respectées on constate que la résistivité suit un comportement quadratique en température entre 50K et 130K, c'est-à-dire entre le maximum et le minimum de la constante de Hall (fig. 5.9). Entre 150K et 310K la résistivité semble suivre une autre loi de puissance avec un exposant inférieur à 1. Enfin on note que la chute du signal à 50K coïncide avec l'apparition d'une magnétorésistance mesurable, elle-même liée à des effets précurseurs de corrélations anti-ferromagnétiques (insert de la fig. 5.9).

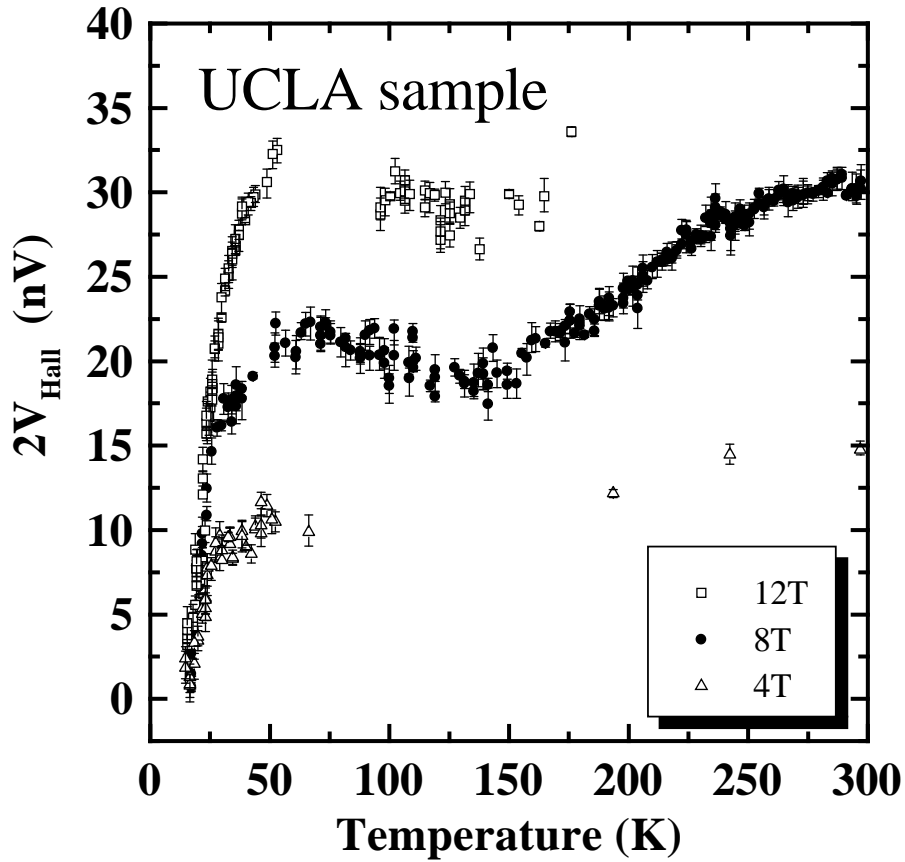


Figure 5.7: Linéarité en champ de la constante de Hall. L'enregistrement du signal de Hall en température a été réalisé sous 4, 8 et 12T (échantillon UCLA).

5.3 Discussion

5.3.1 Le liquide de Fermi

5.3.1.1 Présentation du modèle

Bien que la dépendance en température de la constante de Hall révèle des structures bien définies, les valeurs absolues s'éloignent peu de la valeur de bande et il importe avant tout de confronter nos résultats avec les modèles théoriques construits sur la base d'un liquide de Fermi. Alors que nos mesures étaient en cours nous avons pris connaissance des travaux de V. M. Yakovenko et A. T. Zheleznyak [97], qui développent une théorie systématique de l'effet Hall dans un métal quasi-unidimensionnel où le temps de relaxation des électrons varie sur la surface de Fermi et développe des

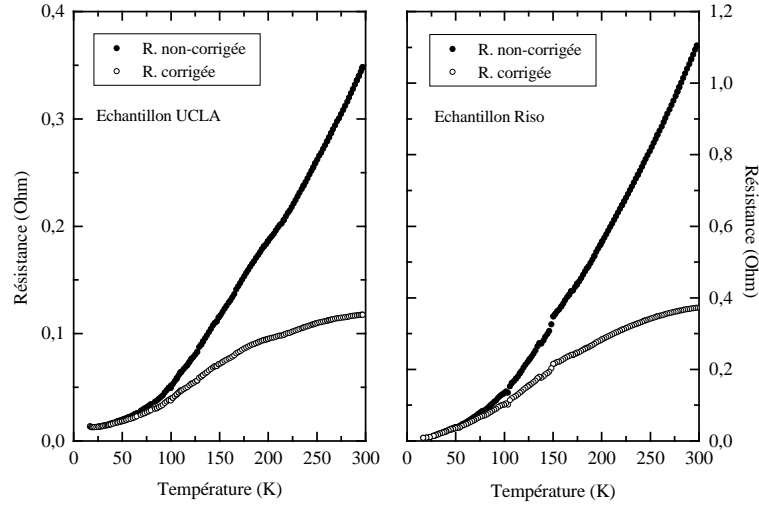


Figure 5.8: *Résistance brute et corrigée à volume constant pour les échantillons UCLA et Riso.*

”hot spots” [98] lorsque la température est inférieure au couplage nu suivant b . Dans la suite on expose brièvement les fondements généraux de cette théorie ainsi que les limites de sa validité.

La conductivité de Hall σ_{xy} d’un métal bidimensionnel dans la limite semi-classique des bas champs ($\omega_c \tau \ll 1$) a une représentation géométrique simple: elle est proportionnelle au nombre de quanta de flux qui traversent la surface balayée par le vecteur libre parcours moyen $\mathbf{l}_{\mathbf{k}}$ lorsque \mathbf{k} décrit la surface de Fermi. Ce point de vue est révélateur du rôle joué par la courbure de la surface de Fermi dans la conductivité de Hall.

Ce résultat général, dû à Ong [99], s’obtient en reprenant la solution de l’équation de Boltzmann en champ faible qui conduit à la conductivité σ_{xy} :

$$\sigma_{xy} = \frac{2e^3}{\hbar} H \sum_{\mathbf{k}} \left(\frac{-\partial f_{\mathbf{k}}}{\partial \varepsilon} \right) (v_{\mathbf{k}_y} \tau_{\mathbf{k}}) \left\{ v_{\mathbf{k}_y} \left(\frac{\partial}{\partial \mathbf{k}_x} \right) - v_{\mathbf{k}_x} \left(\frac{\partial}{\partial \mathbf{k}_y} \right) \right\} (v_{\mathbf{k}_x} \tau_{\mathbf{k}}). \quad (5.30)$$

Si l’on choisit un champ magnétique \mathbf{H} perpendiculaire au système bidimensionnel et l’on ne s’intéresse qu’aux températures très inférieures à l’énergie de Fermi, l’équation (5.30) se réduit à [99]

$$\sigma_{xy} = \frac{e^3}{2\pi^2 \hbar} \oint dk_t |\mathbf{v}|^{-1} l_{\mathbf{k}_y} (\mathbf{v} \times \mathbf{H}) \cdot \nabla l_{\mathbf{k}_x} \quad (5.31)$$

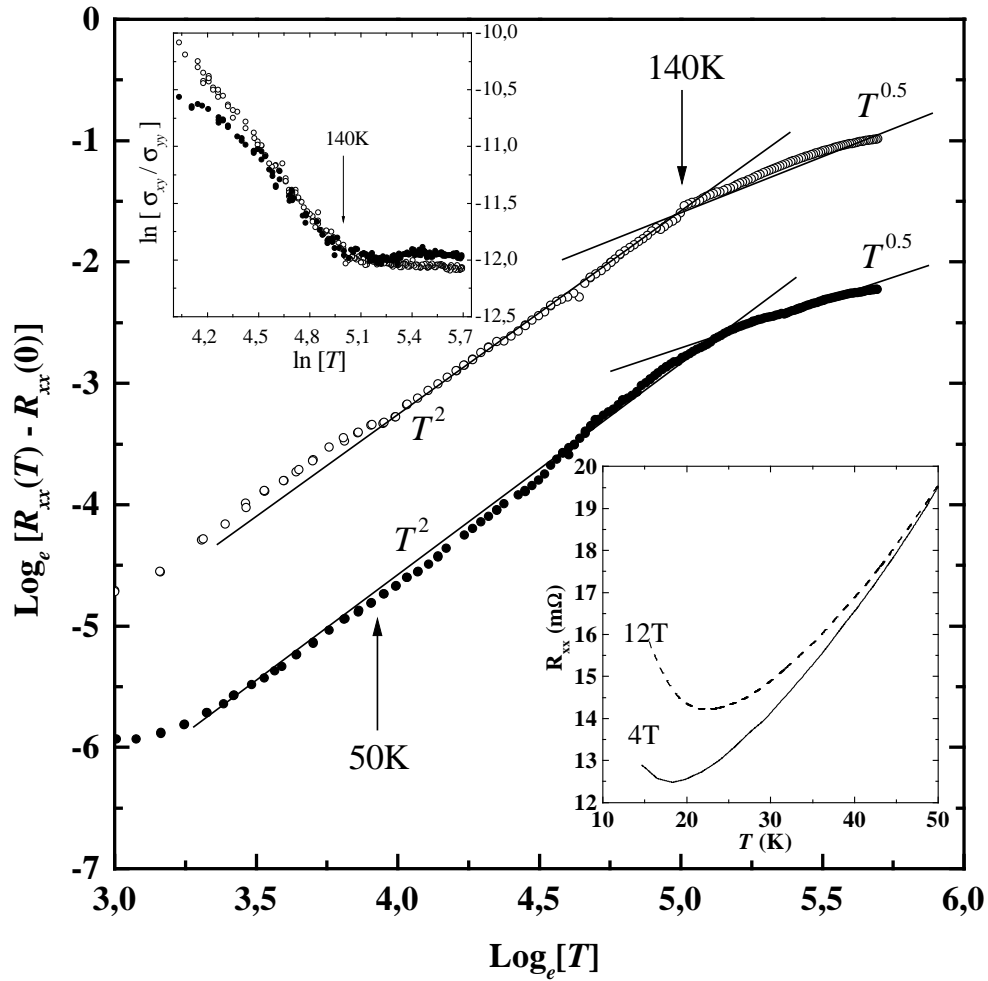


Figure 5.9: *Dépendance en température de la magnéto-résistance. La magnéto-résistance des deux échantillons est corrigée à volume constant. Une loi de puissance en T^2 est bien vérifiée sur une décade en-dessous de 130K. Au-dessus de 150K une loi en $T^{0.5}$ semble valide. L'insert supérieur donne la mobilité non-corrigée, et l'insert inférieur montre une magnéto-résistance finie en-dessous de 50K.*

où l'on a fait intervenir dans la circulation autour de la surface de Fermi (k_t est la composante du vecteur d'onde \mathbf{k} tangentielle à la surface de Fermi) la densité d'états $|\mathbf{v}|^{-1}$, et les composantes suivant \mathbf{k}_x et \mathbf{k}_y du vecteur libre parcours moyen $\mathbf{l}_{\mathbf{k}} = \mathbf{v}_{\mathbf{k}}\tau_{\mathbf{k}}$. Ceci fait apparaître la surface balayée par $\mathbf{l}_{\mathbf{k}}$ autour de la surface de Fermi:

$$\sigma_{xy} = \frac{e^2}{h} \frac{1}{\pi l_H^2} \frac{\mathbf{H}}{H} \frac{1}{2} \oint d\mathbf{l}_{\mathbf{k}} \times \mathbf{l}_{\mathbf{k}} \quad (5.32)$$

soit encore

$$\sigma_{xy} = \frac{e^2}{h} 2 \frac{\phi}{\phi_0} \quad (5.33)$$

où $l_H = \sqrt{\hbar/eH}$ est la longueur magnétique, ϕ le flux magnétique traversant la surface balayée par \mathbf{l}_k , et $\phi_0 = h/e$ le quantum de flux.

Dans le cas d'un système quasi-unidimensionnel caractérisé par une intégrale de transfert transverse t_b et un écart au nesting parfait t'_b , la surface balayée par \mathbf{l}_k vaut [90]

$$\frac{2b^2 t_b v_F}{\hbar} \int_{-\pi/b}^{+\pi/b} \tau_{\mathbf{k}}^2(k_y) \left[\cos(k_y b) + \frac{4t'_b}{t_b} \cos(2k_y b) \right] dk_y \quad (5.34)$$

si l'on suppose que $\tau_{\mathbf{k}}$ ne varie que suivant la composante y du vecteur d'onde (on a noté b le pas du réseau direct dans la direction transverse). L'intérêt de cette formulation est de souligner le rôle de l'anisotropie du temps de relaxation dans la conductivité de Hall. On voit par exemple que la surface balayée par \mathbf{l}_k , et donc σ_{xy} , est nulle si le temps de relaxation est isotrope dans l'espace des vecteurs d'onde, *i.e.* $\tau_{\mathbf{k}} = C^{ste}$. Dans ce contexte l'anisotropie de $\tau_{\mathbf{k}}$ contrôle seule la construction d'une tension de Hall dans l'échantillon. En particulier on s'attend à ce que $\tau_{\mathbf{k}}$ soit court dans les régions de la surface de Fermi connectées par un vecteur d'onde $2\mathbf{k}_F$ [98], puisque la diffusion y est préférentiellement contrôlée par les processus Umklapp qui transfèrent instantanément deux électrons d'une feuille à l'autre de la surface de Fermi.

L'expression du taux de diffusion d'un électron de moment $\mathbf{k} = (k_x, k_y, k_z)$ est donnée par la relation générale [100]

$$\begin{aligned} \frac{1}{\tau_{\mathbf{k}}} &= g_3^2 \int \frac{d^3 k_1 d^3 k_2 d^3 k_3}{(2\pi)^6} \delta(\mathbf{k} + \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3) \times \\ & n[\varepsilon_+(\mathbf{k})] n[\varepsilon_+(\mathbf{k}_1)] (1 - n[\varepsilon_-(\mathbf{k}_2)]) (1 - n[\varepsilon_-(\mathbf{k}_3)]) \times \\ & \delta[\varepsilon_+(\mathbf{k}) + \varepsilon_+(\mathbf{k}_1) - \varepsilon_-(\mathbf{k}_2) - \varepsilon_-(\mathbf{k}_3)] \end{aligned} \quad (5.35)$$

où g_3 est l'amplitude du processus Umklapp, $n(\varepsilon)$ est la fonction de distribution de Fermi et l'intégration est menée sur toute la zone de Brillouin. Le calcul du taux de diffusion intègre la relation de dispersion électronique d'un système quasi-1D dans

laquelle l'expression des harmoniques rend compte du déphasage [97] introduit par la structure cristallographique de $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ ($2t_{b,c} \cos[k_{x,y} + \varphi_{1,2}]$). De façon plus précise un modèle réaliste pour la structure de bande de la famille $(\text{TM})_2\text{X}$ est basé sur deux sortes d'intégrales de transfert t_1 et t_2 correspondant aux contacts Se-Se entre colonnes TM. La relation de dispersion dans le modèle des liaisons fortes s'écrit [101]:

$$\varepsilon_{\mathbf{k}} = -2t \cos(ak_x) - 2t_1 \cos\left(\frac{1}{2}ak_x + bk_y\right) - 2t_2 \cos\left(\frac{1}{2}ak_x - bk_y\right) - \mu \quad (5.36)$$

que l'on peut réexprimer sous une forme plus proche de la relation de dispersion des systèmes 2D, soit:

$$\varepsilon_{\mathbf{k}} = -2t \cos(ak_x) - 2q(k_x) \cos\{y - \varphi(k_x)\} - \mu \quad (5.37)$$

où

$$q(k_x) = \pm \sqrt{t_1^2 + t_2^2 + 2t_1t_2 \cos ak_x} \quad (5.38)$$

$$\varphi(k_x) = \tan^{-1}\left(\frac{t_1 - t_2}{t_1 + t_2} \tan \frac{ak_x}{2}\right) \quad (5.39)$$

Zheleznyak et Yakovenko [100] ont montré que, suivant la position sur la surface de Fermi, $1/\tau_{\mathbf{k}}$ a une dépendance en température quadratique corrigée par un facteur géométrique possédant lui-même une dépendance en température (sur la surface de Fermi le problème ne dépend géométriquement que de deux variables puisque le moment k_x est complètement déterminé par k_y et k_z):

$$\frac{1}{\tau(k_y, k_z, T)} \propto \left(\frac{g_3}{2\pi v_F}\right)^2 T^2 G(k_y, k_z, T). \quad (5.40)$$

Dans un système bidimensionnel ($k_z = 0$) l'étude numérique montre que pour certaines valeurs de la composante k_y coïncidant avec la phase φ_1 , la fonction $G(k_y, T)$ qui a une expression similaire à celle de la densité d'états, s'accroît fortement à basse température et s'apparente physiquement à une singularité de van Hove dans la densité d'états bidimensionnelle. Il s'en suit que ces points spécifiques de la surface de Fermi sont caractérisés par un taux de diffusion considérablement plus élevé que celui des autres régions.

5.3.1.2 Comparaison avec l'expérience

L'expression (5.40) intégrée dans les expressions de la conductivité de Hall σ_{xy} (5.30) ou (5.34) est suggestive du rôle joué par la géométrie de la surface de Fermi. La variation en température de la constante de Hall ainsi calculée est donc très dépendante des phases φ et φ' des harmoniques $2t_b \cos(k_y + \varphi)$ et $2t'_b \cos(2k_y + \varphi')$ dans la relation de dispersion électronique.

On peut comparer nos résultats expérimentaux au modèle de Yakovenko et Zheleznyak en y introduisant une phase φ correspondant réellement à $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$. On sait que cette phase entre également dans la détermination du vecteur de modulation \mathbf{Q} de l'état Onde de Densité de Spin. L'analyse des spectres RMN dans $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ [102][103] donne $\mathbf{Q} = (2k_F, (0.20 - 0.25)2\pi/b)$ pour les composantes du plan (ab) , et par suite $\varphi \sim (0.25 - 0.30)\pi$. Avec une telle valeur de phase le calcul de Yakovenko et Zheleznyak prévoit une constante de Hall qui augmente lorsque l'on refroidit au départ de 300K; la constante de Hall passe alors par un *maximum* vers 80K, au lieu du *minimum* observé.

Bien que cette théorie basée sur le liquide de Fermi prévoit une oscillation de la constante de Hall autour de la valeur de bande, elle ne parvient pas à rendre compte de nos résultats expérimentaux. En l'absence d'une théorie achevée de l'effet Hall dans une collection de chaînes de Luttinger faiblement couplées, nous argumentons à présent de façon heuristique la possibilité d'un mécanisme étranger au liquide de Fermi conventionnel.

5.3.2 Une alternative au liquide de Fermi

5.3.2.1 Idées générales

Nous proposons dans ce qui suit une image alternative qui tente de mettre en valeur les différents régimes de la phase métallique. Nous pensons que nos résultats expérimentaux d'effet Hall ne sont pas incompatibles avec le concept de "cross-over" dimensionnel tel qu'il a été esquissé au cours des premiers chapitres. Nous allons montrer que la région voisine de 130K voit le passage continu d'un système de chaînes

découplées suivant b et c à un système où le couplage progressif suivant b brise le régime unidimensionnel de haute température.

