



HAL
open science

Surface de Fermi et ordres électroniques dans les supraconducteurs non-conventionnels

Vincent Oliviero

► **To cite this version:**

Vincent Oliviero. Surface de Fermi et ordres électroniques dans les supraconducteurs non-conventionnels. Supraconductivité [cond-mat.supr-con]. Université Toulouse 3 Paul Sabatier, 2023. Français. NNT: . tel-04169094v1

HAL Id: tel-04169094

<https://hal.science/tel-04169094v1>

Submitted on 23 Jul 2023 (v1), last revised 7 Sep 2023 (v2)

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.



THÈSE

En vue de l'obtention du
DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE
Délivré par l'Université Toulouse 3 - Paul Sabatier

Présentée et soutenue par
Vincent OLIVIERO

Le 27 mars 2023

**Surface de Fermi et ordres électroniques dans les
supraconducteurs non-conventionnels.**

Ecole doctorale : **SDM - SCIENCES DE LA MATIERE - Toulouse**

Spécialité : **Physique de la Matière**

Unité de recherche :

LNCMI - Laboratoire National des Champs Magnétiques Intenses

Thèse dirigée par

Cyril PROUST et David VIGNOLLES

Jury

Mme Elena HASSINGER, Rapporteur

M. Yvan SIDIS, Rapporteur

Mme Catherine PÉPIN, Examinatrice

M. Cyril PROUST, Directeur de thèse

M. David VIGNOLLES, Co-directeur de thèse

M. Nicolas LAFLORENCIE, Président

À ma mère,

Remerciements

Ce manuscrit de thèse marque la fin de mon parcours d'apprentissage de la recherche qui a été rendu possible grâce à la contribution et aux retours critiques des membres de la communauté scientifique.

Pour commencer, je tiens donc à remercier mes deux rapporteur.e.s de thèse, Elena Hassinger et Yvan Sidis pour leurs commentaires et corrections. Merci à Yvan pour ces discussions si intéressantes, qui, je l'espère, m'inspireront dans la suite de mon parcours.

Merci ensuite à mes examinateur.rice.s Catherine Pépin et Nicolas Lafflorencie pour la relecture du manuscrit et merci à Nicolas d'avoir endossé le rôle de président du jury dans le contexte particulier de la soutenance.

Évidemment, je tiens aussi à remercier chaleureusement mes directeurs de thèse, Cyril Proust et David Vignolles de m'avoir offert cette opportunité d'apprendre la recherche à leurs côtés. Merci aussi de m'avoir permis de vivre tant d'expériences enrichissantes : conférences, écoles d'été, doctoriales, enseignements ... Je tiens aussi à vous témoigner ma reconnaissance pour votre accompagnement pendant les moments difficiles de la thèse, notamment pendant la période du Covid. Merci Cyril, pour tout le temps passé à m'enseigner l'analyse, à me guider dans la littérature, à discuter physique, et à me montrer les bonnes directions. Merci David de m'avoir tant accompagné en manip, mais aussi pour ta disponibilité, pour ton écoute de mes nombreuses questions (aussi farfelues soient-elles), et merci de m'avoir ouvert les portes de l'INSA pour l'enseignement.

Je souhaite aussi remercier les nombreuses autres personnes qui ont contribué à chaque étape de ce long parcours.

Tout d'abord, merci à Siham Benhabib d'avoir initié les mesures TDO dans Hg-1223 et d'y avoir mesuré les premières oscillations quantiques. Je te remercie aussi d'avoir pris le temps de discuter avec moi et de tes conseils.

Thanks to Ildar Guilmotdinov for helping me at the beginning of my PhD and providing me with useful advices. I truly enjoyed the time spent experimenting with you and all the discussions about physics.

Merci à D. Colson, A. Forget, A.P. Mackenzie et Y. Maeno de nous avoir fourni des échantillons de si bonne qualité.

Merci à Baptiste Vignolle pour les scénarios de reconstructions de surfaces de Fermi.

Merci Nicolas Bruyant, pour toutes ces discussions et pour ton investissement sur le TDO. Au-delà du contexte professionnel, je te remercie pour tout ton soutien pendant la thèse, que ce soit au labo, en montage, ou à vélo ... Tu m'as aussi ouvert la porte du laboratoire pour fabriquer des masques pendant le confinement du covid, merci encore pour ça.

Merci Marc pour ta disponibilité et pour cette expérience mémorable box 15 où l'on a suivi

la transition supercritique de l'hélium avec un manomètre, un thermomètre et un chrono. Merci Aziz de ton aide en manip et de ta bonne humeur, j'espère que tu feras du laboratoire un endroit tout connecté, on est au 21e siècle quand même !

Merci Jérôme d'avoir toujours été disponible à chaque doute sur la pick-up ou à chaque erreur du générateur, mais aussi pour ta pédagogie avec les comparaisons de l'énergie du générateur à des tablettes de chocolat ou des éléphants qui courent.

Merci Stéphane d'avoir été au chevet de mon ordinateur pendant la rédaction.

Merci Catherine, Cécile et Séverine de votre aide aux états de frais et ordres de missions. Catherine, ça a été super de t'avoir en voisine de bureau !

Merci à Sven, Tristan Thebault, et Jonathan Agil pour votre aide à la préparation de soutenance. Tristan et Johnathan, c'était cool de partager l'expérience de thèse avec vous, bon courage à toi Jonathan pour la rédaction, et à toi Tristan pour les mesures Box 13 !

Merci Banan de ton aide en début de thèse et pour ta bonne humeur.

Merci Prosper de m'avoir formé à mon arrivée au laboratoire, on va se boire un coup quand tu veux !

En parlant de boire un coup, je tiens à remercier Maxime Madzoudz...dljsdegan. Ton arrivée au laboratoire a marqué un tournant pour moi dans la thèse et m'a redonné le sourire. Finalement, deux cons dans un bureau valent mieux qu'un seul.

Pour finir, merci Maxime Leroux, Isaac, Emin, David Leboeuf, Anne Missiaen, Marie-Eve Boulanger, Clément Girod, Walter Escoffier, Renaud Mathevet et a William Knafo pour ces discussions physiques (ou pas) et de m'avoir accompagné à un moment ou un autre pendant ces 3 ans et demi de thèse.

Au-delà du travail de thèse, je pense être particulièrement chanceux d'être aussi bien entouré. Et je tiens à remercier ceux et celles qui sont venus me soutenir le jour de ma soutenance.

Merci à mes parents de m'avoir accompagné, malgré un parcours semé d'embûches, et de m'avoir soutenu pendant toutes ces années. Maman, je te dédie cette thèse, pour tous tes conseils, pour tout ton soutien, et pour ces moments où j'avais besoin d'aide pour me relever et avancer. Merci à toi Papa pour toutes ces expériences que tu nous as fait vivre étant enfant et qui m'ont donné goût aux sciences. Merci Pierrot, d'être là comme un père, et de m'avoir tant inspiré et servi d'exemple.

Merci Erwan d'être venu me soutenir jusque Toulouse.

Merci à Marion et Julie de votre présence en zoom, j'espère que Julie en gardera un bon souvenir !

Merci à Louis, Clément et Benjamin T. d'avoir fait le déplacement jusque Toulouse, votre arrivée le 27 au matin m'a fait un bien fou et a fait prendre à cette journée une autre tournure.

Merci à Benjamin M. et Pernel d'être venu depuis la Bretagne et pour votre si bon accueil à

chaque fois que je vous rends visite.

Je tiens aussi a remercier très chaleureusement Louis Merle et Kilian Gruel : je me sens très chanceux de vous avoir eu en soutien pendant la thèse (et aussi le master). Merci Merlichon pour tout ce CO₂ émis gratuitement entre le LPCNO et le resto CNRS, mais aussi de m'avoir initié à l'art de la conduite ; on a aussi pas mal parlé physique, on a dû en dire des conneries ! Merci Kiki pour ces discussions, ces bières, et ces quelques séances d'escalade. Dans l'attente d'une initiation chez les tout-nus !

Merci Ashley, déjà parce que tu voulais être dans les remerciements, mais surtout pour ces bons moments passés ensemble et cette complicité.

Merci à Cécile et Pascal Merle de m'avoir si bien accueilli pendant la rédaction, j'espère pouvoir vous rendre votre hospitalité et que l'on aura l'occasion de trinquer de nouveau ensemble.

Merci Alicia, tu as été une belle rencontre et un soutien pendant la fin de thèse, notamment en me révélant que je n'étais pas le seul à mettre du sucre dans la sauce bolognaise.

Merci Alexia pour ta positivité et ton aide pendant mon déménagement si hâtif.

Enfin merci à Nikolena, Anais, Luca, Loic et Hugo d'être venu me soutenir !

Pour conclure, je tiens a remercier mes amis de toujours.

Merci Élodie et Sarah pour la bouteille de champagne pour le petit mot de félicitations. Merci Abdou pour le coup de fil le soir de la soutenance. Merci à Louis, Clement, Benjamin, Clair-Marin, Myriam, Etienne, Justine, d'avoir été là pendant toutes ces années. Je me sens très chanceux d'avoir partagé tant de moments avec vous, et j'ai hâte d'en vivre de nouveaux.

Since this work represents not only an achievement but also the beginning of my research career, I would like to express my gratitude to Professor J.C. Séamus Davis for providing me with the opportunity to join his group in Cork.

Résumé

Depuis la fin des années soixante-dix, une supraconductivité non-conventionnelle a pu être observée dans de nombreux matériaux à fortes corrélations électroniques, où l'approximation des électrons indépendants n'est plus valable. Dans les oxydes de métaux de transition, comme les cuprates ou le ruthénate de strontium (Sr_2RuO_4), le mécanisme de la supraconductivité est encore débattu, notamment le rôle de la forte répulsion coulombienne et de la basse dimensionnalité. Les corrélations peuvent aussi induire des transitions de phases que les expériences de transport électronique et d'oscillations quantiques permettent de sonder en mesurant la surface de Fermi. Dans le chapitre 1, j'introduirai les concepts de corrélations électroniques et certaines théories, notamment celle de Lifshitz-Kosevich traitant des oscillations quantiques.

Pour accéder à l'état normal et réaliser des mesures de transport à basse température, il est nécessaire de détruire la supraconductivité en appliquant un champ magnétique. Ces conditions sont réalisées au LNCMI dont l'installation sera décrite au chapitre 2. Je présenterai aussi les techniques expérimentales utilisées, notamment une méthode de mesure de résistivité sans contact appelée oscillateur à diode tunnel (TDO). Une partie de mon travail de thèse a permis d'augmenter la sensibilité de ce dispositif expérimental.

Ces améliorations ont conduit à l'observation de nouvelles fréquences dans le spectre des oscillations quantiques de Sr_2RuO_4 . Ces résultats seront présentés dans le chapitre 3. Dans ce composé, les calculs de structure de bandes montrent l'importance du couplage spin-orbite, qui distord la surface de Fermi et rapproche les bandes α et γ dans l'espace réciproque. Cet effet rend plus probable le phénomène de rupture magnétique dans les expériences sous champ intense. Nos observations de nouvelles fréquences s'interprètent comme une conséquence de la rupture magnétique entre les deux bandes. Une estimation du gap sera discutée pour la première fois à partir de mesures d'oscillations quantiques.

Contrairement à Sr_2RuO_4 , l'état normal du diagramme de phase des cuprates supraconducteurs dopés en trou n'est que partiellement connu. Cela est dû aux nombreux ordres en compétition qui reconstruisent la surface de Fermi ainsi qu'à une supraconductivité robuste qui limite l'accessibilité à l'état normal. La situation est aussi complexifiée par la présence du pseudogap, une phase énigmatique qui gap certaines portions de la surface de Fermi. Après presque 40 ans de recherche, l'implication de ces phases dans le mécanisme de la supraconductivité est encore débattue, alimentant abondamment la littérature dans ce domaine : le chapitre 4 est donc dédié à une revue de la bibliographie du domaine.

Le cuprate Hg-1223 appartient à la famille des cuprates multicouches et possède le record de température critique (133 K au dopage optimal). Alors qu'une signature d'un ordre de charge a récemment été observée en spectroscopie Raman dans Hg-1223 sous dopé, les cuprates multicouches sont aussi connus pour posséder une large phase antiferromagnétique,

stabilisée à fort dopage par le couplage inter-plan. Dans le chapitre 5, nous proposons une première étude de l'état normal à basse température de Hg-1223 sous-dopé ($p = 8-9\%$). Le spectre complexe des oscillations quantiques et l'effet Hall positif sont interprétés à l'aide d'un scénario de coexistence entre ordre de charge et antiferromagnétisme dans différents plans de la cellule unité.

Ce résultat contraste avec celui obtenu à plus fort dopage ($p = 10 - 11 \%$) décrit dans le chapitre 6, où nos mesures de transport mettent en évidence pour la première fois une transition de phase en fonction de la température dans un cuprate. Celle-ci se manifeste par un changement de signe de l'effet Hall et une modification du spectre des oscillations quantiques en fonction de la température. Nous discuterons plusieurs scénarios pour tenter de comprendre cette reconstruction de la surface de Fermi.

Summary

Since the late 1970s unconventional superconductivity has been observed in many strongly correlated materials, where the free electron approximation is no longer valid. In transition metal oxides, such as cuprates or strontium ruthenate (Sr_2RuO_4), the mechanism of superconductivity is still debated, especially the role of strong Coulomb repulsion and low dimensionality. The correlations can also induce phase transitions that electronics transport experiments and quantum oscillations can probe by Fermi surface measurements. In the 1st chapter, I will introduce the concepts of electronic correlations and some theories, especially the Lifshitz-Kosevich theory of quantum oscillations.

To access the normal state and perform transport measurements at low temperatures, it is necessary to destroy superconductivity by applying a magnetic field. These conditions are realised at the LNCMI, whose facility will be described in chapter 2. I will also present experimental techniques, including a contactless resistivity measurement technique called the Tunnel Diode Oscillator (TDO). Part of my work allowed to increase the sensitivity of this device.

These improvements have led to the observation of new frequencies in the quantum oscillation spectrum of Sr_2RuO_4 . The results will be presented in chapter 3. In this compound, band structure calculations show the importance of spin-orbit coupling, which distorts the Fermi surface and brings the α and γ bands closer in the reciprocal space. This effect makes magnetic breakdown more likely in high-field experiments. Our observations of new frequencies are interpreted as a consequence of the magnetic breakdown between the two bands. An estimation of the gap will be discussed for the first time from quantum oscillations measurements.

Contrary to Sr_2RuO_4 , the normal state of hole-doped cuprates is just partially known. This is due to numerous competing orders that reconstruct the Fermi surface and to the robustness of superconductivity that limits the access to the normal state. The situation is also complicated by the presence of the pseudogap, an enigmatic phase that gaps part of the Fermi surface. After almost 40 years of research, the role of these phases in the mechanism of superconductivity is still debated, chapter 4 is thus dedicated to a review of the bibliography in this field.

The cuprate Hg-1223 belongs to the family of multilayers cuprates and hold the record of critical temperature (133 K at optimum doping). While charge order signature has recently been observed in Raman spectroscopy in underdoped Hg-1223, multilayers cuprates are also known to possess a large antiferromagnetic phase, stabilised at high doping by inter-plane coupling. In chapter 5, we propose a first study of the normal state of underdoped Hg-1223 ($p = 8-9\%$). The complex spectrum of quantum oscillations and the positive Hall effect are interpreted in a scenario of coexistence between charge order and antiferromagnetism in dif-

ferent planes of the unit cell.

This result contrasts with the one obtained at higher doping ($p = 10-11\%$), described in the chapter 6, where our measurements show for the first time a phase transition as function of temperature in cuprate. This is evidenced by a sign change of the Hall coefficient and a modification of the quantum oscillations spectrum as function of temperature. We will discuss several scenarios to attempt to understand this Fermi surface reconstruction.

Table des matières

1	Introduction et rappels	1
1.1	Supraconductivité	3
1.1.1	Supraconductivité conventionnelle	3
1.1.2	Supraconductivité non-conventionnelle	8
1.2	Corrélations électroniques	10
1.2.1	Les oxydes de métaux de transition	10
1.2.2	Théorie des liquides de Fermi	12
1.2.3	Instabilités électroniques	14
1.3	Rappels de Magnétotransport	18
1.3.1	Modèle à une bande	19
1.3.2	Modèle à deux bandes	20
1.4	Oscillations quantiques	20
1.4.1	Quantification sous champ magnétique	21
1.4.2	Le phénomène d'oscillations quantiques	24
1.4.3	Les facteurs de réduction	26
1.4.4	Extraction des paramètres physiques	28
1.4.5	Rupture magnétique et interférences quantiques	31
2	Techniques expérimentales	37
2.1	Environnement expérimental	39
2.1.1	Génération de champs magnétiques pulsés	39
2.1.2	Cryogénie	41
2.1.3	Canne et rack de mesure	42
2.1.4	Protection des utilisateurs	43
2.2	Mesure de transport	44
2.2.1	Préparation et mesure des échantillons	44
2.2.2	Chaîne d'acquisition et lock-in numérique	45
2.3	L'oscillateur à diode Tunnel	45
2.3.1	Présentation de la technique TDO	46

2.3.2	Amélioration du rapport signal/bruit	52
	Conclusion	60
3	Interférences quantiques dans Sr_2RuO_4	63
3.1	Présentation du composé	65
3.1.1	Surface de Fermi	65
3.1.2	Gap entre les poches γ et α	67
3.2	Nouvelles fréquences d'oscillations quantiques	70
3.2.1	Oscillations quantiques	70
3.2.2	Analyse du spectre	71
3.2.3	Rupture magnétique et interférences quantiques	73
3.3	Mesure du gap	80
3.3.1	Fréquence α : analyse du tracé de Dingle	80
3.3.2	Calcul du gap et comparaison à l'ARPES	83
3.4	Discussion	84
	Conclusion	85
4	Revue de la littérature des cuprates	87
4.1	Le composé parent	89
4.1.1	Structure cristalline	89
4.1.2	Structure électronique et surface de Fermi	89
4.1.3	Isolant de Mott antiferromagnétique	92
4.1.4	Le modèle de Hubbard à trois bandes : modèle $d - p$	94
4.1.5	Effet du dopage dans les cuprates	95
4.2	Le diagramme de phase des cuprates	97
4.2.1	Le liquide de Fermi à fort dopage	99
4.2.2	Le métal étrange	100
4.2.3	Le pseudogap	102
4.2.4	La phase antiferromagnétique et onde de densité de spin	107
4.2.5	L'ordre de charge	110
4.2.6	La supraconductivité	120
4.3	Quelques théories de la supraconductivité dans les cuprates	122
4.3.1	Paires préformées	123
4.3.2	Point quantique critique	124
4.3.3	Fluctuations AFM	126
4.3.4	Liquide de Fermi fractionnalisé (FL*)	127
	Conclusion	128

5	Ordre de charge et antiferromagnétisme dans Hg-1223	129
5.1	Les cuprates multicouches	131
5.1.1	Quelques propriétés des cuprates multicouches	131
5.1.2	L'ordre antiferromagnétique	133
5.1.3	Le composé Hg-1223	136
5.2	Mesures de transport dans Hg-1223 sous-dopé	138
5.2.1	Oscillations quantiques	138
5.2.2	Effet Hall	145
5.2.3	Comparaison avec Hg-1201	146
5.3	Scénario de surface de Fermi	147
5.3.1	Calculs de structure de bandes	147
5.3.2	Modèles de reconstruction	148
5.4	Discussion	154
	Conclusion	155
6	Transition de phase dans Hg-1223	157
6.1	Signatures d'une transition de phase	159
6.1.1	Changement de signe de l'effet Hall	159
6.1.2	Changement du spectre des oscillations quantiques	162
6.2	Modèle de surface de Fermi	166
6.2.1	Surface de Fermi haute température	166
6.2.2	Surface de Fermi basse température	167
	Conclusion	175
	Conclusion générale	177

Chapitre 1

Introduction et rappels

Sommaire

1.1	Supraconductivité	3
1.1.1	Supraconductivité conventionnelle	3
1.1.2	Supraconductivité non-conventionnelle	8
1.2	Corrélations électroniques	10
1.2.1	Les oxydes de métaux de transition	10
1.2.2	Théorie des liquides de Fermi	12
1.2.3	Instabilités électroniques	14
1.3	Rappels de Magnétotransport	18
1.3.1	Modèle à une bande	19
1.3.2	Modèle à deux bandes	20
1.4	Oscillations quantiques	20
1.4.1	Quantification sous champ magnétique	21
1.4.2	Le phénomène d'oscillations quantiques	24
1.4.3	Les facteurs de réduction	26
1.4.4	Extraction des paramètres physiques	28
1.4.5	Rupture magnétique et interférences quantiques	31

1.1 Supraconductivité

La supraconductivité est un phénomène quantique macroscopique qui se manifeste en dessous d'une température critique T_c par une résistivité électrique nulle et une expulsion du flux magnétique. Son origine est l'appariement des électrons en paires (appelées paires de Cooper), qui, en se condensant, forment un état quantique macroscopique. L'interaction attractive capable de lier deux électrons peut être médiée par exemple, par l'échange de phonons qui est à l'origine de la supraconductivité dite "conventionnelle" décrite par la théorie BCS. Mais l'interaction a une origine différente (et probablement pas unique) dans les supraconducteurs non-conventionnels découverts il y a plus de 40 ans et dont la température critique est, pour certains, à mi-chemin de la température ambiante.

1.1.1 Supraconductivité conventionnelle

La supraconductivité conventionnelle a été découverte en 1911 par H. K. Onnes dans le mercure. Elle a d'abord été discutée dans un cadre phénoménologique avec, par exemple, le formalisme de Maxwell ou la théorie de Landau des transitions de phase. Ces théories ont permis de définir des grandeurs mesurables et de caractériser ce nouvel état électronique. La découverte de l'effet isotopique a ensuite pointé que le mécanisme à l'origine de la supraconductivité était liée à l'interaction électron-phonon. Au final, il aura fallu attendre plus de 50 ans après la découverte de H. K. Onnes pour qu'une théorie microscopique explique convenablement la supraconductivité conventionnelle.

Approches phénoménologiques

Une première théorie phénoménologique développée¹ par les frères London se basa sur la propriété d'un supraconducteur à expulser le champ magnétique pour lui associer une grandeur caractéristique mesurable appelée longueur de pénétration de London [1]. Le modèle de London définit cette longueur comme la longueur caractéristique nécessaire à écranter le champ magnétique dans un supraconducteur, elle s'exprime par :

$$\lambda_L = \sqrt{\frac{m}{\mu_0 n_s e^2}} \quad (1.1)$$

Avec m , e et n_s la masse, la charge et la densité dite superfluide, et μ_0 la perméabilité magnétique du vide.

Près de 20 ans plus tard, l'application de la théorie de Landau des transitions de phases au

1. Son développement est similaire au modèle de Drude, mais considère que les porteurs ne subissent aucune force de friction (conducteur parfait). Pour tenir compte du diamagnétisme parfait, London reconsidéra aussi les équations de Maxwell en liant directement la densité de courant au champ magnétique, plutôt qu'à sa dérivée temporelle.

problème de la supraconductivité rencontra un franc succès. Comme la transition de phase supraconductrice est du second ordre en température, il existe, selon la théorie de Landau, un paramètre d'ordre qui évolue continûment de la phase désordonnée (de plus haute(s) symétrie(s)) à la phase ordonnée (de plus basse(s) symétrie(s)). Dans leur théorie, Ginzburg et Landau introduisent un paramètre d'ordre complexe $\psi(\mathbf{r})$ tel que $|\psi(\mathbf{r})|^2$ représente la densité locale superfluide $n_s(\mathbf{r})$. Proche de la transition, l'énergie libre se décompose en puissance du paramètre d'ordre :

$$f = f_{n0} + \alpha|\psi|^2 + \frac{\beta}{2}|\psi|^4 + \frac{1}{2m^*} \left| \left(\frac{\hbar}{i} \nabla - \frac{e^*}{c} \mathbf{A} \right) \psi \right|^2 + \frac{\hbar^2}{8\pi} \quad (1.2)$$

Avec f_{n0} l'énergie libre dans l'état normal et \hbar la constante de Planck réduite. La minimisation de l'énergie libre f dans le cas où aucun champ n'est appliqué (i.e. $|\left(\frac{\hbar}{i} \nabla - \frac{e^*}{c} \mathbf{A}\right) \psi|^2 = 0$) permet de faire émerger une deuxième longueur caractéristique, la longueur de cohérence :

$$\xi = \xi_0 \left(\frac{T_c}{T_c - T} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (1.3)$$

Le coefficient ξ_0 , représente la longueur de cohérence dans la limite $T \rightarrow 0^2$. La théorie de Landau permet aussi de calculer la dépendance en température de la longueur de pénétration de London, qui, proche de la transition, varie en $(T_c - T)^{-1/2}$. Ainsi, proche de la transition supraconductrice, il existe un paramètre constant appelé rapport de Ginzburg Landau :

$$\kappa = \frac{\lambda}{\xi} \quad (1.4)$$

Le rapport de Ginzburg Landau fut repris dans les travaux d'Abrikosov pour distinguer deux familles de supraconducteurs dont le comportement varie sous champ magnétique. Suivant la valeur de son rapport de GL, un supraconducteur appartient à l'une ou l'autre des familles.

Lorsque $\kappa < \frac{1}{\sqrt{2}}$, le supraconducteur est de type I, il s'agit majoritairement des matériaux du tableau périodique (mercure, aluminium ...). Sous champ magnétique, une transition du type phase supraconductrice / état normal a lieu à un champ critique H_c qui tend vers zéro à mesure que l'on se rapproche de T_c (fig. 1.1.a). Les valeurs typiques de H_c n'excèdent pas 0.1 T. Dans le cas où le champ appliqué est inférieur à H_c , le supraconducteur expulse complètement le champ magnétique et est un diamagnétique parfait.

Lorsque $\kappa \geq \frac{1}{\sqrt{2}}$, le supraconducteur est de type II³ et possède deux champs critiques H_{c1} et H_{c2} qui tendent vers zéro lorsque $T \rightarrow T_c$ (fig. 1.1.b). Lorsque $0 < H < H_{c1}$, le supracon-

2. Son expression $\xi_0 = a \frac{\hbar v_F}{k T_c}$ fut calculée par Pippard à travers un traitement non-local du potentiel vecteur

3. Il s'agit majoritairement des alliages.

ducteur est dit en phase Meissner : son comportement est analogue aux supraconducteurs de type I avec une expulsion complète du champ magnétique. Lorsque $H_{c1} < H < H_{c2}$ il est en phase Shubnikov : il devient énergétiquement plus favorable de laisser pénétrer le champ magnétique sous forme de vortex, sans pour autant transiter vers l'état normal. Dans la phase Shubnikov, la résistivité nulle persiste, mais le supraconducteur n'est plus un diamagnétique parfait : les vortex contribuent à augmenter le flux magnétique à travers le supraconducteur et diminuent donc l'aimantation totale. Chaque vortex porte un quantum de flux magnétique $\phi_0 = \frac{h}{2e}$.

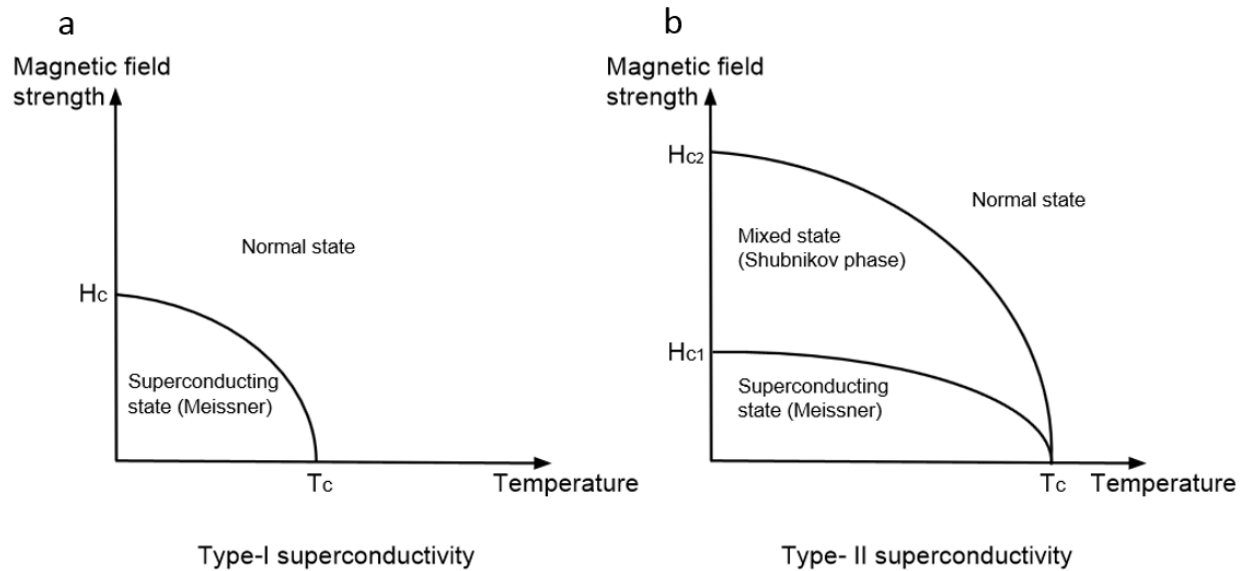


FIGURE 1.1 – Diagrammes de phase $H(T)$ des deux familles de supraconducteurs. [2].

L'expression du quantum de flux met en avant une propriété fondamentale de la supraconductivité : les particules concernées par la quantification possèdent une charge $-2e$, fait vérifié expérimentalement par la mesure de la quantification du flux dans l'étain [3].

Théorie microscopique de la supraconductivité

La recherche de l'origine microscopique de la supraconductivité s'accéléra en 1950 avec la découverte de l'effet isotopique dans le mercure [4]. Cet effet se manifeste par une dépendance en $M^{-\frac{1}{2}}$ de la température critique, avec M la masse isotopique de l'élément constituant le cristal⁴, et indique que les phonons jouent un rôle important dans le mécanisme de la supraconductivité. Quelques années plus tard, la décroissance exponentielle de la chaleur spécifique en-dessous de la température critique dans le Vanadium [5] apporte une indication de l'émergence d'un gap dans le spectre des excitations électroniques à la transition supraconductrice.

4. La dépendance en $M^{-\frac{1}{2}}$ est présente dans la relation de dispersion des phonons dans un cristal $\omega(\mathbf{k}) = \frac{C}{\sqrt{M}} |\sin(\frac{\mathbf{k}a}{2})|$, avec C une constante de couplage et a le pas du réseau.

Suites aux premières investigations théoriques de Fröhlich et Bardeen, Léon Cooper montre en 1956 que deux électrons à la surface de Fermi de vecteurs d'ondes $\pm k_F$ et spins opposés peuvent former un état lié s'il existe une interaction attractive entre eux [6]. Cooper introduit néanmoins une condition pour que cette interaction existe : les électrons mis en jeu dans le processus doivent se trouver dans un intervalle d'énergie de l'ordre de $\hbar\omega_D$ autour de la surface de Fermi, avec ω_D la fréquence de Debye. Ainsi, si cette condition est respectée, une paire d'électrons, appelée paire de Cooper existe, car sa formation représente un gain d'énergie Δ . Dans la supraconductivité dite conventionnelle, les paires de Cooper possèdent une symétrie s , c'est-à-dire sont dans un état singulet ($S = 0$) et possèdent un moment orbital nul ($L = 0$).

La généralisation du traitement de Cooper à l'ensemble des électrons à la surface de Fermi fut publiée un an plus tard dans un article historique présentant la théorie *BCS* (pour Bardeen, Cooper et Schrieffer). Elle explique à partir d'un modèle microscopique l'ensemble des observations expérimentales caractérisant la supraconductivité. Dans la théorie BCS, l'état fondamental est décrit par l'ansatz :

$$|\psi_G\rangle = \prod_{\mathbf{k}=\mathbf{k}_1, \dots, \mathbf{k}_M} (u_{\mathbf{k}} + v_{\mathbf{k}} c_{\mathbf{k}\uparrow}^\dagger c_{-\mathbf{k}\downarrow}^\dagger) |\phi_0\rangle \quad (1.5)$$

Avec $|\phi_0\rangle$ l'état du vide, $|v_{\mathbf{k}}|^2$ la probabilité qu'un état de paire ($\mathbf{k} \uparrow, -\mathbf{k} \downarrow$) soit occupé et $|u_{\mathbf{k}}|^2 = 1 - |v_{\mathbf{k}}|^2$ la probabilité qu'il soit inoccupé. L'énergie du système est donnée par l'Hamiltonien BCS :

$$H_{BCS} = \sum_{\mathbf{k}\sigma} \epsilon_{\mathbf{k}} n_{\mathbf{k}\sigma} + \sum_{\mathbf{k}\mathbf{l}\mathbf{q}} V_{\mathbf{k}\mathbf{l}} c_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\uparrow}^\dagger c_{-\mathbf{k}-\mathbf{q},\downarrow}^\dagger c_{-\mathbf{k},\downarrow} c_{\mathbf{k},\uparrow} \quad (1.6)$$

La première somme compte l'énergie cinétique des quasiparticules d'impulsion \mathbf{k} avec $n_{\mathbf{k}\sigma} = c_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger c_{\mathbf{k}\sigma}$ l'opérateur nombre de particules. La seconde somme représente le processus de formation des paires de Cooper illustré sur la figure 1.2. Au cours de ce processus, deux électrons dans un état $|\mathbf{k} \uparrow, -\mathbf{k} \downarrow\rangle$ s'échangent un phonon de vecteur d'onde \mathbf{q} . L'échange est réalisé sans changement d'impulsion totale et, l'état résultant est un état à deux électrons $|\mathbf{k} + \mathbf{q} \uparrow, -\mathbf{k} - \mathbf{q} \downarrow\rangle$. Le bilan énergétique est favorable si et seulement si l'énergie mise en jeu est de l'ordre de l'énergie de Debye (de l'ordre de la dizaine de meV) :

$$V_{\mathbf{k}\mathbf{l}} = \begin{cases} -V & \text{si } |\xi_{\mathbf{k}}| \text{ et } |\xi_{\mathbf{l}}| \leq \hbar\omega_D \\ 0 & \text{sinon.} \end{cases} \quad (1.7)$$

Ici, $\xi_{\mathbf{k},\mathbf{l}}$ est l'énergie à une particule relative à l'énergie de Fermi ($\xi_{\mathbf{k},\mathbf{l}} = \epsilon_{\mathbf{k},\mathbf{l}} - \mu$) et ω_D est la fréquence de Debye. Le potentiel attractif est défini de telle sorte qu'il s'applique à l'ensemble des électrons de la surface de Fermi : aucune dépendance en \mathbf{k} n'est considérée

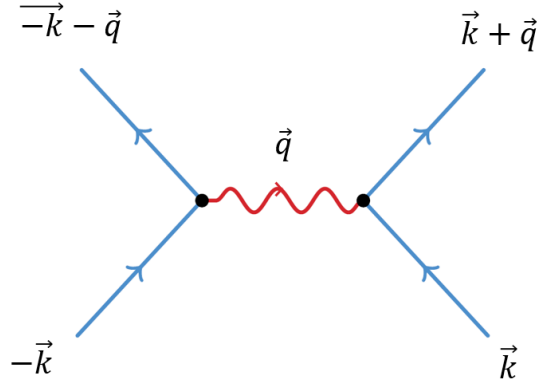


FIGURE 1.2 – Mécanisme d'appariement des électrons dans la théorie BCS : un état initial à deux électrons $|\mathbf{k} \uparrow, -\mathbf{k} \downarrow\rangle$ est diffusé à un état final $|\mathbf{k} + \mathbf{q} \uparrow, -\mathbf{k} - \mathbf{q} \downarrow\rangle$ par échange d'un phonon de vecteur d'onde \mathbf{q} .

pour le potentiel $-V$. Ainsi, en dessous de la température critique T_c , la théorie BCS prévoit l'ouverture d'un gap isotrope d'amplitude 2Δ . Dans la limite $T \rightarrow 0$ le gap est relié à la température critique par :

$$\Delta(0) = 1.764k_B T_c \quad (1.8)$$

avec

$$k_B T_c = 1.13 \hbar \omega_D e^{\frac{-1}{N(0)V}} \quad (1.9)$$

$N(0)$ est la densité d'états au niveau de Fermi, V le potentiel d'interaction et k_B la constante de Boltzmann. La relation (1.8) est valide dans un régime dit de couplage faible, c'est à dire $N(0)V \ll 1$. Le calcul de la dépendance en température du gap montre un bon accord avec l'expérience (Figure 1.3.a). Il permet aussi de reproduire les données de chaleur spécifique (Figure 1.3.b) avec la discontinuité à T_c et le terme résiduel nul à $T = 0$ en raison l'absence d'états au niveau de Fermi (gap isotrope).

