



**HAL**  
open science

# Oscillations quantiques et magnéto-transport dans des systèmes à fortes corrélations électroniques

Julien Levallois

► **To cite this version:**

Julien Levallois. Oscillations quantiques et magnéto-transport dans des systèmes à fortes corrélations électroniques. Supraconductivité [cond-mat.supr-con]. Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2008. Français. NNT: . tel-00636211

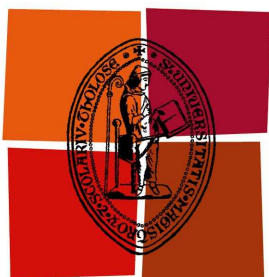
**HAL Id: tel-00636211**

**<https://theses.hal.science/tel-00636211>**

Submitted on 27 Oct 2011

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

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



Université  
de Toulouse

# THÈSE

En vue de l'obtention du

## DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par *l'Université Toulouse III - Paul Sabatier*  
Discipline ou spécialité : *Physique de la matière*

---

Présentée et soutenue par *Julien LEVALLOIS*  
Le 30 octobre 2008

**Titre :** *Oscillations quantiques et magnéto-transport dans des systèmes à fortes corrélations électroniques*

---

### JURY

*Henri ALLOUL (DR CNRS) - LPS, Orsay - Président du jury*  
*Antony CARRINGTON (Professeur) - University of Bristol - Rapporteur*  
*Joël MESOT (Professeur) - PSI, Villigen - Rapporteur*  
*Pierre PUJOL (Professeur) - LPT, Toulouse - Examineur*  
*Cyril PROUST (CR CNRS) - LNCMP, Toulouse - Directeur de thèse*  
*Kamran BEHNIA (DR CNRS) - ESPCI, Paris - co-Directeur de thèse*

---

**Ecole doctorale :** *Sciences de la matière*  
**Unité de recherche :** *Laboratoire National des Champs Magnétiques Pulsés*  
**Directeur(s) de Thèse :** *Cyril PROUST - Kamran BEHNIA*  
**Rapporteurs :** *Antony CARRINGTON - Joël MESOT*



---

## Résumé

Dans cette thèse, nous nous sommes intéressés aux propriétés électroniques de deux familles de systèmes à fortes corrélations électroniques, les supraconducteurs à haute température critique (cuprates) et les fermions lourds, lorsqu'ils sont soumis à un fort champ magnétique (60 T). Depuis leur découverte en 1986, le diagramme de phase des supraconducteurs à haute température critique reste énigmatique. L'une des questions fondamentales concerne la nature de l'état normal à basse température. Dans la phase surdopée ( $p > 0.16$ ), on retrouve les caractéristiques d'un métal conventionnel, avec notamment une grande surface de Fermi. Dans la phase sous-dopée, les mesures d'ARPES semblent indiquer que la surface de Fermi n'est pas fermée et est seulement constituée d'*arcs de Fermi* déconnectés et aucune mesure expérimentale n'a permis jusqu'à présent de mettre en évidence une surface de Fermi fermée. En mesurant la résistance de Hall dans deux oxydes de cuivre de type YBCO, nous avons mis en évidence des oscillations quantiques établissant l'existence, à basse température, d'une surface de Fermi fermée et cohérente pour les cuprates sous-dopés. La faible fréquence d'oscillation mesurée indique que la surface de Fermi est constituée de petites poches, en fort contraste avec le grand cylindre observé du côté surdopé. De plus, l'observation d'un effet Hall négatif dans l'état normal à basse température suggère la présence d'électrons dans la surface de Fermi. On discute alors la possibilité qu'une reconstruction de la surface de Fermi entraîne l'apparition de petites poches d'électrons et de trous. Dans un second temps, nous présentons des mesures de magnéto-transport et d'effet Nernst dans le fermion lourd URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>. Il apparaît que la mystérieuse phase *ordre caché* apparaissant à  $T < 17.5$  K soit caractérisée par des porteurs en faible nombre mais très mobiles, pouvant induire l'émergence d'un effet Nernst important. L'application d'un champ magnétique supérieur à 35 T à basse température destabilise cette ordre et un état métallique plus conventionnel semble être restauré au dessus de 40 T.

**Mots clés** : Supraconducteur à haute température critique, fermion lourd, surface de Fermi, oscillations quantiques, magnéto-transport, champ magnétique intense

---

## Summary

In this thesis, we are interested in the properties of two families of strongly correlated electron systems (high-temperature superconducting cuprates and heavy fermions) when a strong magnetic field (60 T) is applied. Since their discovery in 1986, the phase diagram of high-temperature superconductors remains enigmatic. One fundamental question concerns the nature of the normal state at low temperature. In the overdoped regime, the material behaves as a reasonably conventional metal, with a large Fermi surface. In the underdoped regime, however, ARPES measurements seem to indicate that the Fermi surface is not closed and consists of disconnected *Fermi arcs*. There is, so far, no direct convincing experimental observation of a closed and coherent Fermi surface. By performing Hall resistance measurements in two copper oxides (YBCO), we have observed quantum oscillations establishing the existence, at low temperature, of a closed and consistent Fermi surface for underdoped cuprates. The low oscillation frequency reveals a Fermi surface made of small pockets, in contrast to the large cylinder characteristic of the overdoped regime. Moreover, the negative sign of the Hall coefficient in the normal state at low temperature reveals that these pockets are electron-like rather than hole-like. We discuss the possibility that a reconstruction of the Fermi surface causes the appearance of small electron and hole-like pockets. In a second time, we present magnetotransport and Nernst effect measurements in the heavy fermion URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>. It appears that the mysterious *hidden order* phase, which appears when  $T < 17.5$  K, is characterized by a low carrier density with a high mobility, that could induce a large Nernst effect. The application of a magnetic field above 35 T at low temperature destabilizes the *hidden order* phase and a more conventional metal seems to be recovered above 40 T.

**Keywords** : High temperature superconductor, heavy fermion, Fermi surface, quantum oscillations, magnetotransport, high magnetic field





## Remerciements

Les remerciements, c'est la partie que l'on écrit à la fin de la thèse, dans mon cas même après la soutenance. Lorsque je rédigeais, je me disais que lorsqu'il n'y aura plus que ça à faire, ce sera génial. Et c'est vrai ! Sauf que ce n'est pas si facile que cela de faire passer en quelques mots toute la gratitude et le respect que l'on a envers des personnes que l'on a côtoyées pour la plupart pendant plus de trois ans. De plus, les remerciements sont la première, et parfois même la seule chose, sur laquelle le lecteur curieux va se jeter. Il convient en plus de n'oublier personne, sous peine de s'attirer les foudres de quelques collègues voire amis.

Tout d'abord, l'essentiel de ma gratitude va envers Cyril Proust, pour avoir su me guider tout au long de ces trois ans (plus le stage de Master). C'est avec un grand enthousiasme, mêlé parfois à un peu de fatigue lors des longues semaines de manips, que j'ai travaillé à ses côtés. Merci également pour m'avoir inculqué cette rigueur, que je n'avais pas forcément lorsque je suis arrivé, essentielle au travail de chercheur. Evidemment, un directeur de thèse a beau être le meilleur qui soit, si vous ne vous entendez pas avec, le résultat de cette collaboration ne sera pas fructueux. C'est donc aussi pour les rapports humains que nous avons cultivés que je te suis reconnaissant. En résumé, merci pour m'avoir, je l'espère, préparé à mon futur métier de (enseignant-)chercheur.

Mes seconds remerciements vont vers mon co-directeur de thèse (même s'il ne veut pas que je l'appelle comme ça...), Kamran Behnia. Il est vrai que je ne te croisais pas tous les matins, mais les seules fois où je l'ai fait étaient toujours de riches expériences, autant scientifiques que humaines.

Même si cela bouleverse l'ordre chronologique du déroulement de cette thèse, je tiens à remercier dès maintenant, et ce très chaleureusement, les différents membres de mon jury de thèse. Tout d'abord Henri Alloul, directeur de recherches au CNRS et professeur de physique à l'Ecole Polytechnique, qui m'a fait l'immense honneur d'en être le président. Ensuite les personnes qui ont eu la lourde tâche d'en être les rapporteurs : Antony Carrington, professeur à l'université de Bristol et Joël Mésot, professeur à l'ETH-Zurich et à l'EPF-Lausanne. Enfin, je remercie Pierre Pujol, professeur à l'université Paul Sabatier, pour avoir accepté d'en être examinateur.

Je remercie vivement Geert Rikken pour m'avoir accueilli au sein du laboratoire ainsi que pour les excellentes conditions de travail dont j'ai pu bénéficier.

Les résultats principaux de cette thèse étaient attendus depuis plus de vingt ans. Ceux-ci



---

sont le fruit d'une fusion de compétences internationales. Je tiens donc à remercier vivement tous ceux avec qui j'ai collaboré au cours de ces trois ans, sans qui rien de cela n'aurait été possible : le groupe de Louis Taillefer, avec David, Nicolas et Jean-Baptiste, de l'université de Sherbrooke (Canada) et le groupe de Nigel Hussey, de l'université de Bristol (Angleterre), avec Ali, John (ainsi que Tony Carrington), avec lesquels j'ai passé plusieurs jours, que dis-je semaines !, à réaliser les expériences à Toulouse ainsi qu'à analyser et interpréter les quantités phénoménales de données acquises. Ce fut un réel plaisir, car extrêmement enrichissant, de travailler avec ces scientifiques de renom. Au risque de me répéter, rien n'aurait été possible sans des échantillons d'une très grande qualité et pour cela je remercie très fortement Doug Bonn, Walter Hardy et Ruixing Liang pour avoir réalisé la synthèse de magnifiques cristaux, élément au combien essentiel dans l'observation d'oscillations quantiques.

Je remercie également Jacques Flouquet, du CEA-Grenoble, pour sa profonde connaissance de la physique des fermions lourds, domaine qui est apparu au laboratoire au moment où je suis arrivé, et donc pour nous avoir permis de découvrir cette physique extrêmement riche. Je remercie également Pascal Lejay pour la synthèse des cristaux.

J'en arrive aux remerciements concernant les personnes que j'ai croisées tous les jours. L'ensemble des résultats présentés dans ce manuscrit a été réalisé au Laboratoire National des Champs Magnétiques Pulsés à Toulouse. Pour cela, je remercie très amicalement tous les membres du laboratoire (je ne peux ici citer tout le monde) et particulièrement les membres permanents de l'équipe FFC (les non permanents viendront après) : David (qui m'a entre autre permis de donner des TP à l'INSA), Alain (pour faire ses analyses de données sous Excel...) et William (en particulier pour avoir relu la partie sur les fermions lourds de ce manuscrit), auxquels j'ajouterai Marc et Aziz. Si j'ai passé trois années merveilleuses à Toulouse, c'est surtout grâce aux ami(e)s, aux copains et trop rares copines (et oui, petit conseil pour les jeunes, il n'y a pas (peu) de fille en physique...) que j'ai pu rencontrer au labo : Kyril (pas uniquement pour les machines à laver, mais aussi pour ta technique de drague...), Bertrand (dit Bernard, Si c'est bon comme ça !! alors on est bien là !!), Loïc (pour toutes les bonnes adresses... mais pas que de restos...), Laurent (ou Christophe Rocancourt, qui m'a également permis d'enseigner à la fac), Baptiste (un franglais irréprochable!), Ben (aussi sympa qu'il est petit...), Vanessa (prendre l'apéro avec toi c'est plutôt sympa...), Florent (le père des frères Taloché), Maïlys (merci de ton passage...), Ludo (le plus gourmand des informaticiens), Seb (c'est pas tous les jours qu'on passe deux semaines en Corse aux frais de l'état!), Guérôme (fidèle compagnon d'infortune depuis le DEA mais qui n'a pas eu de thèse...), Seb (un autre, mon collègue de bureau), Marius et tous les autres. Je tiens également à remercier affectueusement Séverine et Françoise pour leur gentillesse et leur disponibilité.

Un grand merci également aux joueurs du Stade Toulousain (je ne suis pas naïf, je sais très bien qu'ils ne liront pas ce manuscrit), pour m'avoir donné toute cette émotion, d'Ernest-Wallon au Millenium de Cardiff en passant par le Stadium de Toulouse et Bordeaux.

Merci aussi à tous mes amis de Tours (Mathieu, Richard, Jeff, Didier, Sylvain ... et leurs

---

épouses respectives)! En effet, pour arriver en doctorat (et en DEA=Master) il a quand même fallu que je fasse quatre ans de fac. Cela a je pense constitué l'une des plus belles pages de ma vie (oui je sais on dirait que j'écris mes mémoires...). Sachez seulement que vous avez une part très importante dans la réussite de mon parcours universitaire.

Enfin, je finirai en embrassant toute ma famille mais plus particulièrement mes parents qui m'ont permis d'aller au bout de mes envies sans m'imposer de priorité ou de contrainte ainsi que mon frère et ma sœur. Bien-sûr aussi tous les cousins cousines (merci entre autres à Marie et Xavier qui, en me choisissant comme témoin à leur mariage, m'ont permis de sortir de chez moi au mois d'août...), tontons et tatas. En effet, il est important de souligner que l'avenir d'un jeune docteur en physique en France n'est pas des plus ensoleillé... Je ne vais pas ici citer tout le monde mais sachez que ça compte dans ce genre de période de savoir que vous êtes soutenus.



*Amy : Oh, elle est très belle. T'as pas peur qu'elle ait le nez que t'avais avant ?*

*Rachel : Amy! (Pause) Oui, Vraiment. (Elle prend la main de Ross, pour se rassurer.)  
(Le téléphone d'Amy sonne.)*

*Amy : Allô ? Oui, attends une seconde. (A Ross et Rachel) Je peux prendre ça à l'étage ?*

*Ross : Bien sûr, nous n'y vivons pas mais...*

*Amy : Vraiment ? Il n'y a que ces pièces ? (Elle montre ces pièces du doigt.) (A Ross) Je pensais que tu étais docteur.*

*Rachel : Hé non. Ross est docteur en paléontologie.*

*Amy : Oh. c'est tout... (Elle va dans la chambre.)*

*Rachel : Elle est incroyable.*

*Ross : Je sais, d'autant qu'un doctorat en paléontologie est aussi bien qu'un doctorat en médecine.*

*Rachel : Oh bien sûr, Ross. Si j'ai une crise cardiaque dans un restaurant, je te veux à mes côtés avec ta brosse à fossile !*

Friends, Saison 9 Episode 8

*Rachel : (arrête une infirmière) Excusez-moi! Je viens voir mon père... Je m'appelle Rachel Green.*

*Ross : Et je suis le Docteur Ross Geller.*

*Rachel : Ross, je t'en prie, nous sommes dans un hôpital. Et cela veut dire quelque chose ici.*

Friends, Saison 10 Episode 13



# Introduction générale

Les systèmes d'électrons fortement corrélés, comme leur nom l'indique, rassemblent les matériaux dont les quasiparticules sont soumises à de fortes interactions. Parmi ces familles de composés, on trouve par exemple les oxydes de cuivre supraconducteurs (cuprates), les fermions lourds, les cobaltites ou encore les manganites. C'est aux deux premiers que nous avons choisi de nous intéresser dans cette thèse.

Jusqu'en 1986, le seul phénomène de supraconductivité connu était celui expliqué par la théorie développée par Bardeen, Cooper et Schrieffer (BCS) et qui considère que l'appariement entre les quasiparticules provient de l'interaction retardée électron-phonon. On parle alors de supraconductivité *conventionnelle*. A cette période, les températures critiques stagnaient autour d'une vingtaine de Kelvins. C'était sans compter sur l'ingéniosité et surtout la curiosité des chercheurs à constamment synthétiser de nouveaux matériaux. L'une des plus grandes découvertes de ces dernières décennies est sans conteste celle réalisée par J. Georg Bednorz et K. Alexander Müller du laboratoire de recherche de la Société IBM à Zurich qui ont observé une résistivité nulle en dessous de 35 K dans des céramiques contenant des oxydes de cuivre, du lanthane et du baryum ; ces composés sont appelés *cuprates*. Mais la ferveur des scientifiques est intervenue lorsqu'en 1989 a été découvert un cuprate à base non plus de lanthane mais d'yttrium qui présentait une température critique au dessus de l'azote liquide (77 K). L'utilisation de ces matériaux, offrant des propriétés tout à fait remarquables, à des températures "facilement" accessibles était alors envisageable. En outre, la possibilité de voir un jour de la supraconductivité à température ambiante n'était plus alors considérée que comme une question de temps. C'était sans compter sur les facéties et les mystères de la nature. En effet, aujourd'hui encore, malgré tous les efforts fournis, le phénomène de la supraconductivité à haute température critique n'est pas expliqué. La surprise a en effet été de constater que celle-ci ne vérifiait pas toutes les propriétés de la théorie BCS, comme le mécanisme d'appariement (qui n'est toujours pas clairement identifié) ou la symétrie du paramètre d'ordre. On dit alors que la supraconductivité est *non-conventionnelle*. De nombreux systèmes comme les cobaltites, les fermions lourds ou les skutterudites exhibent ce genre de propriétés. La supraconductivité des cuprates est fonction du dopage (soit en substituant des atomes par d'autres contenant un électron de moins, soit en introduisant des atomes d'oxygènes) et au fil des années, un diagramme de phase certes complexe mais "universel" en fonction de la température et du dopage a émergé pour les différentes familles de cuprates. Cependant, bien que les différentes phases de ce dernier soient généralement admises par la communauté, il n'y a pas de consensus sur l'évolution de l'état fondamental en fonction du dopage. Il est pourtant clair que la compréhension de la supraconductivité des cuprates réside tout d'abord dans la connaissance exacte de leur diagramme de phase. A dopage nul ou très faible, l'état fondamental est un isolant de

Mott, c'est-à-dire que les porteurs introduits dans le matériau ne peuvent pas se déplacer. Le régime surdopé ( $p > 0.16$ ), quand le matériau est soit supraconducteur soit revenu à l'état normal avec le dopage, est maintenant bien identifié comme un métal, c'est-à-dire que l'on retrouve les propriétés d'un liquide de Fermi et une surface de Fermi fermée et cohérente. En revanche, lorsque le dopage est intermédiaire ( $0.05 < p < 0.16$ ), de nombreuses anomalies dans les propriétés de transport, thermodynamiques ou spectroscopiques sont observées. La nature de la phase normale de cette région du diagramme de phase est encore indéterminée et appelée *pseudogap*. L'une des questions fondamentales est de savoir si oui ou non l'état fondamental de la phase normale des cuprates dans le régime sous-dopé est un liquide de Fermi. En effet, le grand mystère de ce diagramme de phase réside dans le fait qu'en fonction du dopage, on passe d'un isolant antiferromagnétique à un état supraconducteur puis à un métal classique, simplement en introduisant un faible nombre de porteurs.

Différentes techniques permettent de déterminer le caractère métallique d'un matériau. Parmi elles, on trouve les oscillations quantiques, qui sont très certainement l'un des critères les plus fiables quant à l'identification d'un liquide de Fermi. L'effet Hall, quant à lui, permet de déterminer le type de porteurs majoritaires. Nous avons donc entrepris dans cette thèse de mesurer la magnétorésistance et l'effet Hall à basse température et à fort champ magnétique dans les composés  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  (YBCO) et  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$  à différents dopages (du côté sous-dopé) afin de pouvoir mettre en évidence des oscillations de la résistance (effet Shubnikov-de Haas [SdH]). Malgré plus de vingt ans d'efforts intenses, celles-ci n'avaient jamais pu être observées de façon convaincante. En alliant une extrême sensibilité de nos mesures sous champ magnétique pulsé à une très grande qualité d'échantillons, qui nous ont été fournis par le groupe de D. Bonn (UBC), nous avons réalisé ce tour de force. En mettant en évidence de façon indiscutable des oscillations SdH dans deux composés sous-dopés, il est maintenant clair que l'état fondamental des cuprates YBCO sous-dopés est caractérisé par une surface de Fermi fermée et cohérente, bien que sa topologie, comme nous allons le voir, diffère beaucoup de celle observée du côté surdopé.

Dans un second temps, nous nous sommes intéressés à la famille des composés dits à fermions lourds. Ces matériaux sont caractérisés par de fortes interactions entre leurs électrons de conduction  $d$  et les moments magnétiques isolés portés par des couches  $f$ , conduisant, à plus ou moins basse température, à une renormalisation de la masse effective des porteurs, d'où leur nom. On peut alors trouver des augmentations de la masse effective allant dans des cas extrêmes jusqu'à trois ordres de grandeur. Notre étude a porté sur le composé  $\text{URu}_2\text{Si}_2$ , qui présente plusieurs transitions de phases entre 35 T et 40 T. Ce composé suscite toujours autant d'intérêt dans la communauté car la nature de la phase apparaissant à basse température, appelée *ordre caché*, est toujours inconnue. En réalisant, en plus des mesures de magnéto-transport, pour la première fois des mesures d'effet Nernst sous champ magnétique pulsé jusqu'à 36 T, nous avons pu mettre en évidence différentes propriétés électroniques de la phase *ordre caché* et de la phase paramagnétique polarisée à plus haut champ. De plus, il apparaît qu'un effet Nernst d'une grande amplitude émerge dans la phase *ordre caché*, contrairement au cas des métaux conventionnels où il est nul.

En lisant cette thèse, le lecteur trouvera dans une première partie quelques rappels de physique du solide puis un descriptif plus ou moins détaillé des deux familles de systèmes d'électrons fortement corrélés que nous avons étudiés. Ensuite, nous décrivons les tech-

niques expérimentales utilisées en revenant brièvement sur la façon de générer des champs magnétiques pulsés. Le chapitre 4 rassemble les résultats d'oscillations quantiques et d'effet Hall mesurés dans YBCO, puis nous analysons et discutons ces résultats dans le chapitre 5. Le chapitre 6 est consacré à l'étude du composé  $URu_2Si_2$ . Enfin, nous concluons de façon générale cette thèse en donnant quelques perspectives d'études futures.



# Table des matières

<b>Introduction générale</b>	<b>xiii</b>
<b>1 Rappels de physique du solide</b>	<b>1</b>
1.1 Bandes électroniques	1
1.1.1 Théorie des bandes	1
1.1.2 La surface de Fermi	2
1.1.3 Détermination de la surface de Fermi	4
1.2 Notion de liquide de Fermi	6
1.3 Résistivité électrique	7
1.4 Propriétés galvanomagnétiques d'un métal	9
1.4.1 Magnétorésistance transverse et effet Hall	9
1.4.2 Le modèle à deux bandes	10
1.4.3 Les différents comportements de la magnétorésistance	12
1.4.4 Equation de Boltzmann	13
1.5 Les effets quantiques sous champ magnétique	14
1.5.1 Mouvement semi-classique dans un champ magnétique uniforme	15
1.5.2 Quantification des orbites dans un champ magnétique	16
1.5.3 La quantification de Landau	17
1.5.4 Les oscillations quantiques	20
1.5.5 Détermination des paramètres physiques à partir des mesures d'oscillations quantiques	23
1.6 Les phénomènes thermoélectriques et thermomagnétiques	25
1.6.1 Le tenseur thermoélectrique	25
1.7 Ondes de densité	28
1.7.1 Condition d'observation	28
1.7.2 Ondes de densité de charge	29
1.7.3 Ondes de densité de spin	30
1.7.4 Les effets du champ magnétique sur une onde de densité	31
1.8 Les supraconducteurs conventionnels	32
1.8.1 Bref historique	32
1.8.2 Longueurs caractéristiques	32
1.8.3 La théorie BCS	33
<b>2 Les systèmes d'électrons fortement corrélés : un survol</b>	<b>37</b>
2.1 Introduction	37
2.2 Introduction à la physique des fermions lourds	40
2.2.1 Les systèmes à électrons $f$	40
2.2.2 L'effet Kondo	40
2.2.3 Le réseau Kondo - Effets de cohérence	41

2.2.4	Interaction RKKY - Diagramme de Doniach . . . . .	43
2.3	Supraconductivité non-conventionnelle . . . . .	47
2.3.1	Spectre d'excitation d'un supraconducteur de gap de symétrie $d$ . . . . .	47
2.3.2	Effets des impuretés sur un supraconducteur non-conventionnel . . . . .	48
2.4	Les supraconducteurs à haute température critique . . . . .	50
2.4.1	Un bref historique de la supraconductivité à haute température critique - Les cuprates . . . . .	50
2.4.2	Le diagramme de phase générique des cuprates . . . . .	52
2.4.3	Différentes théories proposées pour la supraconductivité des cuprates . . . . .	73
2.4.4	Motivation du travail de cette thèse . . . . .	81
<b>3</b>	<b>Techniques expérimentales</b>	<b>83</b>
3.1	Introduction . . . . .	83
3.2	Dispositif expérimental . . . . .	83
3.2.1	Génération des champs magnétiques pulsés . . . . .	83
3.2.2	Cryogénie . . . . .	86
3.2.3	Contraintes liées aux champs magnétiques pulsés . . . . .	87
3.3	Mesures de transport sous champ magnétique pulsé . . . . .	87
3.3.1	Montage des échantillons . . . . .	87
3.3.2	La chaîne de mesure . . . . .	88
3.4	Mesure de l'effet Nernst sous champ magnétique pulsé . . . . .	89
3.4.1	Description du dispositif expérimental . . . . .	90
3.4.2	Procédure de mesure . . . . .	91
<b>4</b>	<b>Mesures d'oscillations quantiques et d'effet Hall dans <math>\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y</math> sous-dopé</b>	<b>93</b>
4.1	Problématique . . . . .	93
4.2	Pourquoi étudier $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ ? . . . . .	93
4.2.1	Structure cristalline . . . . .	94
4.2.2	Les phases ordonnées en oxygènes . . . . .	94
4.2.3	Le composé $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ . . . . .	96
4.2.4	Préparation et caractérisation des échantillons Y123 . . . . .	97
4.2.5	Préparation et caractérisation des échantillons Y124 . . . . .	98
4.2.6	Détermination du dopage $p$ des échantillons . . . . .	98
4.2.7	Récapitulatif des échantillons mesurés . . . . .	99
4.3	Oscillations quantiques dans l'état normal d'YBCO sous-dopé . . . . .	100
4.3.1	Effet Shubnikov-de Haas dans l'état normal de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ . . . . .	100
4.3.2	Effet Shubnikov-de Haas dans l'état normal de $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ . . . . .	112
4.3.3	Résumé . . . . .	114
4.4	Effet Hall dans l'état normal d'YBCO sous-dopé . . . . .	114
4.4.1	Effet Hall dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ . . . . .	114
4.4.2	Effet Hall dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.67}$ . . . . .	118
4.4.3	Effet Hall dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ . . . . .	121
4.5	Résumé du chapitre . . . . .	121
<b>5</b>	<b>Discussion et interprétation des résultats de YBCO sous-dopé</b>	<b>123</b>
5.1	Problématique . . . . .	123
5.2	Est-on dans l'état normal ? . . . . .	123
5.2.1	Quelques notations . . . . .	123
5.2.2	Effet de flux-flow ? Etat normal ? . . . . .	126

5.3	Topologie de la surface de Fermi observée . . . . .	130
5.3.1	Comparaison avec les calculs de structures de bandes LDA . . . . .	131
5.3.2	Dispersion électronique et surface de Fermi vue par ARPES : arcs ou poches ?	132
5.4	Interprétation de l'effet Hall négatif . . . . .	137
5.4.1	Effet Hall dans les autres cuprates . . . . .	137
5.4.2	Influence des chaînes Cu-O . . . . .	137
5.4.3	Présence de poches d'électrons dans la surface de Fermi . . . . .	138
5.4.4	D'autres exemples/interprétations pour un effet Hall négatif . . . . .	140
5.5	Densité de porteurs - Théorème de Luttinger . . . . .	141
5.6	Scénarios basés sur une reconstruction de la surface de Fermi . . . . .	144
5.6.1	Scénarios commensurables . . . . .	144
5.6.2	Présence d'un Point Critique Quantique . . . . .	154
5.6.3	Scénarios incommensurables . . . . .	156
5.7	Résumé du chapitre . . . . .	157
<b>6</b>	<b>Propriétés électroniques de URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> sous champ magnétique intense</b>	<b>159</b>
6.1	Présentation . . . . .	159
6.2	Le composé URu <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> . . . . .	159
6.2.1	<i>Ordre caché</i> et diagrammes de phase . . . . .	159
6.2.2	Surface de Fermi . . . . .	163
6.3	Caractérisation des échantillons . . . . .	164
6.3.1	Structure cristallographique et échantillons . . . . .	164
6.3.2	Résistivité de URu <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> à champ nul . . . . .	165
6.4	Magnétorésistance, effet Hall et effet Nernst dans URu <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> . . . . .	166
6.4.1	Propriétés électroniques dans la phase <i>ordre caché</i> . . . . .	167
6.4.2	Propriétés électroniques des phases intermédiaires . . . . .	171
6.4.3	Propriétés électroniques dans l'état paramagnétique polarisé . . . . .	171
6.5	Discussion des résultats . . . . .	173
6.5.1	Origine de l'émergence d'un effet Nernst ? . . . . .	173
6.5.2	Destruction des corrélations électroniques par le champ magnétique . . . . .	174
6.6	Résumé du chapitre . . . . .	179
	<b>Conclusion générale et perspectives</b>	<b>181</b>



## Table des figures

1.1	Théorie des bandes . . . . .	3
1.2	Cas d'une surface de Fermi fermée et d'une surface de Fermi ouverte . . . . .	4
1.3	Liquide de Fermi . . . . .	8
1.4	Interprétation géométrique de l'effet Hall . . . . .	11
1.5	Comportement de la magnéto-résistance transverse . . . . .	13
1.6	Loi des aires . . . . .	16
1.7	Niveaux de Landau . . . . .	18
1.8	Densité d'état des niveaux de Landau . . . . .	19
1.9	Oscillations quantiques . . . . .	20
1.10	Détermination de la masse effective . . . . .	24
1.11	Facteur de réduction thermique . . . . .	25
1.12	Angle de Hall et angle thermoélectrique . . . . .	27
1.13	Effet Nernst . . . . .	27
1.14	Nesting . . . . .	29
1.15	Susceptibilité du gaz d'électrons libres à une, deux et trois dimensions . . . . .	30
1.16	Effet Zeeman . . . . .	32
1.17	Les deux types de supraconducteurs . . . . .	34
1.18	Mécanisme d'appariement des quasiparticules . . . . .	36
2.1	Diagrammes de phases générique de quelques systèmes électroniques fortement corrélés	39
2.2	Résonance Kondo . . . . .	42
2.3	Dépendance en température de la résistivité d'un métal en présence d'impuretés magnétiques	44
2.4	Rapport de Wilson et de Kadowaki-Woods dans les fermions lourds. . . . .	44
2.5	Diagramme de Doniach . . . . .	45
2.6	Point critique quantique induit sous champ dans $CeCoIn_5$ . . . . .	46
2.7	Symétrie du gap supraconducteur . . . . .	48
2.8	Densité d'états d'un supraconducteur avec un gap de symétrie $d$ . . . . .	49
2.9	Structure des cuprates . . . . .	51
2.10	Structure des cuprates . . . . .	52
2.11	Modèle de Hubbard . . . . .	54
2.12	Vérification de la loi empirique reliant $T_c$ au dopage. . . . .	55
2.13	Dépendance en fonction du dopage de l'amplitude du gap supraconducteur dans les cuprates.	55
2.14	Dépendance angulaire du gap supraconducteur . . . . .	58
2.15	ARPES dans Bi-2212 . . . . .	60
2.16	Résistivité de $La_{1.7}Sr_{0.3}CuO_4$ . . . . .	62
2.17	Surface de Fermi de Tl2201 par ARPES . . . . .	63
2.18	Mesures de RMN et de neutrons dans le pseudogap . . . . .	64
2.19	Spectroscopie tunnel dans Bi2212 sous-dopé. . . . .	65

2.20	Anomalie du pseudogap dans la résistivité . . . . .	66
2.21	Diagramme de phase déterminé par la résistivité $\rho_{ab}$ . . . . .	67
2.22	Spectre de conductivité optiques dans YBCO . . . . .	68
2.23	Mesures de chaleur spécifique . . . . .	70
2.24	Destruction de la surface de Fermi . . . . .	71
2.25	Représentation d'un spectre d'ARPES . . . . .	72
2.26	Poche de Fermi nodale . . . . .	72
2.27	Température $T^*$ en fonction du dopage : 2 scénarios . . . . .	73
2.28	Etat liquide de singulets de spins RVB . . . . .	74
2.29	Diagramme de phase RVB . . . . .	75
2.30	Diagramme de phase schématique basé sur le modèle de l'hamiltonien de Hubbard attractif	76
2.31	Représentation des stripes . . . . .	77
2.32	d-density wave order . . . . .	78
2.33	Diagramme de phase schématique considérant un Point Critique Quantique .	79
2.34	Dépendance de la température de pseudogap en fonction du dopage . . . . .	81
3.1	Génération de champs magnétiques pulsés . . . . .	85
3.2	Cryostats $^4\text{He}$ et azote . . . . .	86
3.3	Configuration des contacts pour une mesure de transport . . . . .	88
3.4	Mesure de transport sous champ magnétique pulsé . . . . .	90
3.5	Photos et schémas du porte échantillon et de l'échantillon lors d'une mesure d'effet Nernst	91
4.1	Structure cristalline de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ . . . . .	95
4.2	Représentation schématique des différents ordres observés dans les chaînes Cu-O dans le composé YBCO.	96
4.3	Diagramme de phase structural de YBCO . . . . .	97
4.4	Résistivité de Y123-ortho-II a1 et Y123-ortho-VIII a5 . . . . .	98
4.5	Résistivité de Y124-YTA2 . . . . .	99
4.6	Résistance de Hall de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ . . . . .	101
4.7	Monotone des courbes de la résistance de Hall . . . . .	102
4.8	Parties oscillatoires de la résistance de Hall $R_{xy}$ dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ et transformée de Fourier de la partie c	103
4.9	Graphe d'Onsager . . . . .	104
4.10	Détermination de la masse effective dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ axe $a$ . . . . .	105
4.11	Dépendance angulaire de $-R_{xy}$ . . . . .	106
4.12	Résistance de Hall $-R_{xy}$ dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ en fonction du champ magnétique.	107
4.13	Magnétorésistance $R_{xx}$ dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ en fonction du champ magnétique	108
4.14	Estimation du libre parcours moyen . . . . .	109
4.15	Résistance $R$ dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ en fonction du champ magnétique pour des températures comprises entre	110
4.16	Effet de Haas-van Alphen dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ . . . . .	111
4.17	Magnétorésistance $\rho_{xx}$ et partie oscillatoire en fonction du champ magnétique de $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$	113
4.18	Effet Hall en fonction du champ magnétique dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ . . . . .	115
4.19	Effet Hall en fonction de la température pour différents champs magnétiques dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$	116
4.20	Comparaison des résultats obtenus en champ magnétique pulsé et en champ magnétique statique	117
4.21	Effet Hall en fonction du champ magnétique dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.67}$ . . . . .	118
4.22	Effet Hall en fonction de la température pour différents champs magnétiques dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.67}$	119
4.23	Effet Hall dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.67}$ mesuré en champ magnétique statique . . . . .	120
4.24	Effet Hall dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ . . . . .	121
4.25	Dépendance en température de l'effet Hall dans YBCO . . . . .	122
5.1	Effet Hall en fonction du champ magnétique à 4.2 K pour trois dopages . . . . .	124

5.2	Diagramme de phase de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ , $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.67}$ et $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ . . . . .	125
5.3	Dépendance en température de l'angle de Hall $\tan\theta_H$ . . . . .	127
5.4	Extrapolation de $R_{xy}$ à champ nul . . . . .	128
5.5	Effet Nernst dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ . . . . .	129
5.6	Surface de Fermi de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ . . . . .	132
5.7	Surface de Fermi LDA des composés $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ et $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ . . . . .	133
5.8	Arc de Fermi dans Na-CCOC et comparaison entre la surface de Fermi de Ti-2201 avec une pet	
5.9	Estimation du libre parcours moyen . . . . .	136
5.10	Influence des chaînes dans l'effet Hall . . . . .	139
5.11	Densité de porteurs en fonction du dopage . . . . .	143
5.12	Reconstruction de la surface de Fermi de YBCO . . . . .	145
5.13	Relation de dispersion LDA dans YBCO . . . . .	146
5.14	Vitesse de Fermi d'après l'ARPES . . . . .	149
5.15	Effet Hall et ARPES dans $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ . . . . .	151
5.16	Dépendance en dopage $x$ de $R_H$ dans un ordre de stripes . . . . .	153
5.17	Diagramme de phase avec une anomalie à $p=1/8$ . . . . .	154
5.18	Reconstruction de la surface de Fermi par un point critique quantique . . . . .	155
5.19	Reconstruction de la surface de Fermi suivant un vecteur d'ordre incommensuré.	157
5.20	Surface de Fermi de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ d'après [1] . . . . .	158
6.1	Chaleur spécifique et susceptibilité dans $\text{URu}_2\text{Si}_2$ . . . . .	160
6.2	Diagramme de phase (T,P) de $\text{URu}_2\text{Si}_2$ . . . . .	162
6.3	Diagramme de phase (T,B) de $\text{URu}_2\text{Si}_2$ . . . . .	163
6.4	Structure cristalline de $\text{URu}_2\text{Si}_2$ . . . . .	164
6.5	Dépendance en température de la résistivité dans $\text{URu}_2\text{Si}_2$ . . . . .	166
6.6	Magnétorésistance transverse $\rho_{xx}$ dans $\text{URu}_2\text{Si}_2$ . . . . .	167
6.7	Effet Hall $R_H = \rho_{xy}/B$ dans $\text{URu}_2\text{Si}_2$ . . . . .	168
6.8	Angle de Hall $\tan\Theta_H = \rho_{xy}/\rho_{xx}$ dans $\text{URu}_2\text{Si}_2$ . . . . .	169
6.9	Effet Nernst dans $\text{URu}_2\text{Si}_2$ . . . . .	170
6.10	Résistivité dans l'état paramagnétique polarisé de $\text{URu}_2\text{Si}_2$ . . . . .	172
6.11	Comparaison de l'effet Nernst dans trois fermions lourds . . . . .	174
6.12	Résistivité dans l'ordre caché et dans l'état paramagnétique polarisé de $\text{URu}_2\text{Si}_2$ en fonction de	
6.13	Coefficient $A$ de la résistivité dans $\text{URu}_2\text{Si}_2$ en fonction du champ magnétique	178





# Liste des tableaux

1.1	Caractéristiques de quelques supraconducteurs de type I et II . . . . .	34
4.1	Récapitulatif des échantillons étudiés . . . . .	100
4.2	Récapitulatif des fréquences et des masses effectives . . . . .	114



# Chapitre 1

## Rappels de physique du solide

La physique de la matière condensée constitue l'étude des propriétés macroscopiques des matériaux tels que les solides, les liquides, les verres ou encore la matière molle. La physique du solide qui concerne l'étude des phases solides de la matière condensée, a connu un réel engouement de la part des physiciens depuis le XIX<sup>e</sup> siècle, au regard du nombre de prix Nobel attribués (15 au total). Les différents domaines récompensés vont de la diffraction des rayons X permettant d'accéder à la structure cristalline (William Henry Bragg et son fils William Lawrence Bragg en 1915), en passant par la superfluidité de l'hélium liquide (Lev Landau en 1962) et le dernier en date attribué pour la découverte de la magnétorésistance géante au français Albert Fert et à l'allemand Peter Grünberg en 2007 [2]. Diverses notions scientifiques sont nécessaires à l'étude des solides : la mécanique quantique, la physique statistique (transitions de phase) ou encore la géométrie pour la cristallographie.

Dans ce chapitre, nous rappelons différentes notions de physique du solide. Dans un premier temps, nous revenons sur les concepts de surface de Fermi, puis nous évoquons la théorie de Landau du liquide de Fermi, décrivant le comportement des métaux conventionnels. Nous présentons ensuite les propriétés galvanomagnétiques des métaux, en particulier lorsque celui-ci induit une quantification des niveaux énergétiques. Nous verrons alors que les phénomènes quantiques apparaissant sous champ magnétique permettent de sonder directement les propriétés électroniques de la surface de Fermi. Enfin, nous terminons par un bref rappel des caractéristiques principales de la supraconductivité conventionnelle de type BCS.

### 1.1 Bandes électroniques

A basse température, la conductivité électronique est principalement due aux électrons. La mécanique quantique des électrons dans un potentiel périodique, dû aux ions, est indispensable afin de comprendre les propriétés électroniques des solides, comme par exemple faire la distinction entre un métal et un isolant.

#### 1.1.1 Théorie des bandes

En considérant le gaz d'électrons comme un gaz de fermions sans interaction évoluant dans un potentiel périodique  $U(\mathbf{r})$ , les fonctions d'onde électroniques peuvent être décrites par des *ondes de Bloch*  $\psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = u_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}}$ . Il suffit alors de déterminer les solutions de l'équation de Schrödinger uniquement pour les vecteurs d'ondes  $\mathbf{k}$  appartenant à la *première*

## 1. Rappels de physique du solide

---

zone de Brillouin (PZB) pour connaître le comportement des électrons dans tout le solide :

$$\left[ -\frac{\hbar^2}{2m}(i\nabla + \hbar\vec{k})^2 + U(\mathbf{r}) \right] u_k(\vec{r}) = \varepsilon_k(\vec{r})u_k(\vec{r}) \quad (1.1)$$

Déterminer l'énergie  $\varepsilon(\vec{k})$  revient à déterminer les valeurs propres d'une matrice hermitienne ayant une infinité de solutions. On repère alors ces solutions avec un nouvel indice  $n$  appelé *indice de bande*. Les fonctions  $\varepsilon_n(\vec{k})$  représentent la structure de bandes. On peut facilement voir que celles-ci ont également la périodicité du réseau,  $\varepsilon_n(\vec{k}) = \varepsilon_n(\vec{k} + \vec{K})$ , où  $\vec{K}$  est un vecteur du réseau réciproque et qu'elles sont symétriques par rapport à l'origine  $\varepsilon_n(\vec{k}) = \varepsilon_n(-\vec{k})$ , c'est à dire qu'il y a dégénérescence (deux états ont la même énergie).

La PZB s'étend dans l'espace des phases sur une longueur  $2\pi/a$  (où  $a$  est le paramètre de maille du solide dans une direction). Dans un système de taille finie  $L$  avec des conditions aux limites périodiques, les états permis dans l'espace des  $k$  sont les états  $2\pi n/L$ , où  $n$  est un entier. On a alors  $L/a = N_{ions}$  états permis dans la PZB. D'après le principe de Pauli, chaque site peut être occupé par un électron de spin up et un électron de spin down.

L'intérêt de la théorie des bandes est d'avoir pu expliquer pourquoi certains matériaux sont conducteurs et d'autres isolants. En effet, dans l'état fondamental, les électrons remplissent chaque état quantique dans les bandes en partant des plus petites énergies. On a alors plusieurs cas possibles (figure 1.1) :

- Les bandes sont soit toutes vides soit toutes remplies (nombre *pair* d'électrons par maille élémentaire) et si on a  $\Delta\varepsilon \gg kT$ , avec  $\Delta\varepsilon$  l'écart entre le plus haut point de la bande pleine et le point le plus bas de la bande vide (appelé le *gap*), on a un isolant. Toutefois, en raison d'un recouvrement de bandes, un comportement métallique peut émerger.
- Une ou plusieurs bandes sont partiellement remplies (nombre *impair* d'électrons par maille élémentaire), l'énergie associée à la dernière d'entre elles est le *niveau de Fermi* que l'on note  $\varepsilon_F$ ; le système est alors métallique. Cependant, certains composés, bien que possédant un nombre impair d'électrons, sont des isolants. Nous en verrons un exemple lorsque nous étudierons les supraconducteurs à haute température critique.

### 1.1.2 La surface de Fermi

Ceci nous conduit directement à un autre concept très important de la physique du solide, la *surface de Fermi*, qui est une surface d'énergie constante de l'espace réciproque<sup>1</sup> définie par :

$$\varepsilon_n(k) = \mu \quad (1.2)$$

où  $\mu$  est le potentiel chimique. En raison du principe de Pauli, c'est la surface dans la PZB qui sépare les états occupés,  $\varepsilon_n(k) < \mu$ , situés à l'intérieur de la surface de Fermi des états inoccupés,  $\varepsilon_n(k) > \mu$  à l'extérieur de la surface de Fermi (SF). Les excitations basse énergie impliquent des *trous* juste en dessous de la SF et des électrons juste au dessus. Les métaux ont une surface de Fermi, donc des excitations basse énergie. Au contraire, les isolants n'ont pas de surface de Fermi car  $\mu$  est situé dans le gap.

Dans la limite de faible densité de porteurs, la SF est approximativement circulaire dans un cas bidimensionnel (2D) ou sphérique dans un cas tridimensionnel (3D). En considérant le modèle des *liaisons fortes* (*tight-binding* en anglais) pour un réseau carré à 2D, la relation

---

1. Un excellent ouvrage traitant du sujet (en français) est le livre de W. Mercuroff [3]

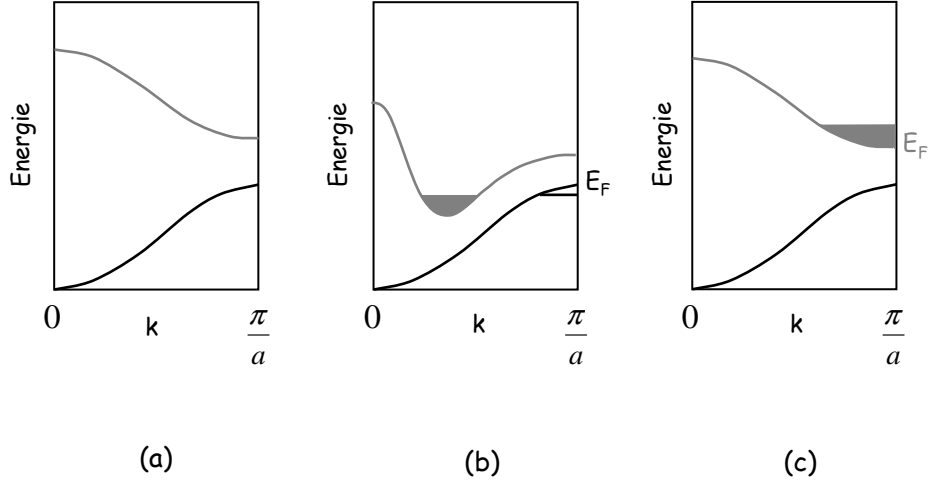


Figure 1.1 – Etats occupés et structure de bande donnant (a) un isolant, (b) un métal ou semimétal à cause du recouvrement de bande, c) un métal car le nombre d'électrons est impair.

de dispersion est donnée par :

$$\varepsilon(k) = -2t(\cos k_x a + \cos k_y a) \quad (1.3)$$

où  $t$  est l'intégrale de saut entre deux sites voisins. Pour  $\mathbf{k} \rightarrow 0$

$$\varepsilon(k) \approx -4t + ta^2(k_x^2 + k_y^2) \quad (1.4)$$

Ainsi, pour  $\mu + 4t \ll t$ , la surface de Fermi est donnée par le cercle :

$$k_x^2 + k_y^2 = \frac{\mu + 4t}{ta^2} \quad (1.5)$$

Le potentiel chimique à température nulle est appelé l'énergie de Fermi, qui, dans le cas d'électrons libres, est donnée par :

$$\varepsilon_F = \frac{\hbar^2 k_F^2}{2m} \quad (1.6)$$

où  $\hbar$  est la constante de Planck,  $k_F$  le vecteur d'onde au niveau de Fermi et  $m$  la masse de l'électron.

La mesure de la densité d'états au niveau de Fermi, notée  $g(\varepsilon_F)$ , est une quantité clé d'un système électronique car les quantités comme la chaleur spécifique ou la conductivité électronique en sont directement proportionnelles. Celle-ci est donnée par :

$$g_n(\varepsilon_F) = \frac{1}{4\pi^3} \int \int_{S_n(\varepsilon_F)} \frac{dS}{|\nabla \varepsilon_n(\vec{k})|} \quad (1.7)$$

où l'intégrale est prise sur la surface de Fermi. On définit également la densité d'états par rapport à la densité de porteurs  $n$  :  $g_n(\varepsilon_F) = \frac{3}{2} \frac{n}{\varepsilon_F}$ . Dans un métal, l'énergie de Fermi "coupe" certaines bandes ; de ce fait  $g(\varepsilon_F) \neq 0$ . Dans un isolant, toutes les bandes sont soit vides soit pleines ; l'énergie de Fermi est donc située entre deux bandes et  $g(\varepsilon_F) = 0$ . La densité d'état peut avoir des singularités si le gradient s'annule, appelées *singularités de van Hove*, voire

## 1. Rappels de physique du solide

---

des divergences en dimension 2 ou 1.

L'énergie de Fermi est alors donnée par :

$$\varepsilon_F = \frac{\hbar^2}{2m}(3\pi^2n)^{2/3} \quad (1.8)$$

Pour les métaux simples, la taille et la forme de la surface de Fermi dépendent uniquement de la densité électronique et de la structure cristalline du métal. Dans ce cas, on considère que la surface de Fermi est une sphère de rayon  $k_F$  et de surface

$$S = 4\pi k_F^2 = 4\pi(3\pi^2n)^{2/3} \quad (1.9)$$

Dans un métal, ce sont les électrons situés dans un espace de  $\pm k_B T$  autour du niveau de Fermi qui contribuent aux propriétés de transport.

La topologie de la surface de Fermi constitue donc un élément essentiel si on veut comprendre les propriétés d'un métal. Celle-ci renferme toutes les données caractéristiques d'un composé, à l'image de l'ADN chez les êtres vivants. La SF possède comme centres de symétrie le centre de symétrie à l'origine et les nœuds du réseau réciproque, ainsi que toutes les propriétés de symétrie de celui-ci. On peut séparer les orbites constituant la SF selon deux catégories :

- des surfaces fermées : si on se place dans la première zone de Brillouin, la surface de Fermi ne touche en aucun point les bords de zone,
- les surfaces ouvertes : ces surfaces s'étendent en dehors de la première zone de Brillouin et dans ce cas il y a des points d'intersection entre la surface et les bords de zone.

Un exemple en 2D est donné sur la figure 1.2. Cette vision de la surface de Fermi présente l'avantage d'être directement reliée aux phénomènes observés sous champ magnétique.

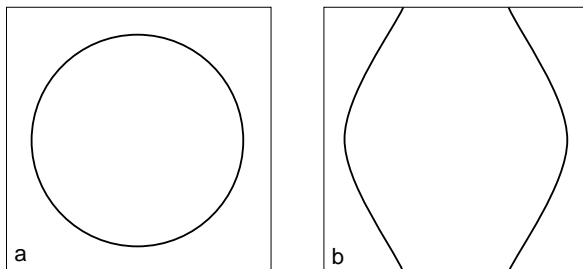


Figure 1.2 – a) Cas d'une surface de Fermi fermée. b) Cas d'une surface de Fermi ouverte comme dans le cas des conducteurs organiques quasi-1D de type (TMTSF)<sub>2</sub>X

### 1.1.3 Détermination de la surface de Fermi

#### 1.1.3.1 Calculs de structure de bandes

L'une des méthodes de calcul les plus utilisées pour déterminer la structure de bandes des métaux est la *Théorie de la Fonctionnelle de la Densité* (TFD, ou DFT en anglais). Cette théorie a été élaborée par Hohenberg et Kohn (1964). C'est une reformulation de l'équation de Schrödinger pour le problème à N corps (fermions) en interaction qui donne en principe exactement l'état fondamental solution de cette équation. A la différence de la théorie de Hartree-Fock où la fonction d'onde est multiélectronique (via les déterminants de

Slater). Dans le cas de la DFT, c'est la densité électronique qui est la quantité de base pour les calculs. Le nombre de variables passe ainsi de  $3N$  à  $3$ , rendant les calculs plus faciles à traiter. La fonctionnelle de la densité électronique du système restant inconnue, on doit recourir à diverses approximations, en particulier à des approximations locales.

Dans le cas où l'énergie cinétique des électrons est supérieure à l'interaction coulombienne, les calculs basés sur la DFT dans le cadre de l'approximation LDA (*Local Density Approximation*) donnent des résultats qualitatifs et quantitatifs satisfaisant pour décrire les propriétés de l'état fondamental. Cependant, l'application de cette approximation à des systèmes où les fonctions d'ondes sont plus localisées (états  $d$  ou  $f$ ) n'est pas aussi efficace, en raison des fortes interactions électroniques. L'approximation LDA se base sur le modèle du gaz d'électrons et suppose une densité électronique uniforme, qui permet d'exprimer l'interaction d'échange-corrélation.

De manière générale, la structure de bande déterminée par les calculs est en assez bon accord avec la surface de Fermi observée dans les expériences.

### 1.1.3.2 Détermination expérimentale de la surface de Fermi

Un grand nombre de moyens a été développé pour étudier les surfaces de Fermi. Parmi les plus utilisées à ce jour, on peut citer :

- L'effet de Haas-Van Alphen (oscillations de l'aimantation des métaux en fonction du champ magnétique) ou Shubnikov-de Haas (oscillations de la magnétorésistance en fonction du champ). L'origine de ces phénomènes provient de la quantification en niveaux de Landau des niveaux énergétiques qui intervient sous champ magnétique. On a alors des oscillations de la densité d'états qui se répercutent dans la plupart des propriétés électroniques. Cet effet sera présenté plus en détail dans la suite de ce chapitre.
- Les mesures de la dépendance angulaire de la magnétorésistance (AMRO) permettent de déterminer la topologie de la surface de Fermi, particulièrement dans les composés de basse dimensionnalité comme les conducteurs organiques.
- La photoémission résolue en angle (*Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy* (ARPES) en anglais). Dans les dernières années, cette technique est apparue comme une sonde incontournable pour déterminer la structure électronique d'un solide. Cette méthode consiste à envoyer un photon de haute énergie ( $\sim 20$  eV) sur la surface d'un échantillon. Un photoélectron est émis de la surface de ce dernier avec un angle  $\theta$  par rapport à la surface et son énergie cinétique est mesurée avec un spectromètre de résolution  $\leq 20$  meV. En faisant varier l'angle  $\theta$ , il est possible de déterminer la dépendance en  $\mathbf{k}$  des états occupés, situés en dessous du niveau de Fermi  $\varepsilon_F$ . Afin d'établir le zéro en énergie, l'échantillon est connecté électriquement à un métal de référence (souvent du Platine). Les énergies des photoélectrons provenant du métal de référence sont comparées à celles de l'échantillon étudié, ce qui permet de mesurer le gap  $\Delta$ , s'il existe, en dessous de  $\varepsilon_F$ . La courbe de distribution en énergie mesurée est donnée par :

$$I(\mathbf{k}, \omega) = I_0(\mathbf{k})f(\omega)A(\mathbf{k}, \omega) \quad (1.10)$$

où  $\mathbf{k}$  est la composante du moment parallèle à la surface,  $\omega$  son énergie,  $I_0(\mathbf{k})$  un facteur d'intensité et  $f(\omega)$  la fonction de Fermi-Dirac.  $A(\mathbf{k}, \omega)$  est la fonction spectrale d'un

## 1. Rappels de physique du solide

---

trou donnée par la partie imaginaire de la fonction de Green à une particule :

$$A(\mathbf{k}, \omega) = \frac{\Sigma''(\mathbf{k}, \omega)/\pi}{[\omega - \varepsilon_k - \Sigma'(\mathbf{k}, \omega)]^2 + \Sigma''(\mathbf{k}, \omega)} \quad (1.11)$$

Dans un liquide de Fermi sans interaction,  $A(\mathbf{k}, \omega)$  est un pic de Dirac mais dans un métal réel,  $A(\mathbf{k}, \omega)$  est une lorentzienne étroite centrée autour de  $\omega \simeq \varepsilon(k)$  de largeur  $\text{Im}\Sigma(\mathbf{k}, \omega)$ , inversement proportionnelle au temps de vie des quasiparticules  $\tau$ .

### 1.2 Notion de liquide de Fermi

Dans le modèle d'un gaz d'électrons libres, toutes les interactions (entre électrons de conduction, ...) concernant les électrons sont négligées. Cependant, même si ce n'est pas le cas dans les métaux réels, on peut montrer qu'il suffit de prendre en compte une renormalisation de la masse des électrons pour que le modèle du gaz d'électrons libres reste applicable, c'est la théorie de Landau du liquide de Fermi.

A  $T=0\text{K}$ , dans le cas d'un gaz d'électrons libres, tous les états situés en dessous du vecteur d'onde de Fermi  $k_F$  sont remplis, tous ceux situés au dessus sont vides. Une des restrictions de la théorie du liquide de Fermi est que toutes les particules ont un moment très proche de la surface de Fermi, c'est-à-dire  $|\mathbf{k}| \simeq |\mathbf{k}'| \simeq k_F$  (voir figure 1.3). Pour avoir un état excité, il suffit qu'un électron passe d'un état caractérisé par un vecteur d'onde  $k \ll k_F$  d'énergie  $\varepsilon_k$  à un état caractérisé par  $k' \gg k_F$  d'énergie  $\varepsilon_{k'}$ . On se retrouve alors avec des excitations de paires électron-trou.

L'idée de Landau a été de considérer que dans un métal réel, le même type d'excitations élémentaires ont lieu. La seule différence est de considérer que ce ne sont plus les électrons qui sont excités, mais des *quasiparticules*, obéissant à la statistique de Fermi-Dirac. Il suffit alors de prendre en compte toutes les excitations de paires électron-trou possibles et de considérer que l'énergie  $\varepsilon_k$  est la somme de l'énergie de la quasiparticule et d'une contribution due aux interactions avec les autres quasiparticules. Ces quasiparticules se retrouvent alors avec une masse effective  $m^*$  renormalisée et toutes les contributions dues aux interactions sont maintenant "comprises" dans  $m^*$ . Le simple modèle du gaz d'électrons libres est toujours applicable mais en prenant la masse des quasiparticules  $m^*$  à la place de la masse de l'électron libre  $m_0$ .

Cette théorie permet de calculer les propriétés thermodynamique et électroniques d'un système d'électrons en interaction. La densité d'états au niveau de Fermi est donnée par :

$$N(\varepsilon_F) = \frac{m^* k_F}{\pi^2 \hbar^2} \quad (1.12)$$

où la masse effective des quasiparticules  $m^*$  est reliée à la masse  $m_0$  de l'électron au repos par :

$$\frac{m^*}{m_0} = 1 + \frac{F_1^s}{3} \quad (1.13)$$

où le coefficient  $F_1^s$  est un *paramètre de Landau* (symétrique).

La susceptibilité de Pauli, indépendante de la température, est donnée par :

$$\chi = \frac{\mu_0 \mu_B m^* k_F}{\pi^2 \hbar^2} \frac{1}{1 + F_0^a} \quad (1.14)$$



où  $F_0^a$  est un paramètre de Landau (antisymétrique). Il apparaît que la susceptibilité  $\chi$  est augmentée par rapport à la susceptibilité de Pauli d'un facteur  $\frac{m^*}{m_0(1+F_0^a)}$ .

Un liquide de Fermi est caractérisé par différents comportements des propriétés électroniques. La résistivité électrique a un comportement quadratique en température :

$$\rho = \rho_0 + AT^2 \quad (1.15)$$

où  $\rho_0$  est la résistivité résiduelle, due aux diffusions sur les impuretés et les défauts et le coefficient  $A$ , dû aux diffusions quasiparticule-quasiparticule, est proportionnel à la densité d'états au niveau de Fermi et donc à la masse effective,  $\sqrt{A} \propto m^*$ .

La chaleur spécifique  $C$  est donnée par :

$$\frac{C}{T} = \gamma = \frac{m^* k_F k_B^2}{3\hbar^2} \quad (1.16)$$

où  $\gamma$  est le coefficient de Sommerfeld,  $k_F$  le rayon de la sphère de Fermi,  $k_B$  la constante de Boltzmann et  $\hbar$  la constante de Planck. Celle-ci est augmentée d'un facteur  $m^*/m_0$  par rapport à un système sans interaction. La masse effective peut donc être déterminée directement à partir du coefficient de Sommerfeld.

Le rapport de Wilson est défini par le rapport de la susceptibilité de Pauli sur le coefficient de Sommerfeld

$$R_W = \frac{\pi^2 k_B^2 \chi}{3\mu_0 \mu_B^2 \gamma} = \frac{1}{1 + F_0^a} \quad (1.17)$$

qui dans le cas d'un système sans interaction vaut  $R_W=1$ . Le rapport Kadowaki-Woods, reliant le coefficient de la résistivité  $A$  et le coefficient de Sommerfeld :

$$R_{KW} = \frac{A}{\gamma^2} \quad (1.18)$$

est également constant dans de nombreux systèmes à corrélations électroniques, impliquant que le coefficient  $A$  de la résistivité est indépendant de  $m^*$ .

La proportionnalité de  $\chi$ ,  $C/T$  et  $A$  en  $m^*$  ou  $(m^*)^2$  est globalement validée dans les systèmes à fermions lourds car les dynamiques de spins et la renormalisation de la masse effective sont dominées par les fluctuations locales.

Dans le cadre de la théorie du liquide de Fermi, la *loi de Wiedemann-Franz* est toujours vérifiée. En effet, en supposant que les collisions sont purement élastiques (diffusion uniquement sur les impuretés), donc qu'il n'y a pas de perte d'énergie lors des collisions, et en faisant le rapport de la conductivité thermique sur la conductivité électrique, on obtient la *loi de Wiedemann-Franz* :

$$\frac{\kappa}{\sigma T} = \frac{\pi^2}{3} \left(\frac{k_B}{e}\right)^2 = L_0 \quad (1.19)$$

qui reflète le fait que les quasiparticules transportent à la fois la charge et la chaleur. Le rapport donne le nombre de Lorentz  $L_0 = 2.44 \times 10^{-8} W\Omega K^{-2}$ . C'est une loi universelle, qui constitue l'une des plus fondamentales propriétés d'un liquide de Fermi.

### 1.3 Résistivité électrique

La résistivité électrique consiste en quatre contributions : la diffusion des électrons sur les impuretés ou les défauts  $\rho_0$ , la diffusion électron-phonon  $\rho_{ph}$ , la diffusion électron-électron

## 1. Rappels de physique du solide

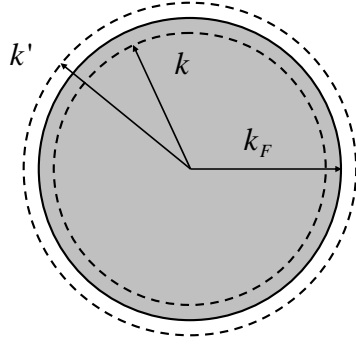


Figure 1.3 – A  $T=0K$ , dans le cas d'un gaz d'électrons libres, tous les états situés en dessous du vecteur d'onde de Fermi  $k_F$  sont remplis, tous ceux situés au dessus sont vides. Pour avoir un état excité, il suffit qu'un électron passe d'un état caractérisé par un vecteur d'onde  $k_{int} \ll k_F$  d'énergie  $\varepsilon_{k_{int}}$  à un état caractérisé par  $k_{ext} \ll k_F$  d'énergie  $\varepsilon_{k_{ext}}$ . On se retrouve alors avec des excitations de paires électron-trou.

$\rho_{e-e}$  et la diffusion électron-magnon  $\rho_{mag}$ . D'après la loi de Matthiessen, la résistivité totale est donnée par :

$$\rho = \rho_0 + \rho_{ph} + \rho_{e-e} + \rho_{mag} \quad (1.20)$$

La valeur de  $\rho_0$  est constante en fonction de la température et ne s'annule pas à  $T=0K$ . C'est une valeur qu'il est important de connaître car elle renseigne sur la qualité d'un échantillon. Plus elle est grande, plus l'échantillon contient de défauts ou d'impuretés. Afin de déterminer la qualité d'un échantillon, on détermine le rapport résiduel de résistivité (RRR) défini par  $RRR = \rho(300K)/\rho_0$ , où  $\rho(300K)$  est la résistivité à température ambiante. Ainsi, plus le RRR est grand, plus l'échantillon est de bonne qualité.

On définit le temps de relaxation  $\tau$  comme le temps correspondant entre deux collisions de l'électron avec une impureté et le libre parcours moyen  $\ell$  comme la distance effectuée pendant ce temps. La résistivité électrique résiduelle peut alors s'écrire :

$$\rho_0 = \frac{m^*}{ne\tau} \quad (1.21)$$

où  $n$  est la densité de porteurs et  $e$  la charge électrique.  $\tau$  et  $\ell$  sont alors donnés par :

$$\tau = \frac{m^*}{ne\rho_0} \quad (1.22)$$

$$\ell = v_F\tau = \frac{\hbar k_F}{ne\rho_0} \quad (1.23)$$

La résistivité  $\rho_{ph}$  varie de façon monotone avec la température, avec  $\rho_{ph} \propto T$  au dessus de la température de Debye  $T_D$  et  $\rho_{ph} \propto T^5$  très en dessous de  $T_D$  et s'annule à  $T=0$ .

Dans les systèmes à fortes corrélations électroniques, le terme  $\rho_{e-e}$  est dominant à basse température. Dans le cadre d'un métal, sans impureté magnétique, décrit par la théorie du liquide de Fermi vu précédemment, la résistivité à basse température est donnée par :

$$\rho(T) = \rho_0 + \rho_{e-e}(T) = \rho_0 + AT^2 \quad (1.24)$$

où  $\sqrt{A} \propto m^*$ .

Dans un composé magnétique, le terme  $\rho_{mag}$  vient s'ajouter à la résistivité totale. Cette contribution décrit les processus de diffusions des électrons de conduction avec les moments magnétiques désordonnés. Au dessus de la température à laquelle les moments s'ordonnent  $T_{ord}$ ,  $\rho_{mag}$  est donnée par :

$$\rho_{mag} = \frac{3\pi N m^*}{2\hbar e^2 \varepsilon_F} |J_{ex}|^2 (g_J - 1)^2 J(J + 1) \quad (1.25)$$

où  $J_{ex}$  est l'intégrale d'échange entre les électrons de conduction et les moments magnétiques localisés. Quand  $T = T_{ord}$ ,  $\rho_{mag}$  exhibe un saut et quand  $T < T_{ord}$ ,  $\rho_{mag}$  chute avec la température.

La résistivité magnétique dans les actinides est attribuée aux importantes diffusions des électrons de conduction avec les fluctuations de spin des électrons  $5f$ . La contribution de celle-ci à basse température est donnée par  $\rho_{mag} = A'T^2$ . Dans les systèmes de fermions lourds, le coefficient  $A'$  est très grand. De plus,  $\rho_{mag}$  et  $\rho_{e-e}$  sont indiscernables.

## 1.4 Propriétés galvanomagnétiques d'un métal

### 1.4.1 Magnétorésistance transverse et effet Hall

Dans la cadre du modèle de Drude, seules les collisions des électrons avec les impuretés sont considérées. On utilise dans la suite la pulsation cyclotron  $\omega_c = eB/m^*$ , le temps de relaxation  $\tau$ , la masse effective cyclotron  $m^*$  et  $\omega_c\tau/2\pi$  représente le nombre de fois que l'électron parcourt l'orbite cyclotron. En supposant le champ magnétique suivant  $z$  et le champ électrique dans le plan  $xy$ , le tenseur de conductivité est donné par :

$$\sigma = \frac{ne^2\tau}{m^*} \frac{1}{1 + (\omega_c\tau)^2} \begin{pmatrix} 1 & \omega_c\tau & 0 \\ -\omega_c\tau & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 + (\omega_c\tau)^2 \end{pmatrix} \quad (1.26)$$

On vérifie la relation d'Onsager en présence du champ magnétique :

$$\sigma_{xy}(\mathbf{B}) = \sigma_{yx}(-\mathbf{B}) \quad (1.27)$$

La mobilité des électron  $\mu$  est définie par

$$\mu = \frac{e\tau}{m^*} \quad (1.28)$$

On peut aussi exprimer le tenseur de résistivité, défini comme étant l'inverse du tenseur de conductivité :

$$\rho = \sigma^{-1} = \frac{m^*}{ne^2\tau} \begin{pmatrix} 1 & \omega_c\tau & 0 \\ -\omega_c\tau & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (1.29)$$

L'angle de Hall, qui est l'angle entre le courant  $\mathbf{J}$  et le champ électrique  $E_y$ , est défini par :

$$\tan \theta = \frac{\rho_{xy}}{\rho_{xx}} = \frac{\sigma_{xy}}{\sigma_{xx}} = \omega_c\tau \quad (1.30)$$

On voit donc que dans le cas simple d'une bande sphérique, il n'apparaît pas de magnétorésistance

## 1. Rappels de physique du solide

---

transverse<sup>2</sup>. En effet, tous les porteurs possèdent la même vitesse de dérive ; la tension de Hall compense alors exactement la force de Lorentz due au champ magnétique transverse et la trajectoire de chaque électron est la même qu'en champ nul. En revanche, la résistivité de Hall  $\rho_{xy} = B/ne$  est linéaire en champ et indépendante de  $\tau$ . On définit la constante de Hall comme :

$$R_H = \frac{\rho_{xy}}{B} = \frac{1}{ne} \quad (1.31)$$

Donc, dans les cas d'un modèle isotrope, la constante de Hall dépend uniquement du nombre de porteurs  $n$  dans le métal. La constante de Hall est alors sensible au signe des porteurs, une constante de Hall mesurée négative correspond à des porteurs de type électron alors qu'une constante de Hall mesurée positive correspond à des porteurs de types trous.

Cependant, une poche de trous peut engendrer un effet Hall négatif. N.P. Ong a montré que la conductivité de Hall  $\sigma_{xy}$  dans un métal 2D est déterminée par l'aire balayée  $A_l$  (appelée par Ong aire de Stokes) par le libre parcours moyen  $\mathbf{l}_k$  quand  $\mathbf{k}$  varie autour de la surface de Fermi [4]. Le signe et l'amplitude  $\sigma_{xy}$ , et donc de  $R_H$ , dans un métal 2D vont alors être entièrement déterminés par l'anisotropie de  $\mathbf{l}_k$  et la courbure de la surface de Fermi en chaque vecteur  $\mathbf{k}$ . La construction de Ong est la suivante (figure 1.4). Si la courbure locale de la surface de Fermi est partout convexe,  $\mathbf{k}$  et  $\mathbf{l}$  vont tourner dans le même sens entraînant que l'amplitude de  $R_H$  sera déterminée par l'aire de la surface de Fermi et son signe par la nature des porteurs. En revanche, si la surface de Fermi présente une (ou des) région(s) avec une courbure négative, on a la création d'une seconde boucle de circulation négative. Au final,  $\sigma_{xy}$  est donnée par la somme des aires comprises dans chacune des boucles (les négatives (positives) donnant une contribution négative (positive) à  $\sigma_{xy}$ ) ; la somme la plus grande donnant le signe de  $R_H$ .

Dans le cas d'un métal multibandes, c'est-à-dire constitué de plusieurs poches (de porteurs de signes opposés ou non) et en considérant que le libre parcours moyen est isotrope,  $R_H$  s'écrit de la manière suivante :

$$R_H = \frac{2\pi d \sum_i (-1)^{n_i} l_i^2}{e(\sum_i k_F^i l_i)^2} \quad (1.32)$$

où  $d$  est la distance entre deux plans atomiques et  $n_i=1$  ( $=2$ ) si la poche de la surface de Fermi est de type électron (trous). Un changement drastique d'au moins l'un des libres parcours moyens d'une des poches peut alors rendre  $R_H$  négatif.

### 1.4.2 Le modèle à deux bandes

Jusqu'à présent, nous avons considéré que le transport n'était dû qu'à une seule bande de porteurs (électrons ou trous). Or, dans le cas où cette bande a une symétrie sphérique, on a vu qu'il n'apparaît pas de magnétorésistance transverse. Cependant, il s'avère que l'anisotropie réelle de la surface de Fermi a une influence sur les propriétés de transport. Le modèle le plus simple consiste à représenter la surface de Fermi par deux bandes sphériques correspondant chacune à un type de porteur, électrons (de charge  $-e$ ) et trous (de charge  $+e$ ), de masse effective  $m_e$  et  $m_h$ , de temps de relaxation  $\tau_e$  et  $\tau_h$  et de densité de porteurs  $n_e$  et  $n_h$  respectivement. Le tenseur de conductivité est la somme des tenseurs de conductivité

---

2. Dans ce cas la magnétorésistance est dite transverse car le champ magnétique  $\mathbf{B}$  est perpendiculaire au courant appliqué.

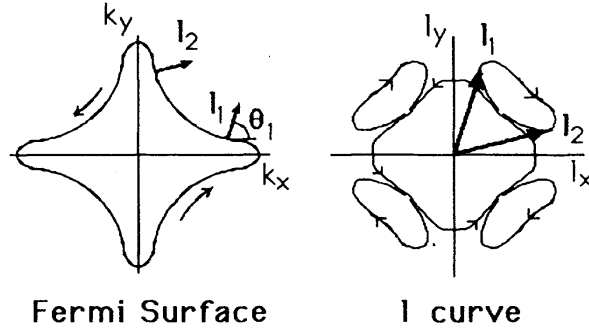


Figure 1.4 – Construction de Ong pour expliquer l'émergence d'un effet Hall négatif à partir d'une poche de trous. D'après [4].

pour chaque type de porteurs :

$$\begin{aligned} \sigma = \sigma_e + \sigma_h = & \frac{\sigma_{0e}}{1 + (\mu_e B)^2} \begin{pmatrix} 1 & \mu_e B & 0 \\ -\mu_e B & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 + (\mu_e B)^2 \end{pmatrix} \\ & + \frac{\sigma_{0h}}{1 + (\mu_h B)^2} \begin{pmatrix} 1 & \mu_h B & 0 \\ -\mu_h B & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 + (\mu_h B)^2 \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (1.33)$$

avec  $\mu_e = \frac{e\tau_e}{m_e}$  et  $\mu_h = \frac{e\tau_h}{m_h}$  les mobilités de chaque type de porteur et  $\sigma_{0e} = \frac{n_e e^2 \tau_e}{m_e}$  et  $\sigma_{0h} = \frac{n_h e^2 \tau_h}{m_h}$ . Après calcul, on trouve que la magnétorésistance est égale à :

$$\frac{\Delta\rho(B)}{\rho(0)} = \frac{(\mu_e + \mu_h)^2 \mu_e \mu_h n_e n_h B^2}{(n_e \mu_e + n_h \mu_h)^2 + \mu_e^2 \mu_h^2 (n_e - n_h)^2 B^2} \quad (1.34)$$

et la constante de Hall égale à :

$$R_H = \frac{1}{e} \frac{n_h \mu_h^2 - n_e \mu_e^2 + \mu_e^2 \mu_h^2 (n_e - n_h) B^2}{(n_e \mu_e + n_h \mu_h)^2 + \mu_e^2 \mu_h^2 (n_e - n_h)^2 B^2} \quad (1.35)$$

On voit donc que dans le cas d'un modèle à deux bandes, la magnétorésistance n'est pas nulle; au contraire, cet effet peut même être très grand. A fort champ, la magnétorésistance croît en  $B^2$  et ensuite sature à la valeur :

$$\frac{\Delta\rho(\infty)}{\rho(0)} = \frac{(\mu_e + \mu_h)^2}{\mu_e \mu_h} \frac{n_e n_h}{(n_e - n_h)^2} \quad (1.36)$$

et la constante de Hall sature à la valeur :

$$R_H(\infty) = \frac{1}{e(n_e - n_h)} \quad (1.37)$$

Le signe de la constante de Hall reflète donc le signe des porteurs majoritaires.

Dans un semimétal, les bandes de valence et de conduction se recouvrant, des électrons et des trous participent au transport. Ce recouvrement étant de faible amplitude, le nombre de porteurs est faible comparé à un métal classique ( $\sim 10^{23} - 10^{26} \text{m}^{-3}$ ). Le Bismuth, l'Arsenic

## 1. Rappels de physique du solide

---

ou l'Antimoine sont considérés comme des semimétaux. Ces matériaux sont caractérisés par une grande mobilité des porteurs et des libres parcours moyen importants. Par exemple, le libre parcours moyen dans le Bismuth vaut  $\ell \sim 40\mu\text{m}$  [5]. Il est donc mesuré une grande valeur de  $R_H$  en raison des faibles densités de porteurs, autrement dit, au fait que la surface de Fermi est constituée de petites poches. La constante de Hall est donc très sensible à la topologie de la surface de Fermi. La magnétorésistance transverse d'un semimétal croît en  $B^2$  à la fois dans la limite bas champ et la limite fort champ. Celle-ci est généralement plus élevée que dans un métal classique car ces matériaux étant typiquement plus purs, le temps de relaxation est plus élevé, donc le produit  $(\omega_c\tau)$  est d'autant plus grand.

### 1.4.2.1 Cas d'un métal compensé : $n_e = n_h$

Un métal est dit compensé lorsque le nombre d'électrons est égal au nombre de trous :  $n_e = n_h = n$ . La magnétorésistance croît alors indéfiniment en  $B^2$  :

$$\frac{\Delta\rho(B)}{\rho(0)} = \mu_e\mu_h B^2 \quad (1.38)$$

et la constante de Hall reste indépendante du champ :

$$R_H = \frac{1}{ne} \frac{\mu_h - \mu_e}{\mu_h + \mu_e} \quad (1.39)$$

Le modèle à deux bandes permet de retrouver les deux comportements de la magnétorésistance vus précédemment. Dans le cas d'un métal compensé, le signe de la constante de Hall reflète le porteur qui a la plus grande mobilité.

### 1.4.3 Les différents comportements de la magnétorésistance

Dans le cadre de la théorie du transport semi-classique, deux limites en champs apparaissent :

- $\omega_c\tau \ll 1$  qui est la limite dite de champ faible, la magnétorésistance croît alors comme  $\frac{\Delta\rho}{\rho} \propto B^2$
- $\omega_c\tau \gg 1$  qui est la limite de champ fort, c'est-à-dire que l'électron a suffisamment de temps pour parcourir l'orbite plusieurs fois entre deux collisions. Dans ce cas là, la magnétorésistance sature.

Dans le dernier cas, la magnétorésistance transverse peut apporter des renseignements importants sur la topologie de la surface de Fermi. Par exemple, il est possible de savoir si un métal est compensé ou non. Les principaux comportements caractéristiques de la magnétorésistance à fort champ dans la limite  $\omega_c\tau \gg 1$  sont les suivants :

- Pour un champ magnétique donné, lorsque toutes les orbites cyclotron sont fermées, dans le cas d'un métal non compensé la magnétorésistance sature ( $\Delta\rho/\rho \sim B^0$ ) et dans le cas d'un métal compensé, celle-ci croît quadratiquement avec le champ ( $\Delta\rho/\rho \sim B^2$ )
- Pour un champ magnétique donné, lorsque des orbites sont ouvertes, la magnétorésistance croît quadratiquement avec le champ et dépend de l'angle  $\alpha$  entre le courant et la direction de l'orbite ouverte dans l'espace réciproque,  $\Delta\rho/\rho \sim B^2 \cos^2 \alpha$ .

Comme la magnétorésistance transverse est proportionnelle à  $(\omega_c\tau)^2$ , on peut estimer  $(\omega_c\tau)$ . Plus la qualité de l'échantillon est bonne, plus la magnétorésistance sera importante à fort champ, correspondant à un grand temps de vie des quasiparticules  $\tau$ .

Les différents comportements de la magnétorésistance à fort champ sont résumés dans le tableau 1.5.

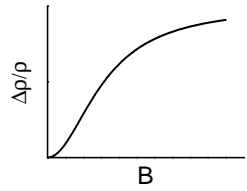
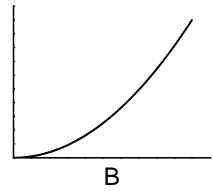
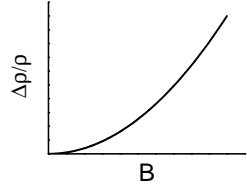
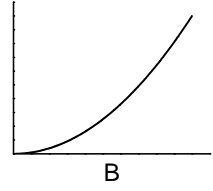
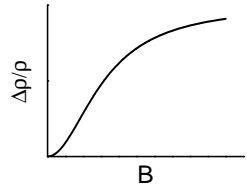
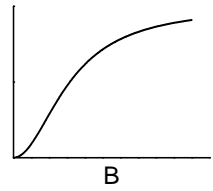
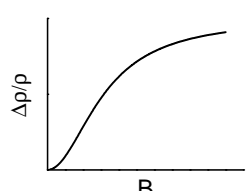
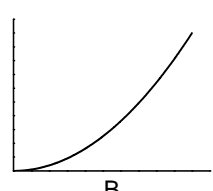

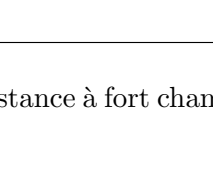
Orbite ouverte (dans l'espace des $k$ )	Métal non compensé ( $n_e \neq n_h$ )	Métal compensé ( $n_e = n_h$ )
aucune		
Orbite ouverte // $\mathbf{J}$		
Orbite ouverte $\perp \mathbf{J}$		
Une orbite ouverte existe dans le plan $\mathbf{J} \times \mathbf{B}$		
Aucune orbite ouverte n'existe dans le plan $\mathbf{J} \times \mathbf{B}$		

Figure 1.5 – Les différents comportements de la magnétorésistance à fort champ magnétique dans différentes conditions.

#### 1.4.4 Equation de Boltzmann

De façon générale, le temps de relaxation  $\tau$  dépend du vecteur d'onde  $\mathbf{k}$  de l'électron, de son énergie, et de la force appliquée. Le modèle de Drude, qui considère un temps de relaxation constant, n'est donc plus applicable. Il faut résoudre l'équation de Boltzmann. Pour cela on se place dans l'approximation d'un gaz dilué où les électrons sont libres et indépendants. Les collisions entre particules sont rares mais elles dépendent fortement de la distribution des particules elles-mêmes. On se trouve alors dans le cas d'un processus physique hors d'équilibre, c'est-à-dire dynamique, le temps intervient donc explicitement, mais si le système n'a pas d'interaction avec l'extérieur, celui-ci va évoluer vers un état d'équilibre. On définit alors le temps de relaxation  $\tau$ , qui correspond au temps que mettra le système pour atteindre cet équilibre. Mais comme l'utilisation du temps de relaxation ainsi défini n'est pas aisée, on définit un temps de relaxation  $\tau$  moyen intégré sur une trajectoire

## 1. Rappels de physique du solide

---

entière<sup>3</sup>. De cette façon,  $\tau$  correspond au temps moyen entre deux collisions. L'équation de Boltzmann modélise l'évolution de ce gaz dilué vers l'équilibre :

$$\left(\frac{df}{dt}\right)_{coll} = \frac{df}{dt} + \mathbf{v}_k \nabla_{\mathbf{r}} f + \frac{\mathbf{F}}{\hbar} \nabla_{\mathbf{k}} f \quad (1.40)$$

où  $f(\mathbf{r}, \mathbf{P}, t)$  est la fonction de distribution. C'est une fonction de 7 variables définie dans l'espace de phase de la particule  $(\mathbf{r}, \mathbf{P})$ . Une manière d'interpréter cette fonction de distribution est de dire que  $f(\mathbf{r}, \mathbf{P}, t) d\mathbf{r} d\mathbf{P}$  représente à l'instant  $t$  le nombre moyen de particules contenues dans l'élément de volume de l'espace de phase  $d\mathbf{r} d\mathbf{P}$ . La connaissance de  $f(\mathbf{r}, \mathbf{P}, t)$  est essentielle car elle permet de calculer toutes les propriétés du système dans le cadre de l'approximation des particules indépendantes. Le terme  $\left(\frac{df}{dt}\right)_{coll}$  représente la différence entre le nombre de particules qui entre dans le volume  $d\mathbf{r} d\mathbf{P}$  et le nombre qui en sortent à cause des collisions.  $\mathbf{F}$  est la force agissant sur un électron  $\mathbf{F} = -e[\mathbf{E} + \mathbf{v} \wedge \mathbf{B}]$  et  $\mathbf{v}$  est la vitesse moyenne d'un électron. La résolution de cette équation intégrodifférentielle non linéaire s'avère être une tâche extrêmement complexe si on ne fait pas des approximations. La plus couramment utilisée, même si elle ne possède pas de justification rigoureuse, est l'approximation du temps de relaxation. Cette approximation consiste à remplacer le terme de collision par

$$\left(\frac{df}{dt}\right)_{coll} = -\frac{f_k - f_0}{\tau_k} = -\frac{g_k}{\tau_k} \quad (1.41)$$

où  $f_0$  est la fonction de distribution à l'équilibre, c'est-à-dire la distribution de Fermi-Dirac (équilibre thermodynamique)

$$f(\mathbf{k}) = \frac{1}{1 + e^{\frac{\varepsilon - \mu}{k_B T}}} \quad (1.42)$$

et on suppose le temps de relaxation connu. L'équation de Boltzmann linéarisée devient alors :

$$-\frac{g_k}{\tau_k} = \mathbf{v}_k \frac{\partial f}{\partial T} \nabla_{\mathbf{r}} T - e \mathbf{E} \mathbf{v}_k \frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon} - \frac{e}{\hbar} (\mathbf{v}_k \wedge \mathbf{B}) \nabla_{\mathbf{k}} g_k \quad (1.43)$$

En résolvant cette équation, on peut alors déterminer les coefficients du transport dans les solides, comme la conductivité électrique isotherme, la conductivité thermique ou les différents coefficients thermoélectriques (effet Seebeck, effet Peltier, effet Nernst, ...).

### 1.5 Les effets quantiques sous champ magnétique

Les effets quantiques ne se manifestent que si la condition :

$$\hbar \omega_c \gg k_B T \quad (1.44)$$

est satisfaite, autrement dit s'ils ne sont pas masqués par l'agitation thermique. Sous l'effet d'un champ magnétique, une énergie caractéristique  $\hbar \omega_c$  est mise en jeu. Nous verrons que les effets quantiques se manifestent par la quantification des niveaux d'énergie qui sont séparés de  $\hbar \omega_c$ . Dans ce chapitre, nous nous intéressons uniquement à un effet issu de cette quantification, les *oscillations quantiques*, mais ils existent d'autres phénomènes quantiques comme la *rupture magnétiques* (*magnetic breakdown* en anglais), correspondant au passage d'un électron d'une trajectoire à une autre dans l'espace réciproque par effet tunnel, ou les

---

3. Les plus petits temps de relaxation obtenus sont de l'ordre de  $10^{-9}$ s, et ce dans des métaux extrêmement purs et proche du zéro absolu.



*effets ultra-quantiques*, qui apparaissent quand  $\hbar\omega_c$  devient comparable à l'énergie de Fermi.

### 1.5.1 Mouvement semi-classique dans un champ magnétique uniforme

Considérons le mouvement d'un électron dans un champ magnétique uniforme dirigé suivant  $z$ . Si pour l'instant on ignore les effets quantiques, l'équation du mouvement est :

$$\dot{\mathbf{k}} = \frac{\mathbf{F}}{\hbar} = \frac{q}{\hbar} \mathbf{v} \wedge \mathbf{B} \quad (1.45)$$

Si on calcule la variation de l'énergie par seconde, on a :

$$\frac{d\varepsilon}{dt} = \frac{1}{\hbar} \frac{\partial \varepsilon}{\partial \mathbf{k}} \frac{d\mathbf{k}}{dt} = \hbar \mathbf{v} \cdot \mathbf{F} = 0 \quad (1.46)$$

Il en découle que  $k_z$  et  $\varepsilon(\mathbf{k})$  sont des constantes du mouvement. Les trajectoires de l'électron dans l'espace réciproque résultent des intersections entre les surfaces d'énergie constante et des plans perpendiculaires au champ magnétique. Si la surface de Fermi est fermée, alors les trajectoires aussi mais dans le cas contraire, celles-ci peuvent être ouvertes ou fermées.