Une tension de Hall ne peut se développer à température nulle dans un système unidimensionnel constitué de chaînes de Luttinger (donc découplées) car les modes collectifs 1D ne peuvent se propager dans une direction quelconque hors des chaînes. Par contre à température finie il est possible d'exciter thermiquement des quasi-particules à travers le pseudo-gap 1D au niveau de Fermi [11]. Ces quasi-particules sont de *vrais électrons*, avec une charge et un spin couplés, qui sont des états "squeezés" du champ de holon et du champ de spinon. On peut s'en faire une idée formelle en remontant à l'expression de l'opérateur *Fermion*. Le système 1D est caractérisé par deux champs de bosons ϕ et Π canoniquement conjugués. ϕ est lié à la densité locale de particules par la relation $\partial_x \phi = -\pi \rho(x)$, si $\rho(x)$ désigne la fluctuation de densité de particules (ou encore l'écart à la densité moyenne de particules). Ajouter une particule au système revient donc à déplacer ϕ de π . Comme on l'a déjà vu dans le chapitre 1, les opérateurs de Translation sont les exponentielles complexes des opérateurs Moments, donc l'opérateur Fermion ψ caractérisant les excitations du système doit s'écrire sous la forme $\psi(x) \sim \exp(i\pi \int_{-\infty}^x \Pi(x') dx')$. Cependant cet opérateur n'est pas un vrai opérateur Fermion car il n'anticommute pas avec lui-même. On y remédie [25] en le factorisant par un opérateur dont la fonction est de changer le signe lorsqu'une particule passe par le point x . Par exemple cet opérateur peut être $\exp(-i\phi(x))$, si la particule vient de la gauche de x . L'opérateur Fermion ψ s'écrit donc certainement comme:

$$\psi \propto \exp\{-i\phi(x) + i\theta(x)\}, \quad (5.41)$$

avec

$$\theta(x) = \pi \int_{-\infty}^x \Pi(x') dx'. \quad (5.42)$$

Ceci rend compte au moins du champ de holon "squeezé"; l'ajout d'un degré de liberté de spin conduit à une expression très similaire de l'opérateur Fermion. Sous un champ \mathbf{H} l'intégrale de transfert suivant b prend un facteur de phase [104] en

$\exp\{ie/(2\hbar c)\mathbf{H} \cdot (\mathbf{r}_i \times \mathbf{r}_{i+1})\}$, où i et $i + 1$ sont deux chaînes adjacentes dans la direction b .

La dépendance en température du signal de Hall dans un système de chaînes dé-couplées reflèterait donc celle de la densité d'état au niveau de Fermi, d'où l'allure de $R_H(T)$ suggestive d'une loi de puissance à $T \geq 150\text{K}$. Si le système restait strictement unidimensionnel jusqu'à basse température la constante de Hall tendrait continuellement vers 0 lorsque $T \rightarrow 0$.

Lorsque $T \leq 130\text{K}$, un nouveau régime se développe et $R_H(T)$ tend à nouveau vers la valeur de bande. Nous pensons que ceci est compatible avec l'établissement progressif d'une cohérence dans la direction transverse b , qui confère au système un caractère bidimensionnel et rend caduque un mécanisme basé sur une physique unidimensionnelle. Cependant nous gardons à l'esprit qu'il n'est pas du tout évident de retrouver la valeur de bande dans ces conditions en raison des interactions. Ce point sera commenté dans la suite et nous verrons que $R_H(T)$ peut effectivement tendre vers la valeur de bande dans le régime bidimensionnel malgré l'existence d'interactions intra et inter-chaînes.

5.3.2.2 Confrontation avec l'expérience

Le point de vue exposé dans le paragraphe précédent est supporté par d'autres observations expérimentales que l'on ne peut sérieusement remettre en question.

- Ainsi la résistivité des échantillons mesurée simultanément au signal de Hall, et corrigée pour tenir compte de la contraction thermique, suit parfaitement une loi quadratique en température de 130K jusqu'aux premières fluctuations antiferromagnétiques à 50K où une magnéto-résistance devient clairement mesurable (fig. 5.9). Ceci est donc compatible avec un liquide de Fermi où le mécanisme de diffusion est contrôlé par les processus Umklapp [105]. On n'oublie pas que sur l'intervalle de température où $\rho_a(T)$ varie en T^2 , $\rho_b(T)$ varie en T et cette seule différence de comportement infirme d'emblée l'hypothèse du liquide de Fermi. En conséquence on considèrera la phase métallique à $T \leq 130\text{K}$ comme une phase faiblement bidimensionnelle; il est plus prudent de parler d'une construction de la cohérence suivant

b que d'un liquide de Fermi conventionnel sur cette gamme de température. Dans le régime de température $T \geq 130\text{K}$, la résistivité vérifie une autre loi de puissance en $T^{0.5}$, en bon accord avec la prédiction d'une théorie unidimensionnelle pour un système quart-rempli [34]:

$$\rho(T) \sim T^{16K_\rho-3} \quad (5.43)$$

si $K_\rho = 0.23$.

- D'autre part des mesures de puissance thermo-électrique S sur $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ réalisées à pression ambiante par W. Kang *et al.* [106] révèlent notamment un changement de régime suivant b vers 130K, S_b variant linéairement des basses températures jusqu'à 130K où un maximum est observé.

- En utilisant le signal de Hall et la résistivité longitudinale simultanément mesurée (et non corrigée à volume constant) on peut calculer un rapport de mobilité σ_{xy}/σ_{yy} qui est aussi égal à $R_H H / \rho_{xx}$. Cette quantité suit une loi de puissance en T^{-1} entre la température ambiante et 140K, puis une loi en $T^{-2.3}$ entre 130K et 60K (fig. 5.10). Ce changement de régime significatif à 140K reflète les anomalies de $R_H(T)$ et $\rho_a(T)$ à cette même température. On peut aussi considérer le rapport σ_{xy}/σ_{yy} d'une toute autre manière, en supposant que le signal de Hall n'est pas sensible aux contractions thermiques du réseau cristallographique, et qu'il n'est donc pas concerné par la correction à volume constant. On remarque que lorsque $\rho_{xx}(T)$ est corrigé, la dépendance en température du rapport $\sigma_{xy}/\sigma_{yy} = R_H H / \rho_{xx}$ est très faible (fig. 5.10).

- Enfin, les mesures de conductivité optique [32][33][31] témoignent également d'un changement de régime à cette échelle d'énergie. Une structure est observée dans le spectre de $\sigma_a(\omega)$ vers 200cm^{-1} contenant 99% du poids spectral total, et donc la majorité de la force d'oscillateurs. Le profil de la partie haute fréquence de cette structure rend bien compte de transitions optiques entre deux bandes de Hubbard séparées par un gap de Mott, ainsi que le prévoit un modèle strictement unidimensionnel à remplissage commensurable (ici quart-rempli) [34]:

$$\sigma_a(\omega) \sim \omega^{-\nu} = \omega^{16K_\rho-5} \quad (5.44)$$

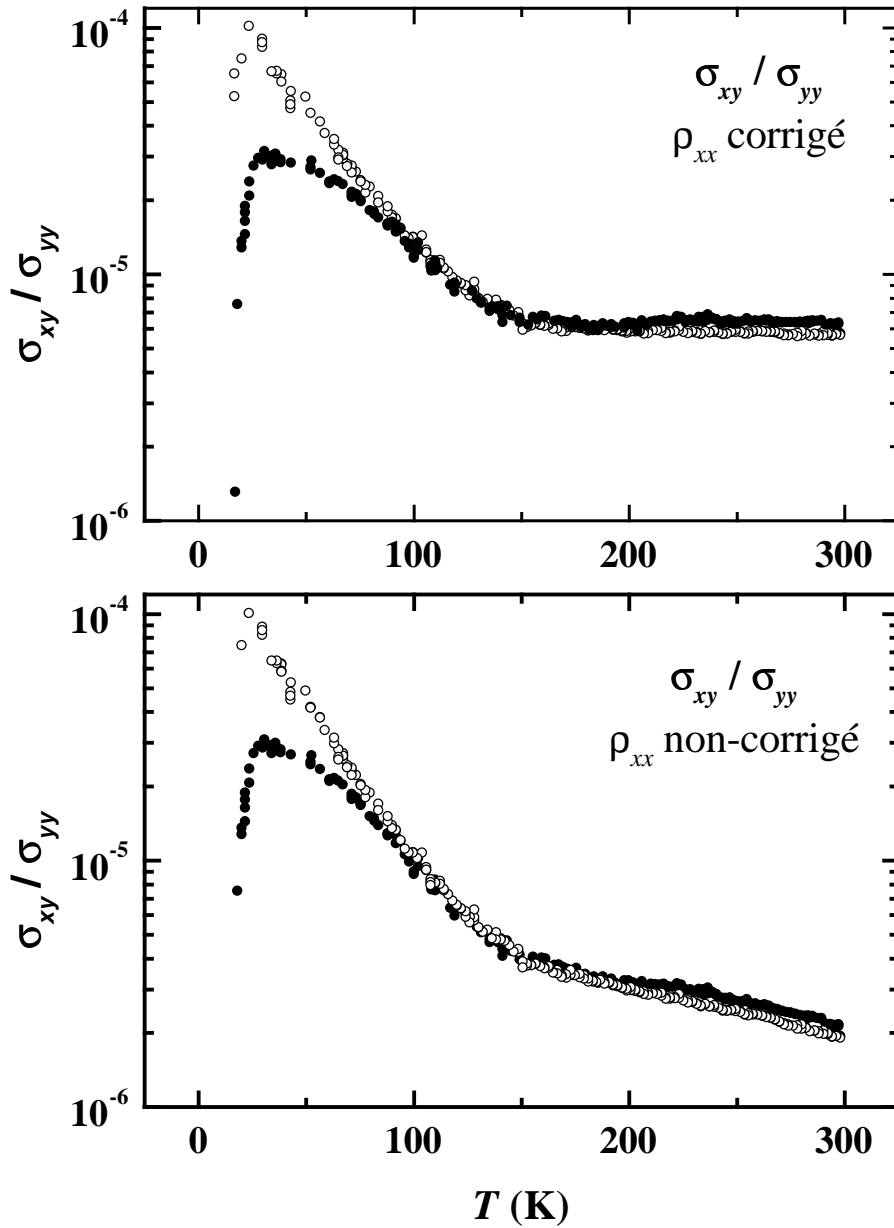


Figure 5.10: *Dépendance en température de la mobilité. Rapport R_H/ρ_{xx} corrigé et non-corrigé à volume constant. Suivant la correction le comportement au-dessus de 150K est sensiblement différent.*

avec $\nu = 1.3$, soit $K_\rho = 0.23$. Comme le gap optique vaut deux fois la valeur de l'énergie d'activation en transport dc , la valeur de 200cm^{-1} correspond à 140K, soit la température supposée de changement de régime. Si l'hypothèse de "cross-over

dimensionnel” est valide, on doit s’attendre à ce que $\sigma_a(\omega)$ dévie sur la gamme $\omega < 200\text{cm}^{-1}$ par rapport à la prédiction $\sigma_a(\omega) \sim \omega^3$ du modèle 1D, et c’est précisément ce que l’on observe [31].

5.4 Conclusion

Un certain nombre de résultats expérimentaux sont donc en faveur d’un ”cross-over dimensionnel” vers 130K. Les mesures présentées dans ce chapitre en sont une nouvelle évidence. Elles renseignent sur le comportement de la constante de Hall dans un liquide de Luttinger ($T > 140\text{K}$) et un liquide de Fermi où les quasi-particules de Landau commencent à avoir un temps de vie fini ($T < 130\text{K}$).

Ces résultats confirment le point de vue esquissé à la fin du chapitre précédent: on remarque que 130K est une énergie proche du gap de Mott observé dans le spectre optique, et est également réminiscent de $t_b^{(0)}$, le couplage nu dans la direction b . *Il semblerait donc que le changement de régime dimensionnel, d’un état métallique 1D à un état métallique faiblement 2D, soit contrôlé dans $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ par une échelle d’énergie proche du couplage nu suivant b , qui lui-même coïncide avec le gap de Mott.*

Il serait bien entendu très intéressant de refaire ce type d’analyse dans le cas du composé $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$ sous haute pression, s’il était possible d’incorporer une cellule de pression dans notre dispositif expérimental. L’effet Hall est très révélateur et permettrait de caractériser la transition Métal-Isolant de Mott, en particulier au voisinage de 13kbar où le gap de Mott dc disparaît. On songe également à mesurer $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ à pression ambiante mais il n’est pas évident d’obtenir plus d’information que sur $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ car la magnitude du gap de Mott optique est similaire dans ces deux composés et la magnétorésistance est dans les deux cas très forte pour des températures inférieures à 50K. Dans $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ sous 8 kbar, nos mesures et des mesures antérieures [89] semblent montrer que la constante de Hall sature en température au-delà de 50K; en deçà de 50K $R_H(T)$ tombe doucement à zéro vers 10K avant l’entrée dans les phases onde de densité de spin induites par le champ. En raison de la faible magnitude de la constante de Hall au regard de la forte magnétorésistance présente dans cette gamme de température, il est très difficile de

conclure de manière définitive sur ce type de mesure puisque sous pression il n'est pas immédiat de collecter simultanément un signal de Hall dans les deux directions du champ. C'est précisément la possibilité d'antisymétriser quasi-instantanément la tension de Hall qui nous a permis d'obtenir à pression ambiante des résultats fiables.

Chapitre 6

La phase métallique de (TMTTF)₂PF₆ sous haute pression

6.1 Introduction

Longtemps restés dans l'ombre des sels de Bechgaard, les sels de Fabre connaissent ces dernières années un fort regain d'intérêt en raison des progrès réalisés en technologie des hautes pressions. Comme on l'a vu, le composé (TMTTF)₂PF₆ est isolant à pression ambiante mais l'état métallique est stabilisé sous pression [107]. Le grand intérêt de ce composé est de développer sous pression la plupart des transitions électroniques existantes [108][109][16][110][111][112][113]. Le minimum de résistivité à une température T_ρ signale la localisation des charges alors que la dépendance en température de la susceptibilité de spin reste continue et ne présente aucune anomalie. Ceci est en faveur d'une séparation spin-charge [21][11] puisque la transition de Mott n'affecte pas les degrés de liberté de spin. Ce n'est que pour des températures inférieures à 19K, et sur une plage de pression comprise entre 1bar et 9kbar, que les spins s'apparient en états singulets au cours d'une transition Spin-Peierls à $2k_F$. Vers 9kbar cette phase entre en compétition avec la stabilisation d'une onde de densité de spin, commensurable avec le réseau sous-jacent jusqu'à 15kbar, puis incommensurable. Cette phase antiferromagnétique est extrêmement large en pression: la température de la transition d'onde de densité de spin est maximale vers 15kbar, en

coïncidence avec la transition de commensurabilité du vecteur de modulation, puis décroît lentement en augmentant la pression. Il est tentant d'imaginer qu'au-delà d'une certaine pression on retrouve les propriétés des sels de Bechgaard, telle qu'une transition ferromagnétique vers 12K comme il est observé dans $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ sous 1bar, puis une phase supraconductrice.

L'un des caractères les plus singuliers des sels de Bechgaard est de présenter dans un diagramme (*Pression, Température*) une frontière commune entre l'état antiferromagnétique et l'état supraconducteur [6]. Cette observation est à l'origine d'un certain nombre de théories proposant un mécanisme d'appariement non conventionnel, tel que l'appariement inter-chaîne induit par l'échange de fluctuation de spin antiferromagnétique [114][115][116]. Nous n'entrerons pas dans les détails théoriques et expérimentaux de la supraconductivité des conducteurs organiques, et invitons le lecteur à se référer aux travaux de thèse de S. Belin [117] et S. Lefèbre [118]. On se limite ici à souligner quelques analogies entre les phases onde de densité de spin (ODS) et supraconductivité (SC). Toutes deux correspondent à une transition de phase avec brisure de symétrie: brisure de l'invariance par renversement du temps, brisure de la symétrie par rotation continue pour ODS; brisure de l'invariance du système dans un changement de jauge pour SC. Dans un modèle de champ moyen, le critère d'instabilité de la phase métallique vers l'une ou l'autre phase est un critère de Stoner, mais l'origine physique du champ moléculaire responsable de l'instabilité est différent: pour l'onde de densité de spin, l'interaction d'échange est liée aux corrélations électroniques, alors que la création des paires de Cooper résulte d'une interaction électron-réseau au second ordre avec échange virtuel de phonon [119]. Le traitement en champ moyen des deux instabilités est très similaire. La divergence de la fonction de réponse ODS est assurée par une condition de nesting plus ou moins parfaite connectant un électron et un trou alors que la condition de nesting SC est associée à la création d'une paire électron-électron d'impulsion totale nulle.

Un point de vue alternatif nous est fourni par le modèle de *g*-ologie [21]. Dans le cas où les couplages sont répulsifs ($g_1 > 0$) et où la dynamique des charges est contrôlée par les processus Umklapp ($|g_3| > g_1 - 2g_2$), la température T_ρ de localisation

des charges dépend des couplages g_i comme:

$$T_\rho \sim \exp \left\{ -\frac{\pi v_F}{\sqrt{g_3^2 - (2g_2 - g_1)^2}} \right\}. \quad (6.1)$$

La trajectoire de renormalisation des couplages $(g_3(l), [g_1 - 2g_2](l))$ montre qu'à la condition $(|g_3| > g_1 - 2g_2)$, g_3 augmente vers des valeurs considérables: c'est un régime de couplage fort qui conduit à l'ouverture du gap de charge Δ (fig. 6.1). (Cependant la renormalisation des couplages part du développement en perturbation des vertex et s'applique donc au cas d'interactions faibles; la divergence de g_3 prédite dans ce modèle signale en fait la limite de validité de l'approche de renormalisation, et on n'en retient rien d'autre que l'apparition du gap de charge). Sous

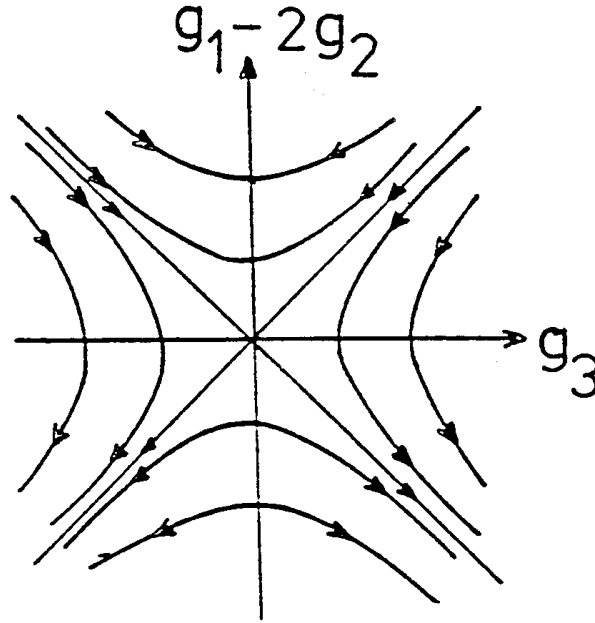


Figure 6.1: Flot de renormalisation pour les couplages g_3 et $g_1 - 2g_2$.

pression la compressibilité de $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$ dans la direction des chaînes réduit l'effet de dimérisation, donc le gap Δ se referme et la magnitude du couplage g_3 chute. On tend alors vers la condition $(g_1 - 2g_2 > |g_3|)$ qui favorise la stabilisation de la supraconductivité, comme le montre le diagramme de phase de g -ologie.

Il est important de vérifier que (i) la supraconductivité et (ii) la frontière commune entre phases supraconductrice et antiferromagnétique est une caractéristique

commune de la famille des conducteurs quasi-unidimensionnels réunissant $(\text{TMTTF})_2X$ et $(\text{TMTSF})_2X$, et non une propriété isolée de quelques sels de Bechgaard. Ceci a été vérifié par Balicas *et al.* dans le sel $(\text{TMTTF})_2\text{Br}$ où une transition supraconductrice vers 1K a été observée sous 26kbar, suggérant le rôle clé de la basse dimensionnalité (de la phase normale) dans la stabilisation de la supraconductivité.

Le choix du composé $(\text{TMTTF})_2\text{Br}$ a été contrôlé par la possibilité d'atteindre 30 kbar dans un clamp acier. $(\text{TMTTF})_2\text{Br}$ développe à pression ambiante et sous 15K un état de Néel; sous 18kbar la transition vers l'état ODS a lieu vers 12K, à l'instar de $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ sous 1bar. Dans le schéma de pensée qui prédit une équivalence entre les phases à symétrie brisée de $(\text{TMTSF})_2X$ et $(\text{TMTTF})_2X$ sous pression, on s'attend à ce qu'ajouter 8kbar à 18kbar suffise à stabiliser la supraconductivité vers 1K dans $(\text{TMTTF})_2\text{Br}$, et c'est effectivement ce que l'on observe. A ce niveau, il semblerait que "tous les diagrammes de phase des sels de Bechgaard soient identiques si l'on effectue un décalage relatif de la pression critique stabilisant la phase supraconductrice." [120]

Le cas récent de $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$ vient contredire cette affirmation. Si une pression de 13kbar suffit à retrouver dans ce composé l'état de Néel observé dans $(\text{TMTTF})_2\text{Br}$, l'application de 40kbar n'est toujours pas suffisante pour détruire la phase antiferromagnétique.