Dans la théorie BCS, la température de transition est définie comme la température en dessous de laquelle le gap supraconducteur devient non-nul. Le gap Δ joue donc le même rôle que le paramètre d'ordre de la théorie de Ginzburg Landau. Comme le paramètre d'ordre est complexe et nul à $T > T_c$, l'état supraconducteur correspond à l'émergence d'une phase définie : au sens de Landau, la symétrie brisée à T_c est la symétrie de jauge $U(1)$. Au sens de la fonction d'onde de paire, la brisure de la jauge $U(1)$ correspond à l'émergence d'un moment angulaire orbital $L = 0$ [7]. L'interprétation microscopique de la brisure de la symétrie de Jauge est l'apparition d'une cohérence de phase entre les paires de Cooper. Comme les paires de Cooper possèdent un spin entier, la transition supraconductrice est donc analogue à une transition de Bose.

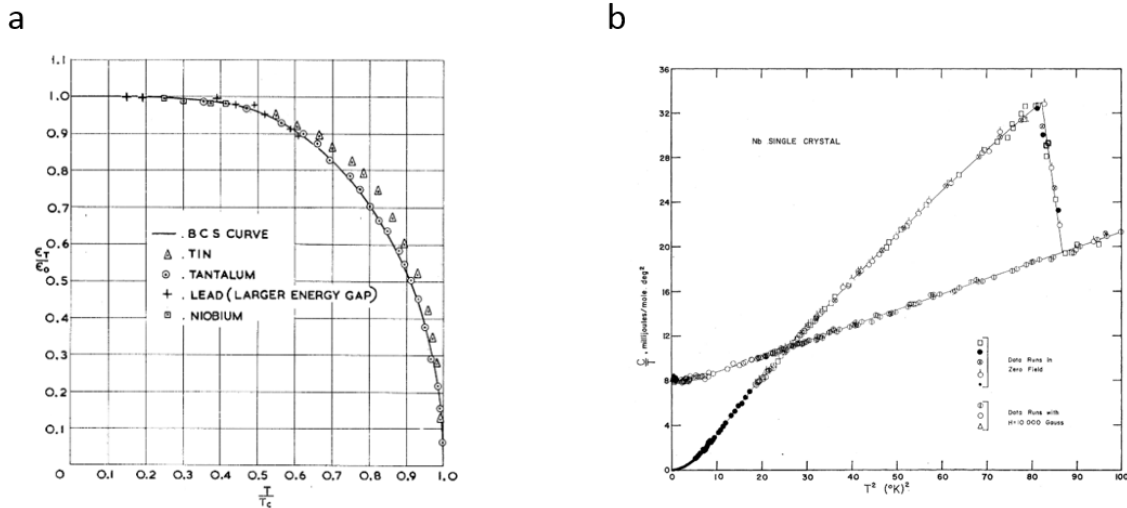


FIGURE 1.3 – a) Mesure du gap supraconducteur dans le plomb, l’étain, le tantale et le niobium en fonction de la température [8]. Les mesures sont en bon accord avec les prédictions faites par la théorie BCS (ligne continue). b) Dépendance en température de chaleur spécifique dans l’état normal ($H = 1$ T) et supraconducteur du Niobium [9]. En l’absence de champ, la discontinuité à T_c et l’absence de terme résiduel à $T = 0$ sont retrouvées dans le cadre de la théorie BCS.

La théorie BCS décrit la supraconductivité qui est due à l’appariement des électrons par l’intermédiaire des phonons, appelée aussi supraconductivité conventionnelle. Dans la supraconductivité conventionnelle, seule la symétrie de jauge $U(1)$ est brisée à la transition : le paramètre d’ordre (ou gap supraconducteur) est de symétrie s . La température critique de transition dépend de deux paramètres (équation (1.9)) :

- La fréquence de Debye ω_D : qui est d’autant plus grande que les masses ioniques sont faibles.
- La constante de couplage électron-phonon $N(0)V$: qui dépend de la densité d’état au niveau de Fermi. Ce terme sera donc d’autant plus élevé dans les matériaux à bandes étroites ou proches de transitions structurales.

Hormis les composés à base d’hydrogène sous très fortes pressions, la température critique maximum⁵ pour les supraconducteurs conventionnels s’établit entre 30 et 40 K [11].

1.1.2 Supraconductivité non-conventionnelle

Alors qu’en 1957 le livre de la supraconductivité s’était refermé, la découverte de nouveaux supraconducteurs montrant des déviations à la théorie BCS relança la recherche dans ce domaine (Figure 1.4).

5. Cette dernière a été atteinte dans MgB_2 avec $T_c \approx 40K$ [10].

D'abord, la supraconductivité fut observée dans CeCu_2Si_2 , un composé de la famille des fermions lourds ($T_c \approx 0.6$ K) en 1979 [12]. Les fermions lourds sont une classe de matériaux ayant les couches f partiellement remplies où siège souvent du magnétisme. On les appelle fermions lourds en raison des fortes corrélations électroniques qui renormalisent les masses électroniques jusqu'à plusieurs centaines de fois celle de l'électron libre. Ce fut la première observation d'un état supraconducteur en présence de telles interactions.

En 1980, une transition supraconductrice fut mesurée dans le composé organique $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ ($T_c \approx 0.9$ K) sous une pression hydrostatique de 12 kbar [13]. Les composés organiques appartiennent à la famille de matériaux de basse dimension, dont certains sont proches d'un ordre magnétique déstabilisé sous pression.

La découverte de la supraconductivité dans cuprates par Bednorz et Müller en 1986 [14] permit de faire un bond sans précédent en terme de températures critiques : la limite symbolique de la température de l'azote liquide est franchie en 1987 dans le composé YBCO ($T_c \approx 94$ K) [15]. Le composé parent des cuprates est pourtant très loin de ce que l'on attend d'un supraconducteur : c'est un très bon isolant avec un gap de transfert de charge de plusieurs eV, c'est le dopage en trous qui permet d'observer la phase supraconductrice.

Par la suite, les recherches de composés de structure cristalline similaire aux cuprates aboutissent notamment à la découverte de supraconductivité dans Sr_2RuO_4 en 1994 ($T_c \approx 1.5$ K) [16]. Ce composé est parfois appelé "la drosophile" des cuprates en raison de l'excellente qualité des mono-cristaux qui ont permis de caractériser avec grande précision son état normal. En 2008, les pnictures à base de fer [17] sont synthétisés et montrent aussi une supraconductivité non-conventionnelle ($T_c \approx 26$ K dans $\text{LaO}_{1-x}\text{Fe}_x\text{As}$) proche d'un ordre magnétique.

En Août 2019, les nickelates [18] font leur apparition sur scène ($T_c \approx 15$ K). Ils sont isostructuraux des cuprates et sont aussi le siège de fluctuations magnétiques.

Dans ces nouveaux matériaux, la supraconductivité est qualifiée de "non-conventionnelle" d'abord en raison des températures critiques élevées, mais surtout car la symétrie du gap supraconducteur n'est pas de type s : c'est une conséquence d'une brisure de symétrie additionnelle à la symétrie de jauge à la transition. Par exemple, le gap est de symétrie d dans les cuprates et s_{\pm} dans les supraconducteurs au Fer. Enfin, pour certains composés comme Sr_2RuO_4 , la symétrie du gap n'est pas encore clairement identifiée. Cette observation expérimentale indique que l'origine de l'appariement des électrons en paires de Cooper est autre que l'interaction électron-phonon. Par exemple, elle est supposée provenir des fluctuations magnétiques dans les supraconducteurs au fer [20] ou les organiques [21]. Elle est encore largement discutée dans les cuprates, ou le Sr_2RuO_4 qui font tout deux partie de la famille des oxydes de métaux de transitions.

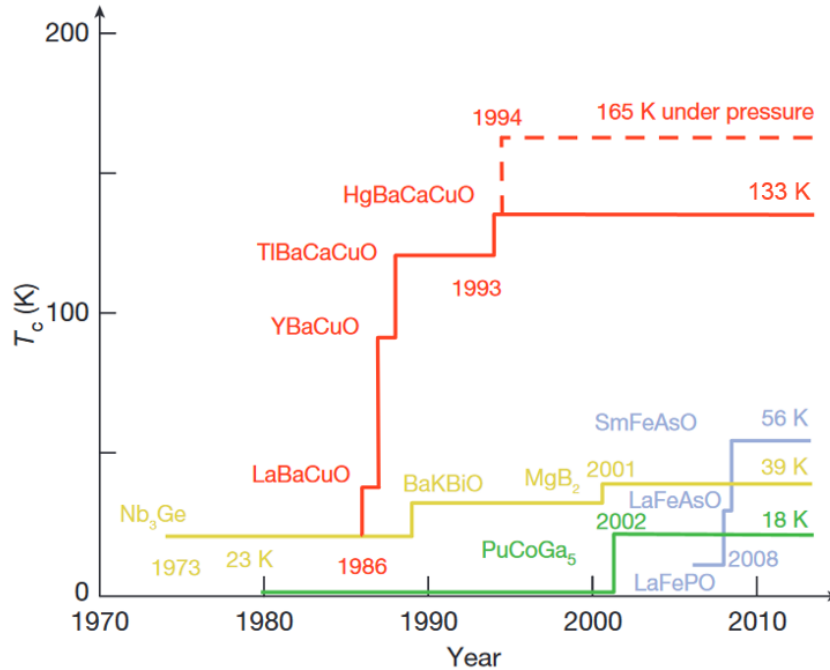


FIGURE 1.4 – Température critique de transition en fonction du temps. La ligne jaune correspond aux supraconducteurs conventionnels (à pression ambiante), avec un record établi à 39 K dans MgB₂. La famille des fermions lourds est représentée en vert et les supraconducteurs au fer en violet. Les cuprates (ligne rouge) sont les matériaux avec la plus haute température critique à pression ambiante qui atteint 133 K dans Hg-1223. Sous pression, elle atteint 165 K. Adaptée de [19].

1.2 Corrélations électroniques

L'étude de l'état normal des cuprates et de Sr₂RuO₄ doit être mise dans un contexte de fortes corrélations électroniques établis dans les oxydes de métaux de transition et couplé à la basse dimensionnalité. Dans un métal, une des conséquences des corrélations est la renormalisation de la masse des particules, décrite par la théorie de Landau des liquides de Fermi. À basse dimension, ces corrélations peuvent aussi amener à des transitions de phases liées au phénomène d'emboîtement de la surface de Fermi (nesting en anglais).

1.2.1 Les oxydes de métaux de transition

Les oxydes de métaux de transition sont le siège de fortes corrélations en raison de leurs orbitales d localisées qui forment des bandes étroites (faible recouvrement d'orbitales). La compétition résultante entre l'énergie cinétique et la répulsion coulombienne peut induire la proximité d'une phase isolante (pour une revue détaillée, voir [22]).

Dans ces composés les atomes de métaux de transition (couches d ou f) sont liés entre eux par des atomes d'oxygène. Leur physique est largement dominée par leurs couches d ou f

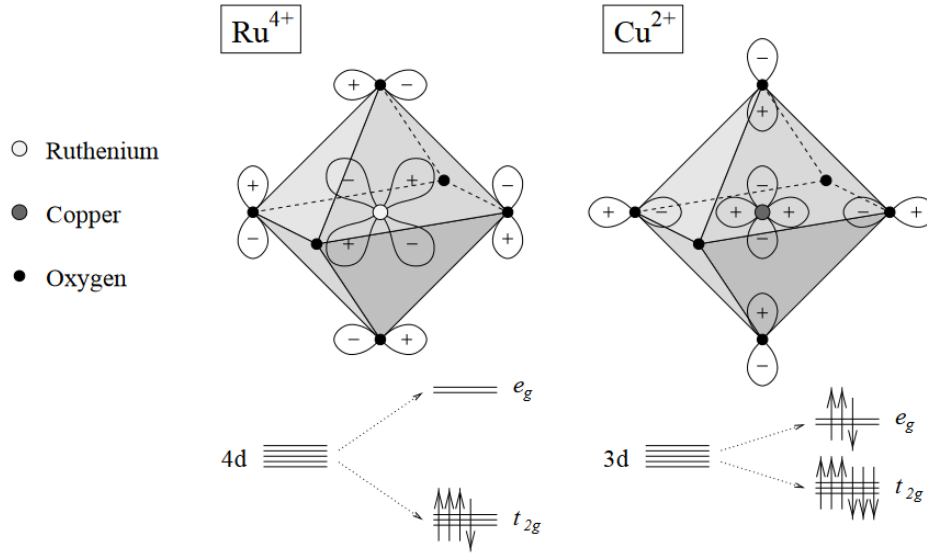


FIGURE 1.5 – Comparaison de la structure pérovskite de Sr_2RuO_4 et de La_2CuO_4 . La dégénérescence des orbitales d est levée par le champ cristallin en deux niveaux d'énergie e_g et t_{2g} . La nature de l'atome de transition est différente dans ces deux composés : la contribution aux propriétés de transport provient des sous-orbitales t_{2g} pour Sr_2RuO_4 et e_g pour $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. [23]

partiellement remplies dont la dégénérescence orbitale est levée par le champ cristallin. Par exemple dans les structures pérovskite comme dans le Sr_2RuO_4 ou La_2CuO_4 , la dégénérescence de l'orbitale d est levée en deux sous-orbitales e_g et t_{2g} (Figure 1.5) à partir desquelles la structure de bande peut être calculée. La localisation importante des sous-orbitales d nécessite une approche de liaisons fortes.

Dans un modèle de liaison forte, la largeur de bande W est proportionnelle au terme de saut t qui dépend du recouvrement des orbitales. Les orbitales d sont particulièrement localisées et leurs extensions spatiales est faible par rapport au pas du réseau. Cela génère un faible recouvrement des orbitales du cuivre et de l'oxygène, et donc, un faible terme de saut t (correspondant à une faible largeur de bande W).

L'importante localisation spatiale des orbitales d génère aussi une forte répulsion coulombienne pour deux électrons qui se trouvent sur la même orbitale, le terme de répulsion sur site U ne peut donc pas être négligé. Il est pris en compte dans le modèle de Hubbard qui inclut à la fois le terme de saut t et le coût U de la double occupation d'un même site :

$$H = -t \sum_{\langle i,j \rangle, \sigma} (c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + h.c.) + U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} \quad (1.10)$$

Le rapport U/t décrit l'intensité des corrélations entre électrons, il met en évidence un

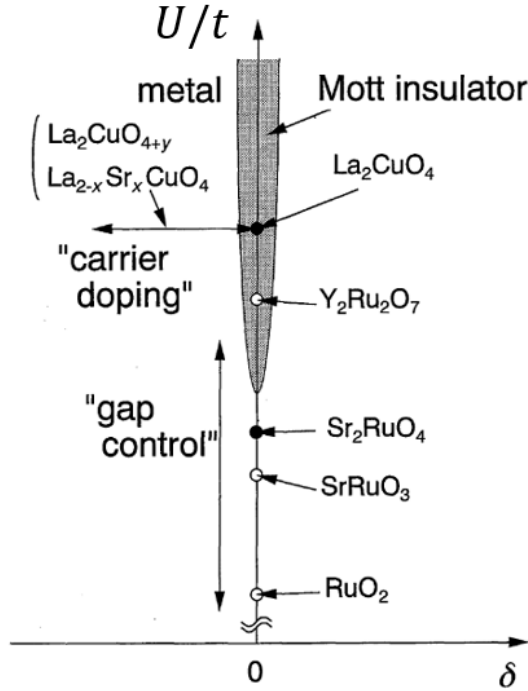


FIGURE 1.6 – Diagramme de phase montrant la ligne de transition metal-insolant en fonction du rapport U/t et du dopage δ . Le composé La_2CuO_4 a un rapport U/t plus grand que Sr_2RuO_4 et est isolant de Mott à zéro dopage ($\delta = 0$). Le caractère métallique peut être récupéré avec le dopage. Adaptée de [24]

aspect important des oxydes de métaux de transitions : ils peuvent transiter vers un état isolant à demi-remplissage (figure 1.6). Cette transition est liée au terme de coulomb U qui bloque le transport de charge lorsqu'il devient prédominant par rapport au terme d'énergie cinétique t . Par exemple, le composé parent des cuprates est un isolant avec un gap de transfert de charge de plusieurs eV, cet état isolant est appelé isolant de Mott. À l'inverse, le Sr_2RuO_4 est conducteur car le terme d'énergie cinétique domine.

Dans les cuprates et le Sr_2RuO_4 , la phase supraconductrice apparaît donc proche de la transition métal-insolant. Dans les cuprates, elle émerge en dopant le composé parent isolant de Mott. Une autre propriété à prendre en compte est leur faible dimensionnalité : ces composés sont principalement 2D, le transport étant dominé par les plans ab . Cela a tendance à augmenter les corrélations électroniques et induire des transitions de phase liées au phénomène de nesting.

1.2.2 Théorie des liquides de Fermi

Même en présence d'interactions, le concept d'électrons libres peut être conservé dans l'étude des matériaux à fortes corrélations. Cette approximation est décrite dans la théorie

des liquides de Fermi développée par Landau dans le cadre de l'étude des propriétés de l' ^3He à basse température [25]. Seuls les concepts généraux seront abordés dans ce manuscrit, mais le lecteur intéressé par cette théorie peut se référer aux réf. [26, 27].

L'état métallique de nombreux métaux est décrit convenablement dans l'approximation des électrons indépendants associée à la statistique de Fermi Dirac. L'état fondamental d'un métal à demi rempli (1 électron par site) est construit en remplissant tous les états d'impulsions de plus basse énergie de N électrons, avec N le nombre de sites total jusqu'à l'énergie de Fermi E_F . Dans l'espace des impulsions, il existe donc une limite entre les états vides et occupés, appelée Surface de Fermi (figure 1.8).

Les états excités sont créés en plaçant un électron dans un état d'impulsion $|\mathbf{k}, \sigma\rangle$ d'énergie supérieur à l'énergie de Fermi. Cette vision des états excités est basée sur l'approximation des électrons indépendants et permet de calculer et de prédire correctement les propriétés physiques de nombreux métaux telles que la susceptibilité, la chaleur spécifique ... Étonnamment, cette approche apporte une description correcte dans des systèmes où les interactions sont loin d'être négligeables.

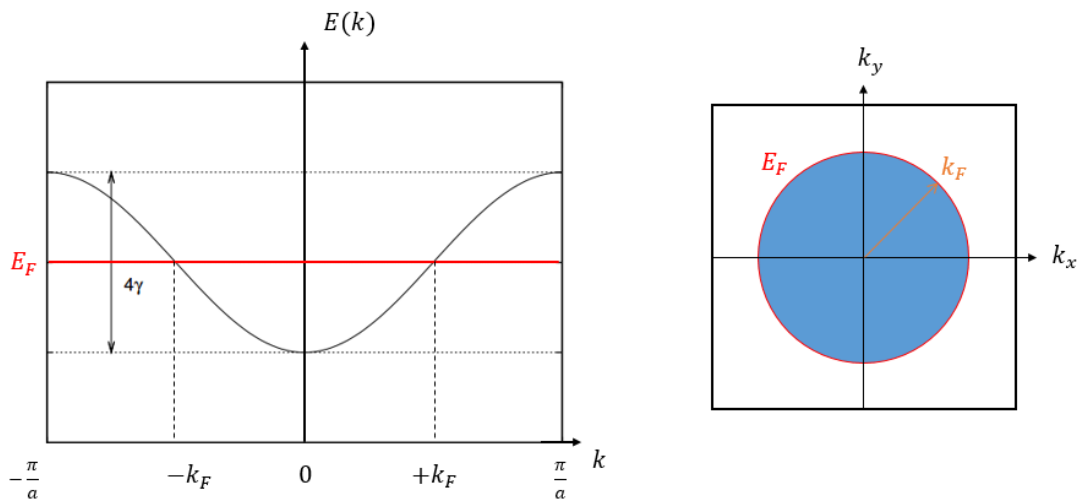


FIGURE 1.7 – Structure de Bande (1D) et surface de Fermi (2D) dans l'approximation des électrons indépendants. La statistique de Fermi Dirac impose que l'ensemble des états soit remplis jusqu'au niveau de Fermi d'énergie E_F .

Pour justifier la validité l'approximation des électrons indépendants, Landau considéra que, proche du niveau de Fermi, les états propres d'un système avec interaction conservent les mêmes nombres quantiques $|\mathbf{k}, \sigma\rangle$ que les états propres d'un système sans interaction. C'est une conséquence directe de l'approximation adiabatique : En raison du principe d'exclusion de Pauli et de la règle d'or de Fermi, le temps de relaxation dans la limite $T \rightarrow 0$ est réduit

en $\tau \propto (\varepsilon - \varepsilon_F)^{-2}$. Ainsi, lorsque $\varepsilon \rightarrow \varepsilon_F$, le temps de relaxation est suffisamment grand pour que l'on considère que les interactions soient branchées de manière adiabatique. Les nombres quantiques des électrons libres $|\mathbf{k}, \sigma\rangle$ peuvent donc être conservés, mais certaines propriétés sont renormalisées par les interactions : c'est la notion de quasiparticules [28]. Une conséquence directe de la réduction du taux diffusion est une dépendance quadratique de la résistivité en température. Pour un liquide de Fermi, la résistivité s'écrit :

$$\rho(T \rightarrow 0) = \rho_0 + AT^2 \quad (1.11)$$

Le coefficient A est proportionnel au carré de la masse effective des quasiparticules. Dans la théorie de Landau, la masse et les grandeurs thermodynamiques sont renormalisées par les interactions via les termes $F_1^{s,a}$ qui sont les paramètres fondamentaux de la théorie. La masse et la susceptibilité de spin s'écrivent alors :

$$\frac{m^*}{m} = \frac{C_v}{C_{v,0}} = 1 + \frac{1}{3}F_1^s \quad (1.12)$$

$$\frac{\chi}{\chi_0} = \frac{m^*}{m} \cdot \frac{1}{1 + F_0^a} \quad (1.13)$$

Pour caractériser un système corrélé, on peut utiliser le rapport de Wilson (sans dimension), qui correspond au rapport de la susceptibilité de Pauli sur le coefficient de Sommerfeld $R_W = \chi/\gamma_{el}$. R_W peut devenir très grand en présence d'interactions magnétiques, comme en approchant d'une transition ferromagnétique. Un autre nombre utilisé pour estimer les interactions est le rapport de Kadowaki-Woods [29] : $R_{KW} = A/\gamma^2$. Il est établi pour une large gamme de matériaux et est constant pour les métaux de transition.

Pour finir, la conservation du concept d'électrons libres induit que les mêmes quasiparticules contribuent au transport thermique et électrique. Ainsi, la loi de Wiedemann-Franz est toujours valable dans un liquide de Fermi dans la limite $T \rightarrow 0$:

$$\frac{\kappa}{\sigma T} = \frac{\pi^2 k_B^2}{3e^2} = L_0 \quad (1.14)$$

Avec κ la conductivité thermique, σ la conductivité électrique, e la charge de l'électron et $L_0 = 2.44 \times 10^{-8} W\Omega K^{-2}$ le nombre de Lorentz.

1.2.3 Instabilités électroniques

Les composés comme les cuprates ou le Sr_2RuO_4 sont fortement bidimensionnels, le transport est largement dominé par les plans ab . Les systèmes de basses dimensions peuvent être le siège d'instabilités électroniques qui engendrent des transitions de phase caractérisées par l'apparition spontanée d'ondes de densités [30].

Onde de densité de charge

Les ondes de densité de charge correspondent à la formation spontanée d'une modulation spatiale de la densité électronique, associée à une distorsion du réseau (figure 1.8.a). Il s'agit d'une brisure de symétrie de l'état métallique due à l'interaction électron-phonon.

Cette phase a d'abord été discutée théoriquement par Fröhlich et Peierls dans les années cinquante et fut découverte plus tard dans des composés 1D sous la forme d'une transition métal-isolant à basse température. Cette transition, appelée transition de Peierls, correspond à la formation spontanée d'une onde de densité de charge de vecteur d'onde $q = 2k_F$ qui ouvre un gap 2Δ au niveau de Fermi. Elle est accompagnée d'une distorsion périodique du réseau et d'une chute de la réponse des phonons à $q = 2k_F$, appelée anomalie de Kohn.

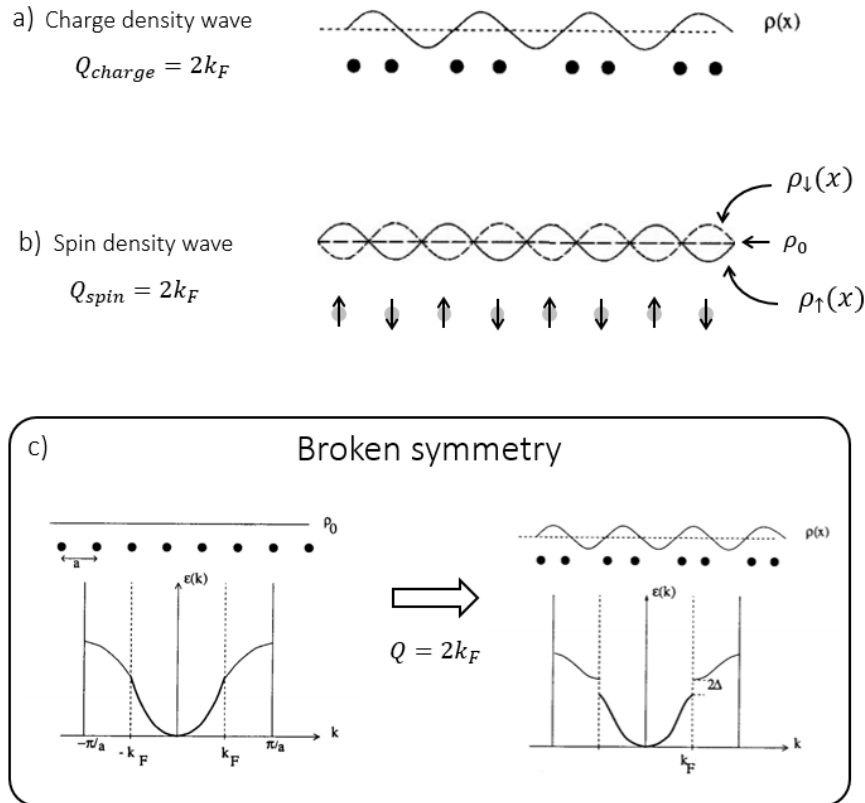


FIGURE 1.8 – Modulation de densité de charge (a) et de spin (b) au vecteur d'onde $Q = 2k_F$. Une onde de densité de spin peut être vue comme deux ondes de densités de charge polarisées en spin et en opposition de phase : il n'y a donc pas de modulation de la densité de charge totale. Dans les deux situations, l'ordre associé brise la symétrie de translation du réseau et ouvre un gap 2Δ au niveau de Fermi (c). Adaptée de [31]

L'origine de l'onde de densité de charge provient de la réponse d'un gaz d'électrons à une perturbation du réseau $\Phi(\mathbf{q})$. La densité électronique résultante $\delta\rho$ dépend de la susceptibilité

$\chi_0(\mathbf{q})$ et vaut d'après la théorie de la réponse linéaire :

$$\delta\rho(\mathbf{q}) = \chi_0(\mathbf{q})\Phi(\mathbf{q}) \quad (1.15)$$

où χ_0 est la susceptibilité de Lindhard. La susceptibilité de Lindhard χ_0 peut être calculée en théorie des perturbations à partir de la géométrie de la surface de Fermi (voir [32] p.146) et s'exprime :

$$\chi_0(\mathbf{q}) = \frac{2}{L^d} \sum_k \frac{f(\varepsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}) - f(\varepsilon_{\mathbf{k}})}{\varepsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \varepsilon_{\mathbf{k}}} \quad (1.16)$$

Avec $f(\varepsilon_{\mathbf{k}})$ la fonction de distribution à l'énergie $\varepsilon_{\mathbf{k}}$, d la dimensionnalité du système et L ses dimensions. La dépendance en \mathbf{q} de χ_0 à 1D, 2D et 3D est présentée en figure 1.9.a). Pour une surface de Fermi parfaitement 1D, une divergence est visible à $q = 2k_F$ et correspond à la condition $\varepsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} = \varepsilon_{\mathbf{k}}$ associée à un emboîtement parfait de la surface de Fermi (Nesting) (figure 1.9.b). Cela correspond à l'émergence spontanée d'une modulation de densité de charge de vecteur d'onde $2k_F$:

$$\rho(x) = \rho_0[1 + \rho_1 \cos(2k_F x + \varphi)] \quad (1.17)$$

La modulation $\rho(x)$ brise la symétrie de translation du réseau dont la nouvelle périodicité vaut $2\pi/2k_F$. La première zone de Brillouin est donc réduite à $[-k_F, k_F]$ avec l'ouverture d'un gap d'amplitude 2Δ qui permet un gain d'énergie électronique E_e . La modulation de la charge s'accompagne aussi par une distorsion du réseau de même vecteur d'onde qui représente un coût élastique E_r dû au déplacement des ions du réseau. Si le coup élastique E_r est plus faible que le gain en énergie cinétique E_e , il y a formation spontanée d'une onde de densité de charge. Cette condition est vérifiée à une dimension et induit une transition métal-isolant appelée transition de Peierls. Dans le cas 2D et 3D présenté en figure 1.9.b, l'emboîtement de la surface de Fermi n'est pas parfait et le gain en énergie cinétique est moindre. Mais la formation spontanée d'onde de densité est néanmoins possible lorsque les géométries de surface de Fermi sont favorables à l'emboîtement d'un suffisamment grand nombre d'états, c'est par exemple le cas de certains matériaux organiques.

La reconstruction de la surface de Fermi dû à l'ordre de charge se manifeste dans un cas 1D par une transition métal-isolant, car tous les états sont gappés. Pour les dimensions supérieures, l'ouverture du gap induit une chute de la densité de porteurs mesurable en effet Hall ou en oscillations quantiques. La modulation de la densité de charge peut aussi s'observer en rayon-X ou RMN.

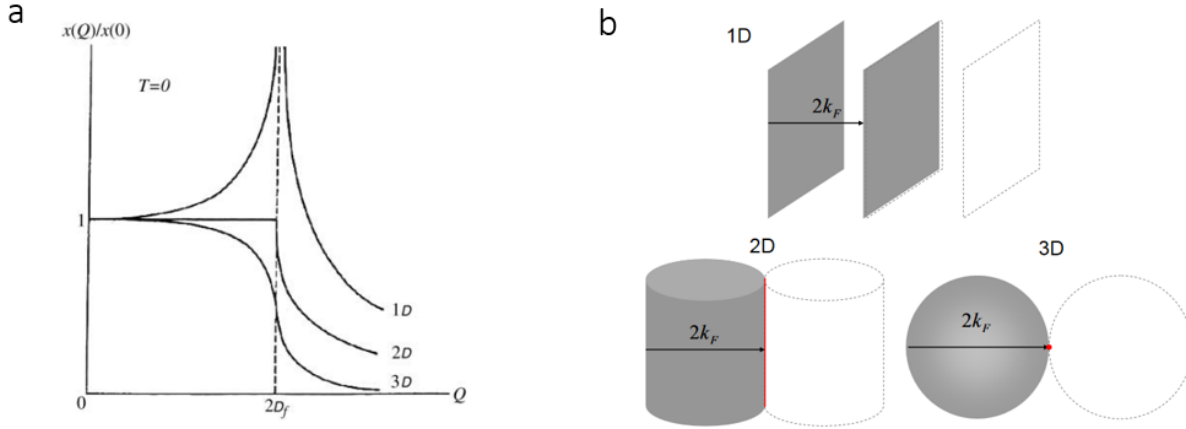


FIGURE 1.9 – a) Susceptibilité normalisée à $Q = 0$ pour une surface de Fermi 1D, 2D et 3D. À 1D, la susceptibilité diverge à $2k_F$ car l’emboîtement (Nesting) de la surface de Fermi est parfait. b) Emboîtement des surfaces de Fermi par un vecteur d’onde $2k_F$ pour différentes dimensions. L’emboîtement à 1D met en jeu l’ensemble des états à la surface de Fermi (Ici représentés par un plan. Ce n’est plus le cas à 2D ou 3D, ou seule une fraction des états est concernée par le phénomène. [31, 33]

Onde de densité de spin

Dans les composés où le terme de répulsion coulombienne U est important, les corrélations électron-électron changent la nature de l’onde de densité : une modulation de spin est mesurée plutôt qu’une modulation de charge. Cet état fondamental est appelé onde de densité de spin [30].

L’origine d’une onde de densité de spin peut être comprise avec une approche similaire à l’onde de densité de charge. Dans le cas de l’onde de densité de spin, la prise en compte des interactions électrons-électrons en plus des interactions électrons-phonons, renormalisent la susceptibilité χ_0 (formule (1.16)) en incluant le terme $X(q)$ qui prend en compte l’échange et les corrélations :

$$\chi = \frac{\chi_0(\mathbf{q})}{1 - X(\mathbf{q})\chi_0(\mathbf{q})} \quad (1.18)$$

Sous cette forme, la condition de divergence est $X(\mathbf{q})\chi_0(\mathbf{q}) = 1$. À $q = 0$ cette condition correspond au critère de Stoner du ferromagnétisme. Si $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$, l’état fondamentale est antiferromagnétique sinon c’est une onde de densité de spin. L’onde de densité de spin correspond à une inhomogénéité spatiale de charge polarisée en spin (figure 1.8.b), mais de différence de phase π entre les deux polarisations :

$$\rho_{\pm}(x) = \frac{1}{2}\rho_0[1 \pm \rho_1 \cos(qx)] \quad (1.19)$$

La densité de charge totale ρ_0 est donc constante, mais la densité de spin est modulée de période π/k_F . Les ondes de densité de spin sont détectables en diffraction de neutron et en transport, car elles reconstruisent la surface de Fermi de la même manière que les ondes de densité de charge (brisure de symétrie de translation).

1.3 Rappels de Magnéto-transport

Les expériences de transport permettent de mesurer de nombreuses quantités physiques d'intérêt dans l'étude des transitions de phase qui peuvent avoir lieu dans les matériaux étudiés. Nous allons voir quel est l'impact d'un champ magnétique sur les propriétés de transport et quels sont les paramètres physiques que l'on peut extraire d'une expérience de magnéto-transport. Cette section se limitera à un rappel du régime classique décrit par le modèle de Drude [32, 34].

Dans une expérience de transport électrique, l'application d'un champ électrique \mathbf{E} aux bornes d'un échantillon conducteur génère une densité de courant \mathbf{J} dans la même direction. La densité de courant s'exprime $\mathbf{J} = nq\mathbf{v}_d$, avec n la densité de porteurs, q la charge électrique et \mathbf{v}_d la vitesse de dérive moyenne de la particule. La vitesse de dérive est reliée au champ par la mobilité μ :

$$\mathbf{v}_d = \mu\mathbf{E} = \frac{q\tau}{m^*}\mathbf{E} \quad (1.20)$$

τ est le temps moyen entre deux collisions, appelé temps de relaxation et m^* la masse effective. La relation entre le champ électrique et la densité de courant est la célèbre loi d'Ohm $\mathbf{J} = \sigma\mathbf{E}$, avec σ la conductivité électrique qui s'exprime dans le modèle de Drude :

$$\sigma = \frac{nq^2\tau(E_F)}{m^*} \quad (1.21)$$

Avec τ le temps de relaxation au niveau de Fermi⁶

En présence d'un champ magnétique \mathbf{B} la force de Lorentz dévie les particules de leur trajectoire et la densité de courant \mathbf{J} n'est plus dans la même direction que le champ électrique \mathbf{E} . La conductivité prend alors la forme d'un tenseur $\bar{\sigma}$ que l'on ré-exprime sous la forme du tenseur de résistivité tel que $\bar{\rho} = \bar{\sigma}^{-1}$. Pour un champ magnétique suivant la direction \mathbf{z} et un champ électrique dans le plan (\mathbf{x}, \mathbf{y}) , le tenseur des résistivités s'écrit :

$$\mathbf{J} = \bar{\rho}\mathbf{E} \Leftrightarrow \begin{pmatrix} J_x \\ J_y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \rho_{xx}(B) & \rho_{xy}(B) \\ \rho_{yx}(B) & \rho_{yy}(B) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} \quad (1.22)$$

6. Dans un solide réel, toutes les collisions ne sont pas permises : il faut prendre en compte la distribution de Fermi Dirac. La résolution de l'équation de Boltzmann permet de retrouver la loi d'Ohm avec τ exprimé au niveau de Fermi. Une présentation détaillée du modèle de Boltzmann est proposée dans la thèse [35].