Si on projète l'équation 1.45 dans le plan perpendiculaire au champ, on obtient :

$$\dot{\vec{K}} = \frac{q}{\hbar} \vec{V} \wedge \vec{B} \quad (1.47)$$

où  $\vec{K}$  et  $\vec{V}$  sont les projections des vecteurs  $\vec{k}$  et  $\vec{v}$  respectivement. Il apparaît que la vitesse tangentielle est  $\dot{K} = \frac{e}{\hbar} VB$ .

Considérons deux trajectoires voisines d'énergie  $\varepsilon$  et  $\varepsilon + d\varepsilon$ , comme dessinées sur la figure 1.6. L'écart entre ces deux trajectoires est défini en tout point par :

$$dK = \frac{d\varepsilon}{|\nabla_{K\varepsilon}|} = \frac{d\varepsilon}{\hbar V} \quad (1.48)$$

Dans le cas où  $d\varepsilon$  est petit, on peut exprimer l'aire comprise entre les deux trajectoires :

$$dA = \left( \frac{\partial A}{\partial \varepsilon} \right)_{k_z} d\varepsilon \quad (1.49)$$

Celle-ci est balayée à la vitesse :

$$d\dot{A} = \dot{K} dK = \frac{qB}{\hbar^2} d\varepsilon \quad (1.50)$$

C'est la *loi des aires*, qui dit que la vitesse est constante et indépendante des détails de la trajectoire.

On peut exprimer le temps mis par l'électron pour parcourir cette aire, qui dans le cas d'une surface fermée correspond à la période du mouvement  $T_c$  définie par :

$$T_c = \frac{1}{2\pi} \oint \frac{dK}{\dot{K}} \quad (1.51)$$

Comme cette aire est balayée à vitesse constante, on peut caractériser le mouvement des

## 1. Rappels de physique du solide

électrons par sa période :

$$T_c = \frac{dA}{\frac{qB}{\hbar^2} d\varepsilon} = \frac{\hbar^2}{qB} \left( \frac{\partial A}{\partial \varepsilon} \right)_{k_z} \quad (1.52)$$

et sa pulsation :

$$\omega_c = \frac{2\pi}{T_c} = \frac{2\pi qB}{\hbar^2} \left( \frac{\partial A}{\partial \varepsilon} \right)_{k_z}^{-1} \quad (1.53)$$

Par analogie avec les électrons libres, on peut définir la *masse effective cyclotron* :

$$m^* = \frac{\hbar^2}{2\pi} \left( \frac{\partial A}{\partial \varepsilon} \right)_{k_z} \quad (1.54)$$

C'est seulement dans le cas d'un modèle isotrope que la masse effective cyclotron correspond à la masse effective définie par  $\mathbf{p} = m^* \mathbf{v}$ .

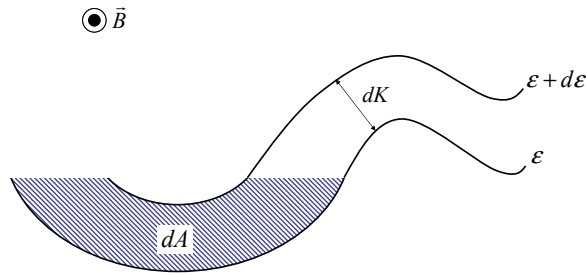


Figure 1.6 – Loi des aires dans l'espace réciproque.

### 1.5.2 Quantification des orbites dans un champ magnétique

Soumise à un champ magnétique, l'impulsion  $\mathbf{p}$  d'une particule devient :

$$\mathbf{p} = \hbar \mathbf{k} + q \mathbf{A} \quad (1.55)$$

où  $\hbar \mathbf{k}$  est la quantité de mouvement purement cinétique et  $q \mathbf{A}$  est le moment du champ,  $\mathbf{A}$  le potentiel vecteur défini par la relation  $\mathbf{B} = \nabla \wedge \mathbf{A}$  et  $q$  la charge de la particule ( $q=-e$  pour les électrons).

Dans le modèle semi-classique, les orbites sont quantifiées suivant la condition de Bohr-Sommerfeld :

$$\oint \mathbf{p} \cdot \mathbf{r} = 2\pi \hbar (n + \gamma) \quad (1.56)$$

où  $n$  est un entier et  $\gamma$  un facteur de correction de phase (valant  $\frac{1}{2}$  pour les électrons libres). En utilisant les équations du mouvement du modèle semi-classique, on obtient :

$$\oint \mathbf{p} \cdot \mathbf{r} = q \Phi \quad (1.57)$$

où  $\Phi$  est le flux magnétique contenu dans l'espace réel. Par conséquent, on trouve que l'orbite d'un électron est quantifiée et qu'elle est traversée par un quantum de flux  $\Phi$  donné par :

$$\Phi = \frac{2\pi \hbar}{q} (n + \gamma) \quad (1.58)$$

A partir de l'équation du mouvement  $\hbar \dot{\mathbf{k}} = q\mathbf{v} \wedge \mathbf{B}$ , on peut exprimer la longueur d'un segment  $\Delta r$  du plan normal à  $\mathbf{B}$  par rapport à la longueur d'un segment  $\Delta k$  :  $\Delta r = \frac{\hbar}{qB} \Delta k$  d'où, si  $A_k$  est l'aire de l'orbite dans l'espace des  $\mathbf{k}$  et  $A_r$  l'aire dans l'espace réel, on obtient :

$$\Phi = \frac{2\pi\hbar}{q}(n + \gamma) = B \left( \frac{\hbar}{qB} \right)^2 A_k \quad (1.59)$$

On aboutit à la *condition d'Onsager* :

$$A_k = \frac{2\pi qB}{\hbar}(n + \gamma) \quad (1.60)$$

qui traduit le fait que seules les surfaces ayant pour aire  $A_k$  sont permises. Ceci se voit également en calculant la différence  $\Delta A$  entre l'aire du niveau  $n$  et l'aire du niveau suivant  $n + 1$  :

$$A_{n+1} - A_n = \Delta A = \frac{2\pi qB}{\hbar} \quad (1.61)$$

autrement dit, seules les aires qui diffèrent de la quantité  $\Delta A$  sont permises. On peut maintenant calculer l'écart d'énergie  $\Delta\varepsilon$  entre deux niveaux :

$$\Delta\varepsilon \sim \frac{\partial\varepsilon}{\partial A(\varepsilon, k_z)} \Delta A = \hbar\omega_c \quad (1.62)$$

Le nombre d'états par niveau  $n$  et d'intervalle  $k_z$  dans le cas semi-classique ( $n \gg 1$ ) est donné par :

$$\frac{V}{(2\pi)^3} dk_z \int \int dk_x dk_y \quad (1.63)$$

L'intégrale  $\int \int dk_x dk_y$  représente l'intervalle d'énergie entre deux niveaux séparés de  $n \pm 1$ , c'est-à-dire  $\Delta A$ . La dégénérescence est donc :

$$\frac{qBV}{\hbar(2\pi)^2} dk_z \quad (1.64)$$

### 1.5.3 La quantification de Landau

On considère le mouvement d'un électron libre dans une boîte cubique de dimensions  $L^3 = L_x L_y L_z$ , dans un champ magnétique constant. L'hamiltonien en champ nul  $H = \frac{\mathbf{p}^2}{2m}$  devient :

$$H = \frac{1}{2m} (\mathbf{p} + q\mathbf{A})^2 \quad (1.65)$$

où  $\mathbf{A}$  est le potentiel vecteur ( $\mathbf{B} = \nabla \wedge \mathbf{A}$ ). On ne considère pas le couplage entre le spin et le champ car celui-ci ne fait que déplacer les niveaux de  $\pm\mu B$  (effet Zeeman). En supposant le champ magnétique suivant l'axe  $z$ ,  $\mathbf{B} = (0, 0, 1)$ , le potentiel vecteur a la forme :  $\mathbf{A} = (0, Bx, 0)$  (jauge de Landau). En développant l'hamiltonien on trouve :

$$H = \frac{-\hbar^2 \Delta}{2m} - i\hbar\omega_c x \frac{\partial}{\partial y} + \frac{\omega_c^2 m}{2} x^2 \quad (1.66)$$

Puisque la solution ne dépend que de  $x$ , on cherche des solutions sous la forme :

$$\Psi(x, y, z) = \Phi(x) e^{i(k_y y + k_z z)} \quad (1.67)$$

## 1. Rappels de physique du solide

En appliquant ce type de solution à l'hamiltonien 1.66, on obtient que  $\Phi$  doit satisfaire l'équation suivante :

$$\frac{-\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \Phi(x) + \frac{1}{2m} (\hbar k_y + \omega_c m x)^2 \Phi(x) = \left( \varepsilon - \frac{\hbar^2 k_z^2}{2m} \right) \Phi(x) \quad (1.68)$$

Le résultat obtenu est très similaire à l'équation d'un oscillateur quantique à une dimension, de pulsation  $\omega_c$  et centré en  $x_0 = \frac{\hbar k_y}{qB}$ . Les valeurs propres de l'énergie sont :

$$\varepsilon_n(k_z) = \left( n + \frac{1}{2} \right) \hbar \omega_c + \frac{\hbar^2 k_z^2}{2m} \quad (1.69)$$

C'est la *quantification de Landau* et les  $\varepsilon_n$  sont appelés les *sous-bandes de Landau* ; le mouvement n'est pas quantifié dans la direction du champ magnétique mais il l'est dans le plan  $Oxy$ . L'écart entre les niveaux est de  $\hbar \omega_c$ , donc plus le champ magnétique augmente, plus le clivage est important. La dégénérescence  $g$  des niveaux est proportionnelle à  $B$  et pour un  $n$  et un  $k_z$  fixés elle est de :

$$g = 2 \frac{qB}{h} S \quad (1.70)$$

où  $S = L_x L_y$  et le facteur 2 provient de la dégénérescence due au spin.

On peut montrer qu'aucun état n'est créé sous l'application du champ et qu'il y a seulement une réorganisation des niveaux d'énergie sur les niveaux de Landau.

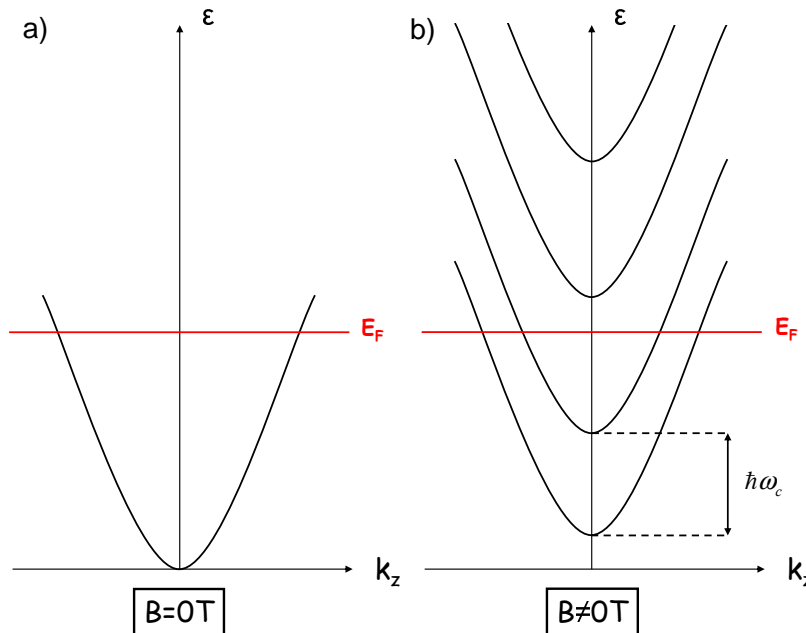


Figure 1.7 – Alors qu'à champ nul les niveaux électroniques forment un continuum (a), en présence d'un champ magnétique, les niveaux d'énergie sont quantifiés en niveaux de Landau séparés de  $\hbar \omega_c$  et dégénérés  $2 \frac{qB}{h} S$  fois. Les aires des trajectoires que peuvent emprunter les électrons sont également quantifiées et sont équidistantes de  $\frac{2\pi qB}{h}$ . Cette quantification est basée sur le fait que le nombre quantique  $n$  est grand ( $n \gg 1$ ).

La densité d'états des électrons libres à 3D soumis à un champ magnétique peut être exprimée de la façon suivante :

$$n(\varepsilon) = \frac{V\omega_c\hbar}{4\pi^2} \left(\frac{2m}{\hbar^2}\right)^{3/2} \sum_{n=0}^{\infty} \left[ \varepsilon - \left(n + \frac{1}{2}\right)\hbar\omega_c \right]^{-1/2} \quad (1.71)$$

Cette densité d'états est représentée sur la figure 1.8 (en comparaison avec la densité d'états en champ nul) ; celle-ci présente des maxima tous les  $(n + \frac{1}{2})\hbar\omega_c$ . En effet, quand le champ magnétique augmente, l'élargissement entre les niveaux augmentent et à chaque fois qu'un niveau coïncide avec  $\varepsilon_F$  il y a divergence de la densité d'états périodique en  $1/B$ . Cette divergence entraîne des oscillations des différentes propriétés électroniques mesurées comme l'aimantation, la résistance ou encore la magnétostriction.

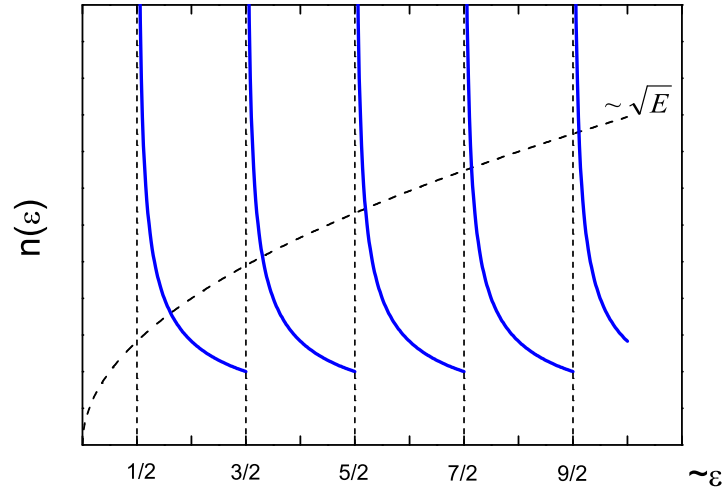


Figure 1.8 – Densité d'états pour des électrons libres en champ nul (trait pointillé) et en présence d'un champ magnétique (trait plein). Dans ce cas, celle-ci est oscillante et discontinue pour  $\varepsilon = (n + 1/2)\hbar\omega_c$ .

Si on prend en compte les collisions des électrons avec les impuretés du réseau (puisque indépendantes de la température), dont l'effet sera d'élargir les niveaux de Landau, il convient de faire intervenir le temps de relaxation  $\tau$ . Si  $\tau$  est fini, d'après la relation d'incertitude d'Heisenberg, on a  $\Delta\varepsilon \gg \frac{\hbar}{\tau}$ , c'est-à-dire que l'énergie et le temps de relaxation de l'électron ne peuvent pas être simultanément connus. Ceci nous indique que la largeur d'un niveau de Landau est de l'ordre de  $\frac{\hbar}{\tau}$ , donc pour pouvoir observer les effets quantiques, il faut que la largeur du niveau soit beaucoup plus petite que l'écart entre les niveaux. Ceci nous amène au *critère de Dingle* : pour observer la quantification de Landau, il faut théoriquement  $\omega_c\tau \gg 1$ .

## 1.5.4 Les oscillations quantiques

L'une des plus importantes caractéristiques d'un métal est sa surface de Fermi ; c'est par exemple ce qui permet de distinguer les métaux entre eux. Jusqu'au début du XX<sup>e</sup> siècle, peu de choses étaient connues sur la surface de Fermi des métaux réels.

En 1930, W.J. de Haas et P.M. van Alphen observe que la susceptibilité magnétique ( $\chi = \partial M / \partial B$ ) du Bismuth présente un comportement oscillatoire en fonction du champ magnétique [6], appelé depuis *effet de Haas-van Alphen*. Leur résultat est présenté sur la figure 1.72, accompagné par la même mesure réalisée quelques années après par D. Shoenberg [7]. Ce phénomène oscillatoire avait été prédit dans la même année par Landau [8]. Cette observation, alliée à la théorie de Landau, a constitué une révolution dans la physique de la matière condensée car elle permet de déterminer les propriétés électroniques d'un métal, en sondant directement la surface de Fermi. La connexion entre les oscillations et la topologie de la surface de Fermi a été réalisée par I.M. Lifshitz et par Onsager [9] quelques années après. Peu après, il a été montré que l'étude des amplitudes des oscillations permet de déterminer les caractéristiques de la surface de Fermi comme la masse effective cyclotron et le temps de vie des quasiparticules des électrons de conduction ; c'est la théorie de Lifshitz-Kosevich [10]. Celle-ci est valide même lorsque les interactions électron-électron et électron-phonon sont prises en compte, leurs effets étant simplement de changer les valeurs des paramètres physiques par rapport au cas d'électrons indépendants. De toutes les techniques expérimentales, l'effet de Haas-van Alphen est parmi les outils les plus puissants pour sonder les propriétés de la surface de Fermi.

L'objectif de ce chapitre est simplement d'introduire à la physique du phénomène. Une description très approfondie des oscillations quantiques dans les métaux est réalisée par D. Shoenberg [11].

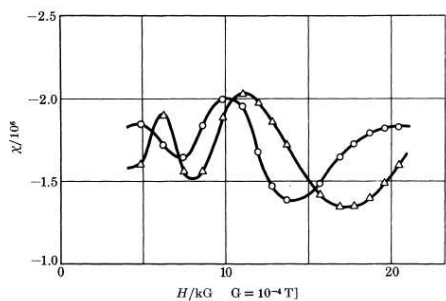


FIGURE 1. Oscillatory field dependence of susceptibility ( $\chi = M/H$ ) of bismuth at 14.2 K (de Haas & van Alphen 1930).  $\circ$ ,  $H$  perpendicular to  $B$ ;  $\triangle$ ,  $H$  parallel to  $B$ .

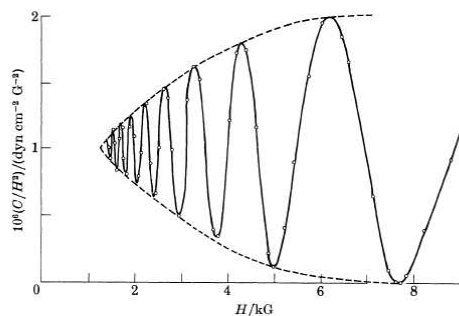


FIGURE 2. Oscillatory field dependence of torque for bismuth at  $T = 4.2$  K. The ordinate is  $C/H^2$  where  $C$  is the torque per unit volume at field  $H$ ; the field is at  $9.7^\circ$  from the binary axis in the binary-trigonal plane. (Shoenberg 1939.)

Figure 1.9 – Premières mesures de l'effet de Haas-van Alphen dans le Bismuth [6, 7].

### 1.5.4.1 Introduction à l'effet de Haas-van Alphen - Formule de Lifshitz-Kosevich

Nous avons vu que soumis à un champ magnétique, le mouvement orbital des électrons de conduction est quantifié et entraîne la formation des niveaux de Landau. Les oscillations de la densité d'états se répercutent dans la plupart des propriétés électroniques.

Lorsque le champ magnétique augmente, les niveaux de Landau, en croisant le niveau de Fermi, causent un changement brutal de l'énergie libre du système électronique. L'aimantation étant proportionnelle à l'énergie libre, celle-ci va présenter des oscillations en fonction

du champ magnétique, c'est l'*effet de Haas-van Alphen* (dHvA). L'expression théorique de la partie oscillatoire de l'aimantation  $M_{osc}$  due aux électrons de conduction est donnée par la formule de *Lifshitz-Kosevich* (LK)<sup>4</sup> [10] :

$$M_{osc} = \sum_l \sum_i \frac{(-1)^l}{l^{3/2}} A_i \sin \left( 2\pi l \frac{F_i}{B} - \gamma_i \right) \quad (1.72)$$

avec

$$A_i \propto B^{1/2} \left| \frac{\partial^2 A_i}{\partial k^2} \right|^{-1/2} R_T R_D R_S \quad (1.73)$$

$$R_T = \frac{\frac{2\pi^2 l k_B T m^*}{\hbar e B}}{\sinh \left( \frac{2\pi^2 l k_B T m^*}{\hbar e B} \right)} = \frac{X}{\sinh(X)} \quad (1.74)$$

avec  $X = \frac{2\pi^2 l k_B T m^*}{\hbar e B}$

$$R_D = \exp \left( -\frac{2\pi^2 l m^* k_B T_D}{\hbar e B} \right) \quad (1.75)$$

$$R_S = \cos \left( \frac{\pi g l m^*}{2m_0} \right) \quad (1.76)$$

Il apparaît que les oscillations sont périodiques en  $1/B$  et la fréquence dHvA est directement proportionnelle à l'aire de la section extrême (minimum ou maximum) de la surface de Fermi perpendiculaire au champ  $A_i$  :

$$F_i = \frac{\hbar}{2\pi e} A_i \quad (1.77)$$

Dans la formule 1.72, la somme sur  $i$  porte sur le nombre de sections extrémales et la somme sur  $l$  représente les différentes harmoniques. En terme semi-classique, on peut voir les  $l$  comme le nombre de tours de l'orbite cyclotron effectués par l'électron avant de subir une collision.

Le facteur  $R_T$  est appelé *facteur de réduction thermique* (*temperature damping factor* en anglais), car il décrit la réduction des amplitudes des oscillations en raison de l'étalement de la fonction de Fermi-Dirac au niveau de Fermi à mesure que la température augmente. La masse effective  $m^*$  est donnée par  $m^* = \frac{\hbar^2}{2\pi} \frac{\partial A}{\partial \varepsilon}$

Le *facteur de Dingle*,  $R_D$ , fait intervenir la température de Dingle  $T_D$  donnée par :

$$T_D = \frac{\hbar}{2\pi k_B \tau} \quad (1.78)$$

Ce facteur n'intervient pas directement dans le calcul mais il est rajouté pour prendre en compte l'élargissement des niveaux de Landau en raison du temps de vie fini des électrons. On voit donc que l'observation d'oscillations quantiques dans un matériau dépend grandement de sa qualité.

Le facteur  $R_S$ , appelé *facteur de spin* (*spin damping factor* en anglais), décrit l'effet du spin électronique. Le facteur de Landé  $g$  intervient dans son expression. Ce facteur est relié à la différence de phase entre les niveaux de Landau due au clivage des niveaux par l'effet Zeeman. Les amplitudes disparaissent pour  $\frac{g l m^*}{2m_0} = 1 + 2n$ , c'est l'*effet de spin zéro*

4. Nous ne présentons ici que les résultats du calcul, celui-ci étant effectué par exemple dans les livres d'A.A. Abrikosov [12] ou de W. Mercouff [3].

## 1. Rappels de physique du solide

---

qui décrit la situation où la contribution aux oscillations des spins up et down est nulle. Ce phénomène peut être utile pour déterminer la valeur de  $g$ .

De manière générale, les critères nécessaires pour observer des oscillations quantiques sont :

- Basses températures et forts champs magnétiques : la distance entre les niveaux de Landau  $\hbar\omega_c$  doit être supérieure à l'élargissement des niveaux avec la température  $k_B T$ , soit  $\hbar\omega_c \gg k_B T$ .
- Echantillons très purs : au moins une orbite cyclotron doit être effectuée par l'électron avant une collision, soit  $\omega_c \tau / 2\pi \gg 1$ .
- Homogénéité du champ magnétique : les fluctuations du champ magnétique appliqué doivent être inférieures à l'intervalle de champ entre deux oscillations dHvA.

### 1.5.4.2 L'effet Shubnikov-de Haas

Des oscillations du même type que celles de l'aimantation sont observées dans les phénomènes de transport tels que la magnétorésistance ou l'effet Hall, c'est l'*effet Shubnikov-de Haas*. La théorie de l'effet Shubnikov-de Haas (SdH) est assez compliquée car elle est basée sur les processus de diffusion de électrons soumis à un champ magnétique. Cependant, l'idée peut être vue simplement [13]. La probabilité de diffusion des électrons, qui est proportionnelle aux nombres d'états dans lesquels l'électron peut être diffusé et qui détermine le temps de relaxation  $\tau$  et la résistivité, va osciller en vertu des oscillations de la densité d'états au niveau de Fermi. La correction relative à la magnétoconductivité ainsi calculée peut être reliée à la partie oscillatoire de l'aimantation :

$$\frac{\Delta\sigma}{\sigma} \sim \frac{\partial M_{osc}}{\partial B} \quad (1.79)$$

Dans le cas de faibles amplitudes d'oscillations, on peut faire l'approximation  $\frac{\Delta\rho}{\rho} \approx \frac{\Delta\sigma}{\sigma}$ . On arrive finalement à :

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} \propto \sum_l \sum_i \frac{(-1)^l}{l^{1/2}} B^{1/2} \left| \frac{\partial^2 A_i}{\partial k^2} \right|^{-1/2} R_T R_D R_{SC} \cos \left( 2\pi l \frac{F_i}{B} - \gamma_i \right) \quad (1.80)$$

Les oscillations SdH sont également décrites par la théorie de Lifshitz-Kosevich. De ce fait, les paramètres physiques issus de l'une ou l'autre mesure sont identiques.

### 1.5.4.3 Temps de relaxation

Bien que les théories ne considère souvent qu'un seul type de temps de relaxation, il est important de distinguer le temps de relaxation de transport  $\tau_{tr}$ , déterminé à partir des mesures de mobilité (effet Hall) et le temps de relaxation quantique  $\tau_Q$ , déterminé à partir des mesures d'oscillations quantiques (dHvA et SdH).

La différence entre ces deux temps de vie des quasiparticules réside dans la dépendance angulaire de la moyenne des diffusions. Le temps de relaxation quantique  $\tau_Q$  est une mesure du temps moyen qu'une quasiparticule passe dans un état avant d'être diffusé dans un état différent. Toutes les diffusions sont donc prises en compte de façon équivalente dans le calcul de  $\tau_Q$ . A l'inverse, le temps de relaxation de transport  $\tau_{tr}$  est une mesure du temps qu'une quasiparticule se déplace dans une certaine direction (la direction du champ électrique par exemple). Ainsi, dans le calcul de  $\tau_{tr}$ , le facteur  $1 - \cos \theta$ , où  $\theta$  est l'angle de diffusion, souligne



l'importance des diffusions à grands angles par rapport aux diffusions à petits angles sur le taux de diffusion [14]. Pour des diffusions aux grands angles,  $\tau_{tr} \approx \tau_Q$  alors que si les diffusions aux petits angles dominant,  $\tau_{tr} \gg \tau_Q$ .

#### 1.5.4.4 Topologie de la surface de Fermi

Des renseignements sur la topologie de la surface de Fermi peuvent être apportés en étudiant la dépendance angulaire de la fréquence d'oscillations. De façon générale, celle-ci est donnée par

$$F(\theta) = \frac{\hbar}{2\pi e} A(\theta) \quad (1.81)$$

où  $\theta$  est l'angle entre le champ magnétique et la normale au plan de l'échantillon. Ainsi, dans le cas d'une surface de Fermi sphérique, la fréquence d'oscillation est constante quelque soit la direction du champ. Pour une surface de Fermi cylindrique, la fréquence augmente avec l'angle comme  $F(\theta) \propto 1/\cos\theta$ . La forme de surfaces de Fermi simples peut alors être déterminée à partir des mesures d'oscillations quantiques. En revanche, pour des topologies compliquées, les calculs de structures de bandes s'avèrent indispensables.

### 1.5.5 Détermination des paramètres physiques à partir des mesures d'oscillations quantiques

La théorie de Lifshitz-Kosevich est un outil très puissant pour déterminer les paramètres physiques comme la masse effective ou le temps de relaxation. Dans le cas d'une mesure d'oscillations de la magnétorésistance, il faut renormaliser par la partie monotone de celle-ci. On étudie donc la partie oscillatoire de  $\frac{\rho(B) - \rho_{monotone}}{\rho_{monotone}}$ , obtenue en soustrayant la monotone du signal. L'amplitude des oscillations est déterminées par des transformées de Fourier effectuées dans des fenêtres de champ  $[B_{min}, B_{max}]$  et on définit le champ moyen  $B_{moy}$  par :

$$\frac{2}{B_{moy}} = \frac{1}{B_{min}} + \frac{1}{B_{max}} \quad (1.82)$$

#### 1.5.5.1 Détermination de la masse effective

En étudiant la dépendance en température du premier harmonique, le facteur de réduction thermique nous permet de déterminer la masse effective  $m^*$  sur l'orbite cyclotron. Celle-ci est donnée par le facteur  $X/\sinh(X)$  pour le premier harmonique (ou le fondamental,  $l=0$ ). En posant  $\alpha = \frac{2\pi^2 k_B m_0}{eh} \simeq 14.694 \text{ T/K}$ , on a :

$$A(T) = A_0 \frac{\frac{\alpha m^*}{B_{moy}}}{\sinh\left(\frac{\alpha m^*}{B_{moy}}\right)} \quad (1.83)$$

Il suffit alors de tracer la variation de  $\ln(A/T)$  en fonction de la température pour un  $B_{moy}$  fixé :

$$\ln\left(\frac{A}{T}\right) = const - \ln\left[\sinh\left(\frac{\alpha m^*}{B_{moy}}\right)\right] \quad (1.84)$$

pour déterminer  $m^*$ . On voit que la température devra être d'autant plus basse que la masse effective à déterminer sera grande (figure 1.11).

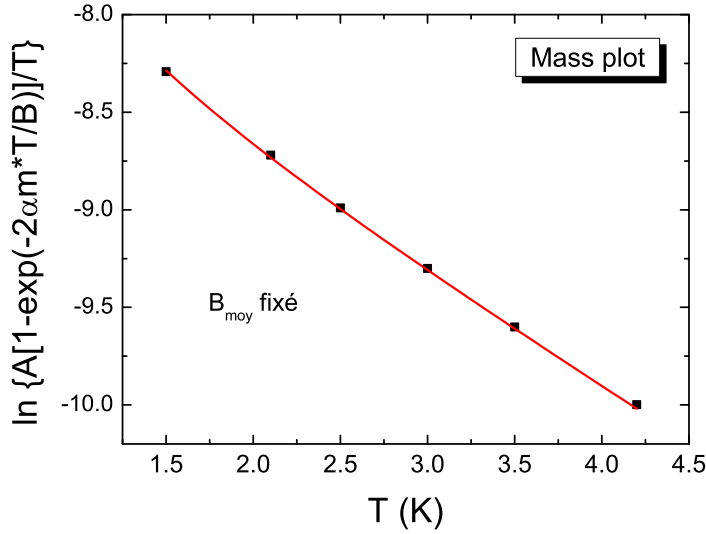


Figure 1.10 – Détermination de la masse effective. En rouge, ajustement de la forme de l'équation 1.83.

### 1.5.5.2 Détermination de la température de Dingle

Une fois que la masse effective est déterminée, on étudie la dépendance de l'amplitude des oscillations en fonction du champ magnétique afin de déterminer la température de Dingle et par conséquent le temps de relaxation sur une orbite cyclotron. Pour cela, on peut écrire l'amplitude du fondamental en fonction du champ comme :

$$A(B) \propto \frac{1}{B^{1/2}} \frac{e^{-\frac{\alpha m^* T_D}{B}}}{\sinh\left(\frac{\alpha m^* T_D}{B}\right)} \quad (1.85)$$

soit :

$$\ln \left[ A(B) B^{1/2} \sinh\left(\frac{\alpha m^* T_D}{B}\right) \right] = \text{const} - \frac{\alpha m^* T_D}{B} \quad (1.86)$$

En traçant cette équation en fonction de  $1/B$ , on obtient une droite de pente  $\alpha m^* T_D$ .

Dans cette brève présentation de l'étude d'oscillations quantiques, effectuée dans le but de déterminer la masse effective et la température de Dingle, nous avons seulement évoqué le cas où une seule fréquence, donc une seule orbite extrême, est présente. Ceci est par exemple le cas si la surface de Fermi est un cylindre parfait. Dans le cas de surfaces de Fermi plus complexes, plusieurs aires extrémales sont souvent présentes. La composante oscillatoire du signal mesuré sera alors constituée d'une composition des différentes fréquences associées à ces aires extrémales. Dans le cas où ces fréquences sont suffisamment distinctes, leur détermination est relativement facile. En revanche, si elles sont comparables, on observe des battements et leur détermination est rendue plus complexe.

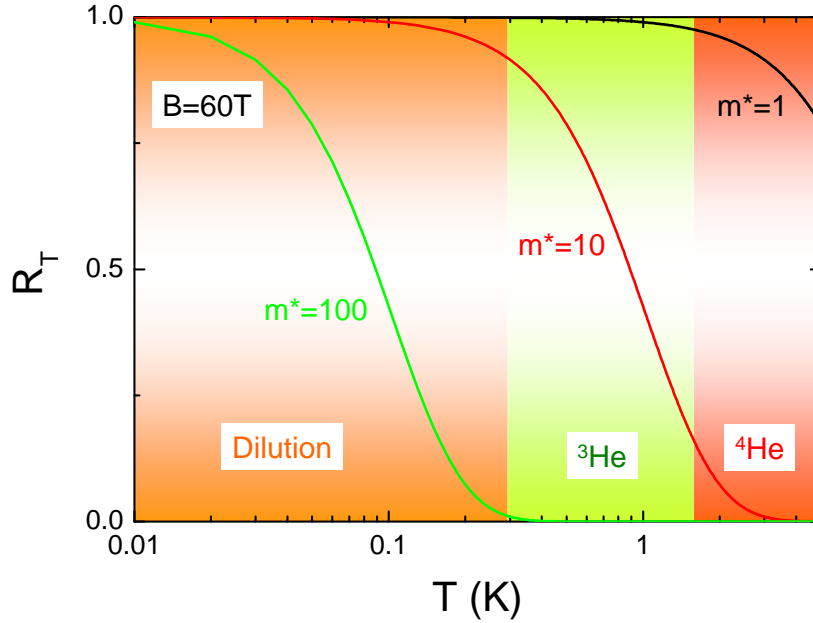


Figure 1.11 – Figure représentant le facteur de réduction thermique  $R_T$  en fonction de la température pour un champ magnétique donné et pour trois ordres de grandeurs de masse effective. On voit que très rapidement, dans le cas où  $m^* \sim 10m_0$  (comme c'est le cas des fermions lourds que nous présenterons dans le chapitre 2), des dispositifs expérimentaux permettant d'accéder à des températures très basses sont nécessaires.

## 1.6 Les phénomènes thermoélectriques et thermomagnétiques

### 1.6.1 Le tenseur thermoélectrique

Nous considérons ici qu'un courant électrique  $\mathbf{E}$  et qu'un gradient de température  $\nabla T$  sont appliqués simultanément à un échantillon. Dans ce cas, le vecteur densité de courant électrique  $\mathbf{J}_e$  et le vecteur densité de courant thermique  $\mathbf{J}_Q$  prennent la forme suivante :

$$\mathbf{J}_e = \sigma \mathbf{E} - \alpha \nabla T \quad (1.87)$$

$$\mathbf{J}_Q = \alpha T \mathbf{E} - L \nabla T \quad (1.88)$$

avec  $\sigma$  le tenseur de conductivité et  $\alpha$  le tenseur de conductivité thermoélectrique (Peltier). Il est important de noter que  $\alpha$  et  $L$  sont également des tenseurs qui peuvent être calculés à partir de l'équation de Boltzmann, en considérant le fait que dans un métal, seuls les électrons autour du niveau de Fermi contribuent au transport :

$$\alpha = -\frac{\pi^2}{3} k_B^2 T \frac{\partial \sigma}{\partial \varepsilon} \Big|_{\varepsilon_F} \quad (1.89)$$

$$L = \frac{\pi^2}{3} \frac{k_B^2 T}{e^2} \sigma(\varepsilon) \quad (1.90)$$

## 1. Rappels de physique du solide

---

Pendant une mesure, le courant  $\mathbf{J}_e = \mathbf{0}$ , ce qui permet d'écrire :

$$\mathbf{E} = Q\nabla T = \begin{vmatrix} S & N \\ -N & S \end{vmatrix} \nabla T \quad (1.91)$$

où  $Q$  est le *tenseur thermoélectrique*. Les coefficients  $S$  et  $N$  du tenseur  $Q$  représentent :

- l'*effet Seebeck* (ou *pouvoir thermoélectrique*) défini par :

$$S = \frac{E_x}{\nabla_x T} \quad (1.92)$$

- l'*effet Nernst* :

$$N = \frac{E_y}{\nabla_x T} \quad (1.93)$$

qui est l'apparition d'une tension transverse lorsque l'échantillon est traversé par un gradient thermique longitudinal et par un champ magnétique perpendiculaire.

Au contraire de l'effet Seebeck, l'effet Nernst étant un phénomène transverse, son apparition nécessite un champ magnétique (c'est en quelque sorte un pendant de l'effet Hall). De ce fait, on définit le *coefficient Nernst*  $\nu = \frac{N}{B}$ . Le tenseur  $Q$  relie les deux tenseurs  $\sigma$  et  $\alpha$  :

$$Q = \frac{\alpha}{\sigma} \quad (1.94)$$

L'effet Nernst résulte d'un compromis entre les forces électriques et les forces thermiques qui agissent sur les porteurs. Pourtant, il a souvent été négligé au dépend des mesures plus connues comme l'effet Hall ou le pouvoir thermoélectrique.

En utilisant le fait que  $Q = \alpha\sigma^{-1}$ , un rapide calcul mène à :

$$N = \frac{\sigma_{xx}\alpha_{xy} - \alpha_{xx}\sigma_{xy}}{\sigma_{xx}^2 + \sigma_{xy}^2} \quad (1.95)$$

$$= \frac{\sigma_{xx}\alpha_{xx}}{\sigma_{xx}^2 + \sigma_{xy}^2} \left[ \frac{\alpha_{xy}}{\alpha_{xx}} - \frac{\sigma_{xy}}{\sigma_{xx}} \right] \quad (1.96)$$

$$= \frac{\sigma_{xx}\alpha_{xx}}{\sigma_{xx}^2 + \sigma_{xy}^2} [\tan\theta_\alpha - \tan\theta_H] \quad (1.97)$$

où  $\tan\theta_H$  est l'angle de Hall et  $\tan\theta_\alpha$  est l'angle entre le champ thermoélectrique  $-\alpha\nabla T$  et le gradient thermique (voir figure 1.12). Dans le cas d'un métal simple (1 bande de porteurs, électrons libres), ces deux angles sont *à priori* du même ordre de grandeur, entraînant une (quasi) annulation de l'effet Nernst. L'effet Nernst peut également être écrit en fonction du tenseur  $\alpha$  et du tenseur de résistivité  $\rho$  :

$$N = \rho_{xy}\alpha_{xx} - \rho_{xx}\alpha_{xy} \quad (1.98)$$

qui s'annule si on considère un temps de relaxation indépendant de l'énergie.

L'absence de signal Nernst peut être expliquée si le temps de relaxation ne dépend pas de l'énergie. Certainement pour des raisons historiques, cette annulation de l'effet Nernst est appelée *compensation de Sondheimer*. Celle-ci peut être expliquée facilement (voir figure 1.13) en considérant que lors d'une mesure de thermoélectricité, puisque la seule excitation fournie est un gradient de température constant, seul le courant de chaleur, allant du côté chaud au côté froid, est non nul. Mais comme les électrons transportent à la fois la charge et la chaleur, la seule façon d'avoir  $\mathbf{J}_e = \mathbf{0}$  est d'avoir un "contre-courant", allant cette fois-ci

du côté froid au côté chaud. La déflexion due au champ magnétique étant opposée pour les deux courants, l'effet Nernst est nul. Dans la plupart des métaux cependant, un faible effet Nernst de quelques nV/K est mesuré. Ceci peut être le cas si par exemple le temps de relaxation dépend de l'énergie, entraînant, dans le cas des métaux simples, un effet Nernst linéaire en champ.

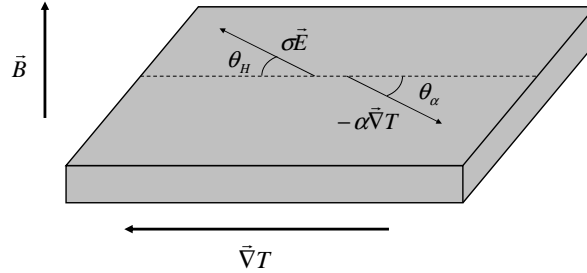


Figure 1.12 – Courants électriques et thermoélectriques produits par le champ électrique et le gradient thermique respectivement dans un métal. L'apparition d'un effet Nernst est due à la différence entre leurs deux composantes transverses. Les angles  $\theta_H$  et  $\theta_\alpha$  sont définis dans le texte.

Cependant, dans le cas où l'effet Nernst est non nul, il est utile de développer  $\tau$  autour de  $\varepsilon_F$   $\tau = \tau_0 + (\varepsilon - \varepsilon_F)d\tau/d\varepsilon$  afin d'obtenir une formulation standard de l'effet Nernst, mais valable uniquement dans le cas d'une surface de Fermi sphérique isotrope [15] :

$$N = \frac{\pi^2 k_B^2 T B}{3 m} \frac{\partial \tau}{\partial \varepsilon} \Big|_{\varepsilon_F} \quad (1.99)$$

où le temps de relaxation  $\tau$  est une fonction arbitraire de l'énergie  $\varepsilon$ . Cette relation est équivalente à considérer dans la formule 1.6.1 la limite  $\sigma_{xy}^2 \ll \sigma_{xx}^2$ . L'effet Nernst dépend donc de la variation avec l'énergie du temps de relaxation.

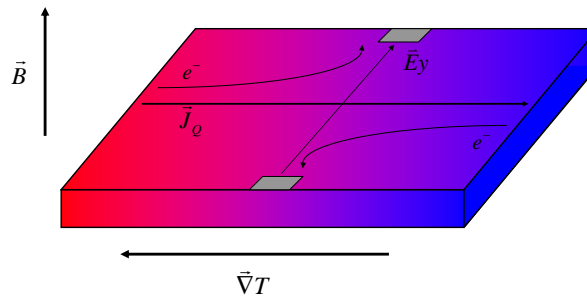


Figure 1.13 – Compensation de Sondheimer. Le dégradé de couleur représente la diffusion de la chaleur due au gradient thermique (rouge = chaud, bleu = froid).

L'effet Nernst a connu un net regain d'intérêt ces dernières années, particulièrement lorsqu'un effet Nernst non nul a été observé à la fois dans la phase supraconductrice et dans la phase pseudogap<sup>5</sup> des supraconducteurs à haute température critique (SHTC) [16]. Dans les supraconducteurs (de type II ou SHTC), l'action combinée du champ magnétique et du gradient thermique entraîne un mouvement transverse des vortex, car ce sont des réservoirs

5. Voir chapitre 2.

d'entropie, induisant l'apparition d'une tension transverse. De ce fait, l'observation d'un signal Nernst en dehors de la phase supraconductrice a renforcé l'idée de la présence de paires préformées et d'excitations type vortex au dessus de la température critique  $T_c$ .

L'observation d'un effet Nernst linéaire en champ de grande amplitude a été observé dans la phase métallique du composé fermion lourd  $\text{CeCoIn}_5$  [17]. Celui-ci dépasse drastiquement ce qui est attendu dans le cas d'un métal simple, suggérant qu'un métal constitué d'électrons en forte interaction peut donner naissance à de forts effets thermoélectriques transverses.

### 1.7 Ondes de densité

Les composés quasi-unidimensionnels sont caractérisés par une forte anisotropie de leurs propriétés électroniques. Leur structure électronique particulière entraîne de manière presque inévitable une instabilité de la phase métallique. L'état fondamental est alors caractérisé par une modulation spatiale de la densité de charge ou de la densité de spin entraînant un ordre appelé Onde de Densité de Charge ou Onde de Densité de Spin respectivement. Toutefois, de telles instabilités peuvent également apparaître dans des composés bidimensionnels ou tridimensionnels.

#### 1.7.1 Condition d'observation

##### 1.7.1.1 Le concept d'emboîtement de la surface de Fermi

On observe dans plusieurs matériaux, tels que les conducteurs organiques quasi-2D, un phénomène particulier de la surface de Fermi : l'*emboîtement* (*nesting* en anglais<sup>6</sup>). Cela consiste au fait que translatée d'un vecteur  $\mathbf{Q}_0$ , appelé vecteur de meilleur nesting, une partie de (ou toute) la surface de Fermi sera superposée à une partie inoccupée. La condition de nesting est alors :

$$\varepsilon(\mathbf{k}) = \varepsilon(\mathbf{k} + \mathbf{Q}_0) \quad (1.100)$$

On se retrouve alors avec des états dégénérés constitués de paires électron-trou. Le concept d'emboîtement pour des surfaces de Fermi les plus simples dans chaque dimension, c'est-à-dire un plan à 1D, un cylindre à 2D et une sphère à 3D, est représenté sur la figure 1.14.

##### 1.7.1.2 Instabilité de la susceptibilité du gaz électronique

La figure 1.15 montre la dépendance en température de la susceptibilité du gaz électronique à température nulle avec le vecteur d'onde  $\mathbf{q}$  à une, deux et trois dimensions. A une dimension, la susceptibilité de Lindhard a une divergence logarithmique lorsque  $q \rightarrow 2k_F$ . Comme on le voit sur la figure 1.14, il existe un emboîtement parfait de la surface de Fermi, ce qui rend la phase métallique très instable à la moindre perturbation de vecteur d'onde  $2k_F$ . A trois dimensions, la susceptibilité ne présente pas de divergence, mais sa dérivée a une singularité à  $q = 2k_F$ . En effet, l'emboîtement de la surface de Fermi ne concerne qu'un point. A deux dimensions, le meilleur emboîtement de la surface de Fermi est une droite. Il n'y a donc pas d'instabilité à deux et à trois dimensions.

Dans le cadre d'une étude champ moyen, on accède aux états fondamentaux via une transition de phase du second ordre. Ceux-ci sont du même type que la transition supraconductrice conventionnelle (type BCS [18]). Dans le cas d'une onde de densité de spins, les

---

6. En raison de sa très grande utilisation, nous emploierons principalement le terme *nesting*.

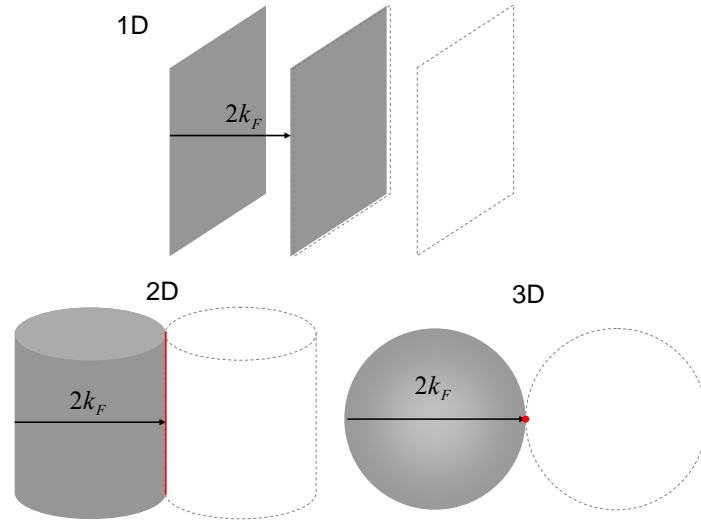


Figure 1.14 – Concept d’emboîtement de la surface de Fermi. Dans le cas d’une surface de Fermi 1D, celle-ci consistant en un plan, l’emboîtement est parfait. En revanche, dans le cas 2D (3D) la surface de Fermi cylindrique (sphérique), l’emboîtement consiste en une droite (un point).

paires constituant l’état fondamental sont des paires électron-trou (exciton) de spins opposés alors que les paires constituant l’état fondamental d’une onde de densité de charge sont des paires électron-trou de spins parallèles. Dans les deux cas, un gap s’ouvre dans le spectre d’excitations à une particule dans les parties emboîtées de la surface de Fermi. Les électrons de ces parties ne contribuent plus au transport, ce qui peut donner lieu à des transitions métal-insolant (emboîtement parfait) ou des transitions métal-semimétal (dans le cas d’un emboîtement imparfait).

### 1.7.2 Ondes de densité de charge

Considérons un gaz d’électrons libres quasi-1D (les charges sont suivant une chaîne). A basse température, les fluctuations thermiques étant négligeables, ce sont les interactions électron-électron et électron-phonon qui prédominent. L’état fondamental va alors être modifié. On montre que l’état le plus favorable résulte d’une déformation statique du réseau modulée de fréquence  $\lambda = \frac{\pi}{k_F}$  dû au couplage électron-phonon. Les positions moyennes des ions (ou atomes) du réseau sont données par :

$$\langle u(x) \rangle = \Delta u \cos(2k_F x + \phi) \quad (1.101)$$

où  $u$  est l’amplitude du déplacement et  $\phi$  la phase de la modulation. Cette déformation du réseau ouvre alors un gap  $\Delta$  au niveau de Fermi valant :

$$\Delta = 2\varepsilon_F e^{-1/\lambda} \quad (1.102)$$

où  $\lambda$  est la constante sans dimension du couplage électron-phonon. On assiste alors à la transition de phase métal-insolant de Peierls. Cette déformation va entraîner une modulation

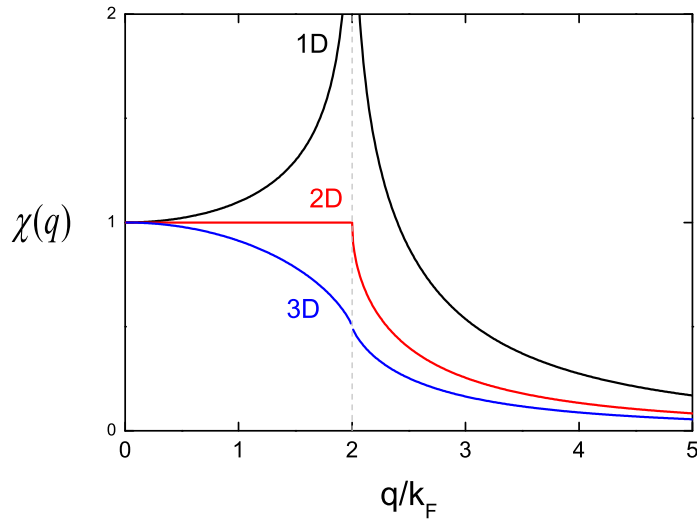


Figure 1.15 – Susceptibilité à température nulle du gaz d'électrons libres à une, deux et trois dimensions correspondants chacune à un type d'emboîtement de la figure 1.14.

de la densité de charge  $\rho(x)$  (où  $x$  est la position sur la chaîne) :

$$\rho(x) = \rho_0 \left[ 1 + \frac{\Delta}{\hbar v_F k_F \lambda} \cos(2k_F x + \phi) \right] \quad (1.103)$$

où  $\rho_0$  est la densité dans l'état métallique (constante). On peut voir l'état onde de densité de charge comme une condensation de paire électron-trou. Ainsi, en posant que l'énergie de condensation est égale à l'énergie de l'état normal moins l'énergie de l'état onde de densité de charge (ODC), on peut montrer que cette différence est négative. En d'autres termes, à 1D, on voit qu'il est plus énergétiquement favorable d'avoir un état onde de densité de charge.

### 1.7.3 Ondes de densité de spin

Il a été démontré théoriquement que l'état paramagnétique d'un gaz électronique est toujours instable et que cette instabilité conduit à la formation d'une onde de densité de spin (ODS) de vecteur  $\mathbf{Q} \approx 2k_F$  [19]. Dans ce cas, l'instabilité consiste en une interaction d'échange entre un électron d'un état occupé et un trou d'un état inoccupé de spins antiparallèles, séparés du vecteur de nesting  $\mathbf{Q}_0$ . Dans cet état, la densité d'aimantation est modulée :

$$S(\mathbf{x}) = S_0 \cos(\mathbf{Q} \cdot \mathbf{x}) \quad (1.104)$$

Dans le cas où  $\mathbf{Q} \neq \mathbf{G}$  un vecteur du réseau réciproque, on dit que l'ODS est incommensurable.

Une onde de densité de spins est un état fondamental antiferromagnétique itinérant. Il apparaît généralement dans des systèmes de basse dimension ou à forte anisotropie.



L'exemple le plus connu est le Chromium, où un nesting apparaît entre une portion d'une poche d'électron et une portion d'une poche de trous [20]. Comme pour l'onde de densité de charge, il y a ouverture d'un gap  $\Delta$  sur la partie de la surface de Fermi concernée, conduisant à une perte de porteurs, révélée par une augmentation de la résistivité en dessous de la température de Néel  $T_N$  puis par une décroissance exponentielle de la résistivité et de la chaleur spécifique, de type BCS. Dans ce cas, les électrons et les trous sont condensés dans un état onde de densité de spin avec une variation de la densité de spin sinusoïdale ou hélicoïdale. La densité de charge reste quant à elle constante, impliquant une variation de la densité des fermions de spin up et de spin down opposée.

Une onde de densité de spins peut être vue schématiquement comme l'association de deux ondes de densité de charge, chacune pour une orientation de spin et en opposition de phase :

$$\begin{aligned}\rho_{\uparrow}(x) &= \rho_0[1 + \rho_1 \cos(2k_F x + \phi)] \\ \rho_{\downarrow}(x) &= \rho_0[1 + \rho_1 \cos(2k_F x + \phi + \pi)]\end{aligned}\tag{1.105}$$

Ainsi l'aimantation vaut  $\rho_{\uparrow}(x) - \rho_{\downarrow}(x)$  et la charge totale  $\rho_{\uparrow}(x) + \rho_{\downarrow}(x) = \rho_0$

Dans le cas de métaux réels, seul un petit nombre de paires électron-trou sont condensées, le gap n'est donc que partiellement ouvert sur la surface de Fermi.

#### 1.7.4 Les effets du champ magnétique sur une onde de densité

Les effets du champ magnétique sur une onde de densité résultent de deux contributions. Le champ magnétique appliqué à un gaz d'électrons se couple à la fois au moment magnétique orbital de l'électron et au spin de l'électron. L'hamiltonien en présence d'un champ est donné par :

$$H = \sigma\mu_B B + \frac{(\mathbf{p} + q\mathbf{A})^2}{2m}\tag{1.106}$$

avec  $\sigma = \pm 1$ .

La première contribution est celle de l'effet Zeeman, qui consiste à lever la dégénérescence de spin en séparant la bande électronique en deux sous-bandes d'électrons de spin up et down, séparées de  $2\mu_B B$ .

Cette contribution n'affecte que les ondes de densité de charge. En effet, celles-ci ne couplant que des électrons de même spin, le nesting entre les sous-bandes de spin antiparallèle n'est plus réalisable car  $\mathbf{Q}_{\uparrow} \neq \mathbf{Q}_{\downarrow}$  (figure 1.16). Ainsi, plus le champ magnétique augmente, plus la température de transition est abaissée en raison de la dégradation du nesting de la surface de Fermi.

Au contraire des ondes de densité de charges, le vecteur de nesting reliant deux parties de la surface de Fermi de spins opposés, on s'attend intuitivement à ce que le champ magnétique n'ait que peu d'influence sur sa stabilité.

La seconde contribution, de type orbitale, décrit le couplage au moment cinétique de l'électron. Nous avons vu, lorsque nous avons étudié la quantification en niveaux de Landau, que celle-ci décrit la quantification du flux à travers une orbite électronique fermée.

Les effets orbitaux, qui augmentent la température de transition à mesure que la dimensionnalité des trajectoires électroniques du système diminue, améliorant par la même le nesting, affectent aussi bien les ODC et les ODS.

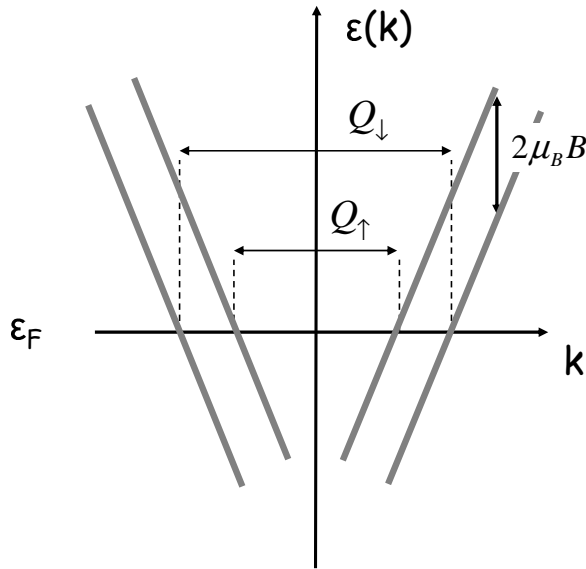


Figure 1.16 – Relation de dispersion d’une bande d’énergie 1D dans un champ magnétique.

## 1.8 Les supraconducteurs conventionnels

### 1.8.1 Bref historique

C’est après avoir réussi la liquéfaction de l’Hélium (4.2 K à pression ambiante) en 1908 que Heike Kamerlingh Onnes a ouvert le voie à un domaine jusqu’alors inaccessible : la physique des très basses températures. Cette prouesse expérimentale lui valut le Prix Nobel, qu’il reçut en 1913. C’est en étudiant les propriétés des métaux aux températures cryogéniques qu’il fit, en 1911, l’une des découvertes les plus sensationnelles : en dessous de 4.2K, la résistance du Mercure est nulle ; c’est la découverte de la *supraconductivité*. De nombreux autres éléments sont supraconducteurs à l’état naturel (Niobium [ $T_c=9.25\text{K}$ ], Plomb [ $T_c=7.2\text{K}$ ], Etain [ $T_c=3.72\text{K}$ ]) sont supraconducteurs, tandis que dans le cas du Bismuth ou du Cérium, la supraconductivité est induite sous une forte pression.

Mais ce n’est pas tout. Les supraconducteurs ont une autre incroyable propriété : refroidi en dessous de la température critique, ils expulsent le champ magnétique que l’expérimentateur leur soumet, tant que ce champ n’excède pas un certain champ critique  $H_c$ . Dans ces conditions, le supraconducteur est un diamagnétique parfait ( $\chi = -1$ ). C’est l’effet *Meissner* (découvert en 1933 par Walter Meissner et Robert Ochsenfeld). En fait, ce phénomène peut être expliqué en considérant que des (super)courants circulent à la surface du supraconducteur et écrantent le champ magnétique extérieur.

### 1.8.2 Longueurs caractéristiques

A partir des équations de London, il est possible de déterminer l’épaisseur selon laquelle circulent les supercourants qui écrantent le champ magnétique extérieur. De plus, le champ magnétique à l’intérieur du supraconducteur décroît exponentiellement sur cette longueur caractéristique, appelée *longueur de pénétration de London* et définie par :

$$\lambda_L = \sqrt{\frac{m}{\mu_0 e^2 \rho_S}} \quad (1.107)$$

où  $m$  est la masse effective et  $\rho_S$  la densité d'électrons supraconducteurs (ou densité superfluide) et  $e$  la charge de l'électron.

Une théorie phénoménologique de la supraconductivité basée sur la théorie de Landau des transitions de phase a été proposée par Ginzburg et Landau [21]. L'énergie libre du système est développée en puissance du paramètre d'ordre, décrivant l'ordre du système, qui est une pseudo-fonction d'onde  $\psi(\mathbf{r}) = |\psi(\mathbf{r})| e^{i\phi(\mathbf{r})}$  où  $|\psi(\mathbf{r})|^2$  représente la densité locale d'électrons supraconducteurs,  $n_s$  et  $\phi$  la phase de celui-ci. En minimisant l'énergie libre pour une variation arbitraire du paramètre d'ordre, on aboutit aux équations de Ginzburg-Landau, qui permettent d'introduire une seconde longueur caractéristique, la *longueur de cohérence de Ginzburg-Landau*, définie par :

$$\xi(T) = \frac{\hbar}{\sqrt{2m^*\alpha(T)}} \quad (1.108)$$

qui traduit en fait la distance minimale pour que l'ordre puisse s'établir.

Le rapport entre les deux longueurs caractéristiques  $\kappa = \frac{\lambda}{\xi}$  est le rapport de Ginzburg-Landau, indépendant de la température. Selon la valeur de  $\kappa$ , deux types de supraconducteurs sont définis (figure 1.17) :

- les supraconducteurs de *type I* pour  $\kappa < \frac{1}{\sqrt{2}}$
- les supraconducteurs de *type II* pour  $\kappa > \frac{1}{\sqrt{2}}$

Alors que les supraconducteurs de type I sont bien décrits par la théorie et les concepts vus précédemment, ce n'est pas le cas des supraconducteurs de type II. Il aura fallu attendre les travaux d'Abrikosov en 1957 [22] pour comprendre qu'au lieu de passer directement de l'état supraconducteur à l'état normal, la transition est continue. Au dessus d'une valeur  $H_{c1}$ , le champ magnétique pénètre progressivement à l'intérieur du matériau sous la forme de tubes appelés *vortex*, contenant chacun un *quantum de flux magnétique*  $\phi_0 = \frac{h}{2e} = 2.07 \times 10^{-15}$  Wb et redevient normal au dessus d'un champ noté  $H_{c2}$ . Entre  $H_{c1}$  et  $H_{c2}$ , on dit que l'on est dans un *état mixte* (figure 1.17). Dans le cas des supraconducteurs à haute température critique que nous étudierons dans la suite, sous l'effet d'un courant et d'un champ magnétique extérieurs, les vortex (ou plus exactement les électrons "normaux" à l'intérieur de ceux-ci) subissent la force de Lorentz et au delà d'une valeur de champ appelée *champ d'irréversibilité*  $H_{c1} < H_{irr} < H_{c2}$  (pour un courant  $I$  donné), les vortex vont se dépiéger (piégeage par exemple dû à des défauts ponctuels dans l'échantillon) et donc se mouvoir (jusqu'à  $H_{c2}$ ) ; on dit que l'on est dans un état *flux-flow*. Dans le cas où les vortex ne sont pas piégés, seule une force de viscosité va freiner leur mouvement ; sinon, la *résistivité flux-flow* est donnée par :

$$\rho_f \approx \rho_n \frac{B}{\mu_0 H_{c2}} \quad (1.109)$$

avec  $\rho_n$  la résistivité à l'état normal.

Les caractéristiques de quelques supraconducteurs de types I et II figurent dans le tableau 1.1.

### 1.8.3 La théorie BCS

C'est près d'un demi-siècle après la découverte de H.K. Onnes qu'une théorie microscopique de la supraconductivité a été élaborée : la théorie BCS (Bardeen, Cooper et Schrieffer) [18]. Par convention, on définit une supraconductivité décrite par la théorie BCS comme

## 1. Rappels de physique du solide

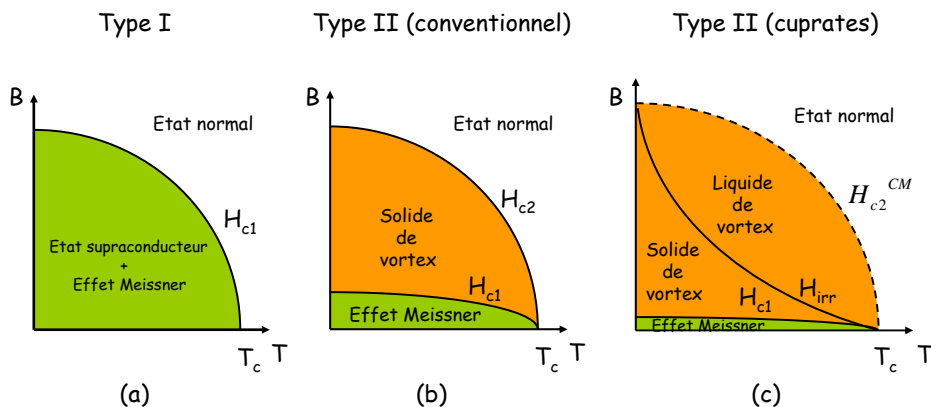


Figure 1.17 – (a) Diagramme de phase champ moyen d'un supraconducteur de type I (b) Diagramme de phase champ moyen d'un supraconducteur de type II conventionnel (c) Diagramme de phase champ moyen d'un supraconducteur à haute température critique faiblement anisotrope (YBCO) [23]. Le passage de l'état liquide de vortex à l'état normal est un crossover et non une vraie transition.

Matériau		$\xi$ ( $\mu\text{m}$ ) 0K	$\lambda_L$ ( $\mu\text{m}$ ) 0K	$\kappa$	$T_c$ (K)	$\mu_0 H_{c1}$ (T) 0K	$\mu_0 H_{c2}$ (T) 0K
Type I	Al	1.36	0.05	0.04	1.18	0.01	
	Pb	0.083	0.037	0.5	7.18	0.08	
Type II	NbTi	0.005	0.3	60	9.25	0.01	14
	Nb <sub>3</sub> Sn	0.003	0.065	18	18	0.017	25.5
	YBa <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>7</sub>	plan	0.003	0.8	$\approx 300$	93	< 0.02
axe $c$		0.0006	0.2				

TABLE 1.1 – Caractéristiques de quelques supraconducteurs de type I et II.

*conventionnelle*, c'est-à-dire avec un paramètre d'ordre de symétrie  $s$  et un couplage des électrons médié par les phonons. Cette théorie, bien que basée sur des hypothèses simples, rend très bien compte des propriétés observées.

Jusqu'en 1950, les théoriciens ne considéraient pas les vibrations du réseau cristallin (phonons) comme pouvant être à l'origine de la supraconductivité. Après la découverte de l'*effet isotope* [24, 25], qui montre que la température critique  $T_c$  (en dessous de laquelle le matériau devient supraconducteur), ainsi que le champ critique  $H_c$  (qui détruit la supraconductivité), sont proportionnels à  $M^{-1/2}$ , où  $M$  est la masse atomique de l'élément considéré, il est apparu évident que les phonons jouaient un rôle essentiel quant à l'apparition de la supraconductivité. Cette découverte encouragea alors Cooper qui, en se basant sur des travaux de Bardeen et de Fröhlich [26, 27], a considéré que les phonons pouvaient engendrer une interaction attractive entre deux quasiparticules de moments et de spins opposés créant ainsi un état lié appelé *paire de Cooper* [28] et entraînant une instabilité au niveau de Fermi.

L'année suivante, Bardeen, Cooper et Schrieffer développèrent une théorie microscopique basée sur le fait qu'un condensat de paires de Cooper constitue l'état fondamental qui est

décrit par la fonction d'onde BCS :

$$|\psi_{BCS}\rangle = \prod_{\mathbf{k} < \mathbf{k}_F} \left( u_{\mathbf{k}} + v_{\mathbf{k}} c_{\mathbf{k}\uparrow}^+ c_{-\mathbf{k}\downarrow}^+ \right) |\psi_0\rangle \quad (1.110)$$

où  $|\psi_0\rangle$  est l'état du vide et  $|u_{\mathbf{k}}|^2 + |v_{\mathbf{k}}|^2 = 1$ . Sous cette forme, la probabilité qu'une paire  $(\mathbf{k}\uparrow, -\mathbf{k}\downarrow)$  soit occupée est  $|v_{\mathbf{k}}|^2$  et qu'elle ne le soit pas  $|u_{\mathbf{k}}|^2$ . La théorie BCS prévoit une transition pour une température  $T_c$  sous laquelle il y a une condensation du type Bose-Einstein des paires de Cooper, vérifiant :

$$k_B T_c = 1.13 \hbar \omega_D e^{-1/N(\varepsilon_F)V} \quad (1.111)$$

où  $V$  est le potentiel d'interaction attractif entre les deux quasiparticules dû aux phonons,  $\hbar \omega_D$  l'énergie de Debye et  $N(\varepsilon_F)$  la densité d'états dans l'état normal au niveau de Fermi. En dessous de  $T_c$ , il y a cohérence de phase, c'est-à-dire que toutes les fonctions d'onde décrivant les paires de Cooper sont identiques ; le courant peut circuler sans dissipation d'énergie.

Un autre résultat important de la théorie BCS est qu'elle prévoit un gap  $\Delta$  dans la densité d'états au niveau de Fermi, appelé aussi paramètre d'ordre (Gor'kov a montré le lien entre celui-ci et le paramètre d'ordre vu dans la théorie de Ginzburg-Landau [29]), donné par :

$$\frac{\Delta(T = 0K)}{k_B T_c} = 1.764 \quad (1.112)$$

Cette relation est retrouvée expérimentalement dans la plupart des supraconducteurs conventionnels (voir figure 1.18). Dans ce cas, le gap supraconducteur  $\Delta$  est isotrope, on dit qu'il est de symétrie  $s$ . La cohérence de phase dans l'état supraconducteur impose que toutes les particules doivent avoir la même jauge. Si on se réfère au fait que la transition supraconductrice est une transition du second ordre, la symétrie brisée par le paramètre d'ordre est donc l'invariance de jauge locale.

Sur la figure 1.18, est représentée schématiquement l'allure de la densité d'états dans l'état normal et en dessous de  $T_c$ , ainsi que des résultats expérimentaux validant les prédictions de la théorie BCS.

Alors que le record de température critique semblait encore récemment détenu par  $\text{Nb}_3\text{Ge}$  avec  $T_c = 23.2K$  [32, 33], il a été découvert que le système multibande  $\text{MgB}_2$  est supraconducteur à  $T_c \sim 40K$  et que la supraconductivité était bien due au couplage électron-phonon. De plus, il a été montré par de nombreuses expériences l'existence de deux gaps supraconducteurs, confirmée par des calculs *ab initio* (voir par exemple [34, 35, 36]).

# 1. Rappels de physique du solide

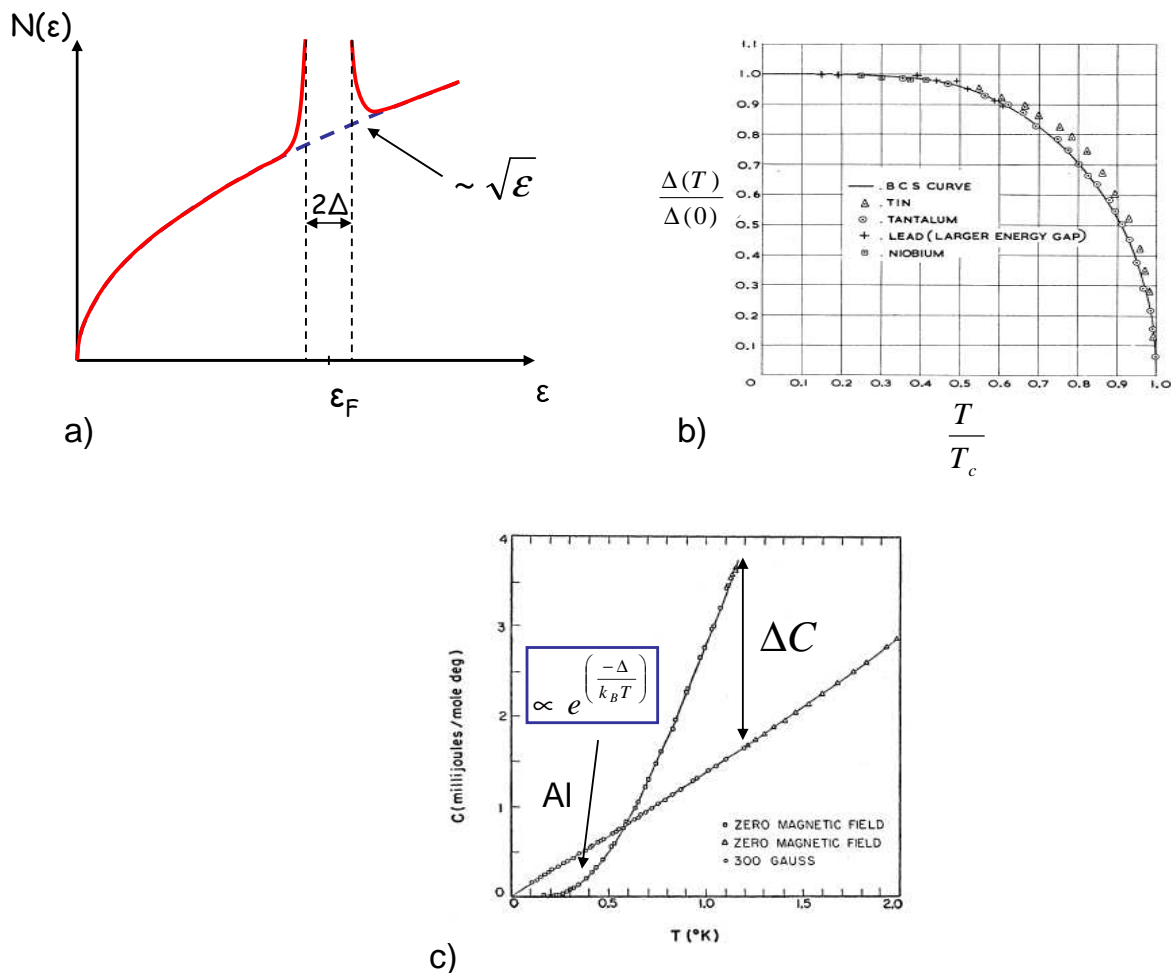


Figure 1.18 – a) En bleu pointillés : Allure de la densité d'états dans l'état normal dans le cas d'un gaz d'électrons libres, dépendant quadratiquement de l'énergie  $\epsilon$ . En rouge : Un gap de largeur  $2\Delta(0)$  s'ouvre au niveau de Fermi, rendant alors inaccessible les états d'énergie compris entre  $\epsilon_F - \Delta(0)$  et  $\epsilon_F + \Delta(0)$ . b) Dépendance du gap BCS divisé par le gap à température nulle en fonction de la température divisée par la température critique pour différents métaux, d'après [30]. Un excellent accord est trouvé entre les dépendances en température observées expérimentalement et celles prédites par la théorie BCS. c) Dépendance en température de la chaleur spécifique de l'aluminium en champ nul et pour un champ magnétique appliqué supérieur à  $H_c$ , d'après [31]. On observe un saut de chaleur spécifique  $\Delta C$  à la transition. La théorie BCS prévoit que la chaleur spécifique électronique varie en dessous de  $T_c$  comme  $C_{el} \propto e^{\frac{-\Delta(0)}{k_B T}}$ , ce qui est vérifiée expérimentalement. Au dessus de  $T_c$ , on retrouve une chaleur spécifique linéaire en température, conforme à la théorie du liquide de Fermi.

## Chapitre 2

# Les systèmes d'électrons fortement corrélés : un survol

### 2.1 Introduction

Les propriétés des métaux simples peuvent être décrites en considérant des électrons sans interaction pouvant se déplacer librement dans le matériau. Dans d'autres composés, en revanche, la répulsion coulombienne entre les électrons ainsi que leur faculté à se déplacer impliquent de fortes corrélations entre les particules. On parle alors de *systèmes d'électrons fortement corrélés*. L'effet des corrélations dans ces systèmes a des conséquences importantes sur leurs propriétés. Ceux-ci présentent des phénomènes plus ou moins exotiques à basse température et sont extrêmement sensibles aux changements de paramètres extérieurs tels que la température, la pression ou le champ magnétique.

Parmi ces systèmes on peut citer :

- les fermions lourds ( $\text{UPt}_3$ ,  $\text{UPd}_2\text{Al}_3$ ), où les interactions entre les spins des électrons de conduction et les spins des électrons  $f$  portant des moments magnétiques localisés entraînent que les électrons se comportent comme s'ils avaient une masse effective 10 à 1000 fois celle de l'électron libre et où de la supraconductivité peut coexister avec un ordre magnétique,
- les supraconducteurs à haute température critique ( $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ ,  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4+\delta}$ ), dont les composés parents sont des isolants de Mott, c'est-à-dire que la répulsion coulombienne est telle qu'une localisation des électrons est favorisée,
- les conducteurs organiques (p.e. les sels de Bechgaard) où le transport est souvent unidimensionnel et qui peuvent présenter des comportements comme une onde de densité de spin, de la supraconductivité ou un isolant de Mott,
- les manganites (dont les composés parents ont la maille pérovskite  $\text{LaMnO}_3$ ) présentent une magnéto-résistance géante et dans certains cas une transition métal-isolant, un ordre de charge/orbital associé à des distorsions du réseau, du ferromagnétisme, ... simplement en changeant la composition chimique ou un paramètre extérieur (pression, champ magnétique),
- les cobaltites, qui en fonction de la quantité de porteurs, manifestent soit un comportement métalliques très corrélés et magnétiques présentant un pouvoir thermoélectrique géant, soit un comportement métallique plus conventionnel, pouvant même devenir supraconducteur quand on rajoute des molécules  $\text{H}_2\text{O}$  [37].

L'étude expérimentale de ces systèmes s'effectue dans des conditions extrêmes comme les basses températures, des fortes pressions ou des forts champs magnétiques. En outre,

## 2. Les systèmes d'électrons fortement corrélés : un survol

---

l'effet des interactions compliquent les études théoriques

Un parallèle peut cependant être fait entre certains de ces composés. Sur la figure 2.1 figurent le diagramme de phase générique des cuprates, le diagramme de phase du composé organique  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Cl [38] et celui du composé fermion lourd CeCu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> [39]. Le point commun entre ces trois systèmes fortement corrélés est la compétition entre un comportement (presque) localisé et un comportement (presque) itinérant des électrons, en fonction d'un paramètre extérieur. Dans le cas des fermions lourds, en faisant varier la pression (ou le champ), à basse température, certains systèmes passent d'un état antiferromagnétique où les électrons  $f$  sont plutôt localisés à un état où les électrons sont plutôt itinérants. Dans le cas de CeCu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> dopé au Ge, il est proposé que le passage du caractère localisé au caractère itinérant est dû à un changement de valence des atomes de Ce. Ce changement, qui est associé à de la supraconductivité, suggère la présence d'un point critique quantique (transition de phase à T=0). Pour les cuprates, en augmentant légèrement le dopage, le système passe d'un état isolant antiferromagnétique à un état supraconducteur à basse température. De plus, au dessus de la région supraconductrice, l'état normal présente un comportement anormal par rapport à un liquide de Fermi, en particulier pour les faibles dopages. Il est suggéré que cette région du diagramme de phase serait une région de régime critique quantique. Quelques unes des propriétés anormales des cuprates sont mentionnées dans la suite du chapitre. En ce qui concerne le conducteur organique  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Cl, quatre comportements différents sont observés en fonction de la pression et de la température : isolant, semiconducteur, mauvais métal et liquide de Fermi fortement renormalisé. La région hachurée correspond à la région où la transition métal-isolant est du premier ordre se terminant à un point critique ainsi qu'à une coexistence de phase antiferromagnétisme-supraconductivité.

Dans la suite de ce chapitre, nous allons nous intéresser aux deux types de composés étudiés au cours de cette thèse : les composés fermions lourds et les supraconducteurs à haute température critique.



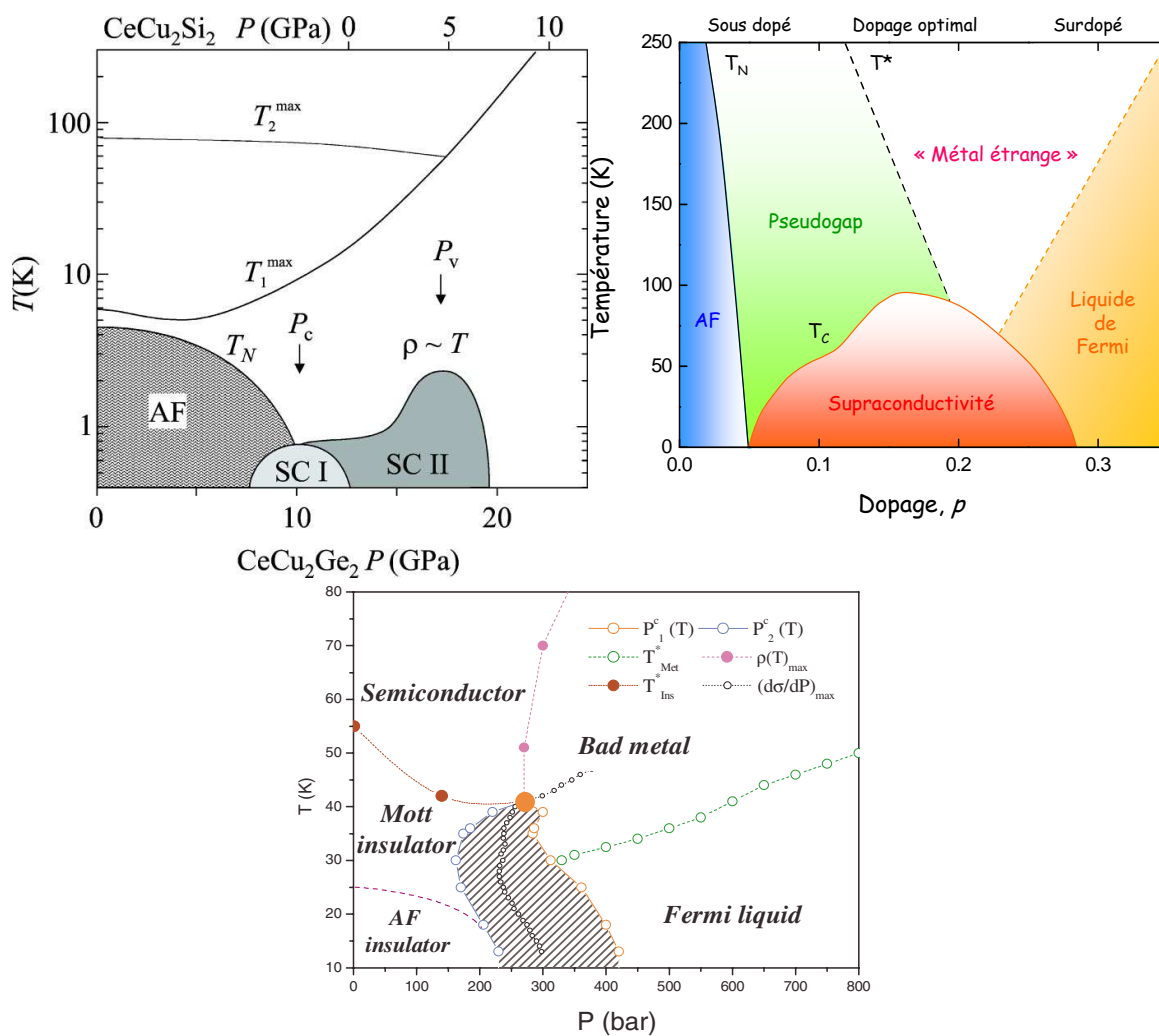


Figure 2.1 – 1) Diagramme de phase schématique du fermion lourd  $\text{CeCu}_2(\text{Si/Ge})_2$  ( $P, T$ ) [39]. 2) Diagramme de phase générique des cuprates. 3) Diagramme de phase du conducteur organique  $\kappa\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2]\text{Cl}$  [38].

### 2.2 Introduction à la physique des fermions lourds

Ce chapitre constitue une introduction simple à la physique des fermions lourds en abordant les concepts qui font de l'étude de ces composés un domaine tout aussi varié que complexe. On trouve de nombreuses revues récentes sur le sujet [40].

#### 2.2.1 Les systèmes à électrons $f$

Les systèmes à fermions lourds sont des composés intermétalliques constitués d'atomes de lanthanides (ou terres rares) (Ce, Yb) ou d'actinides (U, Np) et de métaux de transition avec des couches  $s$ ,  $p$  ou  $d$ . On peut citer parmi les plus étudiés  $\text{UPt}_3$ ,  $\text{CeCu}_6$ ,  $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$ , ... Ces composés tirent leur nom du fait qu'à basse température les propriétés électroniques peuvent être décrites par un régime liquide de Fermi associé à des masses effectives  $m^*$  pouvant aller jusqu'à 100 à 1000 fois la masse de l'électron au repos.

Les atomes de terres rares ou d'actinides possèdent des couches électroniques  $4f$  ou  $5f$  partiellement remplies dont les fonctions d'onde sont localisées près du noyau atomique ( $r_{4f} \simeq 0.5\text{\AA}$ ) par le potentiel centrifuge  $\ell(\ell + 1)/r^2$ , où  $\ell=3$  pour des électrons  $f$ . Généralement, les électrons  $f$  ont un caractère localisé et peuvent donner lieu au magnétisme dit localisé. Dans ce type de composés, la répulsion coulombienne entre deux électrons  $f$ , notée  $U$ , est très forte  $U \sim 5\text{-}10$  eV. A l'inverse, l'hybridation entre les électrons de conduction  $s$  ou  $d$  et les électrons  $f$  localisés, définie par la constante de couplage  $V$ , est très faible,  $V \sim 0.1$  eV.

Différents phénomènes physiques comme les fluctuations de valence, l'effet Kondo, l'ordre quadrupolaire ou la supraconductivité non conventionnelle peuvent alors apparaître.

Dans le cadre de cette thèse, un composé à base d'Uranium a été étudié,  $\text{URu}_2\text{Si}_2$ . L'uranium U est le dernier élément naturel du tableau périodique de Mendeleïev. Sa configuration électronique est  $[\text{Rn}]5f^36d^17s^2$ . On le trouve principalement dans les solides sous la forme  $\text{U}^{3+}$  avec la configuration  $[\text{Rn}]5f^3$  ou  $\text{U}^{4+}$  avec la configuration  $[\text{Rn}]5f^2$ . Ces deux états sont magnétiques mais le moment magnétique  $\mu_{max} \simeq 3.6\mu_B/U$  calculé à partir des règles de Hund n'est jamais atteint, du fait de la combinaison de plusieurs effets tels que les effets de spin et le champ cristallin. On dit que les électrons  $5f$  ont un caractère dual, à mi-chemin entre purement localisé et purement itinérant. Dans le cas des fermions lourds, une hybridation des électrons  $5f$  avec les électrons de conduction donne un caractère itinérant aux électrons  $f$  conduisant à la formation d'une bande de conduction. En revanche, les électrons  $5f$  localisés forment des multiplets afin de réduire la répulsion coulombienne. Les deux sous-systèmes interagissent, ce qui conduit à la renormalisation de la masse effective des quasiparticules délocalisées. Cette image est par exemple proposée pour expliquer les mesures de spectroscopie photoélectronique résolue en angle dans le composé  $\text{UPd}_2\text{Al}_3$  [41].

#### 2.2.2 L'effet Kondo

Dans ses travaux originaux, Kondo traite de l'interaction entre une impureté magnétique et les électrons de conduction d'un métal. Cette interaction se manifeste par un minimum dans la dépendance en température de la résistance à la température de Kondo  $T_K$ , observée pour la première fois dans les années 1930 [42]. En dessous de  $T_K$ , la résistivité augmente de nouveau pour finalement saturer. A basse température, alors que les phonons ne contribuent (presque) plus aux phénomènes de diffusions, les phénomènes de *spin-flip* sont possibles et donnent un nouveau mécanisme de diffusion pour les électrons de conduction. C'est en calculant les termes correctifs de la résistivité par perturbations au second ordre que Kondo

[43] a finalement trouvé que la résistivité est proportionnelle  $-\ln\left(\frac{T}{T_K}\right)$ . Le calcul de Kondo explique le minimum de résistivité observé, mais n'explique pas la saturation quand  $T \rightarrow 0$ , car le terme  $-\ln\left(\frac{T}{T_K}\right)$  diverge à basse température! C'est le *problème Kondo*. Les électrons de conduction subissant à basse température l'influence de plusieurs ions à la fois, la théorie des perturbations ne s'applique plus. Il aura fallu attendre 1975 pour que K.G. Wilson [44], en appliquant la méthode du groupe de renormalisation, retrouve le comportement observé à basse température, travaux pour lesquels il a obtenu le prix Nobel en 1982.