6.2 Résultats expérimentaux

Un échantillon monocristallin $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$ de dimension $(1500 \times 250 \times 75) \mu\text{m}^3$ a été monté en configuration ρ_a quatre contacts puis mis en pression sans cassures notables. Un premier résultat surprenant à 300K est la dépendance en pression de la conductivité longitudinale normalisée par sa valeur à pression ambiante:

$$k(p) = [\sigma_a(p) - \sigma_a(0)]/\sigma_a(0). \quad (6.2)$$

$k(p)$ est linéaire dans les conducteurs quasi-1D étudiés jusqu'à présent [121]. C'est également le cas de $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$, mais un changement de pente apparaît à 30kbar

qui passe de 0.65kbar^{-1} pour $p < 30\text{kbar}$ à 1.3kbar^{-1} pour $p > 30\text{kbar}$, soit un accroissement d'un facteur 2 (fig. 6.2). Pour comparaison, $k(p)$ vaut 0.17kbar^{-1} dans $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ et 0.33kbar^{-1} dans $(\text{TMTTF})_2\text{Br}$.

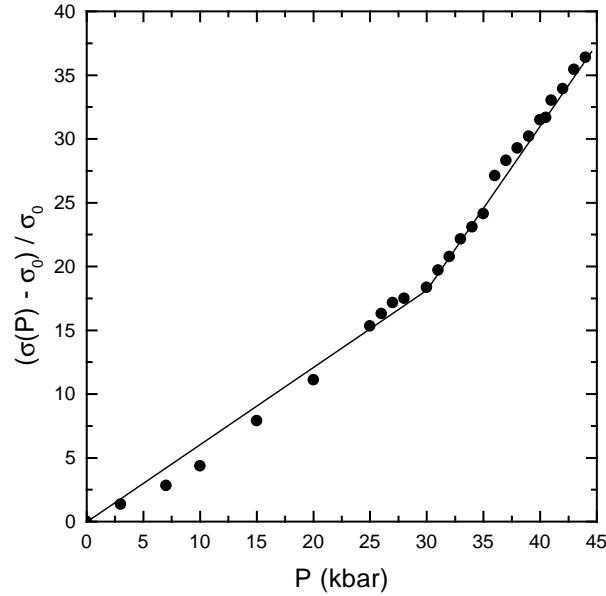


Figure 6.2: *La variation en pression de la conductivité longitudinale de $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$ est normalisée par la conductivité à pression ambiante. On note un changement de pente vers 30kbar.*

Trois dépendances de la résistivité en fonction de la température ont été enregistrées, sous 23kbar, 35kbar, et 40.5kbar (fig. 6.3). L'effet de la pression est évident: à une même température de 28K, $\rho_a(23\text{kbar}) = 18 \cdot 10^{-4}\text{m}\Omega\cdot\text{cm}$, $\rho_a(35\text{kbar}) = 4.4 \cdot 10^{-4}\text{m}\Omega\cdot\text{cm}$, $\rho_a(40.5\text{kbar}) = 2.7 \cdot 10^{-4}\text{m}\Omega\cdot\text{cm}$. La température de transition ODS diminue nettement sous pression: elle est de 19.8K à 23kbar, 16.7K à 35kbar, mais elle est encore de 11.5K à 40.5kbar (insert de la fig. 6.3). Pour des raisons de propriétés mécaniques des matériaux entrant dans la fabrication de la cellule il est très difficile d'accéder à de plus hautes pressions avec la technique clamp. Il est clair que des mesures similaires sous enclumes sont nécessaires pour suivre sous plus haute pression l'évolution de la température critique de la phase Onde de Densité de Spin.

On note que la phase ODS de $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$ est étonnamment longue en pression. La règle empirique du recouvrement des diagramme de phase des organiques

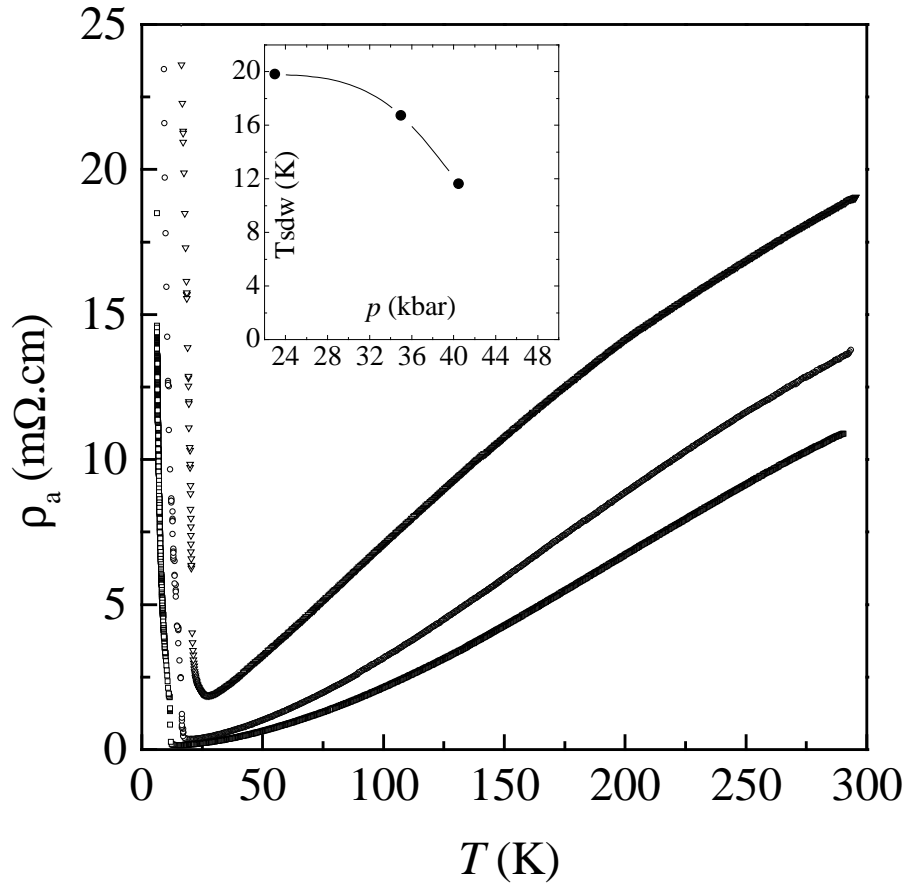


Figure 6.3: Résistivité de $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$ sous 23, 35 et 40.5 kbar (de haut en bas dans la figure principale). L'insert donne la variation de la température de transition antiferromagnétique en fonction de la pression.

quasi-1D ne s'applique plus. On peut imaginer à l'appui de cette observation que la compressibilité du matériau tend vraisemblablement vers sa valeur limite dans cette gamme de pression, ou tout au moins que la compressibilité n'est plus linéaire en pression et tend à saturer. Si les données structurales étaient disponibles, ceci inviterait à remplacer dans les diagrammes de phase la pression par des quantités intrinsèques telles que certaines distances cristallographiques ou les intégrales de transfert suivant b ou c . On note également que la pression tend à augmenter la largeur de bande πv_F qui entre notamment dans l'expression des fonctions de réponse ODS et SC; la variation non triviale de $\pi v_F(p)$ devrait également rendre compte de l'existence de la phase ODS dans $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$ sous haute pression, et rendre caduque une simple

équivalence des composés séléniés et soufrés sous pression.

6.3 Effet de la pression sur la phase métallique

On s'intéresse à l'effet de la pression sur les régimes de la phase métallique, en considérant les résultats obtenus entre 14.0 et 40.5kbar. On peut discerner dans la phase métallique trois régimes correspondant à trois lois de puissance différentes pour $\rho_a(T)$ sur les intervalles ordonnés par températures croissantes $]T_{min}, T_{(2)}]$, $]T_{(2)}, T_{(1)}]$, $]T_{(1)}, 300\text{K}]$. Les températures $T_{(2)}$ et $T_{(1)}$ sont définies ainsi: entre la température de résistivité minimum T_{min} (de l'ordre de 20K vers 20kbar) et la température $T_{(2)}$ (de l'ordre de 60-70K), $\rho_a(T)$ varie en T^2 : en l'absence d'une mesure de $\rho_b(T)$ ceci est compatible avec un liquide de Fermi. Sur le domaine $]T_{(2)}, T_{(1)}]$ $\rho_a(T)$ varie en T^μ où l'exposant μ vaut 0.87 à 20kbar et 1.70 à 40.5kbar. On s'attend en effet à ce que sous haute pression le liquide de Fermi soit stabilisé à partir d'une température plus élevée et que l'intervalle de température sur lequel $\rho_a(T)$ tend à varier en T^2 s'élargisse. Au-delà de $T_{(1)}$ $\rho_a(T)$ suit une loi de puissance dont l'exposant [34] comparé à $16K_\rho - 3$ fournit un exposant de corrélation K_ρ de 0.18 sous 14kbar, 0.23 à 25kbar et 0.26 à 40.5kbar. Il faut néanmoins considérer avec prudence la prédiction du modèle théorique 1D pour la résistivité (ici dans le cas d'un quart-remplissage) en raison de la proximité du gap de Mott qui est susceptible d'engendrer une déviation à cette loi de puissance: si le gap de charge est fortement réduit par la pression dans $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$, on a mentionné dans le chapitre précédent qu'il est toujours présent dans le spectre optique de $(\text{TMTTF})_2\text{Br}$, $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ et $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ à pression ambiante [33]. Gardant cette précaution à l'esprit on note qu'il est tout à fait raisonnable de supposer le quart-remplissage de $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$, puisque la dimérisation y est fortement réduite par la pression. *Il s'en suit que l'exposant des corrélations augmente nettement sous pression, et qu'au-delà de 40kbar il dépasse la valeur critique de 0.25 pour un quart-remplissage: dans ce cas le gap de Mott a effectivement disparu.*

On s'intéresse en particulier à la dépendance en pression de la température $T_{(1)}$. Celle-ci n'est vraiment mesurable qu'à partir de 14kbar, pression à laquelle le gap

de Mott dc disparaît. Elle augmente rapidement jusqu'à 20kbar, puis tend lentement vers 300K à haute pression. $T_{(1)}$ vaut environ 245K à 35kbar, 250K à 40kbar, et on s'attend à ce qu'elle atteigne 260K à 50kbar. Si l'on cherche une équivalence sous pression de $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$ et $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$, elle réside sans doute dans la force des corrélations mesurée par K_ρ qui est très similaire dans $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ à pression ambiante et $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$ sous haute pression.

On remarque enfin que $T_{(1)}$ coïncide avec les températures T_{max} du maximum de la résistivité suivant c , dans le domaine 13kbar-20kbar où la dépendance en pression de $T_{(1)}$ et T_{max} est la plus forte (fig. 6.4). *Ceci suggère donc que $T_{(1)}$, et effectivement T_{max} , marquent la limite entre un régime unidimensionnel et un régime faiblement bidimensionnel.* On comprend que l'apparition d'un régime de conduction métallique dc dans $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$ est en fait la manifestation d'un cross-over 1D-2D. L'argumentation est dans ce cas similaire à celle du chapitre 3: lorsque la magnitude du gap de Mott est supérieure à "l'énergie caractéristique de cross-over dimensionnel", le transport dans les directions transverses aux chaînes est gelé, et en réalité cette énergie de cross-over n'est même pas définie. Par contre lorsque le gap de Mott se réduit il peut coïncider avec l'échelle d'énergie sous-jacente à un cross-over dimensionnel qui reste néanmoins difficilement détectable précisément en raison de la coexistence de ces deux échelles d'énergie. Dans le cas d'un "petit gap de Mott", dont l'amplitude est typiquement très inférieure à la plus petite des intégrales de transfert transverses (t_b), les propriétés de transport dc ne signalent pas à basse température d'activation à travers le gap car le système électronique est bi- ou tri-dimensionnel et l'état fondamental est métallique, SDW ou supraconducteur. Dans le cas du conducteur $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$, qui sous une pression modérée est métallique sur une très large gamme de température, on reconnaît que cette forme d'argumentation est plutôt compatible avec précisément un faible gap de Mott, dont l'amplitude devrait être bien inférieure à l'échelle d'énergie de 130K mesurée par effet Hall. Or on a mentionné qu'une interprétation théorique des mesures $\sigma_a(\omega)$ dans ce composé semble indiquer une échelle d'énergie pour le gap de Mott de l'ordre de 200cm^{-1} , équivalente à une énergie d'activation dc de 140K. Un autre modèle théorique défend quant à lui l'idée d'un faible gap de Mott d'une dizaine de Kelvin [122]. Bien-entendu on ne

peut se limiter ici qu'à évoquer l'existence de ces modèles, le débat étant largement ouvert.

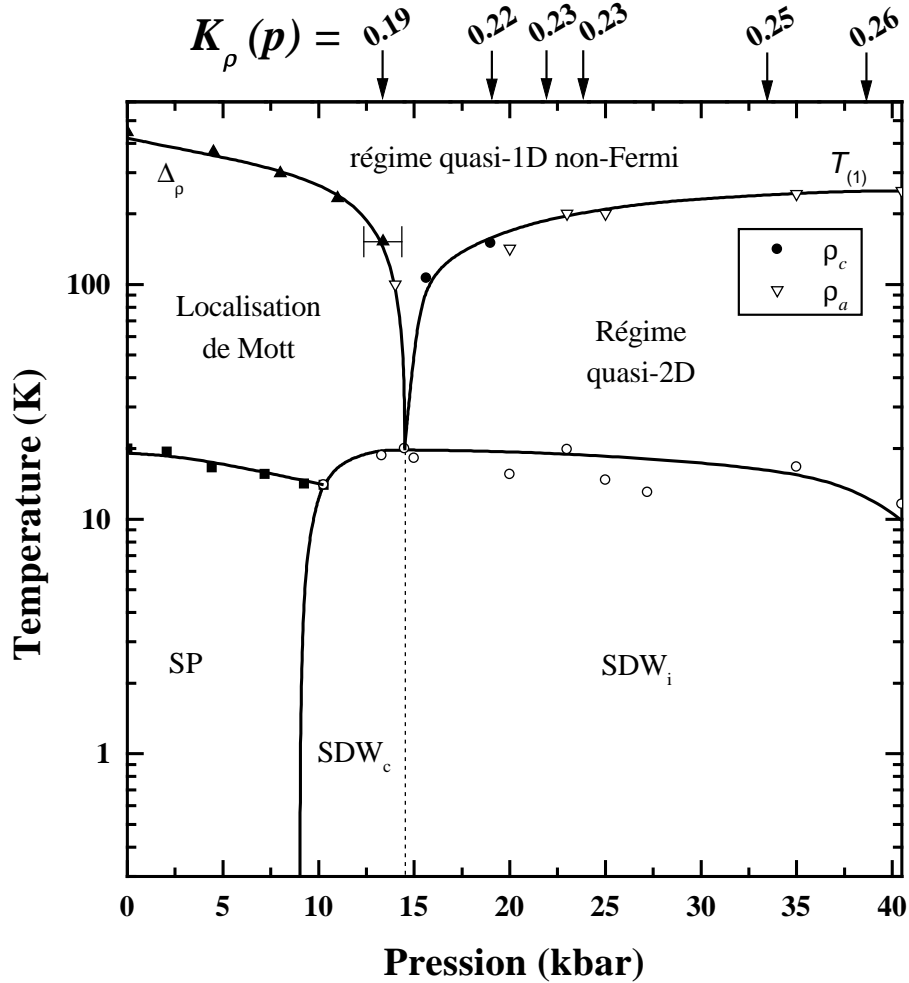


Figure 6.4: Diagramme de phase (T, P) de $(TMTTF)_2PF_6$. La ligne de séparation entre un régime quasi-1D et un régime quasi-2D est obtenue par la dépendance en pression de la température du maximum de $\rho_c(T)$ qui coïncide avec celle de $T_{(1)}$, température au-delà de laquelle $\rho_a(T)$ vérifie expérimentalement la loi de puissance prédite par la théorie 1D.

Il semble qu'au-delà de 20kbar les couplages transverses soient suffisamment forts pour réduire le pseudo-gap induit dans la densité d'états des quasi-particules au niveau de Fermi par les interactions intra-chaînes. Il s'en suit que le processus de renormalisation est court et tend très vite vers un point fixe proche du couplage nu

suivant b . La dépendance en pression de la température de cross-over dimensionnel à une particule $T_{\times 1}$ coïncide quasiment avec celle de $t_b^{(0)}$, d'où la lente augmentation de $T_{(1)}(p)$ à haute pression. En d'autres termes:

$$T_{(1)} \simeq T_{max} \simeq T_{\times 1} \sim t_b^{(0)}.$$

Chapitre 7

Synthèse et possibles perspectives

Tout au long de cette première partie, notre objectif était de mettre en évidence puis de caractériser les différents régimes de la phase métallique des conducteurs quasi-unidimensionnels. Dans quelle mesure a-t-on approché cet objectif?

7.1 Ce que l'on cherchait

Nous avons introduit cet exposé en rappelant l'éventail des données expérimentales qui signalent des anomalies de la phase métallique à des échelles d'énergie toutes très différentes. Les mesures présentées ici: *transport transverse, transport longitudinal corrigé des effets de contraction thermique du réseau, effet Hall*, voient sans ambiguïté une anomalie sur une même échelle de température ($\sim 100\text{K}$).

Nous concluons également à l'absence d'un régime unique dans la phase métallique; la pluralité des régimes de transport est un effet dimensionnel contrôlé par une échelle d'énergie pertinente. Le changement de régime vers 130K dans $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ à pression ambiante correspond bien à un cross-over et non à une transition puisque les interactions restent localisées dans l'espace réel: de part et d'autre de 130K, la phase est toujours dans un état *normal*.

Pour préciser le contexte théorique dans lequel s'inscrit cette étude, nous avons mentionné d'emblée les deux points de vue qui s'opposent ouvertement. L'un d'eux

prévoit le passage d'un régime quasi-1D à un régime 2D pour une température de cross-over à une particule $T_{\times 1}$ fortement renormalisée par les interactions intra-chaînes. $T_{\times 1}$ correspond à une échelle d'énergie plus faible que l'échelle d'énergie expérimentale d'un ou deux ordres de grandeurs, ce qui *a priori* est suggestif d'une trajectoire de renormalisation assez courte en pratique.

Pourtant on peut tirer de nos mesures, ainsi que des mesures de RMN, de spectroscopie optique dans l'infrarouge lointain et de photoémission, un exposant de corrélation K_ρ de l'ordre de 0.23 dans tous les composés organiques quasi-unidimensionnels. Ceci témoigne de corrélations assez fortes, qui devraient pouvoir réduire de façon non-négligeable les couplages transverses effectifs. Au lieu de celà, il semblerait que la valeur pertinente du couplage suivant b soit celle du couplage nu $t_b^{(0)}$.

Comment résoudre cet apparent paradoxe?

7.2 Ce que l'on a trouvé

Je n'ai pas de réponse satisfaisante à cette question. Par contre je pense qu'une piste à suivre est la suivante: nous cherchions un cross-over entre un régime quasi-1D vers un régime 2D, et nous découvrons qu'il existe entre ces deux régimes un domaine intermédiaire que faute de mieux nous avons appelé liquide faiblement bidimensionnel non-Fermi. Cet énoncé est suffisamment vague pour ne pas être tout à fait faux; cependant c'est la seule description que l'on peut donner à partir des expériences de transport dc .

Reprenons l'exemple de $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ à pression ambiante pour lequel les données expérimentales sont les plus complètes. Au-delà de 130K, le transport suivant c , et probablement aussi suivant b , est totalement diffusif. L'effet Hall montre que le gap dans la densité d'états de quasiparticules n'est pas complet à température finie ce qui autorise le transfert de porteurs de charge suivant b d'une chaîne à une chaîne adjacente par effet tunnel médié par le champ. A température ambiante on est d'emblée dans un régime *quasi*-unidimensionnel.

En deçà de 130K, la résistance suivant a commence à varier en T^2 , et la constante de Hall tend à rejoindre la valeur de bande. Mais la résistance suivant b est linéaire

ce qui exclut une isotropie du taux de diffusion particule-particule. On est dans un régime dans lequel la cohérence transverse n'est que partielle et se développe à basse température: c'est un régime *quasi*-bidimensionnel non-Fermi.