Dans des conditions standards d'expérience, le champ magnétique est suivant \mathbf{z} et le champ électrique suivant la direction \mathbf{x} , le courant \mathbf{J}_y généré par la force de Lorentz est donc nul dans les conditions stationnaires. On peut alors définir les magnétorésistances longitudinales et transversales :

$$\rho_{xx}(B) = \frac{E_x}{J_x} \qquad \rho_{xy}(B) = \frac{E_y}{J_x}$$

Le coefficient de Hall est défini comme le rapport de la magnéto-résistance transversale $\rho_{xy}(B)$ sur le champ magnétique B :

$$R_H = \frac{\rho_{xy}(B)}{B} = \frac{1}{B} \frac{E_y}{J_x} \quad (1.23)$$

Le rapport des résistivités transversales et longitudinales permet de mesurer le produit $\omega_c \tau$ avec $\omega_c = qB/m^*$:

$$\omega_c \tau = \frac{\rho_{xy}}{\rho_{xx}} \quad (1.24)$$

Lorsque $\omega_c \tau > 1$, le temps de relaxation τ est suffisamment long pour que la particule réalise au moins une orbite cyclotron avant d'être diffusée, nous verrons que cette condition mène au phénomène de quantification des orbites cyclotrons.

1.3.1 Modèle à une bande

Dans un modèle à une bande, un seul type de porteur contribue au transport, l'expression de la magnétorésistance longitudinale, transversale et du coefficient de Hall s'écrit :

$$\rho_{xx} = \frac{m^*}{nq^2\tau} \qquad \rho_{xy} = \frac{B}{nq} \qquad R_H = \frac{1}{nq}$$

La magnéto-résistance longitudinale est égale à celle déduite du modèle de Drude en l'absence de champ magnétique et est indépendante du champ magnétique. Ce résultat est en contradiction avec l'expérience, qui montre une dépendance quadratique de la magnéto-résistance (pour une surface de Fermi fermée). Un traitement du transport par la théorie de Boltzmann est nécessaire pour retrouver cette dépendance.

La magnéto-résistance transversale évolue quant à elle linéairement en champ, le nombre de Hall est alors indépendant du champ et proportionnel à la densité de porteurs n . L'effet Hall permet de mesurer la densité de porteurs via le coefficient R_H , dont le signe détermine quels types de porteurs contribuent au transport : un effet Hall négatif est associé à des porteurs de type électrons et positif de type trou.

1.3.2 Modèle à deux bandes

Dans un modèle à deux bandes, deux types de porteurs contribuent au transport de charge. La conductivité totale correspond alors à la somme des conductivités (équivalent à un modèle de résistances en parallèles). On a donc :

$$\sigma(B) = \sigma_e(B) + \sigma_h(B) = \frac{\sigma_e}{1 + \omega_e^2 \tau_e^2} \begin{pmatrix} 1 & -\omega_e \tau_e \\ \omega_e \tau_e & 1 \end{pmatrix} + \frac{\sigma_h}{1 + \omega_h^2 \tau_h^2} \begin{pmatrix} 1 & -\omega_h \tau_h \\ \omega_h \tau_h & 1 \end{pmatrix} \quad (1.25)$$

avec $\sigma_e = \frac{n_e q^2 \tau_e}{m_e^*}$ et $\sigma_h = \frac{n_h q^2 \tau_h}{m_h^*}$. On en déduit la magnéto-résistance totale dépendante du champ :

$$\rho_{xx}(B) = \frac{(\mu_e + \mu_h)^2 \mu_e \mu_h n_e n_h B^2}{(n_e \mu_e + n_h \mu_h)^2 + \mu_e^2 \mu_h^2 (n_e + n_h)^2 B^2} \quad (1.26)$$

et le nombre de Hall :

$$R_H(B) = \frac{1}{e} \frac{n_h \mu_h^2 - n_e \mu_e^2 - \mu_e^2 \mu_h^2 (n_e - n_h) B^2}{(n_e \mu_e + n_h \mu_h)^2 + \mu_e^2 \mu_h^2 (n_e + n_h)^2 B^2} \quad (1.27)$$

Dans sa limite faible champ ($B \rightarrow 0$), le coefficient de Hall à deux bandes est indépendant du champ et dépend des concentrations de porteurs en trous n_h et en électrons n_e et du rapport des mobilités des deux bandes $M = \mu_h / \mu_e$:

$$R_H = \frac{M^2 n_h - n_e}{(n_e + n_h M)^2} \quad (1.28)$$

Dans la limite fort champ, on observe une saturation du nombre de Hall, qui se réduit à :

$$R_H(\infty) = \frac{1}{q(n_e - n_h)} \quad (1.29)$$

Le signe de la constante de Hall dans la limite fort champ est donc donné par le signe des porteurs majoritaires et est indépendante de la mobilité.

1.4 Oscillations quantiques

Dans une expérience de transport, des oscillations de la magnéto-résistance peuvent être observées lorsque la condition $\omega_c \tau \geq 1$ est respectée, c'est-à-dire que la particule parcourt au moins une orbite cyclotron avant d'être diffusée. Cet effet, appelé oscillations quantiques (OQs), a été découvert par L. Shubnikov et W. J. de Haas dans le Bismuth en 1930 [36]

et fut prédit par Landau la même année dans un article sur le diamagnétisme des métaux [37]. En 1933, Peierls proposa une première théorie des oscillations quantiques basée sur la quantification en niveau de Landau. La théorie actuelle (théorie de Lifshitz-Kosevich) a quant à elle été développée dans les années cinquante [38]. Elle se base sur les travaux d'Onsager qui permettent de relier la fréquence des oscillations quantiques à l'aire extrémale de la surface de Fermi.

Comme la quantification est uniquement possible lorsque la condition $\omega_c \tau > 1$ est respectée, les mesures d'oscillations quantiques nécessitent des échantillons purs. Dans les conditions adéquates (basse température, fort champ magnétique) elles permettent de déduire nombreux paramètres physiques : l'aire de la surface de Fermi, les masses effectives, temps de relaxation ...

1.4.1 Quantification sous champ magnétique

Quantification de Bohr

Lorsqu'une particule chargée soumise à un champ magnétique réalise au moins une orbite cyclotron, il y a quantification dans le plan perpendiculaire au champ magnétique. Pour un mouvement périodique, la règle de quantification de Bohr-Sommerfeld s'écrit :

$$\oint \mathbf{p} \cdot d\mathbf{r} = 2\pi\hbar(n + \gamma) \quad (1.30)$$

Dans le cas des électrons libres $\gamma = 1/2$. Pour un électron dans un champ magnétique, le moment canonique \mathbf{p} est fonction du potentiel vecteur $p = \hbar\mathbf{k} - e\mathbf{A}/c$ et le mouvement est quantifié de telle manière qu'un nombre entier $n + \gamma$ de quantum de flux soit enfermé dans une orbite perpendiculaire au champ magnétique :

$$\phi_n = \frac{2\pi\hbar}{q}(n + \gamma) \quad (1.31)$$

C'est cette condition qui a été mise en avant par Onsager et qui permet de faire le lien entre la quantification des orbites et le phénomène d'oscillations quantiques. En terme d'aire, seules certaines orbites sont permises. Par exemple, dans le cas d'un champ appliqué selon \mathbf{z} , les orbites possibles résultantes prendront la forme de tubes (aucune quantification suivant \mathbf{z}) (figure 1.10.c). L'aire extrémale S dans le plan perpendiculaire au champ magnétique est quantifié et dépend du champ magnétique, elle s'exprime dans l'espace de \mathbf{k} sous la forme de la condition d'Onsager :

$$S_n = (n + \gamma) \frac{2\pi q}{\hbar} H \quad (1.32)$$

À chaque fois que l'aire d'une orbite égale l'aire extrême de la surface de Fermi perpendiculaire au champ magnétique, un phénomène oscillatoire doit se produire. On peut montrer que le phénomène d'oscillations quantiques est périodique en $1/B$. Si l'on considère qu'à un champ magnétique B_n , le tube de Landau d'indice n croise le niveau de Fermi, alors la relation d'Onsager (1.32) nous donne $A(\varepsilon_F) = (n + \gamma) \frac{2\pi e B_n}{h}$. Une relation similaire peut être exprimée au champ magnétique B_{n-1} qui correspond alors au croisement du tube de Landau d'indice inférieur, mais d'aire toujours égale à S_{FS} . En combinant ces deux égalités, on montre que le phénomène d'oscillation est périodique, indépendant de l'indice n , et relié à l'aire extrême de la surface de Fermi :

$$\frac{1}{B_n} - \frac{1}{B_{n-1}} = \frac{2\pi e}{hA(\varepsilon_F)} \quad (1.33)$$

On obtient la relation d'Onsager :

$$F = \frac{h}{2\pi e} A [T] \quad (1.34)$$

Comme le phénomène est périodique en $1/B$, la fréquence des oscillations quantiques s'exprime en Teslas.

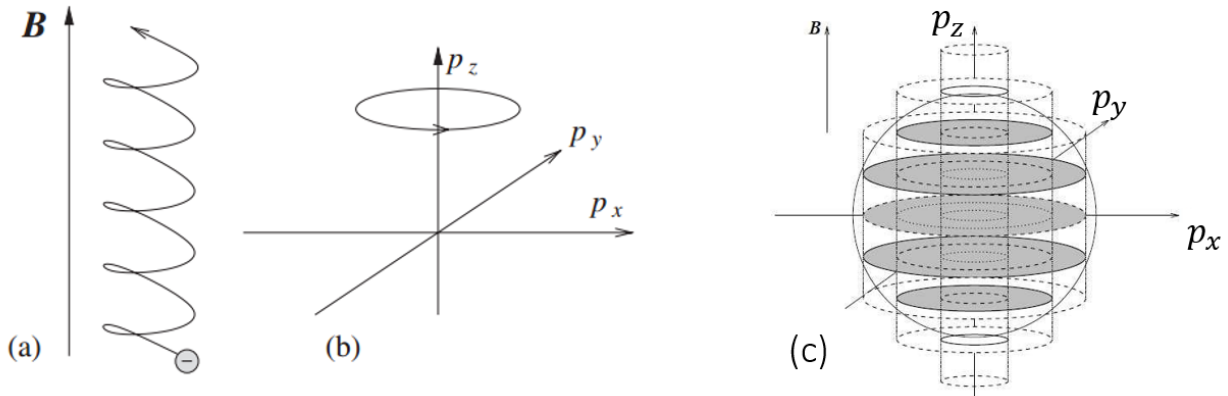


FIGURE 1.10 – Trajectoire d'un électron dans un champ magnétique : **a)** dans l'espace réel, **b)** dans l'espace des impulsions. **c)** États quantiques du même électron correspondants aux tubes de Landau. La quantification a lieu dans le plan de l'orbite, ici $\mathbf{p}_x, \mathbf{p}_y$.

Niveaux de Landau

Un traitement plus rigoureux de la quantification des états électroniques sous champ magnétique nécessite de résoudre l'équation de Schrödinger $H\Psi = E\Psi$ avec $H = \frac{1}{2m}(\hat{p} - q\hat{A})^2$ et $\mathbf{B} = \mathbf{rot}(\mathbf{A})$. On se place dans le cas d'électrons libres confinés dans une boîte de dimensions (L_x, L_y, L_z) avec un champ magnétique appliqué suivant \mathbf{z} . On peut montrer que l'Hamiltonien se réduit à celui d'un oscillateur Harmonique de pulsation ω_c dans le plan

(\mathbf{x}, \mathbf{y}) :

$$\left[\hbar\omega_c \left(\hat{a}^\dagger \hat{a} + \frac{1}{2} \right) + \frac{\hat{p}_z^2}{2m} \right] \psi(x, y, z) = (E_n + E_z) \psi(x, y, z) \quad (1.35)$$

où les opérateurs de créations \hat{a}^\dagger et d'annihilation \hat{a} sont définis par :

$$\hat{a} = \frac{1}{\sqrt{2\hbar qB}} (\hat{p}_x + i\hat{p}_y) \quad \hat{a}^\dagger = \frac{1}{\sqrt{2\hbar qB}} (\hat{p}_x - i\hat{p}_y)$$

Le spectre obtenu correspond au spectre d'un oscillateur harmonique : les énergies sont quantifiées dans le plan (\mathbf{x}, \mathbf{y}) perpendiculaire au champ magnétique auxquelles s'ajoutent celles des électrons libres suivant la direction \mathbf{z} :

$$E_n(k_z) = \hbar\omega_c \left(n + \frac{1}{2} \right) + \frac{\hbar^2 k_z^2}{2m} \quad (1.36)$$

Le premier terme nous rappelle le spectre quantifié de l'oscillateur harmonique (figure 1.11.a). Le deuxième correspond à la dispersion suivant la direction parallèle au champ. Les états correspondants à ces niveaux d'énergie ne sont autres que les tubes de Landau, déjà évoqués dans la section précédente.

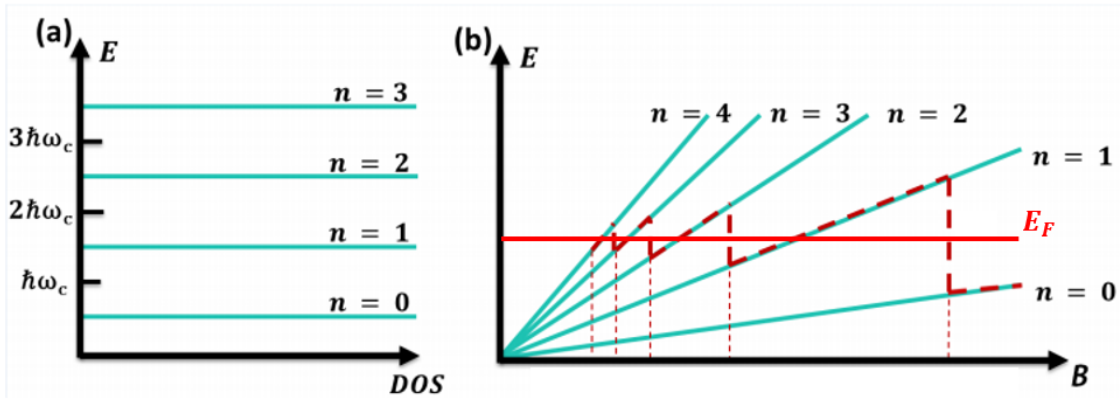


FIGURE 1.11 – a) Spectre en énergie des niveaux de Landau. b) Dépendance en champ de l'énergie des premiers niveaux de Landau (de $n = 0$ à $n = 4$). Lorsque l'énergie d'un niveau dépasse l'énergie de Fermi (ligne rouge), ce dernier se dépeuple au profit des niveaux d'énergie inférieurs. [35]

Le traitement quantique montre donc que l'application d'un champ magnétique \mathbf{B} redistribue les états dans les tubes de Landau. Nous allons dans la suite justifier le phénomène magnéto-oscillatoire par la densité d'état électronique. La dégénérescence des niveaux g_L et la densité d'état ρ_{2D} peuvent être déduite des dimensions de l'échantillon et de l'écart en énergie $\hbar\omega_c$ entre les niveaux de Landau, dans le plan (\mathbf{x}, \mathbf{y}) . Elles valent, sans compter la dégénérescence

de spin :

$$g_L = L_x L_y \frac{q|B|}{h} \qquad \rho_{2D} = \frac{g_L}{\hbar\omega_c} = \frac{2\pi}{h^2} m_c^* L_x L_y$$

La dégénérescence g_L des niveaux est indépendante de l'indice n : pour une valeur de champ magnétique, tous les niveaux possèdent la même dégénérescence. La densité d'état ρ_{2D} n'est autre que la densité d'état d'un gaz d'électrons libre 2D. Sous champ magnétique, l'ensemble des états d'électrons libres est donc redistribué sur les niveaux de Landau sans qu'il n'y ait création de nouveaux états.

1.4.2 Le phénomène d'oscillations quantiques

L'origine des oscillations quantiques provient du croisement des niveaux de Landau avec le niveau de Fermi, que l'on considère comme fixe (figure 1.11.b). Sous champ magnétique variable, l'énergie et la dégénérescence des niveaux de Landau changent. À chaque fois que la condition $E_n = E_F$ est respectée, la densité d'état au niveau de Fermi diverge et donne lieu à une singularité dans des propriétés thermodynamiques et de transport.

Oscillation de la densité d'état

Le phénomène oscillatoire sous champ magnétique variable peut être mis en évidence en évaluant la densité d'état électronique à toute valeur d'énergie ε sous champ magnétique. Nous avons vu qu'elle était indépendante de l'indice n , nous pouvons donc généraliser sa dépendance énergétique en 2 dimensions. La fonction $\rho_{2D}(\varepsilon)$ prend la forme d'une série de pics de Dirac, centrée aux énergies propres de niveaux de Landau et d'amplitude g_L . En incluant la dégénérescence de spin, on a :

$$\rho_{2D}(\varepsilon) = 2g_{LL} \sum_n \delta\left(\varepsilon - \left(n + \frac{1}{2}\right)\hbar\omega_c\right) \quad (1.37)$$

La densité d'état diverge donc à chaque fois que l'énergie d'un niveau de Landau égale l'énergie de Fermi ($\varepsilon = E_F$). La généralisation à 3 dimensions est faite en incluant la dispersion suivant z et s'écrit :

$$\rho_{3D}(\varepsilon) = \frac{V\hbar\omega_c}{4\pi^2} \left(\frac{2m}{\hbar^2}\right)^{\frac{3}{2}} \sum_{n=0}^{\infty} \left[\varepsilon - \left(n + \frac{1}{2}\right)\hbar\omega_c\right]^{\frac{1}{2}} \quad (1.38)$$

Avec V le volume de l'échantillon. Comme pour le cas 2D, on observe une divergence de la densité d'état à chaque fois que $\varepsilon = (n + \frac{1}{2})\hbar\omega_c$ (figure 1.12). La densité d'état n'est cependant plus non nulle entre chaque niveau.

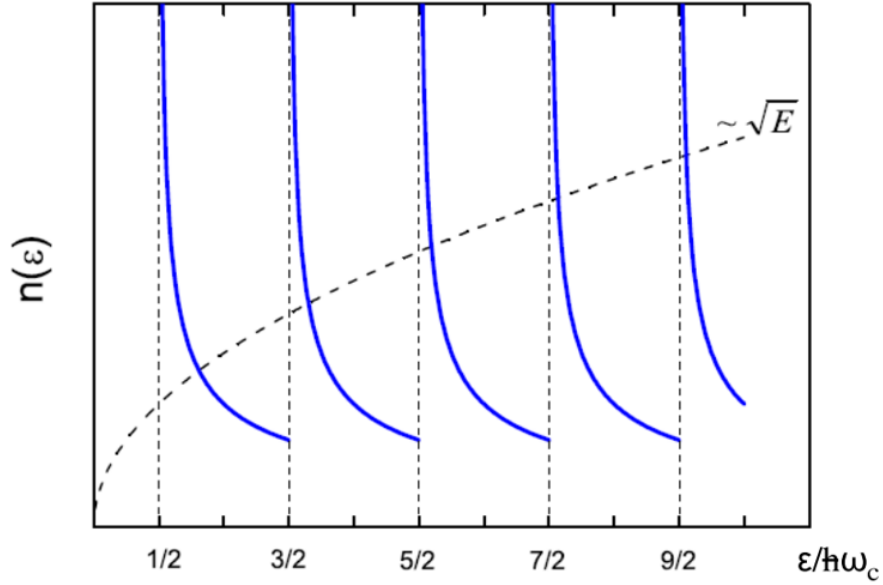


FIGURE 1.12 – Dépendance en énergie de la densité d'état électronique pour un gaz d'électrons libres 3D sous champ magnétique. La ligne pointillée représente la densité d'états en l'absence de champ. [39]

Formalisme de Lifshitz-Kosevich

L'oscillation de la densité d'état au niveau de Fermi décrite dans le paragraphe précédent induit une oscillation de toutes les grandeurs thermodynamiques et de transport. Une théorie du phénomène oscillatoire a été proposée par Lifshitz et Kosevich (LK) dans les années 50 [38]. Dans sa formulation la plus générale, elle décrit le phénomène oscillatoire par :

$$\frac{G - G_0}{G_0} = A \cdot \sum_{r=1}^{\infty} R_T \cdot R_D \cdot R_S \cdot \cos \left[2\pi r \left(\frac{F}{B} - \gamma \right) \right] \quad (1.39)$$

G représente une grandeur physique mesurable, comme l'aimantation (Effet De Haas-Van Alphen) ou la conductivité (Effet Shubnikov-de Haas). La partie oscillatoire s'obtient après soustraction d'une monotone G_0 et normalisation. La fonction cosinus décrit le partie oscillatoire avec une périodicité en $1/B$. La somme porte sur les harmoniques r et le pré-facteur A dépend de la dimensionnalité et de la technique de mesure utilisée. Les pré-facteurs R_T , R_D et R_S correspondent respectivement aux termes de réduction d'amplitude liés à la température, aux impuretés et à l'effet Zeeman, respectivement.

Les matériaux étudiés dans ce travail de thèse sont quasi 2D : le transport est dominé par les plans \mathbf{ab} et la surface de Fermi est tubulaire (vitesse de Fermi nulle suivant \mathbf{z}). On s'attend donc, dans le cas d'une poche unique et d'un champ magnétique appliqué suivant l'axe \mathbf{c} , à mesurer une seule fréquence (Figure 1.13.a). Mais un spectre plus complexe peut provenir d'une légère déviation à la bi-dimensionnalité qui se manifeste sous la forme d'un gondole-

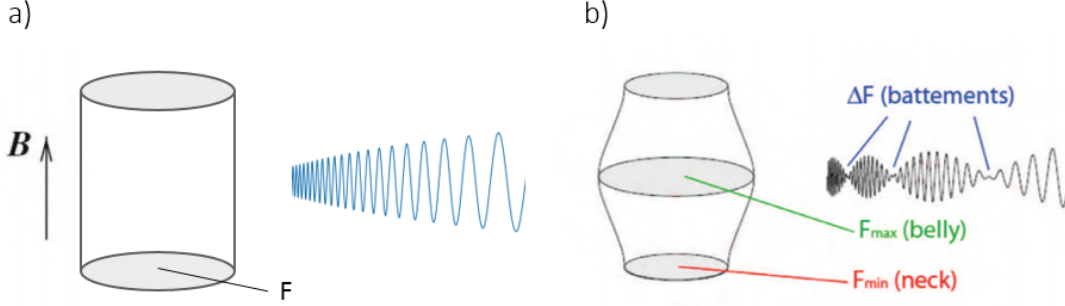


FIGURE 1.13 – **a)** Surface de Fermi 2D laissant place à une oscillation composée d’une unique fréquence. **b)** Surface de Fermi gondolée par une déviation à la bi-dimensionnalité. Les deux aires extrémales sont alors mesurées et induisent deux oscillations de fréquence F_{neck} et F_{belly} . Un battement est alors observé sur les oscillations. Adapté de [39]

ment de la surface de Fermi. Le cas le plus simple est représenté en (figure 1.13.b) avec la présence de deux aires extrémales appelées cous (Neck) et ventre (Belly) donnant lieu à deux fréquences F_n et F_B . Un battement périodique en $1/B$ et de fréquence $F = \frac{F_n + F_B}{2}$ apparaît alors sur les mesures. Ce battement s’observe uniquement si le gondolement est plus grand que l’écart entre deux niveaux de Landau, c’est-à-dire :

$$4t_{\perp} > \hbar\omega_c \quad (1.40)$$

avec t_{\perp} l’intégrale de saut perpendiculaire aux plans conducteurs. Ce battement est pris en compte dans la théorie de LK par un pré-facteur R_W qui prend la forme d’une fonction de Bessel. Pour un champ appliqué parallèle à l’axe \mathbf{c} (le long des tubes), il vaut :

$$R_W = J_0 \left(\frac{2\pi\Delta F}{B} \right) \quad (1.41)$$

1.4.3 Les facteurs de réduction

Les facteurs de réduction R_T et R_D de la formule de LK atténuent l’amplitude des oscillations quantiques. Ce sont ces termes qui traduisent le fait que les expériences doivent être menées à très basse température et fort champ magnétique. Ils permettent d’extraire des paramètres physiques comme la masse effective cyclotron ou le temps de relaxation. Le pré-facteur R_T est appelé **facteur de réduction thermique**. Il dépend de la masse effective cyclotron et vaut :

$$R_T = \frac{X}{\sinh(X)} = \frac{r.u_0 T m_c / B}{sh(r.u_0 T m_c / B)} \quad (1.42)$$

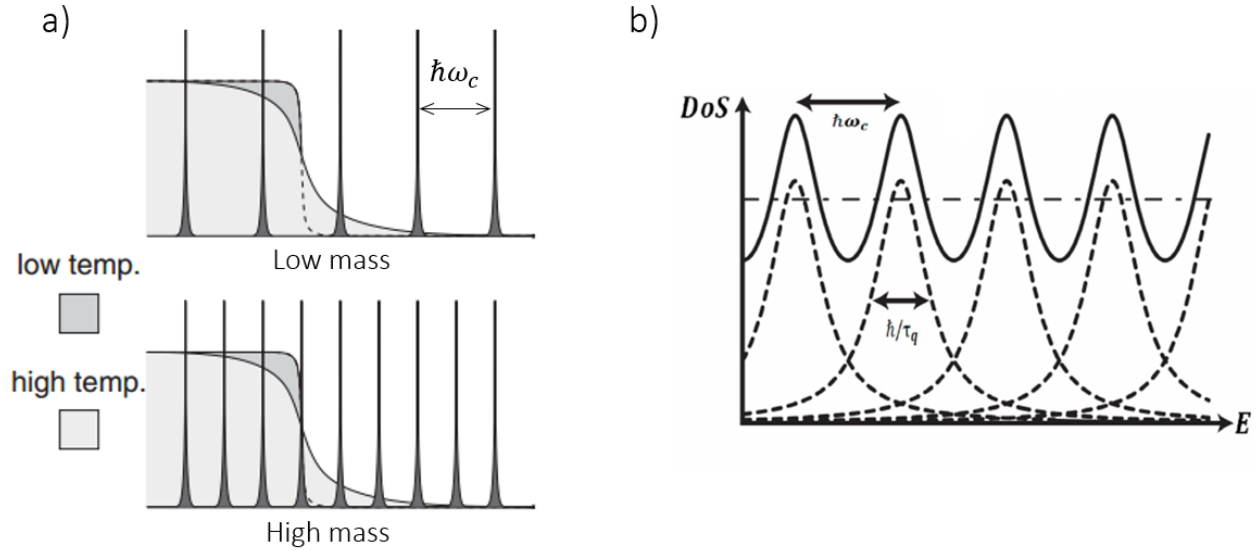


FIGURE 1.14 – a) Illustration de l'effet de la masse sur l'écart en énergie $\hbar\omega_c$ des niveaux de Landau. La fonction de distribution à haute et basse température est indiquée en arrière plan.[40] b) Effet du temps de relaxation sur la largeur des niveaux de Landau pour un gaz d'électron 2D. Plus le temps de relaxation est faible, plus les niveaux de Landau sont élargis et se recouvrent. L'oscillation résultante est de plus faible amplitude. [35]

Avec $u_0 = \frac{2\pi^2 k_B m_0}{\hbar q} = 14.694 \text{ T.K}^{-1}$. Le facteur de réduction thermique induit une diminution (quasi)exponentielle⁷ de l'amplitude des oscillations à mesure que la température augmente. Il provient de la fonction de distribution de Fermi-Dirac qui rend accessible les états dans une largeur $k_B T$ autour du niveau de Fermi lorsque $T \neq 0$. Plutôt que d'avoir une orbite unique qui croise la surface de Fermi et génère un pic dans la densité d'état, il y a plusieurs orbites dans une largeur $k_B T$ et centrée à E_F . Plus la masse est grande, moins les niveaux de Landau sont espacés en énergie et moins le phénomène oscillatoire sera prononcé (figure 1.14.a). Lorsque l'écart en énergie $\hbar\omega_c$ entre deux niveaux de Landau est plus petit que $k_B T$, le phénomène oscillatoire n'est plus visible. Le critère d'observation est donc $\hbar\omega_c > k_B T$. Le terme de réduction thermique permet d'extraire la masse effective à partir de la dépendance en température de l'amplitude des oscillations quantiques.

Le préfacteur R_D est appelée **facteur de réduction de Dingle**. Il dépend du temps de relaxation τ à travers la température de Dingle T_D et vaut :

$$R_D = \exp\left(-r \cdot \frac{u_0 T_D m_c}{B}\right) \quad (1.43)$$

avec $T_D = \frac{\hbar}{2\pi k_B T}$. Le terme R_D traduit une augmentation exponentielle de l'amplitude des os-

7. Dans la limite T/B grand, on peut montrer que $R_T \propto \frac{T}{B} \exp(-r \cdot u_0 T m_c / B)$. Cette approximation s'appelle approximation exponentielle.

cillations avec le champ magnétique. Il provient du temps de relaxation élastique τ . Lorsque les quasiparticules ont un temps de relaxation fini, les niveaux de Landau s'élargissent en raison du principe d'incertitude $\Delta E \Delta t \geq \hbar$. Cet élargissement est pris en compte dans l'expression de la densité d'état par la convolution avec une fonction Lorentzienne de largeur \hbar/τ (figure 1.14.b), plus le temps de relaxation est faible, plus les niveaux de Landau se recouvrent et moins le saut dans la densité d'état est prononcé. Le temps de relaxation est un critère d'observation supplémentaire des oscillations quantiques : la condition $\omega_c \tau \geq 1$ doit être remplie. La qualité des échantillons est donc un paramètre extrêmement important, car le terme de Dingle prend aussi en compte la diffusion élastique provenant des impuretés (estimée par la résistivité résiduelle ρ_0).

Le pré-facteur R_s est le **facteur de splitting Zeeman**, il provient de la levée de dégénérescence des niveaux de Landau due au spin et vaut :

$$R_S = \cos(r.\pi\phi) = \cos\left(\frac{\pi.r.g.m_b^*}{2m_e}\right) \quad (1.44)$$

Ce terme provient du déphasage $\phi = 2\pi \frac{\Delta E}{\hbar\omega_c}$ qui apparaît entre les oscillations provenant des deux sous-niveaux de Landau et qui s'écrit :

$$\frac{1}{2} \left[\cos\left(2\pi.r.\frac{F}{B}\right) + \cos\left(2\pi.r.\frac{F}{B} + \phi\right) \right] = \cos\left(2\pi.r.\frac{F}{B}\right) . \cos(r.\pi\phi) \quad (1.45)$$

Le terme R_s est indépendant de l'amplitude du champ magnétique et son impact est négligeable dans le cas d'un électron libre. En effet, pour un électron libre $g \approx 2$ et $\Delta E \approx \hbar\omega_c$, le terme R_s vaut donc $R_s = (-1)^p$

Les termes de réduction induisent des contraintes expérimentales. La première contrainte est liée à la masse des quasiparticules : plus elle est importante, plus on doit descendre à basse température pour réaliser les mesures. La seconde contrainte est la qualité des échantillons, car le terme de Dingle atténue exponentiellement l'amplitude avec le temps de relaxation. Il faut donc travailler avec des échantillons les plus purs possibles. On retiendra donc qu'une mesure d'oscillations quantiques n'est envisageable que lorsque $\omega_c \tau > 1$ et $\hbar\omega_c > k_B T$.

1.4.4 Extraction des paramètres physiques

Je souhaite décrire brièvement les procédures utilisées pour mesurer la fréquence, masse effective, et temps de relaxation des quasiparticules à partir d'une expérience d'oscillations quantiques.

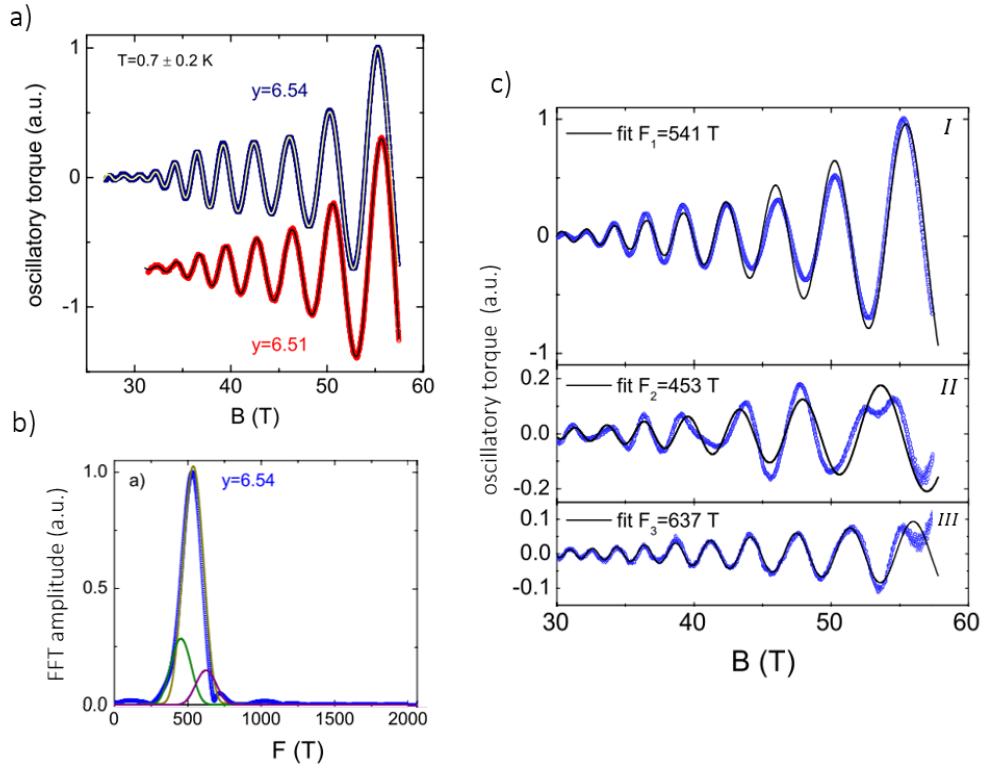


FIGURE 1.15 – Procédure d'extraction de fréquences satellites par ajustement de la fonction LK à la partie oscillatoire de YBCO. **a)** Oscillations quantiques dans deux échantillons de YBCO sous-dopés. L'évolution en champ n'est pas parfaitement exponentielle : un léger battement est visible et témoigne de la présence de plusieurs fréquences. **b)** Transformée de Fourier ($y = 6.54$) ne suggérant que la présence d'une seule fréquence : la taille de la fenêtre est trop faible pour résoudre les pics satellites. **c)** Procédure d'ajustement pour mesurer les autres fréquences. **I** : La fonction LK, composée d'une seule fréquence, est ajustée au signal oscillatoire pour extraire la fréquence centrale F_1 . **II** : Après soustraction de la fonction ajustée, un second ajustement est réalisé sur la partie résiduelle pour extraire la fréquence du premier pic satellite F_2 . **III** : Idem pour le pic satellite F_3 [41]

Fréquence d'oscillation

Les fréquences d'oscillations peuvent être obtenues suivant différentes méthodes. Le tracé d'Onsager est basé sur la formule d'Onsager (1.32) et permet d'extraire les fréquences à partir de l'indexation des oscillations. Il s'obtient en traçant la position des maxima et des minima des oscillations en $1/B$ et en fonction de l'indice des niveaux de Landau. La pente de la droite est proportionnelle à la fréquence recherchée.

Plus communément, les fréquences sont obtenues par transformée de Fourier de la partie oscillatoire du signal périodique en $1/B$. La principale limitation de l'analyse de Fourier provient de la taille de la fenêtre d'analyse notamment lorsque l'on a des fréquences proches (Figure 1.15.a et b).

Dans ces conditions, on peut effectuer un ajustement de la formule LK sur la partie oscil-

latoire. Les ajustements permettent notamment de résoudre des pics fréquences invisibles sur la transformée de Fourier lorsque la largeur de fenêtre est trop faible et que les pics se recouvrent (figure 1.15.b et c). Cette technique a permis de mettre en évidence la présence de pics satellites dans le spectre d'oscillations quantiques du cuprate YBCO sous-dopé [41].

Masse effective

L'extraction de la masse effective est réalisée à partir de la dépendance en température de l'amplitude des oscillations. Elle provient du terme de réduction thermique R_T qu'il faut alors évaluer dans une fenêtre de champ pour différentes températures. En pratique, l'amplitude correspond à l'amplitude du pic de Fourier de la fréquence étudiée. Le champ moyen est calculé à partir de la fenêtre de la transformée de Fourier, comprise entre B_{min} et B_{max} :

$$B_{avg} = \frac{2}{1/B_{min} + 1/B_{max}} \quad (1.46)$$

La dépendance en température de l'amplitude des oscillations s'écrit alors :

$$A_{TF}(T) = A_{TF,0} \frac{u_0 T m_c / B_{avg}}{sh(u_0 T m_c / B_{avg})} \quad (1.47)$$

Avec $A_{TF,0}$ un coefficient qui dépend de la taille et du type de fenêtre utilisés. Ce coefficient implique que l'amplitude doit être relevée avec le même type de fenêtre et dans la même gamme de champ pour chaque température. En réalisant un ajustement de la dépendance en température de l'amplitude des oscillations par la fonction (1.47), il est possible de mesurer la masse cyclotron. Il est aussi habituel de simplifier le terme $\sinh(x)$ en $\exp(x)/2$ pour x grand. Cette simplification est appelée "approximation exponentielle". Les masses discutées dans cette thèse n'ont pas été estimées avec l'approximation exponentielle, mais par ajustement de la fonction (1.47) aux données.