L'effet Kondo peut être décrit dans le cadre de l'hamiltonien d'Anderson décrivant l'hybridation entre une impureté magnétique et une bande d'électrons de conduction. En dessous de la température de Kondo  $T_K$ , la physique est contrôlée par l'hamiltonien Kondo, qui décrit l'échange entre le spin localisé  $S(\uparrow)$  avec le spin de l'électron de conduction  $s(\downarrow)$  :

$$H = -JS.s \quad (2.1)$$

L'interaction entre le spin de l'impureté et le spin des électrons de conduction est antiferromagnétique et conduit à la formation d'un état singulet  $\frac{1}{2}[S(\uparrow).s(\downarrow) - S(\downarrow).s(\uparrow)]$  d'énergie de liaison :

$$k_B T_K \propto \exp\left(-\frac{1}{JN(\varepsilon_F)}\right) \quad (2.2)$$

où  $N(\varepsilon_F)$  est la densité d'états pour une direction de spin au niveau de Fermi et  $J$  la constante de couplage antiferromagnétique. Cette échelle d'énergie correspond au gain d'énergie du système. Dans cet état fondamental, le moment magnétique de l'impureté est écranté par les électrons de conduction.

En se basant toujours sur le modèle d'Anderson, la formation du singulet modifie la densité d'état des électrons  $f$ . A basse température, l'hybridation  $V$  entre les électrons de conduction et les électrons  $f$  responsables du moment magnétique  $S$  conduit à la formation d'un pic dans la densité d'états au niveau de Fermi, appelé *résonance Kondo* ou *résonance d'Abrikosov-Suhl*. Ce pic, de largeur  $k_B T_K$  lorsque  $T < T_K$ , se développe afin de compenser la perte des degrés de liberté de spins et de moment orbital et est à l'origine des anomalies observées à basse température ( $T < T_K$ ). C'est cette importante densité d'états qui entraîne une forte renormalisation de la masse effective. Sur la figure 2.2, la densité d'états d'après le modèle d'Anderson est représentée pour différentes gammes de températures :  $T \ll T_K$ ,  $T > T_K$  et  $T \gg T_K$ . On voit que l'intensité de la résonance décroît nettement au dessus de  $T_K$ .

### 2.2.3 Le réseau Kondo - Effets de cohérence

Selon la quantité d'impuretés magnétiques dans le métal, on peut avoir soit des moments magnétiques isolés, soit un réseau périodique d'impuretés Kondo, appelé *réseau Kondo*. A haute température ( $T > T_K$ ), toutes les propriétés physiques sont décrites par les modèles considérant des impuretés magnétiques isolées. Cela implique que les moments magnétiques n'interagissent pas entre eux. Cependant, à basse température, on observe des déviations au comportement décrit par l'effet Kondo (une seule impureté), et ce particulièrement dans les propriétés de transport. Alors que les systèmes avec des impuretés diluées exhibent le minimum Kondo de la résistivité, les réseaux Kondo sont caractérisés par un maximum prononcé en dessous d'une température caractéristique  $T_{coh}$ , puis par une forte décroissance en dessous de cette température [45]. Cela est interprété par le fait que plus la température diminue, plus l'arrangement périodique des impuretés magnétiques devient parfait. Dans

## 2. Les systèmes d'électrons fortement corrélés : un survol

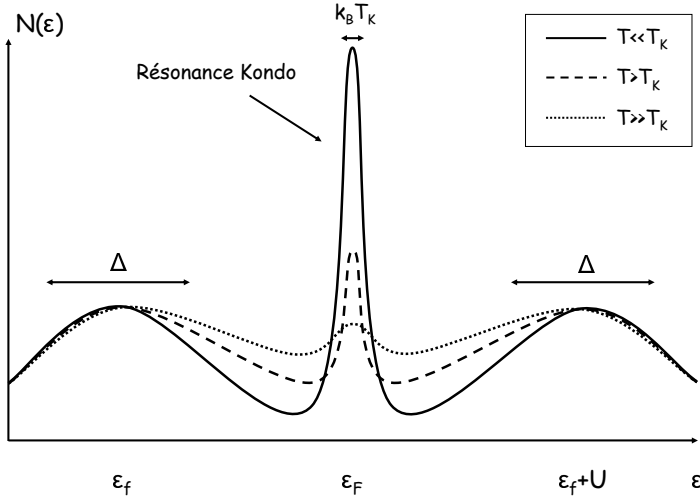


Figure 2.2 – Densité d'états  $\rho(\varepsilon)$  d'après le modèle d'Anderson pour différentes gammes de températures :  $T \ll T_K$ ,  $T > T_K$  et  $T \gg T_K$ , dans le cas d'une seule impureté couplée aux électrons de conduction. Le pic apparaissant à  $\varepsilon_F$  est à l'origine du comportement liquide de Fermi observé pour  $T \ll T_K$ . Les niveaux de largeur  $\Delta$ ,  $\varepsilon_f$  et  $\varepsilon_f + U$ , correspondent au niveau  $f$  simplement et doublement occupé respectivement et proviennent de l'hybridation avec la bande d'électrons de conduction.

les réseaux Kondo, la diffusion à basse température peut devenir cohérente, conduisant en dessous de  $T_{coh}$  à une chute rapide de la résistivité, qui adopte un comportement en  $T^2$  à plus basse température. La propagation des électrons de conduction peut être vue comme celle d'ondes de Bloch dans un réseau périodique. En raison de la périodicité du réseau, une bande de quasiparticules lourdes ( $m^* \propto 1/T_K$ ) se forme, de largeur effective  $k_B T_K$ .

On retrouve dans l'état cohérent du réseau Kondo les propriétés d'un liquide de Fermi, mais avec une masse effective fortement renormalisée. La résistivité, la chaleur spécifique et la susceptibilité adoptent les comportements caractéristiques :

$$\rho(T) = \rho_0 + AT^2 \quad (2.3)$$

$$C(T) = \gamma T \quad (2.4)$$

$$\chi(T) = const \propto \frac{1}{T_K} \quad (2.5)$$

où  $A \propto 1/T_K^2 \propto m^*$  et  $\gamma \propto 1/T_K$  ont généralement des valeurs importantes. Ce régime où la masse effective  $m^*$  des quasiparticules est très supérieure à  $m_0$  est le régime dit à *fermions lourds*. On note que plus la température de Kondo  $T_K$  est petite, plus la masse effective  $m^*$  est grande.

Le rapport de Wilson  $R_W = \chi(0)/\gamma$  évalué dans les fermions lourds est plus élevé que dans les métaux classiques,  $R_W \sim 2-5$ . Cette différence par rapport au cas conventionnel serait due aux effets à N corps, ce que certains auteurs décrivent en prenant un paramètre de Landau  $F_0^a$  négatif.

Une relation universelle du rapport Kadowaki-Woods est également vérifiée dans la plupart des fermions lourds où  $R_{KW} = \frac{A}{\gamma^2} \approx 10^{-6} \mu\Omega\text{cm}(\text{molK/mJ})^2$  [46]. En effet, la figure 2.4 montre que le rapport  $R_{KW}$  varie très peu selon la nature des composés, et ce bien que les

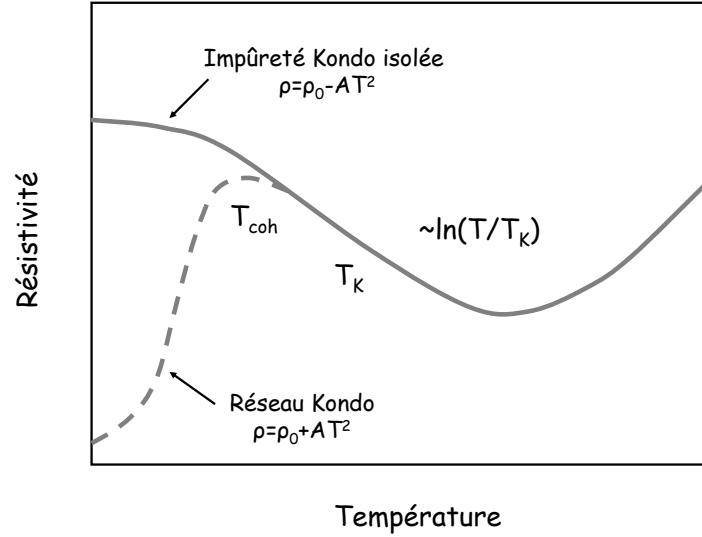


Figure 2.3 – Dépendance en température de la résistivité d’un métal en présence d’impuretés magnétiques.

masses effectives varient beaucoup d’un composé à l’autre [47]. Cependant, des déviations à ce comportement sont observées. Par exemple, dans le cas des composés à base de Yb avec une masse effective modérée, le rapport  $R_{KW}$  semble plus en accord avec les valeurs observées pour les métaux classiques.

## 2.2.4 Interaction RKKY - Diagramme de Doniach

En raison de la grande concentration d’impuretés magnétiques dans les réseaux Kondo, les interactions entre les différents moments ne peuvent plus être négligées. Ces interactions entre les électrons  $f$  qui occupent différents sites atomiques ne sont pas directes, comme dans le magnétisme des métaux de transition, mais indirectes; elles sont médiées par les électrons de conduction. Ce sont les interactions Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) [49, 50, 51].

Dans le cadre des interactions RKKY, un spin localisé  $S_i$  interagit avec le spin  $s$  d’un électron de conduction, conduisant à une polarisation du spin de ce dernier. Cette polarisation interagit à son tour avec le spin  $S_j$  d’un autre ion localisé  $j$ , ce qui crée une interaction indirecte entre les spins  $S_i$  et  $S_j$ . Lorsque cette interaction magnétique, dont le signe oscille en fonction de la distance entre les impuretés, est dominante, elle induit un ordre magnétique à longue distance dans le système. L’énergie associée à l’interaction RKKY s’écrit sous la forme :

$$k_B T_{RKKY} \propto J^2 N(\varepsilon_F) \quad (2.6)$$

A partir des deux échelles d’énergie caractéristiques  $T_K$  et  $T_{RKKY}$  (formules 2.2 et 2.6), Doniach décrit l’état fondamental à basse température des fermions lourds comme résultant de la compétition entre les diffusions de type Kondo et les interactions RKKY, ce qui conduit au diagramme de phase illustré sur la figure 2.5. Les systèmes à fermions lourds sont généralement proches d’une instabilité magnétique gouvernée par la compétition entre l’effet Kondo et les interactions RKKY.

La quantité  $JN$  peut être modifiée par un paramètre ajustable comme le dopage ou la



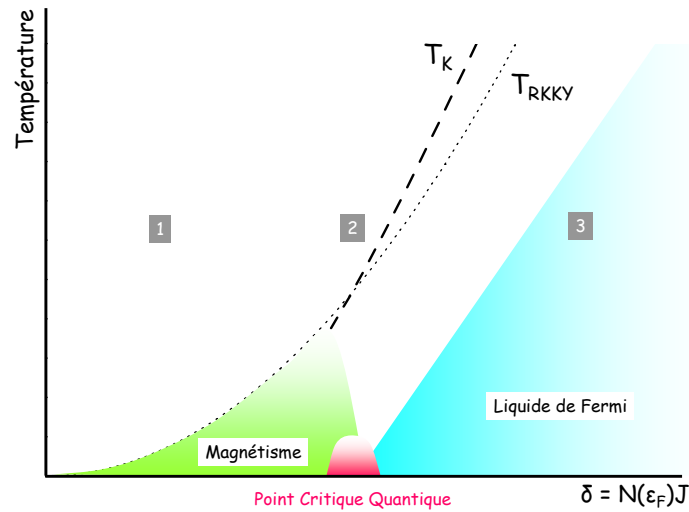


Figure 2.5 – Diagramme de Doniach température en fonction d’un paramètre ajustable tel que la pression ou le dopage. La région 1 correspond au régime antiferromagnétique où  $T < T_K$  et la région 3 au régime dit à fermions lourds (liquide de Fermi renormalisé). La région 3 correspond à un régime de fortes fluctuations où dans le cas de certains composés une phase de supraconductivité non-conventionnelle peut apparaître à basse température. Dans la limite  $T \rightarrow 0$  la transition à  $\delta_c$  entre la phase ordonnée magnétiquement et le régime liquide de Fermi donne lieu à un point critique quantique.

De tels comportements sont observés par exemple dans le cas de  $\text{CeCoIn}_5$ . Alors qu’à basse température ce composé est supraconducteur avec une température critique  $T_c=2.3\text{K}$ , l’application d’un champ magnétique va conduire le système dans un état liquide de Fermi. En revanche, à plus haute température, les propriétés du liquide de Fermi ne sont pas vérifiées. Un PCQ induit sous champ est observé vers le champ critique supraconducteur  $H_{c2} \simeq 5 \text{ T}$  [53, 54]. La figure 2.6 montre que la résistivité est linéaire sur une large gamme de température et que le coefficient  $A$  diverge quand le champ magnétique approche  $5\text{T}$ .

## 2. Les systèmes d'électrons fortement corrélés : un survol

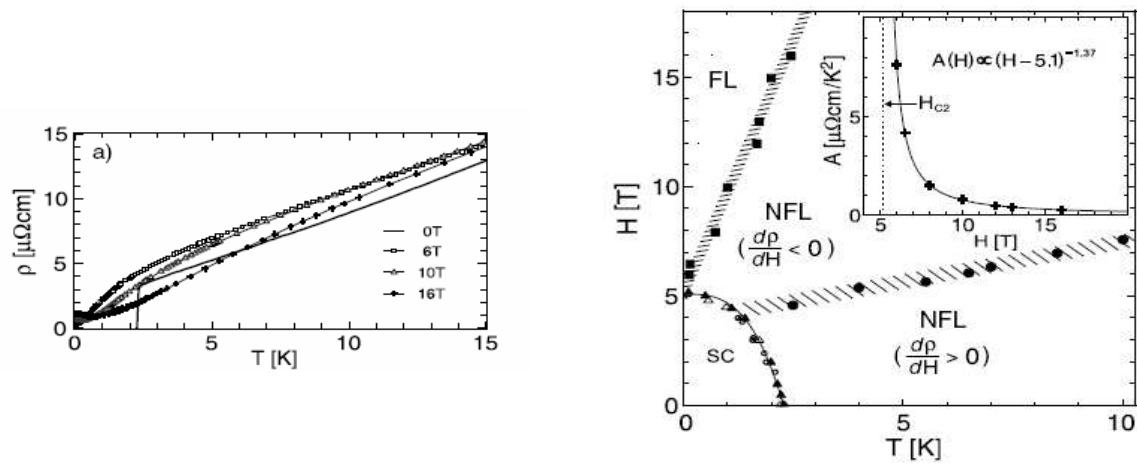


Figure 2.6 – D’après [53]. A gauche : résistivité de  $\text{CeCoIn}_5$  pour des champs compris entre 0 et 16T. A droite : Diagramme de phase de  $\text{CeCoIn}_5$  obtenu à partir de mesures de résistivité. En insert, dépendance en champ magnétique du coefficient  $A$ .



## 2.3 Supraconductivité non-conventionnelle

Par opposition à la supraconductivité dite *conventionnelle*, on dit que la supraconductivité est *non-conventionnelle* quand, en plus de l'invariance de jauge locale, une ou plusieurs symétries sont brisées par le paramètre d'ordre à la transition. Dans de nombreux cas, il subsiste des points ou des régions non gappées de la surface de Fermi (les zéros du gap), impliquant l'existence d'excitations de basse énergie. La manifestation expérimentale de ces nœuds dans les propriétés thermodynamiques et microscopiques permet de discuter de la nature du paramètre d'ordre. Généralement, on dit également que la supraconductivité est *non-conventionnelle* quand le mécanisme d'appariement des quasiparticules en paires de Cooper n'est pas dû aux phonons, mais par exemple aux fluctuations magnétiques.

Comme exemples de supraconducteurs non-conventionnels, citons les conducteurs organiques  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ , découvert par D. Jérôme *et al* [55], et  $(\text{BEDT-TTF})_2\text{ReO}_4$  [56]. Les fermions lourds présentent également une supraconductivité non-conventionnelle. Celle-ci a été découverte pour la première fois dans  $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$  ( $T_c \sim 0.5\text{K}$ ) en 1979 par Steglich *et al.* [57]. De façon générale, la supraconductivité dans les fermions lourds apparaît à des températures critiques relativement basses ( $T_c \sim 1\text{K}$ ). Une telle observation peut surprendre car l'introduction d'impuretés magnétiques dans un métal a plutôt tendance à briser les paires et donc à détruire la supraconductivité. Cependant, nous avons vu au chapitre précédent que les électrons  $f$  de ces composés sont délocalisés à basse température; ils peuvent alors former des paires. La dépendance en loi de puissance à basse température de la chaleur spécifique suggèrent la présence de nœuds dans le gap, c'est-à-dire des zones de la surface de fermi non-gappées, consistant avec des gaps de symétries  $d$ ,  $f$ ,  $p$ ...

La découverte des *supraconducteurs à haute température critique*, que nous allons évoquer plus en détails dans le chapitre suivant, où la température critique peut atteindre des températures de l'ordre de 90K dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  et 164 K dans  $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_8$  sous forte pression [58], a provoqué une véritable stimulation dans la communauté. Dans la suite, on s'intéresse plus particulièrement aux propriétés "non-conventionnelles" de ces composés, qui constituent la majorité du travail de cette thèse.

### 2.3.1 Spectre d'excitation d'un supraconducteur de gap de symétrie $d$

Il est maintenant clairement admis que la symétrie du paramètre d'ordre des cuprates supraconducteurs est de la forme  $d_{x^2-y^2}$ <sup>1</sup> et peut être exprimée comme :

$$\Delta(\phi) = \Delta_0 \cos 2\phi \quad (2.7)$$

où  $\Delta_0$  le maximum du gap et  $\phi$  l'angle dans le plan  $(k_x, k_y)$  avec  $\phi=0$  suivant  $k_x$ . La forme du gap est représentée sur la figure 2.7 en comparaison avec le gap de symétrie  $s$  des supraconducteurs type BCS. On remarque que pour  $\phi=45^\circ$ , le gap est nul et les excitations de quasiparticules persistent quand  $T \rightarrow 0$ . La présence de nœuds dans le gap supraconducteur modifie fortement les propriétés de transport et thermodynamiques à basse température par rapport à celles d'un supraconducteur conventionnel type BCS de gap  $s$ .

En se limitant aux basses énergie, le spectre d'excitations près du nœud peut être écrit de la façon suivante :

$$E(k) = \sqrt{(v_F k_1)^2 + (v_\Delta k_2)^2} \quad (2.8)$$

où les paramètres  $v_F$  et  $v_\Delta$  sont les vitesses de Fermi des quasiparticules perpendiculaire et

1. Des preuves expérimentales de cette symétrie sont présentées dans la suite de ce chapitre.

## 2. Les systèmes d'électrons fortement corrélés : un survol

parallèle à la surface de Fermi respectivement et  $k_1$  et  $k_2$  les vecteurs du réseau réciproque perpendiculaire et tangentiel à la surface de Fermi respectivement. La forme typique de ce spectre est un cône (dit cône de Dirac). La densité d'états correspondant au spectre  $E(k)$  est linéaire en énergie et dépend exclusivement des paramètres  $v_F$  et  $v_\Delta$  :

$$N_s(E) = \left( \frac{2}{\pi \hbar^2} \right) \left( \frac{1}{v_F v_\Delta} \right) E \quad (2.9)$$

A partir de  $N(E)$  il est possible de déterminer les propriétés basse énergie du système, comme par exemple la chaleur spécifique,  $C_{el} \propto T^2$ , ou la conductivité thermique  $\kappa_e = \frac{1}{3} C_{el} v_F^2 \tau_e$ , où  $\tau_e$  est le temps de vie de transport des quasiparticules. Les excitations thermiques des quasiparticules nodales impliquent que la densité superfluide, déterminée à partir des mesures de longueur de pénétration  $\lambda(T)$ , augmente linéairement avec la température.

Cependant, de nombreuses expériences suggèrent que le gap d'énergie n'est pas *propre*. En prenant en compte la présence de défauts dans le cristal, les diffusions élastiques des quasiparticules sur les impuretés modifient fortement la dépendance en énergie de la densité d'états, conduisant principalement à l'existence d'une densité d'états à énergie nulle.

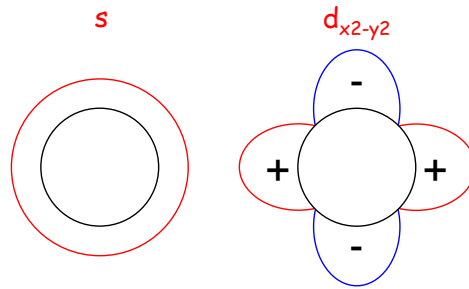


Figure 2.7 – *A gauche* : Gap BCS de symétrie  $s$ . *A droite* : Gap de symétrie  $d_{x^2-y^2}$ .

### 2.3.2 Effets des impuretés sur un supraconducteur non-conventionnel

Le taux de diffusion  $\Gamma$  est généralement donné par :

$$\Gamma = \frac{2\pi}{\hbar} n_{imp} |\langle k | U | k' \rangle|^2 N_n(0) \quad (2.10)$$

où  $n_{imp}$  est la concentration en impuretés,  $U$  est le potentiel de l'impureté et  $N_n(0)$  la densité d'états au niveau de Fermi. La limite de Born est définie pour  $U \ll 1$  et la limite unitaire pour  $U \gg 1$ . L'approche perturbative dite SCTMA (*self-consistent T-matrix approximation*) est la méthode standard utilisée pour décrire les diffusions d'une quasiparticule dans un potentiel  $U$  dans un métal, un semi-conducteur ou un supraconducteur. La densité d'états à basse énergie dépend très fortement du potentiel  $U$  [59].

Dans la limite de Born, l'effet des impuretés est de modifier la pente de la densité d'états à basse énergie, qui garde une dépendance en énergie même à basse énergie. Dans la limite unitaire, l'augmentation du désordre entraîne, en dessous d'une échelle d'énergie  $\gamma$  proportionnelle au taux de diffusion, une densité d'états constante en énergie. La modification de la densité d'états influence de façon drastique le comportement des quasiparticules dans les expériences qui sondent les énergies en dessous de  $\gamma$ . L'existence d'un régime constant de

$N(E)$  est interprétée comme provenant d'une brisure des paires de Cooper par les potentiel des impuretés et entraîne la création d'états liés [60].

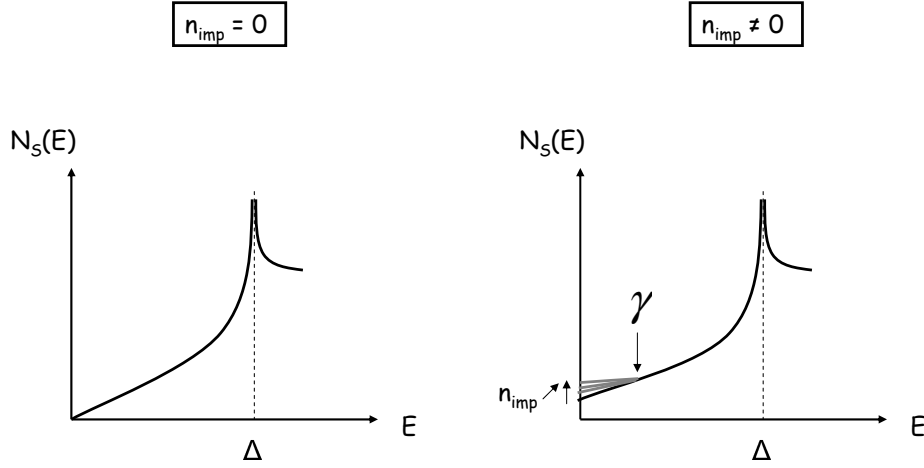


Figure 2.8 – Représentation schématique de la densité d'états d'un supraconducteur avec un gap de symétrie  $d$  (à gauche) sans impureté et (à droite) en considérant l'effet du désordre.

### 2.3.2.1 Universalité de la conductivité

P. Lee a montré que lorsque  $k_B T \ll \gamma$ , il y a une compensation entre la diminution du temps de relaxation  $\tau$  et l'augmentation de la densité d'états résiduelle  $N_s(0)$  lorsque la concentration d'impuretés augmente [61]. Dans ce régime *universel*, la conductivité à énergie nulle est indépendante du temps de relaxation :

$$\sigma_{00} = \frac{e^2}{2\pi\hbar^2} \frac{2}{\pi} \left(\frac{n}{d}\right) \left(\frac{v_F}{v_\Delta}\right) \quad (2.11)$$

où  $n/d$  est le nombre de plans  $\text{CuO}_2$  par cellule unité.

En considérant un effet additionnel des vortex et les corrections du liquide de Fermi, Durst et Lee ont montré que 2.11 devient [62] :

$$\sigma_{00} = \frac{e^2}{2\pi\hbar^2} \frac{2}{\pi} \left(\frac{n}{d}\right) \left(\frac{v_F}{v_\Delta}\right) \beta_{VC} \alpha_{FL}^2 \quad (2.12)$$

Le comportement universel apparaît également dans la conductivité thermique à basse température, qui est linéaire en température :

$$\frac{\kappa_{00}}{T} = \frac{k_B^2}{3\hbar} \left(\frac{n}{d}\right) \left[ \left(\frac{v_F}{v_\Delta}\right) + \left(\frac{v_\Delta}{v_F}\right) \right] \quad (2.13)$$

Contrairement au transport de charge, le transport de chaleur n'est renormalisé ni par des corrections dues aux vortex ni par les interactions entre les quasiparticules thermiquement excitées, ce qui fait de  $\kappa_0/T$  la seule quantité vraiment *universelle*. De ce fait, c'est une quantité très utile pour sonder un gap supraconducteur de symétrie  $d$ . En effet,  $v_\Delta$  représente simplement la pente du gap au nœud, impliquant que le terme linéaire résiduel peut fournir des informations importantes sur le gap :  $v_\Delta = \frac{1}{\hbar} \frac{d\Delta}{dk} \Big|_{n_{\text{œud}}} = \frac{1}{\hbar k_F} \frac{d\Delta}{d\phi} \Big|_{n_{\text{œud}}}$ , où  $k_F$  est le

## 2. Les systèmes d'électrons fortement corrélés : un survol

---

vecteur de Fermi en position nodale.

Cependant, pour un taux de diffusion important, la relation 2.13 n'est plus valide, le paramètre d'ordre étant détruit car les paires sont brisées par les diffusions sur les impuretés. De plus, Sun et Maki ont montré qu'en réalité, la valeur universelle de la conductivité thermique augmente avec le dopage [63].

### 2.3.2.2 Mesures de longueur de pénétration

L'étude de la dépendance en température de la longueur de pénétration  $\lambda(T)$  permet de sonder les excitations de quasiparticules dans un supraconducteur. A basse température,  $\lambda(T)$  est inversement proportionnelle à la dépendance en température de la densité superfluide  $\rho_s$  :

$$\rho_s(T) = \rho_s(0) - \rho_N(T) = \frac{m}{\mu_0 e^2 \lambda^2(T)} \quad (2.14)$$

A très basse température, la théorie BCS prévoit que  $\lambda(T) - \lambda(0) \propto \exp(-\Delta/k_B T)$ . En revanche, dans le cas d'un gap de symétrie  $d_{x^2-y^2}$ , on s'attend à avoir un continuum d'énergie et une densité de l'état normal linéaire en température [62] :

$$\frac{\rho_N(T)}{m} = \frac{2 \ln 2}{\pi} \frac{k_B}{\hbar^2} \frac{n}{d} \alpha^2 \left( \frac{v_F}{v_\Delta} \right) T \quad (2.15)$$

## 2.4 Les supraconducteurs à haute température critique

### 2.4.1 Un bref historique de la supraconductivité à haute température critique - Les cuprates

En 1986, deux chercheurs du laboratoire IBM de Zurich, J. Georg Bednorz et K. Alex Müller, ont reporté l'observation de la supraconductivité dans la famille de composés à base d'oxyde de Cuivre  $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_{4+\delta}$  à 35K [64]. L'année suivante, c'est la famille de supraconducteurs  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  qui a été découverte par Wu *et al*, avec une température critique de l'ordre de 90K [65]. Ces observations ont conduit la communauté à imaginer que la supraconductivité à température ambiante était envisageable. C'était sans compter sur la grande complexité de ces composés et de leur difficulté de synthèse cristallographique.

En effet, le record vingt-deux ans après n'est "que" de  $T_c=153\text{K}$ , détenu par le composé  $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_2\text{O}_8$  sous pression.

La structure élémentaire des supraconducteurs à haute température critique (SHTC) est constituée de plans  $\text{CuO}_2$ , séparés par des plans contenant les trous (ou électrons) dopants et jouant le rôle de réservoirs de charges comme représenté sur la figure 2.9. Ces plans  $\text{CuO}_2$  correspondent aux directions cristallographiques (**a**,**b**), perpendiculaires à l'axe **c** et c'est la conductivité électrique dans ces plans qui donne lieu à la supraconductivité. Le nombre de plans varie selon la famille considérée :  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4+\delta}$  et  $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_6$  sont des composés *mono-plan* et  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  un composé à deux plans. Il existe des composés à trois plans comme  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$  (Bi2223) ( $T_c^{\text{max}} = 111 \text{ K}$ ) ou  $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$  (Tl-2223) et il peut même exister une *infinité* de plans, ce qui est le cas de la famille  $\text{Sr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{CuO}_2$ . En comparant les températures critiques ( $T_c$ ) des différents cuprates en fonction de  $n$ , on peut voir que tant que  $n \leq 3$ , plus  $n$  est grand, plus  $T_c$  est grande. On trouve globalement que pour  $n=1, 2$  et  $3$ ,  $T_c$  vaut entre 0 et 85K, 60 et 92K et 105 et 120K respectivement.

A dopage nul, ces composés sont isolants en raison de la forte répulsion coulombienne entre électrons. En substituant un atome  $\text{La}^{3+}$  par un atome divalent  $\text{M}^{2+}$  ( $\text{M}=\text{Ba}, \text{Sr}$  ou  $\text{Ca}$ ),

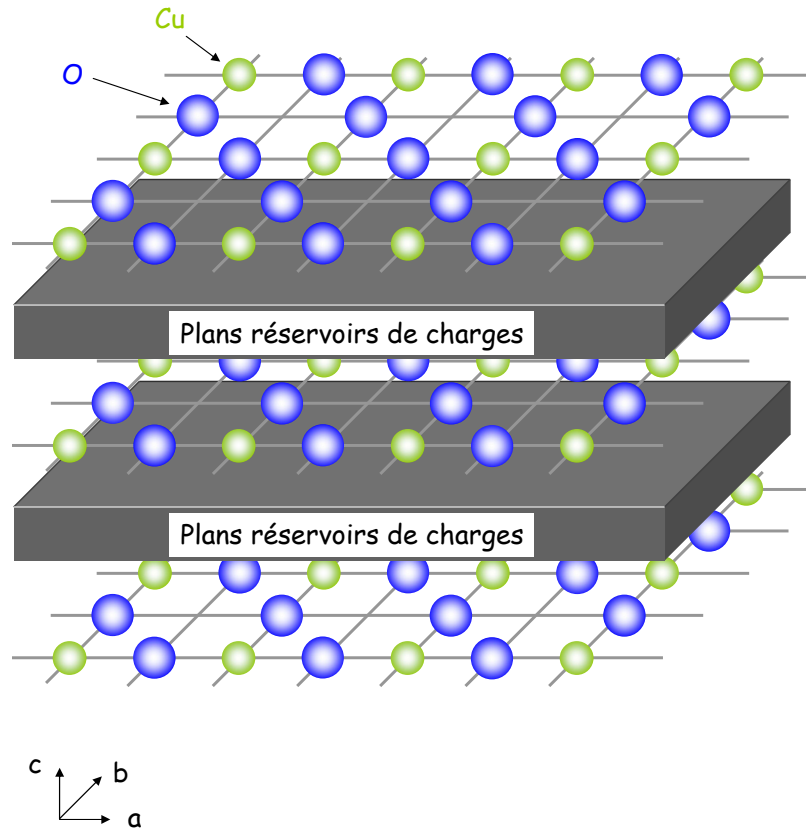


Figure 2.9 – Structure schématique des cuprates, composée de plans CuO<sub>2</sub> en alternance avec des plans jouant le rôle de réservoirs de charges.

on introduit un trou dans le plan CuO<sub>2</sub>. Ainsi, en augmentant le nombre de porteurs dans les plans CuO<sub>2</sub>, l'ordre supraconducteur va apparaître avec une  $T_c$  dépendant très fortement du dopage. Dans le cas de la famille YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub> (YBCO), c'est par oxygénation que l'on introduit des trous ; la particularité de ces composés est l'existence de chaînes Cu-O entre les plans CuO<sub>2</sub> qui servent de réservoirs de charges : elles sont vides pour YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6</sub> ( $x=0$ ) et pleines pour YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> ( $x=1$ ). Les cuprates ont un diagramme de phase générique, que nous étudierons dans le chapitre suivant.

Il existe également des cuprates dopés aux électrons, la première famille ayant été trouvée par Tokura *et al*, Nd<sub>2-x</sub>Ce<sub>x</sub>CuO<sub>4</sub> [66], leur diagramme de phase étant (légèrement) différent (dans la suite, nous n'étudierons que les cuprates dopés en trous).

Il est clairement établi que toutes les propriétés intéressantes des cuprates sont dues aux plans CuO<sub>2</sub>. Par exemple, la résistivité est très anisotrope,  $\frac{\rho_c}{\rho_{ab}} \sim 10^3$  à  $10^4$  dans la majorité des cas, impliquant que le mouvement des électrons est essentiellement confiné dans les plans CuO<sub>2</sub>.

L'observation de telles valeurs de  $T_c$  a immédiatement suggéré qu'un mécanisme autre que la théorie BCS pouvait être à l'origine de la supraconductivité. Alors que des observations telles que l'appariement des électrons en paires de Cooper, d'un gap dans l'état supraconducteur, de l'effet Josephson ou de l'existence de vortex soutiennent une supraconductivité type BCS, la température critique élevée, le comportement de la résistivité, la faible longueur de cohérence et surtout le fait que les composés parents soient antiferromagnétiques

## 2. Les systèmes d'électrons fortement corrélés : un survol

vont à l'encontre d'une telle supraconductivité. L'origine du couplage entre les électrons et la nature de l'état normal des cuprates soulèvent encore de grandes interrogations.

### 2.4.2 Le diagramme de phase générique des cuprates

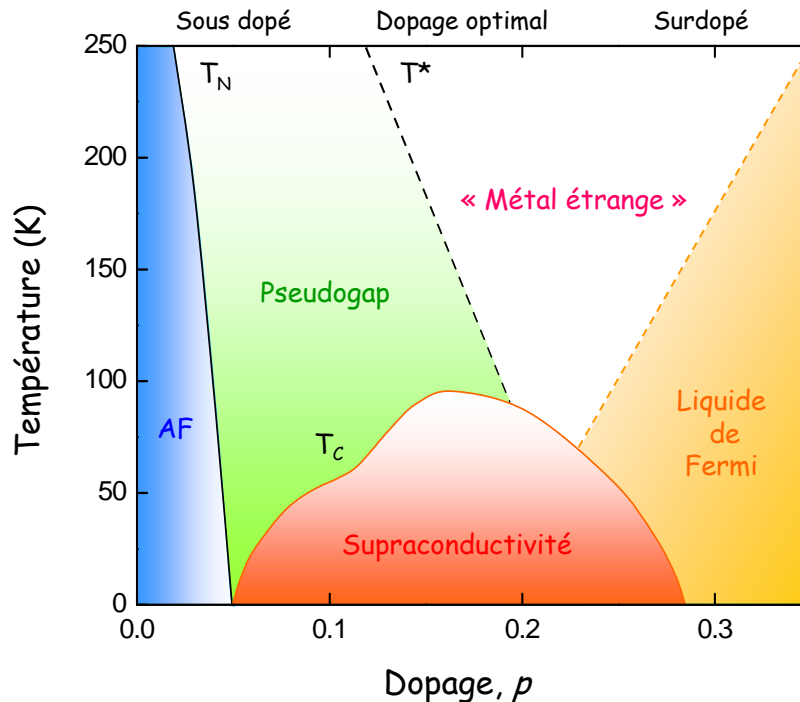


Figure 2.10 – Diagramme de phase générique des cuprates dopés aux trous. AF représente l'isolant de Mott antiferromagnétique,  $T_N$  la température de Néel,  $T^*$  la température de pseudogap et  $T_c$  la température critique.

Les propriétés physiques des cuprates évoluent dramatiquement avec le dopage, comme le montre le diagramme de phase de la figure 2.10.

Trois régimes sont définis en fonction du dopage :

- le régime *sous-dopé*, sous lequel  $T_c$  augmente avec le dopage,
- le *dopage optimal*, correspondant au régime où  $T_c$  est maximale ( $p \sim 0.16$ )
- le régime *surdopé*, sous lequel  $T_c$  diminue avec le dopage.

Les composés parents ( $p=0$ ) sont des isolants de Mott présentant un ordre antiferromagnétique (AF), caractérisé par une température de Néel  $T_N$  supérieure à 300K à dopage nul. En augmentant le dopage, on détruit cet ordre AF et on fait apparaître le dôme supraconducteur, caractérisé par la température critique  $T_c$ . Il semble maintenant bien établi que le régime surdopé est un liquide de Fermi, puisqu'on mesure une surface de Fermi bien définie [67, 68] et une résistivité en  $T^2$  [69]. En revanche, les régions au-dessus du dôme supraconducteur révèlent des propriétés très anormales. Des mesures de transport ou thermodynamiques montrent des anomalies dans le régime sous-dopé en dessous d'une température notée  $T^*$ . Pour  $T < T^*$ , une perte des excitations basse énergie est mesurée ; de ce fait, cette phase est appelée *pseudogap*. Il est important de noter que  $T^*$  est a priori un crossover, et non une transition de phase.

### 2.4.2.1 Isolant de Mott antiferromagnétique

Il est clairement admis que les composés parents des cuprates sont des isolants de Mott antiferromagnétiques. L'isolant de Mott a été introduit en 1949 [70] afin de décrire une situation où la théorie des bandes prévoit un comportement métallique alors que l'expérience montre un caractère isolant du matériau, dû à la forte répulsion Coulombienne entre les électrons (trous).

Dans le cas des cuprates, à dopage nul, chaque atome de Cuivre est dans la configuration électronique  $3d^9$  ( $\text{Cu}^{2+}$ ) et chaque atome d'Oxygène dans la configuration  $2p^6$  ( $\text{O}^{2-}$ ). Chaque atome de Cu porte un trou. Toutes les bandes sont remplies sauf la bande  $d_{x^2-y^2}$  du Cu, qui contient un électron ; on s'attend donc avoir un métal. Or, il n'en est rien. De plus, dès 1987, des mesures de susceptibilité magnétique [71], de diffraction de neutrons [72, 73, 74] ou de  $\mu$ -SR [75] ont confirmé l'existence d'un ordre AF dans l'état normal des composés parents des cuprates.

Dans le cas des métaux à bandes étroites, où une seule bande est partiellement remplie (ce qui est notre cas) et où le terme de répulsion Coulombienne entre deux électrons domine, le système est décrit par l'hamiltonien de Hubbard qui retranscrit les transitions métal-isolant :

$$H = -t \sum_{\langle ij \rangle \sigma} c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} \quad (2.16)$$

où  $t$  représente l'intégrale de saut entre deux sites plus proches voisins, correspondant à l'énergie cinétique d'un électron allant du site  $i$  à un site plus proche voisin  $j$ ,  $U$  la répulsion Coulombienne locale,  $c_{i\sigma}^{(\dagger)}$  est l'opérateur création (annihilation) d'un électron de spin  $\sigma$  au site  $i$ ,  $n_{i\uparrow(\downarrow)}$  le nombre d'électrons par site  $i$  de spin UP (DOWN) et  $n = \langle n_{i\uparrow} \rangle + \langle n_{i\downarrow} \rangle$  est le remplissage de la bande. Les deux termes d'énergie sont en compétition : le terme d'énergie cinétique favorise le mouvement des électrons alors que l'énergie d'interaction est minimale quand les électrons sont localisés. Dans le cas où il y a un électron par site ( $n = 1$ , demi-remplissage), on peut montrer dans l'approximation de champ moyen que l'état fondamental du modèle d'Hubbard est AF. L'isolant de Mott correspond au cas du demi-remplissage où  $U \gg t$ , c'est-à-dire que tous les porteurs de charge se localisent sur chaque site afin de réduire l'énergie Coulombienne. Ainsi, un site doublement occupé coûte une énergie  $U$  au système qui peut être vue comme l'énergie correspondant au transfert de charge  $\varepsilon_p - \varepsilon_d$  où  $\varepsilon_p$  est l'énergie de l'orbitale  $p$  de l'oxygène et  $\varepsilon_d$  celle de l'orbitale  $d$  du cuivre occupée par le trou de spin  $S = \frac{1}{2}$ .

Le dopage est généralement donné par  $\delta = (1-n)$ . Du fait de la grande valeur de  $U$ , lorsque l'on va doper un isolant de Mott AF, le trou va se placer sur l'orbitale  $p$  de l'oxygène et on se retrouve avec un modèle à trois bandes difficile à résoudre (une orbitale  $p$  d'énergie  $\varepsilon_p$  pour l'oxygène et deux sous bandes pour le cuivre d'énergie  $\varepsilon_d$  et  $\varepsilon_d + U$ ) où le trou va pouvoir sauter grâce à  $t$ . En fait, Zhang et Rice [76] ont proposé que le trou "injecté" se déplace sur les quatre atomes d'oxygène voisins d'un atome de cuivre et que le spin de ce trou combiné au spin de l'atome  $\text{Cu}^{2+}$  forment un singulet, appelé *singulet de Zhang et Rice*. De ce fait, partant d'un modèle à trois bandes, on se retrouve avec un modèle effectif à une bande.

Dans ce cas, le système peut être décrit, dans la limite de couplage fort  $U \gg t$ , par l'hamiltonien  $t - J$  (à l'ordre  $t^2/U$ ) :

$$H = -t \sum_{\langle ij \rangle} \mathcal{P} c_{i,\sigma}^\dagger c_{j,\sigma} \mathcal{P} + J \sum_{\langle ij \rangle, \sigma} (\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j - \frac{n_i n_j}{4}) \quad (2.17)$$

## 2. Les systèmes d'électrons fortement corrélés : un survol

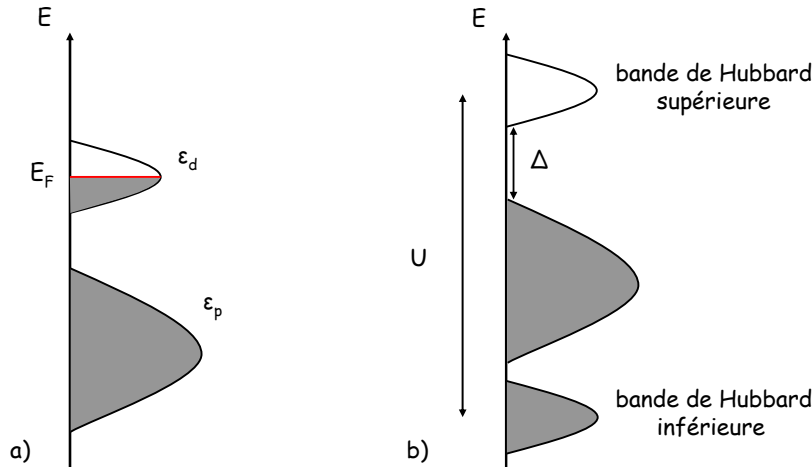


Figure 2.11 – Bandes d'énergie à demi remplissage. a) L'interaction coulombienne entre 2 électrons sur l'orbitale  $d$  du cuivre n'est pas prise en compte et on s'attend à un comportement métallique. b) Si on prend en compte l'interaction coulombienne  $U \gg t$ , la bande provenant de l'orbitale  $d$  du cuivre se divise en une bande de Hubbard supérieure et une bande de Hubbard inférieure. On a alors un isolant de transfert de charge avec un gap  $\Delta$  si  $U > \Delta$  (cas des cuprates), où les charges sont localisées par la répulsion Coulombienne. Lorsque la bande inférieure n'est pas complètement remplie, le système peut être décrit par l'hamiltonien  $t - J$ , qui décrit les interactions dans la bande inférieure.

où  $\mathcal{P}$  est le projecteur de Gutzwiller qui sert à défavoriser les sites doublement occupés,  $J$  la constante d'échange antiferromagnétique et les  $\mathbf{S}_i$  sont donnés par

$$\mathbf{S}_i = \frac{1}{2} \sum_{\alpha, \beta} c_{i, \alpha}^\dagger \boldsymbol{\sigma}_{\alpha, \beta} c_{i, \beta} \quad (2.18)$$

où les  $\boldsymbol{\sigma}$  sont les matrices de Pauli. A faible dopage, les termes d'ordre supérieurs sont "traditionnellement" négligés.

Dans le cadre de la théorie d'Anderson, un processus d'échange implique un processus virtuel de double occupation sur un site intermédiaire (ici l'atome O) et conduit à une interaction de superéchange AF entre les spins des atomes de Cu, notée  $J$  et valant  $J \sim \frac{4t^2}{U}$ . Alors que la température de Néel mesurée vaut  $T_N \simeq 300$  K pour  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  et  $T_N \simeq 500$  K pour le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ , l'énergie d'échange vaut  $J \simeq 1500$  K, impliquant que des corrélations AF sont présentes bien au dessus de  $T_N$ . Ce modèle a un réel intérêt pour les théoriciens car il limite la taille de l'espace de Hilbert et prend en compte les processus de haute énergie comme le magnétisme.

### 2.4.2.2 L'état supraconducteur

Comme on peut le voir sur la figure 2.10, l'état AF est rapidement détruit pour un dopage de l'ordre de  $p \sim 0.03$  et le dôme supraconducteur s'étend entre les dopages  $p \sim 0.05$  et  $p \sim 0.26$ . Un moyen empirique de convertir une température critique en dopage est d'utiliser la relation de Tallon [77] :

$$\frac{T_c}{T_{c, \max}} = 1 - 82.6(p - 0.16)^2 \quad (2.19)$$



où  $T_{c,max}$  est la température critique maximale obtenue au dopage optimal, valant  $T_c \simeq 40$  K pour la famille LSCO et  $T_c \simeq 93$  K pour la famille YBCO. Cette relation est plutôt bien vérifiée dans la plupart des cuprates, comme on peut le voir sur la figure 2.12. Toutefois, les données de YBCO ne sont pas bon accord avec cette relation autour de  $p \sim 0.12$  et il faut alors utiliser les valeurs déterminées à partir de la formule 4.1.

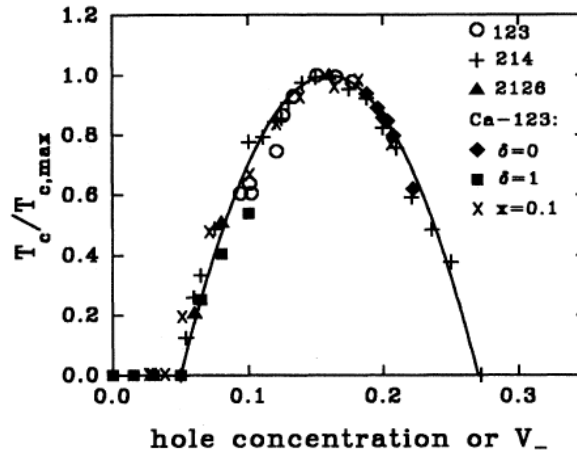


Figure 2.12 – Température critique  $T_c$  renormalisée par la température critique maximale  $T_{c,max}$  correspondant au dopage optimal pour plusieurs cuprates à différents dopages. La ligne solide est l'équation 2.12 [78].

Nous avons déjà évoqué le fait que la supraconductivité dans les cuprates est non-conventionnelle. Nous allons dans ce qui suit passer en revue quelques faits expérimentaux concernant la nature exotique du paramètre d'ordre observés dans ces composés. Nous présentons également les deux scénarios évoqués concernant la nature du mécanisme d'appariement des paires de Cooper, dont l'origine fait toujours débat dans la communauté.

#### 2.4.2.2.1 Le gap supraconducteur

Un premier aspect a été de vérifier que l'état supraconducteur est constitué de paires d'électrons, comme dans le cas BCS. Ceci a été démontré par des mesures de flux magnétique par magnétométrie SQUID (*Superconducting Quantum Interference Device*) dans un cristal  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  [79]. Ces mesures ont montré que le flux magnétique  $\phi$  à travers l'échantillon est quantifié en multiples de  $\phi_0 = \frac{h}{2e}$ , impliquant que la charge des porteurs dans l'état supraconducteur est celle de paires d'électrons ( $2e$ ). Dans ces expériences, il a également été observée l'existence d'une cohérence de phase à longue distance de la fonction d'onde des paires. Par analogie avec la théorie BCS, ces paires sont appelées *paires de Cooper*, bien que le mécanisme d'appariement des électrons ne soit pas encore identifié.

Un autre aspect de la non conventionnalité de la supraconductivité des cuprates concerne la densité superfluide. Des mesures de  $\mu\text{SR}$  effectuées par Uemura *et al* ont montré que la température critique est proportionnelle à la densité superfluide, mais que cette dernière est très faible comparée aux supraconducteurs BCS [80]. Ce résultat suggère que seul un faible nombre d'électrons participent au condensat, renforçant l'idée d'une supraconductivité exotique.

## 2. Les systèmes d'électrons fortement corrélés : un survol

Le paramètre d'ordre est défini par une amplitude  $\Delta$  et une phase  $\phi$  :

$$\Delta = |\Delta| e^{i\phi} \quad (2.20)$$

Nous allons voir que la symétrie de ce paramètre d'ordre est différente de celle du paramètre d'ordre BCS.

Il a été très tôt postulé que l'origine du couplage entre les électrons ne provenait pas de l'interaction électron-phonon, mais plutôt des fluctuations magnétiques dans l'état normal [81, 82, 83] suggérant alors un gap supraconducteur de symétrie  $d$ . Cela doit alors se traduire par la présence de nœuds dans le gap d'énergie au niveau de Fermi, et donc de quasiparticules bien définies. Dans ce cas, le gap prend la forme suivante :

$$\Delta = \Delta_0(\cos k_x a - \cos k_y a) = \Delta_0 \cos \phi \quad (2.21)$$

où  $k_x$  et  $k_y$  sont les vecteurs du réseau réciproque dans les directions  $x$  et  $y$  et  $a$  est le paramètre de maille. L'allure d'un tel gap est représenté sur la figure 2.7, en comparaison avec le gap BCS de symétrie  $s$ .

Plusieurs faits expérimentaux ont prouvé la symétrie  $d$  du gap supraconducteur des cuprates. Tout d'abord les mesures de la dépendance en température de la longueur de pénétration (ou longueur de London)  $\lambda(T)$ . En mesurant  $\lambda(T)$  dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.95}$ , W.N. Hardy *et al* ont observé une dépendance linéaire en température de  $\lambda$ , comportement attendu dans le cas d'un gap de symétrie  $d$  [84] (formule 2.15). Cette dépendance en température est à comparer avec le cas BCS, où une dépendance exponentielle est attendue et observée. Toutefois, ces mesures ne font que rapporter l'existence de nœuds dans le gap supraconducteur mais ne confirment pas la symétrie  $d$ . La présence de nœuds pouvant également être expliquée par un gap  $s$  anisotrope ou un gap constitué d'un mélange de symétries  $s$  et  $d$ , noté  $s + id$ .

L'une des expériences qui a permis de déterminer directement la symétrie du gap est celle de D.A. Wollman *et al* [85]. Cette expérience consiste à mesurer la dépendance, en fonction du champ magnétique, du courant critique  $I_c$  à travers une jonction tunnel Josephson avec un magnétomètre à SQUID entre un cristal d' $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.8}$  et un film mince de Pb, un supraconducteur conventionnel. Les jonctions sont placées sur les faces **a** et **b** du cristal d'YBCO. Le courant critique s'écrit :

$$I_c = 2I_0 \left| \cos \left( \frac{\pi \phi_{ext}}{\phi_0} + \delta_{ab} \right) \right| \quad (2.22)$$

où  $\phi_{ext}$  est le flux magnétique du au champ extérieur,  $\phi_0$  est le quantum de flux et  $\delta_{ab}$  est le phase shift du paramètre d'ordre intrinsèque du cristal entre l'axe **a** et l'axe **b**. La valeur de ce phase shift nous renseigne directement sur la symétrie du gap ; en effet, les auteurs ont rapporté un phase shift  $\delta_{ab} \simeq \pi$ , qui correspond à ce qui est attendu dans le cas d'une symétrie  $d_{x^2-y^2}$ . Dans le cas d'une symétrie  $s$ , le phase shift attendu est  $\delta_{ab} = 0$  et dans le cas d'une symétrie  $s + id$ ,  $\delta_{ab} = \frac{\pi}{2}$ .

Ces résultats ont été confirmés peu de temps après par une mesure dite de *magnétométrie tricristal* [86]. Cette expérience consiste à déposer un film mince de cuprate épitaxié (YBCO) sur un substrat tricristal(100)  $\text{SrTiO}_3$ . Ce substrat est réalisé de telle manière que si le cuprate placé au centre a une symétrie  $d_{x^2-y^2}$ , un demi quantum de flux doit être observé par magnétométrie SQUID à la jonction Josephson entre les trois cristaux de  $\text{SrTiO}_3$ . Cependant, des doutes ont été émis du fait que YBCO est orthorombique et que dans cette struc-

ture cristalline, des gaps de symétrie  $s$  et  $d$  possèdent la même représentation. Ces doutes ont été balayés quand cette même expérience a été reproduite dans le cristal tétragonal Tl-2201 [87].

La dépendance de l'amplitude du gap  $\Delta_0$  avec le dopage est également non conventionnelle. Les résultats obtenus par J.M. Harris *et al* sont présentés sur la figure 2.13 [88]. L'amplitude du gap  $\Delta_0$ , obtenu en ARPES, est tracée en fonction du dopage. On observe que  $\Delta_0$  diminue avec le dopage, et donc avec  $T_c$  du côté sous-dopé, alors que dans le cas BCS,  $\Delta_0$  est proportionnel à  $T_c$  ( $\frac{2\Delta_0}{k_B T_c} = const$ ).

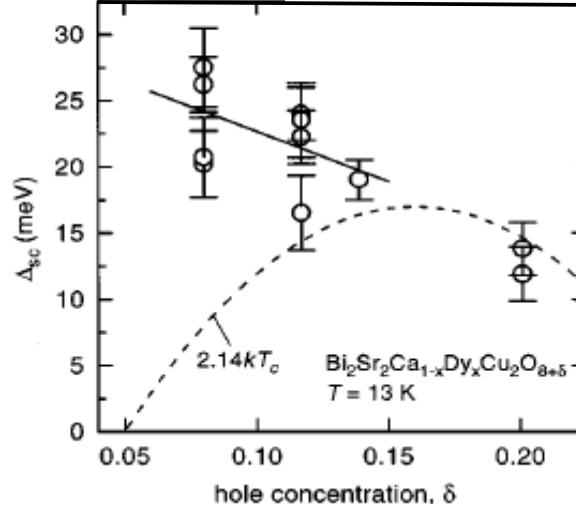


Figure 2.13 – Variation de l'amplitude du gap supraconducteur  $\Delta_0$  en fonction de  $T_c$  [88]. On observe que  $\Delta_0$  diminue avec le dopage. La ligne en pointillé est la prédiction standard dans le cas d'une supraconductivité BCS avec un gap de symétrie  $d$ ,  $\Delta_0 = 2.14k_B T_c$ .

En 1993, Z.X. Shen *et al* ont reporté l'observation de nœuds dans le gap supraconducteur [89] dans des mesures d'ARPES dans le composé  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ , le gap étant maximum dans les directions des liaisons Cu-O ( $0,\pi$ ) et minimum dans les directions diagonales à ces chaînes ( $\pi,\pi$ ). Ces résultats sont en accord avec ce qui est attendu pour un supraconducteur ayant un paramètre d'ordre de symétrie  $d_{x^2-y^2}$  et ont été confirmé peu de temps après par Ding *et al.* [90] (figure 2.14).

Il est donc aujourd'hui clair que le gap supraconducteur des cuprates possède une symétrie  $d_{x^2-y^2}$ , comme représenté sur la figure 2.7. Le gap  $d_{x^2-y^2}$  est défini par un changement de signe tous les  $\frac{\pi}{2}$  autour de la surface de Fermi. L'amplitude du gap est maximum le long des liaisons Cu-O ( $\pi,0$ ) (appelées régions antinodales) et nul dans les directions diagonales à ces liaisons ( $\pi,\pi$ ) (appelées régions nodales). Cela implique la possibilité d'avoir des excitations de quasiparticules dans les régions non gappées.

#### 2.4.2.2 Le mécanisme d'appariement

Depuis leur découverte, d'énormes efforts tant expérimentaux que théoriques ont été réalisés pour comprendre la supraconductivité à haute température critique. Nous avons par exemple vu que la supraconductivité de type  $d$  implique, comme la supraconductivité conventionnelle, la création de paires de Cooper. Trouver le mécanisme d'appariement des électrons constitue l'un des enjeux majeurs de la compréhension de la supraconductivité à

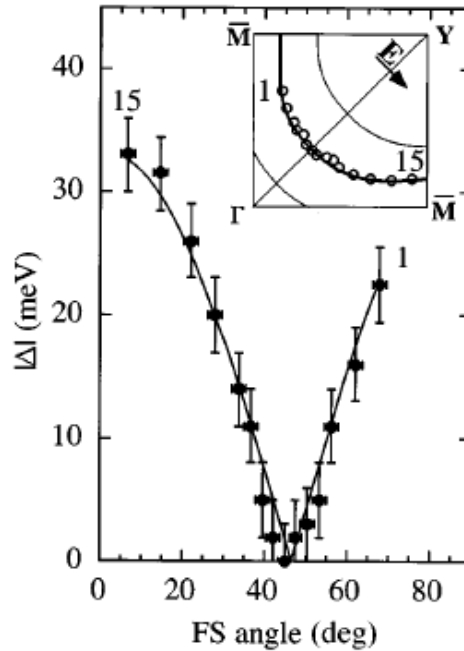


Figure 2.14 – Dépendance angulaire du gap supraconducteur. Le trait plein correspond à un ajustement avec un gap de symétrie  $d$ . D'après [90].

haute température critique. Deux scénarios sont aujourd'hui proposés : les phonons et les interactions magnétiques.

Le premier scénario est par exemple supporté par des mesures d'ARPES effectuées dans LSCO et Bi-2212 sous-dopés, optimalement dopés et surdopés [91]. Les spectres de dispersion des quasiparticules  $E(k)$  montrent des déviations (*kinks*) rapides à un certain  $k$  suivant la direction nodale. Ces déviations présentent un intérêt particulier car elle peuvent impliquer que, dans les gammes d'énergies mesurées, les quasiparticules sont fortement liées à un mode bosonique qui correspondrait au boson responsable de l'appariement. De plus, un changement rapide de la vitesse des électrons et du taux de diffusion reporté par [91] est attribué à un couplage électron-phonon. Cette idée est supportée par des mesures d'ARPES, qui montrent que la structure électronique et le gap supraconducteur sont affectés par une substitution isotope. Cet effet isotope, impliquant un mécanisme phononique, est également supportée par des mesures de microscopie à effet tunnel [92]. Cependant, ces résultats sont controversés. Il est suggéré que les effets observés seraient en réalité dus à des effets de tunnelling inélastiques car les oxygènes sondés seraient les oxygènes apicaux et non ceux des plans  $\text{CuO}_2$  [93]. Cependant, les interactions électron-phonon n'expliquent pas d'autres propriétés observées dans les cuprates, comme la résistivité linéaire sur une large gamme de température au dopage optimal [94] ou encore l'origine de la symétrie  $d$  du paramètre d'ordre.

Les mesures d'ARPES ne permettent pas de différencier entre un couplage au réseau ou aux excitations de spins. Cependant, le même type de résultats, c'est-à-dire l'observation d'un *kink* dans le spectre de dispersion dans la direction nodale, est interprété en terme de couplage aux excitations collectives de spins [95, 96], qui seraient ainsi responsables du mécanisme d'appariement. Ce scénario est soutenu par des mesures de diffusion inélastiques de neutrons dans le composé  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  sous-dopé et au dopage optimal [97, 98]. Les

excitations collectives de spins présentent deux composantes : une à basse énergie  $\sim 20$  meV et une à haute énergie  $\sim 50$  meV. En analogie avec les mesures d'ARPES et de spectroscopie tunnel, il est suggéré que les excitations haute énergie sont celles qui affectent le plus les quasiparticules et que le couplage des quasiparticules dans les SHTC serait d'origine magnétique.

En résumé, bien qu'aucun processus à l'origine du mécanisme d'appariement ne soit clairement identifié, ces deux scénarios sont les plus probables à ce jour.

### 2.4.2.3 Le métal étrange

Les mesures de transport dans la région située au dessus du dopage optimal présente des dépendances en température anormales. De ce fait, cette région est communément appelée *métal étrange* ou *région non-liquide de Fermi*. Par exemple, la résistivité  $\rho_{ab}$  dans les plans  $\text{CuO}_2$  est linéaire en température autour du dopage optimal [94]. Un fait surprenant est que celle-ci continue à croître linéairement avec la température jusqu'à  $\sim 1000$  K bien au dessus de la limite Mott-Ioffe-Regel, qui prévoit que dans le cas d'un métal normal, quand le libre parcours moyen est inférieur à la distance interatomique, la résistivité doit saturer. L'effet Hall  $R_H$  a également une dépendance en température anormale, puisque dans un métal classique il est indépendant de la température, alors que dans l'état normal des cuprates on observe un comportement  $R_H \sim 1/T$  à haute température et  $R_H \sim T$  à basse température [99, 100]. Il a aussi été observée une légère déviation de la loi de Wiedemann-Franz, caractéristique d'un liquide de Fermi, dans le composé Bi-2201 optimalement dopé [101]. Pour finir, un comportement anormal est également observé dans la conductivité infrarouge  $\sigma(\omega)$ , qui adopte un comportement en fréquence contraire à un métal conventionnel (Drude) [102], ou dans le continuum Raman électronique.

Ces observations contradictoires avec un comportement liquide de Fermi (LF) ont conduit C.M. Varma *et al.* à proposer que cette région du diagramme de phase est décrite par un modèle de *liquide de Fermi marginal* (LFM) [103]. La motivation de cette description est de rendre compte des propriétés anormales observées au dopage optimal comme la linéarité de la résistivité électrique. L'idée de base de ce modèle est que les électrons interagissent avec un spectre d'excitations bosoniques dont la seule échelle d'énergie est la température. Afin de visualiser la "marginalité" de ce liquide de Fermi, on peut comparer les self-énergies d'un LF et d'un LFM :

$$\Sigma_{FL}(\omega) = \alpha\omega + i\beta[\omega^2 + (\pi k_B T)^2] \quad (2.23)$$

$$\Sigma_{LFM}(\omega) = \lambda \left[ \omega \ln \frac{x}{\omega_c} - i \frac{\pi}{2} x \right] \quad (2.24)$$

où  $x = \max(|\omega|, T)$ ,  $\omega_c$  est un fréquence de coupure et  $\lambda$  une constante de couplage. A  $T = 0$ , les quasiparticules d'un LF sont bien définies car  $\Sigma''(\omega)/\Sigma'(\omega)$  est nul quand  $\omega \rightarrow 0$  et que le pôle  $\mathbf{Z}_k$  est fini à  $\mathbf{k}=\mathbf{k}_F$ . Au contraire, dans un LFM, il n'y a pas de quasiparticules bien définies car  $\Sigma''(\omega)/\Sigma'(\omega) \propto 1/\ln \omega$  et  $\mathbf{Z}_k$  s'annule comme  $1/\ln \omega$  à la surface de Fermi. A partir de l'équation 2.24, le calcul de la conductivité longitudinale conduit à une dépendance linéaire en température de la résistivité. Enfin, il faut noter que le comportement des lois d'échelles des excitations basse énergie du modèle LFM sont caractéristiques de fluctuations associées à un point critique quantique quand  $T \rightarrow 0$ .

Le fait que les quasiparticules ne soient pas bien définies est renforcé par les mesures d'ARPES, qui ne montrent pas de pic de quasiparticules bien défini [104] (voir figure 2.15). Malgré tout, la dérivée par rapport à  $\mathbf{k}$  de la densité d'états est discontinue, permettant de

## 2. Les systèmes d'électrons fortement corrélés : un survol

définir une surface de Fermi.

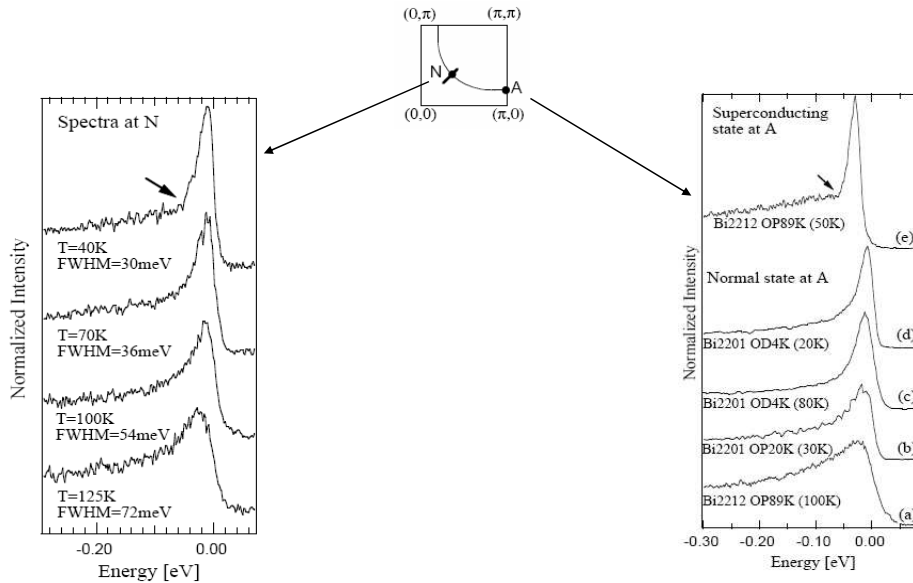


Figure 2.15 – *A gauche* : Evolution en température des spectres ARPES au point nodal N de la zone de Brillouin de Bi-2212 optimalement dopé ( $T_c=89$  K). Alors que le pic de quasiparticules observé dans l'état supraconducteur est étroit, il devient large dans l'état normal. *A droite* : Spectres ARPES au point antinodal A de la zone de Brillouin pour des composés surdopé (OD) et au dopage optimal (OP). D'après l'allure du spectre de Bi2212 optimalement dopé ( $T_c=89$  K) à 100 K, il n'apparaît pas de quasiparticules dans l'état normal. En revanche, ce pic est présent dans l'état supraconducteur ( $T=50$  K). Les spectres des composés surdopés Bi-2201 ( $T_c=4$  K) montrent un pic de quasiparticules bien définis quelque soit la température. D'après [104]

### 2.4.2.4 L'état surdopé

Il est maintenant globalement admis que la région surdopée du diagramme de phase des cuprates est un liquide de Fermi. En effet, on retrouve les différents comportements attendus dans cette théorie dans les propriétés de transport, comme par exemple un coefficient de Sommerfeld  $\gamma(T)$  indépendant de la température [105] ou la vérification de la loi de Wiedemann-Franz [106]. La résistivité dans le plan  $\rho_{ab}(T)$  a un comportement parfaitement quadratique dans le régime très surdopé. Par exemple, dans le composé non-supraconducteur  $\text{La}_{1.7}\text{Sr}_{0.3}\text{CuO}_4$ , la résistivité à champ nul est  $\sim T^2$  jusqu'à 55K [107] (figure 2.16). Cependant, pour les composés supraconducteurs surdopés,  $\rho_{ab}$  contient une contribution sur-linéaire et la résistivité semble plutôt s'écrire soit comme  $\rho_{ab}(T) \sim \alpha T + \beta T^2$ , soit comme  $\rho_{ab}(T) \sim \alpha T^n$ , où  $n$  varie de 1 à 2 du dopage optimal au régime très surdopé [108, 109]. A plus haute température,  $\rho_{ab}(T)$  redevient linéaire au dessus d'une température de crossover qui coïncide, d'après la communauté de l'ARPES, avec la perte de cohérence du pic de quasiparticules [110].

#### 2.4.2.4.1 Relation de dispersion :

De ce fait, l'état isolant de Mott n'a visiblement que peu d'influence sur le régime surdopé et l'interaction coulombienne est suffisamment écrantée pour que les concepts habituels du liquide de Fermi soient appliqués. On peut donc supposer que le concept même de quasiparticules avec un temps de vie fini a un sens. Ainsi, les notions de structure de bande et de surface de Fermi également. Nous avons brièvement présenté dans le chapitre 1 les bases du calcul de la structure électronique à l'aide du modèle des liaisons fortes. Il s'avère que dans le cas des cuprates, ce modèle donne de bons résultats, simplement en considérant l'orbitale  $d_{x^2-y^2}$  des cuivres et les orbitales  $p_x$  et  $p_y$  des oxygènes des plans  $\text{CuO}_2$ . La relation de dispersion résultante est paramétrisée par des coefficients de sauts, caractérisant la possibilité d'un électron de sauter d'un atome à un autre :

$$\varepsilon(k) = -2t(\cos k_x + \cos k_y) - 4t' \cos k_x \cos k_y - 2t''(\cos 2k_x + \cos 2k_y) + \dots \quad (2.25)$$

+ (termes de sauts inter-plans)

où les paramètres  $t, t', t'', \dots$  représentent les intégrales de sauts dans un réseau carré, qui ne peuvent pas toujours être déterminés précisément, en particulier dans le régime sous-dopé. Les termes de sauts inter-plans  $t_\perp$  sont à prendre en compte lorsque plusieurs plans  $\text{CuO}_2$  sont présents dans la maille élémentaire. Il y a alors une hybridation entre les plans résultant en un mouvement cohérent des électrons suivant l'axe  $c$  qui sautent entre les orbitales  $p$  des deux plans de la maille et dont la conséquence est de séparer la bande en une bande liante "inférieure" et une bande antiliante "supérieure" (dans le cas des composés biplans). C'est le phénomène de *bilayer splitting*.

#### 2.4.2.4.2 Surface de Fermi :

Les structures de bandes peuvent ainsi être calculées grâce à la théorie de la fonctionnelle de la densité basée sur l'approximation LDA. Dans le cas des cuprates, la relation de dispersion peut être considérée comme bidimensionnelle. La surface de Fermi est donc définie par le contour d'énergie constante.

Il s'avère que dans le régime surdopé, les calculs de structure de bandes sont en excellent accord avec la surface de Fermi observée expérimentalement [104, 111]. Celle-ci est cohérente et caractérisée par des quasiparticules bien définies. Par exemple, la surface de Fermi du composé Tl-2201 ( $T_c=30\text{K}$ ,  $p \sim 0.26$ ) a été observée par M. Platé *et al* [68] à partir des spectres d'ARPES obtenus à  $T=10\text{K}$ . Cette surface de Fermi consiste en une grosse poche de trous (elle enferme des états inoccupés) 2D centrée en  $X (\pi, \pi)$  et occupant 63% de la première zone de Brillouin (figure 2.17). L'observation d'une surface de Fermi cohérente, mais à 3 dimensions, avait été faite peu de temps avant dans le même composé (à un dopage légèrement différent  $p \sim 0.24$ ) par N.E. Hussey *et al* [67] par des mesures d'AMRO (Angular Magnetoresistance Oscillations Measurements)<sup>2</sup>.

#### 2.4.2.5 L'état pseudogap

Les mesures thermodynamiques ou de transport dans l'état pseudogap montrent des comportements très différents de ceux observés dans les autres régions du diagramme de phase. Les anomalies reportées par les expériences apparaissent en dessous d'une température notée  $T^* > T_c$  qui diminue quand le dopage augmente. Cependant, la détermination de cette

2. Nous mentionnons dans la suite de cette thèse les récents résultats obtenus par B. Vignolle *et al*, concernant l'observation d'oscillations quantiques (SdH et dHvA) dans Tl-2201 [112].

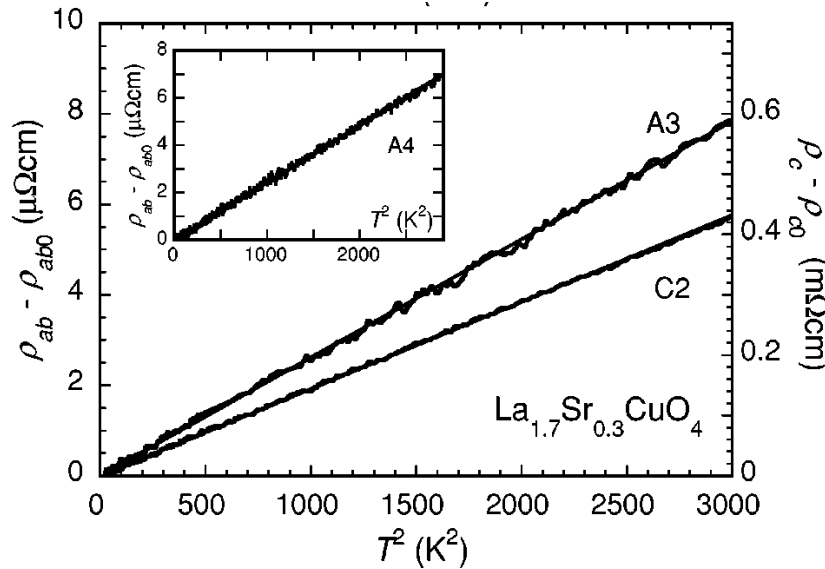


Figure 2.16 – Comportement quadratique de la résistivité  $\rho_{ab} - \rho_{ab}(T=0)$  dans  $\text{La}_{1.7}\text{Sr}_{0.3}\text{CuO}_4$ , caractéristique d'un liquide de Fermi, de 95mK à 55K. [107].

température n'est pas évidente car elle dépend de la sonde utilisée. Nous verrons d'ailleurs que la région où la ligne  $T^*$  approche le dôme supraconducteur fait encore débat dans la communauté. La principale propriété de la phase sous-dopée des cuprates est l'ouverture d'un gap partiel (d'où le terme employé de *pseudogap*) dans les excitations de spins. Il est important de noter que  $T^*$  ne représente pas une transition de phase, mais plutôt un crossover, c'est-à-dire un changement continu d'une phase à une autre.

Nous allons dans ce qui suit passer en revue quelques résultats expérimentaux qui ont permis de mettre en évidence les anomalies de la phase sous-dopée, interprétée comme l'ouverture d'un *pseudogap* dans le spectre des excitations de basse énergie.

### 2.4.2.5.1 Mesures de résonance magnétique nucléaire :

Les premières expériences ont mis en évidence l'existence de la phase pseudogap sont des mesures de résonance magnétique nucléaire, qui sondent les excitations de spins. La première mesure de  $(T_1T)^{-1}$  (proportionnel à la susceptibilité au vecteur d'onde AF  $Q_{AF} = (\pi, \pi)$ ) des cuivres des plans  $^{63}\text{Cu}$  d'un composé YBCO sous-dopé [113] a montré que la susceptibilité  $\chi(T)$  atteint un maximum à une température  $T^* > T_c$  (figure 2.18) et chute ensuite rapidement. Cette observation supporte l'idée de l'ouverture d'un gap de spins au dessus de  $T_c$  dans la phase sous-dopée. En effet, dans un métal normal,  $(T_1T)^{-1}$  est indépendant de la température (comportement dit de Korringa). Les mesures de Knight-shift  $K_s$  (proportionnel à la partie réelle de la susceptibilité  $\chi'(q=0, \omega)$ ) qui sondent la polarisation des électrons sous l'effet d'un champ magnétique, ont également mis en évidence le pseudogap [114]. La susceptibilité est quasiment indépendante de la température entre 700K et 300K, comme dans un métal ordinaire, mais décroît fortement en dessous de 300K et à  $T_c$  et finalement 80% de la susceptibilité des spins est perdue.

On peut noter que la température de crossover n'est pas la même pour la susceptibilité dynamique mesurée en  $q=0$  et pour la susceptibilité dynamique mesurée en  $q=Q_{AF}$ .



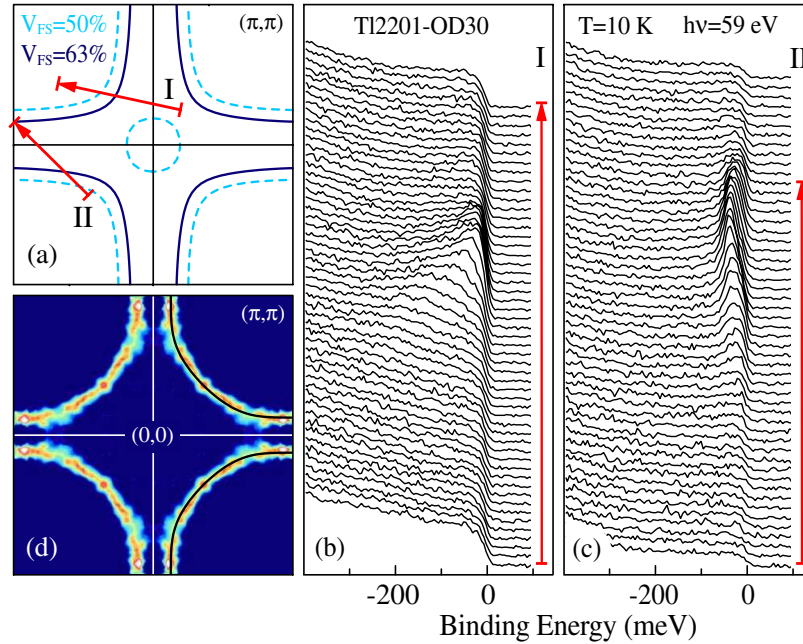


Figure 2.17 – Les spectres ARPES obtenus dans le composé Tl2201 surdopé ( $T_c=30\text{K}$ ) présentent des pics étroits au niveau de Fermi, impliquant l’existence de quasiparticules bien définies dans la région surdopée du diagramme de phase. La surface de Fermi de Tl2201 reconstruite (d) à partir des spectres d’ARPES (b et c) consiste en une poche de trous centrée en  $X$  ( $\pi,\pi$ ) occupant 63% de la première zone de Brillouin [68]. Celle-ci est en excellent accord avec les calculs de structure de bande LDA (a) et avec la surface de Fermi obtenue en AMRO [67].

Ceci a entraîné les différents auteurs à suggérer qu’il existe deux températures de crossover :  $T^0 > T^*$  associée à un phénomène affectant la densité d’états et  $T^*$ , résultant de l’ouverture d’un gap dans les excitations AF [115].

#### 2.4.2.5.2 Mesures de diffusion inélastique de neutrons :

En complémentarité des mesures RMN, les mesures de diffusion inélastiques de neutrons permettent l’étude du spectre des excitations magnétiques en fonction de l’énergie et pour n’importe quel vecteur de l’espace réciproque. En particulier, les mesures effectuées dans le composé YBCO proche du dopage optimal ( $x > 0.95$ ) montre l’existence, *uniquement* dans l’état supraconducteur, d’une excitation antiferromagnétique définie par un pic de résonance magnétique autour du vecteur d’onde antiferromagnétique  $\mathbf{Q}_{\text{AF}} = (\pi, \pi)$  d’énergie de résonance  $E_r \sim 40 \text{ meV}$  [116]. Ce pic a ensuite été observé dans Bi-2212 [117] et Tl-2201 [118] et semble donc être une propriété universelle des cuprates. De manière générale, il est observé que l’énergie de résonance vaut  $E_r \sim 5k_B T_c$ .

Une autre universalité des cuprates est observée dans la dispersion des excitations magnétiques [119, 120, 121, 122, 123]. Celles-ci ont une forte dispersion en énergie : à basse énergie les excitations sont incommensurées en  $\mathbf{Q} = (\pi(1 + \delta), \pi)$  et présentent une dispersion vers  $\mathbf{Q}_{\text{AF}}$  en augmentant l’énergie. Le paramètre d’incommensurabilité  $\delta$  représente le déplacement de la diffusion magnétique par rapport à  $\mathbf{Q}_{\text{AF}}$  et est proportionnel au dopage

## 2. Les systèmes d'électrons fortement corrélés : un survol

jusqu'au dopage optimal [121].

De façon générale, on peut noter que :

- un gap de spin se développe pour  $T < T_c$ .
- concernant le pseudogap, il est observé que la diffusion magnétique présente un maximum en  $\mathbf{Q}_{AF}$  pour  $E = 10$  meV à une température correspondant au pseudogap comme présenté en figure 2.18c.

Ces observations suggèrent que les excitations magnétiques ont un lien très proche avec le mécanisme d'appariement dans les supraconducteurs à haute température critique.

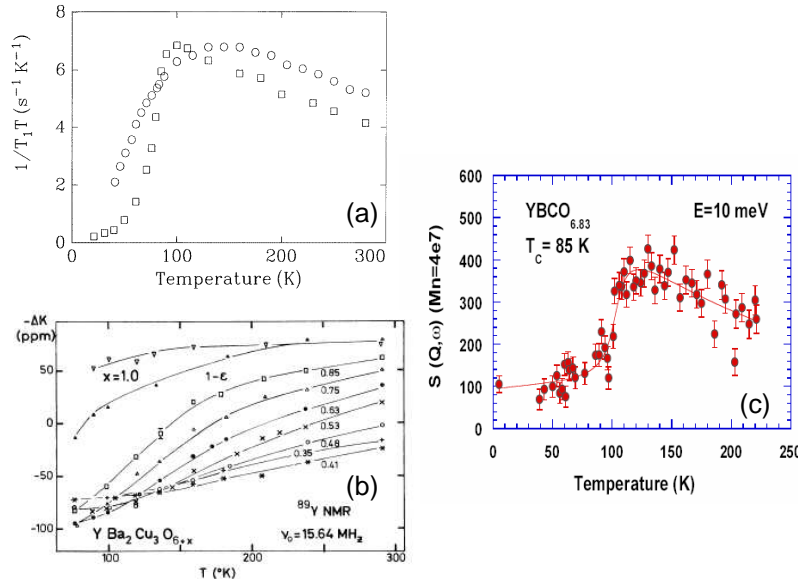


Figure 2.18 – (a) Mesures de  ${}^{63}\text{T}_1\text{T}^{-1}$  de  ${}^{63}\text{Cu}$  en fonction de la température pour YBCO optimalement dopé (carrés) et YBCO sous-dopé (ronds). Pour le composé optimalement dopé, le maximum de  ${}^{63}\text{T}_1\text{T}^{-1}$  est à  $T_c$  (conséquence de l'appariement des électrons) alors que pour le composé sous-dopé le maximum est vers  $130\text{K} > T_c$ . D'après [115]. (b) Knight-shift de YBCO pour plusieurs valeurs de dopages [114]. (c) Dépendance en température du signal magnétique mesuré par diffusion inélastique de neutrons dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.83}$  pour  $\hbar\omega = 10\text{meV}$ . D'après [124]

### 2.4.2.5.3 Mesures de spectroscopie tunnel :

La spectroscopie tunnel est l'une des méthodes les plus adaptées pour sonder la densité d'états électroniques proche du niveau de Fermi. Cependant, en raison de la faible longueur de cohérence des cuprates, cette mesure est rendue difficile et nécessite des surfaces de grande qualité. Ces expériences sont réalisées soit par microscopie à effet tunnel, soit par jonction tunnel. La figure 2.19 présente les spectres de la conductance tunnel  $dI/dV$  obtenus par microscopie à effet tunnel dans des cristaux de Bi-2212 sous-dopés ( $T_c=83\text{K}$ ). En dessous de  $T_c$ , les spectres présentent deux pics de part et d'autre du niveau de Fermi ( $V_{\text{sample}}=0\text{mV}$ ), l'écart entre ces pics définissant le gap. Ce comportement est caractéristique

3. La conductance tunnel  $dI(V)/dV$  est proportionnelle à la densité d'états électroniques locale à la surface de l'échantillon.

d'un supraconducteur conventionnel. Cependant, on constate que même après la disparition des pics à  $T_c$ , un gap persiste jusqu'à des températures proches de la température ambiante, attribué par les auteurs au pseudogap. On remarque également que contrairement au cas BCS, l'amplitude du gap en dessous de  $T_c$  est indépendante de la température mais une étude de l'amplitude du gap en fonction du dopage révèle que celle-ci diminue quand le dopage augmente [125].

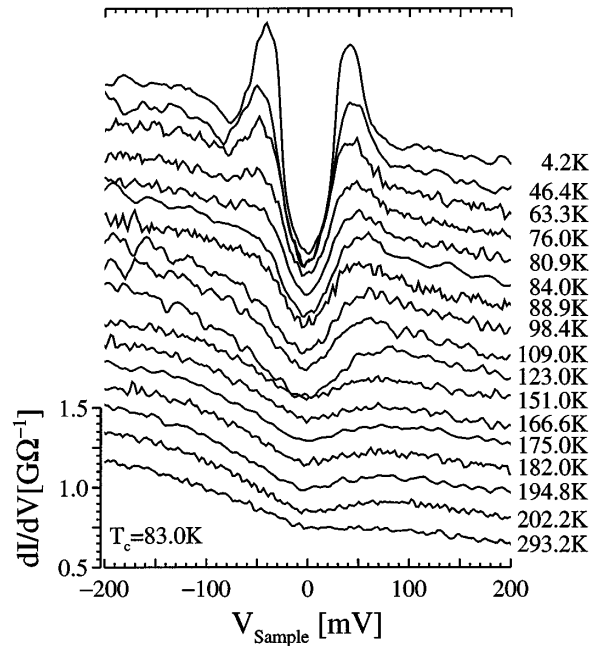


Figure 2.19 – Conductance tunnel dans le composé sous-dopé Bi2212, d'après [125]. Le gap supraconducteur, correspondant à l'écart entre les deux pics, est ouvert au niveau de Fermi et ne semble pas dépendre de la température. Un gap dans la densité d'états subsiste dans l'état normal et est attribué à l'existence d'un pseudogap.

## 2. Les systèmes d'électrons fortement corrélés : un survol

### 2.4.2.5.4 Les mesures de transport :

Nous avons déjà évoqué les comportements particuliers de la résistivité  $\rho_{ab}$  en fonction du dopage ; dans l'état sous-dopé, on observe une déviation à la linéarité vers une température  $T^*$ , comparable à la température de pseudogap observé en RMN. Cette anomalie est illustrée figure 2.20 où la diminution de la résistivité à  $T^*$  est attribuée à la diminution des diffusions par les spins du fait de l'ouverture d'un gap dans ces mêmes excitations.

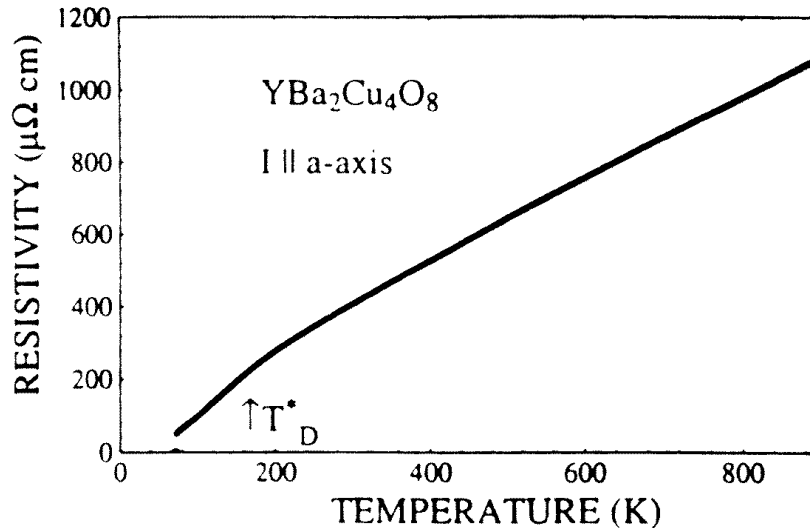


Figure 2.20 – Déviation du comportement linéaire de la résistivité dans YBa<sub>2</sub>Cu<sub>4</sub>O<sub>8</sub> (sous-dopé) vers 200K attribuée à la formation du pseudogap [126].

L'évolution de la température de pseudogap est également étudiée en observant le comportement de la constante de Hall en fonction de la température. Nous avons vu que dans un métal normal,  $R_H$  ne dépend que de la densité de porteurs et que celle-ci étant indépendante de la température,  $R_H$  l'est également. En revanche, bien que  $R_H$  soit pratiquement constant au dessus de  $T^*$ , une forte dépendance en température en dessous de  $T^*$  est observée [127].