Toutes les données expérimentales s'accordent sur l'existence d'un liquide bi ou tridimensionnel en-deçà de 10K: dépendances en température identiques pour ρ_a et ρ_b , dépendance de $1/T_1(T)$ compatible avec un liquide de Fermi, premières fluctuations antiferromagnétiques vers 50K. L'entrée dans ce régime est contrôlé par le couplage suivant c qui est de l'ordre de 8K. $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ sous 8 kbar développe une phase métallique jusqu'à 1K et pourtant le liquide de Fermi tri-dimensionnel est facilement destabilisé par un champ magnétique modéré, qui influe sur la dimensionnalité du système au sens de la perte de cohérence de phase des fonctions d'onde dans certaines directions cristallographiques. Cet aspect est particulièrement bien révélé par les mesures d'angles magiques par E. Chashechkina et P. Chaikin.

Par conséquent nous voyons vers 100K le passage d'un régime *quasi*-unidimensionnel vers un régime *quasi*-bidimensionnel. On peut donc appréhender le désaccord apparent entre cette échelle d'énergie expérimentale et celle prévue par la renormalisation à 1D en arguant que le flot de renormalisation s'arrête lorsque le couplage transverse devient pertinent au sens de la cohérence de phase. Cette cohérence de phase n'est complète qu'à basse température, vers 10K.

Le problème de la détermination du cross-over dimensionnel est rendu très difficile par la coexistence de trois échelles d'énergie: le couplage nu dans la direction b , la température du minimum de la constante de Hall, et le gap de Mott. Les mesures de transport suivant c pourraient être sensibles à cette dernière échelle d'énergie. Il n'est absolument pas trivial de séparer toutes ces contributions.

Il serait très intéressant de caractériser la phase transitoire quasi-bidimensionnelle, en particulier par des mesures d'optique sous pression. C'est un travail délicat car la gamme "infrarouge lointain" est facilement coupée par les accès optiques. On manque clairement d'informations expérimentales pour tester dans les organiques la théorie du liquide de Luttinger bidimensionnel proposé par P. W. Anderson dans les cuprates. Les sels de Bechgaard et les sels de Fabre pourraient contribuer à l'étude de

cet état intermédiaire entre le Liquide de Luttinger et le Liquide de Fermi, sur un pied d'égalité avec les supraconducteurs non conventionnels.

Chapitre 8

Propriétés quantiques de $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$

8.1 Présentation

Les propriétés singulières du conducteur $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ font toujours l'objet d'un débat ouvert, quinze ans après la découverte du plateau de Hall négatif [123] qui devait rester dans la littérature sous la dénomination "Anomalie de Ribault". La construction d'un diagramme de phase (*Champ, Température*) a notamment stimulé une activité de recherche de vaste envergure et soulevé la question très controversée des propriétés de ce composé dans la limite "quantique extrême". La phase métallique ré-entrante à haut champ attribuée à Naughton *et al.* [124] a ainsi laissé place à deux phases semi-métalliques en évidence dans le diagramme de phase (fig. 8.1) sous la forme d'une première ligne de transition du deuxième ordre indépendante du champ au-delà de 15T et visible à 5K (sous-phase *A*), et d'une seconde ligne de transition du premier ordre partant d'un point critique à 3K et 19T, et disparaissant de façon continue à plus haut champ (sous-phase *B*) [125].

Cette image confortée à la fois par des mesures de transport et des mesures thermodynamiques (telles que aimantation ou magnéto-acoustique) invite à s'interroger sur la nature de ces deux sous-phases et les mécanismes sous-jacents qui conduisent à des lignes de transition aussi surprenantes, puisque l'on ne retrouve dans aucun

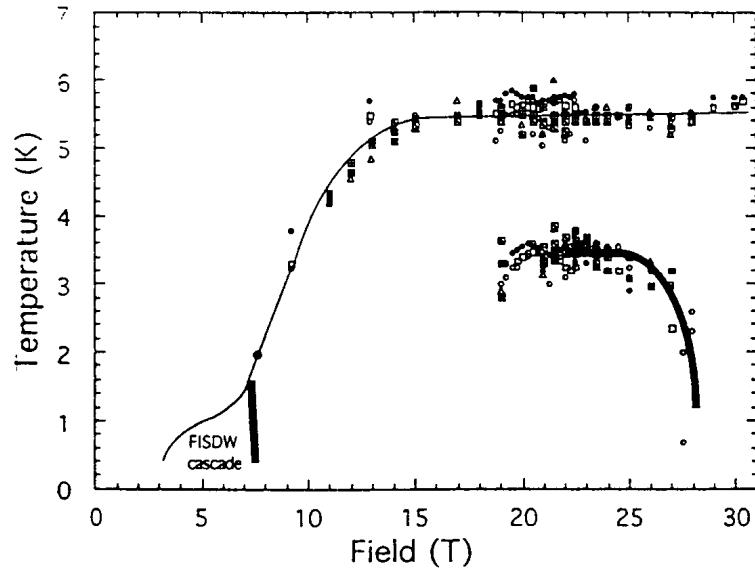


Figure 8.1: Dernier diagramme de phase du sel perchlorate par Chaikin et al. [125].

autre composé organique un diagramme de phase sous champ d'une telle complexité.

Outre la disparition au-delà de 28T de la sous-phase *B*, l'existence d'un point critique pose un réel problème théorique puisqu'il est à la fois possible de passer d'une sous-phase à l'autre en traversant la ligne de transition du premier ordre, mais également en contournant de façon *continue* le point critique (3K,20T).

L'existence d'oscillations rapides présentes à la fois dans la phase métallique et les phases Onde de Densité de Spin constitue une énigme supplémentaire. Ces oscillations qui semblent d'un premier abord du type Haas-van Alphen (pour les quantités thermodynamiques) [125][126][127][128][129] ou Shubnikov-de Haas (pour les quantités de transport) [124][125] [128][129][130][131][132][133] subsistent dans les phases FISDW, et notamment dans l'état quantique $N = 1$ bien qu'une indexation de ces oscillations conduise à des nombres $N = 10 - 20$ [128][129][130]. Le comportement de ces oscillations diffère significativement dans les sous-phases *A* et *B* et suggère la nature singulière de chacune de ces sous-phases.

Ce chapitre rend compte de notre contribution au débat actuel centré sur le diagramme de phase (H, T) de $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$. La valeur ajoutée de notre travail est la découverte d'un cross-over à basse température qui semble entre 17 et 20T se fondre

dans la ligne de transition du premier ordre, à proximité du point critique rapporté par l'école américaine. Nos mesures de transport sont par ailleurs compatibles avec le dernier diagramme de phase proposé dans la littérature [125] et corroborent certaines mesures thermodynamiques antérieures.

8.2 Considérations préliminaires

8.2.1 Le Nesting quantifié

A l'instar d'autres membres de la famille $(\text{TM})_2\text{X}$ le composé $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ constitue à basse température le substrat d'un gaz d'électrons bidimensionnel dans lequel un phénomène de type Effet Hall Quantique peut se développer. Une activité majeure initiée par l'école d'Orsay [134][135][136] [137] s'est intéressée aux effets d'un champ magnétique appliqué suivant la direction perpendiculaire aux plans (ab) sur la phase basse température immédiatement voisine de l'état Onde de Densité de Spin dans le diagramme $(\text{Température}, \text{Pression})$, qui dans le cas des conducteurs quasi-1D se trouve être la phase supraconductrice. Classiquement un champ magnétique H pointant hors du plan (ab) tend à réduire l'excursion des électrons dans la direction b perpendiculaire aux chaînes (l'amplitude des orbites semi-classiques varie comme l'inverse du champ dans la direction b), ce qui se traduit par un effet d'unidimensionnalisation de la surface de Fermi. Ceci favorise les conditions topologiques de Nesting, c'est-à-dire les conditions d'emboîtement des deux feuilles de la surface de Fermi, et restaure la divergence logarithmique de la susceptibilité qui à champ nul est inhibée par l'existence des couplages transverses $t'_b \sim t_b^2/t_a$. L'état Onde de Densité de Spin Induite par le Champ (FISDW) peut être considéré comme un condensat de paires électrons-trous de spins opposés développant une modulation magnétique locale dont le vecteur d'onde est le vecteur de Nesting \mathbf{Q} . Le Nesting est cependant imparfait et préserve des poches de porteurs itinérants (électrons ou trous), non connectés par \mathbf{Q} , qui confère à cette phase des propriétés semi-métalliques. Le spectre en énergie de ces porteurs itinérants est quantifié par le champ magnétique et apparaît sous la forme d'un peigne de niveaux de Landau.

L'énergie diamagnétique est minimale lorsque le niveau de Fermi se trouve entre un niveau de Landau complètement vide et un niveau de Landau complètement rempli. Lorsque le champ magnétique H varie la composante suivant k_a du vecteur de Nesting s'ajuste (linéairement en H) afin de maintenir le niveau de Fermi dans un tel gap de Landau, soit en d'autres termes afin que les poches non-nestées contiennent un nombre entier N de niveaux de Landau totalement remplis. Ceci a lieu au détriment de la qualité du Nesting de sorte que l'énergie des porteurs libres finit par surpasser le gain en énergie diamagnétique résultant du positionnement du niveau de Fermi dans un gap de Landau. Il s'en suit qu'une configuration énergétiquement favorable consiste en un repositionnement du niveau de Fermi dans un autre gap de Landau correspondant à exactement $N - 1$ niveaux de Landau exactement remplis. Une mesure thermodynamique telle que l'aimantation voit donc une série de transitions du premier ordre entre chaque sous-phase FISDW caractérisée par une tension de Hall quantifiée et indexée par les entiers N .

Comme on le constate ceci est le résultat d'une compétition entre la qualité du Nesting de la surface de Fermi et la quantification des porteurs itinérants dans les poches non-nestées.

8.2.2 Spécificités de $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$

Dans le cas de $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ à basse température on observe une cascade de transitions du premier ordre entre FISDW, dans l'intervalle de champ borné par un champ seuil (minimal) de 4.5T (à 0.7K) et 8T [138]. *Au-delà de 8T s'étend une phase extrêmement large puisqu'elle se trouve être stable jusqu'à 28T* [126].

On soupçonne qu'un certain nombre de caractéristiques propres à ce composé est lié à la forme particulière de la surface de Fermi. En effet une transition de phase structurale mise en évidence par rayons X a lieu vers 24K [139][140][141], et se traduit par une réorganisation des anions ClO_4^- qui sont non-centrosymétriques à la différence des ions PF_6^- . Le réarrangement structural des anions perchlorate définit ainsi des directions non-équivalentes; l'ordre d'orientation dans la direction b implique un doublement de la cellule unité suivant cet axe et se traduit par la

superposition d'un potentiel anionique de vecteur d'onde $(0, \pi/b, 0)$. Il s'en suit que les chaînes dimérisent faiblement dans la direction b ; le "gap d'anion" induit par cette superposition de potentiel replie la zone de Brillouin et conduit à deux surfaces de Fermi ouvertes [139] (fig. 8.2).

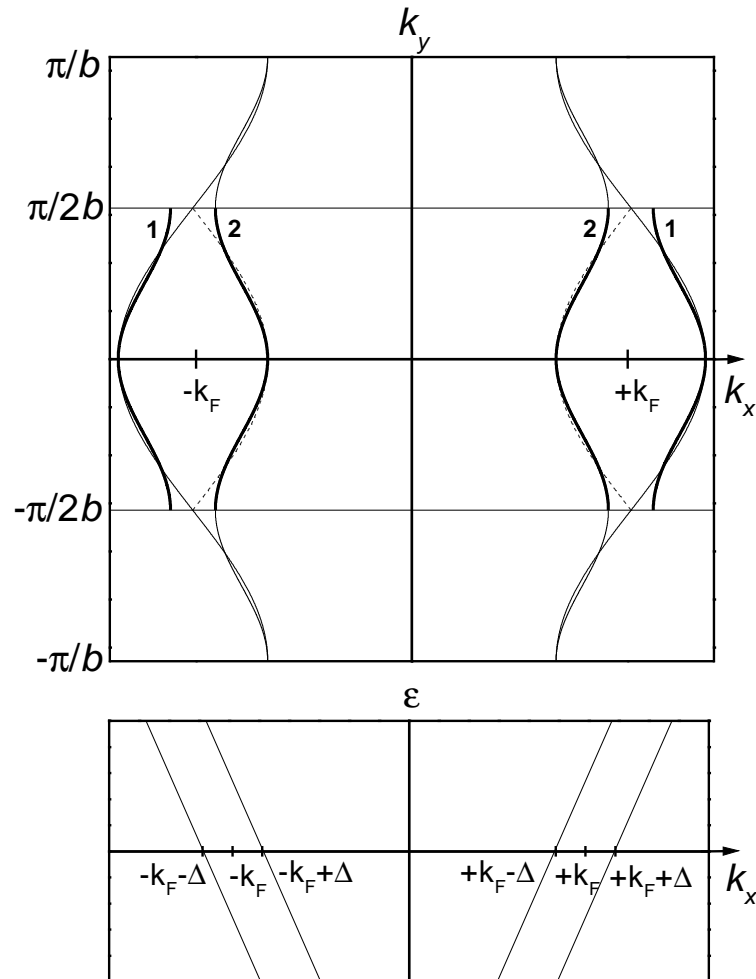


Figure 8.2: *Surface de Fermi du sel perchlorate. Partant de la surface non perturbée on superpose l'effet du gap d'anion pour obtenir les deux surfaces de Fermi notées 1 et 2. Le gap d'anion a été volontairement exagéré par raison de clarté.*

La mise en ordre des anions est un effet entropique puisque la vitesse de refroidissement y joue un rôle essentiel: l'analyse par rayons X montre que l'intensité et la largeur des pics de surstructure suivant le vecteur d'onde $(0, 1/2, 0)$ dépendent du traitement thermique. Refroidi à plus de 1K/min $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ entre dans une

phase isolante pour des températures inférieures à 4K; un taux de refroidissement de moins de 0.1K/min conduit à pression ambiante à une phase supraconductrice vers 1.3K. Ainsi que l'a montré Ribault [123], une conséquence de cet effet entropique est l'apparition vers 7T d'une marche de Hall négative d'autant plus prononcée que l'échantillon est dans un état bien relaxé (*i.e.*, refroidi lentement et proprement). Même si l'origine en est différente, on peut noter qu'une telle inversion du nombre de Hall a ultérieurement été obtenue dans $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ sous pression, originellement par Balicas et Kriza ($N = -2$), et que des signes d'inversion de nombres quantiques plus élevés ont pu être observés par des expérimentateurs travaillant dans le voisinage immédiat de la pression critique au-delà de laquelle on stabilise la phase supraconductrice. Récemment Kang *et al.* ont clairement mis en évidence ces inversions en se plaçant à la pression critique et en tirant avantage du faible gradient de pression existant à l'intérieur d'une cellule quasi-hydrostatique. Comme le prévoient Zanchi et Montambaux [142], toute séquence de nombres entiers positifs ou négatifs est possible suivant l'écart sensible à la pression critique. Néanmoins l'anomalie de Ribault a été la première évidence remarquable des propriétés tout à fait singulières de $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$.

La phase quantique extrêmement longue au-delà de 8T a été initialement indexée par l'école américaine [126] avec le nombre $N = 1/3$ telle la manifestation d'un effet Hall quantique fractionnaire; Kang et Jérôme [143] ont soupçonné qu'il s'agissait vraisemblablement d'un artefact expérimental lié à une distribution inhomogène de courant, et ont montré qu'une indexation $N = 1$ rend bien compte de leurs résultats expérimentaux. On note que cette indexation (essentielle pour la suite) rencontre à présent l'approbation de l'école américaine.

8.3 La question des Oscillations Rapides

8.3.1 Acquis expérimentaux

Rendre compte de l'existence d'oscillations rapides dans la magnéto-résistance et les mesures thermodynamiques constitue un véritable défi théorique. Lorsque H est ap-

pliqué suivant c^* , ces oscillations sont présentes dans la phase métallique à partir de 10K et au-delà de 10T, avec un seul harmonique de fréquence $F \sim 260\text{T}$ qui signale que la surface de Fermi occupe environ 3.4% de la zone de Brillouin [128][129][130]. A plus basse température, les oscillations persistent malgré l'apparition des FISDW dont la fréquence d'oscillation n'est que de $\sim 35\text{T}$: l'harmonique fondamental est conservé et un second harmonique à $2F$ apparaît [130]. Plus précisément les Oscillations Rapides sont observables à la fois pour un courant injecté suivant a ($I \parallel a$, mesures de $\rho_{xx}(H)$) et un courant injecté suivant c^* ($I \parallel c^*$, mesures de $\rho_{zz}(H)$) dans la phase SDW, mais uniquement pour $I \parallel a$ dans la phase métallique [130]. Les échantillons très relaxés (*i.e.* refroidis très lentement) présentent des oscillations rapides également en-dessous du champ magnétique seuil des FISDW [128][130]. On note également une dépendance en température de l'amplitude des oscillations totalement irrégulière: en refroidissant, cette amplitude augmente sous 15T mais diminue sous 10T [130].

L'existence d'oscillations rapides dans la phase métallique surprend, car ainsi que le montre l'équation de Boltzmann sous champ [144], les écarts de la magnétorésistance $\delta\rho_{xx}(H)/\rho_{xx}(0)$ devraient être de l'ordre de $(t_b/k_{\text{FV}})^2$, soit de 10^{-2} à 10^{-3} quand l'observation montre un écart de l'ordre de 10^{-1} à 1. L'existence d'oscillations rapides à l'intérieur des FISDW surprend également, puisque le niveau de Fermi se trouve dans un gap de Landau. Au-delà de 8T, les poches de porteurs itinérants sont dans l'état $N = 1$, alors que l'indexation des oscillations rapides suggère des nombres quantiques de l'ordre de 10 à 20:

$$\frac{1}{H_n} = \frac{1}{H_F} (n - n_0) \quad (8.1)$$

(H_n indique la position n d'un maximum ou d'un minimum de l'oscillation, H_F est un "champ fondamental" et n_0 l'index de la phase).

Le caractère non-conventionnel des Oscillations Rapides suggère qu'il s'agit d'un nouveau type d'oscillations quantiques. Comme nous le voyons dans la suite les approches théoriques privilégient l'effet d'interactions à N corps.

8.3.2 Interprétations théoriques des Oscillations Rapides

8.3.2.1 Oscillations dans la phase métallique

Dans (TMTSF)₂PF₆ les oscillations rapides sont observées dans les phases FISDW mais non dans l'état métallique, même dans la géométrie $I \parallel a$. Ceci suggère que les mécanismes responsables de l'existence des oscillations dans la phase métallique sont fortement dépendants de la dimérisation dans la direction b . Une indication supplémentaire est fournie par l'effet entropique du taux de refroidissement dans (TMTSF)₂ClO₄ puisque l'amplitude des oscillations est d'autant plus grande que l'échantillon est mieux relaxé.

Lebed [144][145][146] a vu dans ce phénomène l'oscillation de probabilité des processus de diffusion Umklapp. Nous reproduisons son raisonnement dans le paragraphe qui suit.

Situation à champ nul. — En l'absence de la superposition du potentiel de dimérisation (ou potentiel d'anion) la surface de Fermi du sel de perchlorate est ouverte, inscrite dans la zone de Brillouin $(-\pi/a < k_x < \pi/a) \times (-\pi/b < k_y < \pi/b)$, et constituée de deux feuillettes définis par la relation de dispersion d'un gaz électronique bidimensionnel ($t_c \ll t_b, v_F$):

$$\epsilon^\pm(\mathbf{k}) = \pm v_F(k_x \mp k_F) + 2t_b \cos(k_y b). \quad (8.2)$$

La surstructure des anions ClO₄⁻ introduit un potentiel périodique $V(y) = V \cos(\pi y/b)$ de vecteur de modulation $\mathbf{Q} = (0, \pi/b, 0)$. Par conséquent un gap V s'ouvre en $k_y = \pm\pi/2b$ dans l'espace des vecteurs d'onde et transforme la surface de Fermi initiale en deux paires de deux feuillettes (fig. 8.2). Ceci revient à réduire la zone de Brillouin à la zone repliée $(-\pi/a < k_x < \pi/a) \times (-\pi/2b < k_y < \pi/2b)$. On voit ainsi que le gap de dimérisation "mélange" les états $\psi_0^\pm(\mathbf{k})$ et $\psi_0^\pm(\mathbf{k} + \mathbf{Q})$ (où l'indice 0 signifie *champ nul*), lesquels vérifient les équations de Schrödinger suivantes:

$$\{\pm v_F(k_x \mp k_F) + 2t_b \cos(k_y b)\} \psi_0^\pm(k_y) + V \psi_0^\pm(k_y + \pi/b) = \epsilon \psi_0^\pm(k_y) \quad (8.3)$$

$$\{\pm v_F(k_x \mp k_F) - 2t_b \cos(k_y b)\} \psi_0^\pm(k_y + \pi/b) + V \psi_0^\pm(k_y) = \epsilon \psi_0^\pm(k_y + \pi/b) \quad (8.4)$$

Ceci conduit à un spectre divisé en quatre branches, et représenté dans la figure:

$$\epsilon_k^\pm(\mathbf{k}) = \pm v_F(k_x \mp k_F) + (-1)^p \sqrt{[2t_b \cos(k_y b)]^2 + V^2} \quad (8.5)$$

où $p = 1$ ou 2 suivant la surface de Fermi considérée (fig. 8.2).