Temps de relaxation

La dépendance en champ de l'amplitude permet de mesurer le temps de relaxation τ à partir du terme de réduction de Dingle R_D . Comme il dépend aussi de la masse effective m^* , cette dernière doit être estimée au préalable. L'amplitude en champ est alors évaluée à différents champs B_{avg} et s'écrit :

$$A_{TF}(B) = A_{TF,0} B_{avg}^\mu \cdot R_T \cdot \exp\left(-\frac{u_0 T_D m_c}{B_{avg}}\right) \quad (1.48)$$

avec μ un coefficient qui dépend de la dimension et du type de mesure, il vaut 0 à 2D et -0.5 à 3D. On déduit une expression linéaire qui permet de tracer le graphique de Dingle :

$$\ln \left(\frac{A_{TF}(B)}{R_T} \right) = A_0 - \frac{u_0 m_c T_D}{B_{avg}} \quad (1.49)$$

dont la régression linéaire permet de mesurer la température de Dingle T_D , elle-même reliée au temps de relaxation par la relation $T_D = \frac{\hbar}{2\pi k_B \tau}$. Il y a cependant des situations où le graphique de Dingle dévie de la linéarité, par exemple lorsque de la rupture magnétique se manifeste entre deux poches à la surface de Fermi.

1.4.5 Rupture magnétique et interférences quantiques

Les surfaces de Fermi peuvent être composées de plusieurs poches induisant des spectres d'oscillations quantiques complexes. Lorsque deux poches sont proches l'une de l'autre dans l'espace réciproque, les quasiparticules peuvent traverser le gap qui les séparent par effet tunnel et réaliser de nouvelles orbites. Ce phénomène, appelé rupture magnétique, s'observe par la présence de nouvelles fréquences dans le spectre des oscillations quantiques, qui correspondent à la combinaison de fréquences existantes.

La rupture magnétique ne s'observe que lorsque le gap entre deux poches est suffisamment faible. Un critère énergétique fut d'abord proposé par Cohen and Falicov [42] : la différence d'énergie entre les niveaux de Landau doit être au moins égale à celle du gap en énergie entre les deux bandes. Ensuite, Blount proposa un critère plus précis appelé critère de Blount [43] :

$$\hbar\omega_c \geq \Delta_g^2/E_F \quad (1.50)$$

Avec E_F l'énergie de Fermi et ε_F celle du gap. D'après le critère de Blount, au-delà d'un champ magnétique $B_0 = \frac{m_c^* \Delta_g^2}{e\hbar E_F}$, une quasiparticule arrivant à la jonction entre deux bandes a une probabilité P d'être transmise et une probabilité Q d'être réfléchie, avec $P + Q = 1$ et :

$$P = p^2 = \exp(-B_0/B) \quad Q = q^2 = 1 - \exp(-B_0/B)$$

La conservation de la charge implique que l'onde réfléchie est déphasée de $\pi/2$ par rapport à l'onde incidente.

Une autre expression prenant en compte la géométrie de la surface de Fermi autour du point de rupture magnétique a été proposée par Chambers en 1966 [44] :

$$B_0 \approx \frac{\pi\hbar}{e} \sqrt{\frac{k_g^3}{K_a + K_b}} \quad (1.51)$$

avec K_a et K_b les rayons locaux des surfaces de Fermi de part et d'autre du point de rupture magnétique et k_g leur séparation. Cette expression à l'avantage de dépendre uniquement de la géométrie de la surface de Fermi et permet donc d'estimer un champ de rupture à l'aide de données d'ARPES par exemple.

Pour comprendre l'impact de la rupture magnétique sur le phénomène d'oscillations quantiques, on peut prendre l'exemple de deux poches correspondant à des fréquences F_α et F_β et de masse m_α^* et m_β^* , séparées par un gap. Si le champ magnétique est supérieur au champ magnétique B_0 , la quasiparticule parcourt une nouvelle orbite correspondant à la somme des deux orbites (figure 1.16). Les nouvelles fréquences et masses valent alors :

$$\begin{aligned} F_{MB} &= MF_\alpha \pm NF_\beta \\ m_{MB} &= Mm_\alpha^* + Nm_\beta^* \end{aligned}$$

où N et M sont des entiers et prennent en compte les harmoniques. Le signe \pm dans l'expression de la fréquence dépend de la nature des poches : une rupture magnétique entre deux poches de même type de porteurs induira un pic dans le spectre de fréquence égale à la somme des fréquences, et à la différence sinon. On peut différencier 3 régimes qui dépendent de la valeur du champ magnétique :

- $B \ll B_0$: la probabilité de rupture magnétique est faible, les fréquences dominantes du spectre des oscillations quantiques correspondent à celles des deux poches α et β
- $B \gg B_0$: La probabilité de rupture est importante et la probabilité d'une réflexion de Bragg est faible : les orbites dominantes du spectre sont les orbites de rupture magnétique F_{MB} .
- $B \approx B_0$ est le cas intermédiaires où toutes les fréquences sont visibles sur le spectre.

Une généralisation de cette situation a été faite par Pippard sous la forme d'un réseau d'orbites couplées [46], puis Falicov et Stachowiak [42] ont apporté une méthode pour décrire le spectre des Oscillations quantiques résultant. L'ensemble des orbites possibles est alors relevé à partir de la surface de Fermi et un facteur de réduction $R_{B,j}$ est incluse dans la formule de LK pour chaque nouvelle potentielle orbite de fréquence j .

$$R_{B,j} = p^{n_{1j}} q^{n_{2j}} \exp[i n_{1j} \varphi_p + i n_{2j} \varphi_q] \quad (1.52)$$

avec $n_{1,2}$ le nombre de points de rupture magnétique et de réflexion de Bragg sur l'orbite considérée et $\varphi_{p,q}$ la phase accumulée après une transmission (probabilité $P = p^2$) ou une réflexion (probabilité $Q = q^2$). Le terme de réduction $R_{B,j}$ induit une dépendance supplémentaire en champ des oscillations quantiques qui induit une déviation à la linéarité sur les graphiques de Dingle. La nouvelle courbe de Dingle pour l'orbite j est alors décrite par

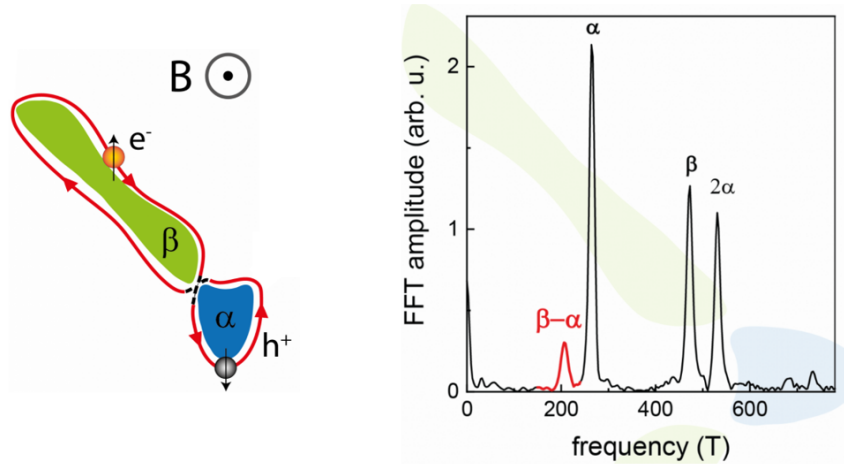


FIGURE 1.16 – Orbite de rupture magnétique entre deux poches de fréquences F_α et F_β sur la surface de Fermi de HfSiS [45]. La fréquence résultante, visible sur le spectre des oscillations quantiques à droite, est égale à $F_\alpha - F_\beta$ car les deux poches sont de types différents (électrons et trous).

l'équation :

$$\ln[A] = \ln[A0, j] - \gamma_j/B - \ln[p^{n_1j} q^{n_2j}] \tag{1.53}$$

Où γ est un paramètre ajustable. Dans un cas pratique, si les orbites sont identifiées, il est possible d'estimer la valeur du champ de rupture B_0 à partir d'un ajustement au graphique de Dingle. Une mesure du gap entre deux bandes est alors possible à partir du critère de Blount ou de la relation de Chambers.

Interférences quantiques

Une conséquence de la rupture magnétique est la possibilité pour un électron de se déplacer d'un point à un autre de la surface de Fermi suivant différents chemins. Lorsque la nature ondulatoire de l'électron est prise en compte, les multiples chemins induisent un phénomène d'interférence similaire à un interféromètre en optique.

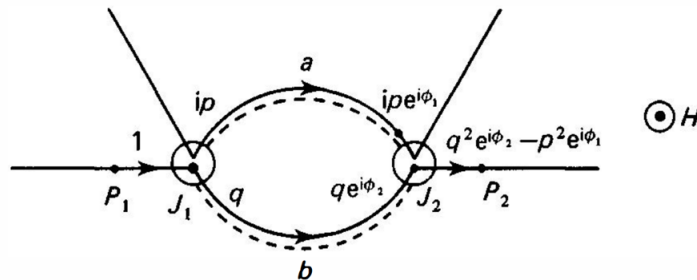


FIGURE 1.17 – Illustration du principe de l'interféromètre quantique. La quasiparticule peut voyager du point 1 au point 2 en empruntant deux chemins différents a et b.[38]

Le phénomène d'interférences quantiques a été découvert par Stark [47] pour expliquer la présence d'une nouvelle fréquence dans le spectre des oscillations du Magnésium. Le principe est illustré en figure 1.17 : un électron se déplaçant du point 1 au point 2 peut emprunter deux chemins possibles a et b. Si on considère les amplitudes de probabilités complexes Ψ_a et Ψ_b d'emprunter les chemins a et b, la probabilité de transmission dépend alors de la différence de phase entre les deux amplitudes de probabilité :

$$T = |\Psi_a + \Psi_b|^2 = |\Psi_a|^2 + |\Psi_b|^2 + 2|\Psi_a||\Psi_b| \cos(\theta_0)$$

Avec $\theta_0 = \phi_a - \phi_b$ la différence de phase entre les deux chemins. Le calcul des amplitudes de probabilité est réalisé en prenant en compte les états intermédiaires dus aux franchissements des jonctions tunnels :

$$|t\rangle = p, \quad |r\rangle = (1 - p^2)^{1/2} e^{(i\pi/2)}$$

En présence d'un champ magnétique, l'amplitude de probabilité d'emprunter un chemin est modifiée par un facteur de phase $e^{i\phi_L}$ avec :

$$\phi_L = (e/\hbar c) \int_L \mathbf{A} \cdot d\mathbf{l} \quad (1.54)$$

Ce terme de phase s'ajoute dans l'amplitude de probabilité totale et induit une oscillation qui dépend du champ magnétique et de l'aire \mathcal{A} entourée par les deux bras de l'interféromètre :

$$T = |\Psi_a + \Psi_b|^2 = |\Psi_a|^2 + |\Psi_b|^2 + 2|\Psi_a||\Psi_b| \cos(\theta_0 + (e/\hbar c)HA)$$

Cet effet est similaire à l'effet Aharonov–Bohm en optique. La variation de champ magnétique va donc entraîner un phénomène oscillatoire proportionnel à l'aire extrême \mathcal{A} et périodique en $1/B$. Comme ce phénomène est une conséquence des interférences des particules chargées, les oscillations induites ne sont visibles que sur les expériences de transport électrique. Les fréquences obtenues correspondent à l'aire comprise entre les deux bras de l'interféromètre et l'amortissement thermique de ces oscillations est donné par la différence de la dépendance énergétique des termes de phase entre les deux trajets de l'interféromètre $\frac{\partial \phi_{\lambda_1}}{\partial \varepsilon} - \frac{\partial \phi_{\lambda_2}}{\partial \varepsilon}$. Lorsque les deux trajets sont symétriques, les oscillations peuvent théoriquement être mesurées à haute température. Mais lorsque les chemins ne sont pas équivalents, l'amortissement thermique des oscillations suit une loi en $X/\sinh(X)$ avec une masse cyclotron égale à la différence des masses cyclotrons entre les deux chemins :

$$m_{QO} = m_a^* - m_b^*$$

Lorsque les deux chemins ont une masse égale, des oscillations quantiques peuvent être observées à haute température. Au niveau de la dépendance en champ, un terme similaire au terme de Dingle doit être pris en compte et s'exprime par le terme de réduction $K_L = \exp(-t_L/2\tau_q)$. Il provient du fait qu'en présence d'impuretés, une quasiparticule parcourant une distance t_L à une probabilité $\exp(-t_L/\tau_q)$ de rester dans son état quantique, c'est à dire de conserver sa cohérence de phase. Il faut préciser que le temps de relaxation τ_q ne correspond pas au taux de diffusion τ déjà discuté, mais représente le temps de vie quantique de la quasiparticule.

Chapitre 2

Techniques expérimentales

Sommaire

2.1 Environnement expérimental	39
2.1.1 Génération de champs magnétiques pulsés	39
2.1.2 Cryogénie	41
2.1.3 Canne et rack de mesure	42
2.1.4 Protection des utilisateurs	43
2.2 Mesure de transport	44
2.2.1 Préparation et mesure des échantillons	44
2.2.2 Chaîne d'acquisition et lock-in numérique	45
2.3 L'oscillateur à diode Tunnel	45
2.3.1 Présentation de la technique TDO	46
2.3.2 Amélioration du rapport signal/bruit	52
Conclusion	60

Dans ce chapitre, je vais présenter deux techniques de mesures et leurs applications en champs magnétiques intenses. Je commencerai par décrire la méthode de production des champs magnétiques pulsés au LNCMI, puis, je ferai un rappel sur les mesures de magnéto-résistance et d'effet Hall en champs pulsés. Enfin, une importante partie sera dédiée au TDO, qui est une technique de mesure sans contact des propriétés des échantillons. Je présenterai notamment le travail réalisé au cours de cette thèse qui a permis d'améliorer la sensibilité de cette technique.

2.1 Environnement expérimental

2.1.1 Génération de champs magnétiques pulsés

Il existe deux principales méthodes pour produire un champ magnétique :

- Les aimants permanents, qui sont des matériaux ferromagnétiques. Les plus puissants sur le marché sont en néodyme (NdFeB) et produisent un champ magnétique de l'ordre du Tesla.
- Les électro-aimants, qui permettent d'obtenir des champs bien plus importants dont la valeur dépend de la technologie utilisée.

Une grande partie de la recherche actuelle se fait sous champs intenses, en utilisant des bobines supraconductrices ou résistives. La principale limitation des bobines résistives est le chauffage par effet Joule, qui nécessite d'importants systèmes de refroidissement. L'idée de Piotr Kapitza [48] pour augmenter l'intensité du champ, a été de produire une impulsion courte, mais plus intense, en utilisant la capacité calorifique de la bobine.

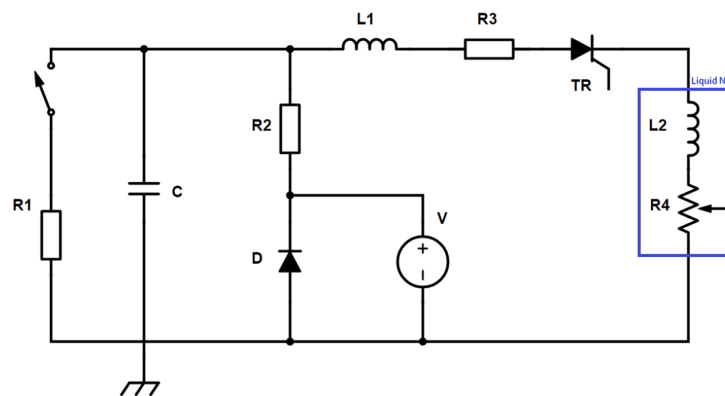


FIGURE 2.1 – Schéma électrique simplifié du générateur du LNCMI.

Le LNCMI est un laboratoire spécialisé dans la génération de champs magnétiques intenses. Il est divisé en deux sites : Grenoble pour les champs continus et Toulouse pour les champs pulsés. À Toulouse, le champ maximum disponible de 90 T et est généré par décharge d'un

banc de condensateurs dans les bobines résistives. Un projet de bobine 100 T est en cours¹ et le travail de développement des champs semi-destructifs se poursuit². A Grenoble, des projets ambitieux sont aussi en cours, comme la bobine Hybride (bobine extérieure supraconductrice et intérieure résistive) qui devrait permettre d'atteindre 43 T.

À Toulouse, les champs magnétiques sont produits par la décharge d'un banc de condensateurs dans une bobine résistive (Figure 2.1). Le LNCMI dispose de 3 générateurs d'une capacité totale de 21 MJ (14MJ + 6MJ + 1MJ). Des chargeurs haute tension assurent la charge des condensateurs sur une durée allant jusqu'à 5 minutes (pour une consigne à 90 T) et la décharge est déclenchée par un thyristor optique commandé depuis la salle d'expérience. Le profil de champ obtenu, appelé pulse, ne dure qu'une fraction de seconde (Figure 2.2) et est formé d'une montée sinusoïdale et d'une descente exponentielle. Le temps de montée vaut $T = \frac{2\pi\sqrt{LC}}{4}$ et correspond au quart de sinusoïde de l'oscillation naturelle du circuit RLC. Une fois le courant maximum atteint, la tension aux bornes du condensateur s'annule et la diode crowbar court-circuite le banc : l'oscillation du RLC est stoppée et le courant décroît exponentiellement avec une constante de temps $\tau = \frac{L}{r}$, avec r la résistance de la bobine. La durée du pulse dépend du type de bobine : les bobines de faible inductance (faible champ) généreront des pulses plus longs que celles de forte inductance (fort champ). Le catalogue de bobines du LNCMI apporte un large choix de bobines allant de 60 T à 90 T.

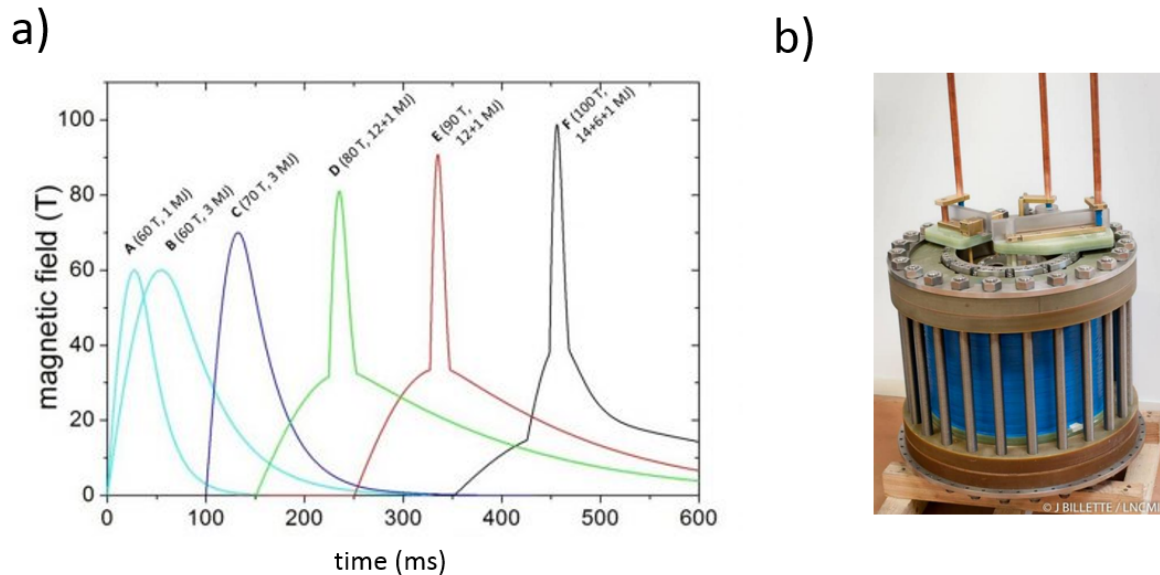


FIGURE 2.2 – a) Profils de champs des différentes bobines du LNCMI. b) Photo de la bobine 100 T.

1. Un record européen a déjà été établi à 98.8 T en 2017 [49]

2. Le projet Mégagauss est une technique de champ pulsé qui permet d'atteindre 180 T. La méthode est dite semi-destructive : la bobine est détruite pendant l'expérience en conservant le reste de l'expérience intacte.

Les résultats présentés dans cette thèse ont été obtenus avec la bobine 90 T qui est composée de deux bobines imbriquées l'une dans l'autre. La bobine extérieure est reliée au générateur 14 MJ et produit un premier pulse d'une valeur maximum de 30 T. Une fois le maximum atteint, la bobine intérieure (reliée au générateur 3 MJ) produit un second pulse plus court qui se superpose au premier. La contribution des deux pulses permet d'atteindre 90 T.

2.1.2 Cryogénie

Pour limiter leur échauffement lors du tir, les bobines sont immergées dans l'azote liquide, ce qui contribue aussi à diminuer leur résistance électrique. La température augmente de plus de 100 K après un tir fort champ ce qui nécessite un temps de refroidissement allant de 50 minutes (70 T) à 2h (90 T).

Un schéma de principe du cryostat ^4He est présenté en (Figure 2.3). Il est constitué de deux réservoirs séparés par une vanne pointeau qui sont découplés du bain d'azote par un vide secondaire. Le remplissage se fait avec une canne de transfert hélium à partir de bouteilles extérieures. L'extension du bain du bas, appelée queue du cryostat, se prolonge jusqu'au centre de la bobine, elle permet de placer les échantillons au centre du champ. La régulation de température se fait à l'aide d'un four constitué d'un fil de manganin enroulé autour de la queue du cryostat et relié à un contrôleur de température Lakeshore.

Trois gammes de températures sont accessibles :

- $T_{amb} > T > 100$ K. La puissance frigorifique est fournie par le bain d'azote.
- 100 K $> T > 6$ K. Le bain du haut est rempli d' ^4He mais la vanne pointeau est fermée.
- 4.2 K $> T > 1.5$ K. Les deux bains d'hélium sont remplis ($T = 4.2$ K), puis, la vanne pointeau est alors fermée et le bain du bas mis en dépression.

Une amélioration apportée pendant cette thèse est l'accès à la gamme 4.2K - 5.4K avec bain du bas rempli : la vanne pointeau est maintenue fermée de manière à laisser monter la pression pour suivre la ligne de transition liquide-gaz de l' ^4He . Cette technique nous permet d'obtenir une régulation plus stable et une meilleure thermalisation des échantillons.

Les températures entre 1.5 K et 0.6 K sont obtenues en utilisant le cryostat ^3He . Le circuit est composé d'un insert en inox placé à l'intérieur d'un cryostat ^4He jusqu'au centre du champ et relié à une pompe. Le système ^3He fonctionne en circuit fermé : l' ^3He gazeux est stocké dans la pompe et est récupéré à la fin de chaque expérience. La condensation de l' ^3He , à 2.1 K, s'obtient en pompant sur le bain du bas d' ^4He (de la même manière que décrit précédemment). On atteint les plus basses températures en mettant ensuite en dépression le bain d' ^3He .

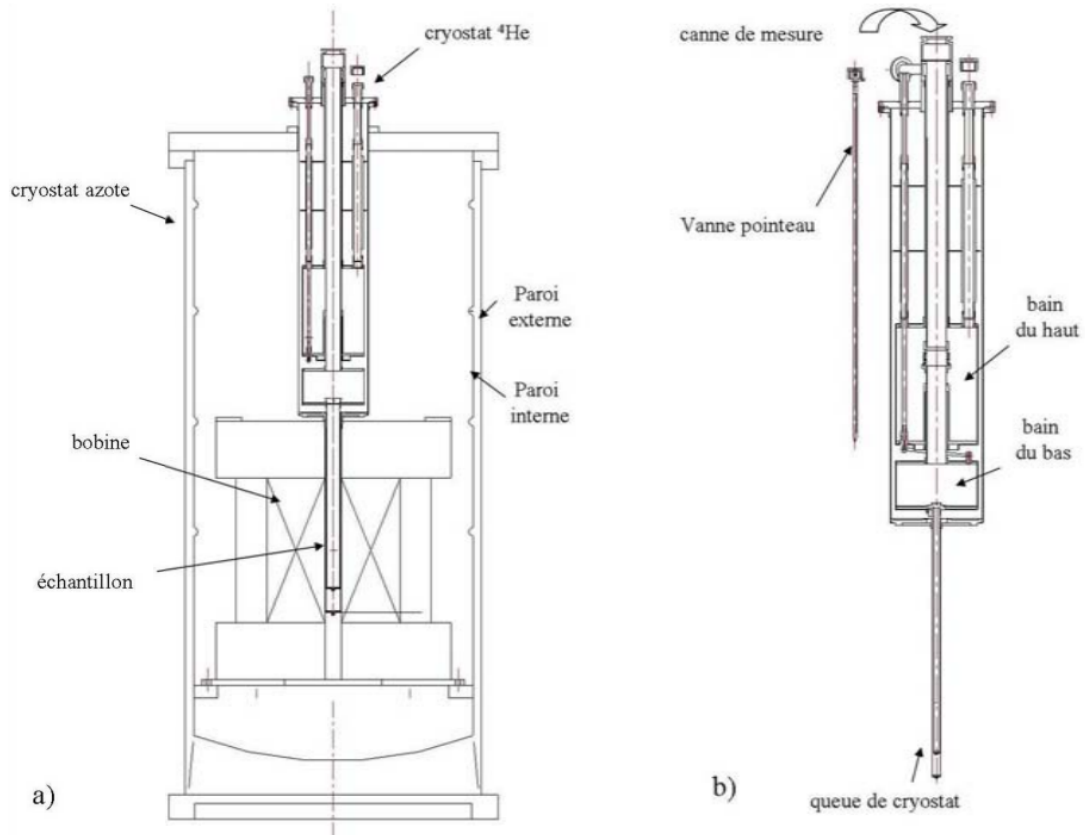


FIGURE 2.3 – a) Vue en coupe du cryostat N_2 à l'intérieur duquel sont placés la bobine et le cryostat 4He . b) Vue en coupe du cryostat 4He

2.1.3 Canne et rack de mesure

Les échantillons sont positionnés dans le cryostat au centre du champ avec une canne de mesure. La première extrémité de la canne est le porte échantillon qui ne mesure que quelques millimètres de diamètre, c'est à cet endroit que sont placés les échantillons, le capteur de température (thermomètre Cernox CX-BC) et la bobine pick-up (mesure du champ magnétique). Ces composants sont reliés aux connecteurs placés sur la tête de canne. La ligne de transmission entre le porte échantillon et la tête de canne est faite de paires torsadés ou de câbles coaxiaux afin de limiter les boucles ouvertes et les tensions induites par le pulse de champ. En effet, suivant la loi de Faraday, toute variation temporelle du flux magnétique à travers une boucle ouverte génère une tension à ses bornes :

$$e = -\frac{d\phi}{dt} = -S\frac{dB}{t} - B\frac{dS}{dt} \quad (2.1)$$

Le premier terme représente la tension induite par la variation du champ et le second terme par la variation de surface effective de la boucle par exemple due aux vibrations. La seule boucle laissée volontairement ouverte est la bobine pick-up utilisée pour mesurer le champ

magnétique. Le profil de champ peut être reconstitué par intégration de la tension induite à ses bornes après un tir.

Tous les appareils de mesure sont regroupés dans un rack à proximité de la canne. Ils sont connectés d'une part à la tête de canne et d'autre part à un châssis PXI relié à l'ordinateur d'expérience.

2.1.4 Protection des utilisateurs

Pendant les expériences de champs pulsés, il arrive qu'un défaut sur la bobine provoque une forte explosion au moment du tir. Si l'explosion de bobine arrive rarement, elle représente un danger certain pour les expérimentateur.rice.s³. La protection des personnes est assurée en plaçant l'ensemble de l'expérience (bobines + rack) dans un box blindé. Pendant un tir, le box est fermé et les installations du laboratoire sont mises en sécurité en isolant le box du réseau électrique pour éviter les surtensions en cas d'incident. Le rack de mesure est aussi déconnecté du réseau électrique et branché sur des onduleurs qui fournissent une alimentation 230 V aux instruments pendant la durée de l'expérience. Le contrôle des paramètres de l'expérience se fait à l'extérieur des boxes via un ordinateur qui est relié par fibre optique au châssis PXI du rack de mesure. Un deuxième ordinateur est dédié au contrôle du générateur et à la vérification des paramètres de la bobine.

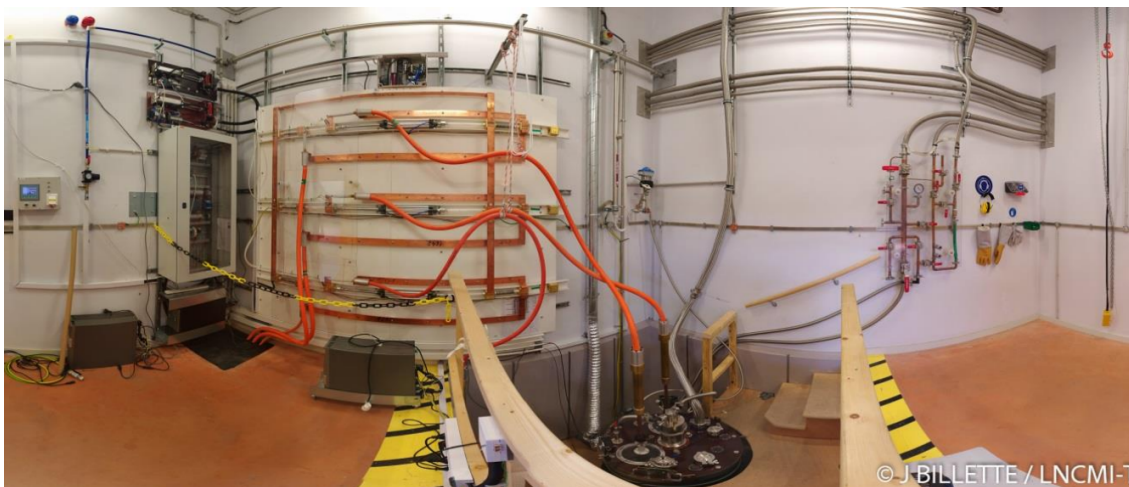


FIGURE 2.4 – Photo panoramique de l'intérieur d'un box d'expérience.

3. un tir de 90 T d'une durée typique de 100 ms correspond à une puissance d'environ 100 Mégawatt. L'explosion d'une bobine peut dégager une énergie comparable à l'explosion de quelques kg de TNT

2.2 Mesure de transport

Nous utilisons l'installation du LNCMI pour réaliser des mesures de transport dans les supraconducteurs non-conventionnels. Cette section est dédiée à un rappel de la technique, qui est très bien détaillée dans les travaux de thèse de mes prédécesseurs [39, 50].

2.2.1 Préparation et mesure des échantillons

Dans une mesure de transport, on mesure les composantes du tenseur des résistivités en imposant le courant suivant une direction et en mesurant la tension suivant une autre (ou la même). Dans cette thèse, nous avons mesuré la magnétorésistance transverse R_{xy} pour les mesures d'effet Hall et la magnétorésistance longitudinale R_{xx} . La configuration de mesure est représentée en figure 2.5 et permet de réaliser une mesure suivant la méthode 4 fils, pour s'affranchir des résistances de ligne du circuit.

Les connexions sont faites avec du fil d'argent de $38 \mu\text{m}$ collé à la laque d'argent sur des contacts d'or diffusés par pulvérisation cathodique à la surface de l'échantillon pour limiter les résistances de contact. Les échantillons ont une taille typique de l'ordre de la centaine de μm et sont fixés sur une plaque de saphir ($1.5 \text{ mm} \times 1.5 \text{ mm} \times 0.5 \text{ mm}$) puis installés sur le porte échantillon. L'autre extrémité des fils d'argent est connectée aux paires torsadées qui sont reliées à de la tête de canne. L'ensemble des connections est faite en limitant les boucles ouvertes et de la graisse à vide est appliquée sur les fils pour limiter les vibrations pendant le tir (cf. second terme de l'équation 2.1).

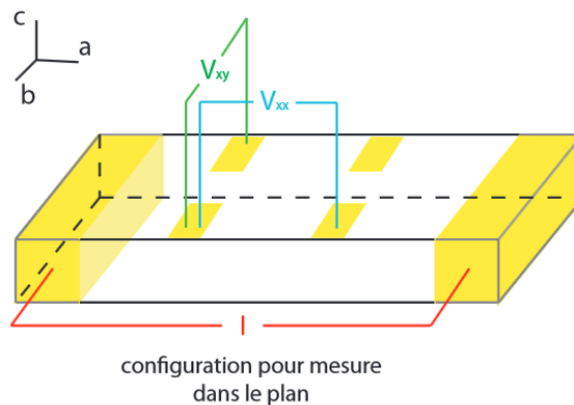


FIGURE 2.5 – Schéma représentant deux configurations de mesure. À gauche, le courant est appliqué perpendiculairement aux plans et la tension est mesurée dans la même direction (suivant **c**). À droite, une configuration pour des mesures dans le plan d'effet Hall (à partir de V_{xy}) et de magnétorésistance longitudinale (courant et tensions dans le plan **ab**). [50]

Comme les pads de mesures ne sont jamais parfaitement alignés, la tension mesurée est toujours composée d'un mélange entre une composante R_{xy} et une composante R_{xx} . Pour

isoler une composante ou l'autre, il faut réaliser deux tirs successifs dans les mêmes conditions expérimentales mais en inversant la polarité du champ. Les résistances réellement mesurées en polarité positive (UP) et négative (DN) s'expriment alors :

$$R_{mes}^{UP} = R_{xx} + R_{xy} \qquad R_{mes}^{DN} = R_{xx} - R_{xy}$$

La symétrisation et l'antisymétrisation de ces deux signaux permet d'obtenir R_{xx} et R_{xy} tels que :

$$R_{xx} = \frac{R_{mes}^{UP} + R_{mes}^{DN}}{2} \qquad R_{xy} = \frac{R_{mes}^{UP} - R_{mes}^{DN}}{2}$$

Pour la magnétorésistance transversale R_{xy} l'antisymétrisation supprime toute contamination éventuelle provenant d'un autre axe que celui mesuré. De cette grandeur est ensuite déduit ρ_{xy} :

$$\rho_{xy}(B) = t \frac{w}{l} R_{xy} \qquad (2.2)$$

avec t , w l'épaisseur et la largeur de l'échantillon, et l la distance entre les contacts. On en déduit le nombre de Hall :

$$R_H(B) = \frac{\rho_{xy}(B)}{B} \qquad (2.3)$$

2.2.2 Chaîne d'acquisition et lock-in numérique

Nos mesures sont réalisées à des fréquences typiques de 60 kHz par détection synchrone. Cette technique est nécessaire pour isoler le signal utile des tensions induites (malgré les efforts faits pour limiter les boucles ouvertes) et autres bruits de mesure. Le principe de base est de multiplier le signal utile à un signal de même fréquence, puis d'appliquer un filtre passe bas pour ne conserver que la composante continue (figure 2.6). L'opération peut être soit réalisée par un appareil dédié, soit numériquement.

Nous utilisons la méthode numérique avec un programme de démodulation codé en python. Notre source de courant est un générateur alternatif Stanford (Modèle SR830) en série avec une résistance en série ($1k\Omega$). Nos fréquences de travail sont de l'ordre de la dizaine de kHz pour un courant de l'ordre du milliampère et un signal utile de quelques μV . Ce dernier est amplifié (gain de 200) et mesuré par des cartes d'acquisition PXI-5922 (500 kS/s , 21 bits). Le signal de référence est fourni par le générateur.