Un diagramme de phase correspondant au côté sous-dopé a été déterminé à partir de la courbure de la résistivité dans le plan  $\rho_{ab}$  par Y. Ando *et al* [128]. Les diagrammes de phase obtenus démontrent une certaine universalité entre les différentes familles de composé. Les résultats obtenus pour YBCO sont montrés sur la figure 2.21. La ligne du pseudogap (ligne diagonale blanche séparant les régions rouge et bleue du côté sous-dopé pour  $p < 0.16$ ) se termine vers le sommet du dôme supraconducteur et ne s'étend pas dans la région surdopée ; ceci est particulièrement visible pour LSCO et BSLCO.

### 2.4.2.5.5 Les mesures de conductivité optique :

Dans le cadre d'un liquide de Fermi, en supposant le temps de relaxation  $\tau$  constant et que seules les diffusions sur les impuretés sont considérées, la conductivité est donnée par la formule de Drude :

$$\sigma(\omega) = \frac{1}{4\pi} \frac{\omega_p^2}{\frac{1}{\tau} - i\omega} \quad (2.26)$$

où pour une surface de Fermi sphérique la fréquence plasma  $\omega_p = \frac{4\pi n e^2}{m}$ . Si par contre les

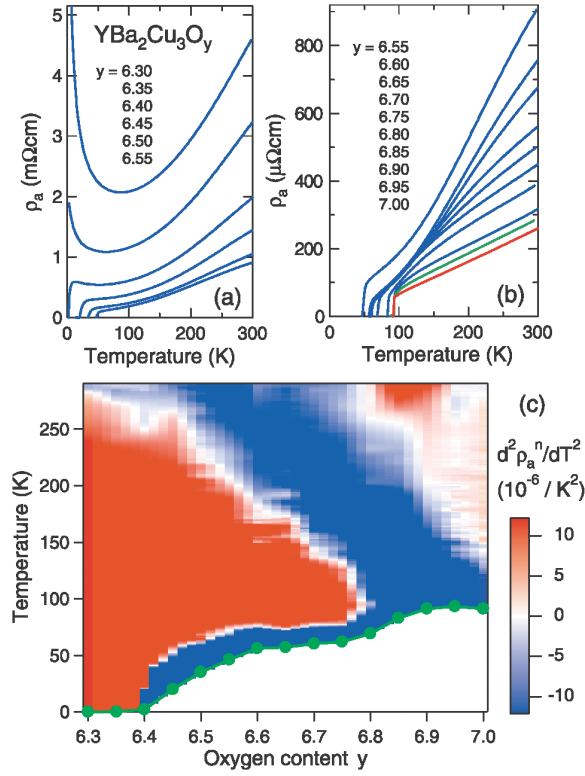


Figure 2.21 – Diagramme de phase de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  déterminés à partir de la courbure de la résistivité  $\rho_{ab}$  [128]. Les courbes de résistivité figurent au dessus du diagramme de phase ; les courbes bleues (rouges) sont celles des échantillons sous-dopés (surdopés), la courbe verte étant celle qui correspond au dopage optimal.

processus contribuant au temps de relaxation sont inélastiques,  $\tau$  dépend de la fréquence et la conductivité est donnée par la formule de Drude généralisée :

$$\sigma(\omega, T) = \frac{1}{4\pi} \frac{\omega_p^2}{\tau(\omega, T) - i\omega[1 + \lambda(\omega, T)]} \quad (2.27)$$

où

$$\frac{1}{\tau(\omega, T)} = \frac{\omega_p^2}{4\pi} \text{Re} \left( \frac{1}{\sigma(\omega)} \right) \quad (2.28)$$

décrit le taux de diffusion et

$$\lambda(\omega, T) = -\frac{\omega_p^2}{4\pi} \frac{1}{\omega} \text{Im} \left( \frac{1}{\sigma(\omega)} \right) \quad (2.29)$$

est assimilé à un facteur de renormalisation de la masse  $m^* = m(1 + \lambda)$  due aux interactions entre les quasiparticules. La résistivité n'est autre que la limite  $\omega \rightarrow 0$  de  $1/\sigma(\omega, T)$ .

La mesure de la conductivité optique infrarouge dans les plans  $\text{CuO}_2$   $\sigma_{ab}(\omega, T)$  permet de déterminer le taux de diffusion  $\Gamma(\omega) = \frac{1}{\tau(\omega)}$ . Le pseudogap a ainsi pu être mis en évidence à partir d'analyses des spectres basée sur le modèle de Drude. En effet, dans l'état normal ( $T > T_c$ ), le taux diffusion est linéaire en température mais on peut observer une diminution

## 2. Les systèmes d'électrons fortement corrélés : un survol

de ce taux pour des températures supérieures à  $T_c$ . Cette chute de  $\Gamma(\omega)$  a été interprétée comme la conséquence de l'ouverture d'un gap dans le spectre des excitations de charge des plans  $\text{CuO}_2$  [129, 130]. La détermination de  $T^*$  n'est pas évidente ; elle nécessite des mesures pour de nombreuses températures, mais l'ordre de grandeur obtenu semble correspondre aux valeurs obtenues en RMN. La figure 2.22 montre la dépendance en fréquence du taux de diffusion  $\Gamma(\omega)$  (et de la masse effective en dessous) du composé Y124 ( $T_c=82\text{K}$ ) pour trois différentes températures. Alors que pour les trois températures  $\Gamma(\omega)$  est quasiment linéaire au dessus de  $750\text{ cm}^{-1}$ , une chute brutale, associée au pseudogap, se développe juste au dessus de  $T_c$ . Une comparaison entre la dépendance en fréquence du taux de diffusion mesuré entre un composé YBCO au dopage optimal et un composé YBCO sous-dopé montre que le spectre observé dans l'état supraconducteur du premier est très semblable à celui observé dans l'état pseudogap du second, suggérant que l'état pseudogap et l'état supraconducteur sont étroitement liés.

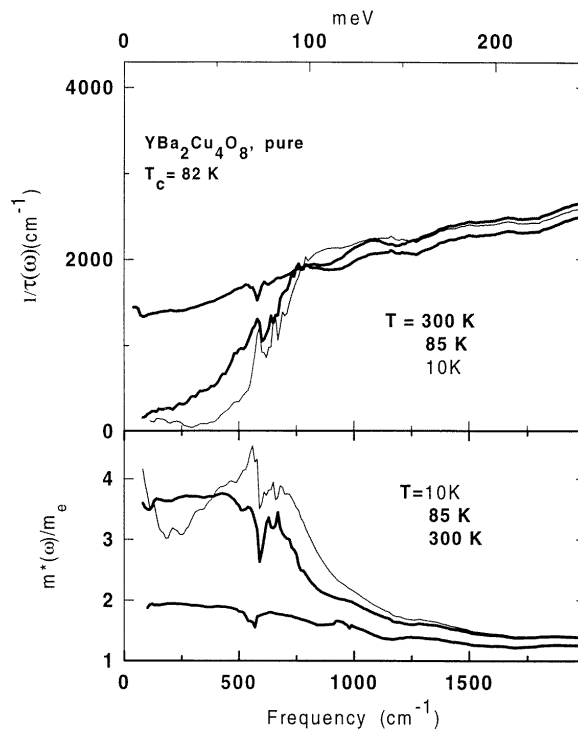


Figure 2.22 – Dépendance en fréquence du taux de diffusion dans Y124 pour trois températures. Le taux de diffusion est quasiment linéaire pour les trois températures au dessus de  $750\text{ cm}^{-1}$ . Une chute du taux de diffusion, associée au pseudogap se développe juste au dessus de  $T_c$  [129].

De même que pour la résistivité, la conductivité optique mesurée perpendiculairement aux plans  $\text{CuO}_2$ ,  $\sigma_c$ , présente un comportement atypique. Alors qu'à haute température la conductivité est indépendante de la fréquence, en dessous de  $T^*$  le pseudogap est caractérisé par une importante diminution de la conductivité. On peut noter que la fréquence à laquelle la diminution du poids spectral intervient est indépendante de la température alors que l'amplitude de  $\sigma_c$  diminue avec la température. Ce comportement est en accord avec les mesures d'ARPES ou de spectroscopie tunnel qui montrent que l'intensité du gap ne varie pas avec la température.

#### 2.4.2.5.6 Les mesures de chaleur spécifique :

Le pseudogap se manifeste également dans les mesures de chaleur spécifique. Cette sonde est particulièrement efficace pour détecter l'ouverture d'un gap puisqu'elle est directement proportionnelle à la densité d'états au niveau de Fermi. Cependant, les analyses ne sont pas simples à réaliser car aux températures où le pseudogap apparaît, la contribution des phonons correspond à plus de 90% du signal. La figure 2.23 montre le coefficient de Sommerfeld  $\gamma = C/T$  en fonction de la température pour différentes concentrations en oxygène dans le composé  $Y_{0.8}Ca_{0.2}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ . Le cadrant du haut (bas) correspond aux composés surdopés (sous-dopés). Dans l'état normal des échantillons surdopés, on trouve le comportement attendu dans un métal normal, à savoir  $\gamma$  indépendant de la température. On remarque également que  $\gamma$  est indépendant du dopage. A basse température, la dépendance linéaire en température de  $\gamma$  est une conséquence de la présence de nœuds dans la densité d'états. En revanche, on observe bien un saut de la chaleur spécifique à  $T_c$ , mais avec une amplitude supérieure à celle prévue par la théorie BCS. Dans le cas des échantillons les plus sous-dopés ( $\delta > 0.50$ ), l'apparition du pseudogap se manifeste par une légère baisse de  $\gamma$  bien au dessus du saut de chaleur spécifique à  $T_c$  vers  $T \sim 140K$ .

Cependant, la chaleur spécifique étant susceptible à la fois aux excitations de spins et de charges, elle ne permet pas de conclure quant à la nature du pseudogap. En mesurant la susceptibilité magnétique dans les mêmes échantillons, Loram *et al* ont montré que celle-ci est en bon accord avec l'entropie, ce qui est attendu dans le cas d'un liquide de Fermi où le rapport de Wilson est constant. Cela entraîne que les densités d'états de spins et de charges sont autant affectées l'une que l'autre.

#### 2.4.2.5.7 Les mesures de photoémission par spectroscopie résolue en angle (ARPES) :

Les mesures d'ARPES révèlent que, contrairement aux composés surdopés où la surface de Fermi est bien définie, la surface de Fermi des cuprates sous-dopés ne forme pas un contour continu dans l'espace réciproque, le pseudogap s'ouvrant à différentes températures et en différentes régions de la surface de Fermi. La figure 2.24(gauche) présente des spectres d'ARPES d'un composé  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$  légèrement sous-dopé ( $T_c=85K$ ) pour trois différents points (a, b et c) de la première zone de Brillouin et pour différentes températures, obtenus par M.R. Norman *et al* [131]. Les observations importantes sont :

- le pic de quasiparticules reste bien défini en dessous de la température critique, quelque soit le point où on se trouve sur la surface de Fermi (La figure 2.25 permet de visualiser l'allure des spectres d'ARPES en fonction de la température dans la région sous-dopée pour un point antinodal de la zone de Brillouin.),
- le gap supraconducteur (équivalent à une perte du poids spectral) diminue quand on se dirige de la région antinodale vers la région nodale, ce qui est cohérent avec la symétrie  $d_{x^2-y^2}$  du paramètre d'ordre,
- bien que le pic cohérent de quasiparticules disparaisse au dessus de la température critique, le gap persiste mais le passage de l'état supraconducteur à l'état pseudogap est continu.

Pour chaque point de la surface de Fermi, la température de pseudogap  $T^*$  est définie quand le spectre de l'échantillon se confond avec le spectre de la référence de Pt (en pointillés). On voit alors (cadrant (e) de la figure 2.24) que le pseudogap apparaît à différentes températures selon le point a, b ou c. Ces résultats ont permis de reconstruire la surface de

## 2. Les systèmes d'électrons fortement corrélés : un survol

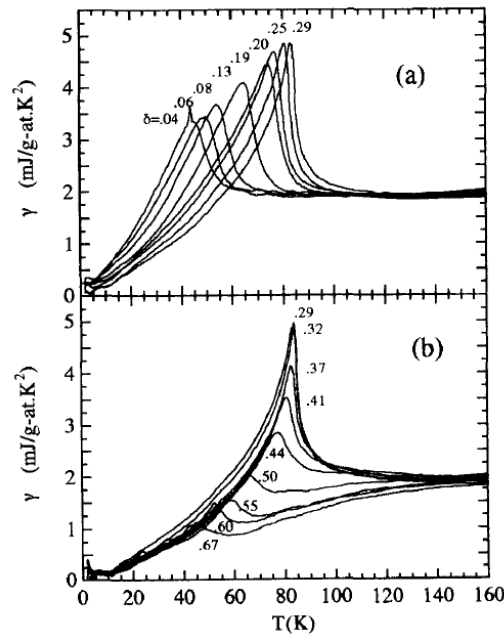


Figure 2.23 – Coefficient de Sommerfeld  $\gamma=C/T$  pour des échantillons surdopés (a) et sous dopés (b) du composé  $\text{Y}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ . Les quantités d'oxygène  $\delta$  sont indiquées sur chaque courbe. Dans les échantillons surdopés, le gap se manifeste par un saut de chaleur spécifique et est ensuite suivi d'une chute de  $\gamma$ . Pour les échantillons sous-dopés, on observe l'apparition du pseudogap par une légère baisse de  $\gamma$  bien au dessus de  $T_c$ . D'après [105].

Ferme des composés sous-dopés en fonction de la température (figure 2.24(droite)). A haute température, la surface de Fermi est bien définie (les états électroniques sont représentés en noir). En descendant la température en dessous de  $T^*$ , le pseudogap commence à s'ouvrir (zones blanches), tout d'abord dans les régions antinodales puis s'étend au fur et à mesure vers les régions nodales, jusqu'à ne laisser que quatre arcs discontinus, appelés *arcs de Fermi*, qui se réduisent à des points en dessous de  $T_c$ . Il a par exemple été récemment proposé que la longueur de ces arcs dépend uniquement du rapport entre la température et la température de pseudogap  $t = T/T^*(x)$  [132], s'extrapolant à zéro à  $t=0$ . En outre, alors que l'amplitude du pseudogap augmente quand le dopage diminue, des mesures d'ARPES suggèrent l'existence d'un deuxième gap, correspondant aux régions nodales et qui n'a pas la même dépendance que le pseudogap en  $(0,\pi)$  [133]. Ce dernier, augmentant avec le dopage, serait en fait associé à la supraconductivité. L'existence de ces deux gaps est suggérée par d'autres sondes expérimentales comme les études de réflexion Andreev [134] ou le Raman électronique [135].

L'existence (et l'origine) de ces arcs de Fermi fait encore débat. De plus, déterminer si les cuprates ont une surface de Fermi a toute son importance quant à la compréhension de la supraconductivité à haute température dans ces composés. Il a par exemple été proposé que le pseudogap s'ouvre dans les régions antinodales, conduisant à une surface de Fermi constituée de petites poches nodales [138]. La figure 2.26 montre la grande surface de Fermi



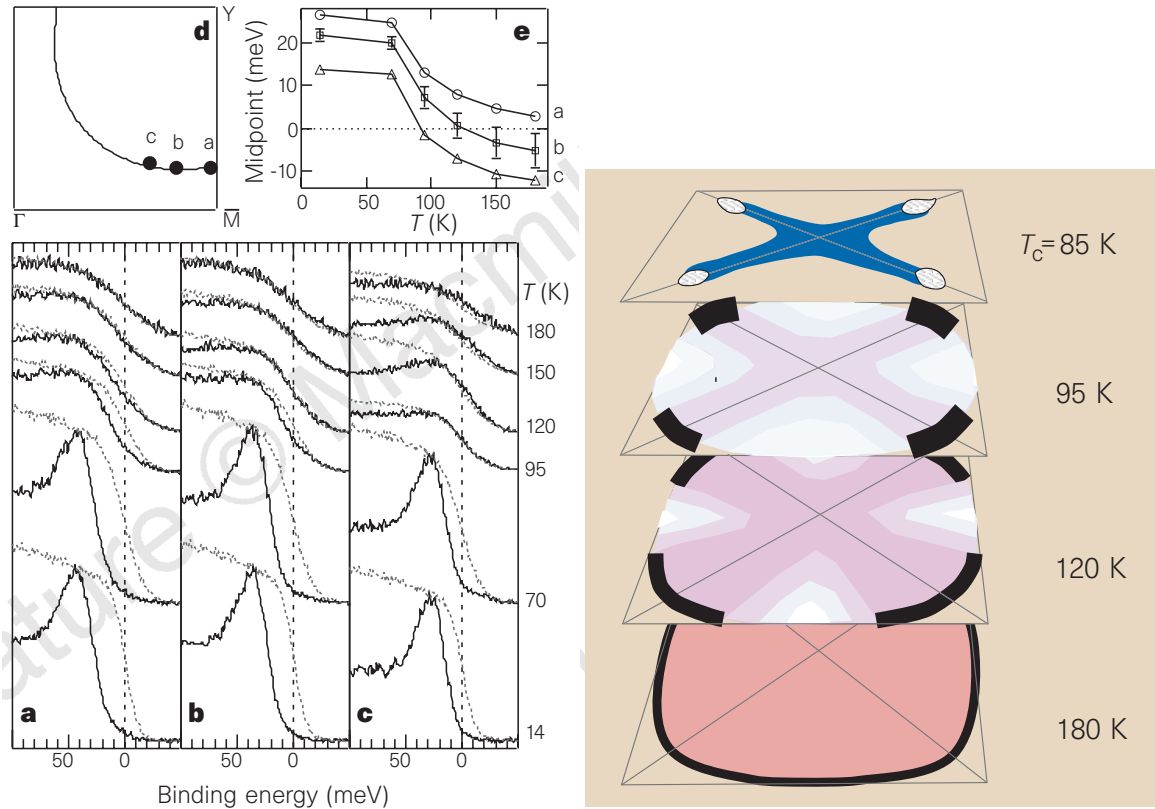


Figure 2.24 – *A gauche* : Dépendance en température des spectres d'ARPES obtenu en trois différents points de la zone de Brillouin (cadrant d) dans un composé sous-dopé Bi2212 ( $T_c=85\text{K}$ ), d'après [131]. Les lignes en pointillé représentent le spectre de la référence de Pt. *A droite* : Surface de Fermi du composé Bi2212 ( $T_c=85\text{K}$ ). A mesure que la température diminue, le gap, qui apparaît tout d'abord dans la région  $(0, \pi)$ , s'agrandit vers les régions  $(\pi, \pi)$  et la surface de Fermi passe d'une grande orbite continue à quatre arcs de Fermi déconnectés. D'après [136]

des composés surdopés comparée à la surface de Fermi partiellement gappée des composés sous-dopés. Le poids spectral serait en fait non pas un arc, mais une petite poche. Ces petites poches (ou ces arcs de Fermi) pourraient apparaître en raison de la proximité de l'isolant de Mott [139] ou encore suite à une reconstruction de la surface de Fermi due à la formation d'une phase ordonnée avec des brisures de symétrie [140, 141, 142].

## 2. Les systèmes d'électrons fortement corrélés : un survol

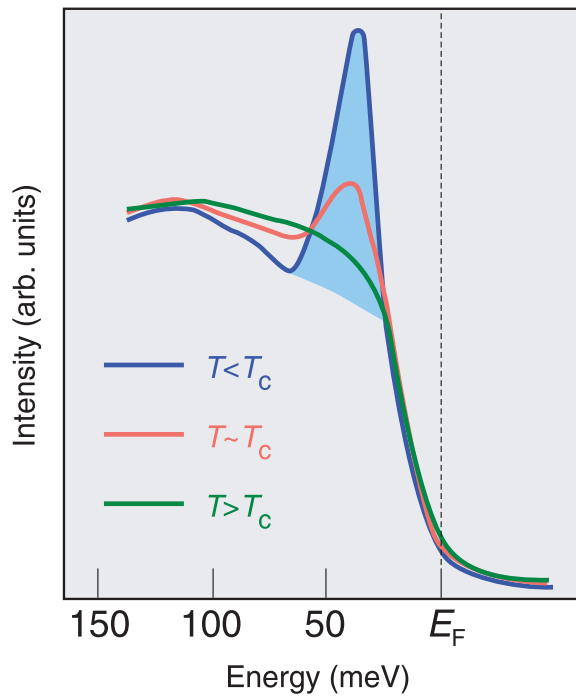


Figure 2.25 – Représentation schématique d'un spectre d'ARPES pour  $T < T_c$  (en bleu),  $T \sim T_c$  (en rouge) et  $T > T_c$  en vert. Dans l'état supraconducteur, il y a un pic de quasiparticules, définissant des excitations électroniques bien définies. Le gap supraconducteur correspond à la suppression de l'intensité à basse énergie. A mesure que la température augmente, le pic disparaît à  $T_c$ , mais le gap persiste au dessus [137].

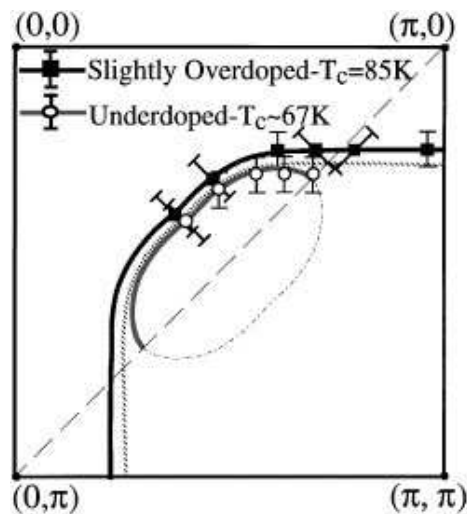


Figure 2.26 – Surface de Fermi d'un composé Bi2212 surdopé (carrés) comparée à celle d'un composé sous-dopé (cercles). Les auteurs stipulent que le pseudogap entraîne la création de petites poches nodales [138].

### 2.4.3 Différentes théories proposées pour la supraconductivité des cuprates

La compréhension de la phase pseudogap dans les cuprates constitue un challenge important à relever pour les théoriciens. Comprendre la phase pseudogap reviendrait à élucider le mystère de la supraconductivité à haute température critique. La principale difficulté consiste à concilier les différentes propriétés du diagramme de phase, soit passer d'un isolant de Mott à un liquide de Fermi, en traversant une phase métallique avec des propriétés anormales.

La question qui fait débat est de savoir où se termine la ligne de la température de pseudogap  $T^*$ . Les modèles théoriques peuvent être séparés en deux groupes : ceux qui attribuent au pseudogap l'existence de paires préformées et ceux qui confèrent au pseudogap un ordre en compétition avec la supraconductivité. Le diagramme de phase schématisé basé sur chacun de ces deux scénarios est représenté sur la figure 2.27.

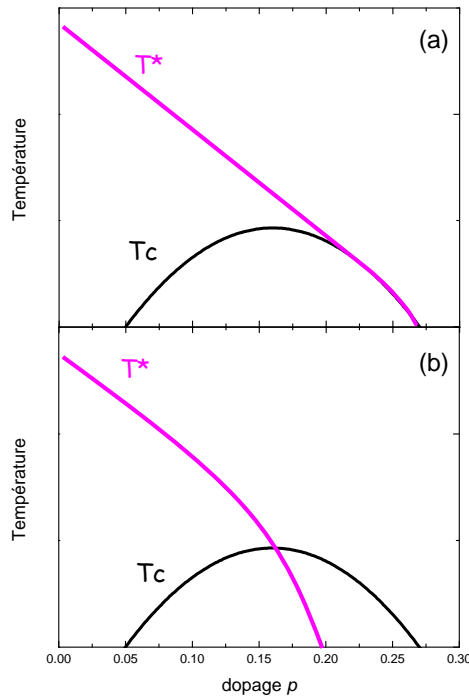


Figure 2.27 – (a) Dans les scénarios basés sur l'existence de paires préformées, la ligne  $T^*$  se confond avec la température critique dans le régime surdopé. (b) Dans le cas où le pseudogap présente un ordre en compétition avec la supraconductivité, la ligne  $T^*$  coupe la ligne  $T_c$  et s'annule à un dopage critique  $p_c=0.19$  juste en dessous du dopage optimal [143, 144].

#### 2.4.3.1 Le modèle RVB

Bien avant la découverte de la supraconductivité à haute température critique, il a été postulé par Anderson et Fazekas [145, 146] qu'un liquide de spins, appelé état *RVB* (*Resonating valence bond*), pouvait décrire un état quantique de spins couplés 1/2 à basse dimension. En adaptant cette théorie au cas des cuprates, Anderson suggéra qu'un état RVB peut être formé en appliquant le projecteur de Gutzwiller à un état supraconducteur type BCS [147]. Bien que l'état fondamental des composés parents des cuprates soit un isolant

## 2. Les systèmes d'électrons fortement corrélés : un survol

de Mott et non un liquide de spins, il a été proposé qu'en introduisant des trous dans le matériau, l'état AF de Néel est détruit ; les spins forment alors une superposition d'états singulets (de même symétrie que l'état BCS) et il n'y a pas d'ordre AF à longue distance. L'énergie nécessaire pour briser ces singulets conduit à un gap de spin, associé au pseudogap, dont l'énergie caractéristique n'est autre que l'énergie d'échange, qui dans le cas des cuprates sous-dopés est de l'ordre de  $\sim 100$  meV, valeur très similaire à l'énergie caractéristique du pseudogap extrapolée à  $p=0$ .

La formation de ces singulets permet d'expliquer les anomalies du pseudogap, comme par exemple la diminution de la susceptibilité uniforme de spins. Les trous non-appariés sont alors responsables du transport électronique. Le poids spectral mesuré en conductivité dans les plans est donné par le dopage et n'est pas affecté par la formation des singulets. En revanche, la conductivité mesurée suivant l'axe  $c$  ( $\perp$  aux plans  $\text{CuO}_2$ ) nécessite la brisure d'un singulet. Ceci peut alors expliquer l'observation d'un gap dans les mesures de  $\sigma_c(\omega)$  ou encore le gap vu en ARPES.

Un second concept de cette théorie est la séparation des degrés de liberté de spin et de charge (ou fractionnalisation de l'électron). Les excitations élémentaires du système sont alors des *spinons*, portant le spin 1/2 et sans charge (ce sont des fermions) et les *holons*, transportant uniquement la charge (ce sont des bosons).

Le diagramme de phase RVB, élaboré suite aux travaux de Kotliar et Liu [148] et de Nagaosa et Lee [149] est présenté sur la figure 2.29. Deux échelles d'énergie interviennent :

- $T_{RVB}$ , correspondant à la température de formation des singulets de spins et qui entraîne l'ouverture d'un gap de spins associé au pseudogap
- $T_{BE}$ , identifiée à la température à laquelle les excitations de charge deviennent cohérentes et au dessus de laquelle on a séparation spin-charge.

La formation d'un état supraconducteur de symétrie  $d$  apparaît pour  $T < T_{RVB}$  et  $T < T_{BE}$  suite à la condensation des singulets et à la cohérence des charges. Pour  $T > T_{RVB}$  et  $T > T_{BE}$ , on a une séparation des degrés de liberté de spin et de charge dont les excitations sont incohérentes ; cette phase est identifiée au métal étrange. Enfin, pour  $T_{RVB} < T < T_{BE}$ , les excitations de charges sont cohérentes et une condensation de Bose-Einstein confère aux quasiparticules un poids spectral bien défini, caractérisant un liquide de Fermi.

Néanmoins, le fait que la chaleur spécifique, reliée à tous les types d'excitations, et que la susceptibilité magnétique, seulement reliée aux excitations de spins, exhibent des comportements similaires en température dans la phase pseudogap, va à l'encontre d'une séparation spin-charge.

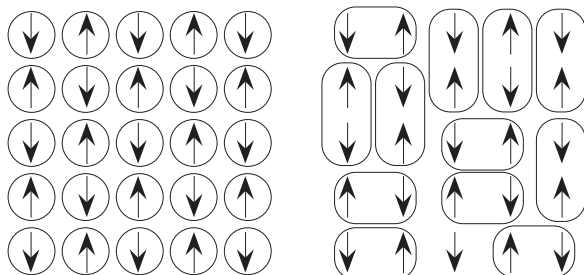


Figure 2.28 – *A gauche* : Réseau antiferromagnétique de Néel. *A droite* : Etat liquide de singulets de spins RVB. D'après [150].

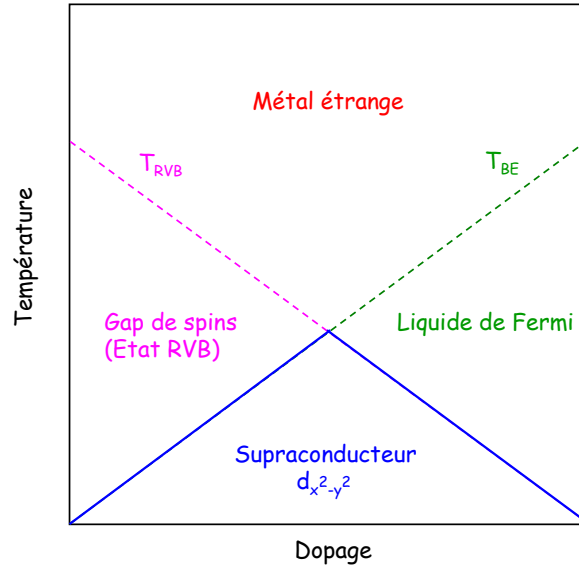


Figure 2.29 – Diagramme de phase RVB.

### 2.4.3.2 Fluctuations supraconductrices - Paires préformées

En raison de la symétrie  $d$  du pseudogap, celui-ci apparaît comme un possible état précurseur de la formation des paires de Cooper. Dans un supraconducteur BCS, les paires de Cooper se condensent et acquièrent une cohérence de phase à la température critique ( $T_c$ ). Dans le cas où la fonction d'onde d'une paire est très localisée et que la densité électronique est faible, il est suggéré que la phase pseudogap résulte de la formation de *paires préformées* sans cohérence de phase. Ces paires seraient responsables des différentes propriétés thermodynamiques et de transport au dessus de la température critique et la cohérence de phase conduisant à la supraconductivité n'est acquise qu'à  $T_c$ . Il a alors été proposé plusieurs scénarios parmi lesquels :

- Un *Crossover BCS-BE* : en faisant varier certains paramètres expérimentaux, on pourrait passer d'un régime de paires BCS, caractérisé par  $k_F \xi_0 \gg 1$ , à une condensation de Bose-Einstein (BE) des paires, caractérisée par  $k_F \xi_0 \ll 1$ . En effet, dans un scénario proposé par Randeria, la faible longueur de cohérence dans les cuprates implique que les paires qui se forment à  $T^*$  ne peuvent avoir de cohérence de phase à longue distance [151]. Deux modèles sont utilisés pour étudier ce crossover : (i) en considérant un hamiltonien de Hubbard attractif, c'est-à-dire où la taille des paires varie en fonction de  $|U|$  ( $U < 0$ ). Sur la figure 2.30 on montre le diagramme de phase de ce modèle obtenu par les calculs numériques et illustrant ce crossover (l'état fondamental étant supraconducteur). La limite des couplages faibles ( $\frac{U}{t} \ll 1$ ) est bien décrite par la théorie BCS où la destruction des paires et de la cohérence de phase se fait à la même température critique  $T_c \sim \text{exp}(-t/|U|)$ , l'état normal étant un liquide de Fermi. A l'opposé, la limite des couplages forts ( $\frac{U}{t} \gg 1$ ), où l'état fondamental est un condensat de bosons, fait intervenir deux températures :  $T_c \sim t^2/U$  où la cohérence de phase est perdue et  $T^* \sim |U|$  où les paires sont détruites. (ii) En considérant un modèle BCS que l'on étudie par la méthode des intégrales fonctionnelles. Cependant, bien que ce modèle décrive correctement le régime des couplages faibles, il ne semble pas décrire de façon qualitative la physique au dessus de la limite BCS.

## 2. Les systèmes d'électrons fortement corrélés : un survol

- *Fluctuations de phases* : Emery et Kivelson ont considéré le cas d'un supraconducteur 2D où la densité de porteurs est faible et où les fluctuations de phases jouent un rôle essentiel [152]. L'amplitude importante des fluctuations explique l'absence de cohérence de phase à  $T^*$ . Ils ont ainsi considéré que le système est caractérisé par deux températures caractéristiques en plus de  $T_c$  :  $T_\theta^{max}$  à laquelle la cohérence de phase disparaît, et  $T^{MF}$ , la température de transition de champ moyen. Cette théorie est basée sur le modèle  $X$ - $Y$  (décrivant des spins classiques sur un réseau bidimensionnel) qui présente une transition de phase appelée *transition de Kosterlitz-Thouless* de température de transition  $T_{KT}$  (équivalant dans ce cas à  $T_\theta^{max}$ ), correspondant à un changement de la fonction de corrélation des spins. Si  $T_\theta^{max} \gg T_c$ , alors les fluctuations n'ont que très peu d'effet sur la transition supraconductrice ; le système est dit *rigide*. A l'inverse, les cuprates sont des systèmes peu rigides car  $T_\theta^{max} \leq T_c$  et les fluctuations de phases sont importantes.

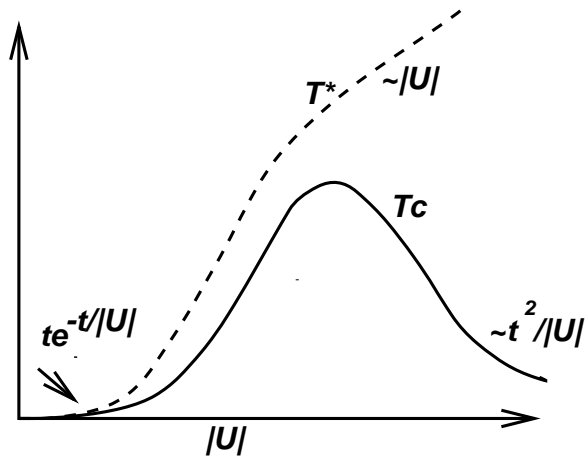


Figure 2.30 – Diagramme de phase schématisé basé sur le modèle de l'hamiltonien de Hubbard attractif, illustrant le crossover BCS-BE et montrant la dépendance de  $T_c$  et de  $T^*$  [151].

### 2.4.3.3 Ordres en compétition

Certains scénarios prévoient que la phase pseudogap soit caractérisée par un ordre en compétition avec la supraconductivité.

#### 2.4.3.3.1 Ordre de stripes :

Plusieurs expériences ont montré que l'antiferromagnétisme et la supraconductivité, pourtant antagonistes, peuvent coexister. Il a été prédit théoriquement qu'à faible dopage, un matériau antiferromagnétique peut être sujet à une séparation de phase électronique, conduisant à une phase appelée *stripe* [153, 154]. Cette phase apparaît comme un compromis entre les interactions AF entre les ions magnétiques combinées à la répulsion coulombienne entre les charges qui a tendance à localiser les électrons, et l'énergie cinétique des trous qui a tendance à délocaliser la charge. Les *stripes* consistent en des rivières de charges 1D séparées par des régions AF isolantes et peuvent être vues comme la "superposition" d'une onde de densité de charges et d'une onde de densité de spin inhomogènes. Expérimentalement, les stripes sont plus facilement détectables lorsqu'elles sont statiques (c'est le cas des matériaux

isolants). En effet, les neutrons n'ayant pas de charge, ils interagissent avec le noyau atomique et non directement avec la charge. Les stripes statiques sont alors détectées via le déplacements des ions constituant le réseau cristallin. Cependant, les stripes peuvent également être dynamiques, nécessitant alors de nouveaux mécanismes pour le transport de charges et la supraconductivité.

La mise en évidence la plus directe des stripes provient des mesures de diffusion de neutrons, mais aussi de la diffraction des rayons X. Cependant, l'existence de stripes statiques n'a pu être observée que dans des composés  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  dont on remplace des atomes de La par des atomes de Nd ou de Eu [155], ou encore dans  $\text{La}_{1.875}\text{Ba}_{0.125-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  [156]. L'ordre de charge et de spins concordant avec des stripes est maximal pour  $x = \frac{1}{8}$ .

A ce dopage particulier, LSCO présente une transition de phase structurale à basse température entre une phase orthorombique et une phase tétragonale basse température (dite LTT pour *low-temperature tetragonal*). Cette phase LTT est stabilisée par l'apport de neodymium. Le fait important est que la phase LTT présente un ordre à longue distance concordant avec la formation d'une onde de densité unidimensionnelle, en accord avec les mesures de photoémission et de transport.

L'universalité de l'existence de stripes dans les cuprates est controversée, même si l'observation de pics magnétiques incommensurables par des mesures de diffusion inélastique de neutrons dans des composés LSCO et YBCO à différents dopages a été interprétée comme l'existence de stripes dynamiques [157, 158]. De récents résultats de mesures de diffusion de neutrons dans les composés  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$  et  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$  ont montré que les fluctuations magnétiques sont bidimensionnelles, ce qui exclue l'existence de stripes statiques dans YBCO sur une large gamme de dopage [159].

L'intérêt des stripes est qu'il engendre une unidimensionnalité structurale, qui contient naturellement les instabilités du liquide de Fermi, particulièrement l'état non-liquide de Fermi présentant une séparation spin-charge. Les paires de trous seraient alors formées suite à des sauts virtuels entre les stripes et l'ordre supraconducteur à longue distance se ferait suite à une cohérence de phase entre les stripes via un couplage Josephson. Autrement dit, il y aurait un crossover entre un état non-liquide de Fermi 1D et un état supraconducteur cohérent 3D.

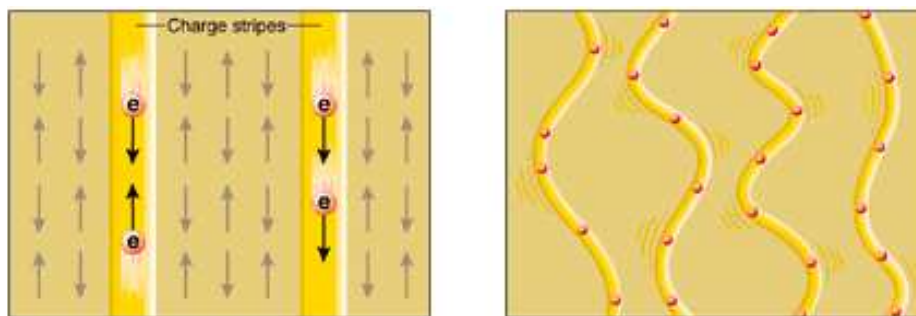


Figure 2.31 – Formation de stripes statiques et dynamiques [153].

#### 2.4.3.3.2 Etat électronique nématique :

Des états électroniques présentant des propriétés anisotropes dans le plan, autrement dit qui brisent la symétrie de rotation et/ou de translation peuvent être vus de façon analogue à des cristaux liquides classiques. Dans le cas des stripes, les symétries de rotation et de

## 2. Les systèmes d'électrons fortement corrélés : un survol

translation sont brisées ; on a alors une phase smectique. De récentes mesures de diffusion inélastique de neutrons dans un échantillon du composé sous-dopé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.45}$  ( $T_c=35$  K) montrent en effet une anisotropie prononcée des excitations magnétiques [160]. En effet, ces mesures montrent que la symétrie de rotation à  $90^\circ$  n'est pas conservée par les excitations de basse énergie en dessous de 150 K. L'anisotropie commence à augmenter en dessous de  $\sim 150$  K puis sature vers  $\sim 50$  K, au contraire du composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$  où l'anisotropie est forte à haute température mais faible à basse température [159, 161]. De plus, le spectre des excitations magnétiques et la brisure de symétrie de rotation ne sont pas modifiés en dessous de la température critique. Les auteurs interprètent leurs résultats par l'émergence d'un ordre nématique du même type que les cristaux liquides, ordre qui coexiste avec la supraconductivité dans les cuprates sous-dopés.

### 2.4.3.3.3 Courants orbitaux - Ordre DDW :

Un paramètre d'ordre, caractérisant le pseudogap, en compétition avec la supraconductivité est à priori un bon candidat pour expliquer la forme du dôme supraconducteur. S. Chakravarty *et al* ont proposé que le pseudogap est un vrai gap s'ouvrant en  $(\pi, 0)$ , associé à une onde de densité de charges et dont la symétrie est liée à la symétrie  $d$  des plans  $\text{CuO}_2$  [141]. Ce paramètre d'ordre est appelé *d-density wave order (DDW)* ; il brise la symétrie par renversement du temps ainsi que les symétries de translation et de rotation mais reste invariant par combinaison des deux. Le développement de cette onde de densité de charge est basée sur l'apparition de courants orbitaux dans les plans  $\text{CuO}_2$  (figure 2.32), mais jusqu'à ce jour la mise en évidence de ces courants par des mesures de diffusion de neutrons est controversée en raison du faible signal généré par ces courants orbitaux, comparé à celui des spins ordonnés.

En considérant que le vecteur d'ordre AF est  $\mathbf{Q} = (\pi, \pi)$ , on a une reconstruction de la surface de Fermi entraînant alors la formation de quatre poches de Fermi dans les régions nodales (figure 2.32). S. Chakravarty *et al* ont suggéré que sous certaines conditions, seule la moitié d'une poche est observable, réconciliant alors leurs résultats avec l'observation des arcs de Fermi observés en ARPES.

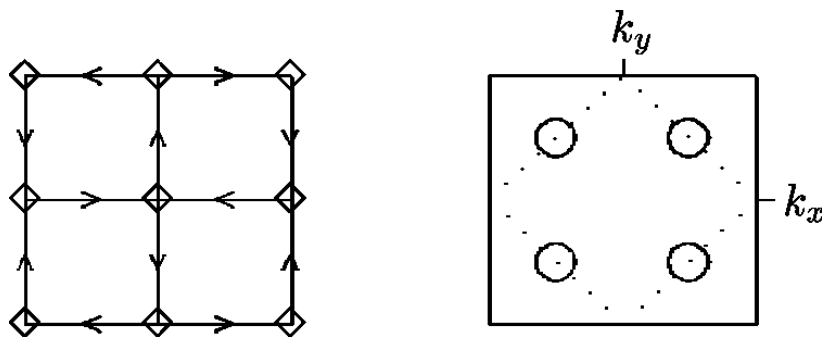


Figure 2.32 – *A gauche* : Courants orbitaux dans les plans  $\text{CuO}_2$ . *A droite* : Zone de Brillouin d'un plan  $\text{CuO}_2$ . Les pointillés représentent la nouvelle zone de Brillouin après l'établissement de l'état DDW. Les cercles sont les poches constituant la surface de Fermi [141].



### 2.4.3.4 Point Critique Quantique

Deux types de scénarios sont évoqués afin d'identifier la nature du pseudogap : les scénarios qui suggèrent que le pseudogap est un précurseur de l'état supraconducteur et ceux qui supposent que le pseudogap est en compétition avec la supraconductivité. Dans ce dernier cas, cette compétition peut impliquer la présence d'un point critique quantique (PCQ). Celui-ci est par exemple évalué à l'endroit où la température de pseudogap  $T^*$  s'annulerait à un dopage critique  $p_c=0.19$  juste en dessous du dopage optimal [143, 144].

Un diagramme de phase schématique considérant un PCQ est représenté sur la figure 2.33. Un PCQ sépare une phase ordonnée, ici le pseudogap, d'une phase désordonnée, le liquide de Fermi. A température finie, ces deux phases sont séparées par une phase critique quantique qui est identifiée au métal étrange. Le dôme supraconducteur "englobe" le PCQ. Dans ce scénario, la transition liquide de Fermi/métal étrange est un crossover mais la transition pseudogap/métal étrange est une vraie transition de phase.

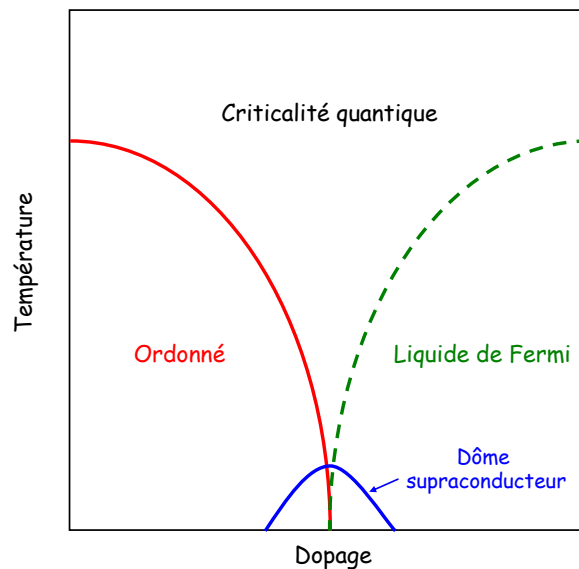


Figure 2.33 – Diagramme de phase schématique considérant un Point Critique Quantique.

La présence d'un PCQ est suggérée par plusieurs faits expérimentaux. J. Tallon et J. Loram ont par exemple étudié les propriétés de transport et thermodynamiques mesurées dans différentes familles de cuprates [144]. Leur analyse suggère que le pseudogap serait caractérisé par une échelle d'énergie qui chuterait à zéro au dopage critique  $p=0.19$ , mais que la température  $T^*$  ne serait une transition de phase mais un crossover.

Rappelons qu'un point critique quantique sépare une phase ordonnée d'un état liquide de Fermi. Pour que la présence d'un PCQ dans le diagramme de phase des cuprates soit envisageable, faut-il encore qu'un ordre (magnétique, ...) caractérise celui-ci. Dernièrement, quelques résultats expérimentaux ont suggéré l'existence d'un ordre magnétique pour des températures inférieures à la température de pseudogap. Des mesures de diffusion élastique de neutrons polarisés dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  ont mis en évidence un ordre magnétique ( $M \simeq 0.05\mu_B$ ) qui ne brise pas la symétrie de translation, se développant à une température comparable à la température de pseudogap observée en dans les mesures de résistivité [162]. Les propriétés de symétrie de la structure magnétique sont en accord avec le modèle de courants orbitaux développé par C. Varma [163]. Dans ce modèle, chaque cellule unité

## 2. Les systèmes d'électrons fortement corrélés : un survol

---

est divisée en quatre "plaquettes" dans lesquelles circulent des courants orbitaux entre les cuivres et les oxygènes dans des directions alternativement opposées. Au passage de  $T^*$ , la symétrie par renversement du temps et la symétrie de rotation sont brisées. La brisure de symétrie par renversement du temps est également suggérée par des mesures d'effet Kerr dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  [164]. Ces mesures montrent qu'une rotation Kerr non nulle se développe en dessous de la température de pseudogap et que cette phase est caractérisée par une brisure de symétrie par renversement du temps. De plus, cet effet persiste en dessous de la température critique, suggérant que la ligne  $T^*$  traverse le dôme supraconducteur et s'annule à un point critique.

Outre le modèle de Varma, le pseudogap peut également être décrit par un état DDW [141]. Le modèle du liquide de Fermi marginal, initialement introduit pour rendre compte des propriétés anormales de l'état normal, est généralement évoqué pour caractériser la phase quantique critique. De tels comportements sont reportés mais il reste encore à les confirmer [165, 166].

## 2.4.4 Motivation du travail de cette thèse

Comme nous avons pu le voir, les propriétés physiques des cuprates varient énormément en fonction du dopage. Alors que dans le régime surdopé les propriétés d'un liquide de Fermi semblent restaurées, attestant du caractère métallique du composé dans cette région du diagramme de phase, la question demeure ouverte en ce qui concerne la phase sous-dopée. En effet, l'une des questions clés quant à la compréhension de la supraconductivité à haute température critique réside dans l'origine de ces différentes propriétés. La figure 2.34 présente la variation en fonction du dopage de la température de pseudogap  $T^*$ . Il semble que quelque soit la sonde expérimentale, un changement drastique dans les propriétés électroniques intervient à proximité du dopage optimal.

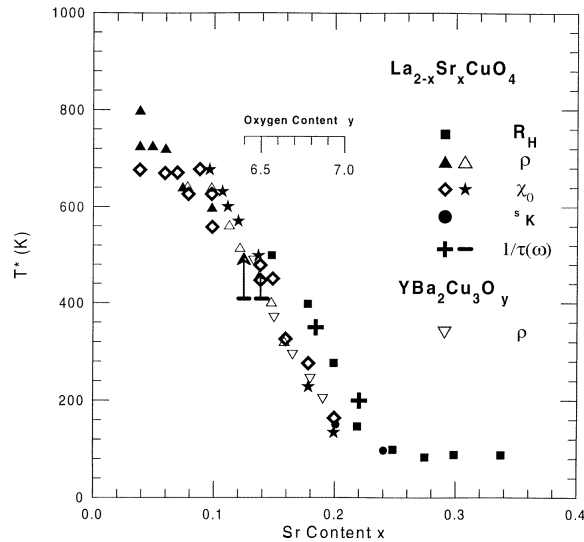


Figure 2.34 – Variation de la température de pseudogap  $T^*$ , déterminées par différentes sondes expérimentales, en fonction du dopage pour deux familles de composés. Les carrés correspondent à la température à laquelle  $R_H$  devient très dépendant en température, les cercles vides au maximum observé dans la susceptibilité de spins, les cercles pleins à la température où chute le Knight-shift, les triangles (vides et pleins) à la température où la résistivité dévie du comportement linéaire, et enfin et les traits aux mesures infrarouges [115].

L'une des points les plus étranges concerne la surface de Fermi et sa variation avec le dopage. Dans le cadre de la théorie des bandes, la surface de Fermi est supposée être quasi-2D, de forme cylindrique et posséder  $1+p$  porteurs. C'est ce qui est trouvé du côté surdopé. En revanche, le régime sous-dopé est caractérisé par l'observation de nombreuses anomalies et par l'apparente absence d'une surface de Fermi cohérente. Les mesures d'ARPES montrent que le poids spectral est concentré dans les régions nodales et forment des *arcs de Fermi* distincts et qui se concentrent en un point à température nulle. De plus, la densité superfluide est proportionnelle au dopage  $p$ , ce qui semble suggérer que le régime sous-dopé est plus étroitement relié à l'isolant de Mott antiferromagnétique que le régime métallique du côté surdopé. De ce fait, la description du pseudogap en terme de non-liquide de Fermi est apparue plausible. La question fondamentale est donc de déterminer si les cuprates sous-dopés ont une surface de Fermi et le cas échéant, comment celle-ci varie avec le dopage.

## 2. Les systèmes d'électrons fortement corrélés : un survol

---

Afin de répondre à cette question, nous nous sommes intéressé dans cette thèse aux propriétés de transport sous champ magnétique intense des cuprates sous-dopés  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ . L'application d'un fort champ magnétique permet de restaurer un état résistif et de sonder les propriétés électroniques de l'état fondamental des cuprates. Nous avons alors pu mettre en évidence l'observation d'oscillations quantiques dans la résistance de deux composés YBCO, révélant ainsi l'existence d'une surface de Fermi cohérente dans le régime sous-dopé, mais de taille très inférieure à la surface de Fermi des cuprates surdopés. En outre, il apparaît que l'effet Hall, mesuré dans trois composés YBCO, est négatif à basse température dans l'état normal, suggérant fortement la présence d'électrons dans la surface de Fermi.

Nous verrons que ces observations suggèrent fortement une reconstruction de la surface de Fermi, qui interviendrait à proximité du dopage optimal.

Les résultats obtenus au cours de cette thèse ont relancé la course à la compréhension de la supraconductivité à haute température critique

# Chapitre 3

## Techniques expérimentales

### 3.1 Introduction

Le champ magnétique est une sonde très utilisée dans la physique de la matière condensée. Comme nous avons pu le voir dans le chapitre 1, les électrons interagissent avec le champ magnétique par le moment magnétique, dû au spin et au moment angulaire orbital, ou par le mouvement cyclotron, causé par la force de Lorentz. La structure électronique d'un métal peut donc être déterminée par l'effet Hall ou les oscillations quantiques par exemple. Cependant, dans de nombreux matériaux, des champs magnétiques de plusieurs (dizaines de) Teslas (T) sont nécessaires afin d'étudier ces propriétés. Dans le cas des supraconducteurs à haute température critique, l'état normal peut être rétabli autour d'un champ  $B \sim 50$  T.

Dans ce chapitre, nous présentons le dispositif expérimental du laboratoire pour la génération de champs magnétiques pulsés intenses, puis les techniques de cryogénie que nous avons utilisées. Ensuite, nous exposons les techniques expérimentales permettant de mesurer les propriétés de transport et de thermoélectricité en champ magnétique pulsé, tout en essayant de s'affranchir le plus possible des contraintes que celui-ci présente.

### 3.2 Dispositif expérimental

#### 3.2.1 Génération des champs magnétiques pulsés

Parmi les différentes méthodes utilisées pour obtenir des champs magnétiques de *longue* durée supérieurs à 20 T (bobine bitter, bobine hybride), la technique du champ magnétique pulsé se révèle être la moins coûteuse et la moins encombrante. Celle-ci a été inventée par Kapitza qui, en 1924, obtint 50 T dans une bobine de 1 mm de diamètre, puis 35 T avec un pulse de 10 ms en 1927.

Le schéma de principe du générateur de champ magnétique pulsé de Toulouse est représenté sur la figure 3.1(a). Le champ magnétique est obtenu par la décharge d'un banc de condensateurs (10 cellules de 60 condensateurs) préalablement chargé sous une tension inférieure ou égale à 24 kV. La décroissance lente en fonction du temps est obtenue par la méthode *crow-bar* que nous rappelons ici sommairement.

A l'instant  $t=0$ , le banc de condensateurs chargés sous une tension  $V$  est connecté aux bornes de la bobine, d'inductance  $L$  et de résistance  $r$ , par une batterie de thyristors. Le courant croît alors sinusoidalement dans le circuit jusqu'à atteindre une valeur  $I_{max}$  au bout de  $T/4$  où  $T = 2\pi\sqrt{LC}$  (où  $C$  est la capacité électrique des condensateurs) est la période propre du circuit (dans l'hypothèse où la résistance  $r$  de la bobine est négligeable). Lorsque

### 3. Techniques expérimentales

---

le courant atteint cette valeur maximum, la tension aux bornes des condensateurs s'inverse puisqu'elle est en quadrature de phase avec le courant. Les diodes de puissance, montées en parallèle avec la batterie de condensateurs, se mettent alors à conduire et toute l'énergie magnétique contenue dans la bobine est dissipée par effet Joule à travers sa résistance. Le courant décroît alors exponentiellement avec une constante de temps  $\tau = L/r$ . Le champ magnétique est proportionnel au courant (mesuré aux bornes de la résistance de quelques milliohms appelée *shunt*) et présente l'allure de la figure 3.1(b). Mentionnons que le calcul est approximatif et qu'il néglige en particulier l'échauffement de la bobine durant le tir. Tous les dispositifs sont doublés afin de permettre une utilisation dans les deux sens (champ *up* et champ *down*), la figure 3.1(a) ne représentant que la moitié du dispositif.

La fermeture du circuit est réalisée par un ensemble de thyristors de puissance groupés en un montage série parallèle. Chaque thyristor est commandé par une impulsion de courant traversant sa gâchette et obtenue par la décharge d'une petite capacité. Cette décharge est elle-même provoquée par l'amorçage d'un petit thyristor déclenché optiquement par un rayon lumineux transmis par fibre optique.

Les mesures effectuées au cours de cette thèse ont été réalisées dans deux types de bobines différents. Les mesures de transport ont été réalisées dans une bobine en fils de cuivre-inox (diamètre utile à 4.2 K : 8 mm, durée du pulse : 0.15 s, énergie : 1.2 MJ) de champ maximum utile 62 T et les mesures d'effet Nernst dans une bobine en fils de cuivre (diamètre utile à 4.2 K : 19 mm, durée du pulse : 1.2 s, énergie : 1.25 MJ) permettant d'atteindre 36 T. Des bobines "nouvelle génération" Cuivre-Zylon à densité de renforts optimisés (diamètre utile à 4.2 K : 19 mm, durée du pulse : 0.250 s, énergie : 3.3 MJ) permettant d'atteindre communément 55 T ont récemment été développées au laboratoire et sont par exemple utilisées avec un réfrigérateur à dilution  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$ .

Le laboratoire dispose de dix box de mesure avec chacun un pupitre de tir. Pendant le tir, les instruments de mesure sont alimentés grâce à des générateurs autonomes (*Uninterruptible Power Supply* (UPS)). On contrôle l'ordinateur d'acquisition situé à l'intérieur du box par des fibres optiques à l'extérieur du box car tout lien galvanique entre ce dernier et la salle d'expérience est interdit.

Au cours d'un tir, la variation du champ magnétique est mesurée par une bobine pickup, située à proximité de l'échantillon dont l'axe est parallèle au champ. Une bobine pickup consiste en un enroulement de quelques spires de fils de cuivre. Le champ variant au cours du temps, une tension qui lui est proportionnelle (formule 3.1) est induite aux bornes de la bobine. Il suffit alors, connaissant le facteur géométrique  $S$  de la pickup, d'intégrer la tension induite mesurée pour déterminer le champ (cf. formule 3.1).

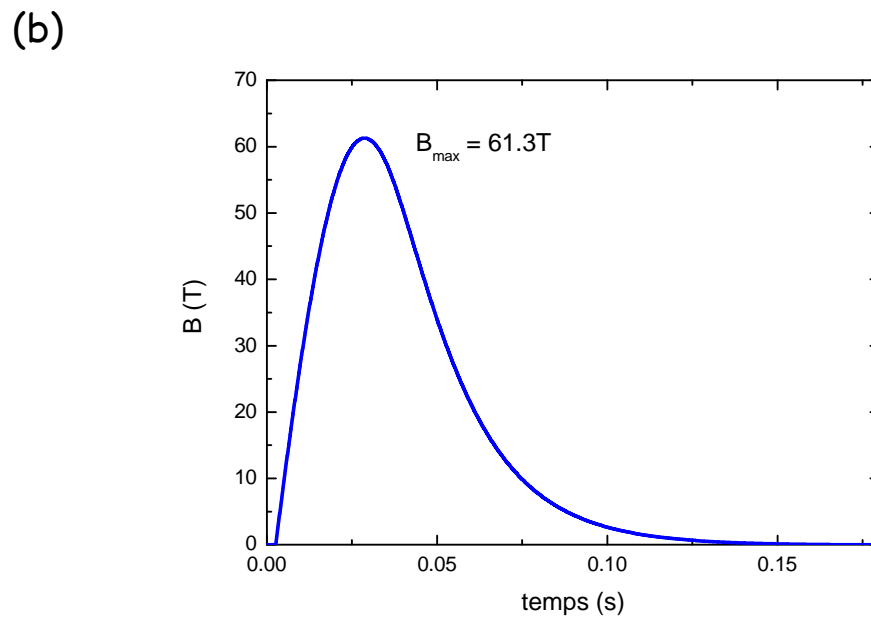
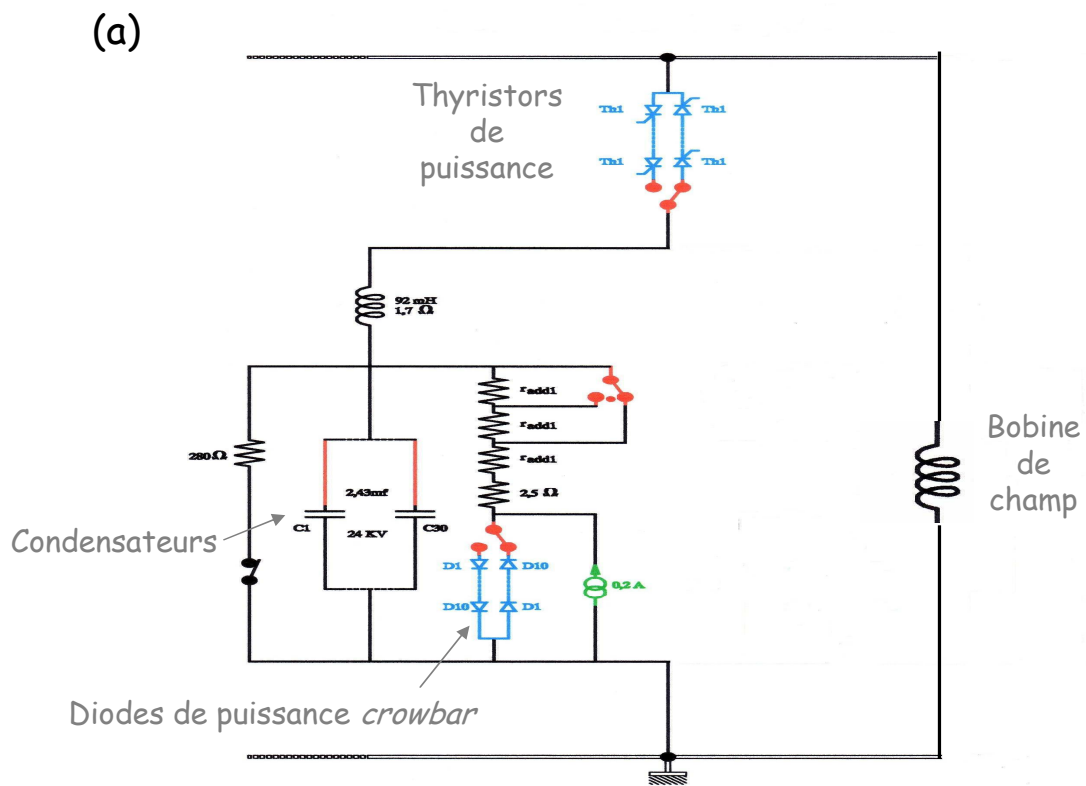


Figure 3.1 – (a) Schéma de principe du générateur 14 MJ de champ magnétique pulsé du LNCMP. (b) Profil du champ magnétique pulsé en fonction du temps.

### 3. Techniques expérimentales

#### 3.2.2 Cryogénie

Afin d'obtenir un temps de décroissance important, on augmente la constante de temps  $\tau = L/r$  en plongeant la bobine dans l'azote liquide (la résistivité du cuivre constituant la bobine diminue d'un facteur 7 entre 300 K et 77 K). De plus, la limite élastique du cuivre augmente d'un facteur 2 à la température de l'azote liquide, améliorant ainsi la tenue mécanique de la bobine. Le cryostat à azote liquide est représenté sur la figure 3.2(b) dans lequel est immergée la bobine. Celui-ci est en inox non magnétique, donc de bonne tenue mécanique. Il est fermé par une flasque en polycarbonate. Afin de minimiser les pertes en azote, un écran thermique peut être placé sous le couvercle et des couches de super isolant sont placées entre les deux parois en acier, entre lesquelles est maintenu un vide secondaire.

Les mesures à basse température sont réalisées grâce à des cryostats à hélium liquide en acier inoxydable, comme illustré sur la figure 3.2(a). La canne de mesure prend place à l'intérieur de telle sorte que l'échantillon, au bout de celle-ci, soit placé au centre du champ. La taille du cryostat utilisé dépend du type de la bobine (de son diamètre). La queue de cryostat est constituée de deux tubes très fins ( $\sim 0.1$  mm) entre lesquels est maintenu un vide secondaire.

Ces cryostats permettent de réaliser des mesures de la température ambiante à  $\sim 1.5$  K en pompant sur le bain d' $^4\text{He}$ . Le haut du cryostat consiste en deux réservoirs d'hélium liquide, reliés entre eux par un capillaire où le débit de liquide peut être réglé par une vanne pointeau. En ne remplissant que le réservoir du haut (pour assurer une puissance frigorifique) et en maintenant la vanne pointeau fermée, il est possible de réaliser des régulations de températures entre l'hélium liquide et l'azote liquide grâce à une résistance de chauffage. Celle-ci est placée entre les deux parois de la queue du cryostat et consiste en un enroulement de fils de manganin, d'une résistance de quelques dizaines d'ohms.

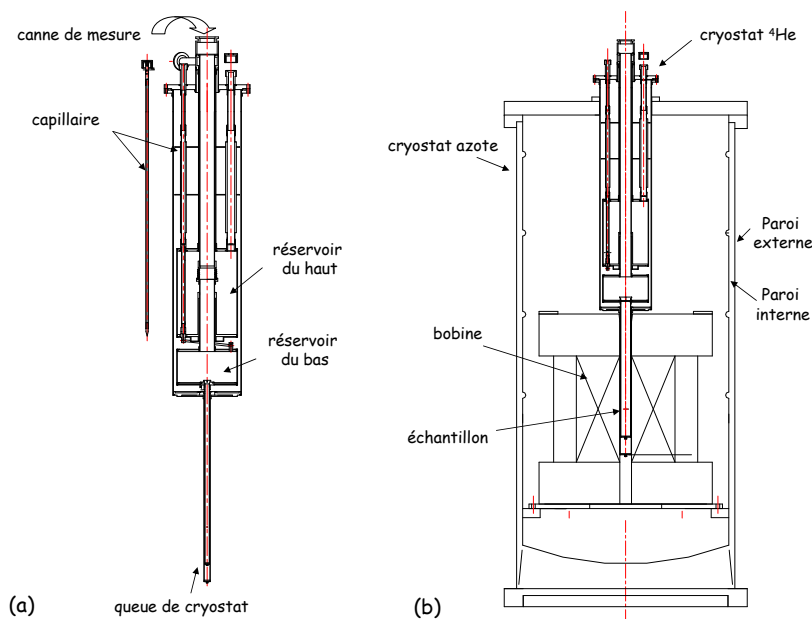


Figure 3.2 – (a) Cryostat à hélium liquide et (b) cryostat à azote liquide avec la bobine de champ et le cryostat à hélium liquide [167].



La température est mesurée grâce à un thermomètre (généralement du type Cernox) placé très près de l'échantillon sur la canne de mesure. Celui-ci et la résistance de chauffage sont reliés à une régulation de température (Lakeshore ou Néocera) permettant de maintenir une température constante au niveau de l'échantillon, mais également d'effectuer des rampes en températures à la vitesse souhaitée.

### 3.2.3 Contraintes liées aux champs magnétiques pulsés

Nous avons vu que les mesures sous champs pulsés permettent d'atteindre des champs magnétiques élevés mais cela entraîne plusieurs contraintes :

- D'après la *loi de Faraday*, tout champ magnétique variable crée une tension induite  $e$  dans toute boucle fermée perpendiculairement au champ :

$$e = -\frac{d\phi}{dt} = -S\frac{dB}{dt} + B\frac{dS}{dt} \quad (3.1)$$

où  $S$  est l'aire de la boucle. Afin de diminuer cet effet, tous les fils de la canne de mesure sont torsadés par paires et collés le long de la canne parallèlement au champ.

- Les mesures thermiques doivent se faire sans porte échantillon métallique pour ne pas générer de *courants de Foucault*.
- L'une des contraintes majeures est que l'on ne peut pas effectuer de moyennage pour les mesures, le temps d'un pulse étant de quelques centaines de millisecondes. On doit avoir recours à des filtrages analogiques et numériques.
- L'un des principaux problèmes concerne les vibrations de la bobine pendant un tir. La solution consiste à (dé)coupler au mieux la bobine du cryostat  $^4\text{He}$ .

## 3.3 Mesures de transport sous champ magnétique pulsé

### 3.3.1 Montage des échantillons

La qualité d'une mesure de transport sous champ magnétique pulsé dépend grandement de la qualité des contacts électriques des fils de mesure collés sur l'échantillon. La difficulté réside à réaliser des contacts ayant la plus faible résistance de contact possible (cf La chaîne de mesure). Généralement, on utilise des fils d'argent de 25-50  $\mu\text{m}$  de diamètre et les collages sont réalisés avec de la laque d'Argent (référence 4929N chez Dupont de Nemours) diluée avec de l'acétate de butyle.

Afin de s'affranchir de la résistance des fils de mesure, la résistance des échantillons est mesurée en quatre fils. Selon le but de l'expérience et les dimensions de l'échantillon, deux configurations de mesure sont possibles. Dans le cas où l'on ne souhaite mesurer que la magnétorésistance transverse, ou si l'échantillon est trop petit, on utilise la configuration de la figure 3.3(a). Il suffit alors de mesurer la tension  $V$  au cours d'un tir et de la diviser par le courant d'excitation pour déterminer la magnétorésistance de l'échantillon, puisque  $R_{xx}(B) = R_{xx}(-B)$ . La résistivité  $\rho_{xx}(B)$  est définie par :

$$\rho_{xx}(B) = \frac{wt}{L}R_{xx} = \alpha R_{xx} \quad (3.2)$$

où  $w$ ,  $t$  et  $L$  sont la largeur, l'épaisseur et la longueur de l'échantillon et  $\alpha$  est appelé le facteur géométrique. Bien sûr, ces dimensions doivent dans ce cas être prises entre les fils de mesures.

### 3. Techniques expérimentales

La configuration de la figure 3.3(b) présente l'avantage de pouvoir extraire la magnétorésistance  $R_{xx}$  et la résistance de Hall  $R_{xy}$  au cours d'une même expérience. Il suffit pour cela de réaliser deux fois la même mesure dans des conditions identiques (température, courant d'excitation) mais en inversant la polarité du champ. On a dans ce cas (par convention) :

$$R_{mes}^{Up} = R_{xx} + R_{xy} \quad \text{et} \quad R_{mes}^{Down} = R_{xx} - R_{xy} \quad (3.3)$$

pour le champ Up et Down respectivement. On obtient alors :

$$R_{xx} = \frac{R_{mes}^{Up} + R_{mes}^{Down}}{2} \quad \text{et} \quad R_{xy} = \frac{R_{mes}^{Up} - R_{mes}^{Down}}{2} \quad (3.4)$$

La résistivité  $\rho_{xx}(B)$  est obtenue comme précédemment. La résistivité de Hall  $\rho_{xy}(B)$  est quant à elle déterminée par :

$$\rho_{xy}(B) = t \frac{w}{l} R_{xy} \quad (3.5)$$

où  $t$  et  $w$  sont l'épaisseur et la largeur de l'échantillon et  $l$  est la distance entre les contacts suivant  $y$ .

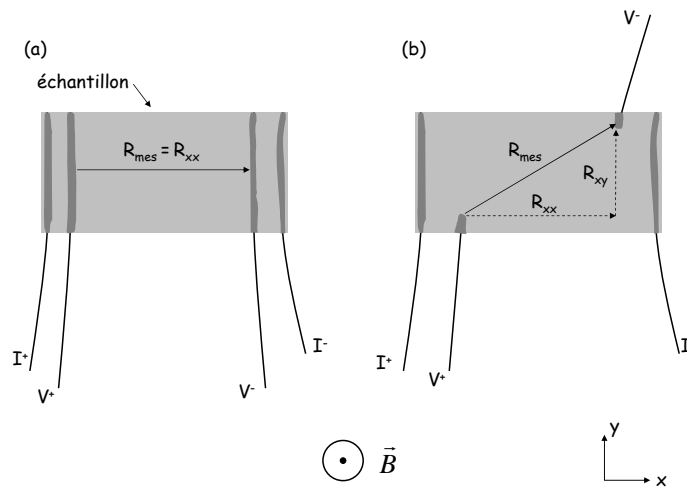


Figure 3.3 – (a) Configuration de mesure de la magnétorésistance transverse uniquement. (b) Configuration de mesure permettant d'extraire la magnétorésistance transverse et l'effet Hall.

#### 3.3.2 La chaîne de mesure

Afin de mesurer la variation de la résistance d'un échantillon en fonction du champ magnétique, on utilise la méthode de *détection synchrone*. Pour cela, on envoie un courant alternatif de fréquence  $F$  généralement comprise entre 20 kHz et 60 kHz et typiquement de quelques mA afin de ne pas chauffer l'échantillon ; c'est le *signal de référence*. Cette gamme de fréquences se justifie par la nécessité de s'éloigner tout d'abord des induits et ensuite des vibrations basses fréquences induites par la bobine lors du tir mais également des perturbations hautes fréquences comme l'effet de peau et l'influence de capacités parasites. Malgré toutes les précautions prises, des composantes additionnelles (bruit) s'ajoutent toujours à la tension mesurée aux bornes de l'échantillon. Un amplificateur à détection synchrone (*Lock-*

in *Amplifier* en anglais [LIA]), permet de s'en affranchir. Celui-ci multiplie le signal mesuré, constitué de la fréquence  $F$  et de ses harmoniques ainsi que des fréquences parasites, par le signal de référence de fréquence  $F$ . Ce signal est ensuite filtré par un filtre passe-bas. En ne détectant que les signaux de fréquences très proches de  $F$ , le LIA permet d'obtenir le signal que l'on cherche à mesurer. Le signal détecté est également caractérisé par la différence de phase du signal brut provenant de l'échantillon par rapport au signal de référence, qui est nulle dans le cas d'une résistance pure. Dans la réalité, cette différence n'est pas nulle principalement en raison des capacités parasites. En mesurant cette différence, le LIA permet ainsi de reconstituer la composante *en phase* et la composante *hors phase* du signal de l'échantillon.

Le principe d'une mesure de transport sous champ magnétique pulsé est assez simple. La chaîne de mesure est représentée sur la figure 3.4. Dans notre cas, le LIA nous sert uniquement à injecter le courant dans l'échantillon à la fréquence  $F$  souhaitée et à constituer le signal de référence. On fait l'acquisition de l'intégralité du signal (c'est-à-dire le signal de l'échantillon de fréquence  $F$  et le bruit) amplifié par un préamplificateur du type SR 560 (Stanford Research Systems) (typiquement par un gain  $G = 100$ ) et des autres signaux (pickup, signal de référence,...) par plusieurs cartes d'acquisition (une par voie) NI 5911 (National Instruments), qui présente une résolution de 19 bits à la fréquence d'échantillonnage  $F_{ech} = 500$  kHz.

Le signal est ensuite traité par un programme appelé *Lockin numérique*, qui réalise la détection synchrone de la même façon qu'un LIA, mais *après* l'acquisition des données. On a donc la possibilité de choisir les différents paramètres d'analyse après la mesure. Ceci est particulièrement intéressant en ce qui concerne la constante de temps  $\tau$ , qui correspond à la durée pendant laquelle la détection intègre la moyenne glissante du signal et sa phase. Un mauvais choix de  $\tau$  pour l'acquisition du signal avec un LIA peut masquer des fréquences d'oscillation rapides de la magnétorésistance par exemple. De plus, ce programme permet de s'affranchir du délai de quelques constantes de temps au départ de l'acquisition due à l'électronique, ce qui permet d'avoir des signaux mesurés pendant la montée et la descente du champ confondus.

### 3.4 Mesure de l'effet Nernst sous champ magnétique pulsé

C'est la première fois que des mesures d'effet Nernst sont réalisées en champ magnétique pulsé. La difficulté réside dans le fait que le gradient thermique soumis à l'échantillon est continu et non alternatif. De ce fait, et contrairement aux mesures de transport, la mesure du signal de l'échantillon se fait en continu et on récupère l'intégralité du signal. Le dispositif est donc extrêmement sensible aux courants induits ainsi qu'à toutes sources de bruit ou de vibration extérieures. Par conséquent, nous n'avons pu effectuer nos mesures que dans une bobine 36 T car beaucoup moins bruyante que les bobines 60 T "nouvelle génération". En outre, comme nous l'avons déjà souligné, lors d'une mesure en champ pulsé, l'utilisation d'un porte échantillon métallique est proscrite, ce qui rend la thermalisation plus difficile à réaliser.

Nous allons dans la suite présenter le dispositif expérimental puis décrire la procédure de mesure afin d'extraire le signal Nernst, tout en s'affranchissant des tensions induites et de la composant longitudinale du signal.

### 3. Techniques expérimentales

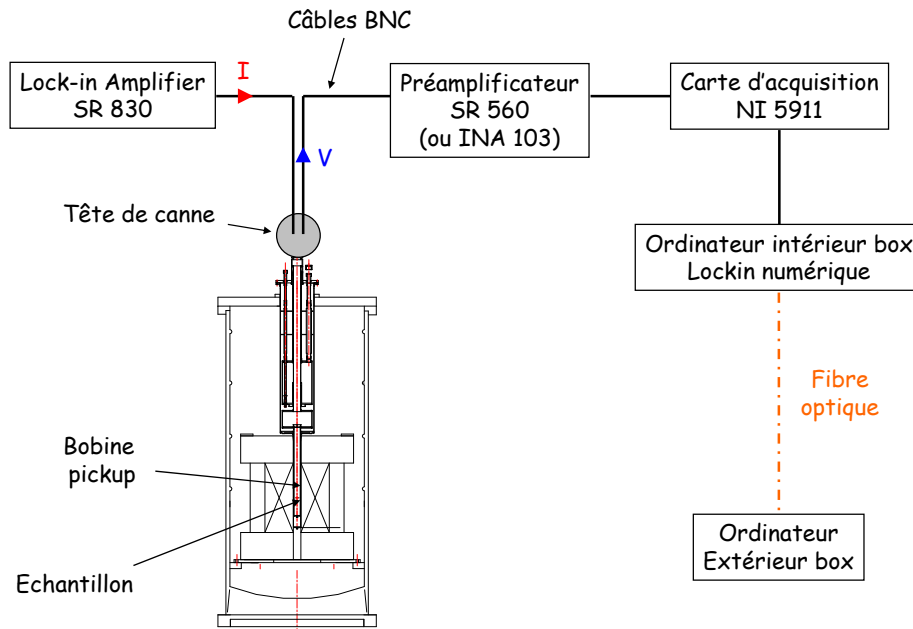


Figure 3.4 – Dispositif expérimental d’une mesure de transport sous champ magnétique pulsé.

#### 3.4.1 Description du dispositif expérimental

Le dispositif expérimental du bas de la canne de mesure est présenté sur la figure 3.5. Celui-ci est constitué de plusieurs parties distinctes :

- Le porte échantillon en plastique sur lequel sont placés tous les éléments utiles à la mesure.
- Le doigt froid est en LiF, qui possède une grande conductivité thermique à basse température. Il est couplé au bain d’hélium soit par une fine plaque de cuivre soudée à une pièce en laiton située loin de l’échantillon, soit grâce à du gaz d’échange que l’on met dans l’insert de la canne.
- Le support de l’échantillon est en alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ). Les dimensions de cette pièce ont été calculées de façon à pouvoir inverser la direction du gradient thermique (cf ci-dessous).
- Le chauffage et le gradient thermique sont créés par deux résistances d’oxyde de ruthénium ( $\text{RuO}_2$ ) placées de part et d’autre de l’échantillon et reliées à celui-ci par un fil. Après réduction de la couche d’isolant et de la taille de ces résistances, celles-ci font typiquement quelques dizaines d’ohms. On envoie alors un courant de  $\sim 100$  nA dans ces résistances et la puissance dissipée par effet Joule engendre le gradient de température dans l’échantillon. La valeur de la puissance dissipée est contrôlée par une source de courant DC. Typiquement, le gradient thermique mesuré (à champ nul) est de l’ordre de  $\sim 1$  K.
- La température moyenne et le gradient thermique sont déterminés par deux thermocouples Chromel/Constantan (type E), collés de chaque côté de l’échantillon. Ces thermocouples sont ceux qui présentent la plus grande  $fem$  à très basse température, ce qui rend leur utilisation adéquate à nos mesures. De plus, ils sont non magnétiques. La température de référence est celle d’un thermomètre (Cernox) collé sur le doigt froid

en LiF proche de l'échantillon et dont la résistance est mesurée à l'aide d'un LIA. La tension de chaque thermocouple est amplifiée par un amplificateur DC nanovoltmètre (A10 EMelectronics), de gain 1000, et mesurée par à un multimètre (Keithley 2000). La mesure ne pouvant être faite pendant le tir, la température et le gradient thermique sont mesurés avant et après le tir.

- Les fils de mesure de la tension  $V_{xy}$  du signal Nernst sont en cuivre de diamètre  $50 \mu\text{m}$ . La qualité de cette canne réside dans le fait que les fils sont directement reliés à l'échantillon et soudés à un connecteur BR2 dans la tête de canne, sans connexion intermédiaire. En effet, dans le cas de mesures de tension continue, il convient de limiter au maximum les connexions pouvant induire des tensions thermoélectriques parasites. Les signaux étant très faibles ( $\sim \mu\text{V}$ ), on utilise un amplificateur de type INA 103 qui a un facteur de bruit de  $\simeq 1\text{nV}/\sqrt{\text{Hz}}$  puis l'acquisition du signal est faite par une carte d'acquisition National Instrument de résolution 16 bits contrôlée par un ordinateur à l'intérieur du box de mesure.

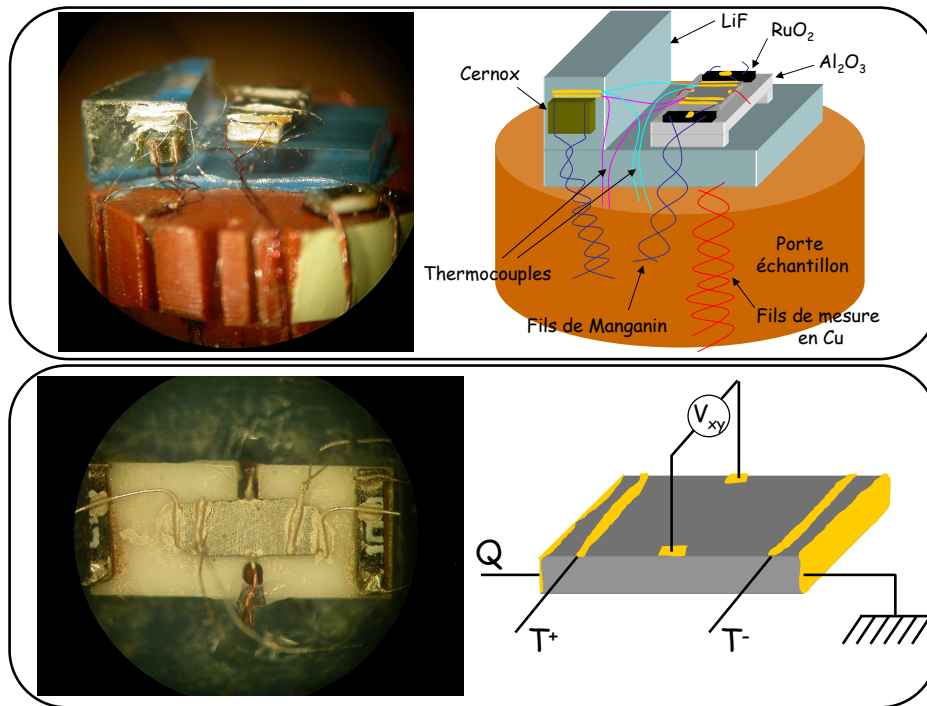


Figure 3.5 – Photo et schéma du porte échantillon et de l'échantillon lors d'une mesure d'effet Nernst.

### 3.4.2 Procédure de mesure

La tension aux bornes de l'échantillon au cours d'un tir peut s'écrire :

$$V = V_{xx} + V_{xy} + V_{ind} \quad (3.6)$$

où  $V_{xx}$  est la composante longitudinale qui apparaît si les contacts ne sont pas bien alignés,  $V_{xy}$  est la tension transverse que nous recherchons et  $V_{ind}$  est la tension induite par le champ pulsé. Les quantités  $V_{xy}$  et  $V_{ind}$  étant impaires en champ, la solution pour éliminer la tension

### 3. Techniques expérimentales

---

$V_{xx}$  consiste à faire deux mesures : l'une avec un champ Up et l'autre avec un champ Down. Reste le problème des induits. En effet, d'après la *loi de Faraday*, on a :

$$\nabla \wedge \mathbf{E} = \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \implies \int \mathbf{E} \cdot d\mathbf{l} = - \int \int \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \cdot d\mathbf{S} \implies e = - \frac{d\phi}{dt} \quad (3.7)$$

Or, nous avons vu qu'en présence d'un gradient thermique  $\nabla T$ , le vecteur densité de courant est donné par :

$$\mathbf{J}_e = \sigma \mathbf{E} - \frac{\alpha}{T} \nabla T \quad (3.8)$$

ce qui nous donne :

$$e = - \frac{d\phi}{dt} + \frac{\rho\alpha}{T} \int \nabla T \cdot d\mathbf{l} \quad (3.9)$$

On voit ainsi qu'un terme dépendant du gradient thermique et du pouvoir thermoélectrique  $\alpha$  (qui dépend du champ magnétique) vient s'ajouter à la tension induite en l'absence de gradient  $e$ . Afin de s'en affranchir, il convient de faire une mesure avec le gradient dans un sens et une autre avec le gradient dans l'autre.

Au final, on obtient, pour chaque température, une série de quatre mesures à réaliser afin de s'affranchir à la fois de  $V_{xx}$  et des induits. On a donc :

$$\begin{cases} V_{up}^+ = V_{xx} + V_{xy} + V_{ind} \\ V_{down}^+ = V_{xx} - V_{xy} - V_{ind} \end{cases} \quad \begin{cases} V_{up}^- = -V_{xx} - V_{xy} + V_{ind} \\ V_{down}^- = -V_{xx} + V_{xy} - V_{ind} \end{cases}$$

On défini :

$$T_{avg} = \frac{T^+ + T^-}{2} \quad \text{et} \quad \Delta T = T^+ - T^- \quad (3.10)$$

où  $T^+$  et  $T^-$  les températures relevées sur chacun des thermocouples. La température  $T_{avg}$  est la température moyenne au niveau de l'échantillon et  $\Delta T$  est le gradient de température. En définissant les quantités :

$$diff_{up} = \frac{V_{up}^+ - V_{up}^-}{\Delta T_{up}^+ + \Delta T_{up}^-} \quad \text{et} \quad diff_{down} = \frac{V_{down}^+ - V_{down}^-}{\Delta T_{down}^+ + \Delta T_{down}^-} \quad (3.11)$$

on obtient finalement :

$$N = \frac{diff_{up} - diff_{down}}{2} \quad (3.12)$$

qui est le signal Nernst que l'on cherche à mesurer.

## Chapitre 4

# Mesures d'oscillations quantiques et d'effet Hall dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ sous-dopé

### 4.1 Problématique

Depuis maintenant plus de vingt ans, la recherche sur les supraconducteurs à haute température critique suscite beaucoup d'intérêt. Cependant, la phase pseudogap reste toujours aussi mystérieuse. Alors qu'un état liquide de Fermi avec une grande surface de Fermi caractérise convenablement les cuprates dans le régime surdopé, des mesures d'ARPES du côté sous-dopé du diagramme de phase suggèrent que les quasiparticules sont seulement cohérentes le long d'*arcs de Fermi* autour des régions nodales. Dans ce chapitre, nous rapportons la première observation d'oscillations quantiques de la résistance [effet Shubnikov-de Haas (SdH)] dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  et  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.67}$ . Ces oscillations sont caractéristiques d'un comportement liquide de Fermi et la faible fréquence d'oscillations est en contradiction avec la grande orbite observée du côté surdopé du diagramme de phase par d'autres sondes expérimentales.

Après avoir montré l'intérêt d'étudier le composé YBCO, nous présentons dans un premier temps les résultats d'oscillations quantiques obtenus dans le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  ( $p=0.1$ ) (orienté suivant l'axe  $a$  ou l'axe  $b$ ). L'analyse des données nous a permis de déterminer la masse effective cyclotron des quasiparticules et d'estimer la densité de porteurs. Nous présentons ensuite les résultats obtenus dans le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ , dont la fréquence des oscillations SdH et la masse effective cyclotron sont comparables à celles observées dans ortho-II. Ces résultats suggèrent que la surface de Fermi est composée de petites poches et que c'est un comportement générique des plans  $\text{CuO}_2$  des cuprates sous-dopés YBCO.

Ensuite, nous présentons des mesures d'effet Hall réalisées dans trois composés YBCO sous-dopés pour trois différents dopages :  $p=0.1$ ,  $0.12$  et  $0.14$ . L'application d'un fort champ magnétique nous permet d'accéder à l'état normal. Il apparaît que l'effet Hall est négatif à basse température, ce qui peut paraître surprenant pour un composé dopé en trous.