Sous un champ magnétique $\mathbf{H} = (0, 0, H)$. — Les équations de Schrödinger ci-dessus sont transformées dans la jauge $\mathbf{A} = (0, Hx, 0)$ par la substitution de Peierls $\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k} - e\mathbf{A}/c$ (notations traditionnelles):

$$\left[\pm i v_F \frac{d}{dx} + 2t_b \cos \left(k_y b - \frac{\omega_c x}{v_F} \right) \right] \psi^\pm(k_y) + V \psi^\pm \left(k_y + \frac{\pi}{b} \right) = \epsilon \psi^\pm(k_y) \quad (8.6)$$

$$\left[\pm i v_F \frac{d}{dx} - 2t_b \cos \left(k_y b - \frac{\omega_c x}{v_F} \right) \right] \psi^\pm \left(k_y + \frac{\pi}{b} \right) + V \psi^\pm(k_y) = \epsilon \psi^\pm \left(k_y + \frac{\pi}{b} \right) \quad (8.7)$$

où $\omega_c = eHv_F b/c$ est la fréquence cyclotron (on note e et c la charge de l'électron et la vitesse de la lumière). Prenant les paramètres physiques $V = 50\text{K}$, $v_F = 2 \cdot 10^{-7} \text{ cm/s}$, $t_b = 200\text{K}$ et $b = 7.7\text{\AA}$, le champ critique de "rupture magnétique" $H_0 \simeq \pi c V^2 / (2e v_F t_b b)$ vaut environ 15T . Pour des champs plus élevés que H_0 on peut résoudre les équations (8.6) et (8.7) en considérant le potentiel V comme une perturbation. Les solutions $\psi_{1,2}^\pm$ à l'ordre zéro de (8.6) et (8.7) sont alors les combinaisons linéaires symétriques et antisymétriques des solutions ϕ obtenues en l'absence du potentiel V :

$$\phi^\pm(k_y, x) = \exp \left(\mp i \frac{\epsilon x}{v_F} \mp i \frac{\lambda}{2} \sin(k_y b - \omega_c x / v_F) \right) \quad (8.8)$$

$$\phi^\pm \left(k_y + \frac{\pi}{b}, x \right) = \exp \left(\mp i \frac{\epsilon x}{v_F} \pm i \frac{\lambda}{2} \sin(k_y b - \omega_c x / v_F) \right) \quad (8.9)$$

avec $\lambda = 4t_b/\omega_c$. D'où:

$$\begin{aligned} \left(\psi_1^\pm(k_y, x), \psi_1^\pm(k_y + \frac{\pi}{b}, x) \right) &= \frac{1}{\sqrt{2}} \exp \pm \frac{x\Delta}{v_F} \times \left(\phi^\pm(k_y, x), \phi^\pm \left(k_y + \frac{\pi}{b}, x \right) \right), \\ \left(\psi_2^\pm(k_y, x), \psi_2^\pm(k_y + \frac{\pi}{b}, x) \right) &= \frac{1}{\sqrt{2}} \exp \mp \frac{x\Delta}{v_F} \times \left(\phi^\pm(k_y, x), -\phi^\pm \left(k_y + \frac{\pi}{b}, x \right) \right). \end{aligned}$$

La quantité $(-1)^p \Delta$ ($p = 1, 2$) dépendante du champ est la correction au premier ordre de l'énergie des états à champ nul. Elle s'exprime comme $(-1)^p V J_0(4t_b/\omega_c)$, où J_0 est la fonction de Bessel à l'ordre zéro, et par suite:

$$\Delta \simeq V \sqrt{\frac{\omega_c}{2\pi t_b}} \cos \left(\frac{4t_b}{\omega_c} \right). \quad (8.10)$$

On voit que sous la condition de la "rupture magnétique" ($4t_b/\omega_c \gg 1$) le paramètre Δ oscille très vite en fonction du champ, avec une période $\delta(1/H) = \pi e b v_F / 4t_b c$.

Ceci a une influence considérable sur la probabilité des processus Umklapp: suivant k_x (le champ "unidimensionnalise" la surface de Fermi et l'énergie ne dépend plus que de la variable k_x , ainsi que les équations ci-dessus le formalisent) la distance entre les différentes branches dans le spectre d'énergie n'est pas égale à $2k_F$ mais oscille en $1/H$. Ceci nuit à la diffusion Umklapp qui requiert une conservation des moments via une impulsion $4k_F$ du réseau, puisque l'oscillation de la distance entre branches engendre une incommensurabilité variable. Les oscillations rapides de la magnéto-résistance ont une fréquence expérimentale de 250T que l'on retrouve par ce modèle en introduisant une valeur t_b de 200K dans l'expression $\delta(1/H)$ ci-dessus. La comparaison théorie/expérience est donc très satisfaisante.

8.3.2.2 Le rôle des états de bord

Le modèle que l'on vient d'exposer rend bien compte des oscillations rapides de la magnéto-résistance dans la phase métallique de $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$. Néanmoins il ne concilie pas toutes les observations expérimentales puisque par construction il ne peut expliquer l'existence d'oscillations dans la phase FISDW. Dans ce contexte on peut brièvement évoquer un mécanisme proposé par Azbel et Chaikin [147], construit de façon à être largement indépendant de la transition métal-FISDW et qui simule des oscillations de type Schubnikov-de Haas dans le transport et les mesures thermodynamiques. L'argument est basé sur la quantification des états de bord résultant de l'orbite ouverte des électrons intersectant les frontières de l'échantillon (fig. 8.3). Ces états sont fortement perturbés par le potentiel de surface au regard des états de volume, et ne peuvent donc participer à la condensation des FISDW. Un électron approchant de la surface est réfléchi et dans l'espace réel son orbite ouverte définit avec la frontière de l'échantillon une aire fermée A , laquelle selon le principe d'Onsager est quantifiée par le champ magnétique:

$$A = 2\pi\alpha(n + \gamma)/\lambda \quad (8.11)$$

où n est l'index de quantification, γ est une constante (proche de $1/2$), α est la surface unitaire du réseau dans l'espace réel, et $\lambda = \hbar c/eH$ est le facteur d'échelle qui permet de passer de l'espace des impulsions à l'espace réel en intégrant l'équation

semi-classique du mouvement. On voit donc que le nombre d'états quantifiés varie comme l'inverse du champ magnétique ce qui donne lieu à des oscillations quantiques. Du point de vue de l'espace réel la distribution spatiale des orbites est quantifiée pour la même raison, et la surface maximale définie par l'orbite de bord et la frontière de l'échantillon est une fonction de l'énergie du système $E = -\cos k_x - 2t_b \cos k_y$. En guise d'illustration on peut considérer le cas le plus simple d'orbites ouvertes se développant dans la direction parallèle à la frontière de l'échantillon. On montre alors que l'aire $A(E)$ maximale est minimisée au centre de la bande ($E = 0$): $(\partial A_{\max}/\partial E)_{E=0} = 0$. Dans le cas $E \ll 1$, $k_x \simeq \pi/2 + E + 2t_b \cos k_y$ de sorte que:

$$A_{\max} \simeq \int_{-\pi}^{\pi} dk_y 2t_b (\cos k_y + 1) = 4\pi t_b. \quad (8.12)$$

Par conséquent la masse effective associée est fortement réduite:

$$m^* = \frac{\hbar^2}{2\pi} \left(\frac{\partial A_{\max}}{\partial E} \right) \ll 1 \quad (8.13)$$

et des oscillations de hautes fréquences apparaissent. Azbel et Chaikin ont également traité le cas plus général où l'incidence des trajectoires électroniques par rapport à la frontière de l'échantillon est quelconque, et obtiennent un résultat très similaire qui d'un point de vue quantitatif rend bien compte des hautes fréquences observées expérimentalement dans la magnétorésistance. Enfin l'énergie libre calculée dans ce modèle montre également des oscillations dans l'aimantation. Ceci milite en faveur du rôle substantiel joué par les états de bord dans le mécanisme des Oscillations Rapides, même si le modèle d'Azbel et Chaikin ne mentionne pas l'existence d'un second harmonique dans les phases FISDW.

8.4 Nouveaux résultats expérimentaux

Nous avons pris part à l'étude des phases basse température de $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ sous haut champ et pression ambiante, par une série de mesures $R_{zz}(H)$ à diverses températures jusqu'à 23T, et une série de mesures $R_{zz}(T)$ à différents champs entre 1.4K et 10K, dans la géométrie ($H \parallel c^*, I \parallel c^*$). Cette étude a été menée en collaboration avec W. Kang de Ewha Woman's University (Seoul) dans le département des champs

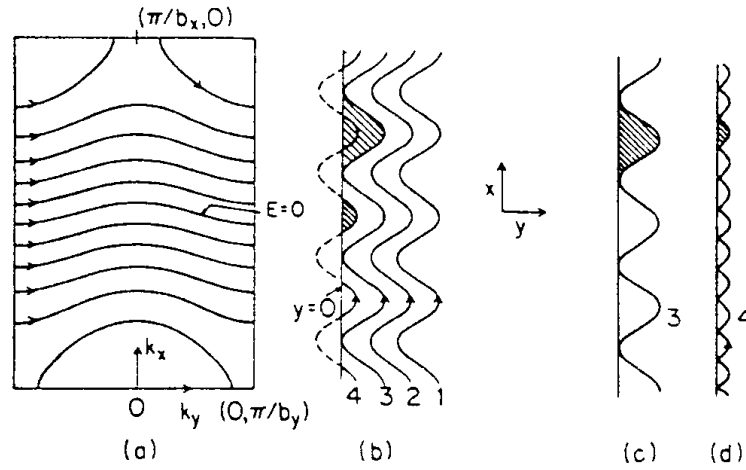


Figure 8.3: Représentation schématique des états de bord. (a) Surfaces d'énergie constante et trajectoire des électrons dans l'espace des vecteurs d'onde en présence d'un champ magnétique et pour une relation de dispersion quasi-1D. (b) Trajectoires dans l'espace réel pour $E = 0$ à différentes distances de la frontière de l'échantillon située en $y = 0$. (c) Réflexion de l'orbite numéro 3 sur la frontière. L'aire hachurée doit être quantifiée. (d) Réflexion de l'orbite numéro 4 [147].

magnétiques intenses du Laboratoire Max Planck de Grenoble. L'équipement fourni par Max Planck consiste en une bobine résistive 23T à circulation d'eau, un insert "Helium 3 top loading" et un banc de pompage palette+turbo de haute capacité. Le contrôle de la température est assuré par la mesure quatre-points de la résistance d'un thermomètre Cernox (Lakeshore) très peu magnéto-résistif (mesures $R_{zz}(T)_H$), et la lecture de la pression d'Hélium 3 au niveau du bain ou de la pression d'Hélium 4 dans le cryostat par une jauge capacitive indépendante du champ magnétique (mesures $R_{zz}(H)_T$). On note que la lecture de la pression d'Hélium 3 au niveau de la surface du bain se fait par l'intermédiaire d'un capillaire de 1 mètre de long connecté à la jauge capacitive mais la correction de pression due au régime moléculaire n'est pas significative.

Deux échantillons synthétisés dans le laboratoire de W. Kang à Séoul ont été mesurés simultanément dans la même géométrie et ont conduit à des résultats identiques.

8.4.1 Mesures $R_{zz}(T)_H$ entre 16 et 23T

Entre 12K et l'Hélium 4 pompé (1.4K), soit dans un même régime cryogénique, les mesures $R_{zz}(T)$, et plus précisément $d \log R_{zz}/d(1/T)$ où d'éventuelles anomalies de pente apparaissent plus explicitement, montrent clairement au-delà de 16T (et sans doute à plus bas champ) une transition à 4.8K, essentiellement indépendante du champ (fig. 8.5). A partir de 19T et jusqu'à la dernière valeur de champ mesurée (23T) une seconde transition devient visible à 3.2K dans les données $\log R_{zz}(T)$. Ces deux transitions coïncident avec celles observées à 5.5K et 3.2K par McKernan *et al.* [125] à l'aide d'une triple mesure de transport suivant c^* , d'aimantation et d'effet Hall (fig. 8.4). En-dessous de 5.5K $R_{zz}(T)$ et la résistance de Hall $R_{xy}(T)$ augmentent, tandis que l'aimantation devient diamagnétique et signe l'existence d'une transition du deuxième ordre. A 3.5K les auteurs observent une forte augmentation de $R_{zz}(T)$ et $R_{xy}(T)$ accompagnée d'un saut paramagnétique de l'aimantation correspondant à une transition du premier ordre. Des mesures à plus haut champ révèlent que la transition à 5.5K persiste jusqu'à 28T alors que la transition du premier ordre survient à une température qui décroît en fonction du champ et devient inobservable à 28T.

8.4.2 Mesures $R_{zz}(H)_T$ entre 4.2K et 400mK

Nous avons collecté un assez grand nombre de mesures $R_{zz}(H)$ dans deux régimes cryogéniques: Hélium 4 pompé et Hélium 3 pompé.

Le fort accroissement de R_{zz} en-dessous de 10T signale la transition de phase mise en évidence par des mesures thermodynamiques et qui fait partie de la ligne de transition du second ordre observée au-delà de 16T dans les données $R_{zz}(T)$ mentionnées précédemment. Si l'on fait un instant abstraction des oscillations rapides, et que l'on ne considère que la dépendance générale en champ, $R_{zz}(H)$ passe par un maximum local vers 14T, quelle que soit la température. Lorsque le champ croît, le comportement général de $R_{zz}(H)$ entre 4.2 et 3K est une lente décroissance sur toute la plage de champ explorée. Lorsque la température est inférieure à 3K, la tendance s'inverse au-delà de 17T et R_{zz} croît à nouveau (fig. 8.6, 8.7, 8.8). On note

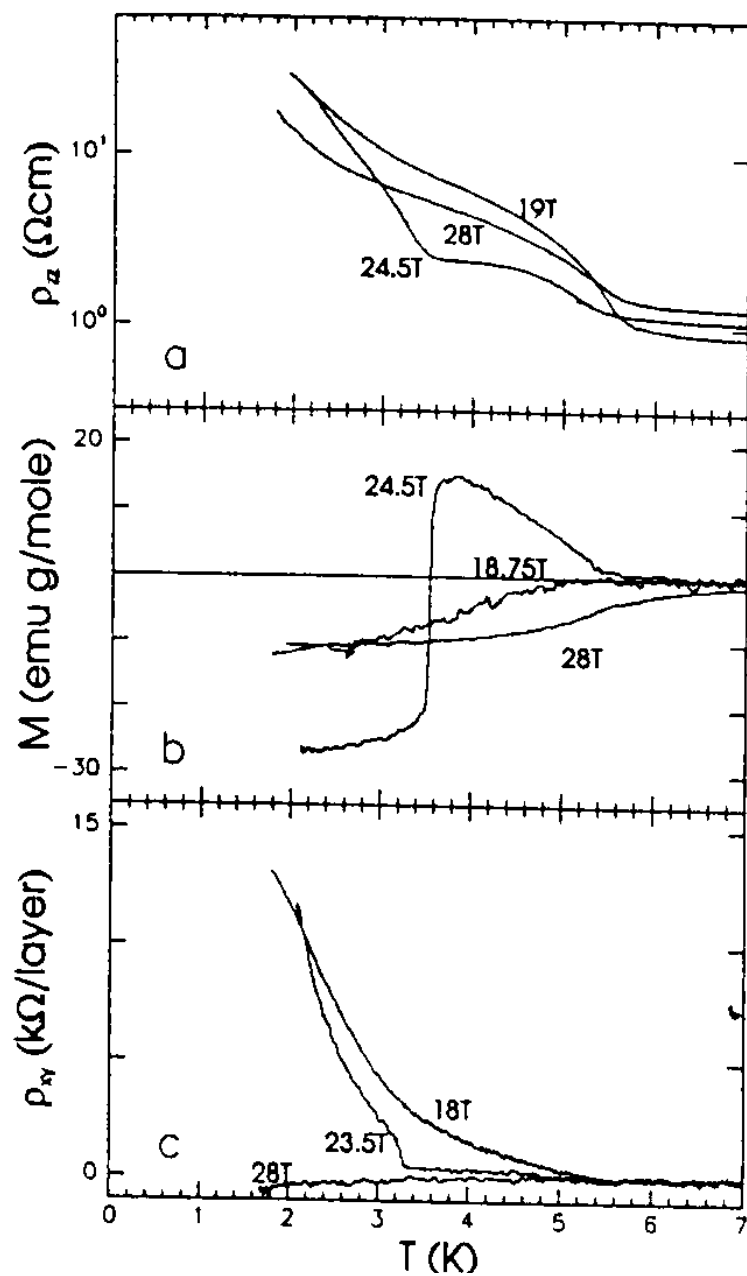


Figure 8.4: Mesures de McKernan *et al.* en fonction de la température. De haut en bas: magnétorésistance suivant zz ; aimantation; résistivité de Hall [125].

que la dépendance en température du champ seuil où apparaît cette anomalie est très faible puisque ce champ seuil est essentiellement centré autour de 17.5T pour des températures inférieures à 2K.

Le comportement des oscillations rapides est lui-aussi révélateur. Une analyse de

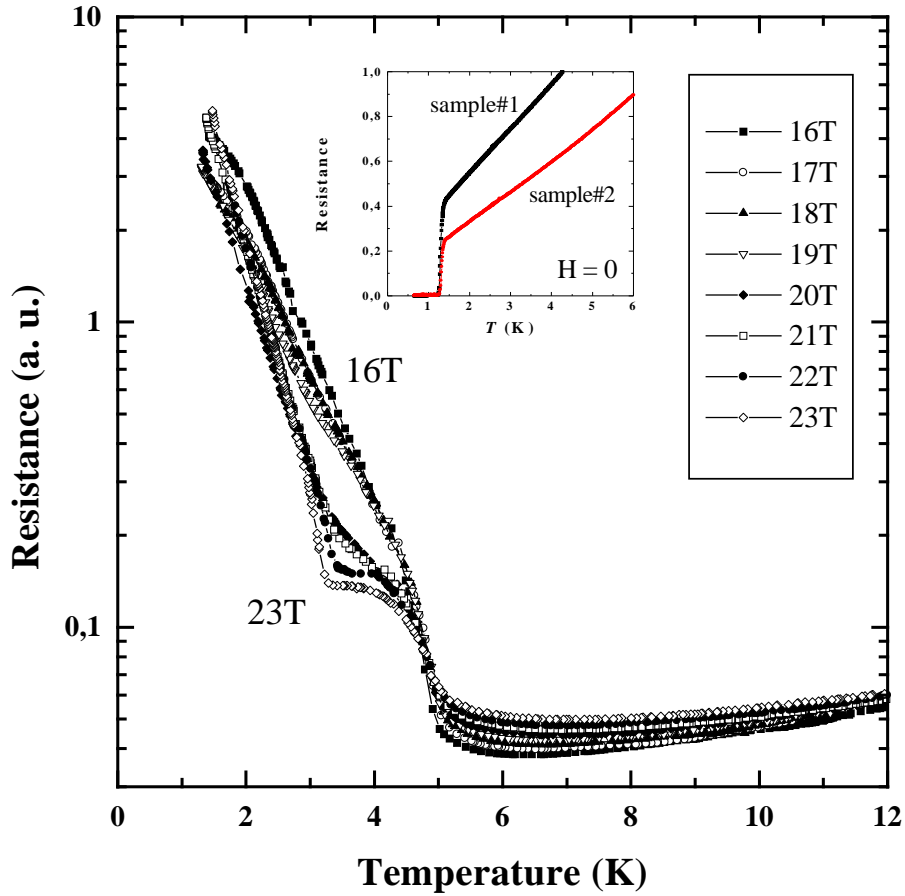


Figure 8.5: Nos mesures $R_{zz}(T)_H$.