2.3 L'oscillateur à diode Tunnel

Je vais maintenant présenter une autre technique de mesure appelée TDO (pour "Tunnel diode oscillator" en anglais) qui permet de mesurer les variations de résistivité sans avoir

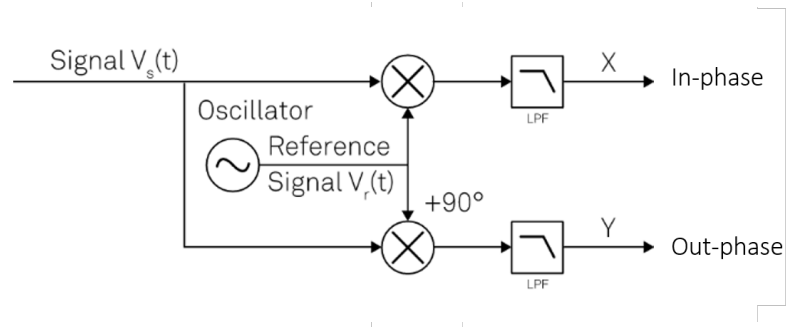


FIGURE 2.6 – Principe de fonctionnement de la démodulation lock-in. L’amplitude et la phase du signal numérisé $V_s(t)$ (pulsation ω_s) sont analysées par rapport à une référence $V_r(t)$ (pulsation ω_r) fournie par un générateur et de même pulsation. Le signal d’entrée est séparé en deux composantes, la première est multipliée au signal de référence (sortie X) et la seconde au signal de référence déphasée de 90° (sortie Y). Les signaux de sortie sont ensuite filtrés (passe-bas) pour rejeter le bruit et la composante 2ω .

besoin de réaliser des contacts électriques sur l’échantillon. Les fréquences de travail typique en TDO peuvent aller de la dizaine de MHz à plusieurs centaines de MHz, ce qui en fait une technique intéressante pour une application en champ pulsé. Après une description de la technique, je vais présenter les améliorations que nous avons réalisé et qui ont permis d’augmenter le rapport Signal/Bruit (S/B) d’un facteur 20. L’ensemble de notre travail a permis de rendre le TDO stable, hautement sensible et fiable pour les mesures d’oscillations quantiques en champ pulsé.

2.3.1 Présentation de la technique TDO

Le TDO est une technique de mesure sans contact des propriétés d’un matériau qui exploite le couplage inductif entre un échantillon et un circuit LC auto-résonant. Le couplage est réalisé en plaçant l’échantillon à l’intérieur de la bobine du circuit dont la fréquence de résonance est de l’ordre de quelques dizaines de MHz. Lorsque les propriétés de l’échantillon changent sous l’influence d’un paramètre extérieur, l’inductance de la bobine varie ce qui modifie la fréquence de résonance du circuit : $f_0 \approx \frac{1}{2\pi\sqrt{LC}}$.

La diode tunnel

Le circuit TDO est composé d’un résonateur LC dont l’oscillation est entretenue par une diode tunnel polarisée dans sa région de résistance négative.

Le courant que fournit la diode tunnel provient du passage par effet tunnel des électrons à travers une barrière de potentiel formée d’une jonction pn fortement dopée. L’observation faite par son inventeur, Leo Esaki, est la particularité de sa courbe caractéristique qui possède

une pente négative dans une certaine région de polarisation [51] (Figure 2.7).

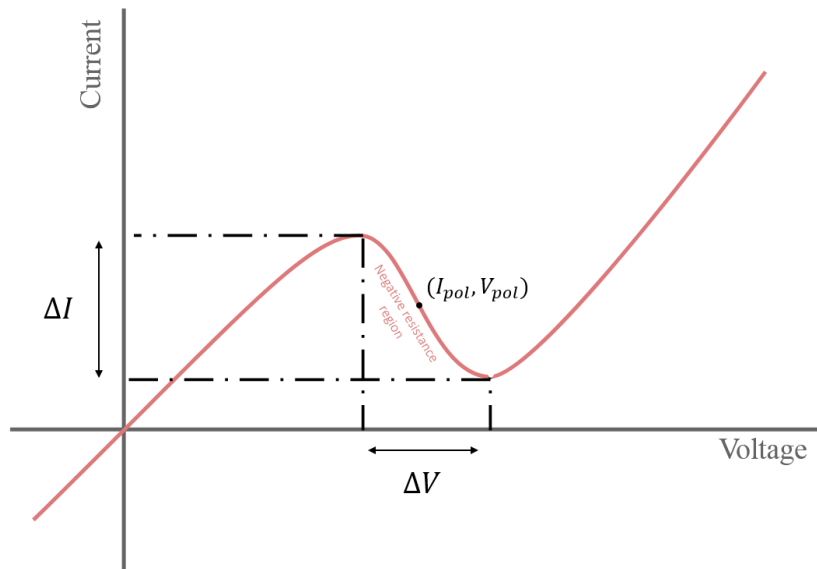


FIGURE 2.7 – Courbe caractéristique $I(V)$ d'une diode tunnel. Lorsque la diode est polarisée au point (I_{pol}, V_{pol}) , la résistance différentielle r_{diff} est négative.

Polarisée au point (I_{pol}, V_{pol}) , la diode tunnel agit comme une résistance négative $-R$ pour les signaux alternatifs. Pour nous en convaincre, nous allons dissocier d'une part la résistance DC de la diode, et d'autre part la résistance différentielle AC.

La résistance différentielle est définie dans le régime de petites variations (signaux AC) : $R_{diff} = \Delta U / \Delta I$. Au point I_{pol} , la puissance $P_{diff} = \Delta U / \Delta I$ est négative : la diode fournit de la puissance au circuit, c'est un composant actif.

En régime DC, la résistance est positive (Courant I_{pol} et tension positifs) et la diode tunnel dissipe de l'énergie. Cela correspond aux déperditions dues à la tension du bias de polarisation, c'est la puissance que l'on fournit pour maintenir la diode polarisée au point I_{pol} .

Le circuit et la canne de mesure

Le circuit utilisé dans cette thèse est représenté en figure 2.8. Il est inspiré des travaux originaux de Van Degrif [52] et de ses nombreuses adaptations aux champs pulsés.

On trouve d'abord le résonateur LC composé de l'inductance L_t (qui varie de 10 à 400 nH) et de la capacité C_t (22 pF), séparées par une ligne de transmission. L'inductance, positionnée au centre du champ avec l'échantillon, est formée de deux bobines enroulées dans un sens opposé. Cette géométrie permet de compenser l'effet des tensions induites qui tendent à faire sortir la diode tunnel de sa région de résistance négative. Les bobines compensées ont été proposées pour la mesure des oscillations quantiques du composé organique $\kappa - (ET)_2Cu(NCS)_2$ [53] et ensuite largement reprises dans la suite des applications du TDO aux champs pulsés.

La ligne de transmission sépare l'inductance L_t du circuit placé en tête de canne à température

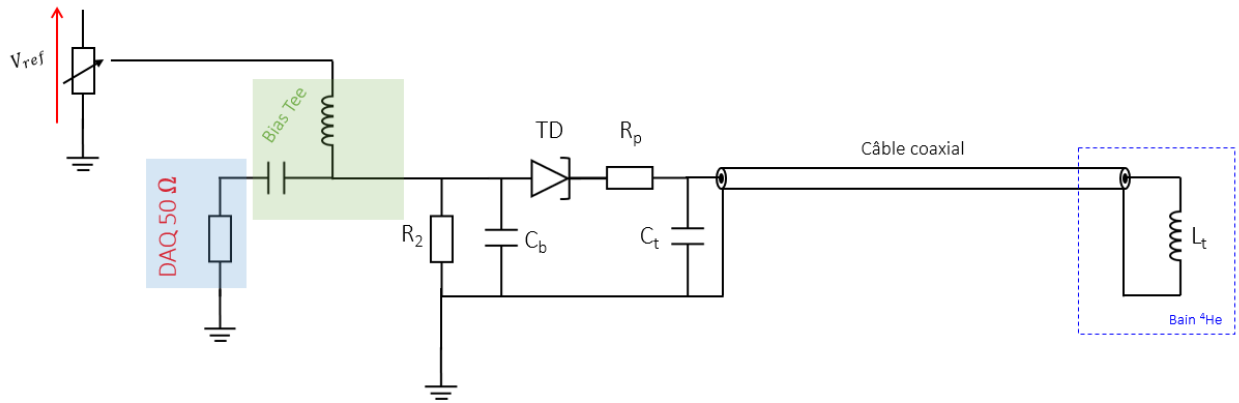


FIGURE 2.8 – Circuit TDO du LNCMI. Le résonateur est composé de la capacité C_t (22 pF) et de l'inductance L_t (de 10 à 400 nH) qui sont séparés par un câble coaxial. La diode tunnel qui alimente le résonateur est une MBD2057 (EclipseMdi). Les autres composants du circuits valent : $R_p = 100\Omega$, $R_2 = 2850\Omega$ et $C_b = 22\text{ pF}$.

ambiante. Elle permet de pallier le manque de place dans les expériences fort champ [54]. Elle évite aussi l'apport de chaleur par la résistance R_p dans les expériences très basses températures [55]. Le prix à payer de séparer la bobine de l'inductance de mesure est la baisse de la fréquence de résonance du circuit et donc de la sensibilité. Nous reviendrons sur ce point dans la partie 2.3.2.

Entre l'inductance L_t et la capacité C_t , la résistance R_p compense une fraction de la résistance négative de la diode de manière à diminuer l'amplitude des oscillations du circuit LC. Cela permet de limiter les harmoniques dues aux non-linéarités de la diode tunnel.

La tension de polarisation du circuit est réglée par un potentiomètre. La résistance R_2 fixe la tension aux bornes de la diode tunnel. La capacité bypass C_b permet à une partie du signal RF d'être extrait vers le bias-Tee. Il est utilisé pour séparer le signal DC du signal RF de l'oscillateur avant qu'il ne soit numérisé par les cartes (DAQ). Il est positionné entre le circuit TDO et les cartes d'acquisition.

Pour plus de détail sur le rôle des composants, le lecteur intéressé trouvera une description très complète dans la réf. [55]

Les cannes de mesure TDO

Nous disposons de deux cannes de mesures TDO : une pour les mesures en He^4 et une pour l' He^3 . La canne He^4 , présentée sur la figure 2.9, est conçu pour mesurer simultanément deux échantillons⁴. Les deux circuits TDO sont connectés à la tête de canne (connecteurs SMA) et reliés aux bobines L_t par un câble coaxial cryogénique semi-rigide de 1.25 m. Il sont aussi connectés au Bias Tee par un câble coaxial de 3 m. Les deux bobines L_t sont

4. C'est une des différences avec la canne He^3 , ou un seul échantillon peut être mesuré à la fois.

collées à une plaque de saphir et installées dans le porte échantillon, où se trouvent aussi le thermomètre et la bobine pick-up.

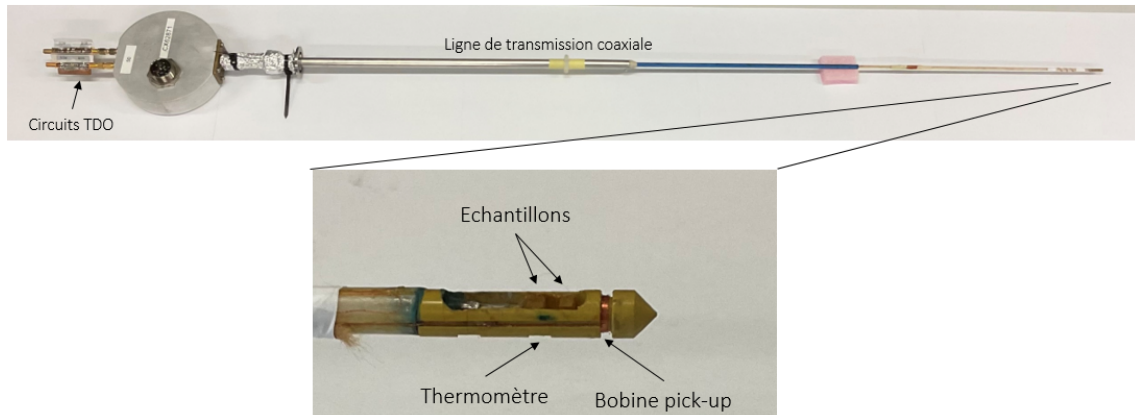


FIGURE 2.9 – Photo de la canne TDO ^4He avec un agrandissement du porte échantillon. De gauche à droite : les deux circuits TDO connectés à la tête de canne, la ligne de transmission de 1.25 m qui fait la jonction entre les circuits et les bobines de mesure (inductance L_t), le porte échantillon qui contient les deux bobines TDO, le thermomètre et la bobine pick-up.

Acquisition du signal

Avant acquisition, le signal TDO est amplifié par un amplificateur minicircuit ZFL-500LN (+23 dB). Si la fréquence d'échantillonnage des cartes est suffisante, le signal peut être acquis directement. Une partie des données présentées dans la suite ont été mesurées en acquisition directe avec des cartes d'acquisition PXI5122 100 MS/s, 14 bits.

Si la fréquence des cartes d'acquisition est trop faible, on mesure le signal après une démodulation hétérodyne : le signal TDO est multiplié à un signal de fréquence différente et seule la composante basse fréquence est conservée (filtre passe bas)⁵. La différence est choisie pour convenir à la bande passante des cartes d'acquisition. Nous avons utilisé la démodulation hétérodyne pour les mesures d'oscillations quantiques de Hg-1223, car nous ne disposons pas de cartes rapides pour une acquisition directe en début de thèse.

Démodulation en fréquence

Une fois le signal acquis, il faut pouvoir mesurer l'évolution de la fréquence en fonction du temps. Contrairement aux expériences en champ magnétique continu, les constantes de temps en champ pulsé doivent être suffisamment courtes pour suivre la rapide évolution de la fréquence pendant le pulse.

5. Cette technique rappelle la démodulation lock-in, mais dans le cas de la démodulation hétérodyne, la composante conservée est alternative.

Nous utilisons la transformée de Fourier glissante [56] avec la fonction "spectrogram" de la librairie SciPy (Python) qui consiste en une succession de transformées de Fourier discrètes du signal brut TDO réalisées à intervalles réguliers. La taille de la fenêtre et la durée de l'intervalle choisi doivent être faibles par rapport à la durée totale du pulse. La dépendance temporelle de la fréquence est reconstituée par lecture des spectres de Fourier successifs. La taille de la fenêtre fixe la constante de temps τ d'analyse⁶

La limitation principale de l'utilisation de la transformée de Fourier discrète est le pas en fréquence δf dû à la discrétisation de l'espace de Fourier, qui est important par rapport aux variations de fréquences recherchées. Par exemple, une analyse sur $N = 2^{10} = 1024$ points avec des cartes d'acquisition PXI-5122 de fréquence d'échantillonnage $f_s = 100 \text{ Ms/s}$ donne un pas en fréquence de :

$$\delta f = \frac{1}{\tau} \approx 100 \text{ kHz} \quad (2.4)$$

Même en diminuant artificiellement δf par utilisation du zero-padding⁷, on atteint au mieux un pas de 1.5 kHz (en limitant le temps de calcul à une durée de l'ordre de la minute). Cette valeur est supérieure de plus d'un ordre de grandeur aux variations de fréquence du circuit induit par les oscillations quantiques mesurées dans Sr_2RuO_4 (chapitre 3).

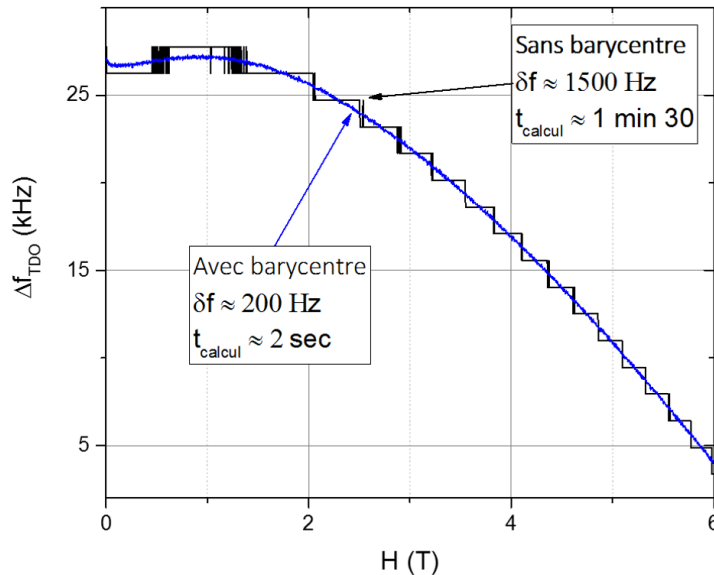


FIGURE 2.10 – Comparaison du signal TDO démodulé avec et sans utilisation du barycentre sur un tir à 6 T. Le signal démodulé à partir du spectrogram présente des sauts en fréquence $\delta f = 1.5 \text{ kHz}$ dû à la discrétisation de l'espace de Fourier. L'utilisation du barycentre supprime cet effet en calculant la moyenne arithmétique de la fréquence centrale.

6. La valeur d'entrée dans la fonction python pour la taille de la fenêtre est définie en nombre de points du signal. Comme l'algorithme FFT nécessite un nombre de points $n = 2^N$ avec N un entier, c'est en réalité cette condition qui fixe la constante de temps. Le choix de l'entier doit être fait de manière à être le plus proche possible de la constante de temps souhaitée

7. Le zero-padding consiste à augmenter la taille de la fenêtre par ajout de points d'amplitude nulle.

Pour supprimer ces effets de discrétisation, nous réalisons un calcul du barycentre (ou centroïde) du spectre de Fourier autour de la fréquence du TDO. Le calcul du barycentre correspond au calcul de la moyenne arithmétique des points qui composent le pic central, pondérés par leur poids (amplitude) dans la transformée de Fourier :

$$f_{bary} = \frac{\sum_i c_i f_i}{\sum_i f_i} \quad (2.5)$$

Avec c_i l'amplitude de la fréquence f_i dans l'espace de Fourier. En prenant soin de calculer la moyenne sur un nombre de points suffisant, on est en mesure d'extraire la fréquence du circuit sans être limité par les artefacts de discrétisation (figure 2.10) : le bruit $\delta f = 200Hz$ mesuré avec calcul du barycentre, correspond au bruit intrinsèque du TDO.

Ce que mesure le TDO

Notre utilisation du TDO se limite principalement à la mesure d'échantillons conducteurs. Dans ce cas, on peut montrer que la grandeur mesurée est la résistivité [53]. Cela est dû au fait que le champ AC de la bobine est écranté par l'échantillon sur une longueur caractéristique appelée profondeur de peau, proportionnelle à la résistivité.

La profondeur de peau émerge naturellement en étudiant l'amortissement d'un champ magnétique alternatif $\mathbf{B}(x) = \mathbf{B}_0 e^{j\omega t}$ dans un échantillon conducteur. À partir des équations de Maxwell :

$$\begin{cases} \nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \\ \nabla \times \mathbf{B} = \mu_0 \left(\mathbf{J} + \varepsilon_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \right) \end{cases} \quad (2.6)$$

et de la loi d'Ohm :

$$\mathbf{J} = \sigma \mathbf{E} \quad (2.7)$$

On construit l'équation de diffusion :

$$\Delta \mathbf{B} - \mu \sigma \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} = \mathbf{0}. \quad (2.8)$$

Les solutions $\mathbf{B}(x, t)$ prennent la forme d'une onde évanescence amortie exponentiellement sur une longueur caractéristique complexe δ_c : $\mathbf{B}(x, t) = \mathbf{B}_0 e^{-x/\delta_c} e^{j\omega t}$. On en déduit l'épaisseur de peau :

$$\delta = |\delta_c| = \sqrt{\frac{\rho}{\pi \mu f}} \quad (2.9)$$

Avec ρ la résistivité de l'échantillon, μ la perméabilité magnétique et f la fréquence du champ magnétique. Toute variation de résistivité de l'échantillon modifie alors l'épaisseur de

peau en laissant pénétrer plus ou moins de flux magnétique en son sein. Cette variation de flux magnétique est perceptible sur la fréquence de résonance du circuit TDO via la modification de l'inductance de la bobine.

2.3.2 Amélioration du rapport signal/bruit

Je vais maintenant présenter les améliorations que nous avons apporté au circuit TDO et qui ont permis un gain en sensibilité. Nous allons voir que les deux paramètres qui limitent la sensibilité du circuit sont l'impédance du câble coaxial placé entre la bobine et la capacité, et le facteur de remplissage. En changeant les géométries de bobines, nous avons été en mesure d'augmenter de manière significative le rapport signal/bruit en modifiant ces deux paramètres.

L'inductance L_t et la ligne de transmission TDO

Dans la canne TDO, la capacité C_t et l'inductance L_t sont séparées par 1.25 mètre de câble coaxial qui contribue de manière non-négligeable à la fréquence de résonance du circuit ⁸. On peut réécrire l'expression de la fréquence de résonance en incluant la capacité C_{coax} et l'inductance L_{coax} du câble coaxial (figure 2.11) :

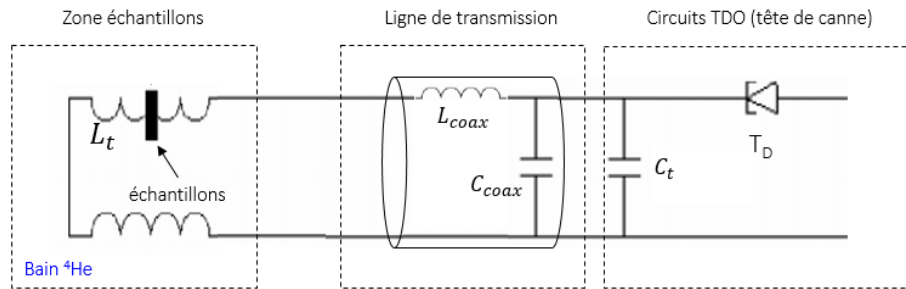


FIGURE 2.11 – Schéma équivalent de la canne TDO. La ligne de transmission coaxiale contribue à l'inductance et à la capacité totale du circuit. On suppose que seule l'inductance L_t varie pendant un tir avec les propriétés de l'échantillon.

$$f_{TDO} = \frac{1}{2\pi\sqrt{(L_t + L_{coax})C}} \quad (2.10)$$

Avec L_t l'inductance de la bobine TDO, L_{coax} l'inductance du câble coaxial et $C = C_{coax} + C_t$ la capacité totale du circuit. Le câble coaxial induit aussi une baisse de sensibilité, c'est à dire de la variation de la fréquence de résonance lorsque l'inductance de la bobine varie.

8. À partir des caractéristiques du câble (SC-086/50-SB-B) on peut déterminer son inductance $L_{coax} = 300$ nH et sa capacité $C_{coax} = 120$ pF équivalente. Ces valeurs sont supérieures de près d'un ordre de grandeur à $C_t \sim 22$ pF et $L_t \sim 15$ nH : la fréquence de résonance du circuit TDO est donc dominée par les caractéristiques du câble coaxial.

On peut le montrer en différenciant l'expression (2.10) et en supposant que seule l'inductance L_t de la bobine TDO varie avec les propriétés de l'échantillon. On obtient :

$$\frac{df_{TDO}}{f_{TDO}} = -\frac{1}{2} \frac{L_t}{L_t + L_{coax}} \frac{dL_t}{L_t} \quad (2.11)$$

L'équation (2.11) nous montre la relation de proportionnalité entre la variation d'inductance de la bobine et la variation de la fréquence de résonance du circuit. Le pré-facteur indique que la contribution du câble coaxial tend à diminuer la sensibilité : dans la limite $L_{coax} \gg L_t$, les variations d'inductance de la bobine TDO n'auront aucune influence sur les variations de fréquence de résonance du circuit. L'inductance L_t de la bobine TDO ne doit donc pas être négligeable par rapport à l'inductance du câble coaxial.

Inductance des bobines TDO

La bobine TDO est de diamètre typique de 500 μm et est le seul élément du circuit fabriqué à la main. La valeur de son inductance est donc maîtrisable et dépend du nombre de tours et de la géométrie de la bobine. La géométrie habituellement utilisée en champ pulsée est la géométrie solénoïde (figure 2.12.a). Par la suite, je vais présenter le gain en signal obtenu grâce à une nouvelle géométrie de bobines spirales compensées double couche (figure 2.12.b). Une de mes réalisations pendant cette thèse a été de développer la méthode de fabrication pour une application en champ pulsé. Pour comparer les deux types de bobines, nous devons être en mesure de calculer leur inductance à partir de leurs dimensions (figure 2.12). Pour les bobines solénoïdes compensées, j'ai utilisé la formule de Nagaoka [57] :

$$L(\mu H) = 2 \frac{N^2}{400D + 110l} \quad (2.12)$$

Avec N le nombre de tours, D le diamètre moyen et l la hauteur du solénoïde (en cm). La formule de Nagaoka prend en compte la longueur finie des bobines via un facteur correctif dépendant du rapport D/l .

Pour les bobines spirales (aussi appelées spirale d'Archimède), une formule analytique a récemment été proposée [58] :

$$L(\mu H) = 2N^2 \frac{(D_{out} + D_{in})^2}{8(15D_{out} - 7D_{in})2.54} \quad (2.13)$$

Avec N le nombre de tours, D_{in} et D_{out} les diamètres intérieurs et extérieurs (en cm). Les expressions 2.12 et 2.13 prennent en compte la double bobine compensée (ajout d'un facteur 2)

Dans la pratique, augmenter l'inductance L_t par rapport à L_{coax} est donc enfantin : il suffit de faire autant de tours que nécessaire. Mais en réalité, le rapport entre la taille de l'échantillon

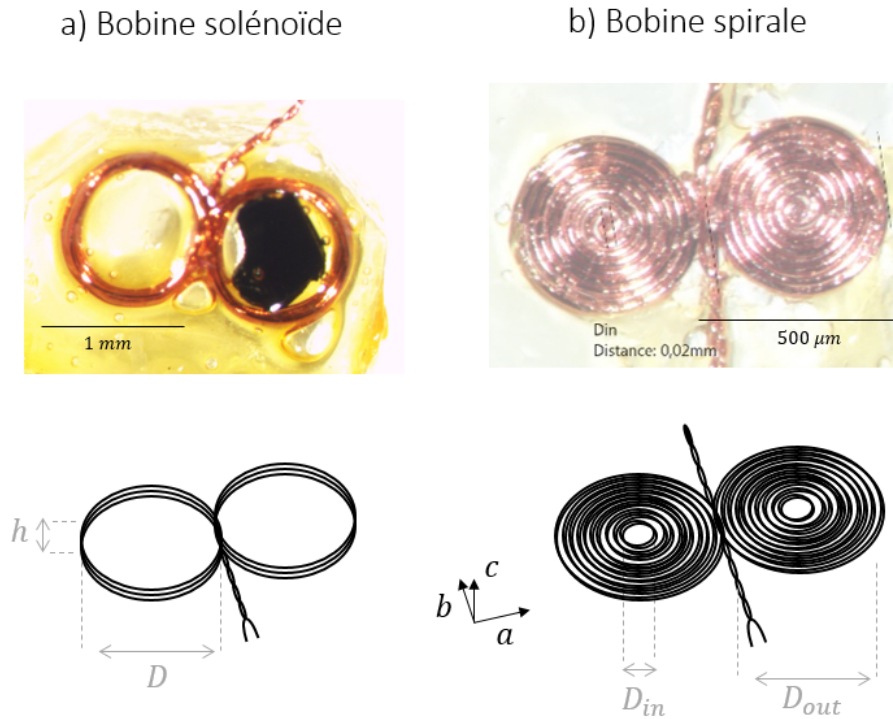


FIGURE 2.12 – Photos et caractéristiques géométriques des bobines TDO pour les géométries : **a)** solénoïdes compensées et **b)** spirales compensées.

et celle de la bobine, appelé facteur de remplissage, est aussi important pour avoir une bonne sensibilité.

Le facteur de remplissage

Dans sa description la plus simple, le facteur de remplissage η est défini comme le rapport du volume de l'échantillon sur le volume de la bobine (pour une bobine solénoïde). Plus le facteur de remplissage est grand, meilleur est le couplage entre la bobine et l'échantillon et plus grande est la sensibilité.

Pour le montrer, calculons la variation d'inductance d'une bobine lors de la transition supraconductrice d'un échantillon. La grandeur d'intérêt est le flux magnétique qui est relié à l'inductance par la formule $\phi_0 = L_0 i$. En présence d'un échantillon supraconducteur, le flux diminue : le champ magnétique est écranté sur une longueur correspondant à la longueur de pénétration de London, très petite par rapport aux dimensions de l'échantillon⁹. Le flux magnétique, ainsi que l'inductance sont donc réduits d'un rapport $\frac{V_{sample}}{V_{coil}}$ (figure 2.13 b) :

$$\Phi_{supra} = \left(1 - \frac{V_{sample}}{V_{coil}}\right) \Phi_0 \quad (2.14)$$

9. Dans YBCO, $\lambda_L \sim 1\mu m$

On a donc :

$$\frac{L_{supra}}{L_0} = 1 - \frac{V_{sample}}{V_{coil}} \quad (2.15)$$

$$(2.16)$$

Après une transition supra \rightarrow normal, l'effet de peau écrante le champ magnétique de la bobine sur une distance δ : seule une fraction du volume de l'échantillon, $V_{expelled} = V_{sample} - S\delta$ contribue à diminuer le flux total de la bobine (figure 2.13 c)) :

$$\frac{L_{normal}}{L_0} = 1 - \frac{V_{sample} - S\delta}{V_{coil}} \quad (2.17)$$

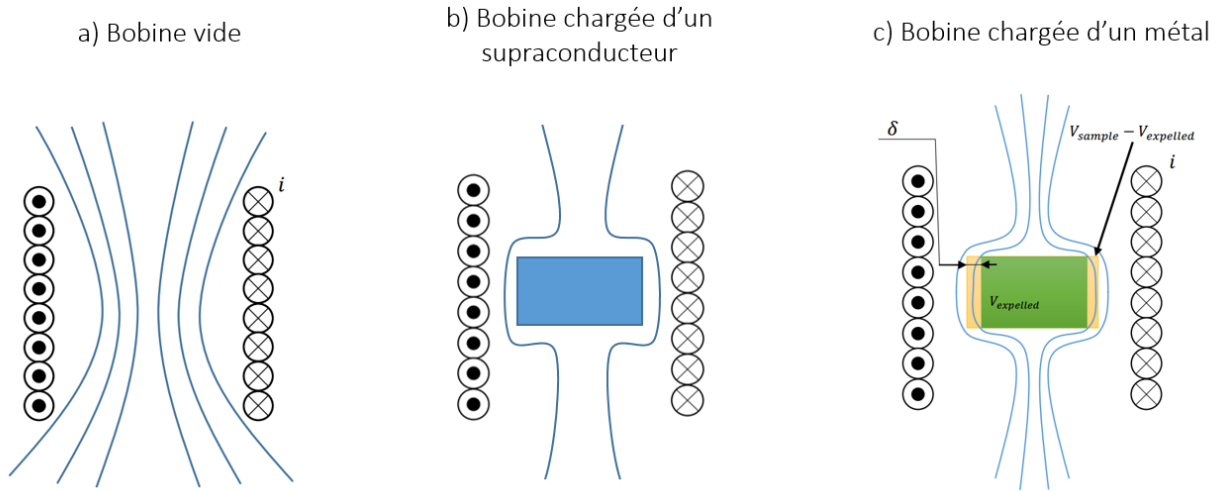


FIGURE 2.13 – **a)** Vue en coupe d'une demi-bobine compensée vide, les lignes bleues représentent le flux magnétique. **b)** Bobine chargée d'un échantillon supraconducteur : le flux est diminué du volume de l'échantillon (faible longueur de pénétration de London) **c)** Bobine chargée d'un échantillon conducteur : le flux est diminué du volume $V_{expelled}$, qui représente le volume de l'échantillon au-delà de l'épaisseur de peau. Adapté de [59]

On peut maintenant estimer la variation relative d'inductance à la transition :

$$\left(\frac{dL_t}{L_t} \right)_{supra \rightarrow normal} = \frac{\delta S}{V_{coil}(1 - \eta)} \quad (2.18)$$

qui dépend explicitement du facteur de remplissage et contribue à la variation relative de la fréquence de résonance du TDO via l'équation 2.11. En d'autres termes, le facteur de remplissage impacte aussi la sensibilité du circuit. Comme pour l'inductance, nous devons en donner une définition claire qui dépend de la géométrie de bobine. Pour les bobines solénoïdes compensées, le facteur de remplissage n'est autre que le rapport du volume de l'échantillon

sur celui de la bobine compensée, comme précédemment évoqué :

$$\eta_{solenode} = \frac{V_{sample}}{2V_{solenoid}} = 2 \frac{V_{sample}}{\pi D^2 N e} \quad (2.19)$$

avec V_{coil} le volume d'un seul solénoïde (figure 2.14 a). Pour les bobines spirales, nous avons fait le choix de le définir comme le rapport de la surface de l'échantillon sur la surface totale de la bobine compensée (soit $4S_{coil}$ sur la figure 2.14 b) :

$$\eta_{spirale} = \frac{S_{sample}}{4S_{coil}} = \frac{S_{sample}}{\pi(D_{in} + 2Ne)^2} \quad (2.20)$$

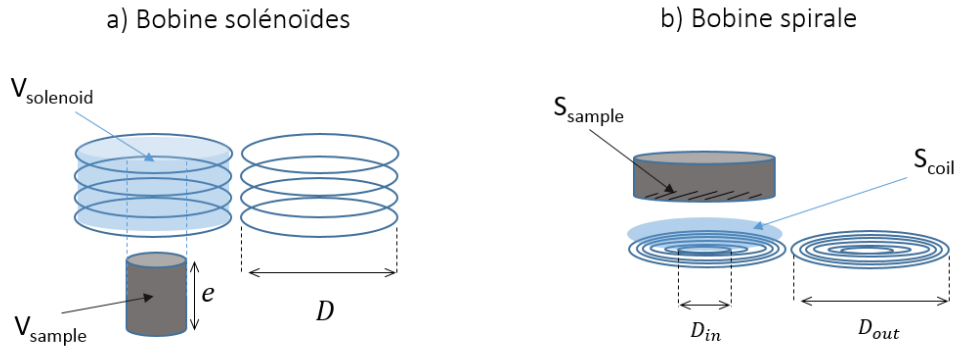


FIGURE 2.14 – Définition du facteur de remplissage et dimensions pour **a)** les bobines solénoïdes compensées et **b)** les bobines spirales compensées.

À l'instar de l'inductance, le facteur de remplissage est déterminé pendant la fabrication des bobines : on fait en sorte que les dimensions des bobines soient au plus proche de celles des échantillons. C'est donc la taille des échantillons qui détermine indirectement l'inductance des bobines. Comme les échantillons étudiés sont souvent fins, et que c'est leur épaisseur qui fixe le nombre de tours pour les bobines solénoïdes (figure 2.14.a), l'inductance des bobines solénoïdes est souvent faible (≈ 10 nH) par rapport à celle du câble coaxial. Cette contrainte peut être supprimée en utilisant une géométrie spirale dont le facteur de remplissage ne dépend plus de l'épaisseur de l'échantillon, mais de sa surface en contact avec la bobine (figure 2.14 b). Nous allons voir par la suite que ces observations se vérifient expérimentalement.

Test des différentes géométries sur un échantillon de YBCO

Nous avons testé la sensibilité du circuit TDO en mesurant les oscillations quantiques d'un échantillon de YBCO ortho II $T_c = 59$ K avec différentes géométries de bobines. Nous avons obtenu un important gain en sensibilité en remplaçant la géométrie solénoïde par une géométrie spirale, mais aussi en augmentant l'inductance des bobines spirales par superposition de deux couches (bobine spirale double). Les essais ont été réalisés dans la bobine 70 T à

basse température (4.2 K). Les dimensions de l'échantillon (plan **ab**) sont $490 \mu\text{m} \times 230 \mu\text{m}$, avec une épaisseur suivant l'axe **c** de $40 \mu\text{m}$. Le champ magnétique (\mathbf{B}_0) de la bobine 70 T et celui des bobines TDO (\mathbf{B}_1) sont orientés parallèles à l'axe **c** (figure 2.15).

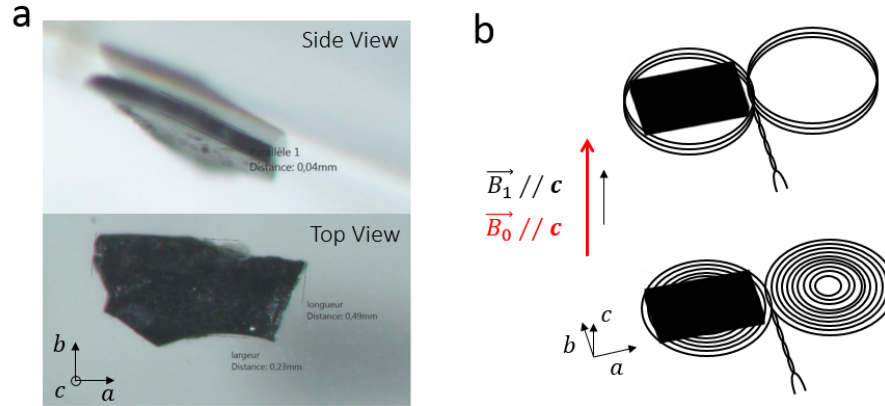


FIGURE 2.15 – **a)** Photo de l'échantillon de YBCO ortho II. **b)** Schéma de la disposition de l'échantillon sur les deux bobines de mesures. Le champ AC des bobines TDO (B_0) est orienté perpendiculairement au plan **ab**, de même que le champ (B_1) de la bobine 70 T.