### 4.2 Pourquoi étudier $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ ?

Au cours du travail de cette thèse, nous nous sommes intéressé aux propriétés de transport des supraconducteurs à haute température critique à base d'yttrium. L'essentiel des résultats de cette thèse repose sur la très grande pureté des échantillons mesurés, qui nous ont été fournis par Doug Bonn, Walter Hardy et Ruixing Liang de l'Université de Colombie Britannique (UBC) (Canada) et par S. Adachi de l'International Superconductivity Cen-

## 4. Mesures d'oscillations quantiques et d'effet Hall dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ sous-dopé

---

ter de Shinonome (Japon). Dans un premier temps nous discutons de l'intérêt d'étudier ces composés puis nous évoquons la richesse de leur structure cristalline en fonction de l'arrangement des atomes d'oxygène.

Nous avons étudié les composés  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  (Y123), où le dopage est contrôlé par le taux d'oxygène  $y$  et le composé stœchiométrique  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$  (Y124), pour lequel il n'est pas possible de faire varier le taux d'oxygène.

Plusieurs raisons existent quant au fait que la famille de cuprates YBCO reçoit une grande attention de la part des physiciens. La possibilité de réaliser la croissance de YBCO dans des creusets inertes de  $\text{BaZrO}_3$  permet d'obtenir des cristaux d'une très grande pureté (99.99-99.995%). La finesse du pic de rayons-X (*Rocking curves*) montre un haut degré de perfection cristalline [168]. La température critique maximale de ces cristaux est 93.7K pour  $y=6.91$ . La particularité de YBCO est que contrairement aux composés comme LSCO, le dopage se fait par oxygénation et non par substitution qui peut induire du désordre. Il est possible de sonder une grande partie du diagramme de phase allant de l'isolant de Mott ( $y=0$ ) au régime légèrement surdopé ( $y=7$ ). Enfin, pour des composés très sous-dopés, il est possible de modifier simplement le dopage car la concentration en oxygène peut varier sensiblement à température ambiante en fonction du temps [169]. Cependant, nous n'avons pas étudié d'échantillon dans cette gamme de dopage au cours de cette thèse.

### 4.2.1 Structure cristalline

La figure 4.1(a) représente la structure cristalline du composé YBCO, basée sur la structure pérovskite. La cellule unité contient deux plans  $\text{CuO}_2$  adjacents ( $n=2$ ) séparés d'environ  $3.2\text{\AA}$  et représentés sur ce dessin par des polyèdres. Les oxygène introduits pour doper le matériau se placent dans des chaînes Cu-O dirigées suivant l'axe  $b$ , situées entre les plans isolants Ba-O et les plans  $\text{CuO}_2$  (une chaîne par cellule unité). La valence des atomes de Cuivre se retrouve modifiée; des électrons sont arrachés créant alors des trous mobiles dans les plans. Pour  $y=0$  la structure est tétragonale. En augmentant le dopage, de plus en plus d'oxygènes sont dans les chaînes et pour  $y \geq 6.35$ , l'axe  $b$  s'allonge, causant une transition tétragonale-orthorhombique. Ces chaînes jouent alors le rôle de réservoirs de charges pour les plans  $\text{CuO}_2$ . A température ambiante, ces chaînes contribuent à la conductivité électronique, comme le montre l'anisotropie de la résistivité dans le plan dans une certaine gamme de dopage [170].

### 4.2.2 Les phases ordonnées en oxygènes

La façon dont les atomes d'oxygène s'ordonnent dans les chaînes entraînent la formation de superstructures. Les différents ordres possibles se répètent suivant l'axe  $a$ . Dans le cas du composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ , les chaînes Cu-O sont complètement remplies (autrement dit, il n'y a aucun site oxygène vacant). Cette structure, notée ortho-I, est de type 3D, ordonnée à longue distance mais une transition de phase est parfois observée à très basse température, caractérisée par une mise en place des chaînes en domaine tournés de  $90^\circ$  (celles-ci peuvent se mettre perpendiculaires les unes aux autres) et causant un doublement de la cellule unité suivant l'axe  $b$ . Ce phénomène, appelé *mâclage*, peut être facilement observé avec un microscope à lumière polarisée.

Plusieurs superstructures sont observées en fonction de la concentration en oxygène et celles-ci ont pu être mises en évidence grâce à des mesures de microscopie électronique (diffraction de rayon-X à haute énergie) [172]. Des réflexions des superstructures avec une périodicité  $ma$  suivant l'axe  $a$  au vecteur du réseau réciproque  $\vec{Q} = (n/m, 0, 0)$ , où  $n$  et



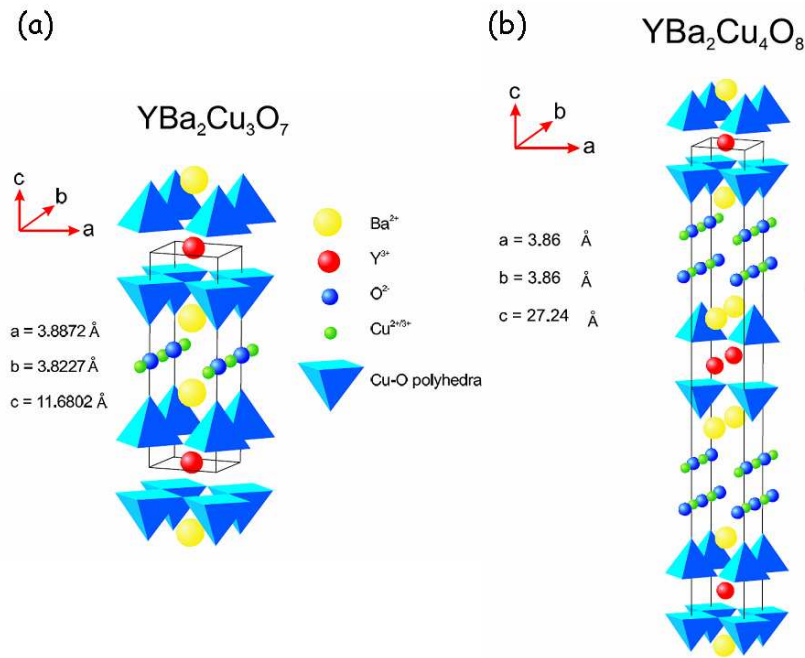


Figure 4.1 – (a) Représentation schématique de la cellule unité du cuprate supraconducteur  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ . Les plans  $\text{CuO}_2$ , symbolisés par des polyèdres, sont séparés par des plans isolants, rendant la structure principalement bidimensionnelle. La particularité du composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  est l'existence de chaînes Cu-O dirigées suivant l'axe  $b$  et qui jouent le rôle de réservoirs de charges. (b) Structure cristalline de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ . La cellule unité contient deux plans  $\text{CuO}_2$  et deux chaînes Cu-O. Ce composé est stoechiométrique et naturellement peu désordonné. D'après [171].

$m$  sont des entiers ( $m$  correspondant à la périodicité de la superstructure), ont été observées. Différents ordres, correspondants à  $m=2, 3, 4$  et  $5$  ont ainsi été mis en évidence expérimentalement, appelés ortho-II, ortho-III, ortho-IV et ortho-VIII respectivement. Dans l'espace réel, ces superstructures sont caractérisées par différentes séquences de chaînes Cu-O vides et pleines, causant un agrandissement de la cellule unité d'un facteur  $m$  suivant l'axe  $a$ . Une représentation schématique de l'organisation des chaînes est représentée sur la figure 4.2.

Un diagramme de phase structural des phases ordonnées en oxygène dans YBCO a été construit à partir d'une compilation de mesures de diffraction de rayon-X (figure 4.3). Les seules structures à l'équilibre sont la phase ortho-I et la phase tétragonale, toutes les autres superstructures citées précédemment ne présentant pas d'ordre à longue distance. Pour  $y < 6.35$ , seule la phase tétragonale est observée. En dessous de la transition tétragonale-orthorhombique, la phase ortho-I (3D) se développe et c'est la seule structure observée pour  $y > 6.82$ . Pour  $6.35 < y < 6.62$ , on observe la phase ortho-II, superstructure stable qui présente un ordre 3D à courte distance. De la même manière, seule une phase ortho-III est observée pour  $6.72 < y < 6.82$ . Des mélanges de phases sont également observées comme par exemple entre une phase ortho-II et une phase ortho-V vers  $y=6.62$ . La phase ortho-VIII est

## 4. Mesures d'oscillations quantiques et d'effet Hall dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ sous-dopé

observée lorsque l'échantillon est refroidi très lentement à partir de la température ambiante, vers  $y=6.67$ .

Cependant, même lorsque le nombre moyen d'oxygène dans le composé est constant, la disposition des oxygènes dans les chaînes peut varier. En effet, il a été montré que la température critique varie selon la manière dont est refroidi l'échantillon entre la phase tétragonale désordonnée et une phase orthorhombique ordonnée, bien que la concentration en oxygène soit fixée. Ceci démontre que l'ordre des atomes d'oxygènes a une réelle influence sur les propriétés supraconductrices du composé YBCO [173, 174]. Par exemple, il a été observé qu'un échantillon sous-dopé a une plus faible température critique lorsqu'il est refroidi rapidement après croissance que s'il est laissé à température ambiante un certain temps. En outre, l'ordre des chaînes pour un échantillon quenché s'améliore avec le temps.

De façon générale, la température critique d'échantillons à l'équilibre varie dans la phase orthorhombique entre 35 K pour  $y=6.35$  et 93 K pour  $y=6.93$ , correspondant à un composé optimalement dopé, et présente un plateau à 60 K vers  $y=6.5$ .

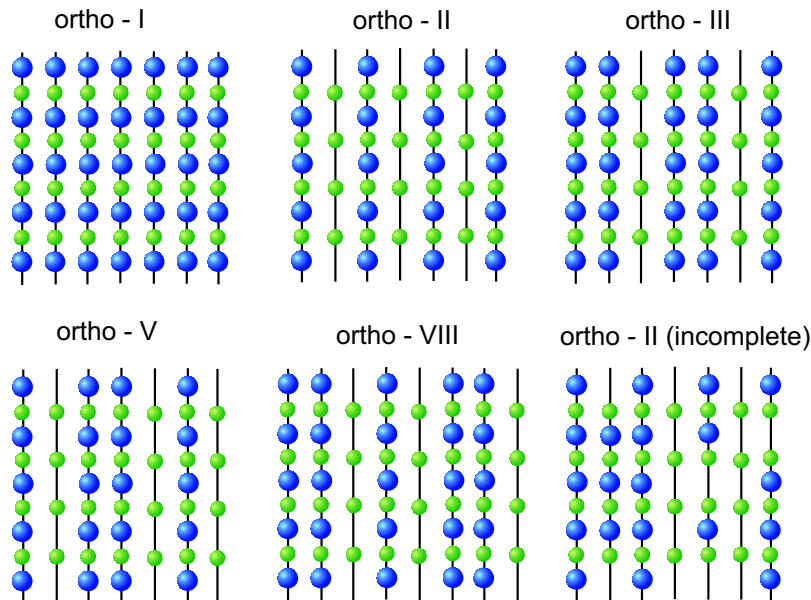


Figure 4.2 – Représentation schématique des différents ordres observés dans les chaînes Cu-O dans le composé YBCO. Ces chaînes sont dirigées suivant l'axe  $b$ . Les cercles bleus représentent les atomes d'Oxygène et les cercles verts les atomes de Cuivre. D'après [171].

### 4.2.3 Le composé $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$

Le composé supraconducteur  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$  (Y124) est stœchiométrique, donc intrinsèquement ordonné. La cellule unité de Y124, représentée sur la figure 4.1(b), contient deux plans  $\text{CuO}_2$  et deux chaînes Cu-O qui sont complètement pleines en oxygènes. La présence de deux chaînes proscrit tout effet de mâclage lors de la croissance.

Ce composé est également situé du côté sous-dopé du diagramme de phase, avec une  $T_c \simeq 80\text{K}$ , correspondant à un dopage de  $p \approx 0.14$ .

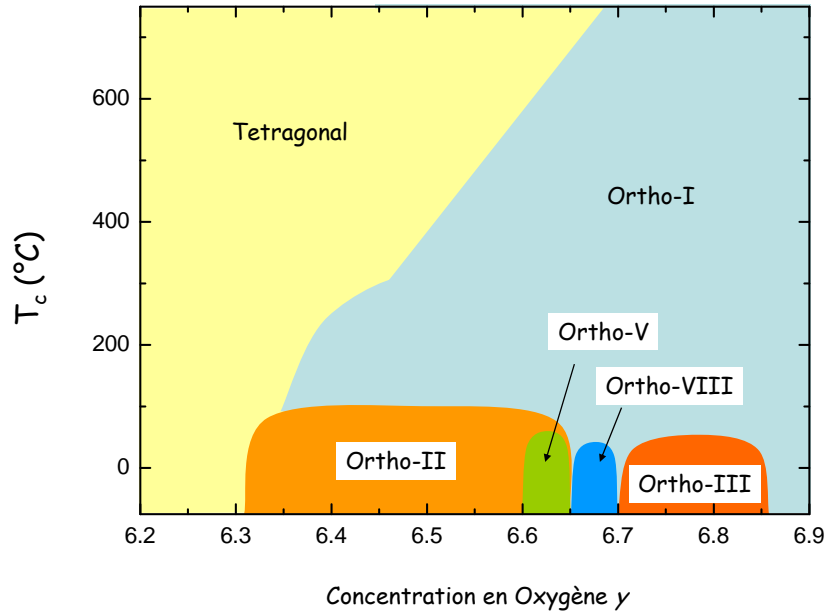


Figure 4.3 – Diagramme de phase structural température en fonction du dopage des différentes phases observées dans YBCO. D’après [172].

#### 4.2.4 Préparation et caractérisation des échantillons Y123

La croissance cristalline de monocristaux d’YBCO est réalisée par la méthode dite de *self-flux*, qui requiert que le mélange des poudres à haute température  $\text{Y}_2\text{O}_3\text{-BaO-CuO}$  soit placé dans un creuset. Le mélange de poudres étant très réactif, une contamination par le creuset constitue la principale source d’impuretés dans le cristal. Pendant longtemps, les cristaux étaient synthétisés dans des creusets YSZ en raison de la faible solubilité de  $\text{Zr}^{4+}$  à la fois avec le mélange et le réseau YBCO. Cependant, les creusets YSZ sont réactifs, créant des particules  $\text{BaZrO}_3$ , qui sont supposées être inertes dans le mélange. La fabrication d’un creuset céramique, inerte et insoluble dans le mélange  $\text{BaZrO}_3$ , par Erb *et al.*, a rendu possible la synthèse d’échantillons avec une pureté de l’ordre de 99.995% [175, 176]. En réussissant à leur tour la fabrication de creusets non-réactifs de  $\text{BaZrO}_3$ , Ruixing Liang *et al.* sont parvenus à réaliser des échantillons d’une très grande pureté (99.99-99.995%) mais également caractérisés par un degré de perfection cristalline très élevé, comme le montrent la finesse du pic de diffraction de rayon-X et la faible ligne d’irréversibilité magnétique [168].

Des monocristaux de deux dopages différents nous ont été fournis par l’UBC lors des mesures de cette thèse : Y123-ortho-II ( $y=6.5$ ) et Y123-ortho-VIII ( $y=6.67$ ). Les grandes longueurs de corrélation des chaînes ordonnées, de l’ordre de plusieurs dizaines d’Å dans ortho-II, attestent de la qualité de l’ordre dans ces échantillons [177]. Les échantillons fournis ne sont ni coupés ni polis.

Afin de déterminer la température critique supraconductrice, nous avons procédé à des mesures de résistivité en champ nul. La figure 4.4 présentent la résistivité  $\rho$  à champ nul dans le plan et suivant l’axe  $a$  ( $I/a$ ) dans un échantillon avec  $y=6.5$  (ortho-II a1) et un échantillon avec  $y=6.67$  (ortho-VIII a5). La température critique est définie quand  $\rho=0$ . On trouve alors pour l’échantillon ortho-II a1  $T_c=57$  K et pour l’échantillon ortho-VIII a5  $T_c=65.4$  K.

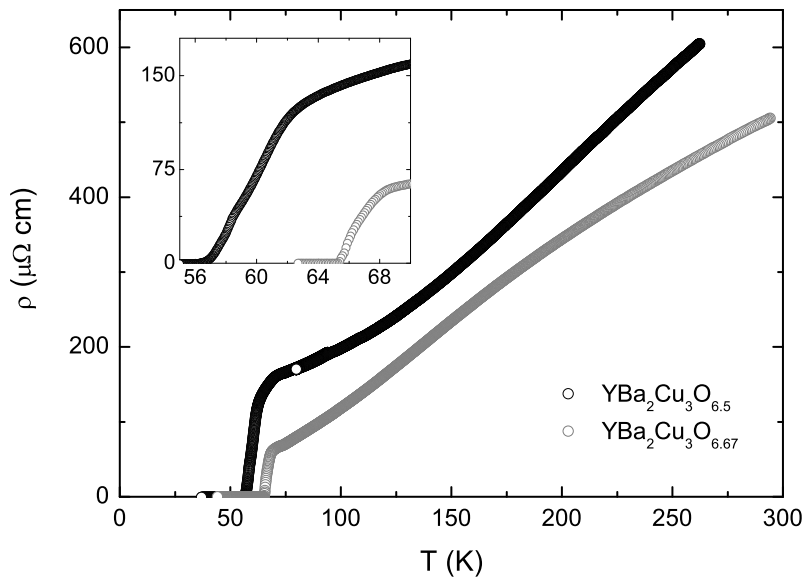


Figure 4.4 – Résistivité suivant l’axe  $a$  de deux composés  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  sous-dopés, fournis par le groupe de l’UBC. L’insert montre un zoom de la transition supraconductrice, où  $T_c$  est définie lorsque  $\rho \sim 0$ .

#### 4.2.5 Préparation et caractérisation des échantillons Y124

Les composés  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$  124 ont été synthétisés par N. Hussey de l’université de Bristol (Angleterre) et S. Adachi du Superconducting Research Laboratory à Tokyo (Japon) afin de réaliser des mesures de transport sous champ magnétique. La croissance cristalline de ces composés est réalisée par une méthode dite de *self-flux* sous haute pression (2000 bar) d’un gaz composé de 80% d’Ar et 20% d’ $\text{O}_2$  dont le mélange de poudre ( $\text{Y}_2\text{O}_3$ ,  $\text{BaCO}_3$  et  $\text{CuO}$ ) est placé dans des creusets  $\text{Y}_2\text{O}_3$ , pour lesquels aucun dopage avec des atomes extérieurs au système n’est attendu, et dans un appareil  $\text{O}_2$ -HIP [178]. Des échantillons orientés suivant l’axe  $a$  et l’axe  $b$  étaient présents dans le lot d’échantillons fournis.

De la même manière que pour les composés Y123, nous avons mesuré la résistivité  $\rho$  en champ nul dans les composés Y124 étudiés. La figure 4.5 présente la résistivité d’un composé Y124, avec une  $T_c=81.8$  K et  $\Delta T_c \approx 1.5$  K.

#### 4.2.6 Détermination du dopage $p$ des échantillons

Dans le cas des cuprates comme  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ , la détermination du dopage est simple puisque  $p$  est simplement égal à la concentration d’atomes substitués. En revanche, dans le cas de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ , le dopage se fait en augmentant la concentration en oxygène. Déterminer  $p$  nécessite non seulement de connaître la concentration  $y$  en oxygène, mais également l’ordre des oxygènes dans les chaînes. La relation 2.19 peut cependant être utilisée mais elle n’est pas correcte dans la région autour de  $p=1/8$ . R. Liang *et al.* ont montré que la concentration de porteurs  $p$  dans les plans  $\text{CuO}_2$  peut être déterminée à partir de la longueur de l’axe

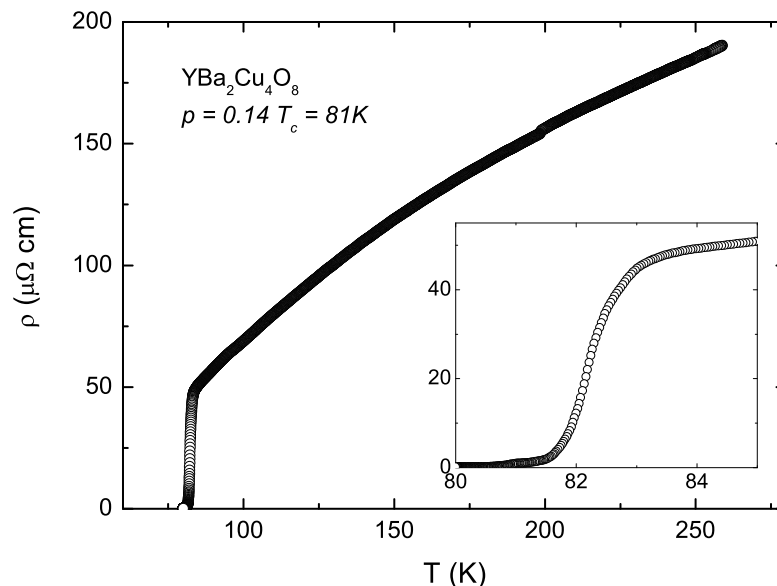


Figure 4.5 – Résistivité suivant l’axe  $a$  d’un composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$  sous-dopés, fournis par S. Adachi du Superconducting Research Laboratory (Tokyo). L’insert montre un zoom de la transition supraconductrice, où  $T_c$  est définie lorsque  $\rho \sim 0$ .

$c$ , mesurée par diffraction de rayon-X à température ambiante ( $22^\circ\text{C}$ ) [179]. La relation empirique entre le dopage  $p$  et la longueur  $c$  pour YBCO est donnée par :

$$p = 11.491y + 5.17 \times 10^9 y^6 \quad (4.1)$$

où  $y = 1 - c/c_0$  avec  $c_0 = 1.18447$  nm (à  $22^\circ\text{C}$ ) le paramètre du réseau suivant l’axe  $c$  à dopage nul ( $y=6$ ). La relation 4.1 permet de facilement déterminer  $p$  sur toute la gamme de dopage pour YBCO et rend compte du plateau observé vers  $p=1/8$ .

A partir de l’équation 4.1 et de la mesure de  $T_c$ , on peut maintenant estimer la concentration en trou par plan  $\text{CuO}_2$  pour chacun des échantillons. Ainsi, on trouve que  $p=0.099 \approx 0.1$  pour  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ ,  $p=0.12$  pour  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.67}$  et  $p=0.137 \approx 0.14$  pour  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ <sup>1</sup>

#### 4.2.7 Récapitulatif des échantillons mesurés

Dans le tableau 4.1, on récapitule les principales propriétés des échantillons étudiés.

1. On suppose que le dopage de Y124 est le même qu’un échantillon Y123 avec la même  $T_c=80$  K.

## 4. Mesures d'oscillations quantiques et d'effet Hall dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ sous-dopé

Echantillon	$T_c$ (K)	$p$ trous/Cu
$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ a1	57	0.1
$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ a2	58.6	0.1
$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ b1	60.6	0.1
$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.54}$ O2p10010-5	60.2	0.1
$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.67}$ a5	65.4	0.12
$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.67}$ b5	66.4	0.12
$\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ YTA2	81.8	0.14
$\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ YTB1	81	0.14
$\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ YTA10	82.5	0.14

TABLE 4.1 – Température critique  $T_c$ , déterminée à partir des mesures de résistivité, et valeur du dopage en trous  $p$ , déterminé à partir de 4.1 pour les échantillons sous-dopés YBCO étudiés.

### 4.3 Oscillations quantiques dans l'état normal d'YBCO sous-dopé

#### 4.3.1 Effet Shubnikov-de Haas dans l'état normal de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$

Nous avons mesuré la magnétorésistance transverse et l'effet Hall de trois échantillons sous-dopés  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  ( $p=0.1$ ). Les échantillons (deux orientés suivants l'axe  $a$ , un suivant l'axe  $b$ ) ont été synthétisés par le groupe de l'UBC. Leurs températures de transition supraconductrice est autour de 58 K.

Il est important de souligner que l'observation d'oscillations quantiques dans l'état normal des cuprates sous-dopés résulte de (i) la très grande pureté des échantillons, (ii) des champs magnétiques intenses pour détruire la supraconductivité et (iii) un rapport signal sur bruit optimisé.

Nous avons mesuré la magnétorésistance transverse  $R_{xx}$  et la résistance de Hall  $R_{xy}$  dans le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  jusqu'à 62 T. Le champ est appliqué perpendiculairement aux plans  $\text{CuO}_2$  ( $B//c$ ) et le courant suivant l'axe  $a$  ou suivant l'axe  $b$  selon l'échantillon.

##### 4.3.1.1 Effet Shubnikov-de Haas dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ a1

La figure 4.6 montre l'opposée de la résistance de Hall en fonction du champ magnétique entre 30 T et 62 T pour un échantillon orienté suivant l'axe  $a$  et à différentes températures entre 1.5 K et 4.2 K. Un état résistif est restauré au dessus du champ d'irréversibilité  $B_{irr} \approx 30$  T. L'un des résultats majeurs présentés dans cette thèse est l'observation d'oscillations quantiques de la résistance de Hall. Ces oscillations, de faible amplitude, ne représentent que quelques pourcents du signal total au champ maximum ( $< 10\%$ ). Le comportement de ces oscillations est clairement compatible avec un effet SdH. En effet, l'amplitude des oscillations augmente avec le champ et lorsque la température diminue, ce qui est caractéristique d'oscillations quantiques.

L'encart de la figure 4.6 montre la dépendance en champ magnétique de  $-R_{xy}$  entre 1.5 K et 11 K. L'évolution de l'amplitude des oscillations dépend du facteur de réduction thermique sur les oscillations quantiques : celles-ci sont encore visibles à 7.5 K mais sont totalement absentes à 11 K.

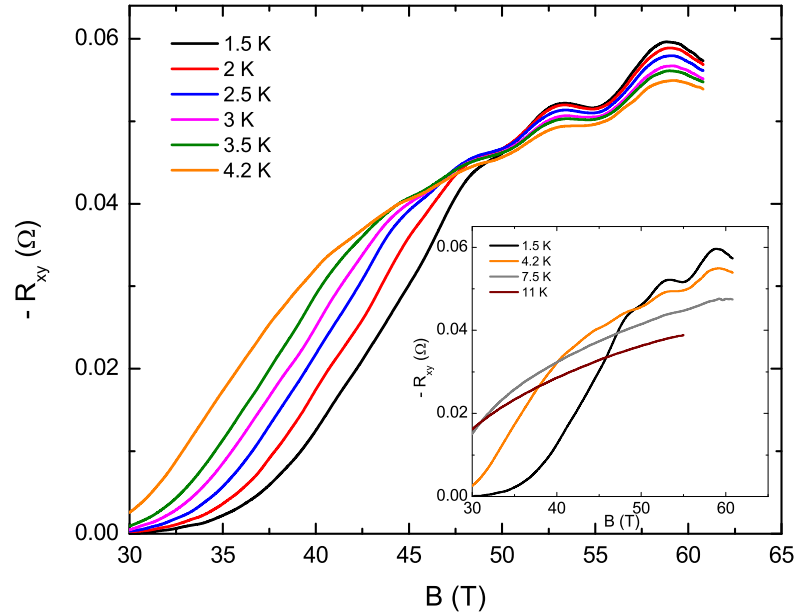


Figure 4.6 – Résistance de Hall  $-R_{xy}$  dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  en fonction du champ magnétique pour des températures comprises entre 1.5 K et 4.2 K. Le champ est appliqué selon la normale aux plans  $\text{CuO}_2$  et le courant est suivant l'axe  $a$ . En encart : Résistance de Hall  $-R_{xy}$  dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  en fonction du champ magnétique pour des températures comprises entre 1.5 K et 11 K. Alors que les oscillations sont encore perceptibles à 7.5 K, elles sont totalement absentes à 11 K.

Il convient de déterminer et de tracer la partie oscillatoire de la résistance de Hall. Celle-ci est obtenue en soustrayant une partie monotone, déterminée *à l'oeil*, des courbes brutes de  $R_{xy}$  pour chaque température. La figure 4.7(a) présente les parties monotones pour chaque température entre 1.5 K et 4.2 K et la figure 4.7(b) montre un zoom de la courbe à  $T=2$  K entre 45 T et 61 T .

La partie oscillatoire de la résistance de Hall à basse température est représentée sur la figure 4.8(a) en fonction de l'inverse du champ magnétique entre 40 T et 61 T. Par souci de clarté, les courbes sont décalées les unes par rapport aux autres. Trois oscillations périodiques en  $1/B$  sont ainsi clairement mises en évidence. L'écart entre les maximums, correspond à une fréquence d'oscillations de  $F = (530 \pm 20)$  T. Cette fréquence est confirmée lorsque l'on effectue des transformées de Fourier (TF) de la partie oscillatoire de  $R_{xy}$  à  $T = 2$  K dans la fenêtre de champ [45 T-60.5 T] (figure 4.8(b)). La largeur du pic est due au fait que seulement trois oscillations sont mesurées dans cette gamme de champ. Cette TF montre qu'une seule fréquence d'oscillation est observée, dans la gamme de champ et de

#### 4. Mesures d'oscillations quantiques et d'effet Hall dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ sous-dopé

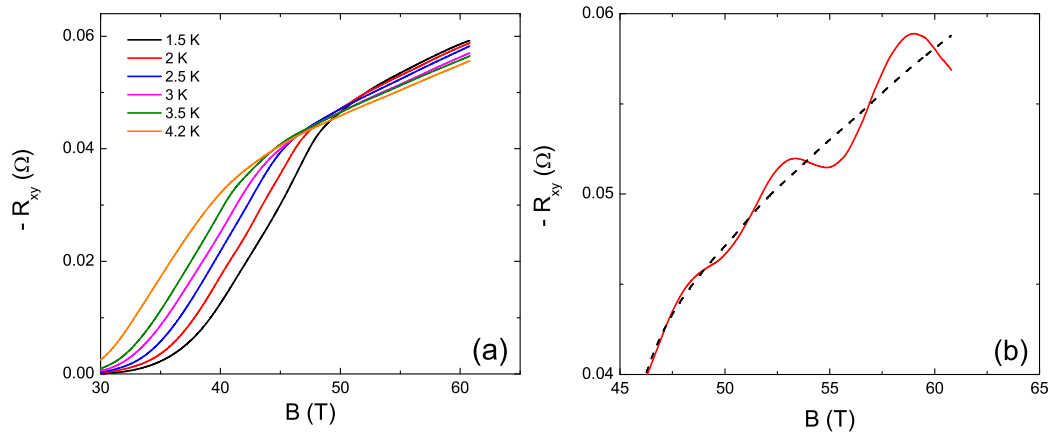


Figure 4.7 – (a) Partie monotone, déterminée à l'œil, des courbes de la résistance de Hall en fonction du champ magnétique pour différentes températures entre 1.5 K et 4.2 K. (b) Zoom de la courbe de  $-R_{xy}$  à  $T=2$  K avec la monotone soustraite en pointillé.

température étudiés.



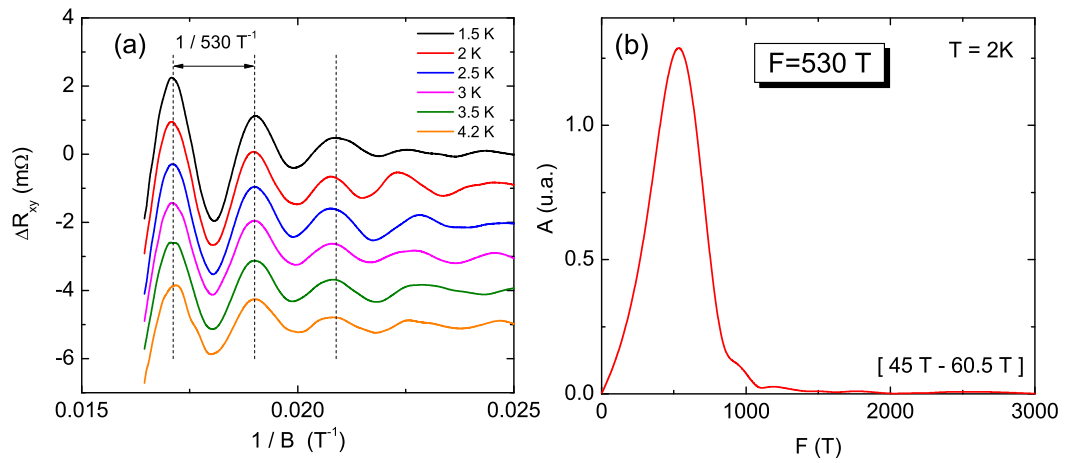


Figure 4.8 – (a) Parties oscillatoires de la résistance de Hall  $R_{xy}$  dans  $YBa_2Cu_3O_{6.5}$  obtenues en soustrayant les monotones (cf fig.4.7) en fonction de l'inverse du champ magnétique  $1/B$ . (b) Transformée de Fourier de la partie oscillatoire de la résistance de Hall à  $T=2 K$ . Un seul pic est observé à la fréquence  $F=(530 \pm 20) T$ .

#### 4. Mesures d'oscillations quantiques et d'effet Hall dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ sous-dopé

Sur la figure 4.9, on a reporté les positions des maxima ou des minima de la partie oscillatoire de  $R_{xy}$  en fonction de l'indice des niveaux de Landau (graph d'Onsager). Ces points peuvent alors être ajustés par une droite d'équation  $1/B_n = (n + \gamma)/F$ , dont la pente donne la fréquence d'oscillation et son extrapolation à l'origine la phase  $\gamma$ . Le meilleur accord entre les données et la formule d'Onsager donne  $F = (536 \pm 4)$  T et  $\gamma = 0.17 \pm 0.1$ . On constate que les oscillations observées correspondent aux niveaux de Landau situés entre  $n=9$  et  $n=12$ .

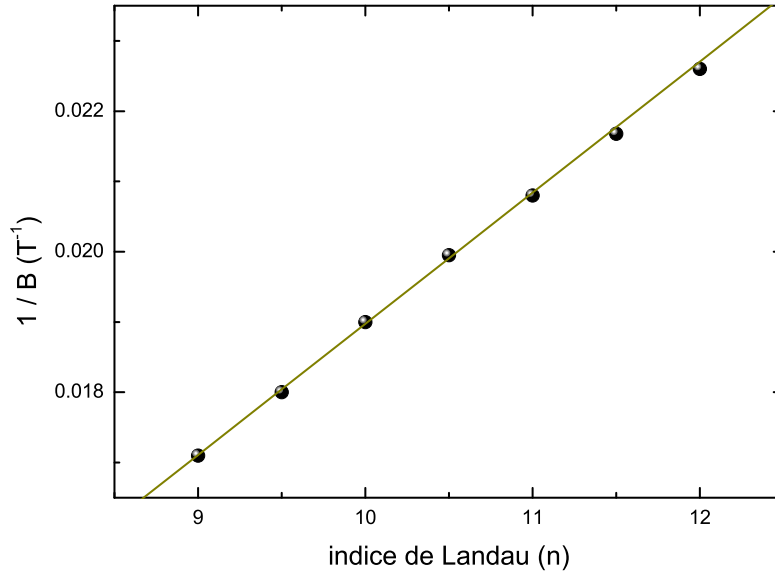


Figure 4.9 – Graphe d'Onsager associée à la courbe obtenue à  $T = 3$  K. La ligne continue représente le meilleur accord entre les données et la formule de  $1/B_n = (n + \gamma)/F$ , où  $n$  est l'indice du niveau de Landau, obtenue avec  $F=(536 \pm 4)$  T et  $\gamma= 0.17 \pm 0.1$ .

#### 4.3.1.1.1 Détermination de la masse effective cyclotron

La dépendance en température de l'amplitude du fondamental des parties oscillatoires permet d'extraire la masse cyclotron dans la gamme de champ [45 T - 60.5 T], correspondant au champ moyen  $B_{moy}=51.6$  T.

La figure 4.10 montre la dépendance en température de l'amplitude des oscillations  $A$  tracée comme  $\ln(A/T)$  en fonction de la température. La ligne en pointillé est un ajustement de la formule de Lifshitz-Kosevich (LK)  $\ln\left(\frac{A}{T}\right) = const - \ln\left[\sinh\left(\frac{\alpha m^*}{B_{moy}}\right)\right]$ , le meilleur accord conduisant à une masse cyclotron  $m^* = (1.9 \pm 0.1) m_0$ , où  $m_0$  est la masse de l'électron libre.

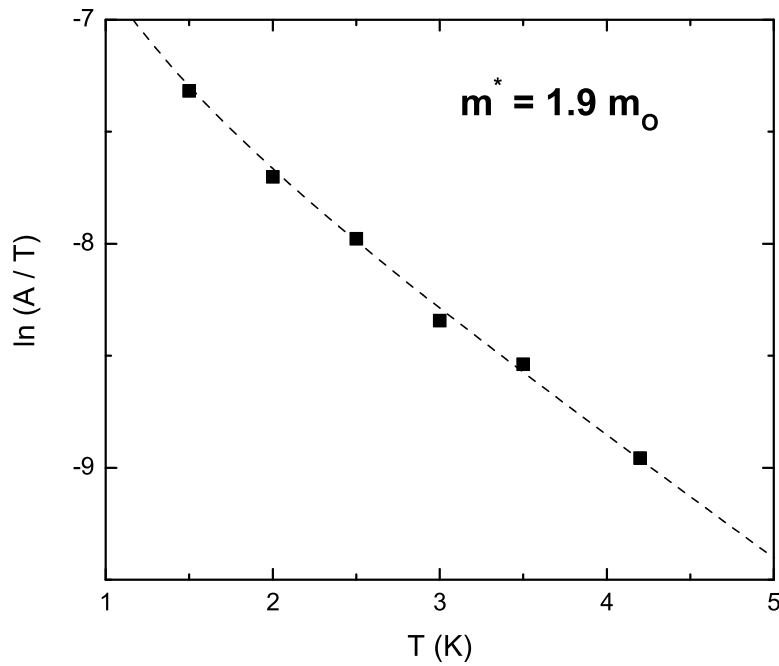


Figure 4.10 – Amplitude des oscillations  $A$  en fonction de la température, tracée comme  $\ln(A/T)$  en fonction de  $T$ . La ligne en pointillé est un ajustement de la formule de Lifshitz-Kosevich, dont le meilleur accord est obtenu avec  $m^*=(1.9 \pm 0.1) m_0$ , avec  $m_0$  la masse de l'électron libre.

4.3.1.1.2 Dépendance angulaire de la résistivité de Hall

En raison de la structure cristallographique des cuprates, la surface de Fermi est quasi-2D. Afin de vérifier cette propriété, nous avons mesuré la dépendance angulaire de l'effet SdH pour plusieurs températures jusqu'à 61 T. Pour cela, les conditions expérimentales ne nous permettant pas d'utiliser une canne tournante, nous avons utilisé des porte-échantillons dont le plan est incliné par rapport au champ magnétique. Nous avons ainsi pu mesurer l'effet SdH pour  $\theta=20^\circ$  et  $\theta=30^\circ$ , où  $\theta$  est l'angle entre le champ magnétique et l'axe  $c$  de l'échantillon. La figure 4.11(a) présente la partie oscillatoire de  $R_{xy}$  entre 40 et 61 T à 3 K pour différents angles. Par souci de clarté, les courbes sont décalées les unes par rapport aux autres. L'étude pour des angles supérieurs à  $30^\circ$  est impossible en raison de la forte anisotropie du champ critiques du champ d'irréversibilité qui augmentent lorsque le champ appliqué devient parallèle aux plans  $\text{CuO}_2$ .

En suivant la même procédure que précédemment, nous avons déterminé la fréquence d'oscillations pour chaque angle. La figure 4.11(b) montre la dépendance angulaire de la fréquence d'oscillation. Le bon accord trouvé entre les données et la ligne continue représentant une loi  $F(\theta) = F/\cos(\theta)$  souligne le caractère bidimensionnel de la surface de Fermi observée.

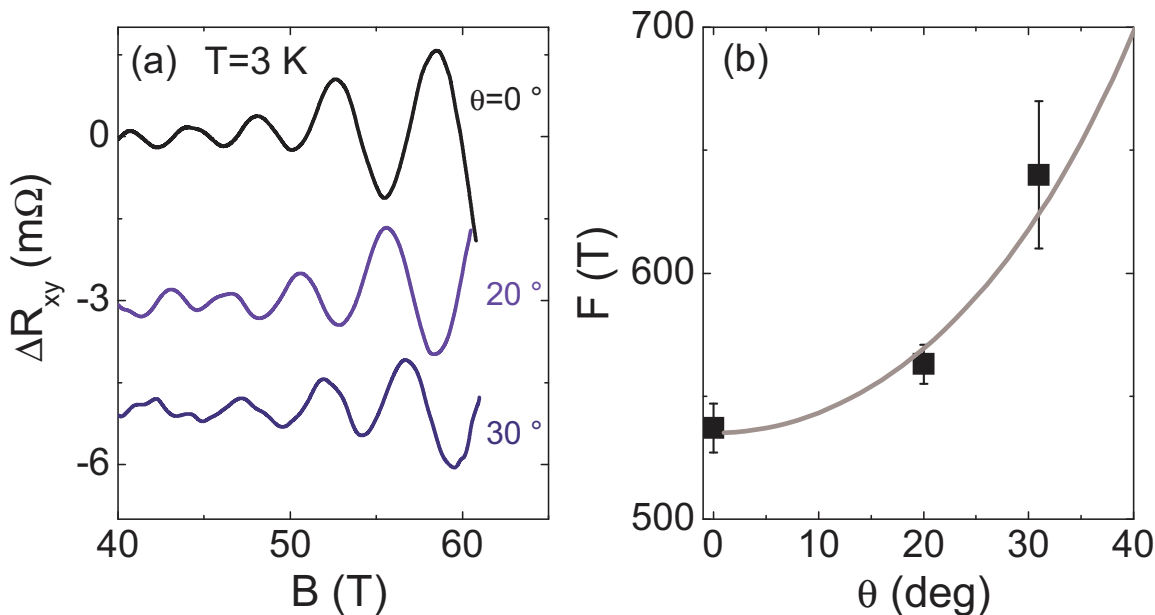


Figure 4.11 – (a) Partie oscillatoire de la résistance de Hall en fonction du champ magnétique pour différentes orientations du champ par rapport à l'axe  $c$  de l'échantillon à  $T=3$  K. (b) Dépendance angulaire de la fréquence d'oscillations Shubnikov de Haas. La ligne solide est un ajustement de la forme  $F(\theta) = F(0)/\cos(\theta)$ , confirmant le comportement quasi-bidimensionnel de la surface de Fermi.

### 4.3.1.2 Reproductibilité

Nous avons également reproduit les résultats dans un autre échantillon  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  orienté suivant l'axe  $a$ . En outre, nous avons pu étudier la partie oscillatoire de  $R_{xx}$ .

La figure 4.12 présente la résistance de Hall  $-R_{xy}$  en fonction du champ magnétique pour des températures entre 1.5 K et 4.2 K. Des transformées de Fourier réalisées dans la gamme [45 T - 60.9 T] sont représentées dans l'encart de la figure 4.12. La fréquence d'oscillation est  $F=(535 \pm 20)$  T, en très bon accord avec les résultats précédents.

La dépendance en température de l'amplitude des oscillations dans la même fenêtre de champ, correspondant à  $B_{\text{moy}}=51.76$  T, conduit à une masse  $m^* = (1.92 \pm 0.13) m_0$ , comparable à la valeur trouvée précédemment.

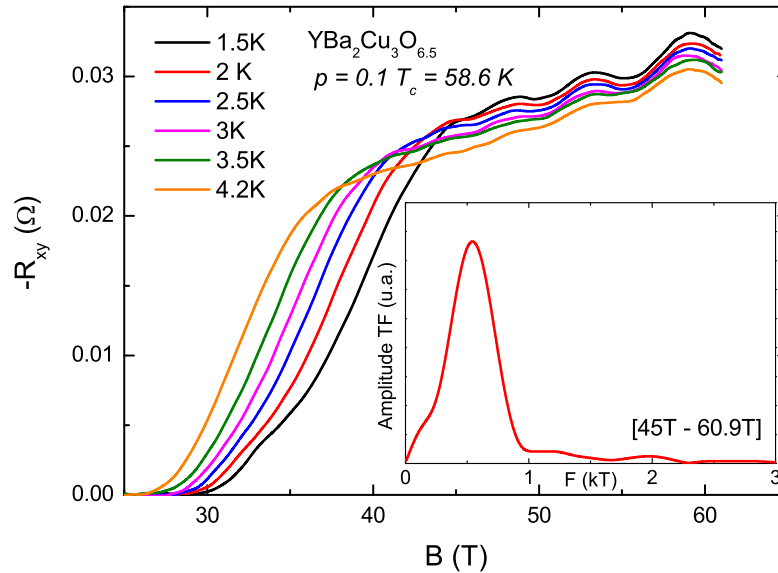


Figure 4.12 – Résistance de Hall  $-R_{xy}$  dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  en fonction du champ magnétique pour des températures comprises entre 1.5 K et 4.2 K. En encart : Transformées de Fourier de la partie oscillatoire de  $R_{xy}$  pour  $T = 2$  K. Une seule fréquence  $F=(535 \pm 20)$  T est observée.

La même analyse a été réalisée sur la magnétorésistance transverse. La dépendance en champ magnétique de  $R_{xx}$  est représentée sur la figure 4.13 pour des températures entre 1.5 K et 4.2 K.

Les TF des parties oscillatoires de la MR ainsi obtenues sont représentées dans l'encart de la figure 4.13. On en déduit une fréquence d'oscillation  $F=(530 \pm 20)$  T, en bon accord avec les résultats obtenus pour  $R_{xy}$ .

L'analyse de l'amplitude des oscillations en fonction de la température permet de déduire une masse cyclotron effective  $m^*=(1.88 \pm 0.09) m_0$ , en bon accord avec la valeur trouvée pour  $R_{xy}$ .

#### 4. Mesures d'oscillations quantiques et d'effet Hall dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ sous-dopé

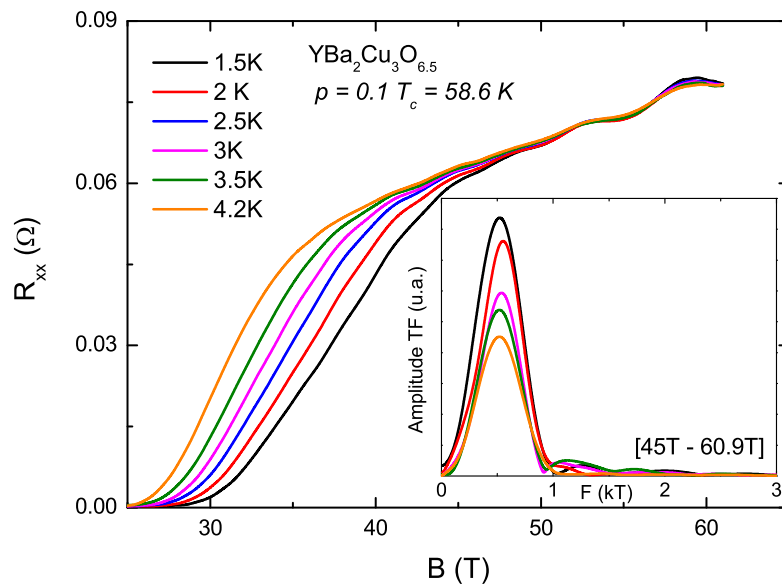


Figure 4.13 – Magnétorésistance transverse  $R_{xx}$  dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  en fonction du champ magnétique pour des températures comprises entre 1.5 K et 4.2 K. En encart : Transformées de Fourier de la partie oscillatoire de  $R_{xx}$  pour chaque température. Une seule fréquence  $F=(530 \pm 20)$  T est observée.

#### 4.3.1.2.1 Estimation du libre parcours moyen

Une estimation du libre parcours moyen et de la mobilité peut être déduite de l'analyse de la dépendance en champ magnétique de l'amplitude des oscillations  $A$ . Nous avons effectué cette détermination dans cet échantillon car la composante  $R_{xx}$  a pu être extraite (cf Chap. 5.3). La figure 4.14 montre l'amplitude  $A/B$  entre 50 T et 61 T en fonction du champ magnétique à  $T=1.5\text{K}$ . Le meilleur accord entre les données expérimentales et un ajustement de la forme  $A/B = A_0 \cos[2\pi(F/B - \gamma)] \exp(-\pi/\mu B)$  est obtenu avec une mobilité  $\mu \simeq 0.008 \text{ T}^{-1}$ , correspondant à un libre parcours moyen SdH  $\ell_{SdH} = \frac{\hbar k_F \mu}{e} \simeq 7 \text{ nm}$ , où  $k_F = \sqrt{A_k/\pi}$ , et à un temps de relaxation  $\tau \simeq 8.7 \times 10^{-13} \text{ s}$ .

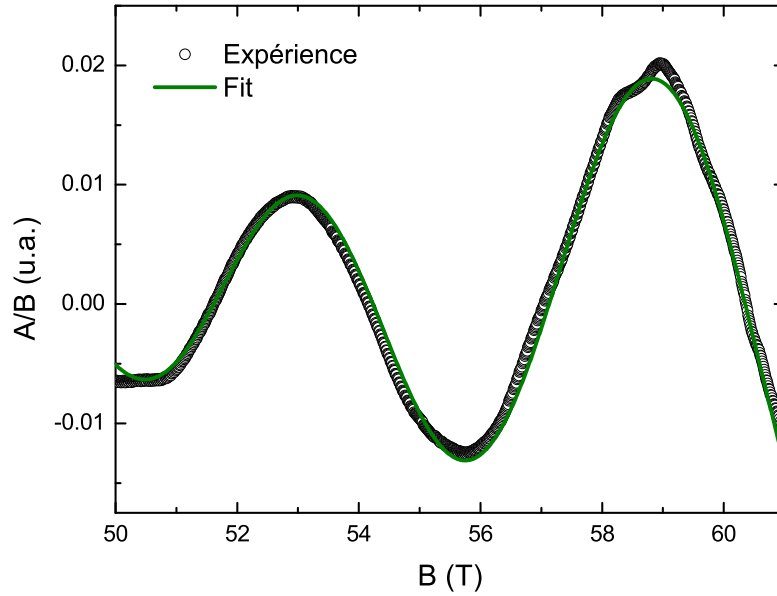


Figure 4.14 – Ajustement de la dépendance en champ de l'amplitude des oscillations  $A/B = A_0 \cos[2\pi(F/B - \gamma)] \exp(-\pi/\mu B)$  à  $T=1.5\text{K}$ .

#### 4.3.1.3 Effet Shubnikov-de Haas dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ b1

Nous avons également mesuré la résistance d'un autre échantillon  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  en injectant le courant suivant l'axe  $b$  ( $J//b$ ), c'est-à-dire le long des chaînes. La configuration des contacts ne nous a pas permis d'extraire à la fois  $R_{xx}$  et  $R_{xy}$ , le signal mesuré  $R$  est donc un "mélange" des deux signaux. Néanmoins, ceci n'affecte en rien l'analyse.

La figure 4.15 présente la dépendance en champ magnétique de la résistance selon une direction du champ magnétique entre 44 T et 62 T, pour des températures entre 1.5 K et 4.2 K. Bien que le signal soit un peu plus bruyant que dans les deux cas précédents, des oscillations de la résistance apparaissent très clairement à fort champ. L'encart de la figure 4.15 montre les transformées de Fourier de la partie oscillatoire de la résistance pour chaque

#### 4. Mesures d'oscillations quantiques et d'effet Hall dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ sous-dopé

température dans la fenêtre de champ [47 T - 61.4 T]. Le spectre n'est composé que d'une seule fréquence  $F = (540 \pm 20)$  T qui est, aux barres d'erreur expérimentales près, la même que dans le composé ortho-II mesuré suivant l'axe  $a$ . Ce résultat montre que les oscillations quantiques observées ne dépendent pas de la direction du courant appliqué.

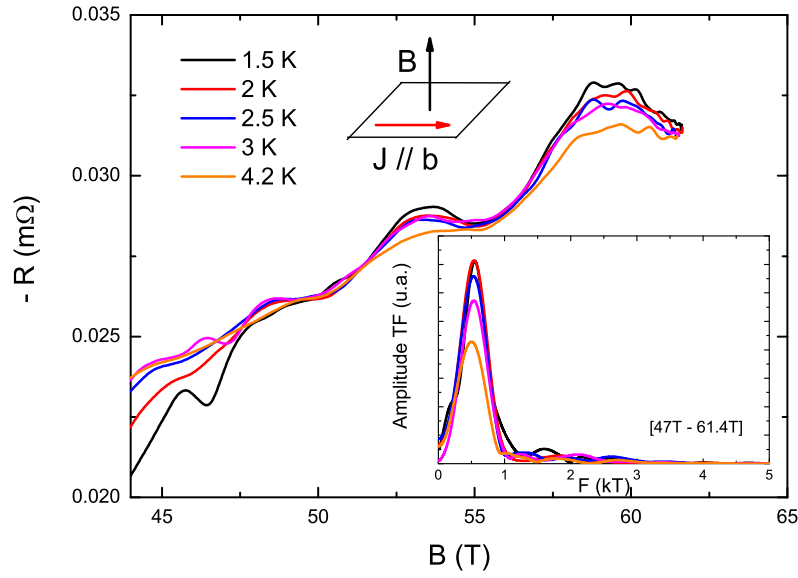


Figure 4.15 – Résistance  $R$  dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  en fonction du champ magnétique pour des températures comprises entre 1.5 K et 4.2 K. Le champ est appliqué selon la normale aux plans  $\text{CuO}_2$  et le courant est suivant l'axe  $ab$  de la maille élémentaire, perpendiculairement à l'axe des chaînes  $\text{CuO}$ . Encart : Transformée de Fourier de la partie oscillatoire de  $R$ , révélant une seule fréquence valant  $F=(540 \pm 20)$  T.

L'étude de la dépendance en température de l'amplitude des oscillations dans la fenêtre de champ magnétique [47 T - 61.4 T] nous a permis de déterminer la masse effective cyclotron des quasiparticules  $m^*=(1.8 \pm 0.1) m_0$ . On peut constater que cette valeur est identique, aux barres d'erreur expérimentales près, à celle trouvée pour ortho-II axe  $a$ .



#### 4.3.1.4 Effet de Haas-van Alphen dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$

Des mesures de couple magnétique ont été effectuées dans le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  ortho-II-a1 par Cyril Jaudet et David Vignolles du LNCMP [180].

La figure 4.16 montre le signal du couple magnétique mesuré à  $T=1.4$  K jusqu'à 59T pour la montée et la descente du champ ainsi que la résistance de Hall  $-R_{xy}$  mesurée dans le même échantillon à  $T=1.5$  K. On observe très clairement des oscillations dHvA au dessus du champ d'irréversibilité  $B_{irr} \sim 30$  T. Alors que les oscillations SdH ne sont observées que dans l'état normal, la particularité de cette mesure est qu'elle permet d'observer des oscillations dHvA dans l'état mixte. Cette observation est en accord avec d'autres mesures dHvA et SdH réalisées dans des supraconducteurs de type II, où la fréquence d'oscillation est la même dans l'état normal que dans l'état mixte, bien qu'un terme d'atténuation supplémentaire soit observé dans ce dernier [181]. La fréquence d'oscillations dHvA observée est  $F = (540 \pm 4)$  T et la masse effective déduite des ajustements de LK  $m^* = (1.76 \pm 0.07) m_0$ , ce qui est en parfait accord avec les résultats obtenus d'après l'effet SdH.

L'observation d'oscillations dHvA confirment la nature liquide de Fermi de l'état fondamental et donc la présence d'une surface de Fermi fermée et cohérente pour les cuprates sous-dopés.

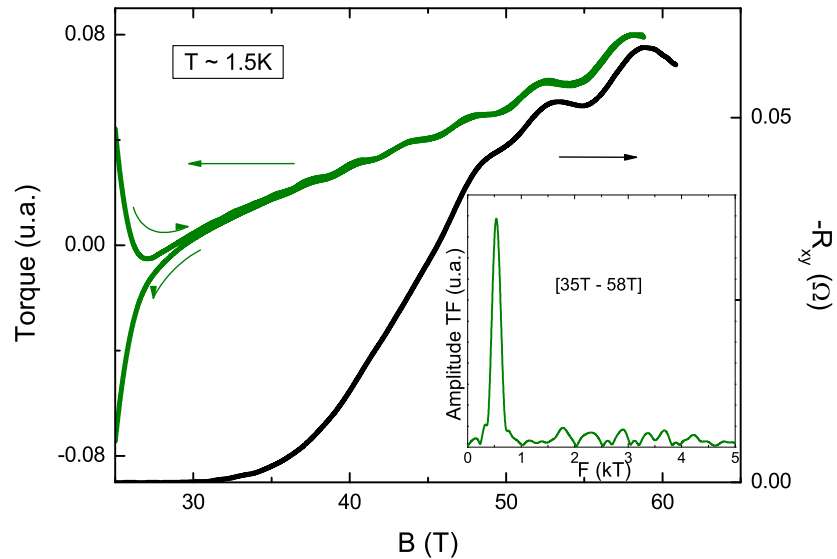


Figure 4.16 – Couple magnétique en fonction du champ magnétique ( $\theta \sim 5^\circ$ ) et résistance de Hall ( $\theta \sim 0^\circ$ ) dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  à  $T=1.5$  K. L'encart montre la transformée de Fourier du couple magnétique, mettant en valeur une seule fréquence à  $F \simeq 540$  T.

### 4.3.2 Effet Shubnikov-de Haas dans l'état normal de $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$

Après avoir clairement mis en évidence l'existence d'une surface de Fermi cohérente dans l'état normal du composé supraconducteur  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  par l'observation d'oscillations quantiques de la résistance de Hall et de la magnétorésistance, il convient de vérifier si ce phénomène est générique aux cuprates, ou si il est seulement particulier à ortho-II. Pour cela, nous avons réalisé des mesures de transport dans deux échantillons de très grande pureté du cuprate sous-dopé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ . La taille typique des échantillons est  $400 \times 80 \times 30 \mu\text{m}^3$ . Pour l'échantillon Y124-YTA10 (noté #1) dont la  $T_c \approx 81$  K, le courant est appliqué suivant l'axe  $a$  ( $J//a$ ) alors que pour l'échantillon Y124-YTB1 (noté #2), dont la  $T_c \approx 82$  K, le courant est appliqué dans la direction des chaînes ( $J//b$ ). La géométrie des contacts pour chaque échantillon est représentée dans l'encart sur la figure 4.17(a). Le champ magnétique est toujours appliqué perpendiculairement aux plans  $\text{CuO}_2$  ( $B//c$ ).

La figure 4.17(a) présente la dépendance en champ magnétique de la résistivité transverse  $\rho_a$  de l'échantillon #1 à  $T \simeq 0.5$  K jusqu'à 58 T. Cette mesure a été réalisée dans un cryostat à dilution  ${}^3\text{He} - {}^4\text{He}$ ; malheureusement, un problème de thermalisation entre l'échantillon et le thermomètre nous permet seulement d'estimer la température autour de  $T \approx 0.5$  K. Au dessus du champ d'irréversibilité  $B_{irr} \approx 40$  T, la résistivité augmente brusquement jusqu'à atteindre  $\rho_a \approx 35 \mu\Omega\text{cm}$ , pour ensuite augmenter plus lentement dans l'état normal. Il apparaît clairement des oscillations de la magnétorésistance dans l'état normal dont l'amplitude est plus faible que dans le composé ortho-II.

La résistivité  $\rho_b$  suivant l'axe  $b$  et la résistivité de Hall  $\rho_{xy}$  de l'échantillon #2 sont représentées pour  $T=1.5$  K et jusqu'à 61 T sur la figure 4.17(a). On remarque que le champ d'irréversibilité est légèrement différent de celui de l'échantillon #1 mais que le comportement de la résistivité est le même. Toutefois, on notera une forte anisotropie entre les deux résistivité  $\rho_a$  et  $\rho_b$  dans le plan. Ceci est dû fait que dans le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ , les chaînes restent métalliques jusqu'à très basse température, constituant à elles seules un canal de conduction [182].

Du fait de la faible amplitude des oscillations et afin de s'affranchir du rapport signal sur bruit, nous avons moyenné plusieurs tirs (typiquement 2 ou 3) dans les mêmes conditions.

Les parties oscillatoires de la magnétorésistance  $\Delta\rho/\rho$  pour chaque échantillon sont représentées sur la figure 4.17(b) pour  $T=0.5$  K et entre 50 T et 58 T pour l'échantillon #1 et entre 1.5 K et 4.2 K et entre 50 T et 61 T pour l'échantillon #2. La fréquence d'oscillations est déterminée en ajustant les parties oscillatoires avec la formule de LK (cf. formule 1.80). Le meilleur accord entre les ajustements et les données est obtenu pour une fréquence  $F = (660 \pm 30)$  T et une masse effective  $m^* = (2.7 \pm 0.3) m_0$ . On remarque que les valeurs obtenues sont supérieures (de l'ordre de 25% pour la fréquence et 40% pour la masse) que celles obtenues pour le composé ortho-II.

Dans le même temps, une équipe menée par J.R. Cooper du *Cavendish Laboratory* à Cambridge effectuait des mesures dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$  en utilisant la technique de l'Oscillateur à Diode Tunnel (TDO) sous champ magnétique pulsé jusqu'à 85 T au NHMFL à Los Alamos [183]. Leurs résultats sont en excellent accord avec les nôtres. Le signal mesuré,  $\Delta f$ , proportionnel à la résistance, présente des oscillations périodiques en  $1/B$  de fréquence  $F = (660 \pm 15)$  T. Une analyse de l'amplitude des oscillations a permis aux auteurs de déterminer une masse effective  $m^* = (3.0 \pm 0.3)m_0$ .

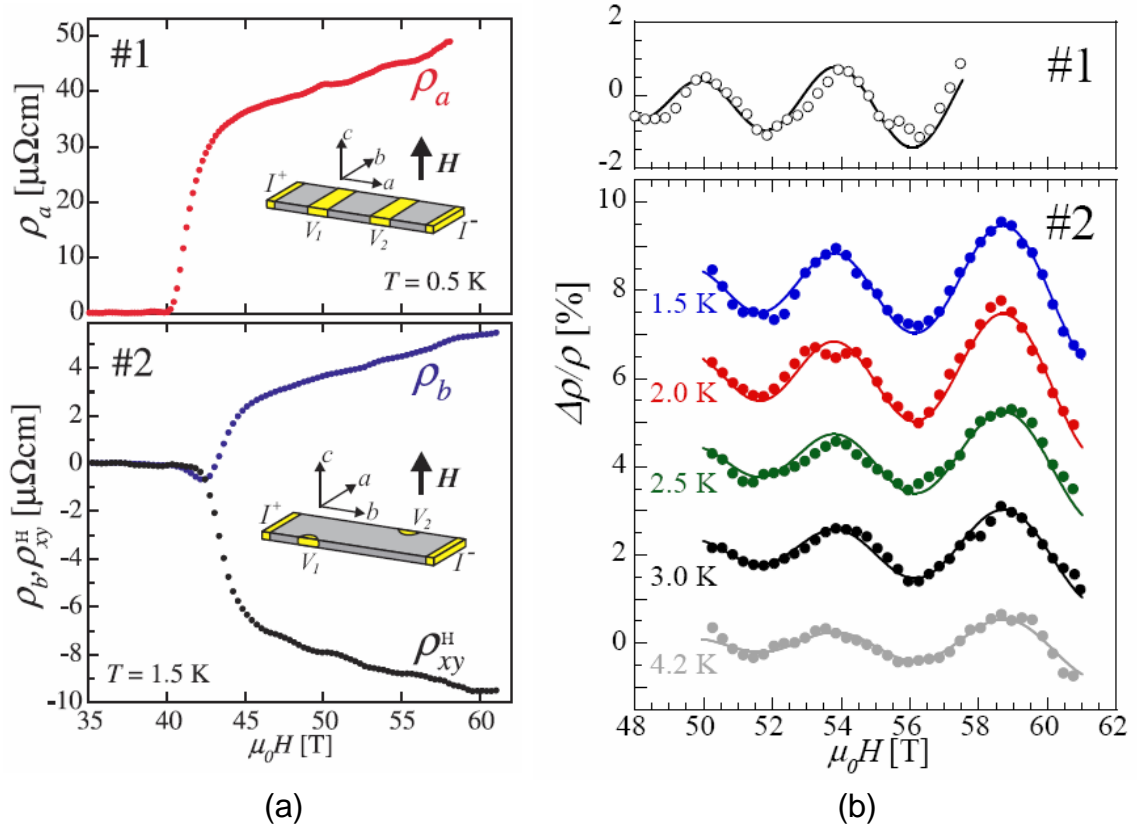


Figure 4.17 – (a) *En haut* : Magnétorésistance  $\rho_{xx}$  en fonction du champ magnétique pour le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$  #1 mesuré en dilution à  $T \sim 0.5$  K. La disposition des contacts électriques est représentée. *En bas* : Magnétorésistance  $\rho_{xx}$  et résistivité de Hall  $\rho_{xy}$  en fonction du champ magnétique pour le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$  #2 à  $T = 1.5$  K. La disposition des contacts électriques est représentée. (b) *En haut* : Partie oscillatoire de la résistivité  $\rho_{xx}$  pour l'échantillon #1. *En bas* : Partie oscillatoire de la résistivité  $\rho$  mesurée dans un seul sens de champ magnétique (mélange de  $\rho_{xx}$  et  $\rho_{xy}$ ) pour l'échantillon #2. Les courbes sont décalées pour plus de clarté. Dans les deux cas, la ligne solide est un ajustement de la formule 1.72 dont le meilleur accord avec les données donne  $F = (660 \pm 30)$  T et  $m^* = (2.7 \pm 0.3) m_0$ .

## 4. Mesures d'oscillations quantiques et d'effet Hall dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ sous-dopé

### 4.3.3 Résumé

L'ensemble des résultats issus de ce travail et de la littérature sont rappelés dans le tableau 4.2.

Echantillon	Méthode	Fréquence	Masse effective cyclotron ( $m_0$ )	Libre parcours moyen (nm)
$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ - ortho-II	SdH	$530 \pm 20$	$1.9 \pm 0.1$	7
$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ - ortho-II	dHvA	$540 \pm 4$	$1.76 \pm 0.07$	16
$\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$	SdH	$660 \pm 30$	$2.7 \pm 0.3$	9
$\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ [183]	TDO	$660 \pm 15$	$3 \pm 0.3$	40

TABLE 4.2 – Récapitulatif des fréquences d'oscillations obtenues à partir des transformées de Fourier, des masses effectives cyclotron (libres parcours moyens) déterminées à partir de la dépendance en température (en champ) de l'amplitude des oscillations pour différents composés YBCO.

## 4.4 Effet Hall dans l'état normal d'YBCO sous-dopé

### 4.4.1 Effet Hall dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$

Nous avons réalisé une dépendance en température de l'effet Hall dans deux échantillons  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  fournis par le groupe de l'UBC, en utilisant la technique décrite dans le chapitre 3. Afin de sonder les propriétés électroniques de l'état normal, la phase supraconductrice est détruite par un fort champ magnétique, appliqué perpendiculairement aux plans  $\text{CuO}_2$  ( $B//z//c$ ). Le courant est appliqué suivant l'axe  $a$  de la structure orthorhombique ( $J//x//a$ ), perpendiculairement aux chaînes. Des mesures ont été effectuées entre 1.5 K et 290 K. Le coefficient de Hall est défini par  $R_H = tR_{xy}/B$ , où  $t$  est l'épaisseur de l'échantillon.

L'effet Hall est un moyen très performant pour sonder les propriétés électroniques d'un métal car il est directement sensible au signe des porteurs majoritaires (positif pour les trous, négatif pour les électrons) de la surface de Fermi dans le cas d'un modèle à une bande. L'effet Hall en fonction du champ magnétique d'un cristal  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  (ortho-II-a1) est présenté sur la figure 4.18 pour des températures entre 1.5 K et 200 K et pour un champ maximum de 61 T.

La figure 4.19 montre la dépendance en température de l'effet Hall pour différents champs magnétiques, obtenue en réalisant des coupes des courbes  $R_H(B)$  à champ fixe. On voit que lorsque l'on diminue la température,  $R_H$  augmente lentement jusqu'à atteindre un maximum à  $T_{max}=50\pm 5$  K pour ensuite chuter brutalement et passer négatif à  $T_0=30\pm 2$  K. On peut remarquer que  $T_0$  ne varie pas à partir de 40 T. De plus, on observe qu'au fur et à mesure que le champ augmente, la valeur de  $R_H$  sature à basse température vers  $-37 \text{ mm}^3/\text{C}$ .

Le deuxième résultat majeur de cette thèse consiste en l'observation du signe négatif de l'effet Hall à basse température. Ceci peut paraître intrigant car si on considère le fait que les porteurs rajoutés par le dopage sont des trous, on s'attend à ce que l'effet Hall reste positif quelque soit la température.

Sur la figure 4.20, on compare les résultats que nous avons obtenus en champ magnétique pulsé à Toulouse et les mesures réalisées par le groupe de Louis Taillefer dans un autre échantillon  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  au National High Magnetic Field Laboratory (NHMFL) à Talla-

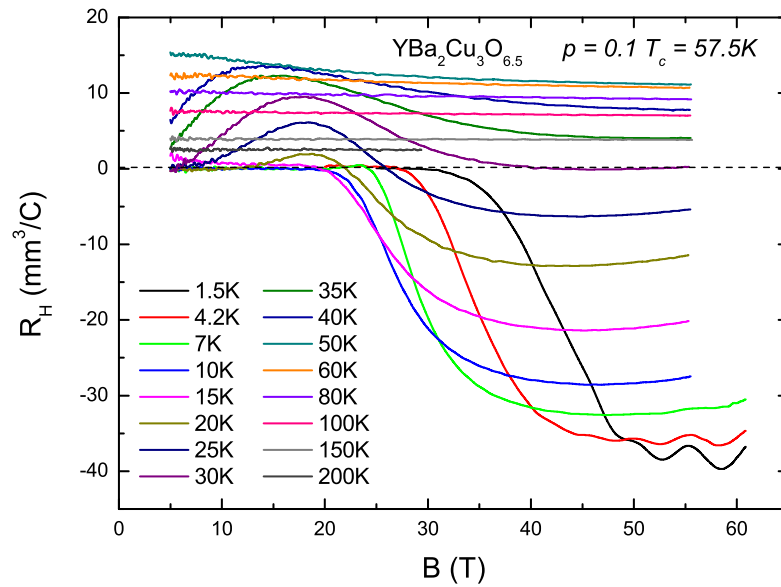


Figure 4.18 – Effet Hall  $R_H = tR_{xy}/B$  en fonction du champ magnétique dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  ( $p=0.1$ ,  $T_c=57\text{ K}$ ) pour différentes températures.

hassee. Ces mesures sont faites à champ magnétique constant dans une bobine hybride dont le champ maximum est de 45 T. On constate un très bon accord entre nos mesures et celles réalisées en champ statique.

#### 4. Mesures d'oscillations quantiques et d'effet Hall dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ sous-dopé

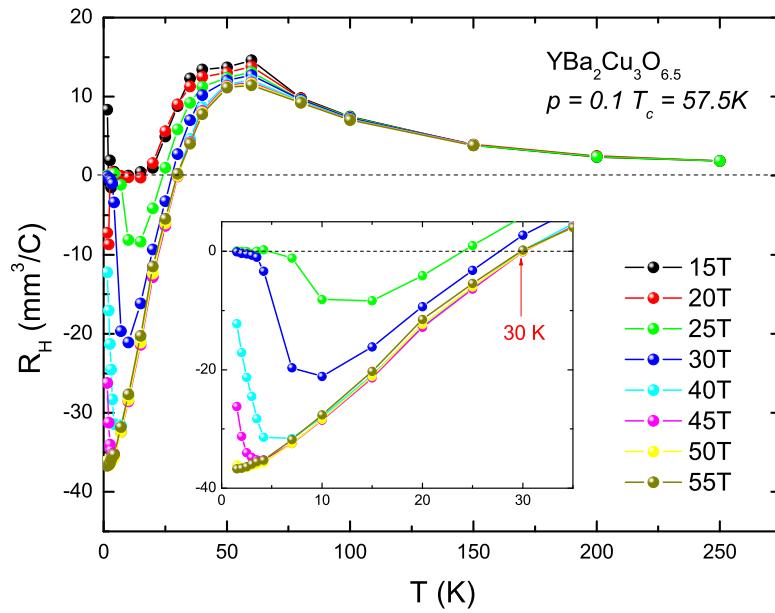


Figure 4.19 – Effet Hall  $R_H = tR_{xy}/B$  en fonction de la température pour différents champs magnétiques dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  ( $p=0.1$ ,  $T_c=57\text{K}$ ).

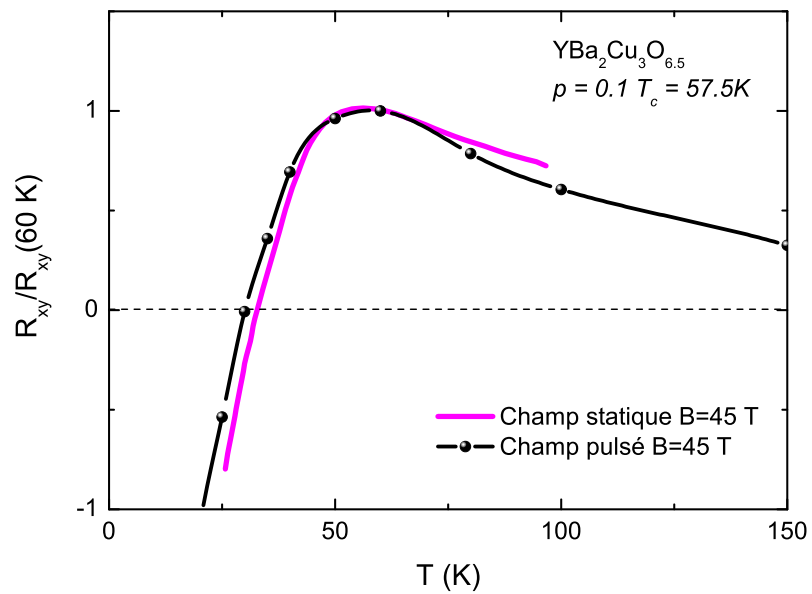


Figure 4.20 – Résistance de Hall en fonction de la température renormalisée à 60 K pour deux échantillons différents  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ , l'un mesuré en champ magnétique pulsé et l'autre en champ magnétique statique à 45 T au NHMFL à Tallahassee montrant un bon accord entre les mesures.

### 4.4.2 Effet Hall dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.67}$

Nous avons également mesuré l'effet Hall dans le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.67}$  ( $p=0.12$ ,  $T_c \approx 66$  K) dans la même géométrie que précédemment pour deux échantillons orientés suivant l'axe  $a$  (ortho-VIII-a5), et l'axe  $b$  (ortho-VIII-b5). Les résultats obtenus sont très similaires. Contrairement aux composés ortho-II et Y124, l'observation d'oscillations quantiques dans ces échantillons n'a pas été possible, probablement lié au fait que l'ordre des oxygènes dans les chaînes n'est pas aussi bon que dans les composés ortho-II.

#### 4.4.2.1 Effet Hall dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.67}$ orienté suivant l'axe $a$

La figure 4.21 présente la dépendance en champ magnétique de la résistivité de Hall divisée par le champ magnétique  $R_{xy}/B$  jusqu'à 55 T entre 4.2 K et 100 K. Le signal paraît plus bruité que précédemment mais il faut tenir compte de la toute petite valeur du signal mesuré, qui est de l'ordre de  $\sim 5\text{m}\Omega$  à basse température. La figure 4.22 montre la dépendance en température de  $R_{xy}/B$  pour différents champs. Cette dépendance est très similaire à celle trouvée dans le composé ortho-II, hormis que la température  $T_0$  à laquelle  $R_{xy}$  change de signe reste constante autour de  $T_0=70 \pm 2$  K quelque soit le champ magnétique. L'effet Hall présente un maximum autour de  $T_{max}=105 \pm 5$  K. De la même manière, celui-ci semble également saturer à basse température et fort champ vers  $-4\text{ mm}^3/\text{C}$ .

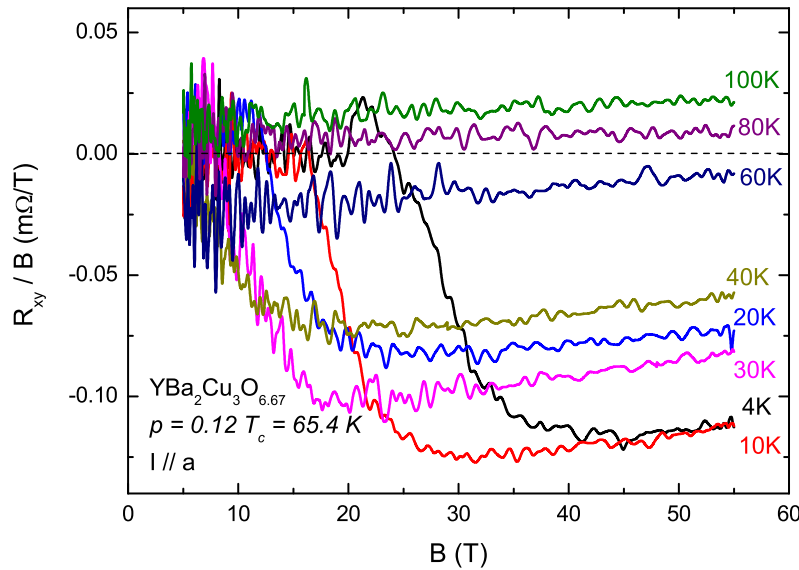


Figure 4.21 – Effet Hall  $R_H = tR_{xy}/B$  en fonction du champ magnétique dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.67}$  ( $p=0.12$ ,  $T_c=65.4$  K) pour différentes températures.



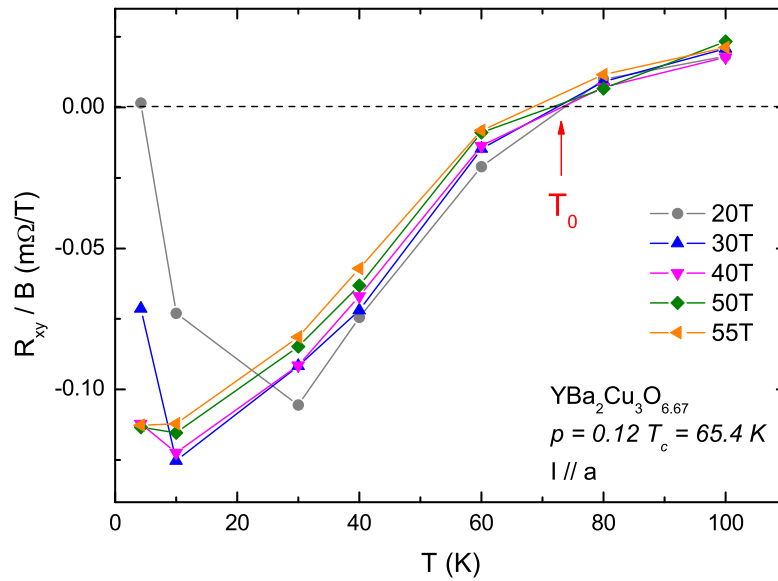


Figure 4.22 – Effet Hall  $R_H = tR_{xy}/B$  en fonction de la température pour différents champs magnétiques dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.67}$  ( $p=0.12$ ,  $T_c=65.4$  K).

#### 4.4.2.2 Effet Hall dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.67}$ orienté suivant l'axe $b$

La dépendance en champ magnétique de la résistivité de Hall a été mesurée dans un échantillon  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.67}$  orienté suivant l'axe  $b$  et les résultats obtenus sont très similaires à ceux obtenus dans l'échantillon orienté suivant l'axe  $a$ . Le fait d'observer un effet Hall similaire suivant les deux directions suggère que le comportement observé de  $R_H$  est une propriété des plans  $\text{CuO}_2$  et non des chaînes. De la même façon, la dépendance en température de  $R_{xy}/B$  entre 20 T et 55 T permet de déterminer  $T_0=70 \pm 2$  K.

#### 4.4.2.3 Effet Hall dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.67}$ mesuré en champ statique jusqu'à 45T

L'effet Hall dans un échantillon  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.67}$  a été mesuré par le groupe de Louis Taillefer sous champ magnétique statique jusqu'à 45T au NHMFL à Tallahassee. Les figures 4.23 (a) et (b) montrent respectivement la dépendance en champ magnétique du coefficient de Hall pour plusieurs températures et la dépendance en température de  $R_H$  pour différents champs magnétiques. Les résultats obtenus sont très similaires, notamment les températures correspondant au maximum et au changement de signe de  $R_H$ . Dans cette expérience, les mesures ont été réalisées avec une disposition des contacts croisée permettant ainsi d'obtenir l'amplitude absolue du coefficient de Hall.

#### 4. Mesures d'oscillations quantiques et d'effet Hall dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ sous-dopé

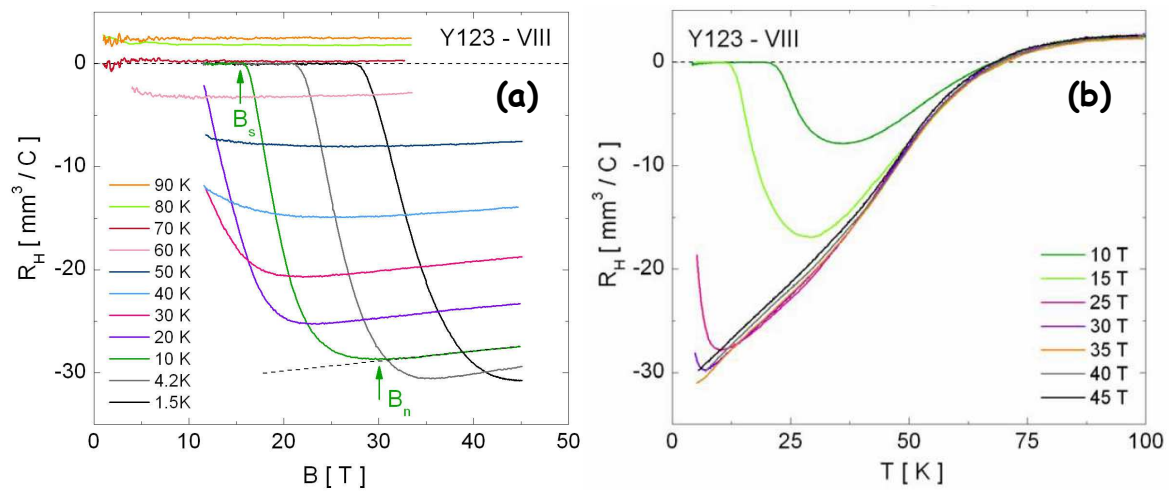


Figure 4.23 – (a) Effet Hall  $R_H = tR_{xy}/B$  en fonction du champ magnétique pour différentes températures et (b) en fonction de la température pour différents champs magnétiques, dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.67}$  ( $p=0.12$ ,  $T_c=66$  K) mesuré sous champ statique jusqu'à 45T.

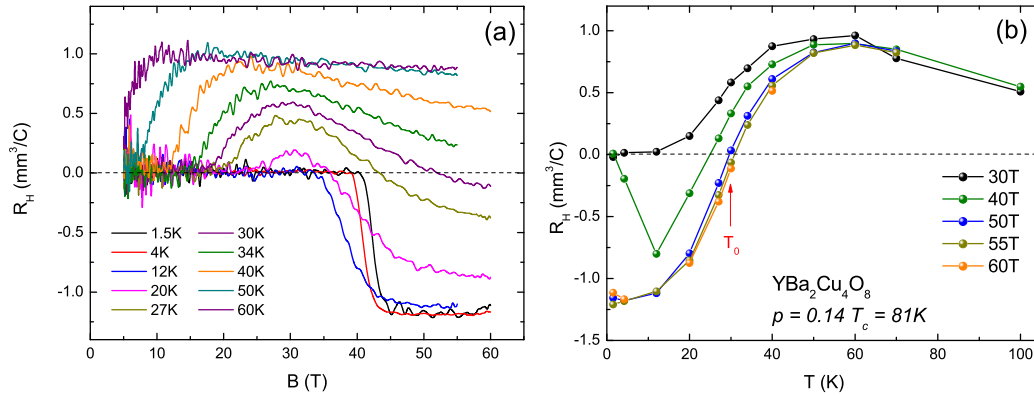


Figure 4.24 – (a) Effet Hall  $R_H = tR_{xy}/B$  en fonction du champ magnétique dans YBa<sub>2</sub>Cu<sub>4</sub>O<sub>8</sub> ( $p=0.14$ ,  $T_c=81.8$  K) pour différentes températures. (b) Effet Hall en fonction de la température pour différents champs magnétiques dans YBa<sub>2</sub>Cu<sub>4</sub>O<sub>8</sub>.

#### 4.4.3 Effet Hall dans YBa<sub>2</sub>Cu<sub>4</sub>O<sub>8</sub>

La figure 4.24(a) présente la dépendance en champ magnétique de l'effet Hall dans un échantillon YBa<sub>2</sub>Cu<sub>4</sub>O<sub>8</sub> ( $p=0.14$ ,  $T_c \approx 80$  K) (YTA2) jusqu'à 60 T et pour des températures entre 1.5 K et 60 K. Le champ magnétique est toujours appliqué perpendiculairement aux plans CuO<sub>2</sub> et le courant est suivant l'axe  $a$ . De nouveau,  $R_H$  est positif à haute température et devient négatif à basse température à partir de  $B \approx 35$  T. Comme on peut le voir sur la figure 4.24(b), où est représentée la dépendance en température de  $R_H$  pour plusieurs valeurs de champs, au dessus de 50 T,  $R_H$  change de signe à la même température  $T_0 = 30 \pm 2$  K, présente un maximum à  $T_{max} = 60 \pm 5$  K et il sature à basse température vers  $-1.3$  mm<sup>3</sup>/C. Cette valeur est très faible par rapport aux composés Y123 mesurés précédemment car dans le composé Y124, les chaînes, qui restent métalliques jusqu'à très basse température, contribuent à l'effet Hall. Nous reviendrons sur l'influence des chaînes dans la suite.

Il apparaît donc clairement que cette dépendance caractéristique de la constante de Hall avec la température est une propriété de la famille de cuprates sous-dopés YBCO.

## 4.5 Résumé du chapitre

En résumé, nous avons reporté dans ce chapitre les premières observations d'oscillations quantiques dans la magnétorésistance et dans l'effet Hall de deux cuprates YBCO sous-dopés, impliquant l'existence d'une surface de Fermi fermée et cohérente de ce côté du diagramme de phase. D'autre part, nous avons montré que l'effet Hall mesuré à fort champ magnétique et à basse température pour trois composés YBCO dopés différemment est négatif, ce qui peut paraître surprenant pour des composés dopés en trous (figure 4.25). Nous allons voir dans le chapitre suivants les conséquences importantes que peuvent avoir ces résultats sur la nature de l'état fondamental des cuprates sous-dopés.