Fourier montre que l'amplitude du fondamental et du second harmonique augmente lorsque la température décroît et atteint un maximum vers 2K où le comportement s'inverse (fig. 8.9). Vers 1.25K les oscillations rapides s'estompent *sur toute la ligne* $T = Cste$ entre 10 et 23T, sous l'effet d'un déphasage progressif. Elles réapparaissent au-delà de 17.5T entre 620mK et 400mK, *déphasées de π par rapport à la phase des oscillations à 4.2K*, tandis que les oscillations rapides entre 10 et 17T ont laissé place à *deux oscillations lentes de faible amplitude*.

L'anomalie vers 17T observée dans $R_{zz}(H)$, accompagnée d'un phénomène de déphasage des oscillations, est réminiscente d'un certain nombre d'anomalies manifestées par deux grandeurs thermodynamiques. C'est le cas de l'aimantation (fig. 8.13) qui s'annule entre 15 et 16T, sature au-delà de 18T et présente ensuite des oscillations qui à 2K sont déphasées de π par rapport à celles mesurées à 4.5K [129][125].

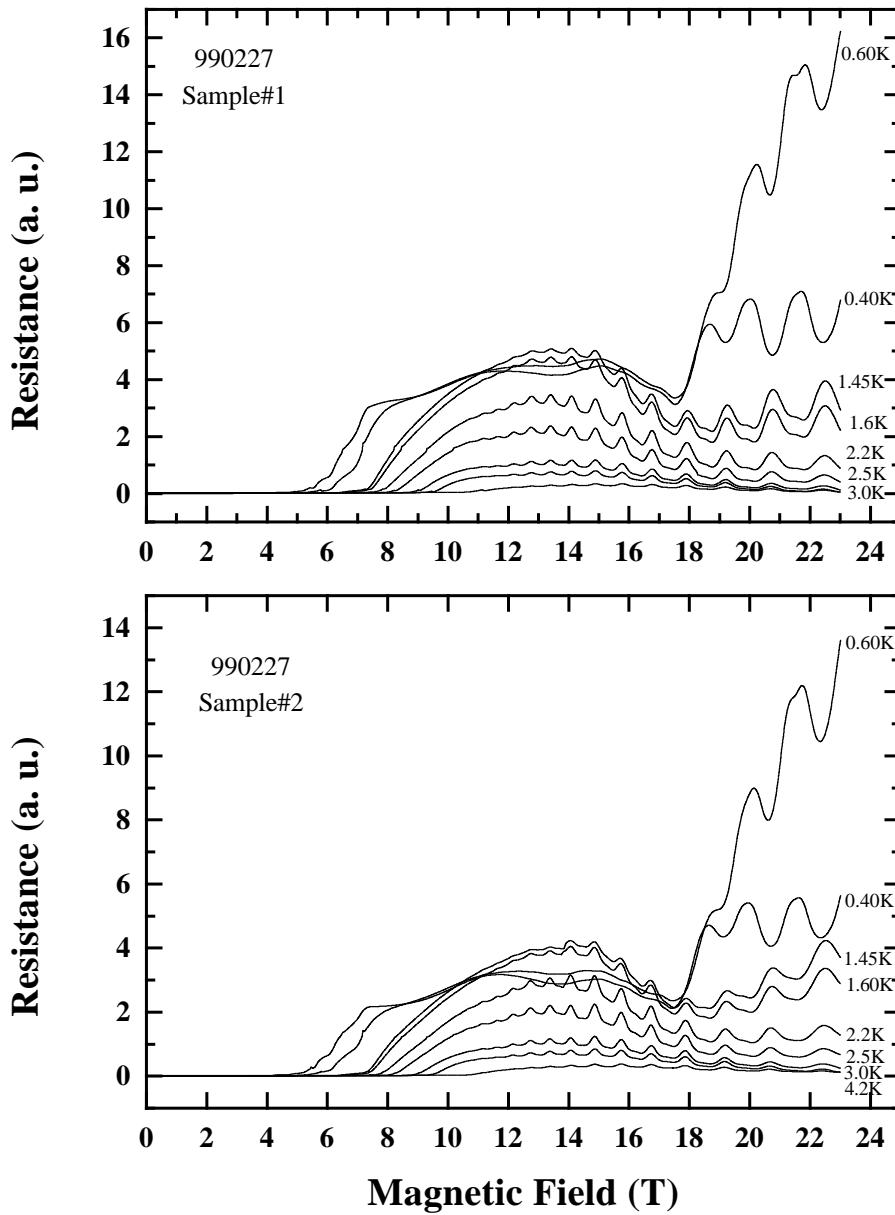


Figure 8.6: $R_{zz}(H)$, échelle linéaire.

C'est aussi le cas des mesures de vitesse du son [127] dans des monocristaux de $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ qui révèlent des oscillations magnéto-acoustiques au-delà de 15T pour lesquelles le déphasage a également lieu vers 2K. Aucune interprétation n'est néanmoins fournie par les auteurs à l'appui de ces observations.

Une première version du diagramme de phase haut champ a été proposée par Naughton *et al.* [124][127] dans laquelle la ligne de transition vers 5K rejoint pro-

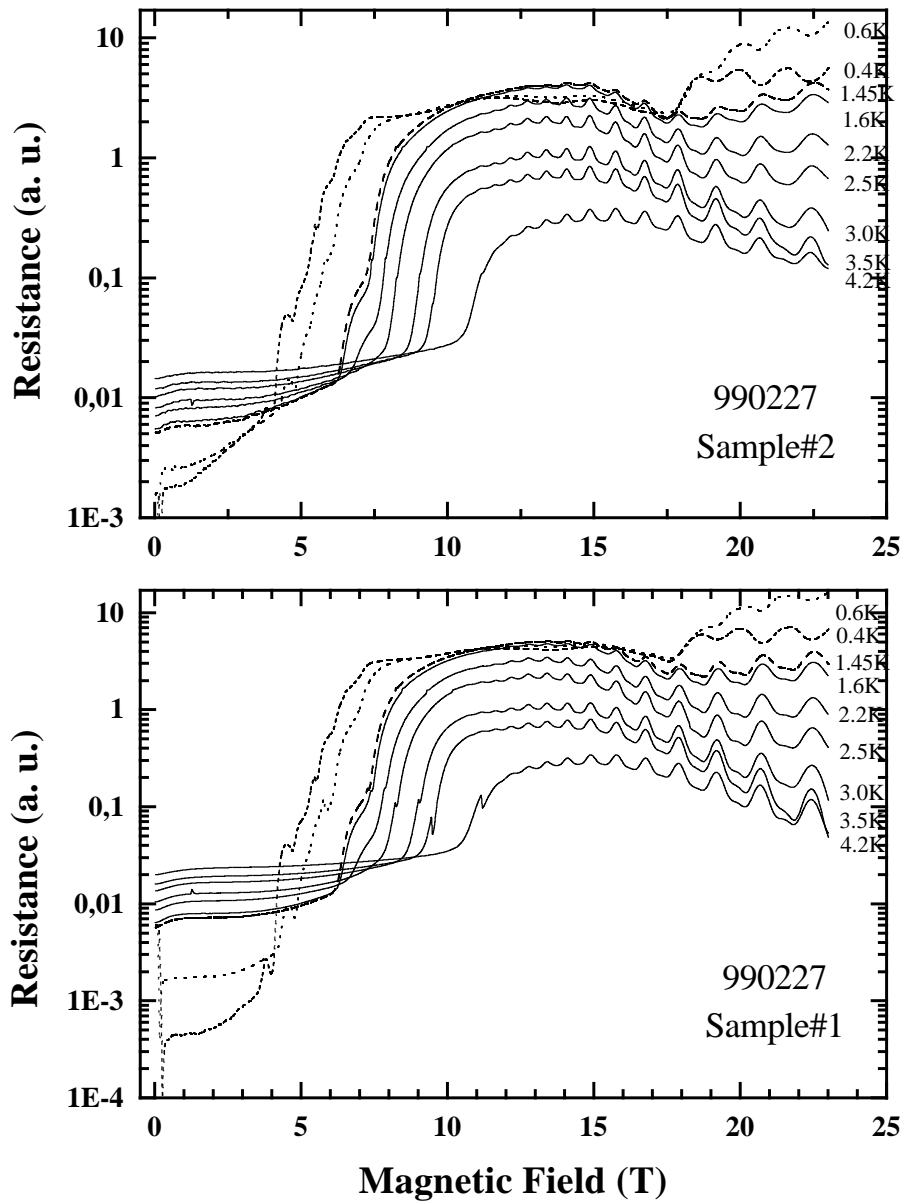


Figure 8.7: $R_{zz}(H)$, échelle Log.

gressivement celle de 3K et définit une frontière ré-entrante dans la phase métallique (fig. 8.11). Cette version a été mise en défaut par McKernan *et al.* comme on l'a vu plus haut [125]. Notre travail corrobore le diagramme de McKernan et propose d'y adjoindre une ligne supplémentaire témoignant de l'existence d'un régime de champ dans lequel apparaissent des anomalies thermodynamiques et de transport (fig. 8.10). Il se trouve que la transition du premier ordre observée dans les mesures $R_{zz}(T)$ sous

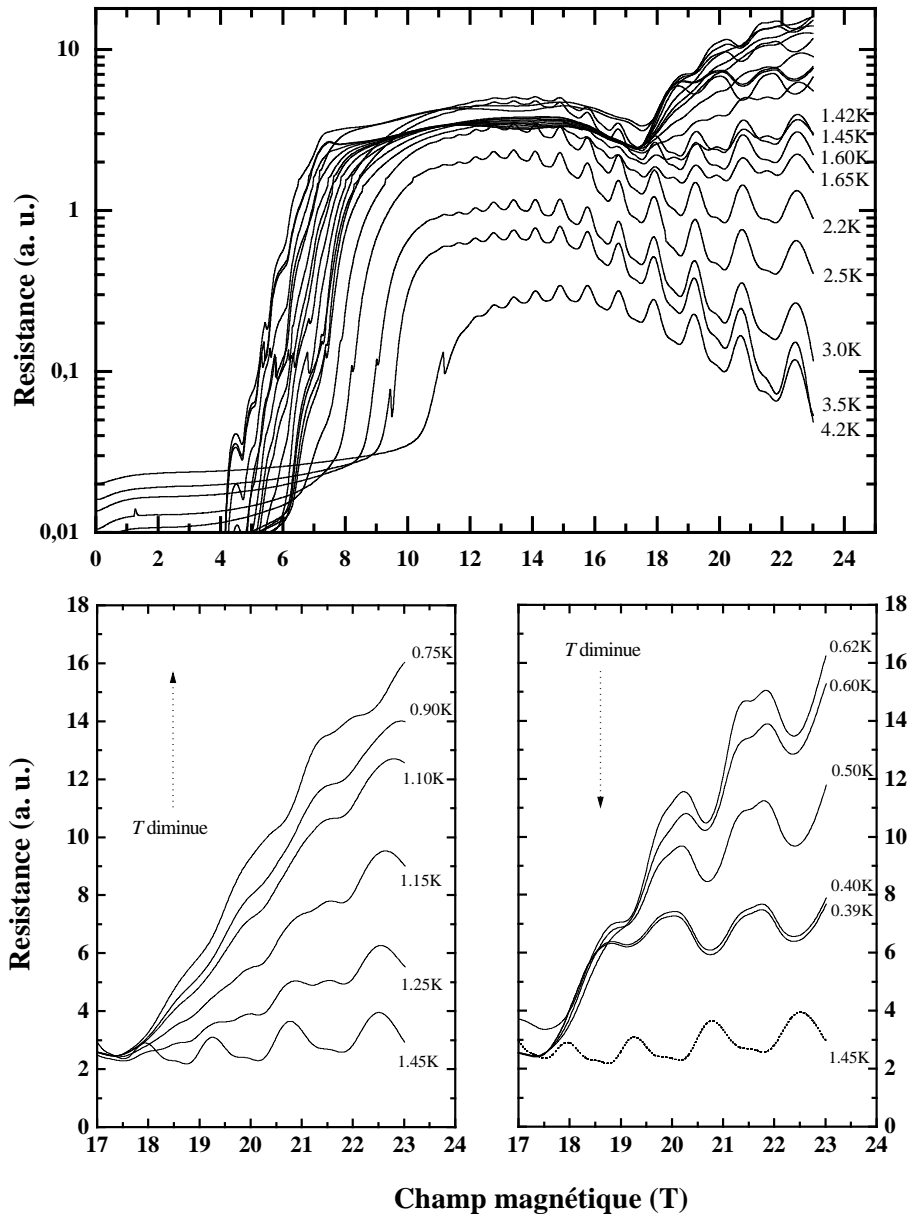


Figure 8.8: $R_{zz}(H)$, mesure exhaustive. Les deux figures inférieures montrent le comportement de $R_{zz}(H)$ entre 17 et 23T à basse température. Noter le déphasage des oscillations vers 0.7K.

champ, révèle sous 19T une anomalie caractéristique à 2.76K, laquelle est très proche dans le diagramme de phase de l'anomalie mise en évidence vers 18.7T en balayant le champ à une température fixe de 2.5K. Comme on l'a vu, l'anomalie de $R_{zz}(H)$ a une température critique qui varie très fortement entre 17.5T et 20T. A 17.5T on

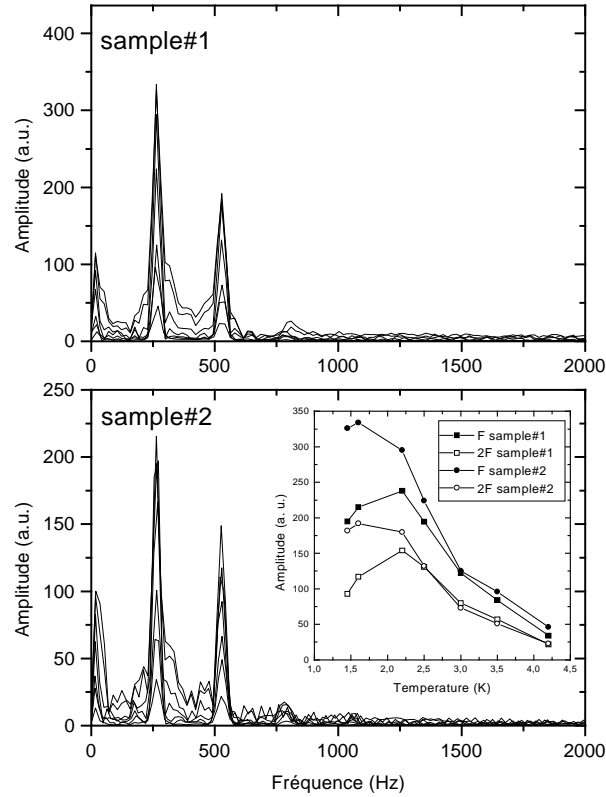


Figure 8.9: Transformée de Fourier des oscillations rapides. L'insert donne la variation en température de l'amplitude du premier et du deuxième harmonique.

l'observe vers 2.5K; elle est toujours visible à 400mK. On est donc très tenté de prolonger la ligne de transition du premier ordre découverte par McKernan *et al.* à plus bas champ et jusqu'à basse température. Il faut cependant garder à l'esprit que la dépendance en champ magnétique des quantités thermodynamiques, et notamment l'aimantation, ne révèlent à 2K aucun signe d'une transition du premier ordre vers 17T. Par conséquent nous proposons que la ligne de transition du premier ordre se fonde dans la ligne de cross-over mise en évidence au cours de ce travail. Notre version du diagramme de phase est représenté dans la Figure (8.9): les symboles pleins réfèrent aux mesures $R_{zz}(H)_T$ (balayage de champ, température fixée) et les symboles vides aux mesures $R_{zz}(T)_H$ (balayage de température, champ fixé).

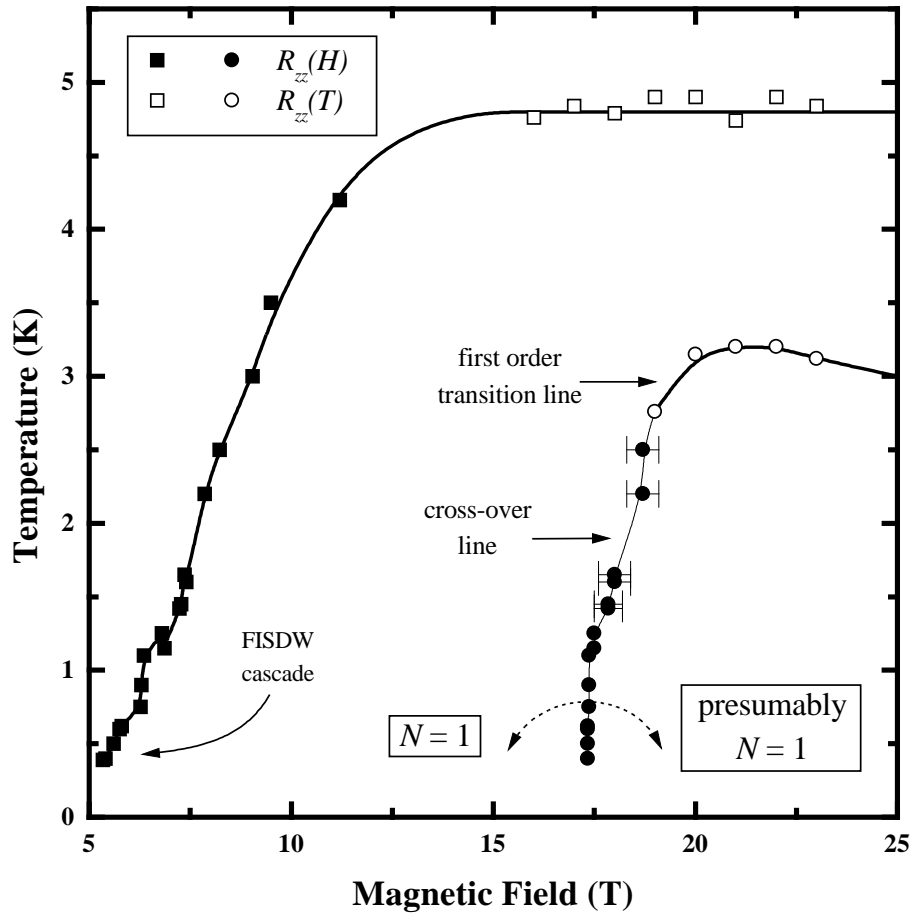


Figure 8.10: Notre version du diagramme de phase (H, T) du sel perchlorate.

8.5 Discussion

Il est intéressant d'établir plus explicitement un lien entre la ligne d'anomalie extraite des mesures $R_{zz}(H)$, et les résultats antérieurs basés sur une sonde thermodynamique. La vitesse du son dans un monocristal de $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ a été mesurée jusqu'à 32T (fig. 8.12) par Shi, Kang et Chaikin [127]. Comme pour l'aimantation [125][126][128][129], le dernier saut paramagnétique (vers 8T à 0.5K) associé à l'entrée dans la phase $N = 1$ est suivi à plus haut champ par une lente relaxation quasi-linéaire à plus haut champ. Vers 17T à 0.5K apparaissent des oscillations dont l'amplitude augmente brutalement au-delà de 28T. Lorsque la température croît, les oscillations apparaissent à un champ légèrement plus élevé (à 1.5K le champ seuil est presque inchangé). Vers 2.5K les oscillations s'estompent; elles réapparaissent

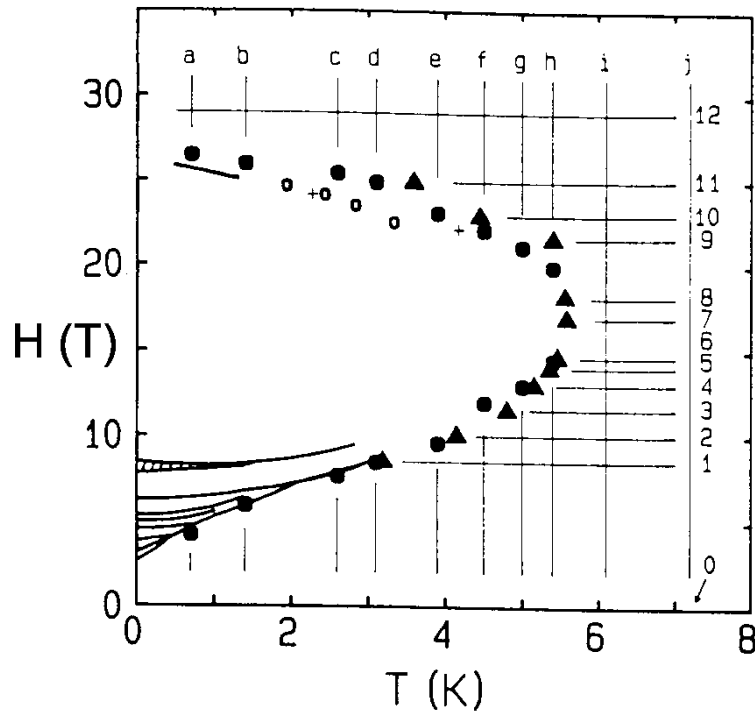


Figure 8.11: *Premier diagramme de phase du sel perchlorate par Naughton et al. [124].*

au-delà de 3.5K, déphasées de π . Toute oscillation a disparu au-delà de 6K. Entre 0.5K et 2.5K l'accroissement brutal de l'amplitude du signal ressemble davantage à un autre saut paramagnétique qu'à une simple dilatation des oscillations: en effet le saut à (25T, 2.5K) existe quand les autres oscillations sont totalement estompées (*i.e.* entre deux déphasage). Au-delà de 3.5K on ne voit plus signe de ce saut, et l'amplitude des oscillations diminue lentement lorsque s'élève la température. Ceci suggère que la dépendance en température des champs seuils marquant la naissance des oscillations et le saut "d'allure paramagnétique" définit une région du diagramme de phase (H, T) limitée par une ligne du premier ordre dont la portion "haut champ" bornée par un point critique à (20T, 3.0K) a été observée par McKernan *et al.* [125], et confirmée dans son intégralité par nos mesures actuelles.