Nous avons testé 3 configurations de bobines : bobines solénoïdes, bobines spirales et bobines spirales double couche. Cette dernière géométrie de bobine consiste à superposer deux bobines spirales l'une sur l'autre. Cela permet d'augmenter l'inductance en conservant le même facteur de remplissage (surfaces identiques). Les inductances et facteurs de remplissage des trois géométries utilisées¹⁰ sont résumés dans la table 2.1.

	Solénoïde	Spirale	Spirale double
Nombre de tours	3	10	8
Inductances (nH)	12	50	70
Facteur de remplissage (η)	0.1	0.1	0.2

TABLE 2.1 – Comparatif des caractéristiques des bobines TDO

La figure 2.16 a) montre l'évolution de la fréquence TDO en fonction du champ magnétique pour les 3 configurations à $T = 4.2 \text{ K}$. On distingue 3 régions :

- de 0 à 17T : l'échantillon est supraconducteur dans l'état solide de vortex [60]. L'inductance augmente avec le nombre de vortex (qui croît avec le champ).
- de 18 à 22 T : c'est la transition supraconductrice l'échantillon passe d'un régime de zéro résistance à l'état normal, il y a donc une augmentation de l'inductance (longueur

10. Pour les bobines spirales, nous avons utilisé des fils de $22 \mu\text{m}$ de diamètre pour augmenter le nombre de tours pour un même facteur de remplissage. Cette opération est néanmoins périlleuse pour les bobines solénoïdes pour des raisons de fabrication.

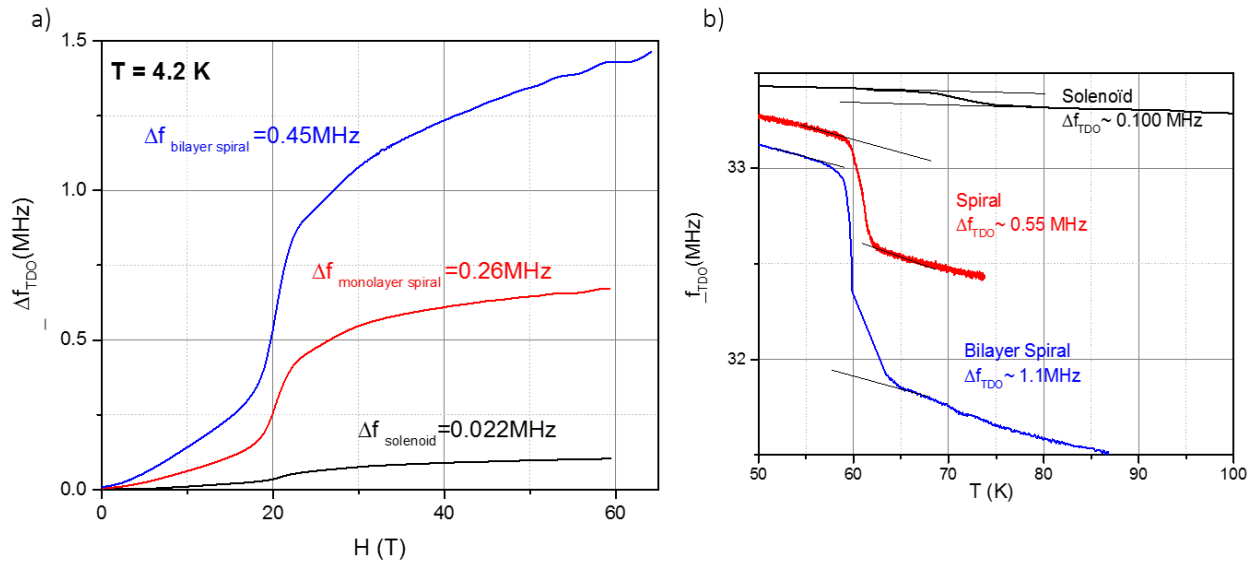


FIGURE 2.16 – a) Signal TDO en fonction du champ magnétique pour les 3 configurations de bobine. Le saut en fréquence à la transition supraconductrice ($H_{c2} \approx 18T$) et l’amplitude des oscillations quantiques sont plus importants pour la bobine spirale double couche. b) Signal TDO en fonction de la température pour les 3 configurations de bobine. Comme pour la dépendance en champ : le saut en fréquence à $T_c \approx 59K$ est plus important pour la bobine spirale double couche.

de peau supérieure à la longueur de pénétration de London)

- Au delà de 22 T : l’échantillon est dans l’état normal. Des oscillations quantiques sont visibles sur les 3 configurations. La présence d’oscillations quantiques à ces valeurs de dopage dans YBCO provient d’une reconstruction de la surface de Fermi par l’ordre de charges (cf. chapitre 4 section 4.2.5).

La figure 2.17 montre les parties oscillatoires pour les 3 configurations extraites par soustraction d’un polynôme d’ordre 3 aux données brutes. Une nette augmentation de l’amplitude des oscillations est visible entre la configuration solénoïde et spirale double couche. À 55 T, l’amplitude des oscillations quantiques vaut 0.6 kHz pour la bobine solénoïde et passe à 10.5 kHz pour la configuration spirale double couche, soit un signal près de 18 fois supérieur. La géométrie spirale simple donne un résultat intermédiaire, avec une amplitude de 4.8 kHz.

Ce gain peut s’expliquer par l’augmentation des deux paramètres déjà discutés, l’inductance des bobines et le facteur de remplissage. Pour commencer, on remarque d’après la table 2.1 que le facteur de remplissage est identique pour la configuration solénoïde et spirale simple couche (estimé à 0.1). On associe donc l’augmentation de l’amplitude des oscillations quantiques à la plus forte inductance de la bobine spirale (50 nH contre 12 nH pour la bobine solénoïde). Ensuite, c’est avec la configuration spirale double couche que l’amplitude des oscillations est la plus grande. La raison est que cette géométrie permet d’augmenter à la fois

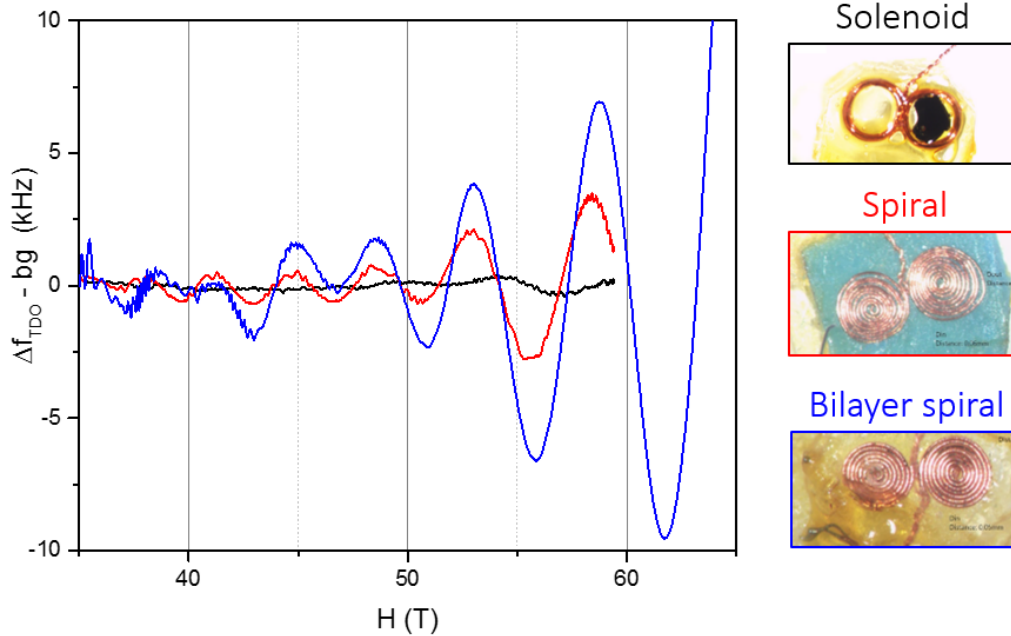


FIGURE 2.17 – Comparaison des parties oscillatoires pour les 3 configurations de bobine. Le passage d’une bobine solénoïde à une bobine spirale simple couche a permis d’augmenter le signal (Amplitude des oscillations) d’un facteur 8. Le signal a encore été augmenté d’un facteur 2.2 au passage à une géométrie spirale double. Le gain total sur le signal entre la configuration solénoïde et spirale double couche est donc d’un facteur ≈ 18 .

le facteur de remplissage et l’inductance (l’ajout d’une couche nécessite de faire moins de tours pour une même valeur d’inductance) par rapport à la bobine spirale. Ainsi, le facteur de remplissage a été doublé par rapport aux autres configurations, et l’inductance est passée à 70 nH contre 50 nH pour la géométrie spirale. La géométrie spirale double couche apporte donc les meilleurs résultats, car elle permet d’avoir à la fois un bon facteur de remplissage et une plus forte inductance.

On remarque que l’on peut arriver à la même conclusion avec les transitions supraconductrices déjà présentées en figure 2.16. En effet, pour la bobine spirale double couche, la transition en champ représente un saut de 450 kHz, contre seulement 22 kHz pour la solénoïde : le saut observé est 20 fois plus important pour la bobine spirale double couche. On retrouve bien le même rapport d’amplitude que celui relevé sur les oscillations quantiques, mesuré à 18 entre la bobine solénoïde et spirale double couche. Les transitions sont donc un bon indicateur pour prédéterminer le couplage entre l’échantillon et la bobine.¹¹

Pour finir, nous nous sommes assurés que l’augmentation du signal obtenue avec les géométries spirales n’était pas associée à une augmentation de bruit. La figure 2.18 compare les

11. A partir du modèle de transition décrit dans la section 2.3.2, j’ai élaboré une feuille de calcul Excel pour choisir la géométrie de bobine la plus adaptée en fonction des dimensions d’un échantillon.

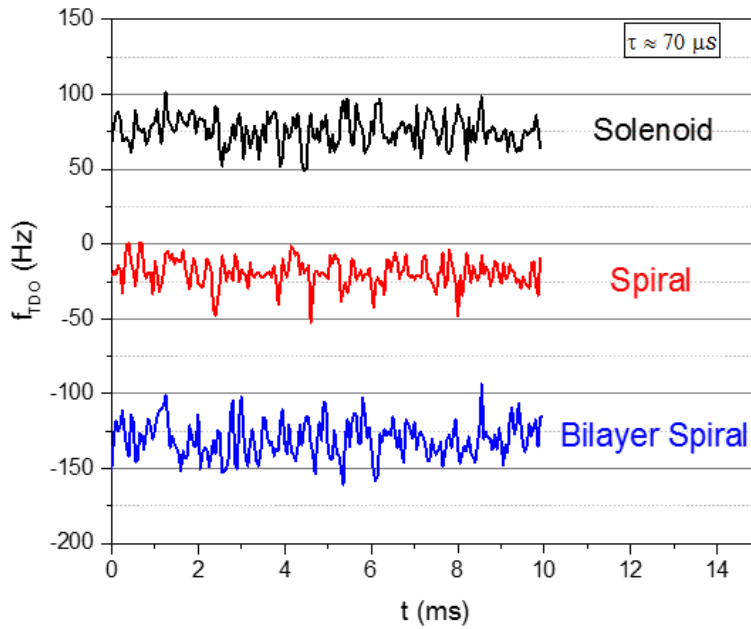


FIGURE 2.18 – Bruit à zero champ pour les 3 bobines. Le bruit est identique pour les 3 configurations ($\approx 50\text{Hz}$).

bruits à zéro champ dans les 3 configurations et nous montre qu'il vaut environ 50 Hz pour les trois géométries de bobines et n'est donc pas modifié par le changement de géométrie.

Au regard des trois derniers paragraphes, nous pouvons conclure que le passage à une géométrie spirale double couche pour les bobines TDO a permis d'augmenter le rapport S/B d'un facteur 20. La figure 2.19 a) présente le signal TDO fort champ d'une bobine double couche vide, démodulé avec une constante de temps de $11\ \mu\text{s}$. Au-dessus de 70 T, le niveau de bruit semble devenir plus important que le bruit à zéro champ (200 Hz). C'est la transformée de Fourier en $1/B$, qui révèle que ce "bruit" correspond aux oscillations quantiques du cuivre constituant les fils de la bobine TDO, de fréquence égale à $\sim 60\ \text{kT}$ (figure 2.19 b). Heureusement, cette fréquence est supérieure aux fréquences étudiées dans la suite de ce manuscrit, et peut être correctement filtrée. Elle témoigne néanmoins de la grande sensibilité qui peut être atteinte par le circuit TDO en utilisant cette nouvelle configuration de bobine.

Conclusion

Dans ce chapitre, j'ai présenté l'environnement expérimental des champs magnétiques pulsés et les techniques de mesure de transport utilisés dans ce travail de thèse. Par la suite, je vais discuter de nouveaux résultats obtenus dans le composé Sr_2RuO_4 suite aux améliorations apportées sur le TDO. Ces améliorations en ont fait une technique de mesure d'oscillations quantiques fiable et hautement sensible désormais à disposition des utilisateurs des champs

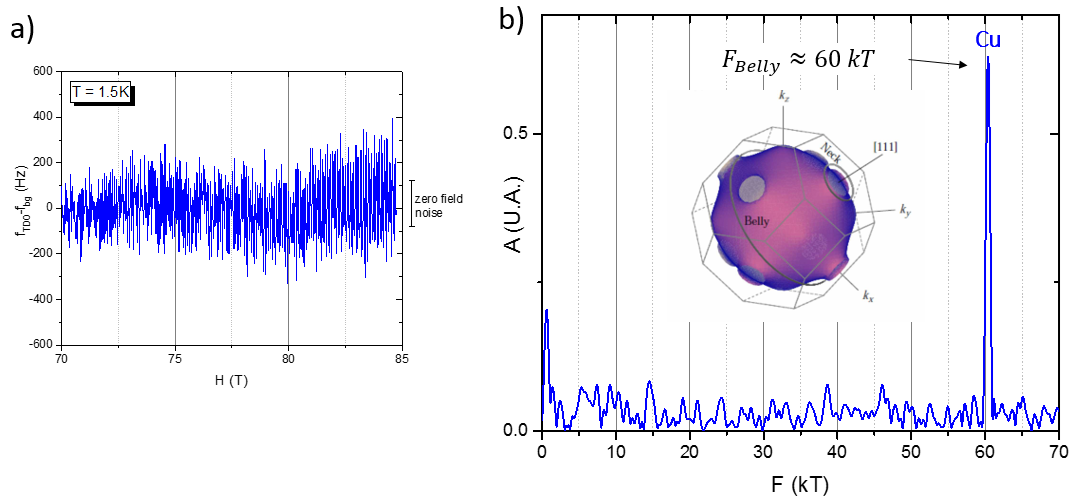


FIGURE 2.19 – Oscillations quantiques du cuivre mesurées en TDO à 1.5 K et transformée de Fourier du spectre oscillatoire. La surface de Fermi du cuivre est représentée sur le spectre de Fourier. La fréquence à 60 kT correspond à l'orbite extrême "Belly" [38].

pulsés du LNCMI.

Chapitre 3

Interférences quantiques dans Sr_2RuO_4

Sommaire

3.1	Présentation du composé	65
3.1.1	Surface de Fermi	65
3.1.2	Gap entre les poches γ et α	67
3.2	Nouvelles fréquences d'oscillations quantiques	70
3.2.1	Oscillations quantiques	70
3.2.2	Analyse du spectre	71
3.2.3	Rupture magnétique et interférences quantiques	73
3.3	Mesure du gap	80
3.3.1	Fréquence α : analyse du tracé de Dingle	80
3.3.2	Calcul du gap et comparaison à l'ARPES	83
3.4	Discussion	84
	Conclusion	85

Sr_2RuO_4 est un supraconducteur non-conventionnel iso-structural des cuprates, mais avec une température de transition plus basse (1.5 K). Sa surface de Fermi quasi-2D est composée de deux poches d'électrons γ et β centrées en Γ , et d'une poche de trous α centrée en X . Les mesures d'ARPES montrent l'importance du couplage spin-orbite, qui distord la poche γ suivant les directions diagonales de la première zone de Brillouin et la rapproche de la poche α . Si cette proximité dans l'espace réciproque rend plus probable les phénomènes de rupture magnétique dans les expériences forts champs, aucune fréquence correspondante n'a jusqu'alors été mesurée. En utilisant la technique TDO jusqu'à un champ magnétique de 85 T, nous avons observé de nouvelles fréquences dans le spectre des oscillations quantiques attribuées à de la rupture magnétique entre les poches α et γ . Les faibles masses des nouvelles fréquences nous amènent à proposer un modèle basé sur des phénomènes d'interférences quantiques à partir duquel une valeur du gap entre α et γ a été extraite.

3.1 Présentation du composé

Sr_2RuO_4 appartient à la famille des oxydes de métaux de transition de structure cristalline tétragonale. Ses propriétés de transport sont principalement 2D avec d'importantes corrélations électroniques : le nombre de Wilson est estimé à 1.8 [16] et la masse des quasi-particules est renormalisée jusqu'à 5 fois la masse de bande pour la poche γ [61, 62]. À ce jour, Sr_2RuO_4 est un des supraconducteurs non-conventionnels les mieux caractérisés : les techniques de croissances actuelles permettent de fabriquer des monocristaux d'excellente qualité ($\rho_0 \approx 0.1\mu\Omega.\text{cm}$) dont la surface de Fermi peut être mesurée en oscillations quantiques (OQs) et en ARPES.

3.1.1 Surface de Fermi

Une première approche de type liaisons fortes permet de décrire la surface de Fermi de Sr_2RuO_4 . De structure cristalline tétragonale ($\mathbf{a} = \mathbf{b} = 3.87 \text{ \AA}$ et $\mathbf{c} = 12.74 \text{ \AA}$) [63], sa maille élémentaire est composée d'un atome de ruthénium à l'intérieur d'un octaèdre de 6 atomes d'oxygène. Les octaèdres sont séparés par des atomes de strontium qui jouent le rôle de plans isolants (figure 3.1) : les propriétés électroniques de Sr_2RuO_4 sont quasi-2D avec une forte anisotropie de résistivité estimée à $\rho_c/\rho_{ab} \approx 5000$ [63].

Les propriétés électroniques proviennent de l'hybridation des orbitales d du ruthénium avec les orbitales p de l'oxygène (Figure 3.2). La dégénérescence de l'orbitale d du ruthénium est levée par l'environnement octaédrique en une orbitale antiliante e_g vide, et une orbitale liante t_{2g} (d_{xy}, d_{xz}, d_{yz}) remplie au 2/3.

Le recouvrement de l'orbitale d_{xy} avec les orbitales p_x et p_y des oxygènes forme une grande poche d'électron 2D centrée en Γ appelée γ . Deux autres poches α et β proviennent du

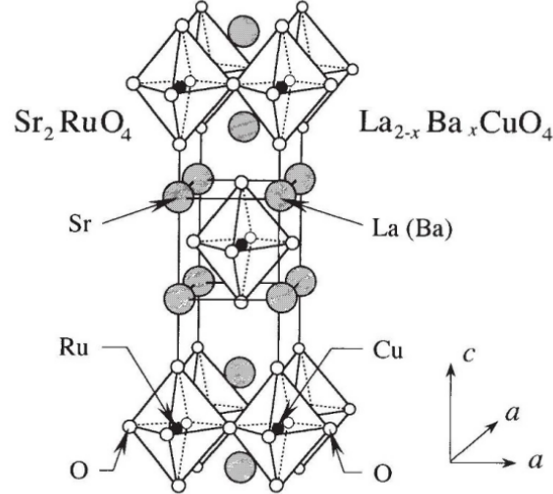


FIGURE 3.1 – Comparaison des structures cristallines tétraogonales de Sr_2RuO_4 et de $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$. [16]

recouvrement des orbitales d_{xz} et d_{yz} avec les orbitales p_x et p_y des oxygènes. Ce recouvrement forme initialement deux bandes 1D qui en s'hybridant forment une poche α centrée en X et la poche β en Γ . La surface de Fermi du Sr_2RuO_4 est donc composée de deux grandes poches d'électrons et d'une petite poche de trous (Figure 3.2).

Ces poches ont été mesurées en OQs dans plusieurs études qui s'accordent sur des valeurs de fréquence $F_\alpha \approx 3.05 kT$, $F_\beta \approx 12.7 kT$ et $F_\gamma \approx 18.6 kT$ [40], lorsque le champ est orienté perpendiculairement aux plans conducteurs (Figure 3.3.a). On peut déterminer à quel type de porteurs est associée chaque poche en considérant la conservation du nombre d'état total qui impose :

$$F_{1BZ} = F_\beta + F_\gamma - F_\alpha \quad (3.1)$$

Sachant que $F_{1BZ} = 27.73 kT$, la relation précédente confirme que la poche α est une poche de trous et β et γ sont des poches d'électrons, à 1% d'erreur près [40]. Les masses cyclotrons mesurées à partir de la dépendance en température de l'amplitude des OQs donnent $m_\alpha \approx 3.4 m_0$, $m_\beta \approx 7.5 m_0$ et $m_\gamma \approx 14.6 m_0$ [62]. Elles sont plus élevées que celles estimées par calculs de structure de bande, avec par exemple $m_\alpha/m_\alpha^{LDA} \approx 5$, montrant que les corrélations électroniques sont importantes.

L'étude en angle des OQs montre que les poches ne forment pas des tubes parfaits et possèdent des gondolements [65]. La poche β est gondolée avec une structure de type "neck belly" [65] ce qui génère un double pic sur le spectre oscillatoire appelés β_1 et β_2 . Le gondolement de la poche α est plus faible mais visible sur la partie oscillatoire sous la forme d'un battement de fréquence $\approx 6.5 T$. La poche γ est la plus circulaire des trois, mais les corrugations sont

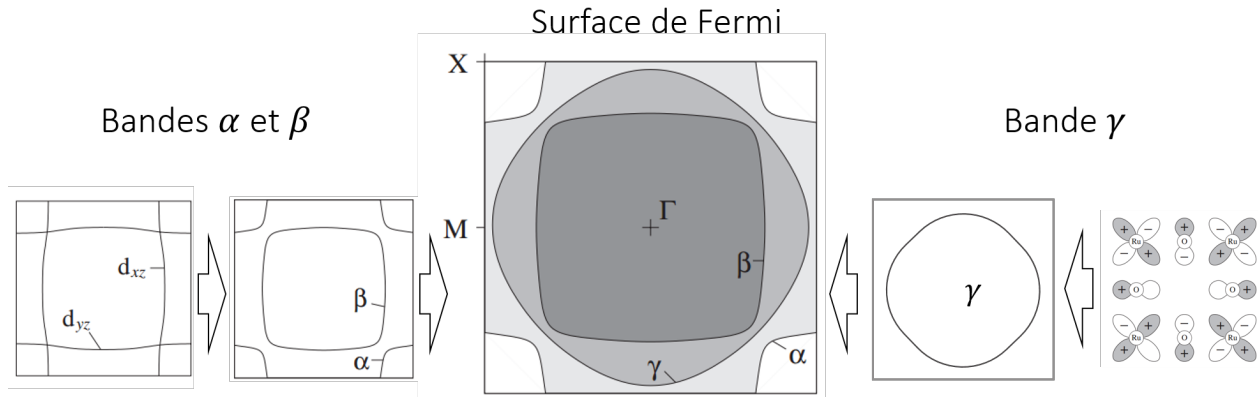


FIGURE 3.2 – Origine des 3 poches de Sr_2RuO_4 . Les poches α et β (respectivement de trous et d'électrons) proviennent de l'hybridation des deux bandes 1D formées des orbitales d_{xz} et d_{yz} . La poche d'électrons γ , centrée en Γ , provient du recouvrement des orbitales d_{xy} du ruthénium avec les orbitales p des oxygènes. Adaptée de [40]

plus importantes le long des diagonales de la première zone de Brillouin. Une dépendance complète en k_z de la surface de Fermi a été proposée à partir d'une analyse en harmonique cylindrique de la dépendance angulaire des OQs [65] (figure 3.3.b)

3.1.2 Gap entre les poches γ et α

Calculs de structure de bandes

La structure tétragonale face centrée de la première zone de Brillouin induit des symétries différentes en $k_z = 0$ et $k_z = \pi/c$. En $k_z = 0$, les calculs de structure de bandes (LDA) indiquent que les bandes β et γ se croisent proches des directions diagonales, suivant les directions $(k_x, k_y) = (0.28, 0.34)$ r.l.u et $(0.34, 0.28)$ r.l.u (figure 3.4.a). Ce croisement n'est pas reproduit expérimentalement en OQs ni en ARPES, car la dégénérescence est levée par le couplage spin-orbite [66] générant de légères protubérances suivant les directions $\Gamma - X$ (figure 3.4.b). La prise en compte du couplage spin-orbite dans les calculs LDA est donc nécessaire pour obtenir un accord quantitatif sur la taille des poches α , β et γ [66]. Ces protubérances ont récemment été observées en photoémission [67] et réduisent la distance dans l'espace réciproque entre les poches α et γ .

Première estimation du champ de rupture magnétique

Grâce à l'amélioration des techniques de photoémission, la surface de Fermi de Sr_2RuO_4 a pu être mesurée en haute résolution (figure 3.4.c) [67]. Comme attendu, les protubérances de la poche γ sont observées suivant les directions $\Gamma - X$. Ces mesures nous offrent la possibilité d'extraire une valeur du gap entre les poches α et γ qui nous sera utile pour la suite. Cette

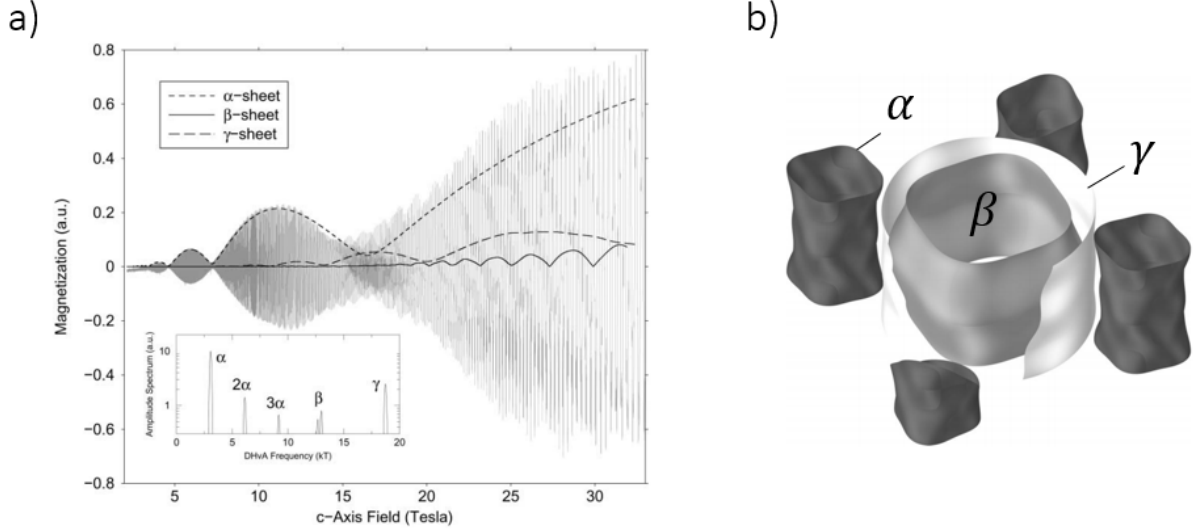


FIGURE 3.3 – **a)** OQs mesurées en aimantation (torque) à 30 mK [64]. En insert, la transformée de Fourier montre la présence des 3 pics correspondants aux 3 poches ($F_\alpha \approx 3.05$ kT, $F_\beta \approx 12.7$ kT et $F_\gamma \approx 18.5$ kT) ainsi que des harmoniques. La structure en double pic de la poche β provient des gondolements de la surface de Fermi. **b)** Surface de Fermi déterminée expérimentalement à partir de la dépendance angulaire des OQs. Les corrugations ont été exagérées d'un facteur 15 (D'après [40])

distance est importante dans les expériences d'OQs : si elle est suffisamment faible, les quasi-particules peuvent traverser la barrière tunnel entre les deux poches et générer des fréquences additionnelles sur le spectre des OQs. Ce phénomène de rupture magnétique est décrit dans le chapitre 1 (section 1.4.5) et la probabilité de franchissement du gap dépend d'un champ magnétique critique B_0 tel que $p = e^{-B_0/B}$. B_0 est le champ de rupture magnétique et est relié à la valeur du gap entre les deux poches.

À partir des mesures d'ARPES suivant la direction $\Gamma - X$, nous estimons la distance dans l'espace des \mathbf{k} entre les poches α et γ à $k_g = 0.046 \pm 0.010 \text{ \AA}^{-1}$ et un gap en énergie à $E_g = 36 \pm 4 \text{ meV}$ (voir figure 3.5). Nous pouvons estimer le champ de rupture magnétique B_0 à partir du gap en vecteur d'onde : la relation de Chambers [44], relie B_0 à k_g et dépend des rayons de courbures locaux K_α et K_γ des deux poches :

$$B_0 \approx \frac{\pi \hbar}{e} \sqrt{\frac{k_g^3}{K_\alpha + K_\gamma}} \quad (3.2)$$

Avec k_g la valeur du gap en m^{-1} entre les poches α et γ , et K_i le rayon de courbure local, que nous estimons à $K_\alpha = 0.08 \text{ \AA}^{-1}$ et $K_\gamma = 0.11 \text{ \AA}^{-1}$ à partir de la figure 3.4.c. Nous obtenons un champ de rupture magnétique de $B_0^{\text{Chambers}} = 440 \pm 150 \text{ T}$. Le champ de rupture entre

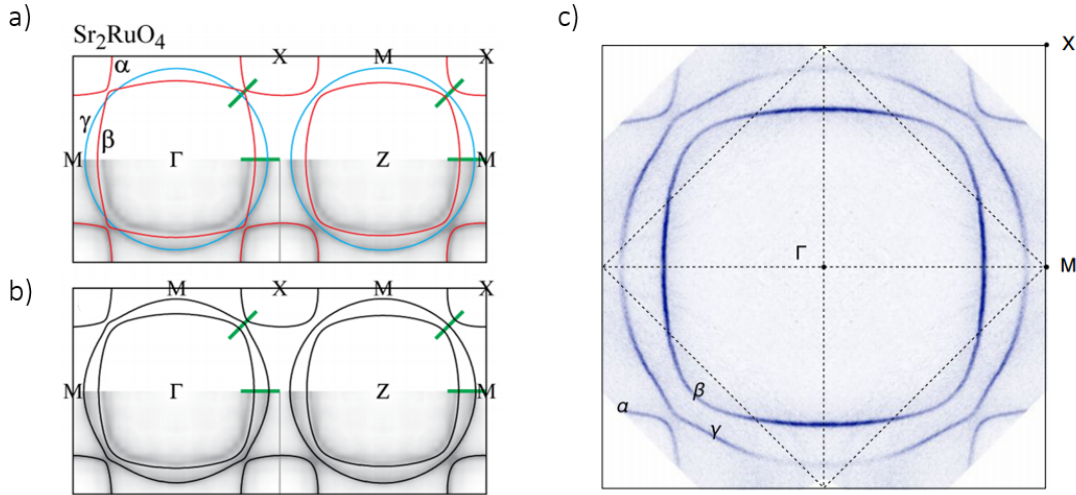


FIGURE 3.4 – **a)** Surface de Fermi calculée en LDA sans prise en compte du couplage spin-orbite. En $k_z = 0$, les bandes β et γ se croisent proches des directions diagonales. **b)** Idem avec prise en compte du couplage spin-orbite qui lève les dégénérescences entre les bandes γ et β . Il en résulte de légères protubérances sur la poche γ suivant $\Gamma - X$ qui réduisent sa distance avec la poche α [66]. **c)** Surface de Fermi de Sr_2RuO_4 mesurée par ARPES haute résolution à $k_z \approx 0.4\pi/c$. Les protubérances de la poche γ sont observées suivant les directions diagonales. [67]

les poches β et γ est aussi estimé à plus de 2000 T.

Un autre critère dit de Blount [43] relie le champ de rupture magnétique B_0 au gap en énergie E_g . Dans son expression générale, il dépend de l'énergie de Fermi et de la masse effective :

$$B_0 \approx \frac{E_g^2 m^*}{e\hbar E_F} \quad (3.3)$$

Pour le calcul, j'ai utilisé la moyenne géométrique¹ des masses effectives et des énergies de Fermi faite pour les poches α et γ . Les moyennes géométriques s'expriment $m^* = \sqrt{m_\alpha^* m_\gamma^*}$ et $E_F = \sqrt{E_F^\alpha E_F^\gamma}$. Les énergies de Fermi sont estimées à partir des calculs de structure de bandes [66] et évaluées à $E_F^\alpha \approx 0.45$ eV et $E_F^\gamma \approx 0.95$ eV. Les masses effectives sont celles mesurées dans notre étude ($m_\alpha^* = 3.4 m_0$) (voir prochaine partie) et dans la réf. [62] ($m_\gamma^* = 14.6 m_0$). Nous obtenons un champ de rupture magnétique de $B_0^{\text{Blount}} = 122 \pm 20 T$.

Le champ de rupture magnétique est différent de près d'un facteur 3 selon qu'il soit évalué par la formule de Chambers ou le critère de Blount. La formule de Chambers semble plus adaptée au cas de Sr_2RuO_4 car elle prend en compte la géométrie locale de la surface de Fermi. En revanche, nous allons voir que nos mesures de B_0 à partir des OQs sont plutôt en

1. La moyenne géométrique est utilisée dans la réf. [67] pour le calcul de la vitesse de Fermi moyenne entre les bandes β et γ .

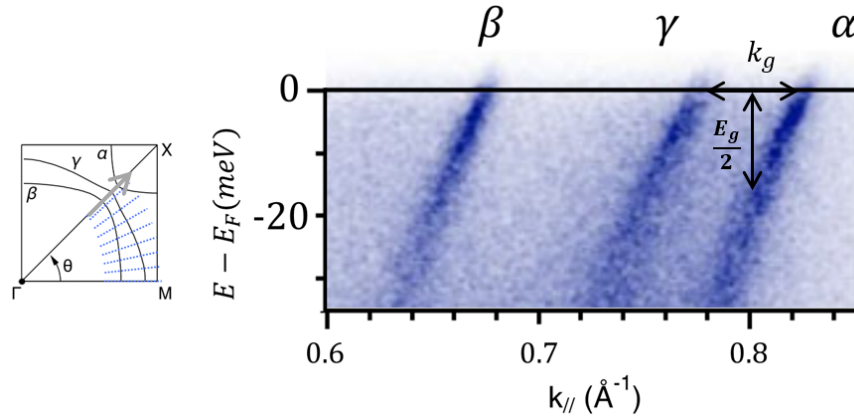


FIGURE 3.5 – Mesure du gap en énergie et en vecteur d’onde entre les poches α et γ suivant la direction $\Gamma - X$ à partir de la fonction de dispersion mesurée en ARPES [67]. Nos estimations donnent $k_g = 0.046 \pm 0.010 \text{ \AA}^{-1}$ (gap en vecteur d’onde) et $E_g = 36 \pm 4 \text{ meV}$ (gap en énergie).

accord avec l’évaluation par le critère de Blount.

3.2 Nouvelles fréquences d’oscillations quantiques

Nous avons réalisé de nouvelles mesures d’OQs dans Sr_2RuO_4 sous champs magnétiques intenses ($> 80 \text{ T}$) en utilisant la technique TDO et les nouvelles géométries de bobines spirales doubles couches. Nos mesures ont révélé de nouvelles fréquences que nous avons interprété comme des interférences quantiques provenant de la rupture magnétique entre les poches α et γ .

3.2.1 Oscillations quantiques

Dans cette expérience, j’ai placé l’échantillon sur une bobine spirale double couche, orientée de telle sorte que le champ AC de la bobine soit parallèle à l’axe \mathbf{c} et les courants induits dans le plan \mathbf{ab} . L’expérience a été réalisée à forts champs magnétiques (86 T) et basses températures (de 1.5 K à 9.8 K) dans la bobine 90 T. Le champ magnétique était orienté parallèle à l’axe \mathbf{c} de l’échantillon. Le signal TDO est démodulé en utilisant une constante de temps de $10 \mu\text{s}$.

La dépendance en champ de la fréquence du signal TDO est présentée en figure 3.6, elle est composée d’une monotone associée à la fois au circuit TDO et à la magnétorésistance de l’échantillon. À basse température et fort champ magnétique, des oscillations sont clairement visibles à partir de 40 T sur les données à 1.5 K. Leur amplitude croît avec le champ magnétique et décroît avec la température, comme attendu dans la théorie de Lifshitz-Kosevich (LK).