#### 4. Mesures d'oscillations quantiques et d'effet Hall dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ sous-dopé

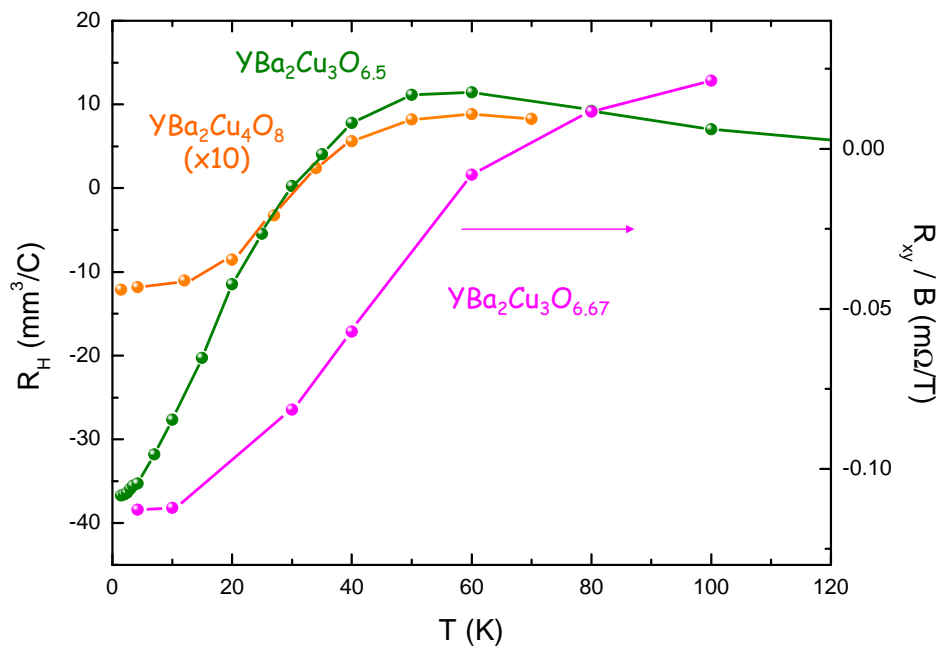


Figure 4.25 – Dépendance en température de l'effet Hall pour les trois composés étudiés à 55 T.

# Chapitre 5

## Discussion et interprétation des résultats : Surface de Fermi de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ sous-dopé

### 5.1 Problématique

Nous avons vu dans le chapitre précédent que la résistance de Hall et la magnétorésistance de deux composés YBCO sous-dopés présentent des oscillations Shubnikov-de Haas, caractéristiques d'un liquide de Fermi. De plus, l'effet Hall mesuré dans trois composés YBCO sous-dopés est négatif. Un changement drastique de la topologie de la surface de Fermi semble donc avoir lieu, engendrant le passage d'une grande surface de Fermi de trous du côté surdopé à un état caractérisé par une surface de Fermi constituée de petites poches du côté sous-dopé. Nous allons voir que si on considère que seuls des trous sont présents au niveau de Fermi et que la densité de porteurs  $n$  est égale au dopage  $p$ , alors il apparaît une violation du théorème de Luttinger, et ce quelque soit le nombre de poches.

Après avoir reporté des faits expérimentaux suggérant que le champ magnétique appliqué nous permet d'accéder à l'état normal, nous étudierons la topologie de la surface de Fermi observée à partir des mesures d'oscillations quantiques. Nous comparerons ensuite ces résultats aux calculs de structure de bandes, puis nous discuterons de leur apparente contradiction avec les mesures d'ARPES. La densité de porteurs extraite des fréquences d'oscillations pointe également vers un changement brutal entre les deux régimes du diagramme de phase, en accord avec d'autres sondes expérimentales. Nous finirons en montrant que ces résultats semblent évoquer une reconstruction de la surface de Fermi.

### 5.2 Est-on dans l'état normal ?

#### 5.2.1 Quelques notations

Il est important de différencier correctement les champs et les températures correspondant aux anomalies de l'effet Hall. Nous avons déjà défini les températures  $T_0$  et  $T_{max}$  (cf. Chapitre 4). Définissons maintenant le champ au dessus duquel on considère que les effets du mouvement des vortex sont négligeables, noté  $B_n(T)$ . Il correspond à la déviation du comportement linéaire de  $R_{xy}(B)$  à fort champ, caractéristique d'un état normal (résistif). A haute température cependant, ce critère n'est pas valable. On utilise donc  $R_{xx}$  pour déterminer  $B_n$ . On définit également le champ d'irréversibilité, noté  $B_{irr}(T)$ , correspondant au champ où  $R_{xx}(B)$  et  $R_{xy}(B)$  deviennent différents de zéro, c'est-à-dire que l'on sort de la phase solide de vortex. La détermination de ces champs critiques est illustrée sur la figure

## 5. Discussion et interprétation des résultats de YBCO sous-dopé

5.1 pour  $T=4.2$  K pour chaque échantillon. On trouve ainsi que  $B_{irr} = 25, 20$  et  $39$  T et  $B_n = 47, 40$  et  $46$  T pour ortho-II, ortho-VIII et Y124 respectivement, avec une incertitude de  $\pm 2$  T.

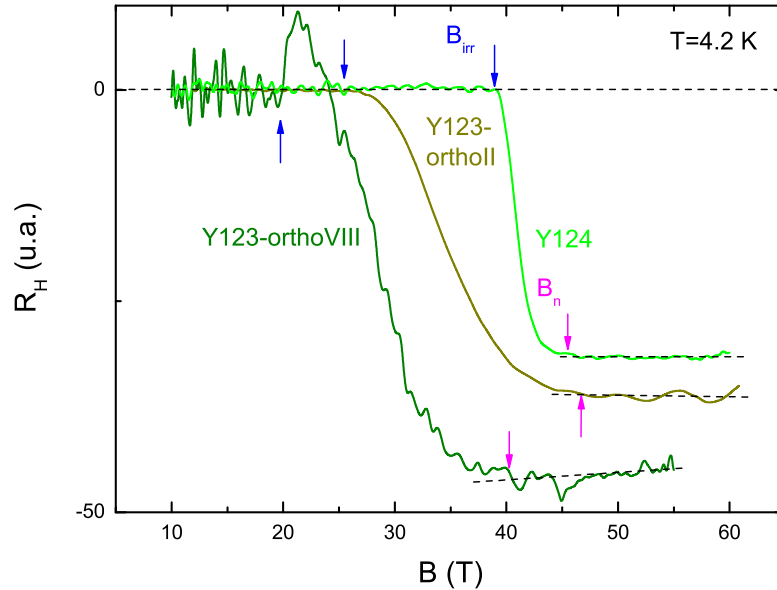


Figure 5.1 – Effet Hall en fonction du champ magnétique à 4.2 K pour Y123 ortho-II ( $p = 0.10$ ), Y123 ortho-VIII ( $p = 0.12$ ), et Y124 ( $p = 0.14$ ). Les flèches marquent le champ  $B_{irr}$  à partir duquel la résistance devient non-nulle et le champ  $B_n$  à partir duquel  $R_H$  devient presque constant.

On peut construire à partir de ces données les diagrammes de phase champ magnétique-température pour chaque échantillon. Ceux-ci sont représentés sur la figure 5.2.

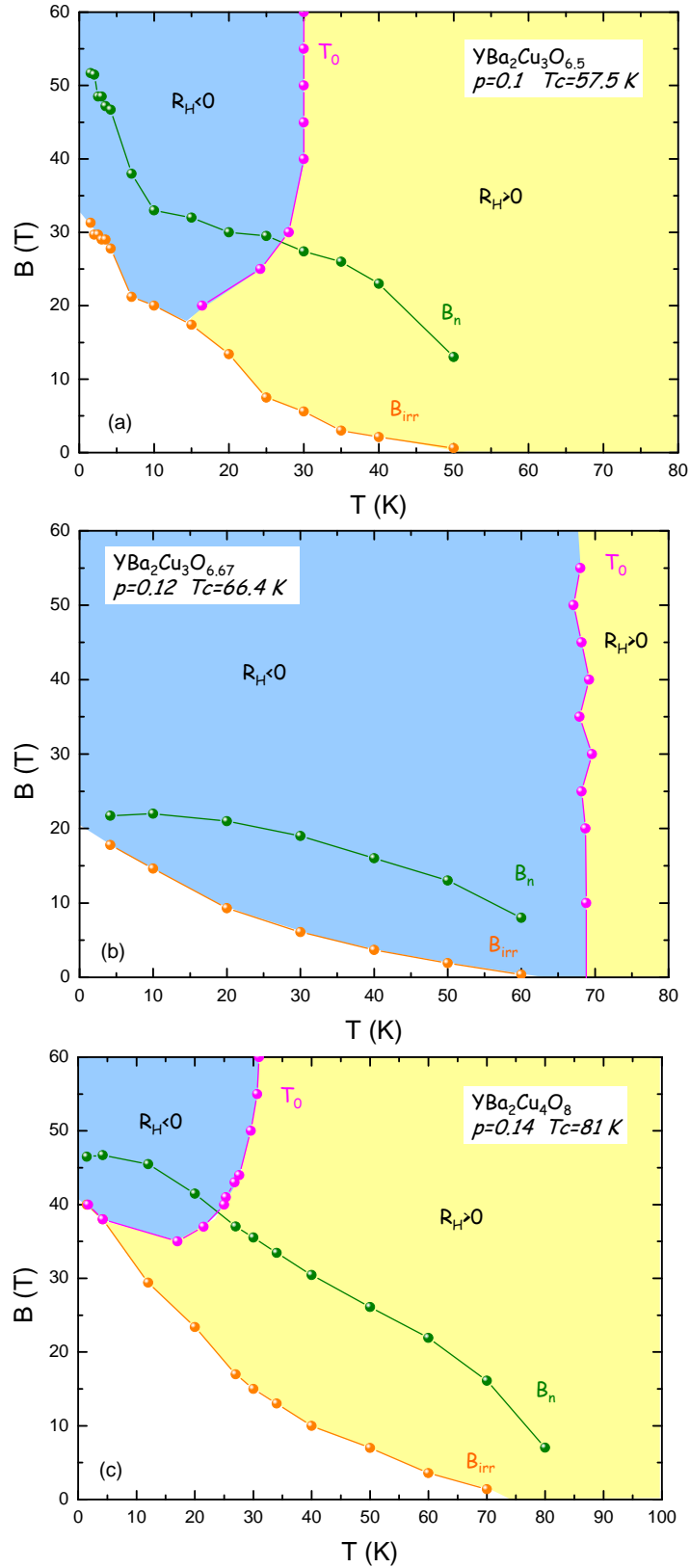


Figure 5.2 – Diagramme de phase (B,T) de (a)  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ , (b)  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.67}$  et (c)  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ . Le champ  $B_S$  correspond à destruction de la phase solide de vortex. Les propriétés électroniques de l'état normal apparaissent au dessus de  $B_n$ , quand l'influence des vortex est négligeable ou absente.

### 5.2.2 Effet de flux-flow ? Etat normal ?

L'une des questions fondamentales est de savoir si le signe négatif de l'effet Hall et les oscillations quantiques sont des propriétés de l'état normal. En effet, nous avons réalisé nos expériences à basse température et en appliquant un champ magnétique de 61 T.

Un changement de signe de l'effet Hall dans YBCO a déjà été reporté dans la littérature [184]. Le travail de Harris *et al.* montre qu'en dessous de 40 K, la conductivité de Hall  $\sigma_{xy}$  d'un composé YBCO ( $T_c=60$  K) est négative et décroît comme  $1/B$  à fort champ.

Sur la figure 5.3, on compare la dépendance en température de l'angle de Hall  $\tan\theta_H = \rho_{xy}/\rho_{xx}$  dans un échantillon  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  avec celui obtenu par Harris *et al.* dans un échantillon YBCO avec une  $T_c=60$  K. Les deux résultats sont très similaires. Au dessus de la température critique,  $\tan\theta_H$  est positif, présente un maximum quand la température diminue puis chute dramatiquement tout en restant négatif au dessus de 30 T pour  $T < T_0$  ( $=30$  K dans le cas de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ ).

A l'époque, les auteurs se sont appuyés sur des travaux de Dorsey [185] et Kopnin *et al.* [186] qui stipulent que la conductivité de Hall  $\sigma_{xy}$  est la somme de deux contributions différentes en compétition : l'une due aux quasiparticules (notée  $\sigma_H^n$ ) positive et linéaire en champ et l'une due aux vortex (notée  $\sigma_H^f$ ) négative et inversement proportionnelle au champ. Ils conclurent alors que le signe négatif de  $\sigma_{xy}$  était due à un effet de flux flow.

L'extension des mesures à plus haut champ permet maintenant de réfuter cette hypothèse. En effet, le champ maximum dans le travail de Harris *et al.* est 23.4 T. En étudiant la dépendance en température de l'effet Hall jusqu'à 61 T, on voit très clairement sur les diagrammes de phase (figure 4.19) que  $T_0$  et  $T_{max}$  deviennent indépendants du champ magnétique, particulièrement dans le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.67}$ , où  $T_0 > T_c$  autrement dit  $T_0 \simeq 70\text{K}$  quelque soit la valeur du champ magnétique.

Il apparaît que le changement de signe de l'effet Hall apparaissant dans YBCO n'est pas dû à un effet de flux flow.

Ce résultat est en contradiction avec les conclusions de Li *et al.* qui ont effectué des mesures d'effet Nernst et d'aimantation dans des cuprates [187]. Ils mettent en évidence dans le diagramme de phase au dessus de  $T_c$  une région dans laquelle des excitations type vortex et un faible diamagnétisme seraient présents sans cohérence de phase entre les paires. Les auteurs interprètent leur résultat en suggérant que la transition à  $T_c$  est due à une perte de la cohérence de phase à longue distance, mais que les paires sont toujours présentes (scénario de paires préformées), formant un état liquide de vortex. En extrapolant les données d'effet Nernst à plus haut champ, les auteurs estiment que le champ critique  $H_{c2}$  vaut  $\sim 100$  à 150 T, alors que dans les mesures de résistivité on estime que l'état normal est atteint autour de  $B_n = H_{c2} \approx 50$  T. Cependant, il est important de noter que le passage de l'état liquide de vortex à l'état normal n'est pas une vraie transition mais un crossover avec une région de fluctuations supraconductrices importante [188].

En effet, il a été montré théoriquement que dans le cas des supraconducteurs 2D possédant de faibles longueurs de cohérence, le passage de la phase liquide de vortex à l'état normal n'est pas une transition de phase [23]. Le champ moyen correspondant à ce type de transition dans un supraconducteur 3D est noté  $H_{c2}^{MF}$ . En étudiant le rôle des fluctuations, les auteurs ont montré que le diagramme de phase des cuprates dépend fortement du degré d'anisotropie du système. Dans le cas des composés fortement anisotropes comme BSCCO ( $\rho_c/\rho_{ab} \sim 1000 - 10000$ ), les champs  $H_{c2}^{MF}$  et  $B_{irr}$  sont très différents à température nulle.



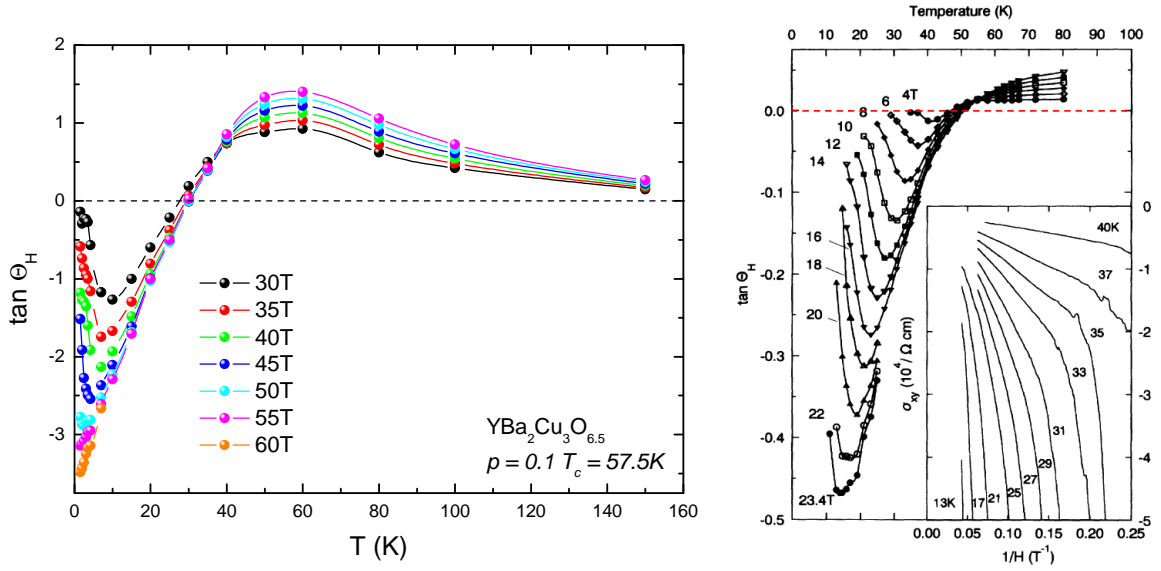


Figure 5.3 – Dépendance en température de l'angle de Hall  $\tan\theta_H$  pour différents champ magnétiques (à gauche) dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  et (à droite) dans un composé YBCO ( $T_c = 90$  K), d'après [184].

A l'inverse, l'anisotropie des composés YBCO est assez faible ( $\rho_c/\rho_{ab} \sim 100$ ). Dans ce cas, la ligne de transition  $B_{irr}$  approche  $H_{c2}^{MF}(T)$  à basse température (figure 1.17(c)). D'après ces résultats, on peut donc penser que même si le champ  $H_{c2}^{MF}$  n'est pas atteint dans nos expériences, la phase liquide de vortex est représentative de l'état normal dans YBCO. Dans cette thèse, nous apportons deux faits expérimentaux supportant ce scénario. La première concerne la dépendance en champ magnétique de la résistivité de Hall à basse température, qui est parfaitement linéaire et s'extrapole à zéro, ce qui est caractéristique d'un état métallique. Cette observation est illustrée sur la figure 5.4 dans le cas de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  et de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ .

La deuxième observation, et peut être la plus convaincante, est le fait que la température  $T_0$  devient indépendante du champ magnétique au dessus du champ  $B_n$ , au dessus duquel les effets de flux flow sont supposés négligeables. Cela revient à dire qu'au dessus de ce champ, les effets de vortex sont négligeables. On peut donc affirmer que le changement de signe de  $R_H$  n'a pas pour origine une contribution des vortex. De plus, et ceci constitue une preuve encore plus évidente que l'on est dans l'état normal, dans le cas du composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.67}$  la température  $T_0$  à laquelle l'effet Hall change de signe est supérieure à la température critique  $T_c$  et ce sur toute la gamme de champ explorée.

Une autre indication quant au fait que les propriétés observées ne sont pas dues à un régime de liquide de vortex réside dans de récentes mesures d'effet Hall effectuée dans le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.45}$  ( $p \sim 0.085$ ) [189]. En effet, l'effet Hall dans ce composé ne présente pas de changement de signe et reste positif à basse température. Comme il semble peu probable que les phases liquides de vortex soient (très) différentes entre deux composés YBCO de dopages très proches, on peut penser que le changement de signe observé dans  $R_H$  n'est pas une propriété due à un effet de flux flow mais plutôt une propriété de l'état normal.

## 5. Discussion et interprétation des résultats de YBCO sous-dopé

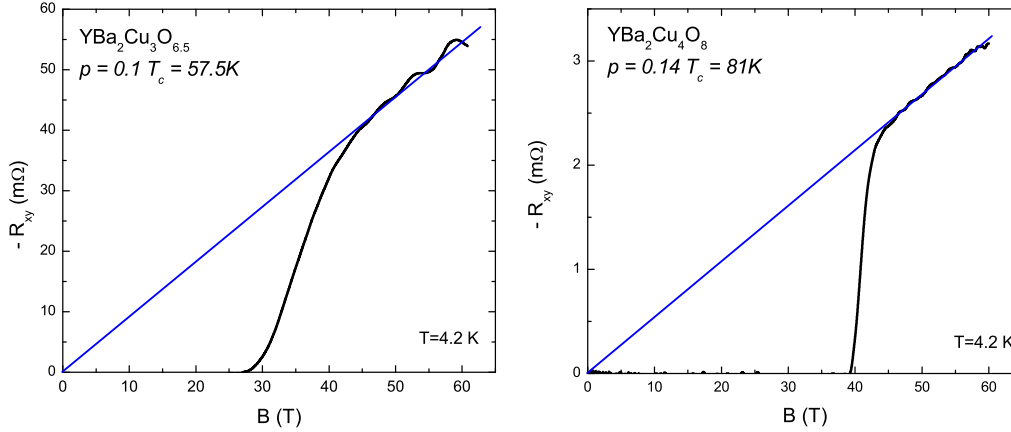


Figure 5.4 – Extrapolation de  $R_{xy}$  en fonction du champ magnétique à champ nul à  $T=4.2\text{K}$  dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  et  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$

Les mesures d'effet Nernst réalisées dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  par Y. Wang *et al.* soutiennent également cette idée [190]. Leurs résultats sont présentés sur la figure 5.5. Dans le cadre de la théorie de Boltzmann, la contribution des quasiparticules à l'effet Nernst est donnée par :

$$N = \frac{\pi^2 k_B^2 T B}{3} \frac{\partial \tau}{\partial \varepsilon} \Big|_{\varepsilon_F} \quad (5.1)$$

En faisant l'approximation suivante [191] :  $\frac{\partial \tau}{\partial \varepsilon} \Big|_{\varepsilon_F} \approx \frac{\tau}{\varepsilon_F}$ , on obtient :

$$N \simeq \frac{\pi^2 k_B^2 T}{3} \frac{\omega_c \tau}{e \varepsilon_F} \quad (5.2)$$

D'après les mesures d'oscillations quantiques,  $k_F = 1.27 \text{ nm}^{-1}$ , correspondant à  $\varepsilon_F = \frac{\hbar^2 k_F^2}{2m^*} \simeq 5.2 \times 10^{-21} \text{ eV}$  et une estimation de  $\omega_c \tau \simeq 0.7$  à  $B=35 \text{ T}$  est obtenue dans les mesures de couple magnétique [180]. Finalement, on trouve que  $N \simeq 7 \mu\text{V/K}$  à  $T=15\text{K}$ , ce qui est très proche de la valeur trouvée expérimentalement par Y. Wang *et al.*,  $N \simeq 9 \mu\text{V/K}$  à  $B=30\text{T}$ . Bien que les vortex aient une contribution importante à l'effet Nernst dans l'état mixte, il semble qu'à partir d'un champ  $B \sim 30 \text{ T}$  dans le composé ortho-II, la contribution des quasiparticules ne peut pas être négligée.

A partir de ces observations, il est donc maintenant clair que le signe négatif de l'effet Hall est une propriété de l'état normal des cuprates YBCO et que cette observation va nous apporter des renseignements sur la nature du pseudogap. Il nous reste maintenant à interpréter ces résultats.

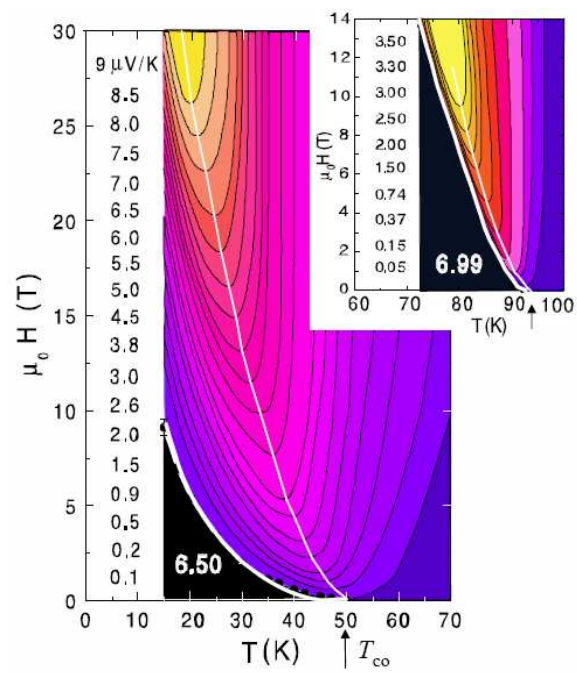


Figure 5.5 – Contour plot du signal Nernst  $E_y(T, B)$  dans le plan B-T pour  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ , d'après [190].

### 5.3 Topologie de la surface de Fermi observée

Nous allons voir que la faible fréquence d'oscillations mesurée implique que la SF est constituée d'une ou plusieurs petites poches. Or, les mesures d'ARPES montrent que l'ouverture du pseudogap dans les régions antinodales détruit la grande surface de Fermi observée du côté surdopé du diagramme de phase, ne laissant ainsi la présence de quasiparticules bien définies que le long d'*arcs de Fermi* dans les régions nodales.

Il faut noter que des oscillations quantiques dHvA dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  ont déjà été observées auparavant [192, 193, 194, 195]. Cependant, ces résultats ont été très contestés et ce pour deux raisons : (i) les oscillations ne présentent pas une périodicité en  $1/B$  évidente et (ii) les mesures ont été effectuées dans des poudres, contrairement à nos mesures qui sont réalisées dans des monocristaux de très haute qualité.

Nous allons dans cette partie étudier la topologie de la SF observée par les oscillations SdH, la comparer aux calculs de structure de bandes et aux mesures d'ARPES et enfin estimer la densité de porteurs.

Nous avons vu dans le Chapitre 1 que les oscillations quantiques constituent une mesure directe de l'aire de la surface de Fermi, plus exactement de la section extrême  $A_k$  de l'orbite cyclotron perpendiculaire au champ magnétique. Cette équivalence est donnée par la relation d'Onsager :

$$F = \frac{\phi_0}{2\pi^2} A_k \quad (5.3)$$

où  $\phi_0$  est le quantum de flux. Dans le cas du composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ , la fréquence SdH  $F = 530$  T conduit à  $A_k = 5.1 \text{ nm}^{-2}$  ce qui correspond à un vecteur d'onde moyen  $k_F \simeq 1.27 \text{ nm}^{-1}$  ( $A_k = \pi k_F^2$ ). Sachant que l'aire de la Première Zone de Brillouin (PZB) vaut  $A_{PZB} = \frac{4\pi^2}{ab} = 265.7 \text{ nm}^2$  avec  $ab = (0.38227 \times 0.38872) \text{ nm}^2$  [ce qui correspond à une fréquence  $F = 27.9 \text{ kT}$  (pour  $B//c$ )], la poche ne représente que 1.9 % de l'aire de la PZB.

La fréquence SdH mesurée pour Y124,  $F = 660$  T, correspond à  $A_k = 6.3 \text{ nm}^2$ , soit  $k_F \simeq 1.42 \text{ nm}^{-1}$ , ce qui représente seulement 2.4 % de l'aire de la PZB.

Il est intéressant de comparer plus en détails ces résultats avec la surface de Fermi observée du côté surdopé. Pour cela, considérons le cas du composé  $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+\delta}$  (Tl2201). Les calculs de structure de bande montrent que la surface de Fermi est un gros cylindre de type trous, centré en  $(\pi, \pi)$  et qui occupe  $\sim 65$  % de la PZB. Les études expérimentales comme l'ARPES ou l'AMRO sont en excellent accord avec ce résultat (cf. Chapitre 2).

Ce résultat a été confirmé récemment par l'observation d'oscillations quantiques dans ce même composé [112]. Cette mesure montre en plus la cohérence de la surface de Fermi des cuprates surdopés, ce qui n'était pas encore clair au vu des spectres mesurés en ARPES, et donc l'applicabilité de la théorie du liquide de Fermi de ce côté du diagramme de phase. Autrement dit, cette observation confirme le fait que ce sont bien les quasiparticules des plans  $\text{CuO}_2$  qui sont à l'origine des oscillations quantiques observées. Une seule fréquence SdH a été mesurée  $F = (18100 \pm 50)$  T, correspondant à une orbite d'aire extrême occupant  $\sim 65$  % de la PZB de rayon  $k_F = 7.4 \pm 0.05 \text{ nm}^{-1}$ , en excellent accord avec les mesures issues de l'ARPES et de l'AMRO. La masse effective cyclotron obtenue vaut  $m^* = (4.4 \pm 0.6) m_0$ .

La poche observée dans les composés  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  et  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$  ne représente donc que  $\sim 3$  % de la surface de Fermi des cuprates surdopés. Il apparaît donc un changement drastique de la topologie de la SF des cuprates en fonction du dopage, passant d'une grande orbite dans le régime surdopé à une ou plusieurs petites orbites dans le régime sous-dopé.

### 5.3.1 Comparaison avec les calculs de structures de bandes LDA

Comparons tout d'abord nos résultats d'oscillations quantiques avec les calculs LDA afin de vérifier si une petite poche est prédite par ces calculs.

Etudions dans un premier temps le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ . Les calculs réalisés pour le composé stœchiométrique  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  (ortho-I) montrent que la surface de Fermi, correspondant à un dopage  $p \simeq 0.2$ , est constituée de deux grandes poches de forme cylindrique de types trous centrées en  $S$ , correspondant aux deux plans  $\text{CuO}_2$ , une surface 1D ouverte correspondant aux chaînes pleines  $\text{CuO}$  et une petite poche cylindrique de trous centrée au point  $S$  due à une hybridation entre les chaînes et les plans  $\text{BaO}$ , résultant du saut d'un électron entre les sites des chaînes  $\text{Cu-O}$  par l'intermédiaire d'un atome d'oxygène apical du plan  $\text{BaO}$  (figure 5.6) [196]. Une estimation de la taille de cette poche montre qu'elle correspond à une fréquence valant  $F \sim 500$  T, ce qui pourrait correspondre à la faible fréquence que nous avons mesurée.

Cependant, des calculs LDA ont été réalisés pour le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  en considérant l'ordre ortho-II (consistant en l'alternance de chaînes vides et pleines), conduisant à un dédoublement de la cellule unité suivant la direction  $a$ , impliquant une réduction de la PZB dans la direction  $\Gamma X$  [197]. La structure de bande montre la présence d'une bande très proche du niveau de Fermi  $E_F$ , qui a également pour origine une hybridation entre les chaînes et les plans  $\text{BaO}$ . La surface de Fermi résultante consiste alors en deux grandes poches, correspondant aux plans  $\text{CuO}_2$ , d'une bande correspondant aux chaînes et de deux autres bandes correspondant à la séparation due à la levée de dégénérescence des deux bandes correspondant aux plans. D'après les calculs, la petite poche originellement présente au point  $S$  dans la structure de bande de ortho-I est toujours présente et centrée au point en  $Y$ , mais sa taille est trop petite pour correspondre à la fréquence mesurée. Une estimation de la fréquence correspondant au plus petit cylindre donne  $F \sim 2800$  T, ce qui montre que les calculs LDA ne semblent pas être en accord avec l'existence d'une petite poche dans la surface de Fermi. Suite à l'observation d'oscillations quantiques, des calculs plus précis ont montré qu'une petite poche peut apparaître par un petit décalage du niveau de Fermi [183, 198]. Un tout petit déplacement du niveau de Fermi, de l'ordre de  $\Delta E_F \sim \pm 20$  meV, conduit à l'apparition d'une petite poche de trous centrée au point  $Y$ , de fréquence comparable à la fréquence SdH ou dHvA mesurée et de masse effective moyenne  $m^* \sim 1.5 m_0$ . A partir de ces résultats, il apparaît que la surface de Fermi de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  déduite des oscillations SdH pourrait être en accord avec les calculs de structure de bandes.

Considérons maintenant la structure de bande et la surface de Fermi de Y124 (figure 5.7). Celle-ci est constituée de deux grands cylindres quasi-2D de type trous centrés au point  $J$  (en coin de zone) et de deux bandes quasi-1D dues aux chaînes. Toutefois, pour faire apparaître une petite poche de trous avec la bande correspondant à l'hybridation entre les chaînes  $\text{CuO}$  et les plans  $\text{BaO}$  (située au point  $J$ ), il faut maintenant décaler le niveau de Fermi  $E_F$  d'environ 400 meV. Il semble donc peu probable que cette bande soit à l'origine des poches observées. Des poches peuvent cependant être induites par un décalage moindre ( $\Delta E_F \sim 80$  meV), mais leur taille est beaucoup trop grande pour expliquer la fréquence des oscillations SdH.

En résumé, si on suppose que l'origine des oscillations quantiques dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  et  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$  est la même, alors il paraît peu probable que celle-ci soit expliquée par les calculs de structure de bandes LDA.

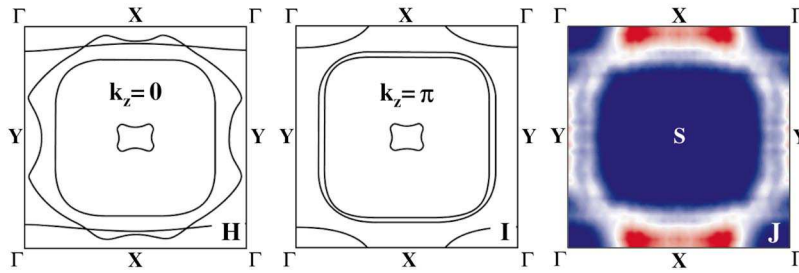


Figure 5.6 – Surface de Fermi de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  déterminée à partir des calculs de structure de bandes LDA [199]. Le quadrant de droite représente la mesure d’ARPES [200] effectuée dans ce composé. On observe un bon accord avec les calculs LDA. D’après [201].

### 5.3.2 Dispersion électronique et surface de Fermi vue par ARPES : arcs ou poches ?

#### 5.3.2.1 Comparaison avec les mesures d’ARPES - Scénario quatre poches nodales

Les mesures d’oscillations SdH permettent uniquement de déterminer la taille de l’orbite extrême perpendiculaire au champ magnétique de la SF, mais en aucun cas de déterminer le nombre et la localisation dans l’espace réciproque de ces poches. Nous avons vu que les mesures d’ARPES dans l’état pseudogap (PG) révèlent que la surface de Fermi des cuprates sous-dopés est constituée de quatre arcs de Fermi distincts correspondant à des excitations de type trou, situés dans les régions nodales  $(\pi/2, \pi/2)$  de la PZB, en accord avec la symétrie *d-wave* du pseudogap.

Ces mesures d’ARPES ont été réalisées en fonction du dopage dans le cuprate supraconducteur (dopé en trous)  $\text{Na}_{2-x}\text{Ca}_x\text{Cu}_2\text{O}_2\text{Cl}_2$  [NaCCOC] ( $p=0.1$ ) [203] mais également dans les familles Bi-2201 [204], Bi-2212 [138, 131] et LSCO [205].

De récentes mesures d’ARPES dans le composé Nd-LSCO avec  $x=0.12$  ont suggéré que le spectre mesuré suivant la direction nodale présente deux pics distincts [206]. Le point important est que l’observation de cette seconde branche de quasiparticules bien définies serait en accord avec l’existence d’une poche de trous au dessus de  $T=69$  K, c’est-à-dire bien au dessus de la température à laquelle se développe l’ordre de stripes à longue distance. De plus, les auteurs montrent que ce pic ne serait dû ni à un désordre chimique introduit par Nd, ni à la structure tétragonale à basse température pour laquelle on observe les stripes. Cependant, il n’est pas exclu que cette seconde branche soit en fait une *shadow band* telle qu’elle a déjà été observée dans Bi2212 [207]. Une *shadow band* est en fait une image de la surface de Fermi ”principale” translatée par le vecteur antiferromagnétique de la PZB  $\mathbf{Q} = (\pi, \pi)$ . Il a été montré que l’observation de cette bande est due aux distorsions orthorhombiques du réseau de symétrie tétragonale présentes en surface et dans le volume de l’échantillon [208]. L’observation de la deuxième branche dans les spectres obtenus par Chang *et al.* peut donc avoir la même origine, car le composé NdLSCO est tétragonale et que chaque plan  $\text{CuO}_2$  présente localement des distorsions orthorhombiques [209]. Cependant, le fait de n’observer pratiquement aucune différence d’intensité dans la seconde bande à la transition orthorhombique basse température-tétragonale basse température (LTO-LTT) a conduit les auteurs à suggérer que son origine est indépendante de la structure cristalline.

Des mesures d’ARPES ont été récemment réalisées dans le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  [210].

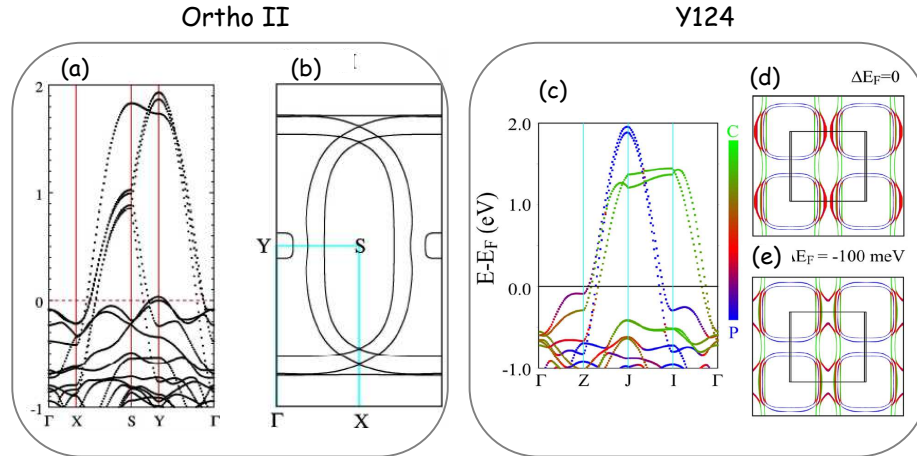


Figure 5.7 – *Ortho-II* : (b) Surface de Fermi du composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  déterminée à partir des calculs de structure de bandes. (a) Le niveau de Fermi  $E_F$  est décalé de +20 meV afin de faire apparaître des petites poches en Y de taille compatible avec les mesures SdH. *Y124* : (c) Calcul de structure de bande de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$  dans le plan. L'échelle de couleur reflète le caractère de la bande : C correspond à une bande provenant des chaînes, P à une bande provenant des plans. (d) Surface de Fermi de Y124 vue suivant l'axe  $c$ . Le carré représente la première zone de Brillouin. (e) Idem que (d) mais le niveau de Fermi  $E_F$  est décalé de 100 meV [202]. Il apparaît que les calculs LDA ne peuvent expliquer la présence de petites poches au niveau de Fermi. D'après [202]

Le problème des composés YBCO est que le clivage se fait entre les plans des chaînes CuO et les plans BaO, entraînant une réorganisation des oxygènes dans les chaînes ce qui a pour effet de modifier le dopage en surface de l'échantillon. En effet, les mesures réalisées par Hossain *et al.* montrent que la SF observée est celle d'un composé surdopé (surface des bandes liantes et anti-liantes dues au *bilayer-splitting* et surfaces 1D des chaînes), dont le dopage estimé à partir de l'aire des surfaces observées est  $p \simeq 0.28$ . La particularité de leur travail est d'avoir réussi à contrôler le dopage en surface. En déposant des atomes de potassium K par évaporation sur la surface clivée, en raison du potentiel d'ionisation de K, des trous sont enlevés des plans. Ainsi, plus d'atomes K sont déposés, plus le dopage diminue. Pour un dopage estimé de  $p \sim 0.11$ , c'est-à-dire très proche de ortho-II, il apparaît que la surface de Fermi est constituée, outre des surfaces 1D des chaînes, de quatre arcs de Fermi déconnectés dans les régions nodales. Cependant, il faut noter que ces mesures ne mettent pas en évidence le dédoublement de la cellule unité ainsi que le repliement de la surface de Fermi propre à ortho-II.

De manière générale, il apparaît que les mesures ARPES ne semblent pas être en accord avec l'observation d'oscillations quantiques. Comment des oscillations quantiques pourraient être observées dans le cas d'une surface de Fermi constituée d'arcs ? En effet, les oscillations découlent directement des orbites électroniques fermées. L'explication la plus évidente est que seul un côté de la poche de trous, de forme ellipsoïdale, est vu en ARPES. Ceci peut par exemple être expliqué en considérant que des effets de cohérence dus aux fortes interactions électroniques suppriment le poids spectral d'un côté de la poche [211]. Cette hypothèse serait en accord avec l'interprétation des récents travaux de l'équipe de J. Mésot [206]. La surface de Fermi serait alors constituée de quatre poches situées dans les régions nodales de la PZB,

## 5. Discussion et interprétation des résultats de YBCO sous-dopé

comme illustrée sur la figure 5.8b.

Dans ce scénario, comparons l'aire de la poche observée pour ortho-II avec celle de la zone où le poids spectral est concentré pour le composé NaCCOC. Nous avons tracé sur la figure 5.8a une ellipse d'aire  $A_k=5 \text{ nm}^{-2}$  au dessus de l'*arc de Fermi* observé en ARPES ; on peut voir que cette ellipse correspond assez bien au poids spectral. Ceci renforce l'idée que seule une moitié de chaque poche est observée en ARPES, conduisant à l'observation d'*arcs de Fermi*, alors que la SF serait réellement constituée de quatre poches nodales.

La formation de petites poches a également été suggérée par d'autres techniques expérimentales. Citons par exemple les mesures magnéto-optiques à haute fréquence (effet Hall Infrarouge) pour lesquelles les auteurs ont observé une importante augmentation de la fréquence de Hall  $\omega_H = \frac{eB}{m_H c}$  dans l'état pseudogap quand le dopage diminue à partir du dopage optimal, impliquant la réduction de la masse  $m_H$ , contrairement au comportement attendu quand on s'approche de l'isolant de Mott [212]. Ces mesures vont dans le sens de la présence de poches de Fermi résultantes d'une reconstruction de la SF. Cette observation est de ce fait en désaccord avec les calculs de structure de bande ou encore les mesures d'ARPES.

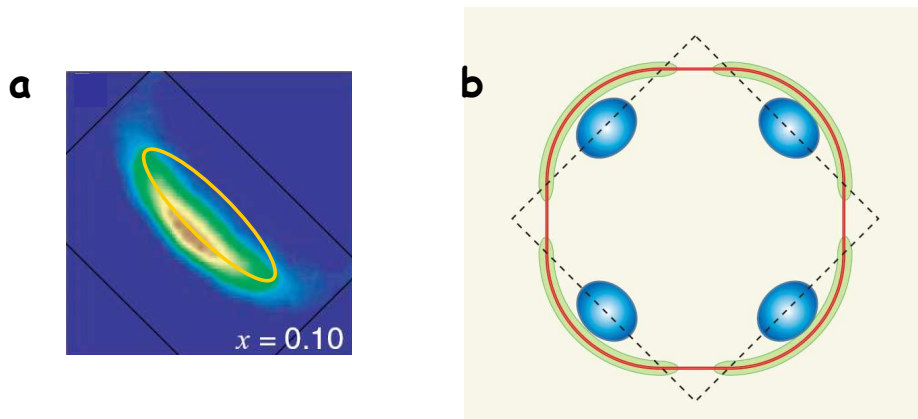


Figure 5.8 – (a) Distribution de l'intensité spectrale mesurée en ARPES dans un quadrant de la première zone de Brillouin dans Na-CCOC au dopage  $p=0.1$  révélant une surface de Fermi constituée de quatre arcs de Fermi distincts. L'ellipse en jaune correspond à une poche de la taille correspondant à la fréquence des oscillations quantiques mesurées dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ . (b) Comparaison entre la grande surface de Fermi d'un supraconducteur à haute température critique attendue d'après la théorie pour un métal conventionnel (en rouge) et observée pour les cuprates surdopés, et les petites poches constituant la surface de Fermi des cuprates sous-dopés, correspondant aux arcs de Fermi observés en ARPES, révélées par la petite fréquence d'oscillations SdH. D'après [213].

### 5.3.2.2 Théories et calculs en accord avec un scénario quatre poches nodales

Plusieurs théories et modèles basés sur l'isolant de Mott dopé suggèrent que la surface de Fermi du côté sous-dopé du diagramme de phase est constituée de quatre poches de Fermi nodales. Plusieurs d'entre elles montrent comment les mesures SdH et ARPES peuvent être compatibles.

L'existence de quatre poches nodales dont un seul côté serait observé en ARPES est également proposée par des calculs basés sur la théorie de champ moyen dynamique (*DMFT* en anglais pour *Dynamical Mean Field Theory*), permettant d'étudier un isolant de Mott



dopé, étendus à une étude en clusters (*Cluster Dynamical Mean Field Theories* ou *CDMFT*) [214]. Les auteurs montrent que le pseudogap qui se développe au niveau de Fermi serait la conséquence d'une ligne de zéros de la fonction de Green à température et fréquence nulle dans la région  $(\pi, \pi)$  de la PZB. La proximité de celle-ci avec la poche de Fermi entraînerait la suppression du poids spectral des quasiparticules observé en ARPES d'un côté de la poche.

P.A. Lee a étudié la dispersion électronique avec un gap de symétrie  $d$  dans le cas d'un état dit *staggered flux state*. Dans ce modèle, proposé par T. Hsu *et al.* [215], on considère que des courants orbitaux disposés en quinconce circulent dans les plans  $\text{CuO}_2$ , formant alors le paramètre d'ordre de cet état. Quand tous les bosons sont condensés, cet état devient un liquide de Fermi et la dispersion énergétique en fonction de  $k$  induit la formation de quatre poches de fermi dans les positions  $(\pm\pi/2, \pm\pi/2)$ .

Dans un récent papier, N. Harrison *et al.* considèrent que des petites fluctuations antiferromagnétiques (AF) sont présentes, mais que du fait de leur lente variation à basse température, le système peut être caractérisé par un verre AF, de longueur de corrélation  $\xi$  [216]. Les auteurs proposent que la topologie de la SF observée va alors dépendre de la taille de  $\xi$ . Pour les  $\xi$  grands, ce qui serait le cas à très basse température et fort champ magnétique, la SF est constituée de poches nodales. En revanche, pour les petits  $\xi$ , le poids spectral est réduit, conduisant à l'observation d'arcs dans les régions nodales.

### 5.3.2.3 Libre parcours moyen

Le libre parcours moyen révélant les propriétés de transport dans les plans  $\text{CuO}_2$ ,  $\ell_{tr}$ , peut également être extrait à partir de la magnétorésistance transverse. Un fit de la MR basé sur la formule 1.34 du modèle à deux bandes permet d'estimer  $\rho(B = 0) \simeq 126 \mu\Omega \text{ cm}$  à  $T=1.5\text{K}$  alors qu'un simple fit en  $B^2$  de la MR donne  $\rho(B = 0) \simeq 238 \mu\Omega \text{ cm}$ , nous permettant ainsi d'estimer une large barre d'erreur (figure 5.9). A ce stade, nous pouvons seulement supposer que la SF est constituée de  $n$  poches par plan, soit  $2n$  poches en totalité par maille élémentaire. On peut alors estimer  $\ell_{tr} = hc/2nk_F e^2 \rho(B = 0) \simeq (7 \pm 2)/n \text{ nm}$ , où  $c=11.7 \text{ \AA}$  est le paramètre de maille et  $k_F = \sqrt{2\pi F/\phi_0}$  est le vecteur de Fermi. On remarque que cette valeur et celle déterminée précédemment à partir de l'amplitude des oscillations sont très similaires, ce qui suggère qu'une seule poche par plan participe aux propriétés de transport.

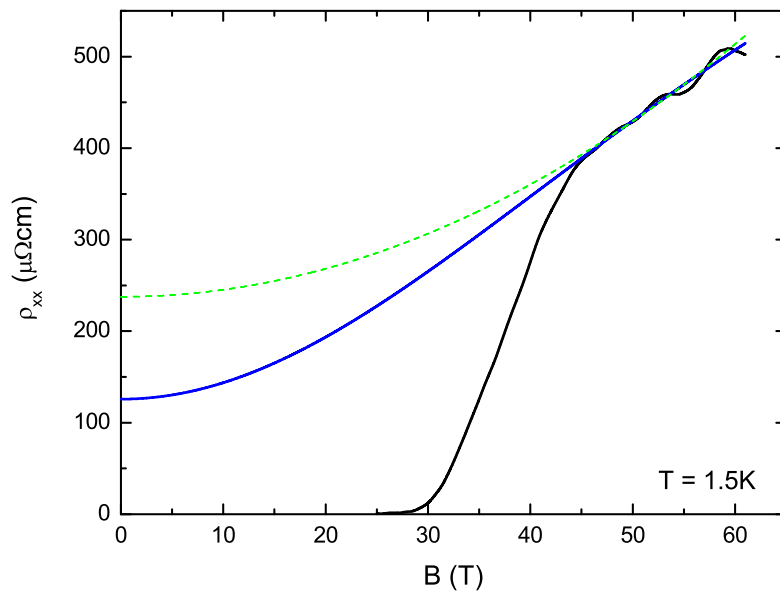


Figure 5.9 – Fit de la magnétorésistance transverse à  $T= 1.5$  K et haut champ avec la formule 1.34 décrivant le comportement de la magnétorésistance dans un modèle à deux bandes (trait plein) et avec une simple dépendance en  $B^2$  (ligne en pointillé).

## 5.4 Interprétation de l'effet Hall négatif

### 5.4.1 Effet Hall dans les autres cuprates

Il peut paraître étonnant qu'aucun changement de signe de l'effet Hall n'ait été observé dans d'autres cuprates sous-dopés. En effet, des mesures de transport sous champ magnétique intense jusqu'à 50 T ont été effectuées dans  $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_{6+\delta}$  (BSLCO) et dans  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  (LSCO) (voir par exemple [217, 218]). Dans le cas de LSCO, le coefficient de Hall présente une forte dépendance en température, passant de  $R_H$  (/atome de Cu)  $\sim 1$  à  $R_H$  (/atome de Cu)  $\sim 2.2$  pour des dopages intermédiaires  $p \sim 0.17$ , celui-ci sature à basse température à des valeurs positives. La principale anomalie observée est un maximum de  $R_H$  autour du dopage optimum  $p \sim 0.175$ .

Une explication possible réside dans le fait que LSCO et BLSO sont beaucoup plus sujets au désordre que YBCO. De ce fait, la mobilité  $\mu$  dépendant directement du temps de relaxation  $\tau$ , on peut imaginer que la mobilité des électrons  $\mu_e$  sera plus affectée que la mobilité des trous  $\mu_h$  et que compte tenu que la densité de trou est supérieure à celle d'électrons la dépendance en température de  $R_H$ , qui restera positif à basse température. C'est le cas par exemple dans le composé  $\text{NbSe}_2$  que nous mentionnons ci-dessous ; le fait de rajouter des impuretés dans le matériau conduit l'effet Hall, négatif à basse température dans les échantillons les plus propres, à rester positif à basse température [219].

### 5.4.2 Influence des chaînes Cu-O

Une chute de l'effet Hall dans YBCO similaire à celle que nous avons observée dans notre étude a également été observée par Segawa et Ando [220, 170]. En considérant l'anisotropie de la résistivité dans le plan  $ab$ , aussi faible soit elle, dans l'effet Hall mesuré, les auteurs ont montré que cette chute est une caractéristique des plans  $\text{CuO}_2$  et non des chaînes dans les composés (très) sous-dopés.

Nous avons évoqué que la particularité de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  est l'existence de chaînes Cu-O entre les plans  $\text{CuO}_2$  dirigées suivant l'axe  $b$  de la structure cristalline orthorhombique qui jouent le rôle de réservoir de charge pour les plans  $\text{CuO}_2$ . Ces chaînes constituent en plus des plans un canal unidimensionnel supplémentaire pour la conductivité électronique. De ce fait, la conductivité dans les plans  $ab$  est anisotrope à température ambiante. Dans notre cas, on s'intéresse à la région sous-dopée du diagramme de phase, c'est-à-dire lorsqu'un grand nombre de sites sont vacants dans les chaînes ; on peut donc s'attendre à ce que les chaînes n'aient qu'une faible influence sur la conductivité à basse température. En effet, les chaînes constituant des systèmes unidimensionnels, la conduction dans celles-ci est fortement affectée par le désordre. On peut donc se demander si les chaînes ont une influence sur le comportement caractéristique de l'effet Hall que nous avons observé, en particulier le changement de signe intervenant à basse température.

Cependant, il convient d'étudier plus attentivement l'influence des chaînes pour ce qui concerne l'effet Hall. Pour cela, nous avons tracé l'anisotropie de la résistivité dans le plan définie par  $\rho_a/\rho_b$  mesurée dans deux échantillons différents. Celle-ci est représentée en fonction de la température sur la figure 5.10a pour le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  et sur la figure 5.10c pour le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.67}$ , en plus de la résistivité pour chaque échantillon mesurée suivant les deux directions à champ nul. Pour le composé ortho-II, alors que l'anisotropie vaut 2.3 à température ambiante, elle tend à disparaître vers  $T=80$  K,  $\rho_a/\rho_b \sim 1$ , indiquant que les porteurs dans les chaînes sont complètement localisés et n'ont donc pas d'influence sur la conductivité à basse température. C'est un peu moins évident pour le composé ortho-

## 5. Discussion et interprétation des résultats de YBCO sous-dopé

VIII où  $\rho_a/\rho_b \sim 3.3$  à température ambiante et  $\sim 2.5$  à  $T=110$  K. Toutefois, il est clair que l'anisotropie, en même temps que la conductivité dans les chaînes, a tendance à diminuer quand la température diminue.

L'anisotropie dans les plans  $\text{CuO}_2$  est fortement dépendante des échantillons car la conductivité des chaînes est extrêmement sensible aux défauts et à l'ordre des atomes d'oxygène dans les chaînes.

Intéressons nous à la conductivité propre des chaînes. Si on applique un modèle simple qui consiste à considérer que les chaînes et les plans dans la direction  $ab$  constituent deux canaux de conduction parallèles, la résistivité des chaînes est donnée par :

$$\rho_{ch} = \frac{\rho_a \rho_b}{\rho_a - \rho_b} \quad (5.4)$$

où on suppose que la résistivité dans la direction  $a$  correspond à la résistivité des plans. La dépendance en température de  $\rho_{ch}$  est montrée sur les figures 5.10b et d pour les deux composés considérés ici. Le point important est que la résistivité des chaînes présente une dépendance quadratique en température au dessus de  $\sim 160$  K, caractéristique d'un comportement métallique. Cette observation est en accord avec les précédentes études que l'on trouve dans la littérature [220, 221]. En revanche, on observe à basse température une divergence de  $\rho_{ch}$  en dessous de  $\sim 160$ K dans ortho-II.

Par conséquent, le comportement caractéristique de  $R_H$  observé à basse température, en particulier le changement de signe, dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  et  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.67}$  est bien une propriété des plans  $\text{CuO}_2$  et les chaînes n'ont que très peu d'influence sur celui-ci.

Le cas du composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$  est plus compliqué en raison du fait que les chaînes conservent un comportement métallique jusqu'à très basse température [220, 222] et que l'anisotropie est plus grande que dans les composés Y123 en raison de la présence des deux chaînes Cu-O entre les plans. De ce fait, comme le montre Segawa *et al.*, les chaînes contribuent fortement à la dépendance en température de l'effet Hall. Cependant, si on regarde le composé  $\text{PrBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ , pour lequel il n'y a pas de plan conducteur  $\text{CuO}_2$  mais uniquement deux chaînes Cu-O dirigées suivant l'axe  $b$ , l'anisotropie mesurée entre  $\rho_a$  et  $\rho_b$  est très grande [223]. Ceci implique que la conductivité dans ce matériau est essentiellement due aux chaînes unidirectionnelles. Cependant, l'effet Hall mesuré dans ce composé ne montre aucun changement de signe, celui-ci reste toujours positif. Si les chaînes contribuent fortement à  $R_H$  dans Y124, elles ne semblent pas être responsables du changement de signe observé à basse température.

### 5.4.3 Présence de poches d'électrons dans la surface de Fermi

L'explication la plus simple pour l'observation d'un effet Hall négatif dans un état métallique est la présence d'une poche d'électrons au niveau de la surface de Fermi. Bien sûr, cette interprétation peut paraître surprenante car dans le cas de YBCO, le dopage est de type trou. De ce fait, on suppose que la surface de Fermi contient des poches d'électrons et de trous. Dans ce scénario, on peut supposer que les propriétés électroniques sont décrites par un modèle à deux bandes (l'une pour chaque type de porteurs). Dans ce cas nous avons vu que le coefficient de Hall est donné par :

$$R_H = \frac{1}{e} \frac{n_h \mu_h^2 - n_e \mu_e^2 + \mu_e^2 \mu_h^2 (n_e - n_h) B^2}{(n_e \mu_e + n_h \mu_h)^2 + \mu_e^2 \mu_h^2 (n_e - n_h)^2 B^2} \quad (5.5)$$

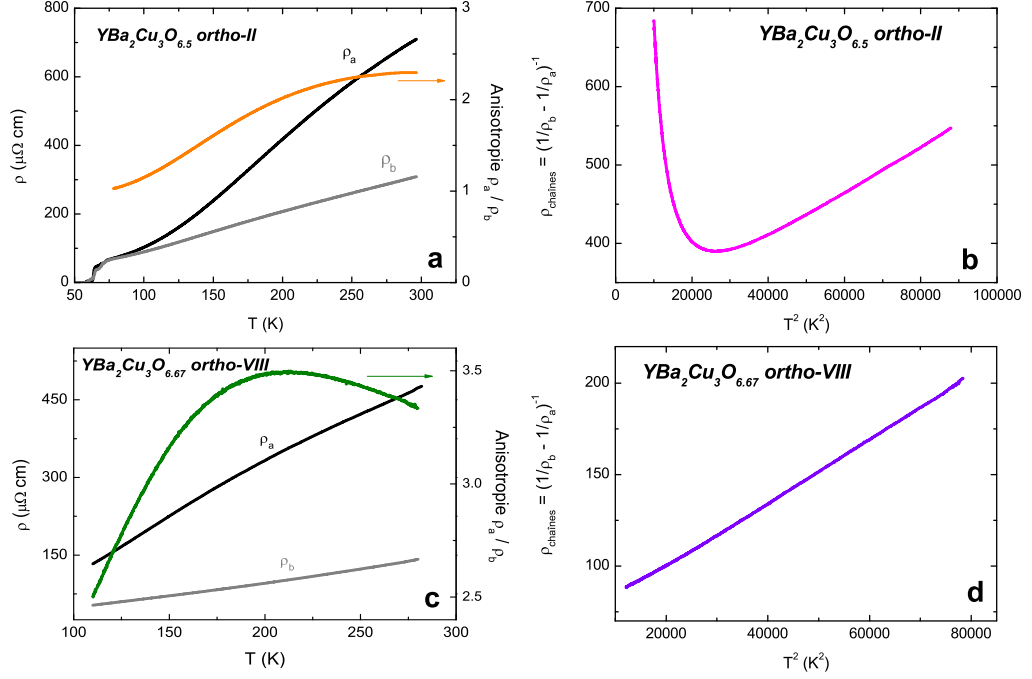


Figure 5.10 – (a), (c) Résistivité suivant la direction  $a$ , la direction  $b$  et l'anisotropie de la résistivité dans le plan  $\rho_a/\rho_b$  d'un échantillon  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  ( $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.67}$ ) en fonction de la température. (b), (d) Résistivité des chaînes Cu-O  $\rho_{ch} = \rho_a\rho_b/(\rho_a - \rho_b)$  en fonction de la température dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  ( $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.67}$ ). Les chaînes ont un comportement métallique à haute température puis les porteurs se localisent à plus basse température comme on peut le voir pour le composé ortho-II.

où  $e$  et  $h$  dénotent les électrons et les trous respectivement et dans le cas où la densité de porteurs de varie pas avec la température. Le signe de  $R_H$  va donc dépendre à la fois des amplitudes relatives des densités  $n_e$  et  $n_h$  et des mobilités  $\mu_e$  et  $\mu_h$ . Etant donné que ces composés sont dopés aux trous, on a  $n_h > n_e$ . Ainsi, on peut comprendre le signe négatif de  $R_H$  en considérant que les électrons ont une plus grande mobilité que les trous  $\mu_e > \mu_h$ . En revanche, à haute température l'effet Hall est positif quelque soit l'échantillon, ce qui suggère que la conductivité des trous domine celle des électrons.

Dans un tel cas de figure, il convient de revenir sur l'interprétation de l'observation des oscillations Shubnikov-de Haas dans l'état normal de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  et  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ . En effet, nous avons vu que l'amplitude des oscillations quantiques est proportionnelle au facteur de Dingle  $R_D$ . Or ce dernier dépend directement de la mobilité de façon exponentielle :

$$R_D = \exp\left(-\frac{2\pi^2 m^* k_B T_D}{\hbar e B}\right) = \exp(-\pi/\mu B) \quad (5.6)$$

Si l'on suppose que la mobilité des électrons est supérieure à celle des trous, c'est la poche

## 5. Discussion et interprétation des résultats de YBCO sous-dopé

---

d'électron qui est observée dans les mesures d'oscillations quantiques. Dans ce cas, soit l'orbite de trous est ouverte, et aucune oscillation quantique ne peut être observée, soit la mobilité des trous est trop faible pour que nous puissions distinguer la fréquence correspondante à la poche de trous. En effet, il suffit que la mobilité des trous soit seulement plus petite d'un facteur deux que celle des électrons pour que les oscillations quantiques soient complètement atténuées. C'est ce dernier scénario que nous adoptons.

### 5.4.4 D'autres exemples/interprétations pour un effet Hall négatif

Dans des systèmes aussi complexes que les cuprates, il est naturel d'envisager diverses explications pour l'origine d'un effet Hall négatif. Dans la suite, nous présentons quelques travaux et scénarios envisagés issus de la littérature révélant un comportement similaire à l'effet Hall que nous avons mesuré dans YBCO.

#### 5.4.4.1 Une onde densité de charge

Un exemple intéressant est le composé  $\text{NbSe}_2$ , qui présente une transition onde de densité de charge (CDW) incommensurable à  $T_{CDW}=32$  K suivie d'une transition supraconductrice à  $T_c=7.2$  K [224]. Alors que les propriétés de transport semblent peu affectées par la transition CDW, l'effet Hall montre quant à lui une évolution significative à la transition. Celui-ci passe d'une valeur constante et positive à haute température à une valeur constante mais négative en dessous de  $T_{CDW}$ . Dans ce cas, la dépendance en température de la chaleur spécifique indique que la faible perte de porteurs à la transition est en contradiction avec une transformation de la surface de Fermi. Certains auteurs suggèrent plutôt un scénario basé sur un changement important du libre parcours moyen électronique, en se basant sur des travaux de N.P. Ong [4].

#### 5.4.4.2 Topologie de la surface de Fermi

Une analyse basée sur le modèle de Ong a permis d'expliquer la dépendance en température de  $R_H$  dans le composé pérovskite supraconducteur  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  [225]. La surface de Fermi de ce composé est très bien connue ; les mesures de calculs de structure de bandes et les mesures d'oscillations quantiques sont en parfait accord et montrent que la surface de Fermi quasi-2D est constituée de deux cylindres de type électron et d'un cylindre de type trou. Ainsi, en utilisant les valeurs connues de  $k_F$  et en supposant que le libre parcours moyen à basse température est le même pour chaque poches, les auteurs ont déduit une valeur de  $R_H$  en très bon accord avec les mesures.

#### 5.4.4.3 Les stripes

Le composé  $\text{La}_{2-x-y}\text{Nd}_y\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  (Nd-LSCO) présente un ordre de stripes statique pour  $x=1/8$ . Des mesures d'effet Hall ont révélé qu'en dessous d'une température notée  $T_0$  et pour un dopage  $x < 1/8$ ,  $R_H$  présentait une chute brutale et approchait zéro à basse température [226]. De la même façon, les auteurs ont conclu que ce phénomène est indépendant de l'origine de la supraconductivité car non seulement la chute de  $R_H$  a lieu au dessus de  $T_c$  mais elle est indépendante du champ magnétique appliqué. Les auteurs ont alors attribué cette chute de  $R_H$  à l'existence d'une phase ordonnée de spins et de charges pour  $x < 1/8$ , résultant d'un changement de la topologie de la surface de Fermi associé aux stripes et d'une compensation accidentelle entre les surfaces d'électrons et de trous.

Il en est de même dans le composé  $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$  avec  $x=0.11$ , où, bien qu'aucun ordre statique de stripes n'ait été observé dans les expériences de diffusion de neutrons, l'existence d'un tel ordre est suggéré en raison de la transition orthorhombique-tétragonale et des anomalies dans les propriétés de transport intervenant en dessous d'une température notée  $T_{DW}$ , associée à l'apparition d'un ordre de stripes, [227] similaires à celles de Nd-LSCO. Dans leur travail, les auteurs ont mesuré un effet Hall qui augmente jusqu'à  $T_{DW}$  et chute brutalement à  $T_{DW}$  quand la température diminue.

## 5.5 Densité de porteurs - Théorème de Luttinger

Nous allons dans cette partie nous intéresser à la densité de porteurs que l'on peut déduire à partir de la fréquence d'oscillations.

Tout d'abord, intéressons nous au régime surdopé. Nous avons vu que d'après les mesures d'ARPES, la surface de Fermi des cuprates surdopés consiste en un grand cylindre, dont la taille correspond à  $\sim 65\%$  de la première zone de Brillouin (PZB) dans le cas de Tl-2201 par exemple. La taille de ce cylindre est en très bon accord avec les calculs de structures de bandes LDA. Ceux-ci prévoient que la densité de porteurs par atome de Cuivre évolue avec le dopage comme  $n = 1 + p$ , où  $p$  est le dopage et  $n$  le nombre de porteurs par atome de Cuivre (pour un plan  $\text{CuO}_2$ ). En effet, à dopage nul, les composés sont des isolants de Mott avec un porteur par atome de Cuivre. Le dopage  $p$  correspondant au nombre de porteurs (trous) que l'on rajoute dans les plans, on s'attend donc à ce que la densité de porteurs soit  $n = 1 + p$  en augmentant le dopage. De plus, ces résultats sont en accord avec le théorème de Luttinger, qui stipule que l'aire de la surface de Fermi en présence d'interactions est la même que pour des électrons libres, c'est-à-dire qu'elle est déterminée par la densité de porteurs de la cellule unité. La densité de porteurs par atome de Cuivre et par plan est ainsi donnée dans un cas 2D par :

$$n = \frac{A_k}{4\pi^2} ab = \frac{F}{\phi_0} ab \quad (5.7)$$

où  $A_k$  est l'aire de l'orbite cyclotron déterminée par la relation d'Onsager,  $F$  la fréquence d'oscillation,  $\phi_0 = 2.07 \times 10^{-15} \text{ Tm}^2$  le quantum de flux et  $ab$  est l'aire occupée par un atome de Cu. Si on considère la densité de porteurs trouvée à la fois par les mesures d'effet Hall, d'AMRO et d'ARPES pour le composé  $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+\delta}$  avec  $p=0.25$ , celle-ci vaut  $n=1.26 \pm 0.04$  trous par atome de Cuivre. Cette valeur correspond à la valeur attendue par les calculs de structures de bandes  $n = 1 + p$ . Dans le cas du composé surdopé Tl-2201, la fréquence déterminée par les récentes mesures d'oscillations quantiques implique que  $A_k$  représente  $\sim 65\%$  de la PZB, ce qui est en accord avec un nombre de porteurs de  $n \sim 1.30$  [112].

Cependant, cet accord entre la théorie et l'expérience n'est obtenu que du côté surdopé du diagramme de phase. En effet, il semble que dans le cas des cuprates sous-dopés, les corrélations électroniques mais surtout l'ouverture du pseudogap entraîne que la densité de porteurs  $n$  soit plutôt proportionnelle à  $p$  et non  $1 + p$ .

Le fait que nous ayons confirmé le caractère (quasi-)bidimensionnel de la surface de Fermi observée par les oscillations quantiques nous permet de supposer que la densité de porteurs par atome de Cuivre par plan peut être également déterminée par la formule 5.7. On trouve ainsi que pour le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ , une fréquence de 530 T correspond à  $n = 0.019$  porteurs par atome de Cu et pour le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ , une fréquence de 660 T implique que  $n = 0.024$  porteurs par atome de Cuivre (en considérant 2 plans  $\text{CuO}_2$  par maille élémentaire). Bien que les mesures d'oscillations quantiques ne permettent pas

## 5. Discussion et interprétation des résultats de YBCO sous-dopé

de déterminer le nombre de poches présentes dans la surface de Fermi, il paraît difficile de concilier la théorie des bandes avec une si faible densité de porteurs. En supposant que (presque) toutes les poches de la surface de Fermi ont été observées, la densité de porteurs déterminée semble être plus en accord avec l'hypothèse que  $n = p$  du côté sous-dopé.

Cette idée est également suggérée si on regarde la taille de la section extrême de la SF perpendiculaire au champ  $A_k$  via la relation d'Onsager  $A_k = 2\pi eF/\hbar$ . Si on considère la valeur de la densité déterminée par la théorie des bandes, on doit avoir pour les composés  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  et  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$   $n=1.1$  et  $n=1.14$  respectivement, ce qui correspond à une aire  $A_k$  représentant 55 % et 57 % de la PZB dans chacun des cas. Or, nous avons vu que l'aire déterminée à partir de la fréquence d'oscillation ne représente que  $\sim 2$  % pour ortho-II et 2.4 % pour Y124 de la PZB. Ceci suggère fortement une chute de la densité de porteurs quand le dopage diminue d'un ordre de grandeur, passant de  $n = 1 + p$  du côté surdopé à  $n = p$  du côté sous-dopé. Ce comportement étrange peut par exemple être vu comme l'ouverture du pseudogap qui entraîne que des parties de la surface de Fermi sont gappées en dessous de  $T_c$ .

Cette observation est supportée par plusieurs autres mesures expérimentales. Nous allons ici citer les plus significatives d'entre elles. Sur la figure 5.11, on compare la densité de porteurs en fonction du dopage déterminée dans les expériences et celles trouvées à partir des mesures d'oscillations quantiques (en considérant la présence d'une seule poche et d'un seul plan  $\text{CuO}_2$  par cellule unité). Intéressons-nous dans un premier temps aux mesures de longueur de pénétration  $\lambda$ . A basse température, la longueur de pénétration est directement proportionnelle à la densité superfluide  $n_s = \frac{m^*}{\mu_0 e^2 \lambda^2}$  où  $m^*$  est la masse effective et  $\mu_0$  la perméabilité magnétique du vide. On suppose ici que la densité superfluide dans l'état supraconducteur correspond à la densité de porteurs dans l'état normal de l'état sous-dopé [217]. En prenant la valeur de  $\lambda=(202 \pm 22)nm$  trouvée dans le cas du composé ortho-II [228] et en considérant d'après nos résultats que  $m^* \approx 2m_0$ , on trouve une densité superfluide  $n_s \simeq 0.12$  porteur par atome de Cuivre par plan<sup>1</sup>. On constate que cette valeur est plus proche de  $p=0.1$  que de  $1 + p= 1.1$ . Les mesures réalisées par D.M. Broun *et al.* dans des composés YBCO très sous-dopés vont également dans ce sens [229]. Une autre observation significative concerne les mesures du coefficient de Sommerfeld  $\gamma$  dans l'état normal des cuprates sous-dopés. Sur la figure 5.11 est représentée le saut de chaleur spécifique  $\Delta\gamma(T_c) = \gamma(T) - \gamma(120K)$  en fonction du dopage issue de [230]. Alors que pour  $p > 0.19$   $\Delta\gamma(T_c)$  est pratiquement constant, celui-ci diminue brutalement une fois passé ce dopage critique. Cela va aussi dans le sens d'un changement (brutal) de la densité de porteurs vers le dopage critique  $p_{crit}=0.19$ . Une chute drastique de la densité d'état peut expliquer cette diminution brutale de chaleur spécifique. Une étude systématique en fonction du dopage de la constante de Hall a été réalisée par Balakirev *et al.* [217]. Sur la figure 5.11 nous avons reporté les données de  $n_H = 1/eR_H$  pour le composé  $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_{6+\delta}$  mesuré pour  $T < 1.6K$ . Là encore, le nombre de Hall présente un changement drastique de comportement avec le dopage à proximité du dopage critique  $p_{crit}$ ; au lieu d'évoluer de façon monotone comme  $1 + p$  avec le dopage, on peut voir que celui-ci a tendance à se rapprocher de  $n_H = p$  à faible dopage.

Pendant, on peut noter que si on suppose que la densité de porteur du côté sous-dopé vérifie  $n = p$  et quelque soit le nombre de poches de trous qui constituent la surface de Fermi, le théorème de Luttinger n'est pas vérifié dans le régime sous-dopé. En effet, nous

1. La densité par atome de Cuivre par plan est égale à  $n_s = \frac{m^*}{\mu_0 e^2 \lambda^2} \times abc$ , où  $abc = (0.38227 \times 0.38872 \times 1.17)nm^3 = 1.7385 \times 10^{-28}m^3$  est le volume de la maille élémentaire.



avons vu que d'après celui-ci, la contribution d'une poche est de  $n=0.019$  porteur par atome de Cu pour ortho-II alors que le dopage est  $p=0.1$  et  $n=0.024$  porteur pour Y124 pour un dopage  $p=0.14$ . Il paraît donc impossible de vérifier le théorème de Luttinger si on considère que seules des poches de trous sont présentes, et ce quelque soit leur nombre.

Le fait d'avoir une faible densité de porteurs proportionnelle à  $p$  du côté sous-dopé ainsi que la présence d'une poche d'électrons vont dans le sens d'une reconstruction de la surface de Fermi, entre un métal caractérisé par une grande surface de Fermi de type cylindrique dans le régime surdopé et un métal caractérisé par de petites poches dans le régime sous-dopé. D'après nos données, cette transition apparaît autour d'un dopage critique situé entre  $p=0.14$  et  $p=0.25$ .

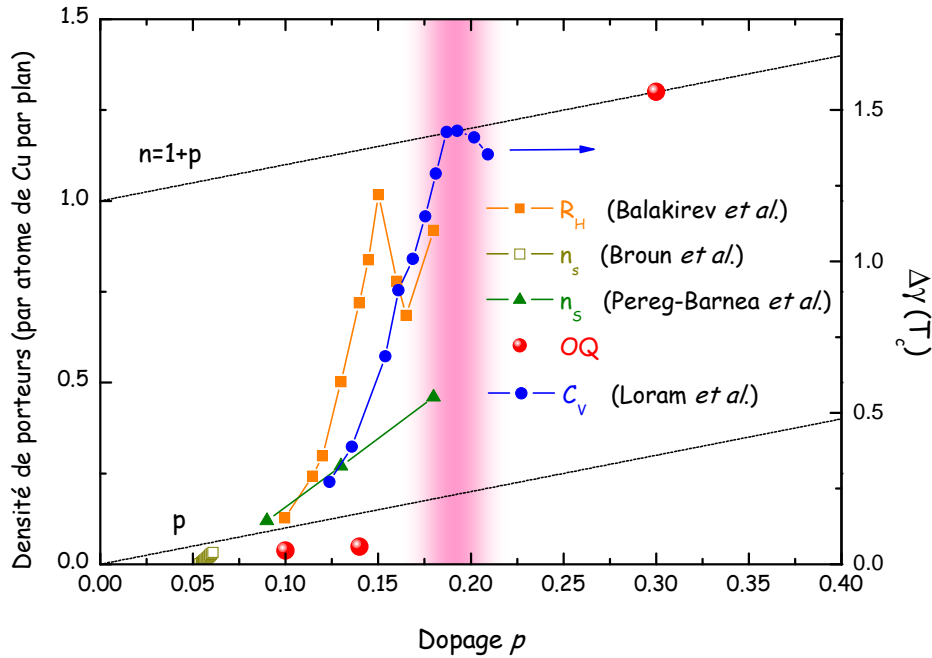


Figure 5.11 – Densité de porteurs par atome de Cuivre en fonction du dopage estimée à partir de différentes sondes expérimentales. Les lignes en pointillés représentent la valeur du nombre de porteurs issu des calculs de structures de bandes LDA  $n = 1 + p$  et la valeur que la densité de porteur semble atteindre dans le régime sous-dopé  $n = p$ .

Nous venons de voir qu'un scénario selon lequel la surface de Fermi serait constituée de quatre poches nodales ne satisfait pas le théorème de Luttinger mais qu'il ne permet pas non plus d'expliquer le signe négatif de l'effet Hall observé pour trois dopages différents. En supposant que la surface de Fermi contient d'autres poches qui ne seraient pas observées dans les expériences d'oscillations quantiques, alors la règle de somme peut être satisfaite.

Pour cela, étudions le cas du composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ . En considérant que la poche observée dans les expériences SdH est une poche d'électrons, la fréquence d'oscillation SdH mesurée  $F=530$  T correspond à une densité de porteurs de  $n_e=0.038$  électrons par atome de cuivre (en ne considérant qu'un seul plans  $\text{CuO}_2$  de la cellule unité). En supposant que la densité de porteur "totale"  $n$  est égale au dopage, alors on a :

$$n = n_h - n_e = p = 0.1 \quad (5.8)$$

où  $n_h$  est la densité de trous. Il s'ensuit que la densité de trous par atome de cuivre (pour les deux plans) vaut  $n_h = 0.138$ , conduisant à une poche correspondant à  $F = 960$  T.

Il en est de même pour le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ , où la fréquence SdH mesurée  $F = 660$  T implique que  $n_e = 0.048$  électrons par atome de Cu. Le dopage étant estimé à  $p \simeq 0.14$ , cela entraîne que la densité de trous par atome de Cu est  $n_h = 0.188$ , soit une fréquence associée à la poche  $F = 1300$  T.

Ainsi, les mesures SdH ne sont plus en contradiction avec le théorème de Luttinger. Cependant, la question qui se pose maintenant est de savoir comment des poches d'électrons peuvent apparaître dans un composé qui a priori ne possède que des porteurs de type trous ?

## 5.6 Scénarios basés sur une reconstruction de la surface de Fermi

### 5.6.1 Scénarios commensurables

Dans la suite, nous discutons d'un scénario possible invoquant une reconstruction de la surface de Fermi constituée d'une grande poche de trous (LDA) en une surface de Fermi constituée de petites poches de trous et de petites poches d'électrons.

Pour cela, considérons un scénario simple type onde de densité, avec un vecteur d'ordre  $\mathbf{Q} = (\pi, \pi)$ . Cette reconstruction est illustrée sur la figure 5.12. Une construction géométrique simple permet de déterminer la nouvelle zone de Brillouin. Pour cela, on part de la zone de Brillouin étendue calculée en LDA et observée du côté surdopé (①). On translate cette zone suivant le vecteur  $\mathbf{Q}$  (②). La topologie de la SF est donc complètement changée en raison des levées de dégénérescence des bandes d'énergie ; des gaps apparaissent et des petites poches sont formées. La nouvelle surface de Fermi résultante consiste alors de petites poches de trous situées en  $(\pi/2, \pi/2)$  et d'électrons situées en  $(\pi/2, 0)$  (③). La nouvelle PZB reconstruite contient alors deux poches de trous et une poche d'électrons. En considérant que les oscillations observée à la fréquence  $F = 530$  T ( $F = 660$  T) pour ortho-II (pour Y124) proviennent des électrons et en faisant en sorte que le théorème de Luttinger soit respecté, une densité de trous  $n_h = p + n_e = 0.138$  (0.188) implique une fréquence  $F \simeq 960$  T ( $F \simeq 1300$  T).

La relation de dispersion généralement utilisée dans les cuprates de la surface de Fermi non reconstruite est donnée par [231] :

$$\varepsilon_k = -2t(\cos k_x + \cos k_y) + 4t' \cos k_x \cos k_y - 2t''(\cos 2k_x + \cos 2k_y) - \mu \quad (5.9)$$

Celle-ci est représentée sur la figure 5.13 (cadrant (a)) avec  $t = 0.38eV$ ,  $t' = -0.32t = 0.122eV$  et  $t'' = 0.16t = 0.061eV$  [232]. La surface de Fermi est représentée sur le quadrant (b). Les cadrans (c) et (d) représentent quant à eux la relation de dispersion issue de la reconstruction suivant un vecteur d'ordre  $(\pi, \pi)$  dans sa globalité et au niveau de Fermi respectivement. L'apparition de petites poches de trous et d'électrons est ainsi mise en évidence.

Cependant, afin de valider ce scénario, il faudrait mesurer cette deuxième fréquence  $F \simeq 960$  T, dont la valeur est très proche de la seconde harmonique de la fréquence  $F = 530$  T. A ce jour, il est difficile de se prononcer quant à l'existence de cette fréquence.

Bien sûr, la question qui se pose maintenant est de savoir si des modèle théoriques prévoient une telle reconstruction. Nous présentons différentes théories en accord avec ce possible scénario.

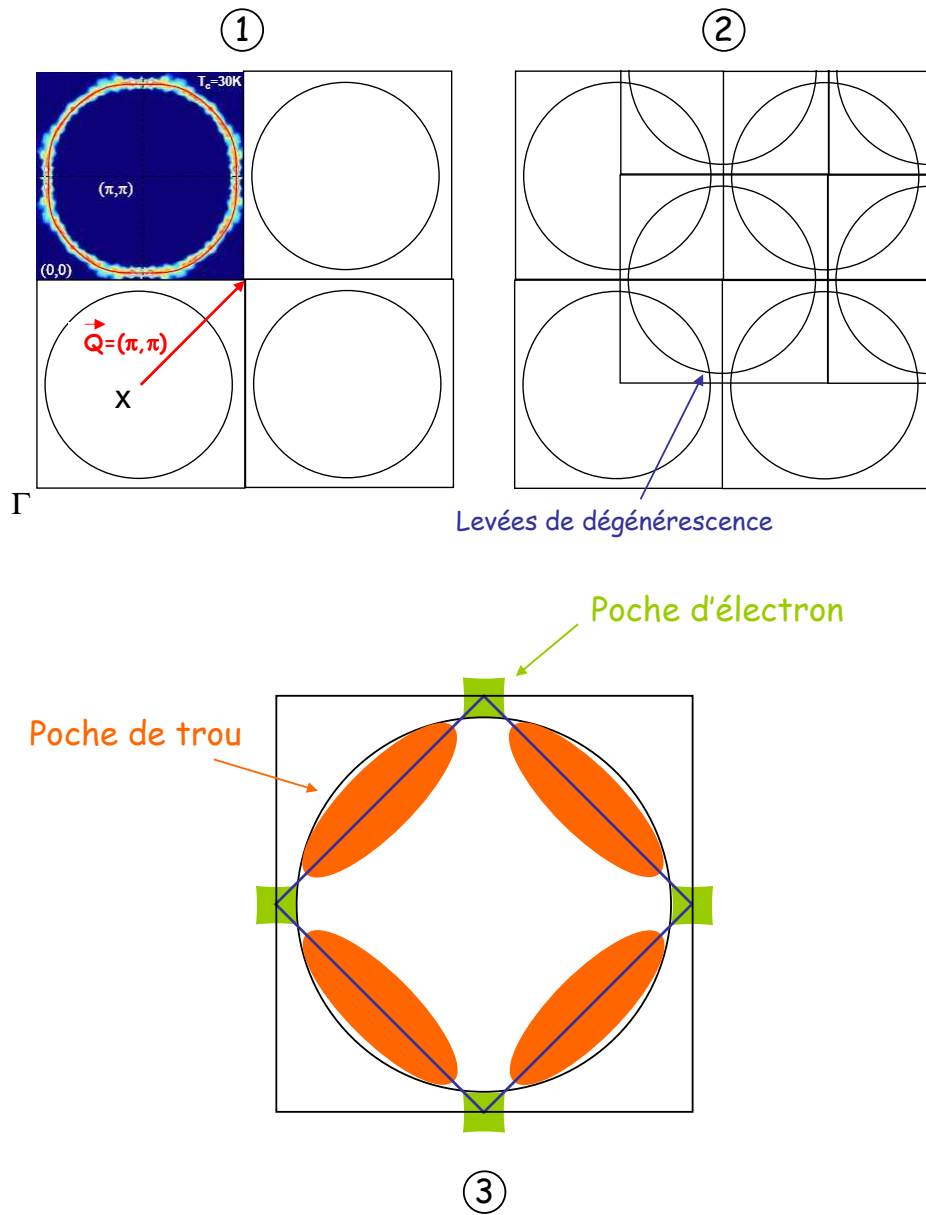


Figure 5.12 – Reconstruction de la surface de Fermi de YBCO suivant un vecteur d'ordre  $(\pi, \pi)$ .

## 5. Discussion et interprétation des résultats de YBCO sous-dopé

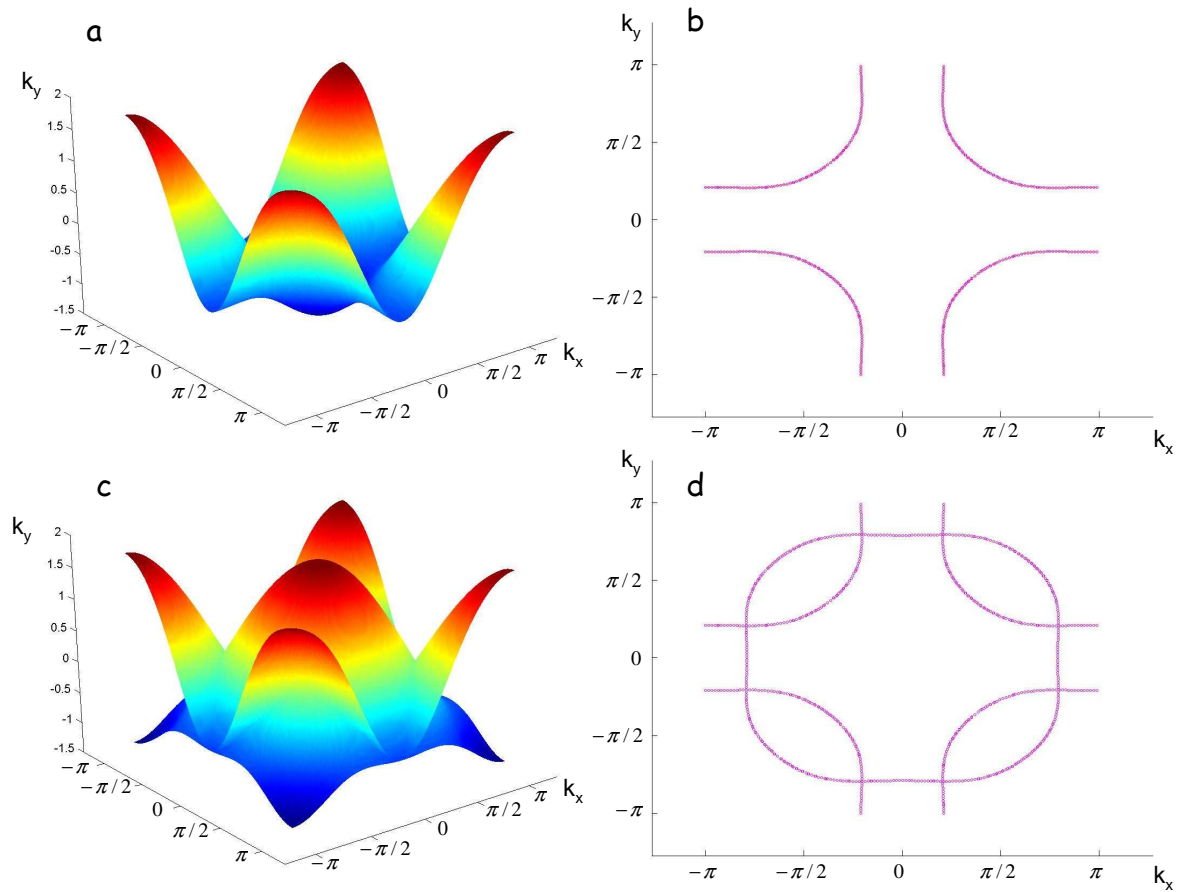


Figure 5.13 – Relation de dispersion dans le cas d’une surface de Fermi non reconstruite (a) et surface de Fermi résultante (b). Cas où on a une translation de cette même relation de dispersion suivant le vecteur  $(\pi, \pi)$  (c) et surface de Fermi reconstruite (d).

### 5.6.1.1 Evaluation de la chaleur spécifique électronique

La chaleur spécifique  $C(T)$  est une mesure thermodynamique qui fournit des informations sur tous les états électroniques de basse énergie de l'ensemble du matériau. L'analyse est de ce fait rendue difficile car le terme électronique de  $C(T)$  ne représente que quelques % de la contribution des phonons.

Le coefficient de chaleur spécifique (coefficient de Sommerfeld)  $\gamma = C(T)/T$  d'un liquide de Fermi est donné par  $\gamma = \pi^2 k_B^2 / 3N(\varepsilon_F)$  où  $N_A$  est le nombre d'Avogadro et  $N(\varepsilon_F)$  est la densité de quasiparticules en  $\varepsilon_F$ . Dans le cas d'une surface de Fermi bidimensionnelle constituée de plusieurs poches,  $\gamma$  est donné par :

$$\gamma = \frac{\pi N_A k_B^2 a^2}{3\hbar^2} \sum_i^{\text{nombre de poches}} m_i^* \quad (5.10)$$

où la somme sur  $i$  porte sur le nombre de poches,  $a$  est le paramètre de maille du plan et  $m_i^*$  est la masse effective cyclotron de la poche. Cette quantité ne dépend pas de la densité de porteurs et ce en raison du fait que  $m^*$  et  $\gamma$  dépendent de la dérivée de l'aire de la SF par rapport à l'énergie et sont multipliés par le même facteur représentant les interactions électron-phonon et électron-électron.