Cet aspect des mesures de Shi *et al.* n'a jamais véritablement été soulevé. Au moment de ce travail l'attention était focalisée sur une éventuelle fluctuation de la ligne de transition (H, T) prédite par une théorie d'Osada, Kagoshima et Miura, que

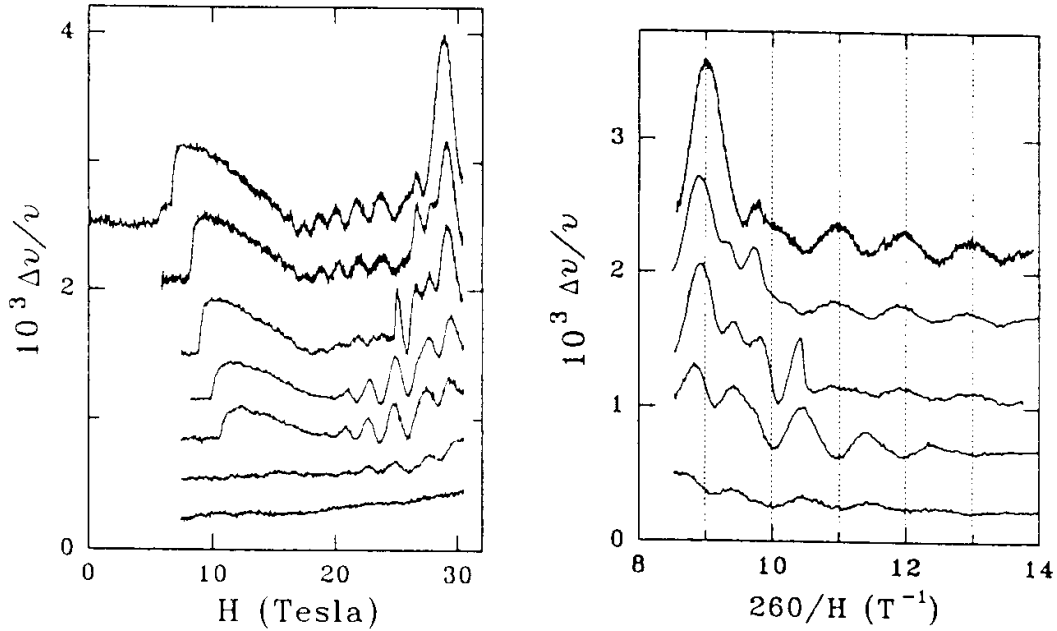


Figure 8.12: *Dépendance en champ magnétique de la vitesse du son dans le sel perchlorate. Figure de gauche: de haut en bas, la température est 0.5, 1.5, 2.5, 3.5, 4, 5 et 6K. Figure de droite: vitesse du son en fonction de l'inverse du champ magnétique. De haut en bas, la température est 0.5, 1.5, 2.5, 3.5 et 5K. Noter le déphasage des oscillations entre 3.5K et 0.5K [127].*

ne révèlent ni ces mesures d'alors, ni les mesures réalisées ultérieurement.

Retournant à nos mesures $R_{zz}(T)_H$ nous constatons qu'entre les transitions à 4.8K et 3.2K la résistance R_{zz} double pratiquement de valeur. Une observation similaire a suggéré à Chaikin [125] que le mécanisme sous-jacent à ces transitions pourrait être la construction d'une Onde de Densité de Spin (ODS) sur l'une des surfaces de Fermi à partir de 5K, qui devient entièrement "gappée" à 3K et ferme un canal de conductance, la deuxième surface de Fermi restant dans un état métallique et ne transitant vers un état ODS qu'à 3K. La grande originalité de ce modèle réside dans le fait qu'il n'est pas compatible avec la théorie standard du Nesting Quantifié et représente donc une alternative intéressante. Dans l'approximation à un seul gap des Phases ODS induites par le champ, la température critique T_c^N de la transition vers

la sous-phase N s'exprime comme:

$$T_c^N = \frac{2\gamma E_0}{\pi} \exp\left(\frac{-1}{\lambda n(E_F) |\max(I_N)^2|}\right) \quad (8.14)$$

où γ est la constante d'Euler, E_0 une énergie de coupure prise de l'ordre de la largeur de bande, λ une constante de couplage, et $n(E_F)$ la densité d'états au niveau de Fermi. $\max(I_N)$ est la valeur maximale de $I_N(Q_\perp)$ qui est une fonction de la composante suivant k_y du vecteur de Nesting \mathbf{Q} dans la sous-phase N . $I_N^2(Q_\perp)$ représente l'amplitude des divergences de la susceptibilité χ :

$$\chi(\mathbf{Q}, \omega, H, T) = \sum_N I_N^2(Q_\perp) \tilde{\chi}_0(Q_\parallel - n/x_0, \omega, T) \quad (8.15)$$

où x_0 est la longueur magnétique $x_0 = 1/\epsilon H b$, et $\tilde{\chi}_0(q, \omega, T)$ est la fonction de corrélation de spin strictement 1D:

$$\tilde{\chi}_0(q, \omega, T) = \sum_k \frac{n(k+q) - n(k)}{\epsilon_0(k) - \epsilon_0(k+q) - \omega - i\eta} \quad (8.16)$$

avec $\epsilon_0(k) = v_F(|k| - k_F)$, $\eta \rightarrow 0^+$ et $n(k) = (\exp[(k - k_F)/k_B T] + 1)^{-1}$. Si un gap est entièrement développé sur l'une des surfaces de Fermi, la densité d'états de quasi-particules au niveau de Fermi $n(E_F)$ est divisée d'un facteur 2 [148]. Comme le montre l'expression (8.14), la réduction de la densité d'états a un effet dramatique sur la température critique de la transition: $\exp(-2) \simeq 0.135$, donc si l'une des transitions a lieu vers 5K, l'autre ne peut apparaître au-dessus de 0.7K au mieux, et on s'attend en fait à ce que la température critique de la deuxième transition soit réduite de quelques ordres de grandeur par rapport aux 3K effectivement observés.

Une question d'importance est l'indexation des sous-phases délimitées dans le diagramme (H, T) par les deux lignes de transition. Au-delà de 28T, les mesures à basse température montrent que la résistance de Hall n'est plus quantifiée et varie bruyamment autour de zéro [124][126]. La résistance $\rho_{xx}(H)$ croît quant à elle de plusieurs ordres de grandeur [124][126][131]. Ceci est donc compatible avec la phase $N = 0$. Puisqu'il n'y a pas de transitions de phase supplémentaires en température on peut indexer à $N = 0$ la phase limitée au-delà de 28T par la ligne de transition du second ordre à 5K. Par continuité il est tentant d'attribuer le même nombre quantique

à toute la phase limitée par cette ligne de transition, jusqu'à 10T et la cascade de phases induites. Une telle indexation expliquerait en effet la grande stabilité de la ligne à 5K qui s'étend de 15T jusqu'au-delà de 30T, puisque le coefficient I_0 sature à haut champ [149]. Cependant la mesure de la résistance de Hall à 0.5K montre une bonne quantification à $N = 1$ à partir de 8T, et l'hypothèse de l'extension de la phase $N = 0$ à la zone "bas champ" du diagramme ne tient pas.

Attribuer le nombre quantique $N = 1$ à la sous-phase limitée par la ligne de transition du premier ordre est supporté par la quantification de la résistance de Hall dans cette région. Le coefficient I_1 tombe à zéro à haut champ [149], ce qui rendrait compte de la fermeture de cette sous-phase vers 27T, donc *avant* les singularités significatives de la phase $N = 0$.

On voit qu'il est très difficile d'attribuer un nombre quantique aux sous-phases du diagramme de phase à haut champ. Ceci suggère d'examiner plus en détail l'ensemble des résultats expérimentaux évoqués ici.

La résistance de Hall. — La quantification de la résistance de Hall au-delà de 8T présente quelques anomalies. A 0.5K, certaines mesures révèlent que le "plateau" à $N = 1$ ressemble beaucoup en réalité à une très lente oscillation jusqu'à 28T [124][125]. Superposées à cette enveloppe apparaissent des oscillations de plus grande fréquence à 2K, et sans doute également à plus basse température. D'autres mesures à 0.5K sont plutôt compatibles avec un plateau, mais qui cependant présenterait un léger accident vers 17T [124] [125]. A plus haute température les oscillations apparaissent et l'accident vers 17T est davantage prononcé; il disparaît au-delà de 3K.

Les mesures thermodynamiques. — A 2K on a du mal à distinguer dans l'aimantation $M(H)$ [125][126][128][129] un saut paramagnétique attribuable entre 26 et 28T au franchissement de la ligne de transition du premier ordre; on le voit beaucoup mieux dans la vitesse du son [127]. Entre 8T et 17T l'aimantation semble diamagnétique et varie linéairement en champ. Dès 14T une contribution oscillante vient s'y ajouter qui s'amplifie jusqu'à 30T. L'aimantation change de signe vers 15T et la contribution non-oscillante sature entre 17T et 30T. A 4.5K les oscillations sur la partie "diamo-

gnétique” de l’aimantation ont disparu bien que les oscillations sur la partie saturée subsistent au-delà de 20T mais sont déphasées de π par rapport aux oscillations à 2K. Comme on l’a mentionné à de nombreuses reprises ce déphasage est retrouvé dans les mêmes conditions physiques de champ et température dans les mesures d’aimantation, de vitesse du son et de magnéto-résistance. Le cas de l’aimantation suggère que le mécanisme physique sous-jacent aux oscillations présentes dans la sous-phase close par la ligne de transition du premier ordre a encore cours entre 14T et 17T: il s’agit bien des mêmes oscillations entre 14T et 30T en-dessous de 3K, puisqu’elles ont la même fréquence et la même phase sur la totalité de cet intervalle de champ.

En l’absence de mesures complémentaires il est difficile de conclure de manière définitive à l’existence d’inclusions de phases $N = 1$ dans $N = 0$, qui est une idée sous-jacente à cette discussion. Jusqu’à présent la manifestation la plus concluante de ce mélange de phases est sans doute le très net déphasage des oscillations rapides dans la magnéto-résistance au-delà de 17T et à basse température. Il est clair qu’une sonde thermodynamique fine telle que l’aimantation est complètement nécessaire entre 10 et 18T et à basse température.

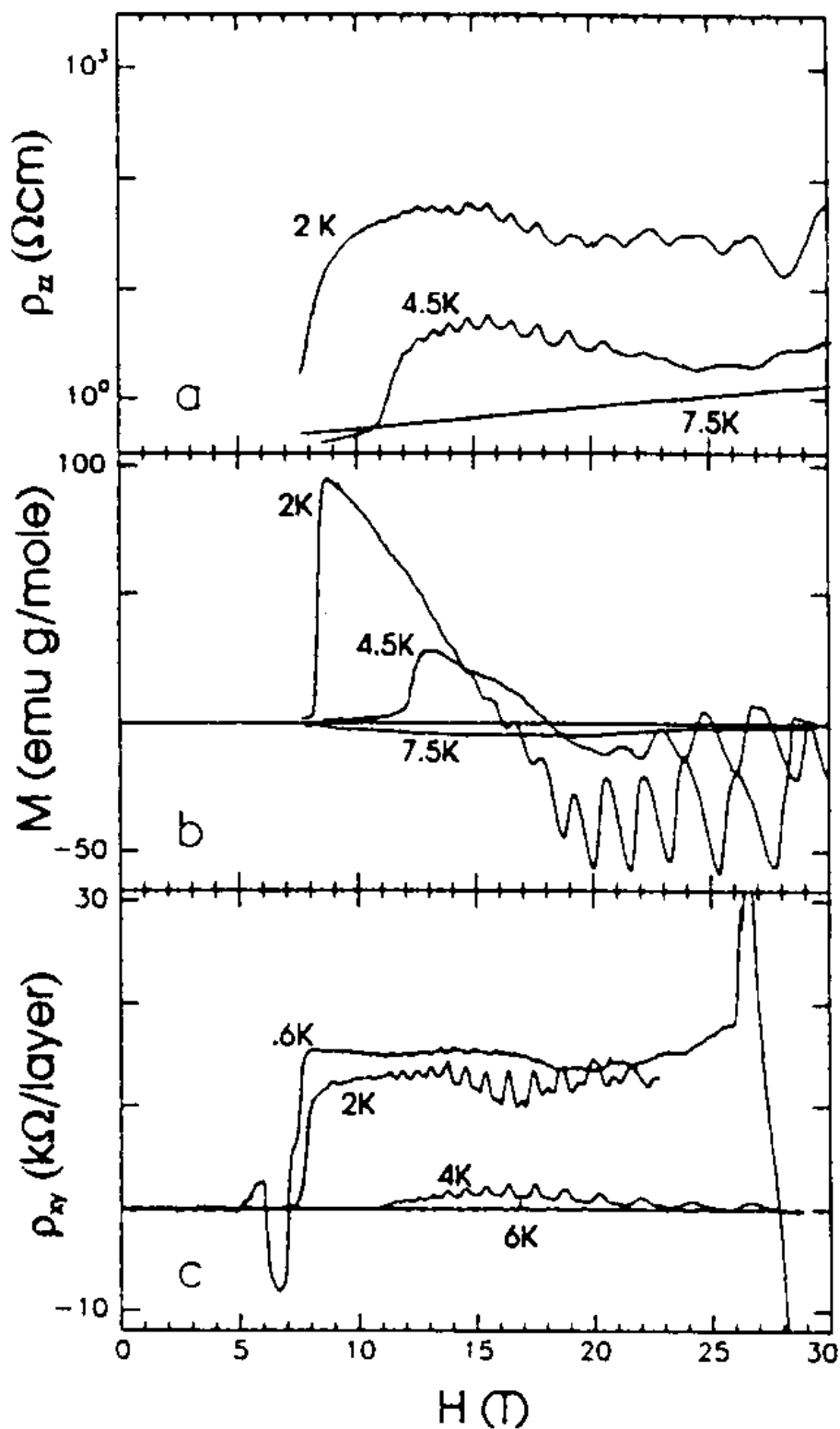


Figure 8.13: Mesures de McKernan en fonction du champ. De haut en bas: magnéto-résistance suivant zz ; aimantation; résistivité de Hall [125].

Chapitre 9

Summary

Since september 1996 my thesis work has been focusing on the normal state properties of quasi-one dimensional conductors investigated by magneto-transport measurements under pressure. The compounds under study are the so-called Bechgaard'salts, consisting of planar, organic molecules stacked one on top of another as a result of p_z orbitals overlap. This stacking tendency defines a particular direction along which electronic delocalization occurs thereby turning these materials into a close realization of a one-dimensional metal. Although real organic metals are best seen as a collection of weakly coupled chains the normal state of the Bechgaard'salts has been found to host a liquid of strongly correlated quasiparticles. Whether this liquid is of fermionic type or not is still debated but new experimental evidences have contributed to settle the problem. Namely the high temperature properties of the normal phase exhibit a number of anomalies which are by now accounted for in terms of a Luttinger liquid. Upon cooling interchain coupling picks up some coherence thereby driving the system towards a two-dimensional but still non-Fermi regime. The Luttinger liquid exponent K_ρ controlling the decay of all correlation functions is experimentally accessible and is found to be slightly above, or slightly below the critical value for the onset of a Mott insulator, depending on the chemical nature of the unit molecule.

My thesis work aims at providing new insight into the role of finite coupling between 1D chains when it comes to restore a conventional Fermi liquid. An efficient

way to tune continuously the dimension parameter is for instance by mean of hydrostatic pressure which compresses chains and varies effectively the transverse transfer integral. We have namely performed a high pressure study of the highly anisotropic quasi-1D organic conductor $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$. We have observed the reduction of the Mott gap under pressure, then managed to bring down the onset temperature of the antiferromagnetic phase to a low value.

Transport along the weakest conductivity axis (c -axis) is incoherent and acts as a tunneling effect between chains which mirrors anomalies of the on-chain density of states. The c -axis resistivity exhibits a strong temperature dependence going through a maximum at a pressure-dependent temperature T_{max} in the 100K energy scale. As pressure is further increased the c -axis resistivity maximum is shifted towards higher temperatures, shortening out the temperature interval over which the Luttinger description holds. Above T_{max} resistivity follows a $T^{-2\alpha}$ power law consistent with a tunneling process between two Luttinger systems with electronic density of states $N(T)^\alpha$. Another approach argues that Mott gap-related features in the optical spectrum might seriously affect transverse transport responses. Numerical fits cannot rule out any of those models this being strongly suggestive of multiple dissipative processes involved. There might also be an extra loss mechanism at low (but not too low) frequencies in the optical measurements which gives a spurious gap feature. The proper experimental test would be to measure the optical reflectivity from an (ac) face to make sure that it gives exactly the same results for $\sigma_{xx}(\omega)$ as for the usual (ab) faces, both of course with $\mathbf{E} \parallel a$.

The transport anisotropy in the (ab) planes formed by weakly coupled chains has been the focus of another study. DC properties are very easily overshadowed by the conductivity along the stacking axis while physics of interest lie mostly in interchain couplings. It is therefore necessary to probe conductivity along the other crystallographic axis. Transport measurements were performed in a height terminal geometry with use of a modified flux transformer method. A new configuration of contacts was found to avoid driving to saturation the flux transformer algorithm, as would have been expected in case of substantial anisotropy. The Laplace equation

subsequently computed in this configuration gave access to the in-plane anisotropy as an intrinsic quantity of our materials. It came out that our data were all consistent with a Fermi liquid fully restored below 10K.

We thus brought forward conclusive evidences for two energy scales (100K and 10K) accounting for three different regimes in the metallic phase of the quasi-1D organic conductors. As temperature is lowered the Luttinger description breaks down and a marginal Fermi liquid picture with finite quasiparticles lifetime becomes more appropriate. A conventional Fermi liquid is eventually recovered below 10K when transverse carriers hoppings make the system two-dimensional.

This point of view has recently met the agreement of optical experiments performed over the far-infrared range. We think that it makes sense to describe the Marginal Fermi liquid as probed in quasi-1D organics as a transient Fermi liquid endowed with two-dimensional features but strongly reminiscent of a one-dimensional system. Namely the *ac*-conductivity of these materials cooled below 30K showed clear evidences for a Drude peak at zero frequency with a small spectral weight, and a large structure around 200 cm^{-1} with a major spectral contribution and a frequency dependence in full agreement with a Mott insulator.