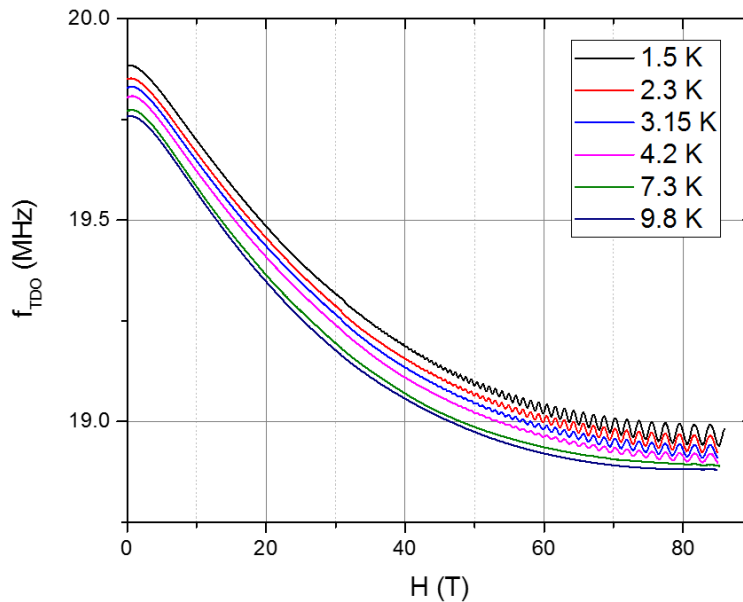


FIGURE 3.6 – Évolution en champ de la fréquence du circuit TDO pour différentes températures. Les OQs de Sr_2RuO_4 sont visibles à basse température et forts champs magnétiques. Les courbes ont été décalées les unes des autres pour faciliter la lecture.

Les parties oscillatoires sont obtenues par soustraction d'une monotone (polynôme d'ordre 3) au signal TDO démodulé. La partie oscillatoire est largement dominée par le signal provenant de la poche α de fréquence $F_\alpha \approx 3.03$ kT dont l'amplitude pic-pic à 80 T est de l'ordre de 50 kHz (figure 3.7).

3.2.2 Analyse du spectre

La transformée de Fourier de la partie oscillatoire à 1.5 K et fort champ magnétique de Sr_2RuO_4 montre un spectre composé de nombreuses fréquences dont la plupart correspondent à une aire supérieure à la taille de la première zone de Brillouin ($F_{1BZ} \approx 27.71$ kT) (figure 3.8).

En dessous de 20 kT, nos mesures permettent de retrouver les fréquences déjà connues de la bibliographie à moins de 1% d'erreur, correspondantes aux poches α , β et γ , ainsi que deux harmoniques de α (Table 3.1). Les masses effectives sont mesurées par l'analyse de la dépendance en température et du terme de réduction thermique R_T . La masse de la poche α est estimée à $m_\alpha^* = 3.4 m_0$, en excellent accord avec les données de la littérature. La masse de la poche β est en revanche légèrement plus faible avec $m_\beta = 5.2 \pm 0.6 m_0$ contre $7.5 m_0$ dans la réf. [62]. Nous remarquons aussi que les masses des harmoniques de la poche α sont légèrement sous-évaluées par rapport à la valeur attendue² avec un écart d'environ 20% entre

2. Dans la théorie de LK, les masses des harmoniques valent $m_{N\alpha} = N \times m_\alpha$ avec N l'entier correspondant à la N harmonique.

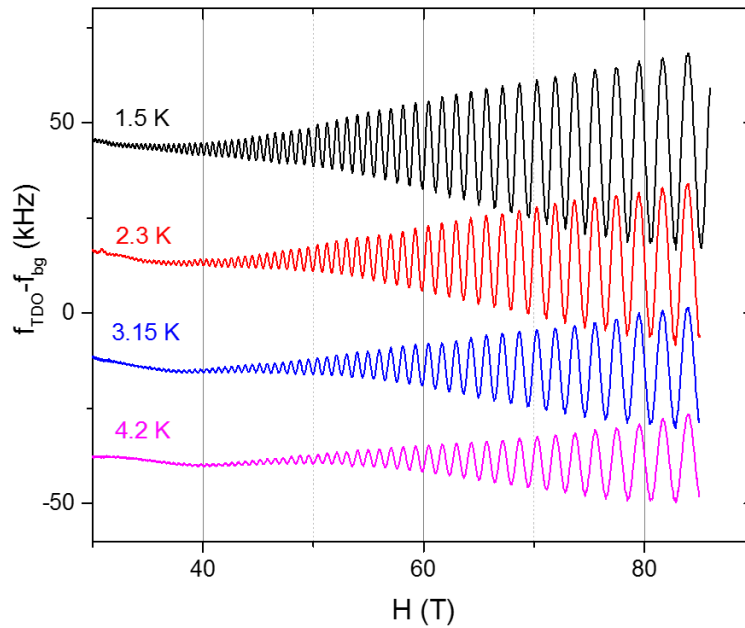


FIGURE 3.7 – Oscillations quantiques extraites par soustraction d'un polynôme d'ordre 3 aux données brutes pour les quatre plus basses températures (de 1.5 K à 4.2 K). L'oscillation dominante en amplitude est celle de la poche α de fréquence de $F_\alpha = 3.03 kT$. Les courbes sont décalées en ordonné.

$m_{3\alpha} \approx 7.8 m_0$ et $3 \times m_\alpha \approx 10.2 m_0$. La masse de la poche γ n'a pas pu être extraite des données.

Entre 20 et 50 kT, de nouvelles fréquences (indiqués en rouge sur la figure 3.8) forment une structure pyramidale centrée autour de 30 kT. Ces fréquences n'ont jamais été reportées dans la littérature. Des harmoniques sont aussi mesurées au-delà de 50 kT. Notre analyse se concentre sur la série de pics centrés à 30 kT qui forme une structure pyramidale de pics iso-espacés de ~ 3 kT nommés en chiffres romains (de *I* à *VIII*). D'autres pics satellites espacés d'environ 600 T sont indiqués par des "*" sur la figure 3.10 et référencés dans la table 3.2.

Nom	α	2α	3α	β	γ
Fréquences (kT)	3.03	6.10	9.09	12.55	18.60
Masses (m_0)	3.4 (0.1)	6.3 (0.2)	7.8 (0.2)	5.2 (0.6)	n/a

TABLE 3.1 – Fréquences et masses connues de Sr_2RuO_4 à partir de notre étude.

J'ai pu mesurer les masses de certaines de ces nouvelles fréquences et pics satellites (table 3.2). Étonnamment, elles sont relativement faibles en comparaison des masses typiques associées aux poches de la surface de Fermi de Sr_2RuO_4 (figure 3.9). La plus forte masse est associée à la fréquence F_{II} et vaut $m_{II}^* \approx 5.6 m_0$. Certaines sont mêmes inférieures à la masse de la poche α avec $m_{IV} \approx 2.6 m_0$ et $m_V \approx 2.3 m_0$.

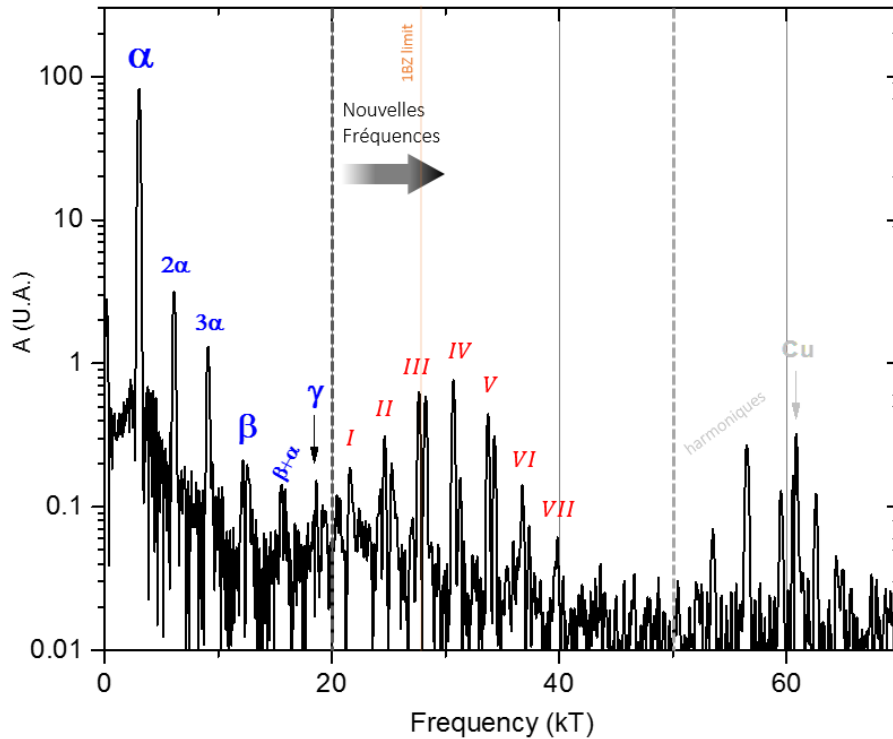


FIGURE 3.8 – Transformée de Fourier du signal oscillatoire (échelle logarithmique) de Sr_2RuO_4 dans la gamme de champ 53 T - 84.5 T (fenêtre Hamming) à 1.5K. En dessous de 20 kT, les pics correspondent aux fréquences déjà reportées dans la littérature. Le pic $\beta + \alpha$ a été attribué à des oscillations du potentiel chimique [68]. Entre 20 et 50 kT, de nouveaux pics iso-espacés de ~ 3 kT forment une structure pyramidale centrée autour de 30 kT. La plupart correspondent à une aire supérieure à la 1ZB (ligne orange). Les pics mesurés au-delà de 50 kT sont attribués à des harmoniques. La flèche grise indique le pic des OQs du cuivre des bobines TDO.

3.2.3 Rupture magnétique et interférences quantiques

Pour expliquer l'origine des nouvelles fréquences, je discuterai deux scénarios basés sur de la rupture magnétique entre les poches α et γ . Dans un premier temps, nous allons voir que de nouvelles orbites issues de rupture magnétique ne permettent pas d'expliquer les faibles masses mesurées. Puis nous verrons qu'un scénario d'interférences quantiques est plus adapté pour expliquer nos données.

Rupture magnétique

L'orbite résultante de la rupture magnétique entre deux poches correspond à une fréquence égale à la combinaison (somme si poches de même nature, soustraction sinon) des fréquences associées à chacune des poches. À partir des champs de rupture magnétique estimés dans la partie 3.1.2, nous considérons que la rupture magnétique est plus probable entre les poches

Nom	Fréquences (kT)	Masses (m_0)
I	21.58	n/a
II	24.25	n/a
	24.63	5.6 (0.1)
III	25.26	3.6 (0.1)
	27.11	n/a
IV	27.66	4.1 (0.2)
	28.25	2.8 (0.2)
V	30.69	2.6 (0.1)
	31.30	3.5 (0.2)
VI	33.73	2.3 (0.2)
	34.28	5.7 (0.2)
VII	35.95	n/a
	36.74	3.7 (0.2)
	37.35	n/a
VII	39.86	n/a

TABLE 3.2 – Fréquences et masses des nouvelles fréquences (caractères gras) et de leurs pics satellites associés.

γ et α . Connaissant la surface de Fermi de Sr_2RuO_4 , nous allons identifier les orbites qui peuvent correspondre aux fréquences mesurées.

Une première caractéristique déjà discutée est l'écart constant entre les fréquences de ~ 3 kT. Cette valeur correspond à deux aires identifiables sur la surface de Fermi : l'aire de la poche α et l'aire A (hachurée sur la figure 3.10.b). L'aire A n'est pas une poche de la surface de Fermi, mais correspond à l'air comprise entre les poches γ et α entre la première et la deuxième zone de Brillouin. Nous l'avons estimé à 3.05 kT à partir de la formule 3.1 et des aires γ et α .

Comme les nouvelles fréquences sont équivalentes pour la plupart à des aires supérieures à celle de la 1ZB, les orbites issues de la rupture magnétique doivent s'étendre au-delà de la 1ZB. La série d'orbites représentée en figure 3.11 permet d'apporter une description qualitative du spectre des OQS, c'est à dire une série de 7 orbites espacées de ~ 3 kT et de fréquences $F_{MB} = (2F_\gamma + F_A) - NF_\alpha$ (car les poches γ et α sont de type électrons et trous, respectivement), avec N un entier allant de 0 à 6. La série est centrée sur la fréquence $N = 3$ (orbite dessinée en pointillés sur la figure 3.11) qui vaut 31.13 kT, et peut donc être identifiée à la fréquence F_{IV} , ou à un de ses pics satellites. Les autres orbites du modèle sont résumées en figure 3.11. L'accord en fréquence avec les mesures est plutôt bon avec un écart de l'ordre de 500 T. Cet écart est proche de celui qui sépare les pics identifiés de leur pic satellite, que nous avons estimés à ~ 600 T. A ce stade, le modèle pourrait donc expliquer l'origine d'une partie

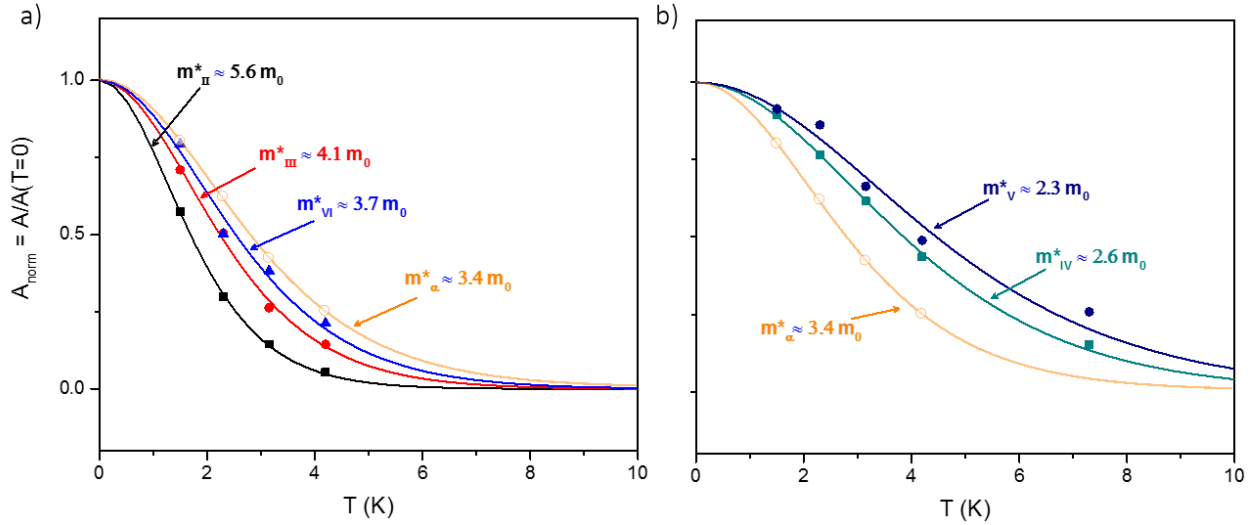


FIGURE 3.9 – Graphiques de masses, normalisés à l'amplitude à $T=0$. **a)** Pour les fréquences F_{II}, F_{III} et F_{VI} , les masses sont de l'ordre de grandeur de m_α (mais supérieures) **b)** Pour les fréquences F_V et F_{IV} elles sont inférieures à m_α . La gamme de champ d'analyse est 53 T - 81.7 T

des fréquences satellites. Afin de vérifier la validité du modèle, je vais discuter les masses effectives.

Dans un scénario de rupture magnétique, les masses de chacune des poches impliquées dans les nouvelles orbites se somment. On peut montrer que les masses correspondantes à la série d'orbites de la figure 3.11 valent $m_{MB} = \frac{3}{2}m_\gamma + m_\alpha(N + 1/2)$. En utilisant notre mesure de $m_\alpha^* = 3.4 m_0$ et la valeur $m_\gamma^* = 14.6 m_0$ de la réf. [62], on estime que les masses équivalentes vont de $23.6 m_0$ ($N=0$) à $44.0 m_0$ ($N=6$), soit près d'un ordre de grandeur supérieur aux masses mesurées. Cet écart invalide un scénario basé sur de la rupture magnétique.

Interférences quantiques

Un autre phénomène magnéto-oscillatoire, appelé effet Stark (chapitre 1, section 1.4.5), permet d'expliquer le spectre et les faibles masses. Ce phénomène se produit lorsqu'une quasiparticule peut emprunter plusieurs chemins pour évoluer entre deux états d'impulsion sur la surface de Fermi. Les chemins forment alors les bras d'un interféromètre qui sont responsables d'une oscillation périodique en $1/B$ sur les mesures de transport et dont la fréquence est proportionnelle à l'aire comprise entre les bras. L'intensité correspondante à l'état recombinaison s'écrit :

$$I = I_0 + I_1 \cos(\theta_0 + (e/\hbar c)BA) \quad (3.4)$$

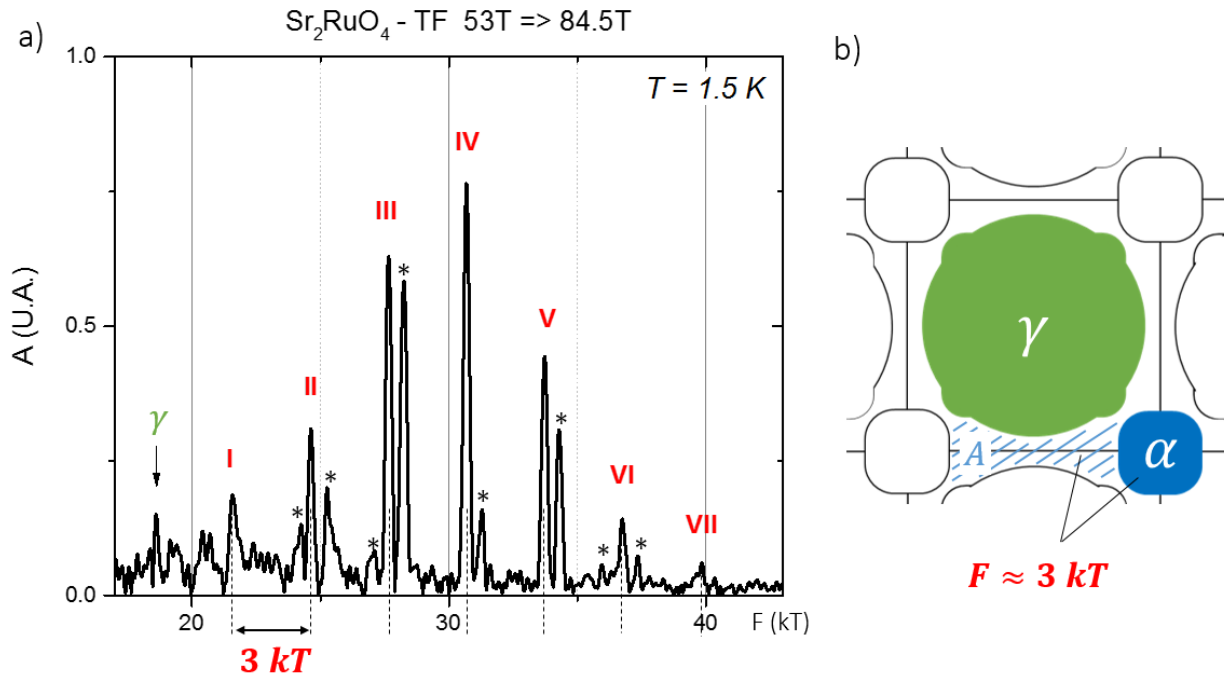


FIGURE 3.10 – **a)** Agrandissement du spectre de Fourier sur les nouvelles fréquences (nommées de I à VII) et leurs pics satellites indiqués par des '*'. Les pics forment une structure pyramidale centrée à $\sim 30 \text{ kT}$ et sont iso-espacées de $\sim 3 \text{ kT}$. **b)** Cet espacement correspond à l'aire de la poche α , ou à l'aire A hachurée sur la surface de Fermi à droite du spectre. La poche β n'est pas montrée.

Avec $\theta_0 = \phi_1 - \phi_2$ la différence de phase entre les deux états recombinaés et \mathcal{A} l'aire comprise entre les deux bras de l'interféromètre. L'amortissement thermique des oscillations suit une loi en $X/\sinh(X)$ avec une masse cyclotron égale à la différence des masses entre les deux chemins :

$$m^* = m_{\lambda_1}^* - m_{\lambda_2}^* \quad (3.5)$$

Cet effet est uniquement visible sur les mesures de résistivité, ce qui permet au TDO d'y être sensible. Dans le cas de Sr_2RuO_4 , la rupture magnétique entre les poches α et γ permet à une quasiparticule d'évoluer entre deux points A et B de la surface de Fermi en empruntant (au moins) deux chemins différents λ_1 ou λ_2 . Un interféromètre possible est par exemple représenté sur la figure 3.12 où l'aire entourée par les deux bras vaut :

$$F_\alpha + F_A + F_\gamma = 24.68 \text{ kT} \quad (3.6)$$

Cette valeur est en excellent accord avec la fréquence F_{II} mesurée à 24.63 kT . J'ai identifié d'autres interféromètres (figure 3.13) compatibles avec les nouvelles fréquences (de II à VII). Les valeurs de fréquences sont en excellent accord avec nos données avec un écart inférieur

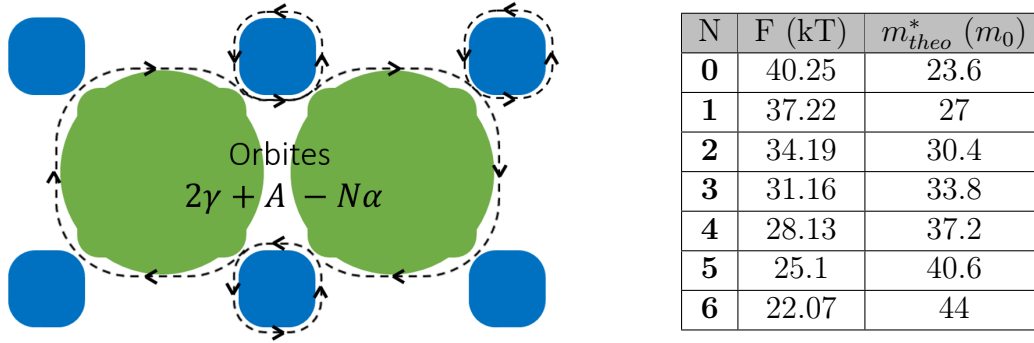


FIGURE 3.11 – Série d’orbites candidates pour expliquer les nouvelles fréquences. Cette série se compose d’une orbite centrale de type électrons (aire $2\gamma + A$) et de fréquence $F = 40.25$ kT à laquelle s’associe N orbites α de type trous. Les N fréquences résultantes sont $F_{MB} = (2F_\gamma + F_A) - NF_\alpha$ et sont résumées dans la table. Le spectre d’OQ est centré à ~ 30 kT et les fréquences sont espacées de ~ 3 kT.

au pourcent (Table 3.3). L’espacement de ~ 3 kT entre les fréquences est produit par la prise en compte successive des aires A ou α adjacentes à la poche γ .

Une comparaison des masses du modèle aux données montre un bien meilleur accord que le modèle d’orbites de rupture magnétique (table 3.3). Par exemple, le calcul de la masse de l’interféromètre II donne :

$$\begin{aligned} m_{II}^{QI} &= m_{\lambda_1} - m_{\lambda_2} \\ &= \left(3 \times \frac{m_\gamma}{4} + \frac{m_\alpha}{4}\right) - \left(3 \times \frac{m_\alpha}{4} + \frac{m_\gamma}{4}\right) \end{aligned}$$

En prenant $m_\gamma = 14.6 m_0$, et $m_\alpha = 3.4 m_0$, la masse calculée vaut $m_{II} = 5.6 m_0$, en très bon accord avec l’expérience $m_{II}^{exp} = 5.6 \pm 0.5 m_0$. L’écart reste important pour certaines fréquences (F_V par exemple avec un écart de plus de $2.0 m_0$) mais le modèle nous permet d’obtenir des masses inférieures à m_α . Nous pensons que le désaccord avec certaines masses provient de la multiplicité des interféromètres : plusieurs interféromètres de masses différentes peuvent produire une oscillation de même fréquence (voir par exemple deux interféromètres compatibles avec F_V sur la figure 3.13). Cette multiplicité provient des aires α et A qui, selon nos estimations, sont presque équivalentes. Nous remarquons cependant qu’une évaluation de l’aire A différente de quelques centaines de Teslas pourrait expliquer la présence des pics satellites additionnels (figure 3.10).

Les phénomènes liés à de la rupture magnétique, comme les interférences quantiques, permettent théoriquement de mesurer le champ de rupture magnétique B_0 à travers une analyse de l’amplitude des oscillations en fonction du champ. Mais cela nécessite d’associer à chaque fréquence un interféromètre unique. Les interféromètres I et II sont les seuls de notre modèle

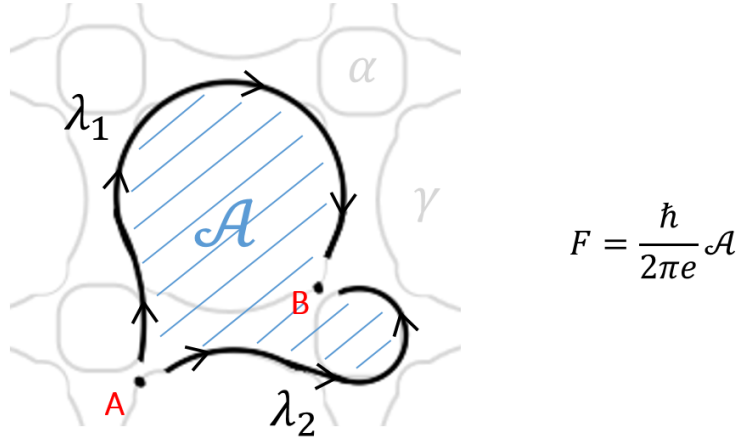


FIGURE 3.12 – Interféromètre formé à la surface de Fermi de Sr_2RuO_4 par la rupture magnétique entre les poches α et γ . La fréquence de l’oscillation résultante est reliée à l’aire comprise entre les deux bras de l’interféromètre par la relation d’Onsager. La masse mesurée correspond à la différence de masse entre les deux bras de l’interféromètre.

à être unique (pas de multiplicité). Je propose dans la suite d’évaluer le terme d’amplitude associée à la fréquence F_{II} . Nous devons décrire les termes d’intensité de l’équation (3.4) en utilisant la procédure proposée par Stark et Friedberg [47] pour l’interféromètre associé à F_{II} (figure 3.12). L’évolution de la quasiparticule de l’état d’impulsion $|A\rangle$ vers l’état d’impulsion $|B\rangle$ se traduit par la probabilité (ou intensité) :

$$I = P = |\langle B|A\rangle|^2 \quad (3.7)$$

Pour calculer cette grandeur, il faut considérer les jonctions tunnels qui se trouvent sur les chemins λ_1 et λ_2 . Les amplitudes de probabilité complexes de transmission et de réflexions s’écrivent pour chaque jonction :

$$p^2 = \exp(-B_0/B) \quad q = i(1 - p^2)^{1/2}$$

Une analyse de l’interféromètre II (figure 3.12) montre qu’il y a 3 réflexions et 2 transmissions le long des chemins λ_1 et λ_2 . On peut exprimer les amplitudes de probabilités complexes associées à chacun des chemins par :

$$|B\rangle_{\lambda_1} = e^{i\phi_{\lambda_1}} qqppp|A\rangle \quad |B\rangle_{\lambda_2} = e^{i\phi_{\lambda_2}} pqqppq|A\rangle$$

Avec ϕ_{λ_1} et ϕ_{λ_2} les intégrales du potentiel vecteur \mathbf{A} le long des chemins distincts λ_1 et λ_2 .

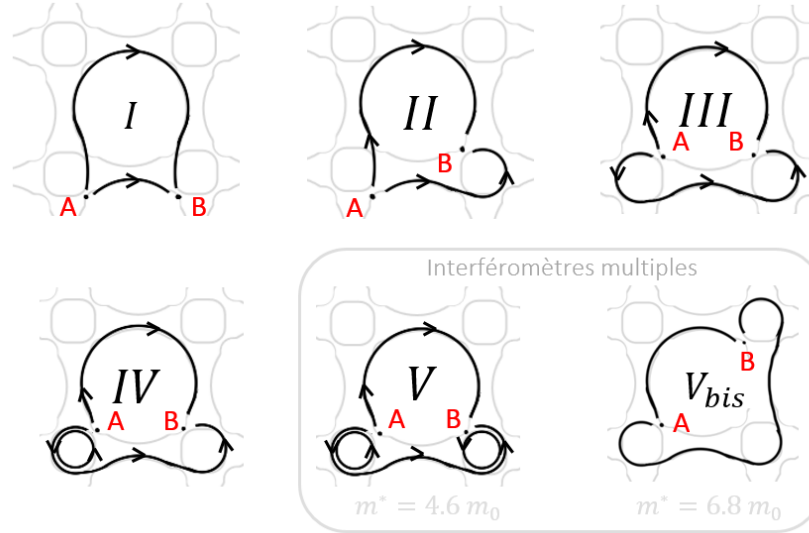


FIGURE 3.13 – Illustration de plusieurs interféromètres dont les fréquences sont en accord avec nos données. Les valeurs de fréquences et de masses sont résumées dans la table 3.3. Les interféromètres V et V_{bis} entourent une aire presque identique (interféromètres multiples), et possèdent des masses différentes.

On en déduit une dépendance en p :

$$|B\rangle_{\lambda_1, \lambda_2} = -ip^2(1 - p^2)^{3/2} e^{i\phi_{\lambda_1, \lambda_2}} |A\rangle \quad (3.8)$$

La probabilité de transmission totale (3.7) s'écrit alors :

$$\begin{aligned} P &= |\langle A|B\rangle|^2 = |\langle A|B\rangle_{\lambda_1} + \langle A|B\rangle_{\lambda_2}|^2 \\ P &= 2p^4(1 - p^2)^{3/2}(1 + \cos(\phi)) \end{aligned}$$

En identifiant à l'équation (3.4), on obtient :

$$I_0 = I_1 = 2e^{-2B_0/B}(1 - e^{-B_0/B})^{3/2} \quad (3.9)$$

Ce résultat nous montre que l'amplitude du terme oscillatoire I_1 dépend explicitement du champ magnétique et du champ de rupture magnétique B_0 . C'est ce terme qui est en préfacteur du terme oscillatoire en $1/B$. Une analyse de la dépendance en champ de l'amplitude des oscillations de la fréquence F_{II} nous permettrait donc, du moins théoriquement, de mesurer le champ de rupture magnétique. La principale limitation à cette approche est la trop faible amplitude du pic associé à la fréquence F_2 : le bruit de mesure est trop important et je n'ai pas été en mesure d'extraire une valeur fiable de B_0 à partir de ce scénario sur les interférences quantiques. Cependant, je souhaite maintenant proposer une autre approche pour mesurer B_0 à partir de la dépendance en champ de l'amplitude de la fréquence α .

Nom	<i>I</i>	<i>II</i>	<i>III</i>	<i>IV</i>	<i>V</i>
F_{theo} (kT)	21.65	24.68	27.71	30.74	33.77
F_{exp} (kT)	21.58	24.63	27.66	30.69	33.73
m_{theo}^* (m_0)	9.0	5.6	2.2	1.2	4.6
m_{exp}^* (m_0)	n/a	5.6	4.1	2.6	2.3

TABLE 3.3 – Comparaisons aux données TDO des fréquences et des masses du modèle d’interférences quantiques. Pour les fréquences, l’accord entre le modèle et les données est bon avec un écart inférieur au pourcent. Le modèle permet de retrouver la masse m_{II} mais un désaccord subsiste avec les autres masses mesurées, même si des masses inférieures à m_α sont attribuables à certains interféromètres (*III* et *IV* par exemple). La multiplicité des interféromètres est une piste pour expliquer les écarts au modèle (cf. figure 3.13 et texte).

3.3 Mesure du gap

La réalisation d’une orbite complète α nécessite une réflexion de Bragg à chaque jonction adjacente de γ (figure 3.14). En présence de rupture magnétique, la probabilité de franchissement du gap augmente et rend moins probable la réalisation d’une orbite complète. Cela se traduit par une diminution de l’amplitude de l’oscillation associée à α et une déviation à la linéarité sur les tracés de Dingle.

3.3.1 Fréquence α : analyse du tracé de Dingle

J’ai tracé la dépendance en champ de l’amplitude du pic associé à la fréquence F_α suivant la procédure décrite dans le chapitre 1 (section 1.4.4). L’amplitude A est mesurée sur la transformée de Fourier de la partie oscillatoire à différentes valeurs de champ dans une fenêtre Hamming glissante contenant 3 oscillations. Pour les 3 plus basses températures, les tracés obtenus sont linéaires jusqu’à environ 65 T et présentent une courbure à fort champ (Figure 3.15).

Dans le formalisme de Lifshitz-Kosevich, lorsque la rupture magnétique n’est pas prise en compte, le tracé de Dingle est linéaire en $1/B$ et décrit par la formule :

$$\ln(A/R_T) = A_0 - p_1 \times \frac{1}{B} \quad (3.10)$$

avec $p_1 = 14.694 T_D m_c$. Un premier ajustement de la courbe dans sa région linéaire à bas champ permet de mesurer la température de Dingle T_D (en connaissant la masse effective). J’ai obtenu $T_D = 4.1 \pm 0.2 K$ ce qui correspond à un temps de relaxation $\tau = \hbar/(2\pi k_B T_D) \approx 0.3 ps$. Cette valeur est supérieure à la mesure de la réf. [61] où T_D est estimé à $T_D \approx 0.6 K$

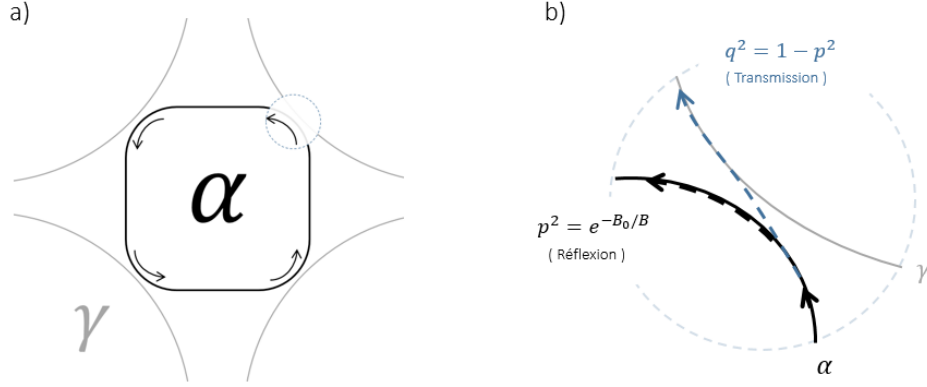


FIGURE 3.14 – a) Représentation des quatre réflexions de Bragg nécessaires à un trou pour réaliser une orbite complète autour de α . b) Illustration du phénomène de rupture magnétique et de la probabilité de réflexion q et de transmission p à la jonction.

soit $\tau \approx 2 ps$.

Nous devons justifier la validité d'une telle approche pour l'étude de la poche α étant donné que celle-ci est composée de légères corrugations suivant k_z , qui peuvent induire un phénomène de battement sur l'amplitude des oscillations. La corrugations est prise en compte dans le formalisme de LK par l'ajout d'un pré-facteur de réduction qui prend la forme d'une fonction de Bessel. Pour un champ appliqué parallèle à l'axe \mathbf{c} , il vaut :

$$R_W = J_0 \left(\frac{2\pi\Delta F}{B} \right) \quad (3.11)$$

L'enveloppe produite prend la forme d'un battement périodique en $1/B$ sur l'amplitude des oscillations quantiques. En considérant une fréquence de battement $\Delta F \approx 6.5 T$, le dernier minimum de la fonction est à $B \approx 17 T$ [64]. Le battement n'est donc plus visible aux champs supérieurs et les simulations montrent que l'effet du terme R_W est négligeable aux températures et champ de l'expérience.