Dans le cas de plusieurs composés, cette formule simple permet d'estimer un coefficient de Sommerfeld en bon accord avec l'expérience. Prenons le cas du composé  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  dont la surface de Fermi est aujourd'hui bien connue. Les mesures dHvA ont permis de déterminer que la SF est constituée de trois bandes de masses effectives cyclotron respectives  $m^* = 3.3m_0$ ,  $7m_0$  et  $16m_0$  [233]. Sachant que  $a = 3.86$  nm, le coefficient de chaleur spécifique peut alors être estimé, en utilisant la formule 2D, à  $\gamma \simeq 39$  mJ/molK<sup>2</sup>, à comparer avec la valeur expérimentale  $\gamma \simeq 37.6$  mJ/molK<sup>2</sup>. Tournons nous maintenant vers le cas du composé fermion lourd  $\text{CeCoIn}_5$  où la dépendance en angle des différentes fréquences dHvA montrent le caractère quasi 2D de la SF [234]. Les mesures dHvA mettent en évidence cinq bandes principales, de masses effectives cyclotron  $m^* = 48m_0$ ,  $49m_0$ ,  $15m_0$ ,  $18m_0$  et  $8.4m_0$  et on a  $a = 0.461$  nm. La valeur expérimentale de  $\gamma \simeq 300$  mJ/molK<sup>2</sup> est en très bon accord avec la valeur estimée d'après 5.10  $\gamma \simeq 290$  mJ/molK<sup>2</sup>. Enfin, pour le cuprate surdopé Tl2201 où d'après la récente observation d'oscillations quantiques il est déterminé que  $m^* \simeq 4.4m_0$ , impliquant que  $\gamma \simeq 6.5$  mJ/molK<sup>2</sup>, en bon accord avec la valeur expérimentale  $\gamma \simeq 7$  mJ/molK<sup>2</sup> [112].

Dans le cas des composés YBCO où  $a = 0.38$  nm, on peut estimer que la contribution de chaque poche sera de  $1.46 \times m^*/m_0$  mJ/molK<sup>2</sup>. A partir de mesures effectuées en champ nul dans YBCO par Loram *et al.*, on peut estimer une borne supérieure de  $\gamma$  dans l'état normal à  $T=0$ K et à champ nul pour  $p \sim 0.1$  (et  $p \sim 0.14$ ),  $\gamma_{YBCO} \simeq 10$  mJ/molK<sup>2</sup> [235]<sup>2</sup>. En négligeant la contribution des chaînes CuO et toute contribution due aux impuretés, dans le cas où la SF serait constituée de seulement huit poches de trous nodales (en comparaison à l'ARPES avec 2 plans CuO<sub>2</sub>), on obtient à partir des résultats SdH pour le composé ortho-II où  $m^* = 1.9m_0$ ,  $\gamma \sim 22.2$  mJ/molK<sup>2</sup> et  $\gamma \sim 31.5$  mJ/molK<sup>2</sup> pour Y124 avec  $m^* = 2.7m_0$ . Le fait de trouver une valeur très supérieure à  $\gamma_{YBCO}$  ne plaide pas en faveur de ce scénario. En revanche, si on suppose une reconstruction de la SF conduisant à l'existence de deux poches de trous et d'une poche d'électron, on peut estimer la masse effective cyclotron des trous afin de satisfaire  $\gamma \approx \gamma_{YBCO}$ . Ainsi, on trouve des valeurs limites de la masse effective

2. Dans les papiers de J.W. Loram, le coefficient de Sommerfeld est donné en mJ/gat.K<sup>2</sup>, avec 1 gat=1/13 mol.

## 5. Discussion et interprétation des résultats de YBCO sous-dopé

cyclotron des trous (en négligeant toujours la contribution des chaînes)  $m^* \simeq 0.8m_0$  et  $m^* \simeq 0.4m_0$  pour ortho-II et Y124 respectivement.

Bien sûr, on peut s'interroger sur la validité d'une telle formule dans le cas de systèmes à fortes corrélations électroniques. Cependant, en supposant que la SF soit constituée de quatre poches identiques de trous et de deux poches d'électron et sachant que la SF est quasi 2D et en raison du fait que la formule 5.10 soit en accord avec les données expérimentales dans d'autres types de composés à fortes corrélations électroniques, on peut espérer que les valeurs de la masse effective cyclotron des trous estimée pour ortho-II et Y124 soient réalistes.

### 5.6.1.2 Comparaison avec les données extraites de l'ARPES

Les mesures d'ARPES permettent de déterminer trois paramètres : la vitesse de Fermi  $v_F$ , correspondant à la pente de la dispersion de l'énergie  $E$  en fonction de  $k$ , le vecteur d'onde de Fermi  $k_F$  ainsi que la pente du gap supraconducteur. Il est ainsi montré dans Bi2212 et LSCO par exemple que  $v_F$  en  $(\pi, \pi)$  ne varie pas de plus de 10 % en fonction du dopage et possède une valeur universelle  $v_F \simeq 2.5 \times 10^5 \text{ms}^{-1}$  [236, 237, 238]. Ce résultat est illustré sur la figure 5.14. La figure 5.14a montre la dépendance en fonction de l'angle  $\alpha$  pour plusieurs dopages de la vitesse de Fermi dans LSCO. Pour un même dopage, on voit que  $v_F$  est anisotropique, passant de  $2.5 \times 10^5 \text{ms}^{-1}$  à  $8.3 \times 10^4 \text{ms}^{-1}$  quand on va de la région nodale à la région antinodale. Cependant, il semble que la vitesse de Fermi ne dépende pas du dopage tout autour de la surface de Fermi dans LSCO.

Comparons ces nombres à ceux obtenus ou estimés à partir des mesures SdH. Intéressons nous tout d'abord à la région antinodale où nous supposons qu'il y a une petite poche d'électrons, correspondant à la fréquence d'oscillations observée. D'après le relation d'Onsager, on peut exprimer la vitesse de Fermi  $v_F$  en fonction de la fréquence :

$$v_F = \frac{\hbar}{m^*} \sqrt{\frac{2\pi F}{\phi_0}} \quad (5.11)$$

On trouve  $v_F \simeq 7.7 \times 10^4 \text{ms}^{-1}$  et  $v_F \simeq 6 \times 10^4 \text{ms}^{-1}$  pour  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  et  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$  respectivement. Ces mesures sont similaires à celles extraites des résultats d'ARPES, suggérant que la poche observée en SdH serait bien située en  $(0, \pi)$ <sup>3</sup>. Cependant, on trouve une vitesse de Fermi différente pour les deux dopages étudiés, d'environ 30 % supérieure pour  $p=0.1$ .

Tournons nous maintenant vers l'étude de la région nodale de la surface de Fermi. D'après les mesures d'ARPES, la vitesse de Fermi est indépendante du composé étudié et vaut  $v_F \simeq 2.5 \times 10^5 \text{ms}^{-1}$ . Si on évalue la vitesse de Fermi avec les valeurs extraites des mesures d'oscillations et de l'évaluation de la chaleur spécifique, on trouve  $v_F \simeq 2.5 \times 10^5 \text{ms}^{-1}$  pour ortho-II et  $v_F \simeq 5.7 \times 10^5 \text{ms}^{-1}$  pour Y124. Il apparaît que ces valeurs sont en bon accord avec l'ARPES (particulièrement pour ortho-II), mais le fait de trouver une vitesse de Fermi qui dépend fortement du dopage est en contradiction avec l'ARPES et va à l'encontre de ce scénario, la vitesse de Fermi dans Y124 étant 2.3 fois que dans ortho-II. En supposant le scénario d'une reconstruction valable, cela suggère que soit la formule 5.10 n'est pas applicable dans le cas des cuprates sous-dopés, soit que l'ARPES et les mesures SdH ne sont pas sensibles aux mêmes effets dans cette région de la surface de Fermi.

Il est maintenant intéressant de regarder du côté surdopé du diagramme de phase. Sur

3. Notons que la valeur extraite de la vitesse de Fermi à partir des oscillations dHvA dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ ,  $v_F=8.4 \times 10^4 \text{ms}^{-1}$ , est en meilleur accord avec l'ARPES [180].

la figure 5.14a, on voit que la vitesse de Fermi dans la région antinodale semble adopter la même valeur que du côté sous-dopé, en particulier pour le composé Tl-2201 à  $p \simeq 0.23$ . Il est donc intéressant d'extraire  $v_F$  à partir des mesures SdH et dHvA réalisées dans Tl2201 [112]. En supposant un temps de relaxation isotrope, la fréquence  $F=18100$  T implique une vitesse de Fermi  $v_F \simeq 1.95 \times 10^5 \text{ ms}^{-1} = 1.4 \text{ eV\AA}$ , proche de la valeur estimée par l'ARPES. Cependant, on considère ici que la vitesse de Fermi est constante tout autour de la SF. Or, les mesures d'ARPES montrent que ce n'est pas le cas. De plus, il a été montré par M. Abdel-Jawad *at al.* que la vitesse de Fermi,  $v_F = \ell/\tau$ , dans Tl-2201 est fortement anisotrope autour de la SF ( $\sim 40\%$ ) en raison d'une anisotropie du taux de diffusion dans le plan  $\Gamma(\mathbf{k}) = \tau^{-1}(\mathbf{k})$  [239]. Cette anisotropie s'est révélée nécessaire afin d'expliquer, avec le modèle de Boltzmann, la dépendance en fonction de l'angle entre les plans et le champ magnétique de la magnétorésistance dans Tl2201. De ce fait, la détermination de  $v_F$  à partir de la fréquence d'oscillation représente plutôt une moyenne de la vitesse autour de la SF, celle-ci étant plus grande dans les régions antinodales.

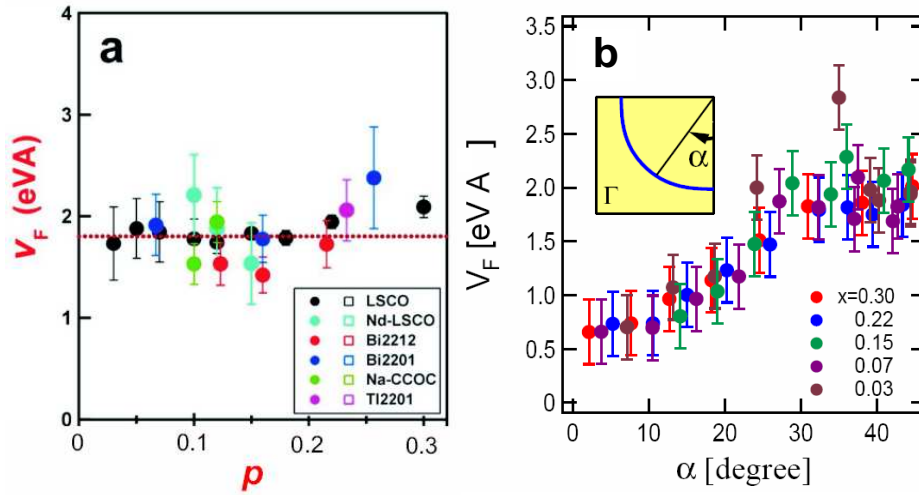


Figure 5.14 – a) Dépendance avec le dopage de la vitesse de Fermi dans les régions nodales ( $1 \text{ eV\AA} \approx 1.39 \times 10^{-5} \text{ ms}^{-1}$ ) [237]. D'après les mesures d'ARPES, la vitesse de Fermi est constante en  $(\pi, \pi)$  pour tout dopage  $0.03 < x < 0.3$ . b) Vitesse de Fermi autour de la surface de Fermi (un quadrant) de la région antinodale à la région nodale [238]. La vitesse de Fermi ne montre pas de dépendance avec le dopage et sature également en  $(0, \pi)$ .

### 5.6.1.3 Théories proposées

Afin d'évaluer la possibilité d'une reconstruction de la surface de Fermi, nous allons mentionner quelques théories proposées jusqu'à présent pour expliquer nos données.

#### 5.6.1.3.1 Vecteur d'ordre antiferromagnétique : cas des cuprates dopés aux électrons

Dans le cas du cuprate dopés aux électrons  $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$  (PCCO), un changement de signe de l'effet Hall a été observé en fonction du dopage approximativement autour du dopage critique  $x_c=0.16$  jusqu'où persiste un ordre antiferromagnétique à longue distance [240]. La figure 5.15a présente les données de la constante de Hall en fonction de la température pour différents dopages obtenues dans PCCO.  $R_H$  est positif quelque soit la température pour  $x > 0.19$  et négatif pour  $x < 0.15$ . Un changement de signe apparaît en revanche pour des dopages intermédiaires entre 30K et 40K,  $R_H$  passant de positif à basse température à négatif à haute température. Ce comportement, bien qu'opposé à celui observé dans YBCO, est toutefois très similaire. De plus, les propriétés de transport semblent pouvoir être expliquée par un scénario multibande où la dépendance en température des mobilités est différente pour les trous et les électrons.

Un scénario basé sur une onde de densité de spin (SDW) avec un vecteur d'onde commensuré  $\mathbf{Q} = (\pi, \pi)$  a été proposé par Lin et Millis afin d'expliquer le comportement particulier de l'effet Hall dans ce composé. Dans ce modèle, l'ordre SDW induit une reconstruction de la SF en dessous de  $x_c$ , aboutissant à une SF constituée de deux poches de trous en  $(\pi/2, \pi/2)$  et une poche d'électrons en  $(0, \pi)$  autour du dopage optimal et en dessous de  $x \sim 0.12$ , seule persiste une poche d'électron en  $(0, \pi)$ ; la SF du côté surdopé étant une grande poche de trous centrée en  $(\pi, \pi)$ . L'amplitude du gap SDW est nul au dessus de  $x_c$  et augmente quand le dopage diminue en dessous de  $x_c$ .

Ce modèle est d'ailleurs en bon accord avec les mesures d'ARPES effectuées dans des cuprates dopés aux électrons. En effet, des mesures effectuées dans le composé  $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4\pm\delta}$  montrent qu'à faible dopage la surface de Fermi est une poche d'électrons centrée en  $(\pi, 0)$  et contenant  $\sim x$  porteurs [241]. A mesure que le dopage augmente, la surface de Fermi devient une grande poche de trous centrée en  $(\pi, \pi)$  de volume  $\sim 1 + x$ , en accord avec le théorème de Luttinger. Comme on peut le voir sur la figure 5.15b, pour  $x=0.15$ , le spectre mesuré présente des pics de quasiparticules au niveau de Fermi dans les régions nodales et antinodales, mais pas entre les deux. La SF au dopage optimal est donc bien caractérisée par la présence de poches d'électrons et de poches de trous.

Il semble cependant très peu probable que ce scénario soit applicable dans le cas des cuprates dopés aux trous. En effet, le développement d'une onde de densité de spin nécessite un ordre magnétique à longue portée, ordre (AF) qui disparaît rapidement dans ces composés (autour de  $p \sim 0.05$ ).

#### 5.6.1.3.2 Un effet du champ magnétique ?

On peut se demander si le champ magnétique n'a pas une influence sur l'observation des oscillations. Dans ce contexte, il a été proposé par le groupe de T.M. Rice et F.C Zhang que la reconstruction de la surface de Fermi serait induite par le champ magnétique [242]. Dans leur papier, les auteurs suggèrent que l'application d'un champ magnétique détruit les paires de Cooper puis induit un ordre antiferromagnétique, conduisant à la formation de



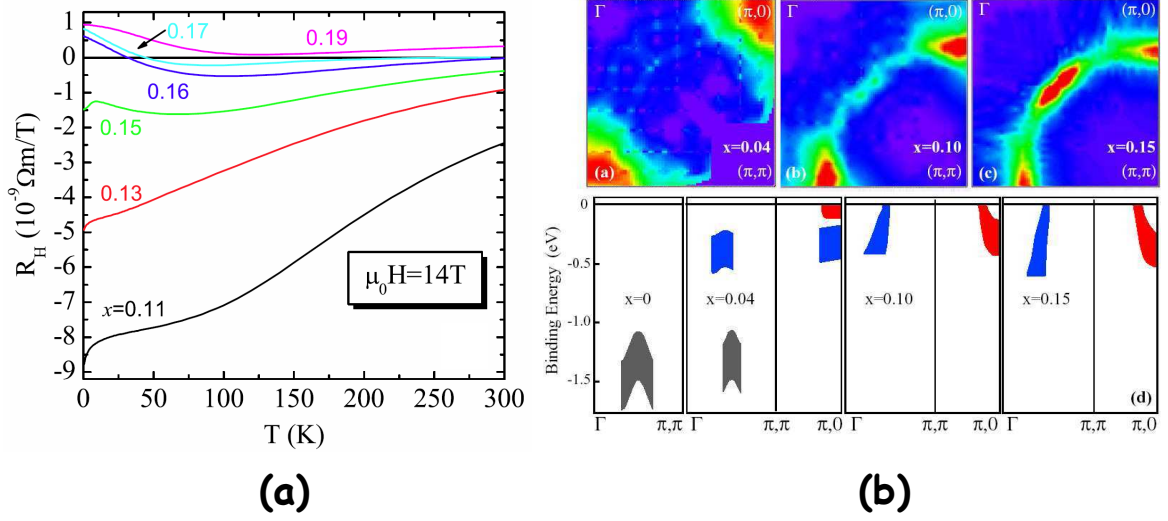


Figure 5.15 – (a) Dépendance en température de l’effet Hall dans le cuprate dopé en électrons  $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-\delta}$  pour plusieurs dopages [240]. (b) Mesures ARPES dans le cuprate dopé en électron  $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4\pm\delta}$  [241].

deux poches de trous dans les régions nodales. Cependant, nous avons vu que le présence de seulement deux poches de trous ne satisfait pas le théorème de Luttinger. Néanmoins, les auteurs n’ont pas considéré dans ce papier l’existence de poches d’électrons. Or, il est certainement possible d’induire le développement de ces poches si un ordre AF est induit par le champ.

Des mesures de RMN ont été réalisées sous champ magnétique dans le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ . En mesurant la dépendance en température de  $1/T_1T$  de  $^{63}\text{Cu}$  des cuivres des plans  $\text{CuO}_2$  dans le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$  ( $p \sim 0.14$ ) jusqu’à 28.5T, G. Zheng *et al.* ont montré que le champ magnétique n’affecte en rien le pseudogap [243, 244]. En effet, à champ nul, on retrouve le comportement attendu dans le cas d’un cuprate sous-dopé ;  $1/T_1T$  augmente quand la température diminue, atteint un maximum à  $T^*$  puis chute en raison de l’ouverture du gap de spin. Or, pour  $T > \sim T_c$ , les courbes obtenues entre 0 T et 28.5 T sont confondues et  $T^*$  est identique quelque soit le champ. D’après ces résultats, il semble qu’aucune phase n’est induite par le champ magnétique autour du dopage  $p \sim 0.14$ , du moins jusqu’à 28.5T.

En outre, la récente observation à fort champ magnétique d’oscillations SdH dans le cuprate surdopé Tl2201, dont la topologie de la SF est en parfait accord avec les mesures effectuées à champ nul, suggère fortement que le champ magnétique ne modifie en rien la SF.

### 5.6.1.3.3 Onde de densité $d$ ( $d$ -density wave)

Nous avons mentionné dans la partie introductive sur les cuprates le fait que le pseudogap puisse décrit par une onde de densité de symétrie  $d$  ( $d$ -density wave ou DDW) [141].

C’est dans ce contexte que S. Chakravarty et H.Y. Kee ont proposé un scénario en accord avec l’existence de petites poches de trous et d’électrons [245]. L’ordre DDW, lorsqu’il est commensuré, induit un dédoublement de la cellule unité (brisure de symétrie), entraînant

une reconstruction de la SF dont la zone de Brillouin réduite contient deux poches de trous elliptiques en  $(\pm\pi/2, \pm\pi/2)$  et une poche d'électrons en  $(0, \pm\pi)$  et  $(\pm\pi, 0)$ . Dans le cadre d'un modèle à deux bandes et dans la limite  $T \rightarrow 0$ , les auteurs ont calculées  $R_H$  pour le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  en utilisant les formules développées par T.Ando pour la conductivité dans le cadre d'un système électronique à deux dimensions soumis à un champ magnétique perpendiculaire [246]. Les résultats obtenus sont en bon accord avec nos expériences. De plus, ces calculs montrent qu'une mobilité des trous simplement moitié de celle des électrons entraîne que la bande d'électrons domine les oscillations et que seule cette fréquence est détectée.

Cependant, l'existence de l'ordre DDW repose sur l'existence de courants orbitaux induisant des moments magnétiques de très faible amplitude ( $\sim 0.05\mu_B$ ) *a priori* mesurables. Malgré tous les efforts fournis, les mesures réalisées afin de détecter ce magnétisme induit par les brisures de symétrie sont plutôt controversées [162].

### 5.6.1.3.4 Prise en compte du bilayer splitting

Nous avons mentionné que dans le cas des cuprates à deux plans, un terme de couplage  $t_{\perp}(\mathbf{k})$  existe entre les plans  $\text{CuO}_2$  (*bilayer splitting*). Ce terme de couplage, de la forme :

$$t_{\perp}(\mathbf{k}) = \frac{t_{\perp}}{4} [\cos(k_x a) - \cos(k_y a)]^2 \quad (5.12)$$

dans YBCO où  $a$  est le paramètre de maille du réseau,  $a$  pour effet de dédoubler les poches de la surface de Fermi. Autrement dit, dans le cas d'une reconstruction suivant un vecteur d'ordre commensuré, on s'attend à avoir quatre poches, donc quatre fréquences. Le dédoublement étant assez faible, les fréquences correspondant aux poches de trous (électrons) sont très proches.

Cet effet a par exemple été calculé par X. Jia *et al.* dans le cadre d'une reconstruction induite par un ordre DDW [247]. Il apparaît que le *bilayer splitting* affecte plus la poche d'électrons que la poche de trous. Les fréquences obtenues dans ces calculs pour le composé ortho-II, en se contraignant de satisfaire le théorème de Luttinger, sont  $F_1 \approx 944$  T et  $F_1 \approx 967$  T pour les poches de trous et  $F_1 \approx 570$  T et  $F_1 \approx 450$  T pour les poches d'électrons.

En considérant le *bilayer splitting*, ce n'est donc plus une fréquence qu'il reste à observer (poche de trous), mais trois. Cependant, les fréquences correspondant aux poches d'électrons étant très proches l'une de l'autre, il se peut qu'elles ne soient pas discernables dans les transformées de Fourier réalisées à partir des mesures SdH.

### 5.6.1.4 Ordre de stripes

A.J. Millis et M.R. Norman ont proposé un ordre de stripes au dopage 1/8 (figure 2.31) pour expliquer la reconstruction de la surface de Fermi [231]. Les modulations de spins sont alors décrites par le vecteur d'onde  $\mathbf{Q}_s = (3\pi/4, \pi)$ . En partant de la relation de dispersion standard basée sur le modèle des liaisons fortes des cuprates (formule 5.9), les auteurs supposent que les électrons sont diffusés par un potentiel de spin  $V$  et un potentiel de charge  $V_c$ , de périodicité 1/8, identique à l'ordre de stripe. Différentes surfaces de Fermi sont obtenues suivant les valeurs de ces potentiels mais de façon générale elles sont assez complexes. Elles peuvent être constituées d'orbitales ouvertes (1D), de poches de trous et de poches d'électrons. Ces calculs ont été étendus à l'effet Hall par J.L. Lin et A.J. Millis [248]. Les premières conclusions sont les mêmes. Dans le cas où  $V_c$  est nul, à mesure que  $V$

augmente, la surface de Fermi est constituée de poches de trous, de poches d'électrons et d'une surface ouverte, puis les poches de trous disparaissent, suivies des poches d'électrons. En revanche, lorsque  $V$  est nul, les poches d'électrons ne sont pas présentes. Lorsque les deux potentiels sont pris en compte, il apparaît des surfaces ouvertes et des poches d'électrons. En résumé, la présence de poches d'électrons est principalement due au potentiel de spin associé à l'ordre de stripe.

Dans leur papier, Lin et Millis ont étudié l'évolution de la constante de Hall  $R_H$  avec le dopage dans le cas où seul  $V$  est non nul. Les auteurs traitent le potentiel  $V$  en champ moyen et suppose qu'il est inversement proportionnel au dopage (pour  $x < 0.24$ ) :  $V = C_0\sqrt{1 - x/0.24}$ , avec  $V_0=0.35$  eV. La dépendance particulière de  $R_H$  (figure 5.16) est alors interprétée comme la conséquence du changement de topologie de la surface de Fermi, qui est très sensible aux variations des potentiels de l'ordre de stripe :

- Pour un dopage  $x < 0.125$ , des poches d'électrons et des bandes 1D de trous sont présentes et  $R_H$  est négatif
- vers  $x \sim 0.15$ , la contribution des poches de trous domine,  $R_H$  est positif
- autour de  $x \sim 0.18$ , les poches de trous se transforment en surface 1D,  $R_H$  diminue
- pour  $x \sim 0.2$ , de petites poches de type trous apparaissent,  $R_H$  augmente légèrement.

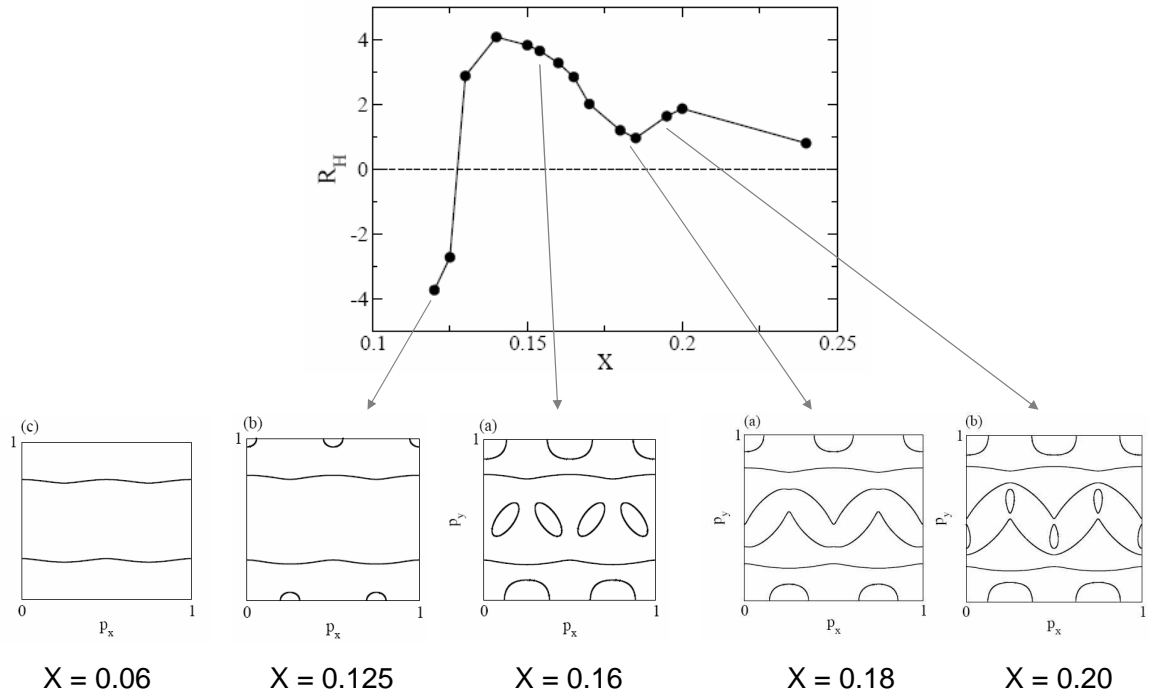


Figure 5.16 – Dépendance en dopage de la constante de Hall dans le cas d'un ordre de stripe où  $V \neq 0$  et  $V_c=0$ . Les cadrans sont les différentes surfaces de Fermi déterminées par les calculs. D'après [248]

L'avantage de ce modèle est qu'il permet d'expliquer le signe négatif de l'effet Hall tout en s'affranchissant de la contrainte du théorème de Luttinger. En effet, les bandes 1D, tout en contribuant au transport, ne peuvent engendrer d'oscillations quantiques. Il est donc impossible de dire si oui ou non l'intégralité de la surface de Fermi est observée par les

## 5. Discussion et interprétation des résultats de YBCO sous-dopé

mesures SdH ou dHvA.

Cependant, il est intéressant de noter que nos mesures d'effet Hall semblent pointer vers une anomalie autour de  $p \sim 1/8$ . En effet, en reportant sur le diagramme de phase les températures  $T_0$  ou  $T_{max}$ , déterminées précédemment pour les trois dopages  $p = 0.1, 0.12$  et  $0.14$ , et en considérant le fait que l'effet Hall dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.45}$  ( $p \simeq 0.085$ ) est positif quelque soit la température [189], il semble que celles-ci mettent en évidence un *dôme* autour de  $p \sim 1/8$ . Des mesures d'effet Hall dans des composés YBCO pour  $p > 0.14$  sont cependant nécessaires afin de déterminer si oui ou non ce *dôme* existe réellement, autrement dit que  $R_H$  est positif à basse température pour  $p > \sim 0.16$ .

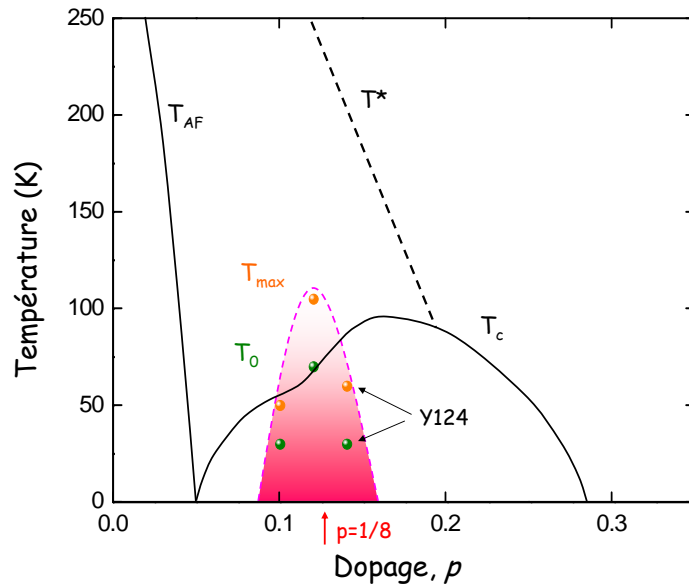


Figure 5.17 – Diagramme de phase générique des cuprates où l'on a reporté les températures  $T_0$  ou  $T_{max}$ , déterminées précédemment pour les trois dopages  $p = 0.1, 0.12$  et  $0.14$ . Il apparaît que ces températures semblent caractériser un *dôme* autour de  $p \sim 1/8$ .

### 5.6.2 Présence d'un Point Critique Quantique

La reconstruction de la surface de Fermi suggérée par les mesures d'oscillations SdH et d'effet Hall dans YBCO sous-dopé, combinées aux mesures d'effet Hall, d'ARPES et d'oscillations quantiques dans Tl2201, montrent que le changement de la topologie de la surface de Fermi semble avoir lieu entre  $p = 0.14$  et  $p = 0.25$ . La présence d'un point critique quantique (PCQ) dans cette zone du diagramme de phase est donc envisageable.

Nous avons déjà évoqué la présence d'un point critique quantique dans les composés fermions lourds. Celui-ci se développe lorsque les deux échelles d'énergie du système ( $T_K$  et  $T_{RKKY}$ ) sont comparables, entraînant de fortes fluctuations magnétiques pouvant induire de la supraconductivité non conventionnelle. Plusieurs études montrent qu'en fonction d'un paramètre ajustable  $\delta$ , une reconstruction de la surface de Fermi a lieu au PCQ ; d'une grande surface de Fermi dans la phase désordonnée, on passe à une petite surface de Fermi dans la phase ordonnée [249]. C'est par exemple le cas du composé  $\text{YbRh}_2\text{Si}_2$  qui présente un PCQ induit par le champ à  $B \simeq 60$  mT [250]. Les mesures d'effet Hall suggèrent un changement drastique de la SF au PCQ [251]. Ces résultats sont interprétés en terme d'*effondrement* de

la SF : un grand nombre de porteurs de la phase non magnétique est soudainement perdu au niveau du PCQ. Dans leur papier, Gegenwart *et al.* proposent que le PCQ détruit l'effet Kondo et convertit la grande SF de l'état fermion lourd antiferromagnétique en une petite SF [249]. Si on fait une analogie entre les cuprates et les fermions lourds, il reste cependant à déterminer pour ces derniers l'échelle d'énergie qui serait en compétition avec la température de pseudogap  $T^*$  et qui engendrerait des fluctuations (magnétiques ?) susceptibles d'induire la supraconductivité.

En appliquant une théorie de loi d'échelle (que nous n'aborderons pas ici), T. Senthil a proposé que la grande SF observée dans le régime surdopé disparaît de façon continue en dessous d'un dopage critique noté  $x_c$  [252], conduisant à de petites poches du côté sous-dopé. En particulier, il est présenté un cas exotique où deux transitions ont lieu à  $x_{c1}$  et  $x_{c2}$  respectivement (figure 5.18). Senthil suppose que dans le régime sous-dopé, le système est caractérisé par un état présentant une brisure de symétrie conduisant à un dédoublement de la cellule unité et donc à la formation de deux poches de trous, comme c'est le cas dans le modèle DDW, ou plus généralement pour les modèles qui considèrent une phase *staggered flux* (s-flux). Dans le cas présenté sur la figure, la disparition de la grande SF quand on part du côté surdopé, se fait en deux étapes. Sans rentrer dans les détails, disons seulement que la transition en  $x_{c1}$ , qui est une transition dite de Lifshitz<sup>4</sup>, conduit à un état caractérisé par la présence simultanée de la phase s-flux et d'un recouvrement de la SF. La SF résultante est formée de deux poches de trous en  $(\pi, \pi)$  et d'une poche d'électron en  $(0, \pi)$ . En revanche, la transition à  $x_{c2}$  ne nécessite que la présence d'une brisure de symétrie et la SF est constituée de quatre poches de trous dans les régions nodales.

La présence d'un point critique quantique est également suggérée par de récentes mesures de transport sous champ magnétique intense. Nous avons déjà évoqué les mesures d'effet Hall dans LSCO et BSLCO réalisées par F.F. Balakirev *et al.* [217, 218]. En traçant le nombre de Hall défini par  $n_H = 1/R_H$  (modèle à une bande) en fonction du dopage, les auteurs ont mis en évidence un pic autour de  $p \sim 0.175$  pour  $T < 30K$ , qu'ils interprètent comme révélateur de la présence d'un PCQ, qui serait associé à la disparition du pseudogap et donc à la reconstruction de la surface de Fermi.

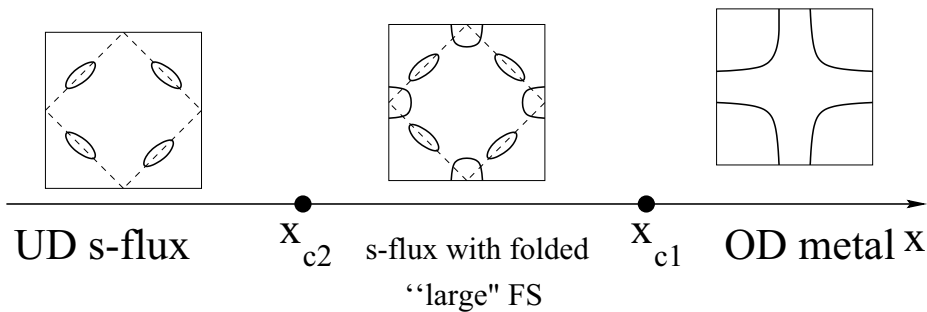


Figure 5.18 –

4. Une transition de Lifshitz est basée sur les fluctuations quantiques d'un système caractérisé par un changement de topologie de la surface de Fermi. De plus, cette transition est toujours continue.

### 5.6.3 Scénarios incommensurables

#### 5.6.3.1 Expériences

Nous avons évoqué dans la partie précédente la nécessité que la surface de Fermi comporte d'autres poches, en particulier de trous, afin de satisfaire le théorème de Luttinger. Cependant, nous n'avons jusqu'à présent pas réussi à distinguer d'autres fréquences dans les mesures SdH et dHvA en plus du pic principal à  $F \sim 500\text{-}600\text{T}$ .

S E. Sebastian *et al.* ont mesuré les oscillations dHvA dans le cuprate sous-dopé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.51}$  ( $p=0.1$ ) en champ statique jusqu'à  $45\text{T}$ , cet échantillon provenant de la même source que le nôtre (UBC). Ils ont ainsi confirmé la présence de la fréquence autour de  $F_\alpha \simeq 500\text{T}$  et ont reporté l'existence d'une seconde fréquence  $F_\beta=1654\text{T}$  d'amplitude  $\sim 30$  fois inférieure à  $F_\alpha$ . Cette fréquence est très supérieure à celle que l'on attend dans le cas d'une reconstruction selon le vecteur d'ordre  $\mathbf{Q} = (\pi, \pi)$ . Les auteurs suggèrent un scénario d'une onde de densité spirale (ou hélicoïdale), c'est-à-dire que la reconstruction se fait selon un vecteur d'ordre incommensuré  $\mathbf{Q} = (\pi(1-2\delta), \pi)$ , où  $\delta$  est le déplacement de la diffusion magnétique par rapport à  $\mathbf{Q}_{\text{AF}}$  observé dans les mesures de diffusion inélastique de neutrons. Dans le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ ,  $\delta \sim 0.1$  mais aucun ordre à longue distance n'a été observé [121, 122, 123].

#### 5.6.3.2 Calculs

Pour expliquer la présence de la fréquence  $F_\beta$ , prendre en considération uniquement le *bilayer splitting* ne suffit pas. Des calculs basés sur une reconstruction de la surface de Fermi suivant un vecteur d'ordre DDW incommensuré ont été réalisés par X. Jia *et al.* [247]. Les justifications de l'incommensurabilité du vecteur d'ordre DDW sont présentées dans [253]. En cherchant les paramètres satisfaisant à la fois le théorème de Luttinger et la fréquence  $F_\beta$  observée, les auteurs trouvent quatre fréquences :  $F_1 \approx 1661\text{ T}$  et  $F_2 \approx 251\text{ T}$  pour les poches de trous et  $F_3 \approx 535\text{ T}$  et  $F_4 \approx 442\text{ T}$  pour les poches d'électrons. Le *bilayer splitting* affecte principalement les poches d'électrons. La surface de Fermi résultante est présentée sur la figure 5.19.

De récents calculs ont été réalisés par D. Podolsky et H.Y. Kee afin d'étudier la topologie de la surface de fermi de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  [1]. Pour cela, les auteurs considèrent que les propriétés observées (oscillations SdH, effet Hall négatif, théorème de Luttinger) sont compatibles avec la présence d'un ordre DDW [245] mais que l'ordre des chaînes CuO ortho-II joue également un rôle très important. Afin de déterminer la surface de Fermi de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ , les auteurs font en sorte que le théorème de Luttinger soit satisfait avec comme condition la présence d'une poche de fréquence  $F_\beta \sim 1600\text{T}$ , en accord avec les expériences de S.E. Sebastian *et al.*. La surface de Fermi obtenue est alors totalement différente. En considérant donc à la fois le potentiel dû à l'ordre particulier des chaînes et le paramètre d'ordre DDW dans l'hamiltonien décrivant le spectre des quasiparticules, la surface de Fermi obtenue est celle de la figure 5.20, l'effet du bilayer splitting étant de lever la dégénérescence entre la bande  $\gamma$  et la bande  $\beta$  en  $k_y = \pi/2$ . Celle-ci consiste en trois poches de Fermi fermées, deux de trous, correspondant chacune à une fréquence  $F_\beta \simeq 1580\text{T}$  et  $F_\gamma \simeq 410\text{ T}$ , et une d'électron de fréquence  $F_\alpha \simeq 530\text{ T}$ .

Toutefois, on peut se demander quel sera le comportement des quasiparticules sur de telles trajectoires en présence d'un fort champ magnétique. En effet, les orbites  $\beta$  et  $\gamma$  étant très proches, séparées par un faible gap  $\Delta$ , le phénomène de rupture magnétique peut être observé. Des transitions entre les deux trajectoires peuvent avoir lieu avec une probabilité qui est d'autant plus grande que le gap est petit, induisant alors de nouvelles fréquences.

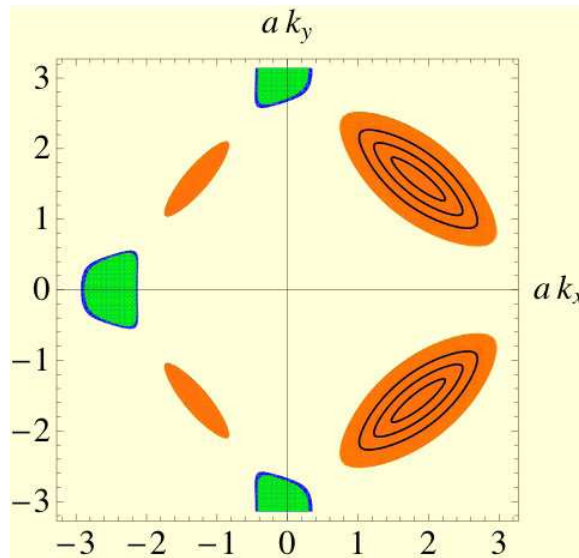


Figure 5.19 – Reconstruction de la surface de Fermi suivant un vecteur d’ordre incommensuré du type  $\mathbf{Q} = \pi(2\eta, 0)/a$ , où  $\eta$  est l’incommensurabilité observé dans les mesures de diffusion de neutrons et  $a$  le paramètre de maille, d’après [247].

Les mesures d’oscillations quantiques étant effectuées à fort champ magnétique, on s’attend dans ce cas à mesurer plusieurs autres fréquences, résultant de combinaisons de fréquences.

Le fait de considérer simultanément un paramètre d’ordre DDW et un potentiel dû à l’ordre des chaînes semble pouvoir expliquer les données observées par les mesures de couple magnétique de Sebastian *et al.*. Cependant, aucune fréquence  $F_\gamma \simeq 400$  T n’a été reportée à ce jour. Cela peut être dû (*i*) soit au fait que les deux fréquences  $F_\alpha$  et  $F_\gamma$  étant proches l’une de l’autre, on ne les distingue pas séparément dans le pic de la transformée de Fourier, (*ii*) soit comme le suggèrent les auteurs, les bandes  $\alpha$  et  $\gamma$  occupant la même région de la PZB, on peut s’attendre à ce qu’elles aient un taux de diffusion comparable et donc des oscillations d’amplitude comparable.

Enfin, on peut s’interroger sur le nombre de poches composant la surface de Fermi des autres cuprates de la famille YBCO. En effet, en ne considérant que l’ordre DDW, on a vu que la reconstruction de la SF ne génère que deux types de poches de faible fréquence. Le fait de considérer en plus l’ordre ortho-II modifie complètement la topologie des poches de trous, entraînant même la création d’une grande poche. On peut donc penser que la surface de Fermi de chaque composé YBCO sera différente selon l’ordre des chaînes (ortho-I, ortho-II, etc...). Cette différence n’affectant cependant que les poches de trous. En effet, dans le composé  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$  où toutes les chaînes sont pleines, l’effet Hall négatif à basse température et la faible fréquence d’oscillations SdH observée semble indiquer que la poche d’électrons est bien présente et de taille comparable.

## 5.7 Résumé du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons montré que le champ magnétique appliqué lors de nos expériences révèle ce qui paraît être l’état normal des composés  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  sous-dopés. Les oscillations quantiques que nous avons observées sont donc représentatives de la surface

## 5. Discussion et interprétation des résultats de YBCO sous-dopé

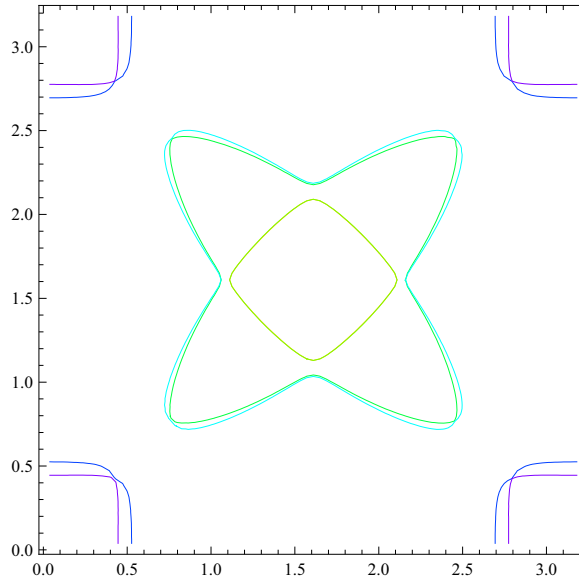


Figure 5.20 – Surface de Fermi de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  déterminées par Podolsky et Kee en considérant un état DDW et l'ordre ortho-II des chaînes CuO [1].

de Fermi de l'état fondamental de YBCO sous-dopé. La faible fréquence mesurée correspond à des poches de petite taille, ce qui est en totale opposition avec la surface de Fermi observée et calculée pour les cuprates du côté surdopé du diagramme de phase. En outre, la taille de ces poches indiquent que la densité de porteurs, proportionnelle à  $1 + p$  du côté surdopé, est plutôt proche de  $p$  dans le régime sous-dopé. D'autre part, le signe négatif de l'effet Hall à basse température est interprétée comme la présence de poche d'électrons au niveau de Fermi. Or, il s'avère que la présence de petites poches et d'électrons dans la surface de Fermi ne sont pas prévues par les calculs de structure de bandes. Toutes ces observations nous ont amené à supposer qu'une reconstruction de la surface de Fermi a lieu autour d'un dopage critique situé entre  $p = 0.14$  et  $p = 0.25$ . Bien que la véritable origine de cette reconstruction ne soit pas encore connue, nous montrons qu'un scénario simple type onde de densité permet d'expliquer l'émergence de petites poches de trous et d'électrons. Divers modèles ont été proposés par les théoriciens, comme une onde de densité de symétrie  $d$ , la présence d'un point critique quantique ou encore un ordre de stripes autour de  $p \sim 1/8$ . De plus, en fonction des expériences et donc du nombre de fréquences qui sont (seront) observées, la question de la commensurabilité ou non de la reconstruction reste en suspens.



# Chapitre 6

## Propriétés électroniques de $\text{URu}_2\text{Si}_2$ sous champ magnétique intense

### 6.1 Présentation

L'engouement suscité par le composé  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  provient d'une transition de phase autour de  $T_0=17.5$  K dont l'origine et le paramètre d'ordre sont encore inconnus. De fait, cette phase est communément appelée *ordre caché*. Il apparaît que le magnétisme joue un rôle prépondérant dans le diagramme de phase mais de façon très subtile. Le champ magnétique a plusieurs effets importants puisqu'il déstabilise cet *ordre caché* et induit plusieurs transitions dans une petite gamme de champ comprise entre 35 T et 39 T, dont l'une présente certaines caractéristiques d'une transition *pseudo-magnétique*. Un autre intérêt de ce composé est la présence d'une phase supraconductrice non conventionnelle en dessous de  $T_c=1.5$  K mais ce sujet ne sera pas abordé dans ce travail.

Dans ce chapitre, nous résumerons les propriétés physiques de  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  et nous présenterons des mesures de la magnétorésistance transverse et de l'effet Hall jusqu'à 60 T. Nous avons également effectué dans ce composé les premières mesures d'effet Nernst sous champ magnétique pulsé jusqu'à 35 T. Ces mesures de transport et de thermoélectricité sont en accord avec un scénario impliquant une reconstruction de la surface de Fermi à la transition *ordre caché* et donc la condensation d'une part très importante des porteurs de charge. L'application d'un champ magnétique supérieur à 40 T déstabilise l'*ordre caché* et entraîne le rétablissement des propriétés d'un métal plus conventionnel, avec une masse effective modérée et une densité de porteurs importante.

### 6.2 Le composé $\text{URu}_2\text{Si}_2$

#### 6.2.1 Ordre caché et diagrammes de phase

En mesurant la chaleur spécifique et la susceptibilité magnétique de  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  en 1985, T.T.M. Palstra *et al.* ont observé deux anomalies : l'une à  $T_c \simeq 1.5$  K correspondant à l'apparition de la supraconductivité et l'autre à  $T_0 \simeq 17.5$  K dont l'origine fait toujours débat [254]. La figure 6.1a montre la chaleur spécifique  $C/T$  en fonction de la température. La ligne solide est un ajustement de la forme  $C/T = \gamma + \beta T^2$  permettant d'extrapoler  $\gamma \sim 180$  mJ/molK<sup>2</sup> et la température de Debye  $T_D = 312$  K. A  $T = 2$  K,  $\gamma \simeq 60$  mJ/molK<sup>2</sup>, ce qui correspond à une *faible* masse effective, indiquant que  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  est un fermion lourd *modéré*. Le saut de chaleur spécifique  $\Delta C/T_N = 300$  mJ/mol K<sup>2</sup> correspond à un changement

## 6. Propriétés électroniques de URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> sous champ magnétique intense

d'entropie  $\Delta S$  de seulement  $\sim 0.2 R \ln 2$ .

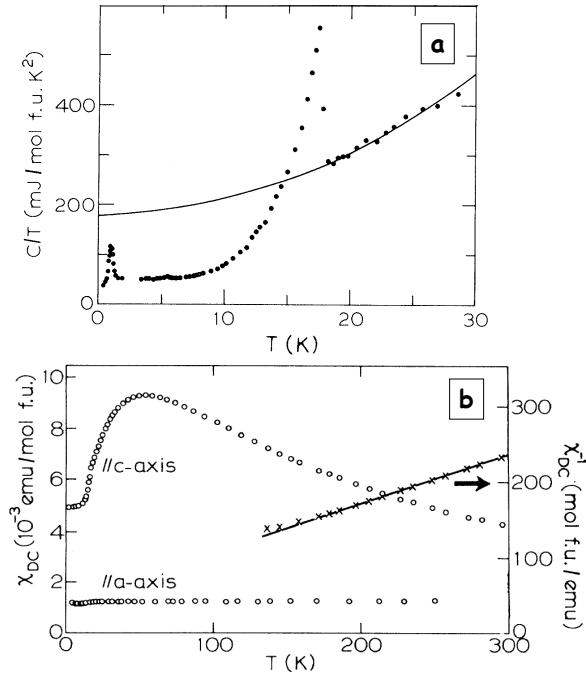


Figure 6.1 – (a) Dépendance en température de la chaleur spécifique  $C/T$  de URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>. (b) Susceptibilité-dc  $\chi_{dc}$  suivant les directions cristallographiques  $a$  et  $c$  et inverse de la susceptibilité de URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> mesurées à  $B=2$  T. D'après [254].

La figure 6.1b présente la susceptibilité-dc mesurée dans un monocristal de URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> suivant les deux directions cristallographiques [254]. La forte anisotropie observée indique que l'axe  $c$  est l'axe de facile aimantation. A haute température, la susceptibilité vérifie un comportement Curie-Weiss, caractéristique de moments magnétiques isolés avec un moment effectif  $\mu_{eff} = 3.51 \mu_B/U$  et une température de Curie-Weiss  $\Theta_{CW} = -65$  K. Cette valeur du moment effectif correspond à la valeur déterminée à partir des règles de Hund pour l'ion U<sup>4+</sup>  $\mu_{eff} = 3.58 \mu_B/U$ . On observe une déviation à ce comportement en dessous de  $T \sim 150$  K. La valeur de la susceptibilité-dc à température ambiante est 30 fois plus grande que celle du composé ThRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> non magnétique [255].

L'un des grands mystères de URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> est la détection d'un faible moment magnétique dans la phase *ordre caché* qui ne peut pas expliquer l'amplitude du saut de chaleur spécifique. En fait, nous verrons par la suite que l'origine de ce moment magnétique est liée à la pureté des échantillons, la valeur de ce moment diminuant lorsque la pureté des échantillons s'améliore [256]. Quoi qu'il en soit, la présence d'un saut de chaleur spécifique (ouverture d'un gap) et d'un faible moment magnétique a longuement fait débat dans la communauté. Plusieurs modèles ont considéré l'existence de deux paramètres d'ordre, l'un à l'origine de l'ouverture du gap vu en chaleur spécifique (*ordre caché*), noté  $\psi$ , et l'autre à l'origine du moment magnétique antiferromagnétique (AF) vu par les mesures de neutrons, noté  $m$ . Suivant si le paramètre d'ordre associé à l'*ordre caché* brise ou non la symétrie par renversement du temps, deux classes de scénarios ont vu le jour : onde densité de spin

non conventionnelle [257], moment AF orbital [258] ou ordre des moments octupolaires des moments sur les sites d'U [259] dans le premier cas et ordre quadrupolaire [260, 261] ou ordre nématique [262] de spin dans le second cas.

En ce qui concerne un scénario onde de densité, l'existence d'un vecteur de nesting n'est pas encore clairement établie à ce jour. Il semblerait d'après de récents calculs effectués dans le composé parent ThRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>, ne présentant pas de phase ordonnée, que ni  $\mathbf{Q}_0$  ni  $\mathbf{Q}_1$  ne puissent être associé à un vecteur de nesting [263]. Néanmoins, Wiebe *et al.* ont montré par des mesures de neutrons que les excitations de spins itinérants, correspondant à  $\mathbf{Q}_1$ , semblent jouer un rôle prépondérant dans la transition à  $T_0$  et dans la formation de l'*ordre caché* [264]. Le vecteur incommensuré  $\mathbf{Q}_1$  serait alors associé à un vecteur de nesting.

### 6.2.1.1 Effet de la pression

Ce sont les mesures sous pression, et plus particulièrement celles de diffusion de neutrons, qui ont fini par résoudre l'apparente contradiction entre le saut de chaleur spécifique et la présence d'un moment magnétique trop faible.

A pression nulle, le spectre des excitations vu par les mesures de neutrons est caractérisé par deux réponses inélastiques aux vecteurs  $\mathbf{Q}_0 = (1,0,0)$  et  $\mathbf{Q}_1 = (1 \pm 0.4, 0, 0)$  [265, 266, 264]. En dessous de  $T_0$ , les spectres deviennent étroits et les valeurs de gap sont respectivement  $\Delta_{1,0,0} \sim 1.8$  meV et  $\Delta_{1.4,0,0} \sim 4.5$  meV [266].

En appliquant la pression, le spectre des excitations à  $\mathbf{Q}_0$  devient élastique, caractérisant un ordre AF à longue distance. En revanche, le spectre à  $\mathbf{Q}_1$  ne semble pas affecté par l'apparition de la phase AF [267].

L'application d'une pression hydrostatique sur URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> révèle alors un diagramme de phase particulièrement riche et apporte de nouveaux éléments à la compréhension de la transition *ordre caché* [267, 268]. Ces mesures montrent que  $T_0$  est relativement peu affectée par l'application d'une pression alors que le magnétisme en dépend fortement, ce qui renforce l'idée de deux paramètres d'ordre distincts. La figure 6.2 montre le diagramme de phase (T,P) obtenu par E. Hassinger *et al.* réalisé à partir de mesures de résistivité et de chaleur spécifique sous pression hydrostatique [267, 268]. Ce qui émerge de ce diagramme de phase est l'existence de deux phases bien distinctes, séparées par une transition du premier ordre le long de la ligne  $T_x$ . La première phase à basse pression est l'*ordre caché* et la phase à forte pression est caractérisée par un ordre AF, associé au vecteur d'onde  $\mathbf{Q}_0$ , dont le moment magnétique augmente continûment avec la pression jusqu'à saturer vers  $\mu \simeq 0.4 \mu_B/U$  pour  $P \geq 1.4$  GPa [269]. Des mesures de résistivité sous pression ne montrent pas de changement radical au passage de la ligne de transition  $T_x$ . Ceci suggère que le phénomène (nesting) à l'origine de la condensation des porteurs est toujours présent dans la phase haute pression et que le possible vecteur de nesting ne dépend pas de la présence ou non du grand moment AF. Un autre point important de ce diagramme de phase est que la ligne  $T_0$  augmente linéairement et faiblement ( $\sim 1.01$  K/GPa) jusqu'à 1.4 GPa où elle est rejointe par la ligne  $T_x$ . Dans le cadre de la théorie des transitions de phase de Landau [270], le fait que ces deux lignes se rejoignent signifient que dans la phase *ordre caché* en dessous de  $T_x$ , seul le paramètre d'ordre  $\psi$ , responsable du saut important de chaleur spécifique, est non nul et qu'aucun moment magnétique n'est présent alors qu'à haute pression l'*ordre caché* est détruit et on a un état AF caractérisé par le paramètre d'ordre  $m$ . Cette suggestion est supportée par de récentes mesures RMN effectuées dans des cristaux extrêmement purs et qui ne détectent aucun moment magnétique à pression ambiante [271].

## 6. Propriétés électroniques de URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> sous champ magnétique intense

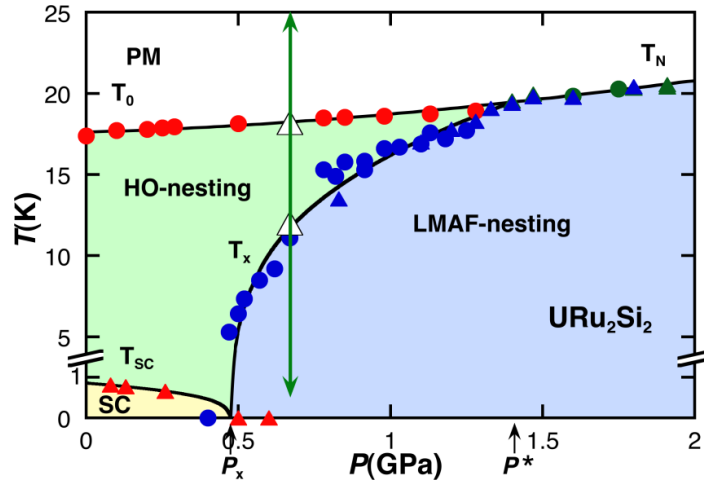


Figure 6.2 – Diagramme de phase température-pression de URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> réalisé à partir de mesures de résistivité et de chaleur spécifique [267, 268].

Il semblerait que les échantillons soient caractérisés par une inhomogénéité de la phase *ordre caché* et que ce ne soit pas le moment magnétique, mesuré par diffusion de neutrons, qui augmente mais plutôt le volume de la région AF dans l'échantillon qui grossit sous l'effet de la pression et qui vers 1.4 GPa occupe uniformément tout l'échantillon, avec  $\mu \sim 0.4 \mu_B/U$  [272]. En effet, les mesures de diffusion de neutrons ne font que mesurer un moment magnétique moyen (sur un volume) alors que les mesures de RMN et de  $\mu$ -SR sont des sondes plus locales. En outre, des mesures de diffusions élastiques de neutrons sur URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> soumis à une contrainte uniaxiale montrent que le moment magnétique augmente sensiblement quand la pression est appliquée suivant les directions [100] et [110] alors qu'il reste constant suivant [001] [273]. La transition de phase entre l'*ordre caché* et l'ordre AF serait alors contrôlée par les distorsions du réseau, autrement dit par le paramètre  $\eta = c/a$  (où  $a$  et  $c$  sont les paramètres de maille, cf. figure 6.4), dont la valeur critique  $\eta_c$  est très petite. Ce scénario est proposé afin d'expliquer pourquoi une phase AF peut apparaître localement dans une région où les défauts du réseau cristallin font que  $\eta > \eta_c$  à pression ambiante. Dans ce cas, l'antiferromagnétisme mesuré à pression ambiante par les mesures de diffusion de neutrons ne serait qu'un effet parasite dû aux imperfections du réseau.

### 6.2.1.2 Effet d'un champ magnétique

L'application d'un champ magnétique intense révèle un diagramme de phase tout aussi riche que complexe, comme montré sur la figure 6.3. Il a été reporté dès 1993 que la destruction de la phase *ordre caché* (phase I sur la fig. 6.3) à  $B_c = 35$  T est suivie de deux autres transitions de phase à  $B \simeq 36$  T (phase II) et  $B \simeq 39$  T (phase III) pour  $T < 6$  K [274]. Ces transitions ont été détectées dans les mesures de transport [275], d'aimantation [276], de chaleur spécifique [277] ou encore d'ultrasons [278]. La première transition correspond à la destruction de l'*ordre caché* ; il a été proposé que celle-ci intervient en raison de la séparation due à l'effet Zeeman des bandes d'électrons  $f$  itinérants de spin up et down [279]. Entre 36 T et 39 T, il apparaît une phase induite par le champ appelée *ordre caché réentrant*, dont la nature reste encore indéterminée. La présence d'un point critique quantique (PCQ) à  $B \simeq$

37 T est suggérée d'après des mesures de transport et serait liée à une reconstruction de la surface de Fermi qui intervient quand le champ magnétique fait passer les électrons  $f$  d'un caractère itinérant à localisé [275]. Une autre hypothèse consiste à dire que cette phase possède une symétrie différente de l'*ordre caché*. Lorsque le champ est appliqué suivant l'axe  $c$ , on trouve le comportement caractéristique d'une transition *pseudo-métamagnétique*<sup>1</sup> au champ  $B_M \simeq 38$  T, qui resterait indépendant de la température [276]. Cependant, bien que la présence d'une transition pseudo-métamagnétique à  $B_M$  soit admise, celle d'un PCQ est encore incertaine. L'allure de la dépendance en champ de l'aimantation suggère que les électrons  $5f$  ont un caractère plutôt itinérant dans l'*ordre caché* et qu'ils ont tendance à retrouver un caractère plutôt localisé dans la phase haut champ, bien que le moment magnétique mesuré  $\mu \simeq 2 \mu_B/U$  n'atteigne pas sa valeur à saturation ( $\mu_{sat} \simeq 3.6 \mu_B/U$ ) (effet du champ cristallin, ...). Enfin, il est suggéré que pour  $B > 40$  T, un comportement liquide de Fermi est retrouvé, mais avec la bande d'électrons  $f$  de spin up polarisée [279]. Dans la suite, on appellera cette région *état paramagnétique polarisé* (PMP).

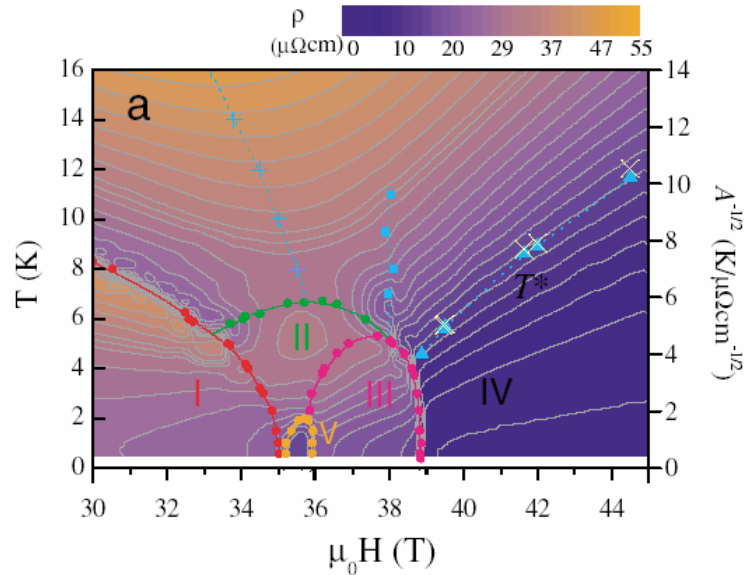


Figure 6.3 – Diagramme de phase température-champ magnétique de URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> obtenu à partir de mesures de magnétorésistance [275].

## 6.2.2 Surface de Fermi

L'étude expérimentale de la surface de Fermi des fermions lourds nécessite de travailler dans des conditions extrêmes de température et de champ magnétique en raison des masses effectives relativement importantes des quasiparticules. Des mesures de Haas-van Alphen ou Shubnikov-de Haas ont été réalisées dans la phase *ordre caché* de URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> [280, 281, 282]. Seulement trois branches principales de la surface de Fermi déterminée par les calculs de structure de bandes ont été observées (avec le champ magnétique appliqué suivant l'axe  $c$ ),  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\gamma$ . La branche  $\alpha$  correspond d'après les calculs de structure de bandes à une bande

1. Une transition métamagnétique caractérise un saut brutal de l'aimantation sous champ magnétique.

## 6. Propriétés électroniques de URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> sous champ magnétique intense

de trous (bande 17). La fréquence dHvA mesurée est  $F_\alpha = 1050$  T, et la détermination des paramètres physiques donnent une masse effective cyclotron  $m^* = 13 m_0$ , une température de Dingle  $T_D = 0.035$  K et un libre parcours moyen  $\ell = 0.55 \mu\text{m}$ . Les deux autres branches correspondent à des bandes d'électrons (bande 19 centrée en  $X$  et bande 20). Les fréquences dHvA mesurées sont  $F_\beta = 420$  T et  $F_\gamma = 190$  T, les masses effectives cyclotron  $m^* = 25 m_0$  et  $m^* = 8.2 m_0$ , les températures de Dingle  $T_D = 0.045$  K et  $T_D = 0.11$  K et les libres parcours moyens  $\ell = 0.14 \mu\text{m}$  et  $\ell = 0.12 \mu\text{m}$  respectivement. La même fréquence d'oscillation  $F_\alpha$  est observée dans l'état supraconducteur, avec cependant une température de Dingle  $T'_D = T_D + \Delta T_D$ , où  $\Delta T_D$  est une température de Dingle additionnelle représentant un amortissement des oscillations supplémentaire.

Citons de récents travaux réalisés par l'équipe de Y. Onuki et qui semblent mettre en évidence une nouvelle branche notée  $\delta$  qui apparaîtrait autour de 20 T, correspondant à une surface de Fermi ellipsoïdale de fréquence  $F_\delta = 1300$  T et de masse effective cyclotron  $m^* = 2.7 m_0$ , pour le champ suivant l'axe cristallographique  $c$  [283].

Le fait que toutes les poches de la surface de Fermi ne soient pas observées par les mesures dHvA et SdH est supportée par le fait que le coefficient de Sommerfeld  $\gamma \sim 70$  mJ/molK<sup>2</sup> n'est pas retrouvé avec le nombre, la taille et les masses effectives issues de ces expériences.

### 6.3 Caractérisation des échantillons

#### 6.3.1 Structure cristallographique et échantillons

URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> cristallise sous la structure tétragonale centrée de type ThCr<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>, appartenant au groupe de symétrie  $I4/mmm$ , comme illustrée sur la figure 6.4. Les paramètres de maille valent  $a = 4.124 \text{ \AA}$  et  $c = 9.5817 \text{ \AA}$  à 4.2 K. Ceux-ci ne diffèrent à l'ambiante que de  $\sim 0.1\%$ , impliquant que la structure cristalline ne varie pas lors du refroidissement [254].

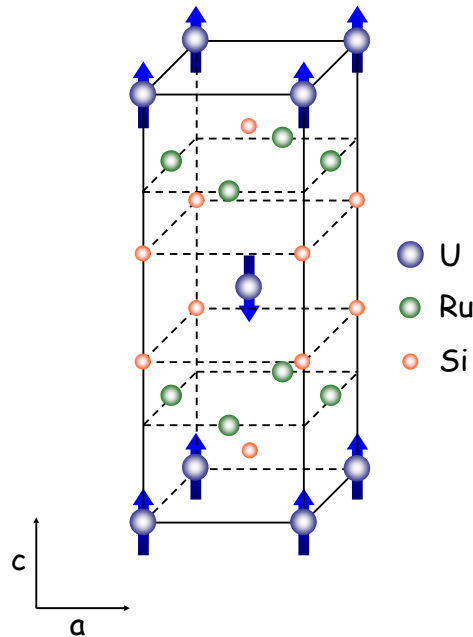


Figure 6.4 – Structure cristalline de URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>. Les flèches représentent les moments magnétiques portés par les atomes d'Uranium en dessous de 17.5 K.

Les échantillons de URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> nous ont été fournis par Jacques Flouquet<sup>2</sup> et Kamran Behnia<sup>3</sup> et ont été synthétisés par Pascal Lejay<sup>4</sup>. Cette synthèse a été réalisée par croissance dans un four à trois électrodes (*three arc furnace*) sous atmosphère purifiée d'Argon, puis par recuit pendant une semaine à 1050°C sous ultra vide. La taille typique de ces échantillons est de 1mm×1mm×200 μm. Cependant, nous les polissons pour les mesures de transport sous champ magnétique intense afin d'optimiser le facteur géométrique  $\alpha$ , jusqu'à atteindre une épaisseur de ~15-30 μm.

### 6.3.2 Résistivité de URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> à champ nul

La résistivité de URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> présente une anisotropie importante entre l'axe  $a$  et l'axe  $c$  [284] mais des anomalies similaires sont observées dans les deux directions. La figure 6.5 présente la courbe de résistivité  $\rho(T)$  dans la direction  $a$  d'un de nos échantillons entre 300 K à 1.5 K. On observe cinq différents régimes quand on refroidit le composé :

- A haute température ( $T > 150$  K), on retrouve le comportement de la résistivité décrit dans le cadre de l'effet Kondo avec  $\rho \propto -\ln\left(\frac{T}{T_K}\right)$ , où les atomes d'uranium constituent des impuretés magnétiques (les électrons  $f$  sont localisés). La température de Kondo est estimée à  $T_K \simeq 370$  K [285].
- A la température de cohérence  $T_{coh} \sim 70$  K, les électrons  $f$  se délocalisent en raison de la forte hybridation avec les électrons de conduction. La résistivité présente un maximum avant de chuter rapidement en dessous de  $T_{coh}$ , en raison des effets de cohérence du réseau Kondo.
- A  $T_0 = 17.5$  K, la résistivité présente un petit saut, de façon analogue à la résistivité du chrome. L'effet Hall présente quant à lui un saut très important à la transition, impliquant une perte de porteurs de l'ordre de 90% [285].
- Entre 2 K et 17 K, la résistivité est en accord avec l'ouverture d'un gap d'énergie  $\Delta$  antiferromagnétique suivi d'un comportement liquide de Fermi à plus basse température et peut être ajustée de façon satisfaisante suivant la forme :

$$\rho(T) = \rho_0 + AT^2 + bT \left(1 + 2\frac{T}{\Delta}\right) \exp\left(-\frac{\Delta}{T}\right) \quad (6.1)$$

On obtient dans notre cas  $\rho_0 \simeq 7 \mu\Omega\text{cm}$ ,  $A \simeq 0.1 \mu\Omega \text{ cm K}^{-2}$  et  $\Delta \simeq 80$  K.

- En dessous de  $T_c \simeq 1.5$  K le matériau devient supraconducteur.

D'après nos résultats, on observe que  $\rho(T_c) \simeq 6 \mu\Omega \text{ cm}$ . Dans la littérature, on trouve des valeurs variant de  $\sim 0.5$  à  $\sim 10 \mu\Omega \text{ cm}$ , ces écarts étant dus à la pureté des échantillons. Le rapport RRR, défini par le rapport des résistivités entre 300 K et  $T_c$  est de l'ordre de  $\sim 16$ , ce qui est comparable à d'autres échantillons synthétisés par d'autres groupes. Récemment des échantillons d'une qualité exceptionnelle ont été synthétisés au Japon et présentent un RRR  $> 600$  [286].

2. Institut Nanosciences et Cryogénie, SPSMS/MDN, CEA Grenoble

3. Laboratoire Photons et Matière, ESPCI, Paris

4. Institut Néel, Grenoble

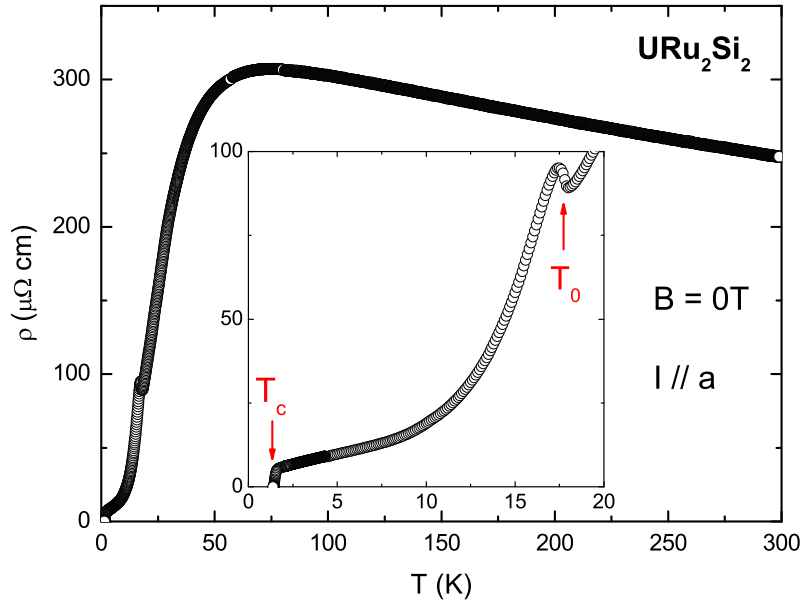


Figure 6.5 – Résistivité de  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  en fonction de la température à champ magnétique nul pour un courant  $I//a$ . Dans l'insert sont montrées un zoom entre la transition *ordre caché* à  $T_0 = 17.5$  K et la transition supraconductrice à  $T_c = 1.5$  K.

#### 6.4 Magnétorésistance, effet Hall et effet Nernst dans $\text{URu}_2\text{Si}_2$

Nous avons mesuré la magnétorésistance transverse  $\rho_{xx}$  et l'effet Hall  $R_H = \rho_{xy}/B$  dans  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  jusqu'à 55 T, le champ étant appliqué suivant l'axe  $c$  et le courant  $I//a$ , entre 1.5 K et 100 K. Deux échantillons différents provenant de la même source ont été mesurés. Les résultats obtenus sont présentés sur les figures 6.6 et 6.7 et sont en accord avec les données déjà rapportées dans la littérature dans la même configuration de mesure [287].

D'après l'ensemble des résultats, on voit que la magnétorésistance et l'effet Hall montrent une dépendance spectaculaire en champ magnétique. Les trois transitions de phase intervenant sous champ magnétique en dessous de 6 K sont clairement visibles dans les deux quantités à  $B_{OC} \simeq 35$  T,  $B_{OCR} \simeq 36$  T et  $B_{PMP} \simeq 39$  T, en accord avec les autres sondes expérimentales. On distingue alors quatre phases, numérotées en accord avec les précédents travaux, de I à IV. La déstabilisation de la phase *ordre caché* à  $B_{OC}$  est caractérisée par une chute brutale de  $\rho_{xx}$  à basse température, qui disparaît au dessus de  $T_0$ , et un saut important de la constante de Hall. Ceci suggère fortement une reconstruction drastique de la surface de Fermi entre un métal à densité de porteurs importante *paramagnétique polarisé* (PMP) vers un semi-métal compensé dans l'*ordre caché*. Entre  $B_{RHO}$  et  $B_{PMP}$ , la phase *ordre caché réentrant* (III) présente un saut de magnétorésistance en même temps qu'un petit saut de la constante de Hall. Cependant, comme nous l'avons déjà mentionné, la nature de cette phase reste encore indéterminée. Dans l'état PMP, la magnétorésistance est nulle et la résistivité ainsi que la constante de Hall sont assez faibles. Dans la suite, nous nous



intéressons principalement aux propriétés électroniques de la phase *ordre caché* (I) et de l'*état paramagnétique polarisé* (IV). Il apparaît d'après ces données que trois reconstructions de la surface de Fermi induites par le champ ont lieu avant que le champ ne stabilise la phase IV à fort champ.

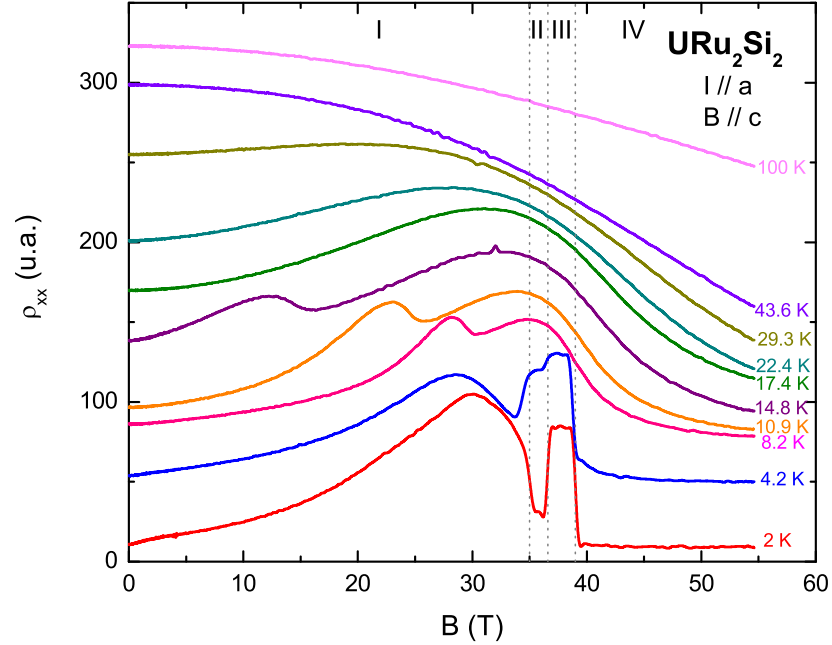


Figure 6.6 – Magnétorésistance transverse  $\rho_{xx}$  en fonction du champ magnétique jusqu'à 55 T dans URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> entre 2 K et 100 K. Par soucis de clarté, les courbes sont décalées les unes par rapport aux autres. Les notations I-IV dénotent les différentes parties du diagramme de phase d'après [275].

#### 6.4.1 Propriétés électroniques dans la phase ordre caché

D'après la figure 6.7, il apparaît que la phase *ordre caché* est caractérisée par une grande constante de Hall, valant  $R_H \simeq 9.4 \times 10^{-9} \text{ m}^3/\text{C}$  à  $T = 2 \text{ K}$ . Cette valeur correspond dans un modèle simple à une bande à une densité de porteurs  $n_H = 1/eR_H \approx 0.05$  porteurs par atome d'U, correspondant à un vecteur de Fermi  $k_F \approx 2.7 \text{ nm}^{-1}$ . Les valeurs de  $R_H$  sont en accord avec les précédentes mesures réalisées dans des échantillons de résistivité résiduelle comparable [274, 287, 191]. On note que la faible densité de porteurs est compatible avec la petite taille des poches observées dans les mesures d'oscillations quantiques.

La figure 6.8 montre l'angle de Hall de URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>, défini par  $\tan \Theta_H = \rho_{xy}/\rho_{xx}$ , en fonction du champ magnétique entre  $T = 2 \text{ K}$  et  $T = 20 \text{ K}$ . Il est évident que l'entrée dans la phase *ordre caché* est accompagnée par une importante augmentation de  $\tan \Theta_H$ , qui de pratiquement nul à 35 T atteint  $\tan \Theta_H \sim 0.7$  vers 20 T à  $T = 6 \text{ K}$ . En première approximation, si on se place dans le cas simple d'un métal à une bande, on a  $\tan \Theta_H = \mu B$ , où  $\mu$  est la mobilité. Une telle variation de l'angle de Hall signifie une augmentation très

## 6. Propriétés électroniques de $\text{URu}_2\text{Si}_2$ sous champ magnétique intense

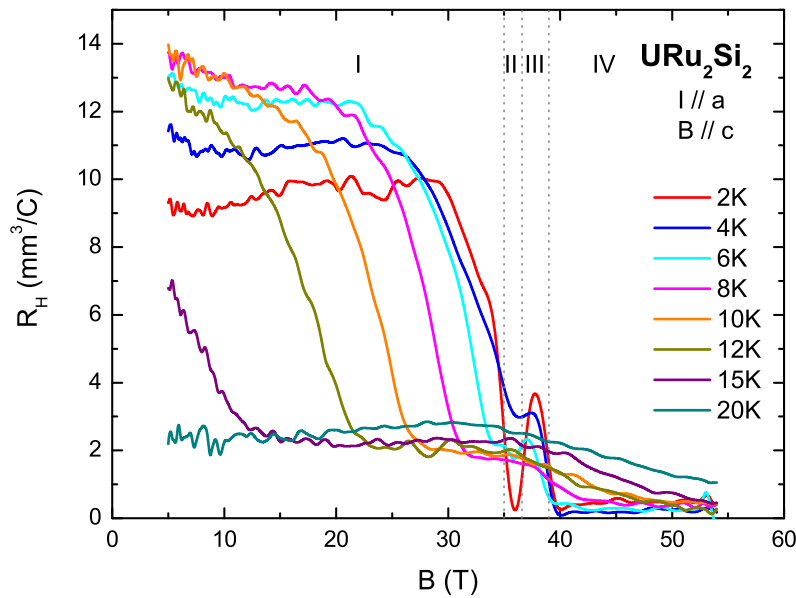


Figure 6.7 – Effet Hall  $R_H = \rho_{xy}/B$  en fonction du champ magnétique dans  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  entre 2 K et 20 K.

importante de la mobilité des porteurs dans l'*ordre caché*. L'ordre de grandeur de la mobilité à champ nul peut être déduit de la résistivité à température nulle,  $\mu = 1/ne\rho_0 \approx 0.13 \text{ T}^{-1}$ . Les mesures d'effet Hall indiquent également une perte très importante de porteurs à la transition, comme nous le verrons plus tard.

Dans leurs travaux, Kasahara *et al.* ont mesuré la magnétorésistance  $\Delta\rho(B)/\rho_0$  dans un échantillon très pur de  $\text{URu}_2\text{Si}_2$ , caractérisé par un RRR  $\sim 600$  et une résistivité résiduelle  $\rho_0 \simeq 0.5 \mu\Omega\text{cm}$  [286]. La dépendance quadratique en champ de la magnétorésistance jusqu'à  $\sim 30 \text{ T}$  nous permet également d'estimer la mobilité qui est proportionnelle à la racine carrée du coefficient de magnétorésistance. Ainsi, si on compare celui trouvé par Kasahara *et al.*, qui vaut  $\sim 3$ , et celui issu de nos données, valant  $\sim 0.01$ , on trouve un rapport des mobilités de  $\sim 16.5$ . On constate que ce rapport est très proche du rapport des résistivités résiduelles  $7/0.5 = 14$ . Cette simple comparaison assure la cohérence de notre analyse.

Dans l'état *ordre caché*, on retrouve les comportements d'un métal compensé, c'est-à-dire avec autant d'électrons et de trous participant au transport électronique. En effet, la magnétorésistance suit un comportement quadratique en champ jusqu'à  $\sim 30\text{T}$  et l'effet Hall est (quasi-)constant à basse température.

Nous avons également mesuré l'effet Nernst dans l'*ordre caché* de  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  jusqu'à 36 T. Le champ magnétique est appliqué suivant l'axe  $c$  et le courant de chaleur ainsi que le champ thermoélectrique sont dans le plan  $ab$ . C'est la première fois que cette mesure est réalisée en champ magnétique pulsé. Ces mesures viennent compléter celles réalisées par R. Bel et K.

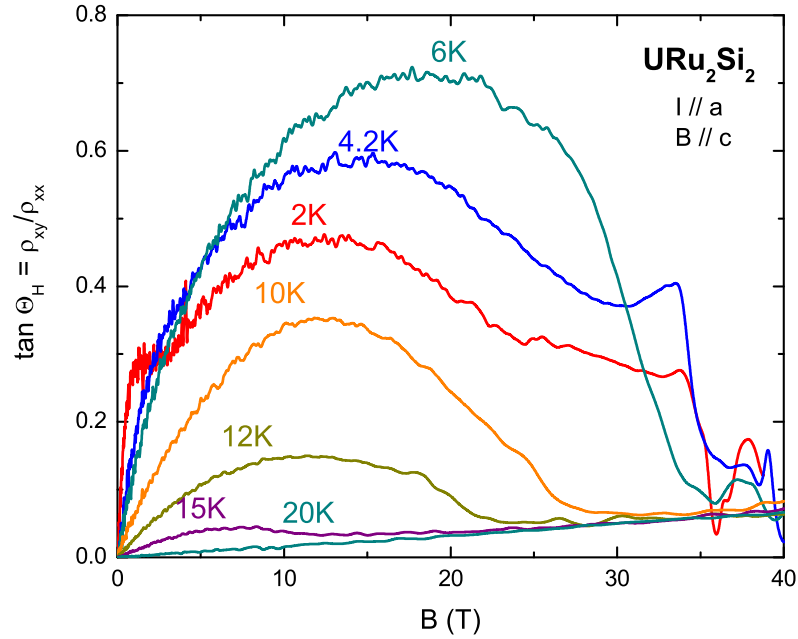


Figure 6.8 – Angle de Hall  $\tan \Theta_H = \rho_{xy}/\rho_{xx}$  de URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> en fonction du champ magnétique à différentes températures.

Behnia qui, bien que limités à un champ de 12 T, ont montré que l'effet Nernst dans l'*ordre caché* est à la fois très important et combiné à une chute importante du temps de relaxation [288, 289].

Dans la gamme de température explorée, la contribution des phonons domine la conductivité thermique  $\kappa(T)$ . Les données de  $\kappa(T)$  en fonction du champ magnétique jusqu'à 12 T obtenues par K. Behnia *et al.* suggèrent qu'à  $T = 3$  K, la variation du gradient thermique sous champ magnétique peut modifier l'amplitude du signal Nernst de  $\sim 50\%$  [290]. En effet, on remarque que nos valeurs sont environ deux fois inférieures à celles de cette étude. Cependant, cela ne modifie pas les idées générales que l'on dégage de ces données.

La figure 6.9 présente l'effet Nernst  $N = E_y/\nabla_x T$  en fonction du champ magnétique pour différentes températures. Des difficultés techniques nous ont malheureusement empêché lors de ces expériences de mesurer l'effet Nernst au dessus de 17 K. Cependant, il semble, et cela est confirmé par les mesures effectuées à bas champ, que l'effet Nernst est nul au dessus de  $T_0$ . L'entrée dans la phase *ordre caché* est concomitante avec l'émergence d'un effet Nernst de grande amplitude. En effet, on rappelle que dans le cas d'un métal simple comme l'or, l'effet Nernst est très faible ( $\sim$  nV/K). Un signal Nernst de plusieurs  $\mu$ V/K constitue donc un effet important. A la transition, le signal augmente brusquement jusqu'à présenter un maximum à basse température, en particulier à 3 K et vers 29 T, d'une amplitude de  $\sim 30$   $\mu$ V/K, pour ensuite diminuer (quasi-)linéairement avec le champ et changer de signe. Le signal Nernst reste linéaire jusqu'à  $\sim 20$  T pour  $T < 6$  K. Ces mesures ont permis de montrer que l'effet Nernst s'annule ou tout du moins change de signe à la transition *ordre caché*. Ceci

## 6. Propriétés électroniques de URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> sous champ magnétique intense

est vérifié quand on compare les diagrammes de phase (B,T) obtenus en reportant le champ auquel s'annule  $N$  en fonction de la température et le champ qui caractérise la transition dans les courbes de résistivité, déterminé à partir du point d'inflexion de la chute de  $\rho_{xx}$ . Cette comparaison est présentée dans l'insert de la figure 6.9 ; un excellent accord est trouvé. Il apparaît donc très clairement que l'émergence d'un effet Nernst important est intimement lié au développement de l'*ordre caché*. On peut noter que la chute de l'effet Nernst à la transition est de plus en plus abrupte quand la température diminue, suggérant que la transition passe du second ordre à haute température au premier ordre à basse température.