Another very revealing experiment concerns the polarization voltage induced by a magnetic field applied along any transverse axis, the Hall effect. This project has been conducted at the University of Cambridge with Prof. John R. Cooper. The particularly high carriers density in the metallic phase of organics makes indeed the Hall signal quite weak and therefore difficult to be measured in an easy way. Reliable sets of data have been obtained which are currently interpreted within a 1D theoretical model. Measurements have been performed at ambient pressure on $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ between 14 and 330K. The Hall signal saturates at room temperature and smoothly decreases down to a local minimum around 130K before rising again upon cooling down to 50K. Below 50K Umklapp scattering processes are restored by magnetic-induced one-dimensionalization of the Fermi surface and nesting properties drive the system to a spin density wave state. This phenomenon unfortunately overshadows the pure many-body question of interest in the metallic phase and the Hall signal

falls off to zero at 17K before changing sign in the density wave state. Such a Hall profile in temperature has been observed with two different batches synthesized at UCLA and in Denmark. Below 130K our experiments give some indication of the behaviour of R_H for a weakly-2D liquid. That is the sign and magnitude correspond to the physical hole concentration (not that of the holons or spinons) and there is a tendency for R_H to fall approximately linearly with T until the 2D crossover is reached. We look upon 130K as an energy scale controlling a 1D-2D dimensional changeover. We note that this scale coincides as well with a fully developed Mott gap in the optical spectrum around 200cm^{-1} , but also with the bare (or at least weakly renormalized) b -axis coupling.

The second aspect of my thesis concerns the (*Field, Temperature*) phase diagram of the quite intriguing one-dimensional compound $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$. Systematic magnetoresistance measurements provided strong clues for a closed $N = 1$ domain at low temperature between 17T and 28T. Our main result seriously questions the existence of a critical point at 20T as proposed by McKernan *et al.* in a recent publication.

Bibliographie

- [1] J. Ladik, G. Biczko et A. Zawadowski, *Phys. Letters* **18**, 257 (1965); J. Ladik, G. Biczko et J. R edly, *Phys. Rev.* **188**, 710 (1969); J. Ladik et K. Appel, *J. Chem. Phys.* **40**, 2470 (1964).
- [2] W. A. Little, *Phys. Rev.* **134A**, 1416 (1964). W. A. Little, *Phys. Rev.* **156**, 396 (1967).
- [3] W. A. Little, dans *Organic Conductors: Fundamental and Applications*, ed. par J. P. Farges, Marcel Dekker NYC-Basel-Hong Kong, p. 1.
- [4] K. Bechgaard, C. S. Jacobsen, K. Mortensen, H. J. Pedersen et J. Thorup, *Solid State Commun.* **33**, 1119 (1980).
- [5] C. Coulon, P. Delhaes, S. Fletrois, R. Lagnier, E. Bonjour et J.-M. Fabre, *J. Phys. (Paris)* **45**, 1059 (1982).
- [6] Pour une revue se conf erer  : D. J erome et H. J. Schulz, *Adv. Phys.* **31**, 229 (1982).
- [7] D. J erome, A. Mazaud et M. Ribault, *J. Physique (Lettres)* **41**, L-95 (1980).
- [8] Pour une revue sur les phases induites par le champ, voir par exemple: P. M. Chaikin, *Journal de Physique I* **6**, 1875 (1996).
- [9] Pour une revue, voir: D. J erome dans *Organic Conductors: Fundamental and Applications*, ed. par J. P. Farges, Marcel Dekker NYC-Basel-Hong Kong, p. 405.

- [10] Voir par exemple: C. Bourbonnais et L. G. Caron, *Int Journ. Phys. B* **5**, 1033 (1991).
- [11] H. J. Schulz, *Int Journ. Phys. B* **5**, 57 (1991).
- [12] H. J. Schulz, *Physica C* **235-240**, 217 (1994).
- [13] J. Voit, *Phys. Rev. B* **47**, 6740 (1993).
- [14] V. J. Emery, R. Bruinsma et S. Barisic, *Phys. Rev. Lett.* **48**, 1039 (1982).
- [15] C. Coulon *et al.*, *J. Phys. France* **43**, 1059 (1982).
- [16] J.-P. Pouget *et al.*, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **79**, 485 (1982).
- [17] F. D. M. Haldane, *J. Phys. C* **14**, 2585 (1981).
- [18] J. M. Luttinger, *J. Math. Phys.* **4**, 1154 (1963).
- [19] V. J. Emery, *J. Physique Colloq.* **44**, C3-977 (1983).
- [20] L. P. Gor'kov et M. Mochena, *Phys. Rev. B* **57**, 6204 (1998).
- [21] J. Sólyom, *Adv. Phys.* **28**, 209 (1979).
- [22] C. Bourbonnais, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **119**, 11 (1985).
- [23] L. G. Caron et C. B. Bourbonnais, *Synthetic Metals* **27**, A67 (1988).
- [24] C. Bourbonnais, dans *Low Dimensional Conductors and Superconductors*, ed. par D. Jérôme et L. Caron, NATO Adv. Study Inst., vol. 155 (1987).
- [25] Pour une revue voir par exemple: H. J. Schulz, G. Cuniberti et P. Pieri: condmat/9807366.
- [26] C. Bourbonnais, F. Creuzet, D. Jérôme, K. Bechgaard et A. Moradpour, *J. Physique Lett.* **45**, L-755 (1984).
- [27] C. Jacobsen, D. B. Tanner et K. Bechgaard, *Phys. Rev. Lett.* **46**, 1142 (1981).

- [28] C. Jacobsen *et al.*, *Solide State Commun.* **38**, 423 (1981).
- [29] C. Jacobsen, D. B. Tanner et K. Bechgaard, *Phys. Rev. B* **28**, 7019 (1983).
- [30] N. Cao, T. Timusk et K. Bechgaard, *J. Phys. I (France)* **6**, 1719 (1996).
- [31] A. Schwartz *et al.*, *Phys. Rev. B* **58**, 1261 (1998).
- [32] M. Dressel *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 398 (1996).
- [33] V. Vescoli *et al.*, *Science* **281**, 1181 (1998).
- [34] T. Giamarchi, *Phys. Rev. B* **44**, 2905 (1991); T. Giamarchi, *Phys. Rev. B* **46**, 342 (1992); T. Giamarchi, *Physica B* **230-232**, 975 (1997).
- [35] B. Dardel *et al.*, *Europhys. Lett.* **24**, 687 (1993).
- [36] C. Bourbonnais *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 1532 (1989).
- [37] P. Wzietek *et al.*, *J. Phys. I (France)* **3**, 171 (1993).
- [38] G. M. Danner et P. M. Chaikin, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 4690 (1995).
- [39] G. Pissarenko, A. Yakovlev et V. Matvéev, *Aide-Mémoire de résistance des matériaux*, Editions de Moscou, chap. 15.
- [40] J. G. Hust, *The review of scientific instruments* **41**, 622 (1970).
- [41] M. I. Eremets, *High Pressure Experimental Methods* (Oxford Science Publications, Oxford Univ Press, 1995).
- [42] P. Nozières, *Le problème à N corps*, Dunod Ed. (1963).
- [43] J. Hubbard, *Proc. Roy. Soc.* **A276**, 238 (1963).
- [44] V. J. Emery, dans *Highly conducting one-dimensional solids*, Devreese Ed., Plenum (1979).
- [45] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu et F. Laloë, *Mécanique Quantique* (Hermann Paris, 1973).

- [46] H. J. Schulz, dans *Mesoscopic Quantum Physics*, E. Akkermans, G. Montambaux, J.-L. Pichard, J. Zinn-Justin Ed. (Elsevier, 1995), p. 533.
- [47] T. Giamarchi et A. J. Millis, *Phys. Rev. B* **46**, 9325 (1992).
- [48] H. J. Schulz, dans *Strongly correlated electronic materials*, K. S. Bedell et al. Ed. (Addison-Westley, Reading, Massachusetts, 1994).
- [49] D. W. Koon, C. J. Knickerbocker, *Rev. Sci. Instrum.* **63**, 207 (1992).
- [50] H. Safar et al., *Phys. Rev. Lett.* **72**, 1272 (1994).
- [51] G. A. Levin, *J. Appl. Phys.* **81** (2), 714 (1997).
- [52] J. R. Cooper et J. W. Loram, *J. Phys I (Paris)* **6**, 2237 (1996).
- [53] H. C. Montgomery, *J. Appl. Phys.* **42**, 2971 (1971).
- [54] B. Korin-Hamzić, communication privée.
- [55] A. A. Abrikosov, L. P. Gor'kov et I. E. Dzyaloshinskii, *Methods of Quantum Field Theory in Statistical Physics* (Dover, New York, 1975).
- [56] J. Moser, M. Gabay, P. Auban-Senzier, D. Jérôme, K. Bechgaard et J.-M. Fabre, *Eur. Phys. J. B* **1**, 39 (1998).
- [57] P. Auban-Senzier, D. Jérôme et J. Moser, *Int. Conf. on High Magn. Field, Tallahassee* (1998).
- [58] B. Gallois, *Synth. Metals* **19**, 321 (1987); B. Gallois, Thèse de Doctorat, Univ. de Bordeaux (1987).
- [59] P. M. Grant, *J. Phys. (Paris)*, Colloque C3, **44**, Suppl. 6, C3-847 (1983).
- [60] K. Behnia *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 5272 (1985).
- [61] D. G. Clarke et al., *Science* **229**, 2071 (1998); D. G. Clarke et S. P. Strong, *Adv. Phys.* **46**, 545 (1997); S. P. Strong, D. G. Clarke et P. W. Anderson, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1007 (1994).

- [62] K. Takenaka, K. Mizuhashi, H. Takagi et S. Uchida, *Phys. Rev. B* **50**, 6534 (1994).
- [63] L. B. Ioffe, A. I. Larkin, A. A. Varlamov et L. Yu, *Phys. Rev. B* **47**, 8936 (1993).
- [64] S. Uchida, *Physica C* **185-189**, 28 (1991); T. Ito, H. Takagi, S. Ishibashi, T. Ido et S. Uchida, *Nature* **350**, 596 (1991).
- [65] Y. F. Yan, J. M. Harris et N. P. Ong, *Int. Conf. on Materials and Mechanisms of High Temperature Superconductivity, Grenoble* (1994).
- [66] B. Korin-Hamzić, L. Forro et J. R. Cooper, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **119**, 135 (1985).
- [67] L. Balicas *et al.*, *J. Phys. I (France)* **4**, 1539 (1994).
- [68] J. R. Cooper, L. Forro, B. Korin-Hamzić, K. Bechgaard et A. Moradpour, *Phys. Rev. B* **33**, 6810 (1986).
- [69] D. G. Clarke, S. P. Strong et P. W. Anderson, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 4499 (1995).
- [70] P. W. Anderson *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 4241 (1996).
- [71] G. D. Mahan, *Many-Particle Physics* (Plenum Press, 1990).
- [72] Antoine Georges, communication privée.
- [73] A. Carrington, D. J. C. Walker, A. P. MacKenzie et J. R. Cooper, *Phys. Rev. B* **48**, 13051 (1993).
- [74] B. Wuyts, V. V. Moshchalkov et Y. Bruynseraede, *Phys. Rev. B* **53**, 9418 (1996); B. Wuyts *et al.*, *Phys. Rev. B* **47**, 5512 (1993).
- [75] E. C. Jones *et al.*, *Phys. Rev. B* **47**, 8986 (1993).
- [76] C. Kendziora, D. Mandrus, M. Mihaly et L. Forro, *Phys. Rev. B* **46**, 14927 (1992).
- [77] A. Carrington, *Thèse de Doctorat*, Univ. de Cambridge (1993).

- [78] T. R. Chien, Z. Z. Wang et N. P. Ong, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 2088 (1991).
- [79] A. Carrington, A. P. MacKenzie, C. T. Lin et J. R. Cooper, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 2855 (1992).
- [80] S. Martin, A. T. Fiory, R. M. Fleming, L. F. Schneemeyer et J. V. Waszcak, *Phys. Rev. B* **41**, 846 (1990).
- [81] P. W. Anderson, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 2092 (1991).
- [82] E. Abrahams, *J. Phys. I (France)* **6**, 2191 (1996).
- [83] G. Kotliar, A. Sengupta et C. M. Varma, *Phys. Rev. B* **53**, 3573 (1996).
- [84] J. M. Ziman, *Principles of the Theory of Solids* (Cambridge, 1964).
- [85] J. M. Harris, Y. F. Yan, P. Matl, N. P. Ong, P. W. Anderson, T. Kimura et K. Kitazawa, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1391 (1995).
- [86] N. P. Ong, *Physica C* **235-240**, 221 (1994).
- [87] J. R. Cooper et al., *J. Phys. Paris* **38**, 1097 (1977).
- [88] J. R. Cooper et al., *J. Phys. Paris* **37**, L-349 (1976).
- [89] K. Murata, *Physica C* **185-189**, 2685 (1991).
- [90] N. A. Fortune et al., *Synthetic Metals* **70**, 1001 (1995).
- [91] Voir par exemple: J. R. Cooper et B. Korin-Hamzić, dans *Organic Conductors: Fundamental and Applications*, ed. par J. P. Farges, Marcel Dekker NYC-Basel-Hong Kong, p. 359.
- [92] H. C. Montgomery, *J. Appl. Phys.* **42**, 2971 (1971).
- [93] L. J. van der Pauw, *Philips Res. Rep.* **13**, 1 (1958).
- [94] L. J. van der Pauw, *Philips Res. Rep.* **16**, 187 (1961).

- [95] B. Gallois, *Synth. Metals* **19**, 321 (1987); B. Gallois, Thèse de Doctorat, Univ. de Bordeaux (1987).
- [96] P. Auban-Senzier, D. Jérôme et J. Moser, *Int. Conf. on High Magn. Field, Tallahassee* (1998).
- [97] V. M. Yakovenko and A. T. Zheleznyak, *Int. Conf. on Synthetic Metals 1998*, Montpellier, France; cond-mat/9807047.
- [98] P. M. Chaikin, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 2831 (1992).
- [99] N. P. Ong, *Phys. Rev. B* **43**, 193 (1991).
- [100] A. T. Zheleznyak et V. M. Yakovenko, cond-mat/9802172.
- [101] K. Yamaji, *J. Phys. Soc. Jpn.* **51**, 2787 (1982).
- [102] J. M. Delrieu, *J. Phys. Paris* **47**, 839 (1986).
- [103] T. Takahashi, *J. Phys. Soc. Jpn.* **55**, 1364 (1986).
- [104] S. K. Lyo, *Phys. Rev. B* **14**, 3377 (1976).
- [105] A. A. Abrikosov, L. P. Gor'kov et I. E. Dzyaloshinskii, *Methods of Quantum Field Theory in Statistical Physics* (Dover, New York, 1975).
- [106] Woun Kang, communication privée.
- [107] S. S. P. Parkin, F. Creuzet et D. Jérôme, *J. Physique* **44**, 975 (1983).
- [108] V. J. Emery, R. Bruinsma et S. Barisic, *Phys. Rev. Lett.* **48**, 1039 (1982).
- [109] C. Coulon *et al.*, *J. Phys. France* **43**, 1059 (1982).
- [110] B. J. Klemme, S. E. Brown, P. Wzietek, D. Jérôme and J.-M. Fabre, *J. Phys. I (France)* **6**, 1745 (1996).
- [111] K. Mortensen *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **46**, 1234 (1981).
- [112] S. Flandrois, C. Coulon and P. Delhaes, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **79**, 307 (1982).

- [113] B. J. Klemme et al., *Phys. Rev. Lett.* **75**, 2408 (1995).
- [114] V. J. Emery, *Synth. Met.* **13**, 21 (1986).
- [115] M. T. Béal, C. Bourbonnais et V. J. Emery, *Phys. Rev. B* **34**, 7716 (1986).
- [116] C. Bourbonnais et L. G. Caron, *Europhys. Lett.* **5**, 209 (1988).
- [117] S. Belin, *Thèse de Doctorat*, Univ. Orsay Paris XI (1999).
- [118] S. Lefèbvre, *Thèse de Doctorat*, Univ. Sherbrooke (2000).
- [119] J. Bardeen, L. N. Cooper et J. R. Schrieffer, *Phys. Rev.* **108**, 1175 (1957).
- [120] F. Creuzet, *Thèse de Doctorat*, Univ. Orsay Paris XI (1987).
- [121] S. S. P. Parkin *et al.*, *J. Phys. C* **14**, 5305 (1981).
- [122] F. Favan et F. Mila, *Phys. Rev. B* **54**, 10425 (1996).
- [123] M. Ribault, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **119**, 91 (1985).
- [124] M. J. Naughton, R. V. Chamberlin, X. Yan, S.-Y. Hsu, L. Y. Chiang, M. Ya. Azbel et P. M. Chaikin, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 621 (1988).
- [125] S. K. McKernan, S. T. Hannahs, U. M. Scheven, G. M. Danner et P. M. Chaikin, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1630 (1995).
- [126] R. V. Chamberlin, M. J. Naughton, X. Yan, L. Y. Chiang, S.-Y. Hsu et P. M. Chaikin, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 1189 (1988).
- [127] X. D. Shi, W. Kang, P. M. Chaikin, *Phys. Rev. B* **50**, 1984 (1994).
- [128] X. Yan, M. J. Naughton, R. V. Chamberlin, S. Y. Hsu, L. Y. Chiang, J. S. Brooks et P. M. Chaikin, *Phys. Rev. B* **36**, 1799 (1987).
- [129] X. Yan, M. J. Naughton, R. V. Chamberlin, L. Y. Chiang, S. Y. Hsu et P. M. Chaikin, *Synth. Met.* **27**, B145 (1988).

- [130] S. Uji, T. Terashima, H. Aoki, J. S. Brooks, M. Tokumoto, S. Takasaki, J. Yamada et H. Anzai, *Phys. Rev. B* **53**, 14399 (1996).
- [131] J. S. Brooks, R. G. Clark, R. H. McKenzie, R. Newbury, R. P. Starett, A. V. Skougarevsky, M. Tokumoto, S. Takasaki, J. Yamada, H. Anzai et S. Uji, *Phys. Rev. B* **53**, 14406 (1996).
- [132] J.-P. Ulmet, A. Khmou et Laurence Bachere, *Physica* **143B**, 400 (1986).
- [133] T. Osada, N. Miura et G. Saito, *Physica* **143B**, 403 (1986).
- [134] M. Hérítier, G. Montambaux et P. Lederer, *J. Physique Lett.* **45**, L-943 (1984).
- [135] G. Montambaux, M. Hérítier et P. Lederer, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 2078 (1985).
- [136] G. Montambaux, M. Hérítier et P. Lederer, *J. Phys. C* **19**, L-293 (1986).
- [137] D. Poilblanc, M. Hérítier, G. Montambaux et P. Lederer, *J. Phys. C* **19**, L-321 (1986).
- [138] M. Ribault, D. Jérôme, J. Tuchendler, C. Weyl et K. Bechgaard, *J. Physique (Paris)* **44**, 953 (1983).
- [139] J.-P. Pouget, G. Shirane, K. Bechgaard et J.-M. Fabre, *Phys. Rev. B* **27**, 5203 (1983).
- [140] J. P. Pouget, R. Moret, R. Comès, G. Shirane, K. Bechgaard et J.-M. Fabre, *J. Physique Colloq.* **44**, C3, 969 (1983).
- [141] R. Moret, J.-P. Pouget, S. Ravy et R. Comès, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **119**, 257 (1985).
- [142] G. Montambaux et D. Zanchi, *Synth. Met.* **86**, 2235 (1997).
- [143] W. Kang et D. Jérôme, *J. Phys. I* **1**, 449 (1991).
- [144] A. G. Lebed, *J. Phys. I (France)* **6**, 1819 (1996).
- [145] A. G. Lebed, *Synth. Met.* **70**, 993 (1995).

-
- [146] A. G. Lebed, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 4903 (1995).
- [147] M. Ya. Azbel et P. M. Chaikin, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 582 (1987).
- [148] M. Héritier, communication privée.
- [149] D. Poilblanc, Thèse de Doctorat, Univ. Orsay Paris XI (1988).
- [150] E. I. Chashechkina et P. M. Chaikin, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 2181 (1998).
- [151] S. P. Strong *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1007 (1994).
- [152] J. R. Cooper, D. Jérôme, S. Etemad et E. M. Engler, *Solid State Comm.* **22**, 257 (1977).
- [153] K. Bechgaard, C. S. Jacobsen, K. Mortensen, H. J. Pedersen et N. Thorup, *Solid State Comm.* **33**, 1119 (1980).
- [154] L. Balicas, Thèse de Doctorat, Univ. Orsay Paris XI (1995).
- [155] B. Welber, P. E. Seiden et P. M. Grant, *Phys. Rev. B* **18**, 2692 (1978).
- [156] P. Fertey, M. Poirier et P. Batail, résultats non publiés.
- [157] J. R. Cooper, communication privée.