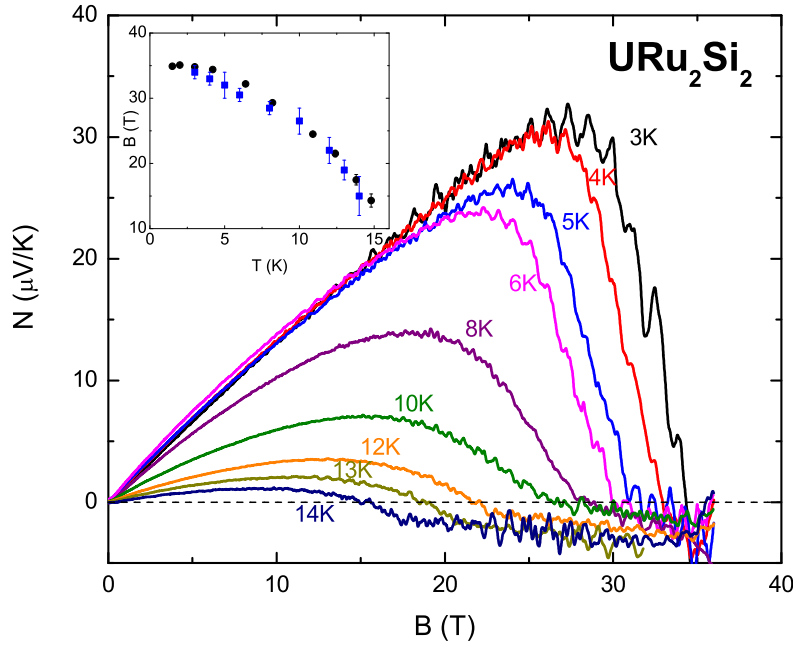


Figure 6.9 – Effet Nernst  $N = E_y/\nabla_x T$  en fonction du champ magnétique dans l'*ordre caché* de URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>. L'insert montre que le champ auquel s'annule l'effet Nernst correspond au champ de la transition *ordre caché* (■), déterminé à partir du point d'inflexion de la chute de résistivité (●).

Afin de mieux cerner l'origine d'une telle amplitude de l'effet Nernst dans l'*ordre caché*, on suppose que la théorie de Boltzmann est applicable. Dans ce cas, nous avons vu que l'effet Nernst peut être exprimé en fonction de l'angle de Hall :

$$N = \frac{\pi^2 k_B^2 T}{3} \frac{\partial \Theta_H}{\partial \varepsilon} \Big|_{\varepsilon_F} = \frac{\pi^2 k_B^2 T B}{3} \frac{\partial \tau}{\partial \varepsilon} \Big|_{\varepsilon_F} \quad (6.2)$$

Le terme  $\frac{\partial \tau}{\partial \varepsilon} \Big|_{\varepsilon_F}$  étant une quantité difficile à manipuler et à évaluer, on le simplifie en le linéarisant autour de l'énergie de Fermi. Cela revient à faire l'approximation suivante :  $\frac{\partial \tau}{\partial \varepsilon} \Big|_{\varepsilon_F} \approx \frac{\tau}{\varepsilon_F}$ . On obtient ainsi :

$$N \simeq \frac{\pi^2 k_B^2 T}{3} \frac{\mu B}{e \varepsilon_F} \quad (6.3)$$

On constate ainsi qu'une grande mobilité des porteurs combinée à une faible énergie de Fermi peut conduire à un effet Nernst considérable. Une estimation de l'énergie de Fermi à partir de l'effet Nernst à bas champ, avec  $\mu \approx 0.1 \text{ T}^{-1}$ , conduit à  $\varepsilon_F \approx 65 \text{ K}$ . Ces ordres de grandeurs sont à comparer avec ceux d'un métal conventionnel où l'effet Nernst est (quasi-)nul comme le cuivre, où  $\mu \approx 0.04 \text{ T}^{-1}$  et  $\varepsilon_F \approx 80\,000 \text{ K}$ . Ceci permet de comprendre pourquoi un effet Nernst important est observé dans plusieurs fermions lourds comme CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> [289] ou CeCoIn<sub>5</sub> [291]. En effet, l'énergie de Fermi est d'autant plus faible que la masse effective est grande, ce qui caractérise ces composés. Cependant, cette simple explication ne saurait suffire. En effet, URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>, bien que dans l'état fermion lourd même au dessus de  $T_0$ , présente un effet Nernst nul en dehors de la phase *ordre caché*. Il en est de même pour CeCoIn<sub>5</sub> où l'effet Nernst émerge en dessous de  $\sim 20 \text{ K}$ , alors que l'état fermion lourd est créé vers  $40 \text{ K}$ .

### 6.4.2 Propriétés électroniques des phases intermédiaires

La nature des phases II et III n'est toujours pas identifiée bien que des reconstructions successives de la surface de Fermi semblent avoir lieu. Les mesures d'effet Hall montrent que la phase II est caractérisée par une densité de porteurs importante,  $n_H = 1/eR_H \approx 1.7$  porteurs par atome d'U, soit 30 fois plus que la densité de l'*ordre caché*. Les mesures de magnétorésistance semblent également suggérer que la mobilité chute drastiquement au passage de la phase *ordre caché* à la phase II. Une faible mobilité associée à une grande surface de Fermi permet d'interpréter la faible amplitude du signal Nernst dans cette phase.

La reconstruction de la surface de Fermi qui a lieu à  $B \approx 36 \text{ T}$  entraîne une diminution de la densité de porteurs d'environ un ordre de grandeur ( $n_H = 1/eR_H \approx 0.14$  porteurs par atome d'U) par rapport à la phase II. La résistivité est quant à elle élevée ( $\rho_{xx} \simeq 8 \mu\Omega\text{cm}$ ) et semble constante en fonction du champ magnétique.

Une étude montre que lorsqu'on substitue des atomes de Ru par des atomes de Rh, pour un dopage de seulement 4%, la phase *ordre caché* est complètement supprimée mais la phase III subsiste. Cela suggère que celle-ci n'influe pas sur le développement de la phase *ordre caché* [287].

### 6.4.3 Propriétés électroniques dans l'état paramagnétique polarisé

Le second effet du champ concerne ce qu'on appelle la transition *pseudo-métamagnétique*, qui est présente dans d'autres systèmes à fermions lourds. Celle-ci se manifeste par un saut de l'aimantation à un champ  $B_M$  accompagnée d'anomalies dans les mesures thermodynamiques et de transport. Pour résumer, deux scénarios sont envisagés pour expliquer cette transition : (I) le champ magnétique a tendance à localiser les électrons  $f$  et une partie de la surface de Fermi disparaît à la transition, (II) l'autre scénario suppose que la surface de Fermi est polarisée (spin up et down) et que la partie de cette dernière correspondant à la masse effective la plus importante ne participe plus aux propriétés thermodynamiques et de transport de façon continue [40].

L'influence du champ magnétique sur la dépendance en température de la résistivité est représentée sur la figure 6.10. Au dessus de la transition métamagnétique ( $B > 40 \text{ T}$ ), le maximum de la résistivité autour de  $T \simeq 70 \text{ K}$  correspondant à la cohérence entre les moments magnétiques isolés a disparu. Cependant, la résistivité à  $50 \text{ T}$  présente une augmentation de près de deux ordres de grandeur entre les basses températures et  $150 \text{ K}$ , passant de  $\sim 5 \mu\Omega\text{cm}$  à  $\sim 150 \mu\Omega\text{cm}$ . Les diffusions inélastiques dues à l'effet Kondo sont donc encore importantes à ce champ. Ceci n'est pas surprenant si on considère le fait que le moment magnétique n'a pas encore atteint sa valeur à saturation à fort champ, ne valant que  $\sim 1.5$

## 6. Propriétés électroniques de URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> sous champ magnétique intense

à  $2\mu_B/U$  à 40 T, encore loin de la valeur du moment effectif à saturation ( $\mu_{sat} \simeq 3.6 \mu_B/U$ ). De plus, la température Kondo dans URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> est estimée à  $T_K \simeq 370$  K [285]. L'égalité entre les échelles d'énergie  $k_B T_K$  et  $g_J \mu_{sat} B$  nous permet d'estimer que le champ nécessaire à la destruction de l'effet Kondo est  $B \sim 200$  T (avec  $g_J = 3/2 + [S(S+1)-L(L+1)]/2J(J+1) = 0.8$ ). Il apparaît donc que dans la phase explorée au dessus de la transition métamagnétique de fortes fluctuations magnétiques sont encore présentes.

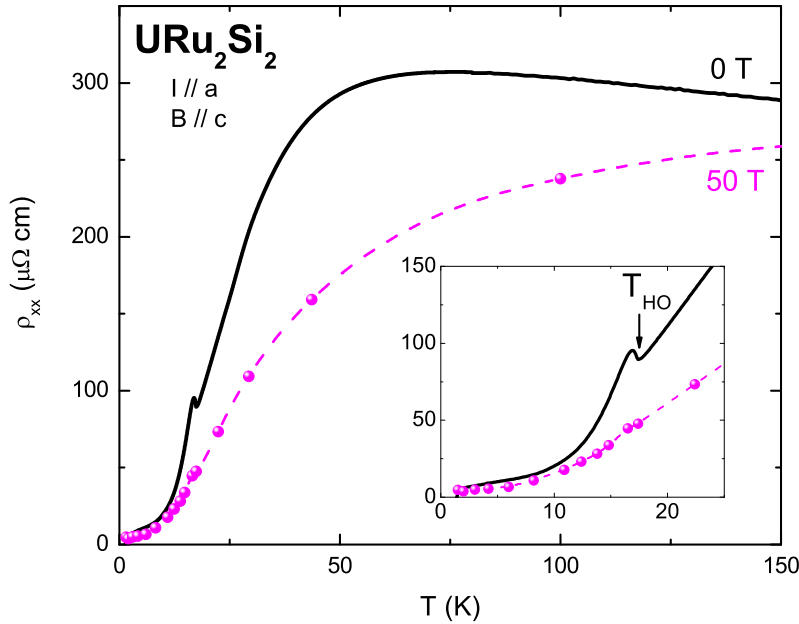


Figure 6.10 – Dépendance en température de la résistivité de URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> à champ magnétique nul et à 50 T. L'encart est un zoom de la partie basse température.

Néanmoins, l'observation d'une résistivité et d'une constante de Hall indépendantes du champ magnétique entre 40 T et 55 T nous permet de supposer qu'un modèle simple à une bande permet de décrire quantitativement les propriétés de transport dans l'état PMP. A basse température, la constante de Hall est  $R_H \simeq 0.47 \text{ mm}^3/\text{C}$  et la résistivité sature à  $\rho_{xx} \simeq 4.4 \mu\Omega\text{cm}$ . On en déduit une densité de porteurs  $n = \frac{1}{eR_H} \simeq 1.34 \times 10^{28} \text{ m}^{-3}$ , correspondant à  $\sim 1.1$  porteurs par atome d'U, et à une mobilité  $\mu = \frac{1}{ne\rho_{xx}} \simeq 0.01 \text{ T}^{-1}$ , soit d'un ordre de grandeur inférieur à la mobilité de l'*ordre caché*. Le vecteur de Fermi correspondant est  $k_F \simeq 7.3 \text{ nm}^{-1}$ . On constate qu'une perte importante de la densité de porteur de l'ordre de 95% a lieu entre la phase *ordre caché* et l'état PMP. En outre, le vecteur de Fermi diminue lui aussi d'environ un facteur 3, suggérant très fortement une reconstruction de la surface de Fermi à la transition *ordre caché*.

En résumé, contrairement aux propriétés de la phase *ordre caché*, la phase PMP apparaît comme un état métallique caractérisé par une grande surface de Fermi et une faible mobilité

## 6.5 Discussion des résultats

### 6.5.1 Origine de l'émergence d'un effet Nernst ?

Une des questions soulevées par ces résultats est de comprendre si l'émergence d'un effet Nernst important trouve son origine dans la physique particulière des fermions lourds ou dans une physique plus consensuelle.

Nous avons vu qu'un effet Nernst de plusieurs  $\mu\text{V}/\text{K}$  apparaît dans la phase métallique *ordre caché* de  $\text{URu}_2\text{Si}_2$ . En effet, l'effet Nernst s'annule, ou tout du moins change de signe, à la transition ; celui-ci semble donc être une propriété intrinsèque de l'*ordre caché*.

L'effet Nernst semble également corrélé avec la reconstruction de la surface de Fermi. En effet, il présente, avec la résistivité de Hall, un maximum au même champ  $B \sim 29 \text{ T}$ , ce qui va dans le sens qu'une faible densité de porteurs est un ingrédient essentiel à l'émergence de l'effet Nernst.

Il est intéressant de faire l'analogie avec les mesures d'effet Nernst réalisées dans d'autres fermions lourds. La figure 6.11 montre l'effet Nernst  $N$  dans les composés  $\text{URu}_2\text{Si}_2$ ,  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  [289] et  $\text{PrFe}_4\text{P}_{12}$  [292] en fonction du champ magnétique renormalisé par un champ *critique*  $B_{crit}$ , correspondant au champ où  $N$  change de signe. Il est toutefois important de noter que dans le cas de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , ce champ correspond à une transition métamagnétique alors que pour  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  et  $\text{PrFe}_4\text{P}_{12}$ , il correspond à la destruction d'une phase ordonnée (voir ci-dessous). On remarque tout d'abord une grande similarité dans le comportement de  $N$  dans ces trois composés : celui-ci augmente avec le champ jusqu'à atteindre un maximum, chute brusquement et s'annule ou change de signe à  $B_{crit}$ . Si on ignore le paramètre d'ordre  $\psi$ ,  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  et  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  présentent des caractéristiques très similaires. De la même manière que pour  $\text{URu}_2\text{Si}_2$ , l'effet Hall et l'effet Nernst dans  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  sont corrélés et ont un comportement identique à bas champ, révélant que ce dernier est sensible à la topologie de la surface de Fermi et au degré de localisation des électrons  $f$ , étant positif pour  $B < B_{crit}$  et négatif pour  $B > B_{crit}$ . Le second composé avec lequel on compare  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  est le skutterudite  $\text{PrFe}_4\text{P}_{12}$ , qui attire beaucoup d'attention en raison d'une phase exotique ordonnée non magnétique apparaissant en dessous de  $T_A \sim 6.5 \text{ K}$ . Un champ magnétique destabilise cette phase ordonnée et induit un état fermion lourd [292]. L'hybridation entre les électrons de conduction et les électrons  $f$  ainsi que les interactions multipolaires jouent à priori un rôle essentiel dans les propriétés anormales observées. La phase ordonnée est également caractérisée par une faible densité de porteur, d'après les mesures d'effet Hall et de conductivité thermique et l'effet Nernst adopte un comportement similaire à  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  [292] : il augmente avec le champ dans la phase ordonnée jusqu'à atteindre une valeur  $N \sim 60 \mu\text{V}/\text{K}$ , puis chute brusquement jusqu'à quasiment s'annuler en dehors, révélant qu'il est une propriété intrinsèque de l'état ordonné. L'émergence d'un effet Nernst important dans les phases ordonnées de ces deux composés suggère que celui-ci est relié à une reconstruction de la surface de Fermi combiné à une faible densité de porteurs.

Malgré ces observations, il n'est pas simple d'interpréter que l'émergence d'un effet Nernst. En effet, un effet Nernst d'une amplitude *géante* de l'ordre de  $\sim 1 \text{ mV}/\text{K}$  est mesurée dans le semimétal Bismuth [5]. Ce signal est simplement le fruit d'une combinaison entre une densité de porteurs extrêmement faible et un libre parcours moyen très grand, la mobilité atteignant la valeur extrême de  $\mu \sim 420 \text{ T}^{-1}$ .

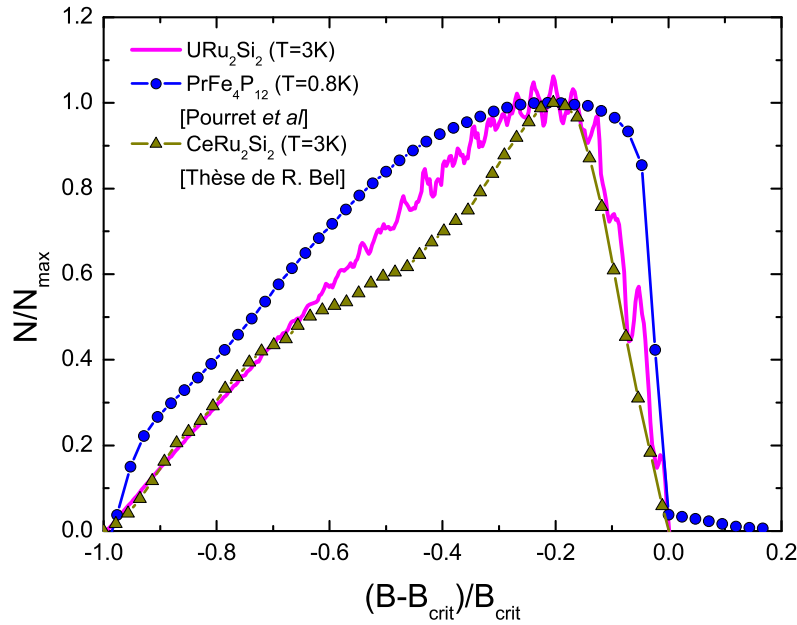


Figure 6.11 – Comparaison de la dépendance en champ magnétique de l’effet Nernst mesuré dans trois composés fermions lourds, renormalisé par la valeur maximum.

### 6.5.2 Destruction des corrélations électroniques par le champ magnétique

Le second effet du champ magnétique est de progressivement diminuer les corrélations entre les électrons de conduction et les moments magnétiques des atomes d’uranium au dessus de la transition métamagnétique.

Il est intéressant d’estimer la masse effective des quasiparticules dans l’état PMP. Pour cela, on suppose que la résistivité, dans la phase *ordre caché* et dans l’état PMP, adopte un comportement quadratique en température à basse température, en accord avec la théorie du liquide de Fermi. De ce fait, les données expérimentales sont ajustées selon la formule  $\rho(T) = \rho_0 + AT^2$ , où  $A$  représente la partie inélastique de la résistivité. Les résultats sont représentés sur les figures 6.12(a) et (b) pour l’*ordre caché* et l’état PMP respectivement, où la résistivité en fonction de la température est tracée en fonction de  $T^2$ . En raison de la forte magnétorésistance et du caractère semi-métallique à basse température dans l’*ordre caché*, il est difficile d’extraire des paramètres des ajustements, les données au dessus de 7 T sont donc à considérer avec précautions. De plus, les anomalies de la magnétorésistance entre 35 T et 40 T rendent impossible l’estimation d’une dépendance en température de la résistivité, comme cela est effectué dans [275]. Cependant, un bon accord est trouvé entre les données et les ajustements dans les autres régions de champ. En effet, on voit que le comportement liquide de Fermi à basse température présent à champ nul persiste avec le champ magnétique. Ce comportement quadratique de la résistivité, que l’on ne distingue plus à l’approche de la transition *ordre caché* [275], est rétabli dans l’état PMP. La température jusqu’à laquelle la loi en  $T^2$  est suivie dans l’état PMP atteint  $\sim 15$  K, et semble augmenter



avec le champ.

La figure 6.13 (en haut) montre le coefficient  $A$  de la résistivité en fonction du champ magnétique obtenu à partir des ajustements. Le coefficient  $A$  est constant à bas champ, augmente à l'approche de  $B_M$  et rediminue après la transition. On remarque qu'à bas champ dans l'*ordre caché* et dans l'état PMP au plus haut champ, les valeurs obtenues sont similaires,  $A \sim 0.1 \mu\Omega\text{cmK}^{-2}$ . En l'absence pour l'instant de mesures SdH ou dHvA dans la phase PMP, la masse effective des quasiparticules est inconnue. Toutefois, il est possible d'estimer celle-ci à partir du rapport Kadowaki-Woods  $R_{KW}$ . En utilisant la valeur du coefficient de chaleur spécifique à champ nul  $\gamma \sim 60 \text{ mJK}^{-2}\text{mol}^{-1}$ , on trouve que  $R_{KW} \simeq 3 \times 10^{-5} \mu\Omega\text{cm mJ}^{-2}\text{mol}^2\text{K}^2$  dans l'*ordre caché*, soit trois fois supérieur à la valeur universelle déterminée par Kadowaki et Woods [46]. Or, d'après de récentes études théoriques, il apparaît que  $R_{KW}$  est inversement proportionnel à la densité de porteurs :  $R_{KW} \propto n^{-4/3}$  pour [293] et  $R_{KW} \propto n^{-1/2}$  pour [294]. Quoiqu'il en soit, l'*ordre caché* étant caractérisé par une faible densité de porteurs, il paraît donc naturel de trouver un  $R_{KW}$  plus élevé. Ce comportement est d'ailleurs observé dans le cas du composé  $\text{PrFe}_4\text{P}_{12}$  [295]. En appliquant cette relation dans l'état PMP, l'observation d'une grande densité de porteurs implique un rapport  $R_{KW}$  plus faible. Le coefficient  $A$  étant le même que dans l'*ordre caché*, cela entraîne que  $\gamma$  est plus élevé et vaut  $\gamma \sim 100 \text{ mJK}^{-2}\text{mol}^{-1}$ , autrement dit que la masse effective des quasiparticules dans l'état PMP est modérée.

Une dépendance similaire en champ du coefficient  $A$  est observée dans le fermion lourd  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  [296]. Pour ce composé, lorsque le champ magnétique est dirigé suivant l'axe  $c$ , une transition métamagnétique a lieu à basse température à  $B_M = 7.8 \text{ T}$ . Cette transition entraîne le passage d'un état paramagnétique avec de fortes fluctuations AF à bas champ à un état paramagnétique polarisé. La figure 6.13 (en bas) montre les coefficients  $A$  de  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  et de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  en fonction du champ magnétique renormalisés par la valeur maximum et par le champ  $B_M$  respectivement. La diminution de  $A$  à mesure que le champ magnétique augmente est interprétée comme l'entrée dans un régime Kondo polarisé où les couplages intersites disparaissent rapidement avec le champ [40]. Une analyse des mesures dHvA au dessus de  $B_M$  dans  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  basée sur la théorie de Lifshitz-Kosevich révèle que l'amplitude des oscillations correspondant aux électrons de spin up et down ne sont pas égales et ont une dépendance en température différente, impliquant que les masses effectives cyclotron sont différentes pour les électrons de spin up et down [297]. Cette observation suggère qu'au dessus de  $B_M$ , le transport électronique est régi par la somme des contributions des électrons et des trous, avec chacune leur surface de Fermi.

Un scénario allant dans ce sens, étudiant les conséquences et les effets d'une transition métamagnétique dans les fermions lourds, est proposé par S. Viola Kusminskiy *et al.* [298]. Dans ce cas, la reconstruction de la surface de Fermi se fait de façon continue. Pour  $B > B_M$ , le champ induit la formation d'une surface de Fermi des quasiparticules de spins up avec des masses effectives très élevées et ne participant plus au transport et d'une surface de Fermi des quasiparticules de spins down avec des masses effectives modérées ( $m^* \sim m_0$ ). De plus, l'état fermion lourd n'est complètement détruit que pour un champ d'un ordre de grandeur supérieur à  $B_M$ . On peut alors envisager que ce scénario soit applicable pour  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  si on considère la masse effective des quasiparticules estimée dans l'état paramagnétique polarisé. Cependant, le changement de topologie de la surface de Fermi semble plus brusque que dans le cas d'un crossover, au vu de la dépendance en champ de l'effet Hall.

Comme il a déjà été reporté [275], la dépendance en champ magnétique du coefficient  $A \propto m^*$  présente un comportement critique à l'approche du champ de la transition métamagnétique. Une divergence apparente de  $m^*$  à l'approche de la transition est l'un des

## 6. Propriétés électroniques de URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> sous champ magnétique intense

---

paramètres qui a conduit Kim *et al.* à suggérer la présence d'un point critique quantique induit par le champ autour de  $B_M$  [275]. La présence d'un PCQ proche de la transition métamagnétique est proposée pour expliquer les différentes anomalies observées dans les mesures de transport de URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>, la phase ordonnée pouvant être induite par les fortes fluctuations autour de celui-ci. Or, on observe effectivement sur la figure 6.13 un comportement critique au niveau de la transition métamagnétique. Il semble plutôt que  $A$  présente un maximum/pic à la transition, et ce dans les deux composés. Remarquons que dans le cas de URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> la détermination de  $A$  à l'approche de  $B_M$  dans la phase *ordre caché* est rendue difficile en raison du caractère semi-métallique et des anomalies de la résistivité à basse température. Cette observation, en plus du fait que la transition pseudo-métamagnétique soit du 1<sup>er</sup> ordre, suggère plutôt une augmentation de la masse effective à l'approche de la transition métamagnétique et de la reconstruction de la surface de Fermi.

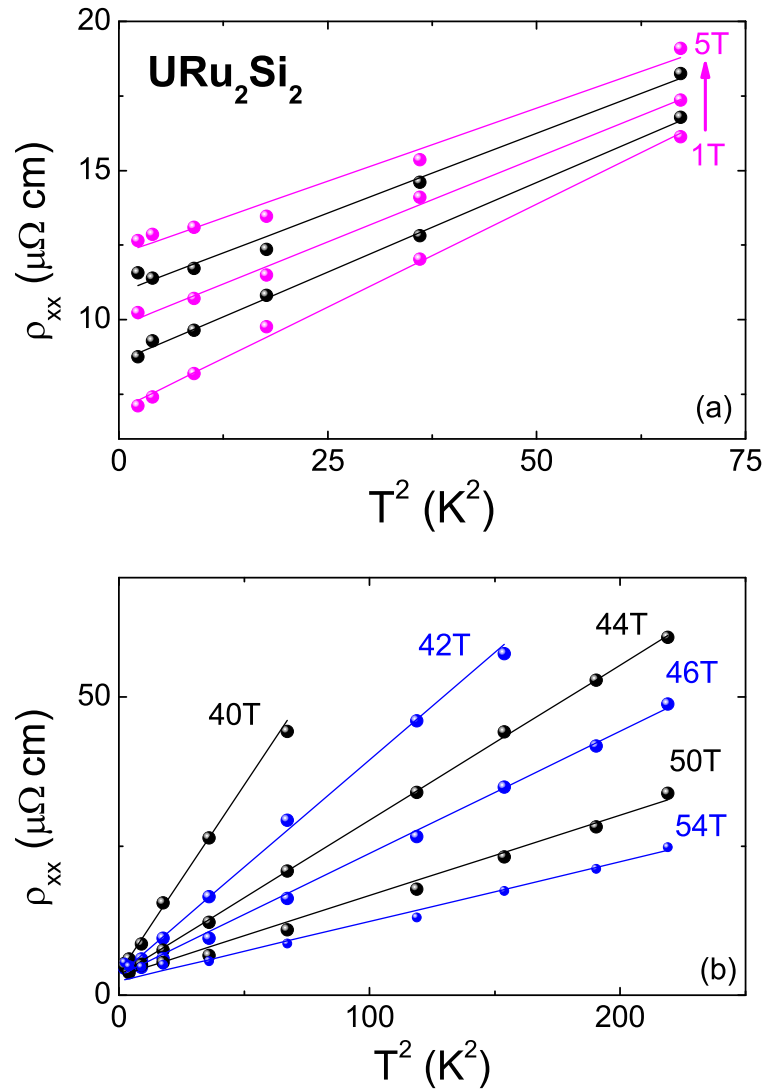


Figure 6.12 – Dépendance en température de la résistivité en fonction de  $T^2$  pour différents champs magnétiques (a) dans l'*ordre caché* et (b) dans l'état paramagnétique polarisé. Les lignes solides sont des ajustements  $\rho(T) = \rho_0 + AT^2$ .

## 6. Propriétés électroniques de URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> sous champ magnétique intense

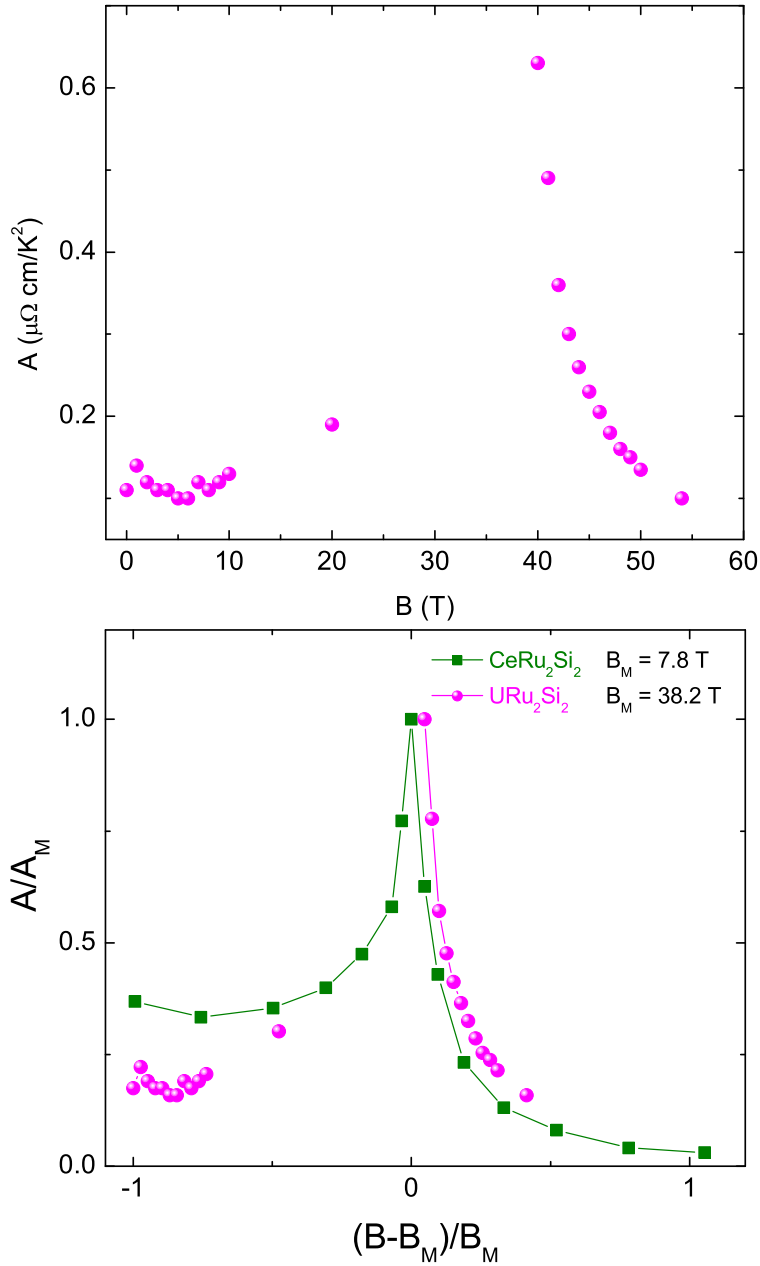


Figure 6.13 – *En haut* : Coefficient  $A$  de la résistivité  $\rho(T) = \rho_0 + AT^2$  en fonction du champ magnétique. *En bas* : Comparaison de la dépendance en champ magnétique du coefficient  $A$  de la résistivité de URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> (ce travail) et de CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> [296].  $B_M$  est le champ correspondant à la transition métamagnétique.

## 6.6 Résumé du chapitre

En mesurant la magnétorésistance transverse et l'effet Hall dans URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> jusqu'à 55 T, nous avons pu mettre en évidence que les propriétés de transport dans la phase *ordre caché* sont compatibles avec celles d'un fermion lourd (semi-)métallique compensé. Combiné à des mesures d'effet Nernst et à partir d'un simple modèle à une bande, il apparaît que l'*ordre caché* est caractérisé par une faible densité de porteurs mais avec une mobilité importante. De plus, l'entrée dans la phase *ordre caché* est concomitante avec une reconstruction de la surface de Fermi. Au contraire, on retrouve dans la phase paramagnétique polarisée ( $B > 40\text{T}$ ) les propriétés d'un métal plus conventionnel, avec une grande densité de porteurs et une masse effective plus faiblement renormalisée.



## Conclusion générale et perspectives

Dans ce travail de thèse, nous nous sommes intéressés aux propriétés de transport électrique (magnétorésistance, effet Hall,...) et thermoélectrique (effet Nernst) sous champ magnétique intense dans des systèmes à fortes corrélations électroniques. Plus particulièrement, notre étude a porté sur les supraconducteurs à haute température critique ainsi que sur un composé dit à fermions lourds. Nos expériences, effectuées dans des conditions extrêmes de température ( $T \sim 1.5$  K) et de champ magnétique ( $B \sim 62$  T), ont permis de mettre en évidence des phénomènes physiques et diverses propriétés électroniques dans ces différents systèmes.

Dans le cas des cuprates, l'application d'un champ magnétique suffisamment fort a pour effet de détruire la supraconductivité et ainsi de permettre l'étude des propriétés de l'état fondamental à basse température. Depuis leur découverte en 1986, l'existence ou non d'une surface de Fermi du côté sous-dopé constituait un problème majeur quant à la compréhension du phénomène dans ces composés. En mesurant la magnétorésistance transverse ainsi que l'effet Hall dans des composés  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  sous-dopés de dernière génération, nous avons pour la première fois mis en évidence des oscillations quantiques de la résistance (effet Shubnikov-de Haas), établissant ainsi l'existence d'une surface de Fermi bien définie de ce côté du diagramme de phase. A la différence des cuprates surdopés qui possèdent une grande surface de Fermi de forme cylindrique, les oscillations quantiques ont révélé la présence de petites poches du côté sous-dopé. Ces observations sont en apparence contradiction avec les mesures de spectroscopie (ARPES) qui montrent que le poids spectral semble se concentrer dans les régions nodales de la zone de Brillouin mais sous la forme d'arcs de Fermi distincts. Bien que les mesures d'oscillations quantiques ne permettent pas de déterminer le nombre de poches (ni leur localisation dans l'espace réciproque), il apparaît de toute évidence qu'un changement drastique de la topologie de la surface de Fermi a lieu entre les deux régimes situés de part et d'autre du dopage optimal. Combiné à cela, nous avons également montré que l'effet Hall dans l'état normal est négatif à basse température, ce que nous avons interprété comme la présence de poches d'électrons dans la surface de Fermi, qui seraient associées aux mesures SdH. Ces observations nous ont conduit à supposer qu'une reconstruction de la surface de Fermi a lieu entre les deux régimes. En se basant sur un scénario simple d'une onde de densité, nous avons montré qu'il était possible qu'une reconstruction induise des petites poches de trous et d'électrons. Il a été également proposé qu'un ordre de stripes autour du dopage  $p=1/8$  peut engendrer la présence de poches d'électrons. Cependant, l'origine même de ce mécanisme reste encore à déterminer. Une reconstruction basée sur un ordre DDW est également suggérée.

Dans une seconde partie, nous avons étudié les propriétés électroniques du composé fermion lourd  $\text{URu}_2\text{Si}_2$ . Ce composé présente trois transitions successives entre 35 T et 40 T. Il s'avère que ces trois transitions semblent correspondre à trois reconstructions de la surface de Fermi. La phase *ordre caché*, dont la nature reste encore inconnue, est caractérisée

par un faible nombre de porteurs de masses effectives importantes mais qui sont très mobiles. La faible densité de porteurs ainsi que leur long temps de vie semblent être à l'origine de l'émergence d'un effet Nernst d'une grande amplitude dans l'*ordre caché*. A l'inverse, il semble qu'à fort champ magnétique, les propriétés d'un métal plus conventionnel soient rétablies, avec une grande densité de porteurs et des masses effectives modérées.

### Perspectives

Bien sûr, le travail réalisé lors de cette thèse ne constitue que le début de l'étude de la surface de Fermi des cuprates. Il convient maintenant d'étendre les mesures de magnéto-transport (effet Shubnikov-de Haas) et d'aimantation (effet de Haas-van Alphen) à d'autres dopages afin de balayer la plus grande étendue possible du diagramme de phase dans le but de déterminer la topologie exacte la surface de Fermi en fonction du dopage. Ensuite, un effort théorique intense sera indispensable afin d'expliquer ce changement drastique de topologie entre les cuprates sous-dopés et surdopés. Une correspondance avec les cuprates dopés en électrons serait également intéressante.

Du point de vue expérimental, des progrès importants ont été réalisés afin d'optimiser le rapport signal sur bruit lors des mesures de magnéto-résistance. Celui-ci s'avère crucial lorsqu'il faut observer des oscillations ne représentant que quelques pourcents du signal mesuré. Nous avons également montré la faisabilité de mesures de thermoélectricité sous champ magnétique pulsé. Bien que certains progrès restent encore à réaliser, un effort doit maintenant être apporté afin de réaliser le même tour de force dans le but d'étendre ces mesures jusqu'à 60 T. Cela pourrait avoir toute son importance dans le cas des cuprates par exemple.

---

Les résultats issus des mesures d'oscillations quantiques dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$  [299] et dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$  [202] sont publiés ainsi que ceux concernant les mesures d'effet Hall dans  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ ,  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$  et  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.67}$  [300]. Ceux sur le composé fermion lourd  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  sont en cours d'écriture [301].



## Bibliographie

- [1] D. Podolsky and H.-Y. Kee, arXiv :0806.0005 (2008).
- [2] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. N. Van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas, *Physical Review Letters* **61**, 2472 (1988).
- [3] W. Mercoureff, *La surface de Fermi des métaux* (Masson et Cie, 1967).
- [4] N. P. Ong, *Physical Review B* **43**, 193 (1991).
- [5] K. Behnia, M.-A. Measson, and Y. Kopelevich, *Physical Review Letters* **98**, 076603 (pages 4) (2007), URL <http://link.aps.org/abstract/PRL/v98/e076603>.
- [6] W. J. de Haas and P. M. van Alphen, *Proc. Sect. Sci. K. ned. Akad. Wet* **33**, 1106 (1930).
- [7] D. Shoenberg, *Proc. R. Soc. Lond. A* **170**, 341 (1939).
- [8] L. Landau, *Z. Phys.* **64**, 629 (1930).
- [9] L. Onsager, *Phil. 1Mag.* **43**, 1006 (1952).
- [10] I. M. Lifshitz and A. M. Kosevich, *Zh. eksp. teor. Fiz.* **29**, 730 (1955).
- [11] D. Shoenberg, *Magnetic Oscillations in Metals* (Cambridge Univ. Press, Cambridge, 1984).
- [12] A. A. Abrikosov, *Fundamentals of the Theory of Metals* (North-Holland, 1988).
- [13] A. B. Pippard, *Magnetoresistance in Metals* (Cambridge University Press, Cambridge, 1989).
- [14] N.-W. Ashcroft and N.-D. Mermin, *Physique des solides* (EDP Sciences, 2002).
- [15] E. H. Sondheimer, *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences* **193**, 484 (1948).
- [16] Z. A. Xu, N. P. Ong, Y. Wang, T. Kakeshita, and S. Uchida, *Nature* **406**, 486 (03 Aug 2000).
- [17] R. Bel, K. Behnia, Y. Nakajima, K. Izawa, Y. Matsuda, H. Shishido, R. Settai, and Y. Onuki, *Physical Review Letters* **92**, 217002 (pages 4) (2004), URL <http://link.aps.org/abstract/PRL/v92/e217002>.
- [18] J. Bardeen, L. N. Cooper, and J. R. Schrieffer, *Phys. Rev.* **108**, 1175 (1957).

- [19] A. W. Overhauser, Phys. Rev. **128**, 1437 (1962).
- [20] E. Fawcett, Rev. Mod. Phys. **60**, 209 (1988).
- [21] V. Ginzburg and L. Landau, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **20** (1950).
- [22] A. Abrikosov, Sov. Phys. - JETP **5**, 1174 (1957).
- [23] D. S. Fisher, M. P. A. Fisher, and D. A. Huse, Physical Review B **43**, 130 (1991).
- [24] E. Maxwell, Phys. Rev. **78**, 477 (1950).
- [25] C. A. Reynolds, B. Serin, W. H. Wright, and L. B. Nesbitt, Phys. Rev. **78**, 487 (1950).
- [26] J. Bardeen, Phys. Rev. **80**, 567 (1950).
- [27] H. Fröhlich, Phys. Rev. **79**, 845 (1950).
- [28] L. N. Cooper, Phys. Rev. **104**, 1189 (1956).
- [29] G. L., Soviet Phys. JETP **9**, 1364 (1959).
- [30] P. Townsend and J. Sutton, Phys. Rev. **128**, 591 (1962).
- [31] N. E. Phillips, Phys. Rev. **114**, 676 (1959).
- [32] J. Gavaler, Appl. Phys. Lett. **23** (1973).
- [33] L. Testardi, J. Wernick, and W. Royer, Solid State Commun. **15**, 1 (1974).
- [34] J. Nagamatsu, N. Nakagawa, T. Muranaka, Y. Zenitani, and J. Akimitsu, Nature **410**, 63 (2001).
- [35] A. Y. Liu, I. I. Mazin, and J. Kortus, Physical Review Letters **87**, 087005 (2001).
- [36] E. A. Yelland, J. R. Cooper, A. Carrington, N. E. Hussey, P. J. Meeson, S. Lee, A. Yamamoto, and S. Tajima, Physical Review Letters **88**, 217002 (2002).
- [37] K. Takada, H. Sakurai, E. Takayama-Muromachi, F. Izumi, R. A. Dilanian, and T. Sasaki, Nature. **422**, 53 (2003).
- [38] P. Limelette, P. Wzietek, S. Florens, A. Georges, T. A. Costi, C. Pasquier, D. Jérôme, C. Mézière, and P. Batail, Physical Review Letters **91**, 016401 (2003).
- [39] A. T. Holmes, D. Jaccard, and K. Miyake, Physical Review B **69**, 024508 (2004).
- [40] J. Flouquet, Progress in low Temperature Physics **XV** (2005).
- [41] S.-I. Fujimori, Y. Saitoh, T. Okane, A. Fujimori, H. Yamagami, Y. Haga, E. Yamamoto, and Y. Omacrnuki, Nature Physics **3**, 618 (2007).
- [42] W. J. de Haas, J. de Boer, and G. J. van Dën Berg, Physica **1**, 1115 (1934).
- [43] J. Kondo, Progress of Theoretical Physics **32**, 37 (1964).
- [44] K. G. Wilson, Rev. Mod. Phys. **47**, 773 (1975).

- 
- [45] A. Sumiyama, Y. Oda, H. Nagano, Y. Onuki, K. Shibusaki, and T. Komatsubara, *Journal of the Physical Society of Japan* **55**, 1294 (1986).
- [46] S. B. Kadowaki, K. Woods, *Solid State Communications* **58**, 507 (1986).
- [47] N. Tsujii, K. Yoshimura, and K. Kosuge, *J. Phys. : Condens. Matter* **15**, 1993 (2003).
- [48] P. Lee, T. Rice, J. Serene, L. Sham, and J. Wilkins, *Condens. Matter Phys.* **12** (1986).
- [49] M. A. Ruderman and C. Kittel, *Phys. Rev.* **96**, 99 (1954).
- [50] T. Kasuya, *Progress of Theoretical Physics* **16**, 45 (1956).
- [51] K. Yosida, *Phys. Rev.* **106**, 893 (1957).
- [52] G. R. Stewart, *Rev. Mod. Phys.* **73**, 797 (2001).
- [53] J. Paglione, M. A. Tanatar, D. G. Hawthorn, E. Boaknin, R. W. Hill, F. Ronning, M. Sutherland, L. Taillefer, C. Petrovic, and P. C. Canfield, *Physical Review Letters* **91**, 246405 (2003).
- [54] A. Bianchi, R. Movshovich, I. Vekhter, P. G. Pagliuso, and J. L. Sarrao, *Physical Review Letters* **91**, 257001 (2003).
- [55] D. Jerome, A. Mazaud, M. Ribault, and K. Bechgaard, *J. Phys.(Paris) Lett* **41** (1980).
- [56] S. S. P. Parkin, E. M. Engler, R. R. Schumaker, R. Lagier, V. Y. Lee, J. C. Scott, and R. L. Greene, *Physical Review Letters* **50**, 270 (1983).
- [57] F. Steglich, J. Aarts, C. D. Bredl, W. Lieke, D. Meschede, W. Franz, and H. Schäfer, *Physical Review Letters* **43**, 1892 (1979).
- [58] C. W. Chu, L. Gao, F. Chen, Z. J. Huang, R. L. Meng, and Y. Y. Xue, *Nature* pp. 323–325 (1993).
- [59] N. E. Hussey, *Advances in Physics* **51**, 1685 (2002).
- [60] M. I. Salkola, A. V. Balatsky, and D. J. Scalapino, *Physical Review Letters* **77**, 1841 (1996).
- [61] P. A. Lee, *Physical Review Letters* **71**, 1887 (1993).
- [62] A. C. Durst and P. A. Lee, *Physical Review B* **62**, 1270 (2000).
- [63] Y. Sun and K. Maki, *EPL (Europhysics Letters)* **32**, 355 (1995), URL <http://stacks.iop.org/0295-5075/32/355>.
- [64] J. G. Bednorz and K. A. Müller, *Zeitschrift für Physik B Condensed Matter* **64**, 189 (1986).
- [65] M. K. Wu, J. R. Ashburn, C. J. Torng, P. H. Hor, R. L. Meng, L. Gao, Z. J. Huang, Y. Q. Wang, and C. W. Chu, *Physical Review Letters* **58**, 908 (1987).
- [66] Y. Tokura, H. Takagi, and S. Uchida, *Nature* **337**, 345 (1989).

- [67] N. E. Hussey, M. Abdel-Jawad, A. Carrington, A. P. Mackenzie, and L. Balicas, *Nature* **425**, 814 (2003).
- [68] M. Plate, J. D. F. Mottershead, I. S. Elfimov, D. C. Peets, R. Liang, D. A. Bonn, W. N. Hardy, S. Chiuzbaian, M. Falub, M. Shi, et al., *Physical Review Letters* **95**, 077001 (pages 4) (2005), URL <http://link.aps.org/abstract/PRL/v95/e077001>.
- [69] H. Takagi, T. Ido, S. Ishibashi, M. Uota, S. Uchida, and Y. Tokura, *Physical Review B* **40**, 2254 (1989).
- [70] N. F. Mott, *Proceedings of the Physical Society A* **62**, 416 (1949).
- [71] D. C. Johnston, J. P. Stokes, D. P. Goshorn, and J. T. Lewandowski, *Physical Review B* **36**, 4007 (1987).
- [72] S. Mitsuda, G. Shirane, S. K. Sinha, D. C. Johnston, M. S. Alvarez, D. Vaknin, and D. E. Moncton, *Physical Review B* **36**, 822 (1987).
- [73] D. Vaknin, S. K. Sinha, D. E. Moncton, D. C. Johnston, J. M. Newsam, C. R. Safinya, and H. E. King, *Physical Review Letters* **58**, 2802 (1987).
- [74] B. X. Yang, S. Mitsuda, G. Shirane, Y. Yamaguchi, H. Yamauchi, and Y. Syono, *Journal of the Physical Society of Japan* **56**, 2283 (1987).
- [75] Y. J. Uemura, W. J. Kossler, X. H. Yu, J. R. Kempton, H. E. Schone, D. Opie, C. E. Stronach, D. C. Johnston, M. S. Alvarez, and D. P. Goshorn, *Physical Review Letters* **59**, 1045 (1987).
- [76] F. C. Zhang and T. M. Rice, *Physical Review B* **37**, 3759 (1988).
- [77] M. R. Presland, J. L. Tallon, R. G. Buckley, R. S. Liu, and N. E. Flower, *Physica C : Superconductivity* **176**, 95 (1991).
- [78] J. L. Tallon, C. Bernhard, H. Shaked, R. L. Hitterman, and J. D. Jorgensen, *Physical Review B* **51**, 12911 (1995).
- [79] C. E. Gough, M. S. Colclough, E. M. Forgan, R. G. Jordan, M. Keene, C. M. Muirhead, A. I. M. Rae, N. Thomas, and J. S. A. . S. Sutton, *Nature* **326**, 855 (1987).
- [80] Y. J. Uemura, L. P. Le, G. M. Luke, B. J. Sternlieb, W. D. Wu, J. H. Brewer, T. M. Riseman, C. L. Seaman, M. B. Maple, M. Ishikawa, et al., *Physical Review Letters* **66**, 2665 (1991).
- [81] D. J. Scalapino, E. Loh, and J. E. Hirsch, *Physical Review B* **34**, 8190 (1986).
- [82] P. A. Lee and N. Read, *Physical Review Letters* **58**, 2691 (1987).
- [83] P. Monthoux, A. V. Balatsky, and D. Pines, *Physical Review Letters* **67**, 3448 (1991).
- [84] W. N. Hardy, D. A. Bonn, D. C. Morgan, R. Liang, and K. Zhang, *Physical Review Letters* **70**, 3999 (1993).
- [85] D. A. Wollman, D. J. Van Harlingen, W. C. Lee, D. M. Ginsberg, and A. J. Leggett, *Physical Review Letters* **71**, 2134 (1993).

- 
- [86] C. C. Tsuei and J. R. Kirtley, *Rev. Mod. Phys.* **72**, 969 (2000).
- [87] C. Tsuei, J. Kirtley, Z. Ren, J. Wang, H. Raffy, , and Z. Li, *Nature* **387**, 4819 (1997).
- [88] J. M. Harris, Z. X. Shen, P. J. White, D. S. Marshall, M. C. Schabel, J. N. Eckstein, and I. Bozovic, *Physical Review B* **54**, R15665 (1996).
- [89] Z.-X. Shen, D. S. Dessau, B. O. Wells, D. M. King, W. E. Spicer, A. J. Arko, D. Marshall, L. W. Lombardo, A. Kapitulnik, P. Dickinson, et al., *Physical Review Letters* **70**, 1553 (1993).
- [90] H. Ding, M. R. Norman, J. C. Campuzano, M. Randeria, A. F. Bellman, T. Yokoya, T. Takahashi, T. Mochiku, and K. Kadowaki, *Physical Review B* **54**, R9678 (1996).
- [91] A. Lanzara, P. V. Bogdanov, X. J. Zhou, S. A. Kellar, D. L. Feng, E. D. Lu, T. Yoshida, H. Eisaki, A. Fujimori, K. Kishio, et al., *Nature* **412**, 510 (2001).
- [92] G.-H. Gweon, T. Sasagawa, S. Zhou, J. Graf, H. Takagi, D.-H. Lee, and A. Lanzara, *Nature* **430**, 187 (2004).
- [93] J. Hwang, T. Timusk, and J. P. Carbotte, *Nature* **446**, E3 (2007).
- [94] H. Takagi, T. Ido, S. Ishibashi, M. Uota, S. Uchida, and Y. Tokura, *Physical Review B* **40**, 2254 (1989).
- [95] A. Kaminski, M. Randeria, J. C. Campuzano, M. R. Norman, H. Fretwell, J. Mesot, T. Sato, T. Takahashi, and K. Kadowaki, *Physical Review Letters* **86**, 1070 (2001).
- [96] P. D. Johnson, T. Valla, A. V. Fedorov, Z. Yusof, B. O. Wells, Q. Li, A. R. Moodenbaugh, G. D. Gu, N. Koshizuka, C. Kendziora, et al., *Physical Review Letters* **87**, 177007 (2001).
- [97] B. Vignolle, S. Hayden, D. McMorrow, H. Ronnow, B. Lake, C. Frost, and T. Perring, *Nature Physics* **3**, 163 (2007).
- [98] B. Vignolle, Ph.D. thesis, University of Bristol (2007).
- [99] B. Wuyts, V. V. Moshchalkov, and Y. Bruynseraede, *Physical Review B* **53**, 9418 (1996).
- [100] P. Fournier, P. Mohanty, E. Maiser, S. Darzens, T. Venkatesan, C. J. Lobb, G. Czjzek, R. A. Webb, and R. L. Greene, *Physical Review Letters* **81**, 4720 (1998).
- [101] R. Bel, K. Behnia, C. Proust, P. van der Linden, D. Maude, and S. I. Vedenev, *Physical Review Letters* **92**, 177003 (2004).
- [102] A. El Azrak, , R. Nahoum, N. Bontemps, M. Guilloux-Viry, C. Thivet, A. Perrin, S. Labdi, Z. Z. Li, and H. Raffy, *Physical Review B* **49**, 9846 (1994).
- [103] C. M. Varma, P. B. Littlewood, S. Schmitt-Rink, E. Abrahams, and A. E. Ruckenstein, *Physical Review Letters* **63**, 1996 (1989).
- [104] A. Kaminski, J. Mesot, H. Fretwell, J. C. Campuzano, M. R. Norman, M. Randeria, H. Ding, T. Sato, T. Takahashi, T. Mochiku, et al., *Physical Review Letters* **84**, 1788 (2000).

- [105] J. W. Loram, K. A. Mirza, J. R. Cooper, and J. L. Tallon, *Physica C : Superconductivity* **282-287**, 1405 (1997).
- [106] C. Proust, E. Boaknin, R. W. Hill, L. Taillefer, and A. P. Mackenzie, *Physical Review Letters* **89**, 147003 (2002).
- [107] S. Nakamae, K. Behnia, N. Mangkorntong, M. Nohara, H. Takagi, S. J. C. Yates, and N. E. Hussey, *Physical Review B* **68**, 100502 (2003).
- [108] T. Manako, Y. Kubo, and Y. Shimakawa, *Physical Review B* **46**, 11019 (1992).
- [109] A. P. Mackenzie, S. R. Julian, D. C. Sinclair, and C. T. Lin, *Physical Review B* **53**, 5848 (1996).
- [110] A. Kaminski, S. Rosenkranz, H. M. Fretwell, Z. Z. Li, H. Raffy, M. Randeria, M. R. Norman, and J. C. Campuzano, *Physical Review Letters* **90**, 207003 (2003).
- [111] Z. M. Yusof, B. O. Wells, T. Valla, A. V. Fedorov, P. D. Johnson, Q. Li, C. Kendziora, S. Jian, and D. G. Hinks, *Physical Review Letters* **88**, 167006 (2002).
- [112] B. Vignolle, A. Carrington, R. A. Cooper, M. M. J. French, A. P. Mackenzie, C. Jaudet, D. Vignolles, C. Proust, and N. E. Hussey, *Nature* **455**, 952 (2008).
- [113] W. W. Warren, R. E. Walstedt, G. F. Brennert, R. J. Cava, R. Tycko, R. F. Bell, and G. Dabbagh, *Physical Review Letters* **62**, 1193 (1989).
- [114] H. Alloul, T. Ohno, and P. Mendels, *Physical Review Letters* **63**, 1700 (1989).
- [115] T. Timusk and B. Statt, *Rep. Prog. Phys.* **62**, 61 (1999).
- [116] P. Bourges, L. P. Regnault, Y. Sidis, and C. Vettier, *Physical Review B* **53**, 876 (1996).
- [117] H. F. Fong, P. Bourges, Y. Sidis, L. P. Regnault, A. Ivanov, G. D. Gu, N. Koshizuka, and B. Keimer, *Nature* **398**, 588 (1999).
- [118] H. He, P. Bourges, Y. Sidis, C. Ulrich, L. P. Regnault, S. Pailh s, N. S. Berzigiarova, N. N. Kolesnikov, and B. Keimer, *Science* **295**, 1045 (2002).
- [119] S. M. Hayden, H. A. Mook, P. Dai, T. G. Perring, and F. Dogan, *Nature* pp. 531–534 (2004).
- [120] P. Bourges, Y. Sidis, H. F. Fong, L. P. Regnault, J. Bossy, A. Ivanov, , and B. Keimer, *Science* **288**, 1234 (2000).
- [121] C. Stock, W. J. L. Buyers, R. Liang, D. Peets, Z. Tun, D. Bonn, W. N. Hardy, and R. J. Birgeneau, *Physical Review B* **69**, 014502 (2004).
- [122] C. Stock, W. J. L. Buyers, R. A. Cowley, P. S. Clegg, R. Coldea, C. D. Frost, R. Liang, D. Peets, D. Bonn, W. N. Hardy, et al., *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* **71**, 024522 (pages 18) (2005), URL <http://link.aps.org/abstract/PRB/v71/e024522>.
- [123] P. Dai, H. A. Mook, R. D. Hunt, and F. Dođan, *Physical Review B* **63**, 054525 (2001).
- [124] P. Bourges, *Habilitation   diriger des recherches* (2003).

- 
- [125] C. Renner, B. Revaz, J.-Y. Genoud, K. Kadowaki, and O. Fischer, *Physical Review Letters* **80**, 149 (1998).
- [126] B. Bucher, P. Steiner, J. Karpinski, E. Kaldis, and P. Wachter, *Physical Review Letters* **70**, 2012 (1993).
- [127] H. Y. Hwang, B. Batlogg, H. Takagi, H. L. Kao, J. Kwo, R. J. Cava, J. J. Krajewski, and W. F. Peck, *Physical Review Letters* **72**, 2636 (1994).
- [128] Y. Ando, S. Komiyama, K. Segawa, S. Ono, and Y. Kurita, *Physical Review Letters* **93**, 267001 (2004).
- [129] D. N. Basov, R. Liang, B. Dabrowski, D. A. Bonn, W. N. Hardy, and T. Timusk, *Physical Review Letters* **77**, 4090 (1996).
- [130] A. V. Puchkov, D. N. Basov, and T. Timusk, *Journal of Physics : Condensed Matter* **8**, 10049 (1996), URL <http://stacks.iop.org/0953-8984/8/10049>.
- [131] M. R. Norman, H. Ding, J. C. C. M. Randeria, T. Yokoya, T. Takeuchi, T. Takahashi, T. Mochiku, K. Kadowaki, P. Guptasarma, and D. G. Hinks, *Nature* **392**, 157 (1998).
- [132] A. Kanigel, M. R. Norman, M. Randeria, U. Chatterjee, S. Souma, A. Kaminski, H. M. Fretwell, S. Rosenkranz, M. Shi, T. Sato, et al., *Nature Physics* **2**, 447 (2006).
- [133] K. Tanaka, W. S. Lee, D. H. Lu, A. Fujimori, T. Fujii, Risdiana, I. Terasaki, D. J. Scalapino, T. P. Devereaux, Z. Hussain, et al., *Science* **314**, 1910 (2006).
- [134] G. Deutscher, *Nature* **397**, 410 (1999).
- [135] M. L. Tacon, A. Sacuto, A. Georges, G. Kotliar, Y. Gallais, D. Colson, and A. Forget, *Nature Physics* **2**, 537 (2006).
- [136] P. Coleman, *Nature* **392**, 134 (1998).
- [137] J. Orenstein and A. J. Millis, *Science* **288**, 468 (2000).
- [138] D. S. Marshall, D. S. Dessau, A. G. Loeser, C.-H. Park, A. Y. Matsuura, J. N. Eckstein, I. Bozovic, P. Fournier, A. Kapitulnik, W. E. Spicer, et al., *Physical Review Letters* **76**, 4841 (1996).
- [139] B. Kyung, S. S. Kancharla, D. Senechal, A.-M. S. Tremblay, M. Civelli, and G. Kotliar, *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* **73**, 165114 (pages 6) (2006), URL <http://link.aps.org/abstract/PRB/v73/e165114>.
- [140] W.-Q. Chen, K.-Y. Yang, T. M. Rice, and F. C. Zhang, arXiv :0706.3556 (2007).
- [141] S. Chakravarty, R. B. Laughlin, D. K. Morr, and C. Nayak, *Physical Review B* **63**, 094503 (2001).
- [142] J. Lin and A. J. Millis, *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* **72**, 214506 (pages 9) (2005), URL <http://link.aps.org/abstract/PRB/v72/e214506>.
- [143] J. L. Tallon, J. W. Loram, G. V. M. Williams, J. R. Cooper, I. R. Fisher, J. D. Johnson, M. P. Staines, and C. Bernhard, arXiv :9911157 **215**, 531 (1999).

- [144] J. L. Tallon and J. W. Loram, *Physica C* **349**, 53 (2001).
- [145] P. W. Anderson, *Mater. Res. Bull.* **8** (1973).
- [146] P. Fazekas and P. W. Anderson, *Phil. Mag* **30** (1974).
- [147] P. W. Anderson, *Science* **235**, 1196 (1987).
- [148] G. Kotliar and J. Liu, *Physical Review B* **38**, 5142 (1988).
- [149] N. Nagaosa and P. A. Lee, *Physical Review B* **45**, 966 (1992).
- [150] M. R. Norman and C. Pépin, *Reports on Progress in Physics* **66**, 1547 (2003), URL <http://stacks.iop.org/0034-4885/66/1547>.
- [151] M. Randeria, arXiv :9710223 (1997).
- [152] V. J. Emery and S. A. Kivelson, *Nature* **374**, 434 (1995).
- [153] J. Zaanen, *Science* **286**, 251 (1999).
- [154] V. J. Emery, S. A. Kivelson, and J. M. Tranquada, *Proc Natl Acad Sci U S A.* **96**, 8814 (1999).
- [155] J. M. Tranquada, B. J. Sternlieb, J. D. Axe, Y. Nakamura, and S. Uchida, *Nature* **375**, 561 (1995).
- [156] M. Fujita, H. Goka, K. Yamada, and M. Matsuda, *Physical Review Letters* **88**, 167008 (2002).
- [157] S.-W. Cheong, G. Aeppli, T. E. Mason, H. Mook, S. M. Hayden, P. C. Canfield, Z. Fisk, K. N. Clausen, and J. L. Martinez, *Physical Review Letters* **67**, 1791 (1991).
- [158] H. A. Mook, P. Dai, F. Dogan, and R. D. Hunt, *Nature* **404**, 729 (2000).
- [159] V. Hinkov, S. Pailh es, P. Bourges, Y. Sidis, A. Ivanov, A. Kulakov, C. T. Lin, D. P. Chen, C. Bernhard, and B. Keimer, *Nature* **430**, 650 (2004).
- [160] V. Hinkov, D. Haug, B. Fauqu e, P. Bourges, Y. Sidis, A. Ivanov, C. Bernhard, C. T. Lin, , and B. Keimer, *Science* **319**, 597 (2008).
- [161] V. Hinkov, P. Bourges, S. Pailh es, Y. Sidis, A. Ivanov, C. D. Frost, T. G. Perring, C. T. Lin, D. P. Chen, and B. Keimer, *Nature* **430**, 650 (2004).
- [162] B. Fauque, Y. Sidis, V. Hinkov, S. Pailhes, C. T. Lin, X. Chaud, and P. Bourges, *Physical Review Letters* **96**, 197001 (pages 4) (2006), URL <http://link.aps.org/abstract/PRL/v96/e197001>.
- [163] C. M. Varma, *Physical Review Letters* **83**, 3538 (1999).
- [164] J. Xia, E. Schemm, G. Deutscher, S. A. Kivelson, D. A. Bonn, W. N. Hardy, R. Liang, W. Siemons, G. Koster, M. M. Fejer, et al., *Physical Review Letters* **100**, 127002 (pages 4) (2008), URL <http://link.aps.org/abstract/PRL/v100/e127002>.
- [165] D. van der Marel, H. J. A. Molegraaf, J. Zaanen, Z. Nussinov, F. Carbone, A. Damascelli, H. Eisaki, M. Greven, P. H. Kes, and M. Li, *Nature* **425**, 271 (2003).



- 
- [166] T. Valla, A. V. Fedorov, P. D. Johnson, B. O. Wells, S. L. Hulbert, Q. Li, G. D. Gu, and N. Koshizuka, *Science* **285**, 2110 (1999).
- [167] A. Zitouni, *Plans de cryostats* (2008).
- [168] W. Y. Liang, *J. Phys. : Condens. Matter* **10**, 11365 (1998).
- [169] J. Jorgensen, S. Pei, P. Lightfoot, H. Shi, A. Paulikas, and B. Veal, *Physica C* **167**, 571 (1990).
- [170] Y. Ando, K. Segawa, S. Komiya, and A. N. Lavrov, *Physical Review Letters* **88**, 137005 (2002).
- [171] M. L. Sutherland, Ph.D. thesis, University of Toronto (2004).
- [172] M. v. Zimmermann, J. R. Schneider, T. Frello, N. H. Andersen, J. Madsen, M. Käll, H. F. Poulsen, R. Liang, P. Dosanjh, and W. N. Hardy, *Physical Review B* **68**, 104515 (2003).
- [173] J. D. Jorgensen, S. Pei, P. Lightfoot, H. Shi, A. P. Paulikas, , and B. W. Veal, *Physica C* **167** (1990).
- [174] H. F. Poulsen, N. H. Andersen, J. V. Andersen, H. Bohr, , and O. G. Mouritsen, *Nature* **349** (1991).
- [175] A. Erba, E. Walkera, and R. Flükigera, *Physica C* **245**, 245 (1995).
- [176] A. Erba, E. Walkera, and R. Flükiger, *Physica C* **258**, 9 (1996).
- [177] D. A. B. Ruixing Liang and W. N. Hardy, *Physica C* **336**, 57 (2000).
- [178] S. Adachia, K. Nakanishia, K. Tanabea, K. Nozawab, H. Takagib, W. Z. Huc, and M. Izumic, *Physica C* **301**, 3 (1998).
- [179] R. Liang, D. A. Bonn, and W. N. Hardy, *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* **73**, 180505 (pages 4) (2006), URL <http://link.aps.org/abstract/PRB/v73/e180505>.
- [180] C. Jaudet, D. Vignolles, A. Audouard, J. Levallois, D. LeBoeuf, N. Doiron-Leyraud, B. Vignolle, M. Nardone, A. Zitouni, R. Liang, et al., *Physical Review Letters* **100**, 187005 (pages 4) (2008), URL <http://link.aps.org/abstract/PRL/v100/e187005>.
- [181] J. Wosnitzer, S. Wanka, J. Hagel, E. Balthes, N. Harrison, J. A. Schlueter, A. M. Kini, U. Geiser, J. Mohtasham, R. W. Winter, et al., *Physical Review B* **61**, 7383 (2000).
- [182] N. E. Hussey, K. Nozawa, H. Takagi, S. Adachi, and K. Tanabe, *Physical Review B* **56**, R11423 (1997).
- [183] E. A. Yelland, J. Singleton, C. H. Mielke, N. Harrison, F. F. Balakirev, B. Dabrowski, and J. R. Cooper, *Physical Review Letters* **100**, 047003 (pages 4) (2008), URL <http://link.aps.org/abstract/PRL/v100/e047003>.
- [184] J. M. Harris, Y. F. Yan, O. K. C. Tsui, Y. Matsuda, and N. P. Ong, *Physical Review Letters* **73**, 1711 (1994).

- [185] A. T. Dorsey, *Physical Review B* **46**, 8376 (1992).
- [186] N. B. Kopnin, B. I. Ivlev, and V. A. Kalatsky, *Journal of Low Temperature Physics* **90** (1993).
- [187] L. Li, Y. Wang, M. Naughton, S. Komiya, S. Ono, Y. Ando, and N. Ong, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **310**, 460 (2007).
- [188] F. Rullier-Albenque, H. Alloul, C. Proust, P. Lejay, A. Forget, and D. Colson, *Physical Review Letters* **99**, 027003 (pages 4) (2007), URL <http://link.aps.org/abstract/PRL/v99/e027003>.
- [189] L. Taillefer, *communication privée* (2008).
- [190] Y. Wang, N. P. Ong, Z. A. Xu, T. Kakeshita, S. Uchida, D. A. Bonn, R. Liang, and W. N. Hardy, *Physical Review Letters* **88**, 257003 (2002).
- [191] R. Bel, H. Jin, K. Behnia, J. Flouquet, and P. Lejay, *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* **70**, 220501 (pages 4) (2004), URL <http://link.aps.org/abstract/PRB/v70/e220501>.
- [192] C. M. Fowler, B. L. Freeman, W. L. Hults, J. C. King, F. M. Mueller, and J. L. Smith, *Physical Review Letters* **68**, 534 (1992).
- [193] G. Kido, K. Komorita, H. Katayama-Yoshida, and T. Takahashi, *J. Phys. Chem. Solids* **52**, 1465 (1991).
- [194] E. G. Haanappel, W. Joss, I. D. Vagner, P. Wyder, K. Trübenbach, H. Mattausch, A. Simon, F. M. Mueller, and S. Askenazy, *J. Phys. Chem. Solids* **209**, 39 (1993).
- [195] M. Springford, N. Harrison, P. Meeson, and P.-A. Probst, *Physical Review Letters* **69**, 2453 (1992).
- [196] W. E. Pickett, *Rev. Mod. Phys.* **61**, 433 (1989).
- [197] E. Bascones, T. M. Rice, A. O. Shorikov, A. V. Lukoyanov, and V. I. Anisimov, *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* **71**, 012505 (pages 4) (2005), URL <http://link.aps.org/abstract/PRB/v71/e012505>.
- [198] I. S. Elfimov, G. A. Sawatzky, and A. Damascelli, *Physical Review B* **77**, 060504 (2008).
- [199] O. K. Andersen, A. I. Liechtenstein, O. Jepsen, and F. Paulsen, *Journal of Physics and Chemistry of Solids* **56**, 1573 (1995).
- [200] D. H. Lu, D. L. Feng, N. P. Armitage, K. M. Shen, A. Damascelli, C. Kim, F. Ronning, Z.-X. Shen, D. A. Bonn, R. Liang, et al., *Physical Review Letters* **86**, 4370 (2001).
- [201] A. Damascelli, Z. Hussain, and Z.-X. Shen, *Rev. Mod. Phys.* **75**, 473 (2003).
- [202] A. F. Bangura, J. D. Fletcher, A. Carrington, J. Levallois, M. Nardone, B. Vignolle, P. J. Heard, N. Doiron-Leyraud, D. LeBoeuf, L. Taillefer, et al., *Physical Review Letters* **100**, 047004 (pages 4) (2008), URL <http://link.aps.org/abstract/PRL/v100/e047004>.

- [203] K. M. Shen, F. Ronning, D. H. Lu, F. Baumberger, N. J. C. Ingle, W. S. Lee, W. Meevasana, Y. Kohsaka, M. Azuma, M. Takano, et al., *Science* **307**, 901 (2005).
- [204] J. M. Harris, P. J. White, Z.-X. Shen, H. Ikeda, R. Yoshizaki, H. Eisaki, S. Uchida, W. D. Si, J. W. Xiong, Z.-X. Zhao, et al., *Physical Review Letters* **79**, 143 (1997).
- [205] T. Yoshida, X. J. Zhou, T. Sasagawa, W. L. Yang, P. V. Bogdanov, A. Lanzara, Z. Hussain, T. Mizokawa, A. Fujimori, H. Eisaki, et al., *Physical Review Letters* **91**, 027001 (2003).
- [206] J. Chang, Y. Sassa, S. Guerrero, M. Mansson, M. Shi, S. Pailhes, A. Bendounan, R. Mottl, T. Claesson, O. Tjernberg, et al., arXiv :0805.0302 (2008).
- [207] P. Aebi, J. Osterwalder, P. Schwaller, L. Schlapbach, M. Shimoda, T. Mochiku, and K. Kadowaki, *Physical Review Letters* **72**, 2757 (1994).
- [208] A. Mans, I. Santoso, Y. Huang, W. K. Siu, S. Tavaddod, V. Arpiainen, M. Lindroos, H. Berger, V. N. Strocov, M. Shi, et al., *Physical Review Letters* **96**, 107007 (pages 4) (2006), URL <http://link.aps.org/abstract/PRL/v96/e107007>.
- [209] J. Axe and M. Crawford, *Journal of Low Temperature Physics* **95**, 271 (1994).
- [210] M. A. Hossain, J. D. F. Mottershead, D. Fournier, A. Bostwick, J. L. McChesney, E. Rotenberg, R. Liang, W. N. Hardy, G. A. Sawatzky, I. S. Elfimov, et al., *Nature Physics* **4**, 527 (2008).
- [211] S. Chakravarty, C. Nayak, and S. Tewari, *Physical Review B* **68**, 100504 (2003).
- [212] L. B. Rigal, D. C. Schmadel, H. D. Drew, B. Maiorov, E. Osquiguil, J. S. Preston, R. Hughes, and G. D. Gu, *Physical Review Letters* **93**, 137002 (2004).
- [213] S. R. Julian and M. R. Norman, *Nature* **447**, 537 (2007).
- [214] T. D. Stanescu and G. Kotliar, *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* **74**, 125110 (pages 6) (2006), URL <http://link.aps.org/abstract/PRB/v74/e125110>.
- [215] T. C. Hsu, J. B. Marston, and I. Affleck, *Physical Review B* **43**, 2866 (1991).
- [216] N. Harrison, R. D. McDonald, and J. Singleton, *Physical Review Letters* **99**, 206406 (pages 4) (2007), URL <http://link.aps.org/abstract/PRL/v99/e206406>.
- [217] F. F. Balakirev, J. B. Betts, A. Migliori, S. Ono, Y. Ando, and G. S. Boebinger, *Nature* **424**, 912 (2003).
- [218] F. F. Balakirev, J. B. Betts, A. Migliori, I. Tsukada, Y. Ando, and G. S. Boebinger, arXiv :0710.4612 (2007).
- [219] D. Huntley and R. Frindt, *Can. J. Phys.* **52**, 861 (1974).
- [220] K. Segawa and Y. Ando, *Physical Review B* **69**, 104521 (2004).
- [221] R. Gagnon, C. Lupien, and L. Taillefer, *Physical Review B* **50**, 3458 (1994).

- [222] N. E. Hussey, K. Nozawa, H. Takagi, S. Adachi, and K. Tanabe, *Physical Review B* **56**, R11423 (1997).
- [223] S. Horii, H. Takagi, H. Ikuta, N. E. Hussey, I. Hirabayashi, and U. Mizutani, *Physical Review B* **66**, 054530 (2002).
- [224] R. Bel, K. Behnia, and H. Berger, *Physical Review Letters* **91**, 066602 (2003).
- [225] A. P. Mackenzie, N. E. Hussey, A. J. Diver, S. R. Julian, Y. Maeno, S. Nishizaki, and T. Fujita, *Physical Review B* **54**, 7425 (1996).
- [226] T. Noda, H. Eisaki, and S. ichi Uchida, *Science* **286**, 265 (1999).
- [227] T. Adachi, T. Noji, and Y. Koike, *Physical Review B* **64**, 144524 (2001).
- [228] T. Pereg-Barnea, P. J. Turner, R. Harris, G. K. Mullins, J. S. Bobowski, M. Raudsepp, R. Liang, D. A. Bonn, and W. N. Hardy, *Physical Review B* **69**, 184513 (2004).
- [229] D. M. Broun, W. A. Huttema, P. J. Turner, S. Ozcan, B. Morgan, R. Liang, W. N. Hardy, and D. A. Bonn, *Physical Review Letters* **99**, 237003 (pages 4) (2007), URL <http://link.aps.org/abstract/PRL/v99/e237003>.
- [230] J. W. Loram, J. Luo, J. R. Cooper, W. Y. Liang, and J. L. Tallon, *Journal of Physics and Chemistry of Solids* **62**, 59 (2001).
- [231] A. J. Millis and M. R. Norman, *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* **76**, 220503 (pages 4) (2007), URL <http://link.aps.org/abstract/PRB/v76/e220503>.
- [232] S. E. Sebastian, N. Harrison, E. Palm, T. P. Murphy, C. H. Mielke, R. Liang, D. A. Bonn, and W. N. H. . G. G. Lonzarich1, *Nature* **454**, 200 (2008).
- [233] A. P. Mackenzie and Y. Maeno, *Rev. Mod. Phys.* **75**, 657 (2003).
- [234] R. S. Note, H. Shishido, S. Ikeda, Y. Murakawa, M. Nakashima, D. Aoki, Y. Haga, H. Harima, and Y. Onuki, *J. Phys. : Condens. Matter* **13** (2001).
- [235] J. W. Loram, K. A. Mirza, J. R. Cooper, and W. Y. Liang, *Physical Review Letters* **71**, 1740 (1993).
- [236] J. Mesot, M. R. Norman, H. Ding, M. Randeria, J. C. Campuzano, A. Paramakanti, H. M. Fretwell, A. Kaminski, T. Takeuchi, T. Yokoya, et al., *Physical Review Letters* **83**, 840 (1999).
- [237] X. J. Zhou, T. Yoshida, A. Lanzara, P. V. Bogdanov, S. A. Kellar, K. M. Shen, W. L. Yang, F. Ronning, T. Sasagawa, T. Kakeshita, et al., *Nature* **423**, 398 (2003).
- [238] T. Yoshida, X. J. Zhou, D. H. Lu, S. Komiya, Y. Ando, H. Eisaki, T. Kakeshita, S. Uchida, Z. Hussain, Z.-X. Shen, et al., *J. Phys. : Condens. Matter* **19** (2007).
- [239] M. Abdel-Jawad, M. P. Kennett, L. Balicas, A. Carrington, A. P. Mackenzie, R. H. McKenzie, and N. E. Hussey, *Nature Physics* **2**, 821 (2006).
- [240] P. Li, F. F. Balakirev, and R. L. Greene, *Physical Review Letters* **99**, 047003 (pages 4) (2007), URL <http://link.aps.org/abstract/PRL/v99/e047003>.

- [241] N. P. Armitage, F. Ronning, D. H. Lu, C. Kim, A. Damascelli, K. M. Shen, D. L. Feng, H. Eisaki, Z.-X. Shen, P. K. Mang, et al., *Physical Review Letters* **88**, 257001 (2002).
- [242] W.-Q. Chen, K.-Y. Yang, T. M. Rice, and F. C. Zhang, *EPL (Europhysics Letters)* **82**, 17004 (5pp) (2008), URL <http://stacks.iop.org/0295-5075/82/17004>.
- [243] G.-q. Zheng, W. G. Clark, Y. Kitaoka, K. Asayama, Y. Kodama, P. Kuhns, and W. G. Moulton, *Physical Review B* **60**, R9947 (1999).
- [244] G. qing Zhenga, H. Ozakia, Y. Kitaokaa, W. Clarkb, Y. Kodamac, T. Kondod, Y. Shimakawad, Y. Kubod, P. Kuhnse, A. Reyese, et al., *Physica C* **364–365**, 458 (2001).
- [245] S. Chakravarty and H.-Y. Kee, arXiv :0710.0608 (2007).
- [246] T. Ando, *Journal of the Physical Society of Japan* **37**, 1233 (1974).
- [247] X. Jia, I. Dimov, P. Goswami, and S. Chakravarty, arXiv :0806.3793 (2008).
- [248] J. Lin and A. J. Millis, arXiv :0807.0071 (2008).
- [249] P. Gegenwart, Q. Si, and F. Steglich, *Nature Physics* **4**, 186 (2008).
- [250] J. Custers, P. Gegenwart, H. Wilhelm, K. Neumaier, Y. Tokiwa, O. Trovarelli, C. Geibel, F. Steglich, C. Pépin, and P. Coleman, *Nature* **424**, 524 (2003).
- [251] S. Paschen, T. L $\tilde{A}$  $\frac{1}{4}$ hmann, S. Wirth, P. Gegenwart, O. Trovarelli, C. Geibel, F. Steglich, P. Coleman, and Q. Si, *Nature* **432**, 881 (2004).
- [252] T. Senthil, arXiv :0803.4009 (2008).
- [253] I. Dimov, P. Goswami, X. Jia, and S. Chakravarty, arXiv :0807.4202 (2008).
- [254] T. T. M. Palstra, A. A. Menovsky, J. v. d. Berg, A. J. Dirkmaat, P. H. Kes, G. J. Nieuwenhuys, and J. A. Mydosh, *Physical Review Letters* **55**, 2727 (1985).
- [255] K. Hiebl, C. Horvath, and P. R. M. J. Sienko, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **37**, 287 (1983).
- [256] H. Amitsuka, K. Matsuda, I. Kawasaki, K. Tenya, M. Yokoyama, C. Sekine, N. Tateiwa, T. Kobayashi, S. Kawarazaki, and H. Yoshizawag, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **320**, 214 (2007).
- [257] H. Ikeda and Y. Ohashi, *Physical Review Letters* **81**, 3723 (1998).
- [258] P. Chandra, P. Coleman, , J. A. Mydosh, and V. Tripathi, *Physical Review Letters* **417**, 831 (2002).
- [259] A. Kiss and P. Fazekas, *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* **71**, 054415 (pages 10) (2005), URL <http://link.aps.org/abstract/PRB/v71/e054415>.
- [260] P. Santini and G. Amoretti, *Physical Review Letters* **73**, 1027 (1994).
- [261] F. J. Ohkawa and H. Shimizu, *J. Phys. : Condens. Matter* **11**, 519 (1999).

- [262] V. Barzykin and L. P. Gor'kov, *Physical Review Letters* **70**, 2479 (1993).
- [263] H. Harima, *communication privée* (2008).
- [264] C. R. Wiebe, J. A. Janik, G. J. Macdougall, G. M. Luke, J. D. Garrett, H. D. Zhou, Y.-J. Jo, L. Balicas, Y. Qiu, J. R. D. Copley, et al., *Nature Physics* **3**, 1 (2007).
- [265] C. Broholm, J. K. Kjems, W. J. L. Buyers, P. Matthews, T. T. M. Palstra, A. A. Menovsky, and J. A. Mydosh, *Physical Review Letters* **58**, 1467 (1987).
- [266] F. Bourdarot, B. Fåk, K. Habicht, and K. Prokeš, *Physical Review Letters* **90**, 067203 (2003).
- [267] A. Villaume, F. Bourdarot, E. Hassinger, S. Raymond, V. Taufour, D. Aoki, and J. Flouquet, arXiv :0805.0672 (2008).
- [268] E. Hassinger, G. Knebel, K. Izawa, P. Lejay, B. Salce, and J. Flouquet, *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* **77**, 115117 (pages 9) (2008), URL <http://link.aps.org/abstract/PRB/v77/e115117>.
- [269] H. Amitsuka, M. Sato, N. Metoki, M. Yokoyama, K. Kuwahara, T. Sakakibara, H. Morimoto, S. Kawarazaki, Y. Miyako, and J. A. Mydosh, *Physical Review Letters* **83**, 5114 (1999).
- [270] V. P. Mineev and M. E. Zhitomirsky, *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* **72**, 014432 (pages 10) (2005), URL <http://link.aps.org/abstract/PRB/v72/e014432>.
- [271] S. Takagi, S. Ishihara, S. Saitoh, H. ichiro Sasaki, H. Tanida, M. Yokoyama, , and H. Amitsuka, *J. Phys. Soc. Jpn* **76** (2007).
- [272] K. Matsuda, Y. Kohori, T. Kohara, H. Amitsuka, K. Kuwahara, and T. Matsumoto, *Journal of Physics : Condensed Matter* **15**, 2363 (2003), URL <http://stacks.iop.org/0953-8984/15/2363>.
- [273] M. Yokoyama, H. Amitsuka, K. Tenya, K. Watanabe, S. Kawarazaki, H. Yoshizawa, and J. A. Mydosh, *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* **72**, 214419 (pages 9) (2005), URL <http://link.aps.org/abstract/PRB/v72/e214419>.
- [274] K. Bakker, A. de Visser, A. A. Menovsky, and J. J. M. Franse, *Physica B* **186**, 720 (1993).
- [275] K. H. Kim, N. Harrison, M. Jaime, G. S. Boebinger, and J. A. Mydosh, *Physical Review Letters* **91**, 256401 (2003).
- [276] K. Sugiyama, H. Fuke, K. Kindo, K. Shimohata, A. A. Menovsky, J. A. Mydosh, and M. Date, *J. Phys. Soc. Jpn* **59**, 3331 (1990).
- [277] M. Jaime, K. H. Kim, G. Jorge, S. McCall, and J. A. Mydosh, *Physical Review Letters* **89**, 287201 (2002).
- [278] A. Suslov, J. B. Ketterson, D. G. Hinks, D. F. Agterberg, and B. K. Sarma, *Physical Review B* **68**, 020406 (2003).

- [279] N. Harrison, M. Jaime, and J. A. Mydosh, *Physical Review Letters* **90**, 096402 (2003).
- [280] H. Ohkuni, Y. Inada, Y. Tokiwa, K. Sakurai, R. Settai, T. Honma, Y. Haga, E. Yamamoto, H. Yamagami, S. Takahashi, et al., *Philosophical Magazine Part B* **79**, 1045 (1999).
- [281] Y. J. Jo, L. Balicas, C. Capan, K. Behnia, P. Lejay, J. Flouquet, J. A. Mydosh, and P. Schlottmann, *Physical Review Letters* **98**, 166404 (pages 4) (2007), URL <http://link.aps.org/abstract/PRL/v98/e166404>.
- [282] C. Bergemann, S. R. Julian, G. J. McMullan, B. K. Howard, G. G. Lonzarich, P. Lejay, J. P. Brison, and J. Flouquet, *Physica B : Condensed Matter* **230–232**, 348 (1997).
- [283] H. Shishido, *Poster at the 25th international conference on Low Temperature Physics* (2008).
- [284] T. T. M. Palstra, A. A. Menovsky, and J. A. Mydosh, *Physical Review B* **33**, 6527 (1986).
- [285] J. Schoenes, C. Schönenberger, J. J. M. Franse, and A. A. Menovsky, *Physical Review B* **35**, 5375 (1987).
- [286] Y. Kasahara, T. Iwasawa, H. Shishido, T. Shibauchi, K. Behnia, Y. Haga, T. D. Matsuda, Y. Onuki, M. Sigrist, and Y. Matsuda, *Physical Review Letters* **99**, 116402 (pages 4) (2007), URL <http://link.aps.org/abstract/PRL/v99/e116402>.
- [287] Y. S. Oh, K. H. Kim, P. A. Sharma, N. Harrison, H. Amitsuka, and J. A. Mydosh, *Physical Review Letters* **98**, 016401 (pages 4) (2007), URL <http://link.aps.org/abstract/PRL/v98/e016401>.
- [288] R. Bel, H. Jin, K. Behnia, J. Flouquet, and P. Lejay, *Physical Review B* **70**, 220501 (2004).
- [289] R. Bel, Thèse de doctorat, Université Paris 7 Denis Diderot (2004).
- [290] K. Behnia, R. Bel, Y. Kasahara, Y. Nakajima, H. Jin, H. Aubin, K. Izawa, Y. Matsuda, J. Flouquet, Y. Haga, et al., *Physical Review Letters* **94**, 156405 (pages 4) (2005), URL <http://link.aps.org/abstract/PRL/v94/e156405>.
- [291] R. Bel, K. Behnia, Y. Nakajima, K. Izawa, Y. Matsuda, H. Shishido, R. Settai, and Y. Onuki, *Physical Review Letters* **92**, 217002 (2004).
- [292] A. Pourret, K. Behnia, D. Kikuchi, Y. Aoki, H. Sugawara, and H. Sato, *Physical Review Letters* **96**, 176402 (pages 4) (2006), URL <http://link.aps.org/abstract/PRL/v96/e176402>.
- [293] H. Kontani, *J. Phys. Soc. Jpn* **73**, 515 (2004).
- [294] N. E. Hussey, *J. Phys. Soc. Jpn* **74**, 1107 (2005).
- [295] A. Pourret, K. Behnia, D. Kikuchi, Y. Aoki, H. Sugawara, , and H. Sato, *J. Phys. Soc. Jpn Suppl. A* **77**, 102 (2008).
- [296] K. Behnia, *Communication privée* (2008).

- [297] H. Aoki, S. Uji, A. K. Albessard, and Y. Ōnuki, *Physical Review Letters* **71**, 2110 (1993).
- [298] S. V. Kusminskiy, K. S. D. Beach, A. H. C. Neto, and D. K. Campbell, *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* **77**, 094419 (pages 9) (2008), URL <http://link.aps.org/abstract/PRB/v77/e094419>.
- [299] N. Doiron-Leyraud, C. Proust, D. LeBoeuf, J. Levallois, J.-B. Bonnemaïson, R. Liang, D. A. Bonn, W. N. Hardy, and L. Taillefer, *Nature* **447**, 565 (2007).
- [300] D. LeBoeuf, N. Doiron-Leyraud, J. Levallois, R. Daou, J.-B. Bonnemaïson, N. E. Hussey, L. Balicas, B. J. Ramshaw, R. Liang, D. A. Bonn, et al., *Nature* **450**, 533 (2007).
- [301] J. Levallois, K. Behnia, J. Flouquet, P. Lejay, and C. Proust, arXiv :0809.4715 (2008).