À fort champ magnétique, la courbure observée sur les tracés de Dingle provient donc d'une diminution de l'amplitude de l'oscillation de la poche α . Cela est dû au phénomène de rupture magnétique qui diminue la probabilité que la quasiparticule réalise une orbite complète α à fort champ magnétique. Dans la formule de LK, la rupture magnétique est prise en compte par l'ajout d'un pré-facteur $R_{MB} = (ip)^{n_1} q^{n_2}$. Comme une orbite complète α nécessite 4 réflexions de Bragg (figure 3.14) ($n_1 = 0$ et $n_2 = 4$) je peux ré-exprimer le terme de réduction par $R_{MB} = q^4 = (1 - exp(-B_0/B))^2$ et en déduire une nouvelle fonction pour le tracé de Dingle :

$$\ln\left(\frac{A}{R_T}\right) = A_0 - p_1 \times \frac{1}{B} + 2\ln[1 - exp(-B_0/B)] \quad (3.12)$$

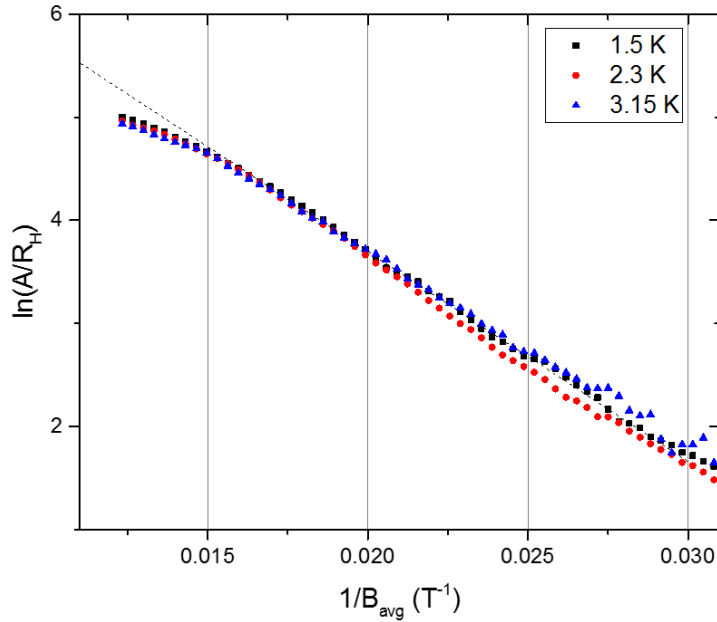


FIGURE 3.15 – Tracé de Dingle dans la gamme de champ 32 T - 83 T pour des températures de 1.5 K à 3.15 K. On observe une déviation à la linéarité au delà de 65 T.

Où B_0 est le champ de rupture magnétique recherché. J'ai ajusté l'équation (3.12) à nos données par régression non linéaire (méthode des moindres carrés) avec pour paramètres libres p_1 et B_0 . La constante A_0 est fixée pour être en accord avec sa valeur précédemment déterminée de l'étude de la région linéaire.

Le résultat de l'ajustement dans la gamme de champ 32 T - 60 T pour les données à 1.5 K est présenté sur la figure 3.16. On constate que la prise en compte du terme R_{MB} reproduit correctement la courbure à fort champ. Nous estimons³ des ajustements un champ de rupture $B_0 = 125 \pm 25T$. Cette valeur semble raisonnable au regard du spectre observé :

Comme discuté dans le chapitre 1, si $B \ll B_0$ aucune déviation à la linéarité n'est attendue, car la probabilité de franchissement du gap est trop faible. Au contraire, si $B \gg B_0$, les orbites dominantes sur le spectre devraient être les orbites de rupture magnétique comme d'interférences quantiques et l'amplitude la fréquence correspondante à la poche α devrait diminuer par rapport à l'estimation de la formule (3.10) (faible probabilité de réalisation d'une orbite complète de α). Sur le spectre mesuré, la fréquence α est dominante mais les pics associés aux interféromètres sont bien présents, bien que de faible amplitude. Cela indique, du moins qualitativement que la valeur de B_0 doit être de l'ordre de grandeur des champs mis en jeu dans l'expérience (~ 100 T). Nos ajustements confirment cet ordre de grandeur.

3. Notre incertitude se base sur plusieurs ajustements réalisés sur différentes plages de champs et aux températures 2.3 K et 3.15 K

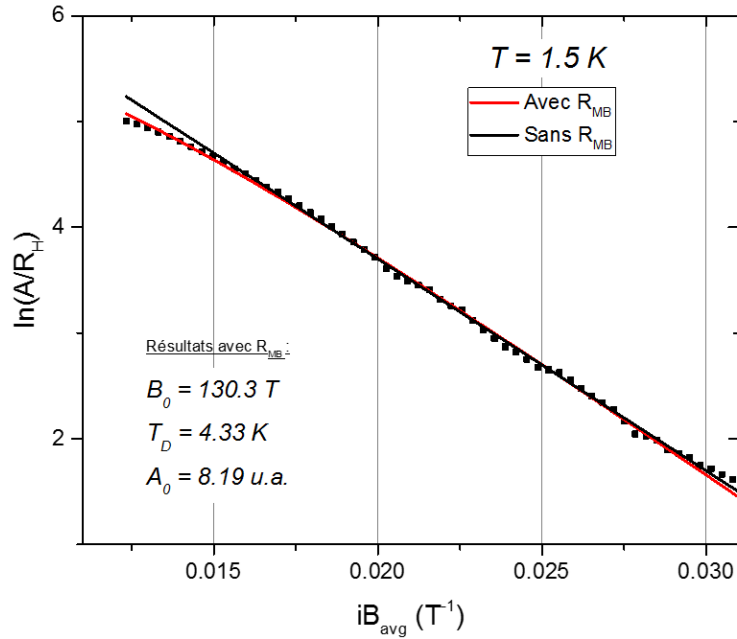


FIGURE 3.16 – Ajustement de l'évolution de l'amplitude des oscillations à 1.5 K par la fonction $\ln(A/R_T) = A_0 - p_1/B + 2\ln[1 - \exp(-B_0/B)]$ avec $p_1 = 14.694 T_D m_c$. L'ajout du terme correctif de rupture magnétique permet de reproduire la courbure à fort champ.

3.3.2 Calcul du gap et comparaison à l'ARPES

Le champ mesuré $B_0 = 125 \pm 25 T$ est en excellent accord avec les estimations obtenues à partir du critère de Blount (via le gap en énergie) et des données d'ARPES soit $B_0^{Blount} = 122 \pm 20 T$.

Notre estimation n'est en revanche pas comparable à celle obtenue à partir de la formule de Chambers (eq. 3.2) (via la distance des poches dans l'espace des \mathbf{k}) et des données d'ARPES : nous avons estimé $B_0^{Chambers} = 440 \pm 150 T$, soit un champ de rupture plus de 3 fois supérieur à la valeur expérimentale déduite des OQ.

Nous proposons donc une évaluation du gap k_g à partir de notre mesure de B_0 . Tout d'abord, calculons k_g uniquement à partir des données d'OQs et de la formule de Chambers : les rayons de courbures K_α et K_γ sont obtenus à partir des fréquences F_α et F_γ et de la relation d'Onsager. Dans l'approximation d'une surface de Fermi circulaire, on a :

$$K_{\alpha,\gamma} = \sqrt{\frac{2eF_{\alpha,\gamma}}{\hbar}} \quad (3.13)$$

On en déduit $K_\alpha \approx 0.30 \text{ \AA}^{-1}$ et $K_\gamma \approx 0.75 \text{ \AA}^{-1}$ et à partir de la formule (3.2) $k_g = 0.012 \pm 2.10^{-3} \text{ \AA}^{-1}$.

Si l'on prend en compte le rayon de courbure local des deux poches estimé à $K_\alpha = 0.08 \text{ \AA}^{-1}$ et $K_\gamma = 0.11 \text{ \AA}^{-1}$ dans la partie 3.1.2, on trouve $k_g = 0.020 \pm 3.10^{-3} \text{ \AA}^{-1}$. Pour rappel, les

mesures d'ARPES montrent que la distance entre les poches α et γ dans la direction $\Gamma - X$ est de $k_g = 0.046 \pm 0.01 \text{ \AA}^{-1}$, soit un facteur 2 plus important que celui estimé à partir des oscillations quantiques.

Deux hypothèses peuvent expliquer ce désaccord : d'abord, la formule de Chambers qui est une approximation n'est pas justifiée pour des rayons de courbure faibles, comme c'est le cas pour la protubérance de la poche γ dans la direction $\Gamma - X$. Cela pourrait aussi provenir du fait que les données d'ARPES de la réf. [67] sont mesurées à environ $k_z = 0.4 \pi/c$. Si k_g varie avec k_z , comme semble l'indiquer les calculs LDA prenant en compte le couplage spin-orbite [66, 69] alors les oscillations quantiques sonderont plutôt la zone de Brillouin où k_g est le plus faible (et donc où la probabilité de rupture magnétique est la plus importante).

3.4 Discussion

Le couplage spin orbite joue un rôle prépondérant dans la physique de basse énergie de Sr_2RuO_4 . Comme discuté précédemment, il a un impact important sur la topologie de la surface de Fermi : les calculs DFT incluant ce couplage montrent un meilleur accord avec l'expérience. Des calculs DMFT ont raffiné les calculs DFT et ont évalué les effets du couplage spin-orbite sur la structure électronique corrélés de Sr_2RuO_4 [70]. Les auteurs ont écrit le couplage spin orbite sous la forme $\lambda^{eff} = \lambda_{DFT} + \Delta\lambda$.

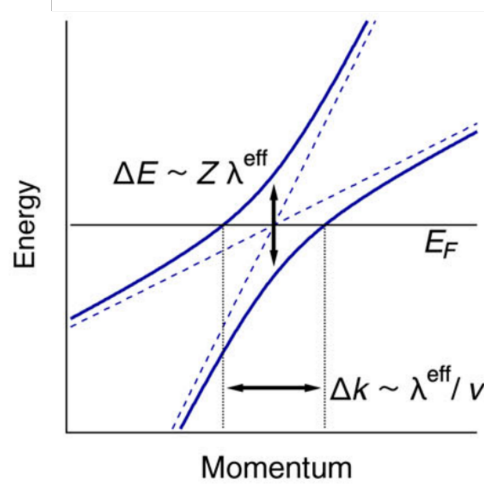


FIGURE 3.17 – Illustration de la renormalisation d'une levée de dégénérescence induite par un couplage spin orbite. $Z = (Z_\beta \times Z_\gamma)^{0.5}$ est le résidu de la quasiparticule qui prend en compte les corrélations électroniques. $v = (v_\beta \times v_\gamma)^{0.5}$ sont les vitesses de bande en l'absence de couplage spin orbite et de corrélation (d'après [67]).

En l'absence de couplage spin orbite, les bandes β et γ se croisent à quelques degrés de la diagonale de zone (figure 3.4). Le couplage spin orbite lève cette dégénérescence et induit un écart $\Delta k = \lambda^{eff}/v$ dans l'espace des k et un gap en énergie $\Delta E = Z\lambda_{eff}$ (figure 3.17). Une

mesure directe du couplage spin orbite peut être obtenue par la mesure de l'écart Δk qui n'est pas renormalisée par Z , le résidu des quasiparticules. Les mesures d'ARPES de la réf. [67] ont montré un bon accord avec la théorie de la réf. [70], à savoir $\lambda^{eff} = 205 \pm 20$ meV.

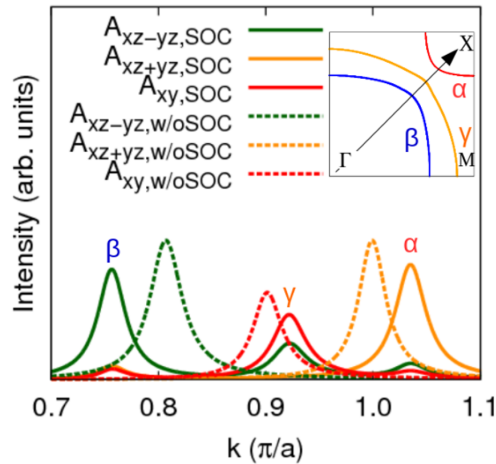


FIGURE 3.18 – Résultat d'un calcul DMFT simulant une courbe d'ARPES en fonction de l'impulsion suivant la direction $\Gamma - X$ en présence (en absence) du couplage spin orbite en ligne continue (pointillée) [70].

Nos données ne permettent pas d'obtenir une estimation de Δk entre les bandes β et γ mais entre les bandes α et γ . Cependant, comme on le constate sur la figure 3.18, le couplage spin orbite a également un effet sur la distance entre les bandes α et γ . Un calcul théorique décrivant cet effet pourrait permettre de confronter nos résultats expérimentaux (le champ de rupture magnétique B_0 entre les poches α et γ) à l'amplitude du couplage spin orbite. Une nouvelle approche théorique du calcul du champ de rupture magnétique analogue à celle de Chambers mais adaptée au cas de Sr_2RuO_4 pourrait permettre une meilleure comparaison avec l'expérience.

Conclusion

Dans ce chapitre, j'ai présenté des données d'OQs de Sr_2RuO_4 mesurées en TDO à des champs magnétiques supérieurs à 80 T. Les nouvelles fréquences observées sont interprétées dans un scénario d'interférences quantiques provenant de la rupture magnétique entre les poches α et γ . Ce phénomène est rendu possible par leur proximité dans l'espace réciproque dû à une légère protubérance de la poche γ associée à un croisement de bandes, une conséquence du couplage spin-orbite. Le champ de rupture magnétique B_0 extrait de nos données nous permet d'estimer le gap entre les deux poches et de le comparer aux données d'ARPES. Les deux techniques apportent une estimation similaire du gap en énergie, mais montrent

un désaccord sur la valeur du gap dans l'espace réciproque. Une étude théorique similaire à celle de la réf. [70] comparée aux mesures d'oscillations quantiques permettrait d'estimer le couplage spin-orbite grâce à une autre technique expérimentale que l'ARPES.

Chapitre 4

Revue de la littérature des cuprates

Sommaire

4.1 Le composé parent	89
4.1.1 Structure cristalline	89
4.1.2 Structure électronique et surface de Fermi	89
4.1.3 Isolant de Mott antiferromagnétique	92
4.1.4 Le modèle de Hubbard à trois bandes : modèle $d - p$	94
4.1.5 Effet du dopage dans les cuprates	95
4.2 Le diagramme de phase des cuprates	97
4.2.1 Le liquide de Fermi à fort dopage	99
4.2.2 Le métal étrange	100
4.2.3 Le pseudogap	102
4.2.4 La phase antiferromagnétique et onde de densité de spin	107
4.2.5 L'ordre de charge	110
4.2.6 La supraconductivité	120
4.3 Quelques théories de la supraconductivité dans les cuprates . . .	122
4.3.1 Paires préformées	123
4.3.2 Point quantique critique	124
4.3.3 Fluctuations AFM	126
4.3.4 Liquide de Fermi fractionnalisé (FL*)	127
Conclusion	128

4.1 Le composé parent

Dans cette section, je vais commencer par présenter les propriétés générales du composé parent des cuprates. Après avoir décrit la structure cristalline et les propriétés électroniques des plans CuO_2 , nous allons voir en quoi les fortes corrélations font du composé parent un isolant de Mott antiferromagnétique. Les effet du dopage en trous seront introduits.

4.1.1 Structure cristalline

Les cuprates ont une structure cristalline tétragonale ($\mathbf{a} = \mathbf{b} \approx 3.79 \text{ \AA}$ et $\mathbf{c} \approx 12.25 \text{ \AA}$ pour La_2CuO_4) ou orthorhombique (YBCO) composée d'un empilement de plan(s) de cuivre oxygène (CuO_2) suivant l'axe \mathbf{c} et séparés par des couches intercalaires isolantes (figure 4.1.a). Les propriétés de transport sont fortement 2D, dominées par les plans CuO_2 . Ces derniers peuvent être dopés à partir des couches intercalaires, qui jouent aussi le rôle de réservoir de charges.

Les cuprates sont déclinés en différentes familles en fonction des atomes utilisés pour séparer les plans CuO_2 dont les plus connus sont *Y*, *La*, *Bi*, *Hg* et *Tl* [71]. Chaque famille est déclinée en sous-famille(s) suivant le nombre de plans CuO_2 par cellule unité. Par exemple, la famille des mercures (figure 4.1.b) qui inclut les composés : Hg-1201 (1 plan), Hg-1212 (2 plans), Hg-1223 (3 plans) ou de manière plus générale $\text{Hg}12(n-1)n$, simple contraction de la formule chimique $\text{HgBa}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+2+\delta}$, avec n le nombre de plans par cellule unité et δ le taux d'oxygène fixant le dopage.

La formule chimique de la maille élémentaire indique aussi quelle méthode est utilisée pour le dopage. Il en existe deux : la substitution chimique et l'ajout oxygène dans les couches intercalaires. La famille des mercures est dopée par ajout d'atomes d'oxygène au niveau des sites interstitiels (figure 4.1.b) : l'excès d'oxygène est alors noté O_δ dans la formule $\text{HgBa}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+2+\delta}$. Un exemple de dopage par substitution chimique est le composé $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO) où les ions La^{2+} sont substitués par des ions Sr^{3+} . On appelle "composé parent" un cuprate non dopé. Pour LSCO, le composé parent correspond à un taux de Sr nul ($x = 0$), c'est-à-dire La_2CuO_4 .

D'un point de vue expérimental, tous les composés ne peuvent pas être étudiés avec toutes les techniques expérimentales. Les gammes de dopages accessibles ne sont pas non plus équivalentes d'une famille à l'autre (Figure 4.2).

4.1.2 Structure électronique et surface de Fermi

La structure électronique des cuprates peut être déterminée en première approche par leur structure cristalline et le recouvrement des orbitales (approche de liaisons fortes). Prenons l'exemple de La_2CuO_4 dont les atomes de la maille élémentaire sont sous les formes ioniques

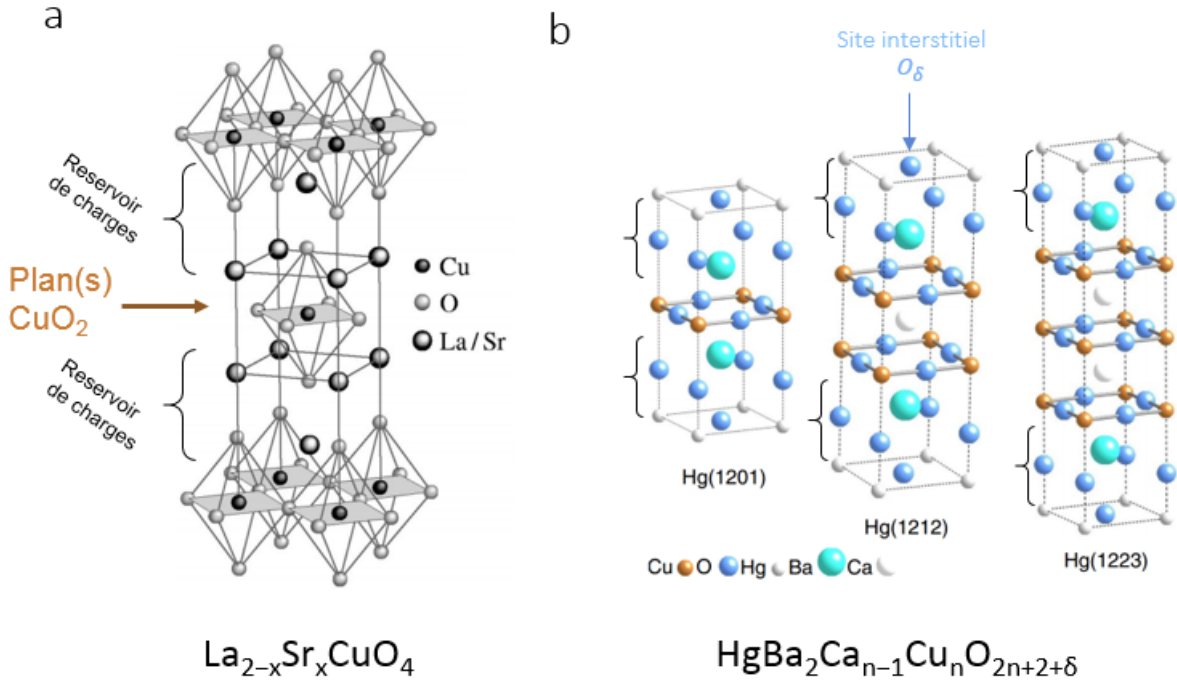


FIGURE 4.1 – Exemple de la structure cristalline des cuprates. **a)** Maille élémentaire du composé La_2CuO_4 dans lequel le dopage s’effectue par substitution du lanthane par du strontium. **b)** Mailles élémentaires de la famille de cuprates $\text{HgBa}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+2+\delta}$, les composés $n = 1, 2$ et 3 plans sont représentés. Contrairement à La_2CuO_4 , le dopage s’effectue par substitution/ajout d’oxygène dans les réservoirs de charges. Figures adaptées de [72, 73]

suivantes :

- Cu^{2+} : $[\text{Ar}]3d^9$
- O^{2-} : $[\text{He}]2s^22p^6$
- La^{3+} : $[\text{Xe}]$

Avant de s’intéresser au recouvrement d’orbitales, on doit prendre en compte l’effet du champ cristallin sur les orbitales d des ions Cu^{2+} qui se trouvent dans un environnement octaédrique (symétrie O_h), entourés de 6 ions O^{2-} (Figure 4.3.a). Cette symétrie lève la dégénérescence de l’orbitale d en deux nouvelles orbitales liante (σ) et antiliante (σ^*). L’orbitale liante (t_{2g}) est de plus basse énergie et regroupe les sous couches d_{xy} , d_{xz} et d_{yz} . L’orbitale antiliante (e_g), de plus haute énergie, regroupe les sous couches $d_{x^2-y^2}$ et $d_{3z^2-r^2}$.

Le remplissage des niveaux d’énergie e_g et t_{2g} avec les 9 électrons de l’ion Cu^{2+} conduit à une levée de dégénérescence supplémentaire due à l’effet Jahn-Teller [74]. Cet effet génère une élévation¹ suivant \mathbf{z} de l’environnement octaédrique autour du cuivre dont la symé-

1. L’origine de cet effet est le remplissage partiel de e_g qui conduit à un état fondamental dégénéré rendant le système instable : le trou peut à la fois se trouver sur l’orbitale $d_{x^2-y^2}$ et $d_{3z^2-r^2}$. H.A.Jahn et E.Teller ont montré que le système retrouvait une stabilité par une distorsion du réseau dans la direction \mathbf{z} appelée distorsion de Jahn-Teller.

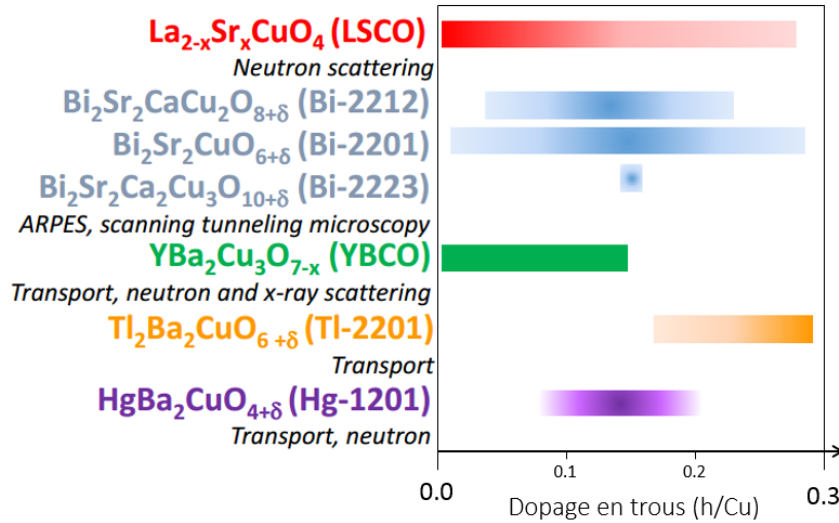


FIGURE 4.2 – Présentation de différents cuprates et de leur gamme de dopage accessible. En fonction des composés, certaines techniques expérimentales sont plus adaptées que d'autres.

trie change et devient tétragonal (D_{4h}). Cette levée de dégénérescence conduit finalement au demi-remplissage de l'orbitale $d_{x^2-y^2}$.

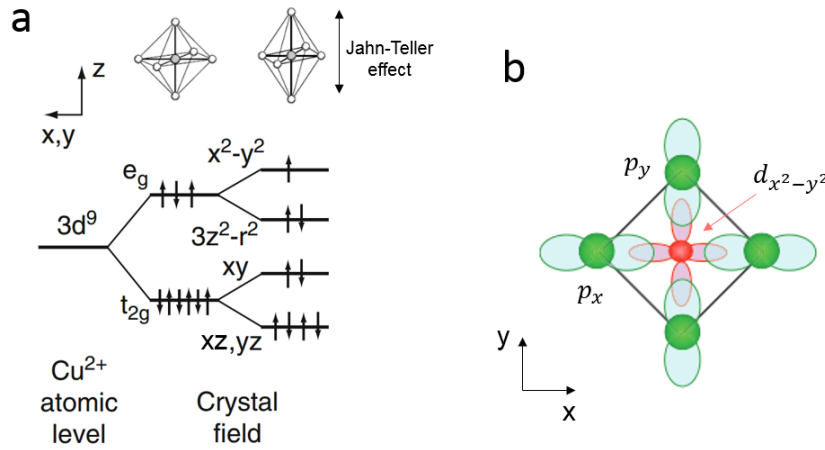


FIGURE 4.3 – **a)** Structure électronique de l'ion Cu^{2+} en prenant en compte l'effet du champ cristallin. **b)** Recouvrement de l'orbitale $d_{x^2-y^2}$ avec les orbitales p_x et p_y de l'oxygène : le trou sur $d_{x^2-y^2}$ peut sauter sur les oxygènes voisins rendant les plans CuO_2 conducteurs. Figures adaptées des références [19, 75]

On s'attend donc à ce que les propriétés de transport proviennent du recouvrement de l'orbitale demi-remplie $d_{x^2-y^2}$ avec les orbitales p_x et p_y des atomes d'oxygènes² (Figure 4.3.b). Dans une vision de liaisons fortes, ce recouvrement permet au trou de sauter sur un cuivre voisin en "passant" par l'oxygène : il est mobile dans le plan (\mathbf{x}, \mathbf{y}) . Cette approche est confir-

2. Le champ cristallin lève aussi les dégénérescences des orbitales p des ions O^{2-} en trois niveaux : (π_{\parallel} , π_{\perp} et π_{σ}). Les orbitales p_x et p_y qui forment une liaison avec les ions cuivres sont contenues dans π_{σ} .

mée par les calculs de structure de bande [76] qui montrent que La_2CuO_4 est conducteur. La surface de Fermi est composée d'une grande poche de trous centrée en X qui provient de l'hybridation des orbitales p de l'oxygène et de l'orbitale $d_{x^2-y^2}$ du cuivre (figure 4.4).

Le problème, est que l'expérience montre que La_2CuO_4 est un isolant avec un gap de transfert de charge de l'ordre de l'électronvolt [77]. Cet état isolant provient de la répulsion coulombienne entre les électrons qui tend à les localiser sur leur site, mais qui n'est pas directement prise en compte dans les calculs de structure de bandes. L'intégration des interactions entre électrons se fait par résolution du modèle de Hubbard, qui va au-delà de l'approximation des électrons indépendants que nous allons maintenant discuter.

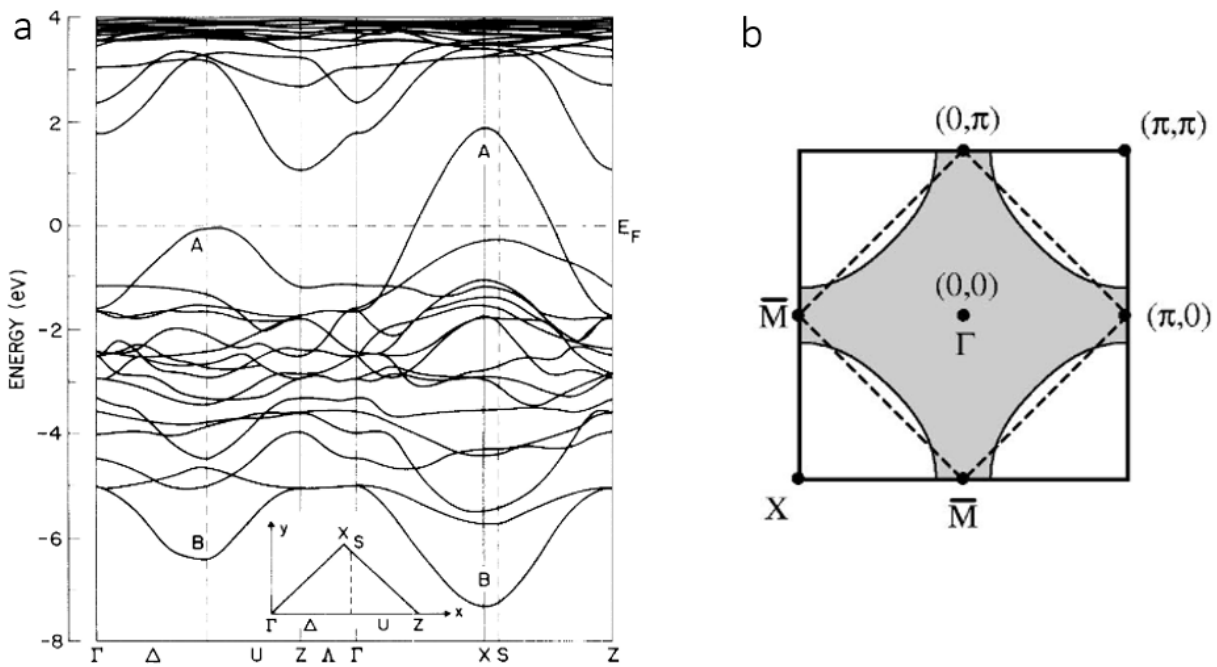


FIGURE 4.4 – a) Calcul LDA de la structure de bande de La_2CuO_4 [76]. Les bandes indiquées A et B sont respectivement les bandes antiliantes et liantes provenant de l'hybridation des orbitales $d_{x^2-y^2}$ du cuivre et p_x et p_y de l'oxygène. La bande antiliante, de type trous, croise le niveau de Fermi. b) Surface de Fermi caractérisée par une poche de trous centrée en X [72].

4.1.3 Isolant de Mott antiferromagnétique

Reprenons notre idée antérieure selon laquelle un trou (ou un électron) peut sauter sur un site voisin, mais considérons maintenant l'interaction coulombienne entre deux électrons se trouvant sur un même site. Le modèle adapté pour décrire cette situation est le modèle de

Hubbard à une bande (1 site par maille unité) dont l'hamiltonien prend la forme suivante :

$$H = H_0 + H_{int} \quad (4.1)$$

$$= -t \sum_{\langle i,j \rangle, \sigma} (c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + h.c.) + U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} \quad (4.2)$$

L'hamiltonien de Hubbard est divisé en deux blocs : un hamiltonien de liaison forte H_0 qui donne le gain en énergie cinétique $-t$ lorsqu'un électron saute sur le site voisin, et un hamiltonien d'interaction H_{int} qui représente le coût U de la double occupation sur un site. Le transfert de charge dépend donc du rapport U/t .

Dans la limite de couplage faible ($U/t \rightarrow 0$), le modèle de Hubbard permet de retrouver la situation de la section 4.1.2 : les effets d'interactions sont négligés et les plans CuO_2 sont conducteurs (à demi-remplissage).

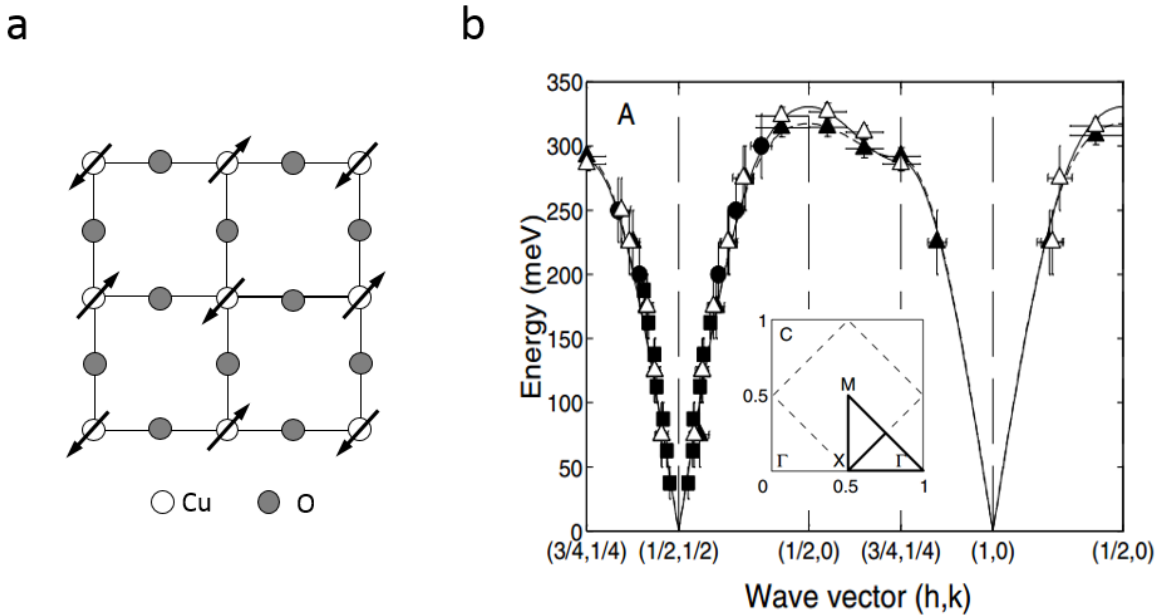


FIGURE 4.5 – **a)** Représentation de l'ordre antiferromagnétique dans les plans CuO_2 . **b)** Dispersion des magnons mesurée en diffusion inélastique de neutrons dans le réseau de spins AFM de La_2CuO_4 [78].

La limite qui nous intéresse pour décrire l'état isolant est la limite de couplage fort ($U/t \rightarrow \infty$), qui correspond au cas de fortes interactions. Dans cette limite, les électrons ne peuvent pas sauter sur le site voisin en raison de la forte répulsion coulombienne. Dans une vision de bandes, le terme d'interaction a pour effet de scinder la bande à demi remplie du cuivre en deux bandes (LHB pour Lower Hubbard band et UHB pour Upper Hubbard Band) séparées par un gap d'énergie d'ordre U . Le niveau de Fermi se trouve dans le gap et le matériau est isolant. Le composé parent des cuprates est donc un "isolant de Mott", c'est-à-dire un isolant

dont le transfert de charge est bloqué par les interactions répulsives entre électrons.

En plus de prédire l'état isolant des plans CuO_2 , le modèle de Hubbard prévoit aussi l'existence d'un ordre magnétique provenant de l'interaction d'échange entre les électrons de sites voisins. Nous faisons ici un pas supplémentaire dans la description des cuprates qui va au-delà des propriétés de transport : l'état fondamental du composé parent est un isolant de Mott antiferromagnétique.

L'ordre antiferromagnétique est une conséquence de la limite $U/t \rightarrow \infty$: H_0 peut être traité comme une perturbation de l'hamiltonien d'interaction H_{int} (voir par exemple la réf. [26] p.760-763). Le hamiltonien de Hubbard se réduit alors à l'hamiltonien de Heisenberg :

$$H = J \sum_{\langle i,j \rangle} S_i \cdot S_j \quad (4.3)$$

avec $S_{i,j}$ les opérateurs de spins. J représente l'interaction d'échange³ entre spins voisins qui est positive et égale à $J = 4t^2/U$. L'antiferromagnétisme des cuprates a été observé en diffraction de neutrons et la figure 4.5 montre la dispersion des magnons (ondes de spin).

4.1.4 Le modèle de Hubbard à trois bandes : modèle $d-p$

Si le modèle de Hubbard représente un bon point de départ, il ne considère qu'une seule orbitale par site. Une description plus complète consiste à prendre en compte l'hybridation de l'orbitale $d_{x^2-y^2}$ avec les orbitales p_x et p_y des oxygènes, comme discuté précédemment : il s'agit du modèle de Hubbard à trois bandes, ou modèle $d-p$ [80]. Dans ce modèle, en plus du gap U , il faut prendre en compte le gap de transfert de charges $\Delta = \epsilon_p - \epsilon_d$.

Lorsque $U \ll \Delta$ le matériau est appelé isolant de Mott-Hubbard : la bande de l'oxygène a une énergie plus faible que la LHB (figure 4.6.a). A l'inverse, lorsque $U \gg \Delta$, la LHB se situe sous la bande p de l'oxygène : il s'agit d'un isolant à transfert de charge (figure 4.6.b). Les cuprates sont des isolants à transfert de charge avec un gap $\Delta \approx 2eV$ mesuré en conductivité optique [77].

Nous allons devoir maintenant nous éloigner de la physique du composé parent et étudier les effets du dopage. Cette approche est nécessaire, car lorsque l'on dope le composé parent, quelques pourcents de dopages en trous suffisent à déstabiliser l'ordre AFM et à faire émerger la supraconductivité. Avant de décrire plus en détail les effets du dopage, faisons un petit récapitulatif de la situation :

- Les cuprates sont formés d'un empilement d'un ou plusieurs plan(s) CuO_2 séparé(s) par des réservoirs de charges.
- Le composé parent est un isolant de Mott antiferromagnétique, il est correctement

3. Dans les cuprates, il s'agit plutôt de super-échange, car le couplage entre les deux cuivres de sites voisins se fait par les oxygènes [79].

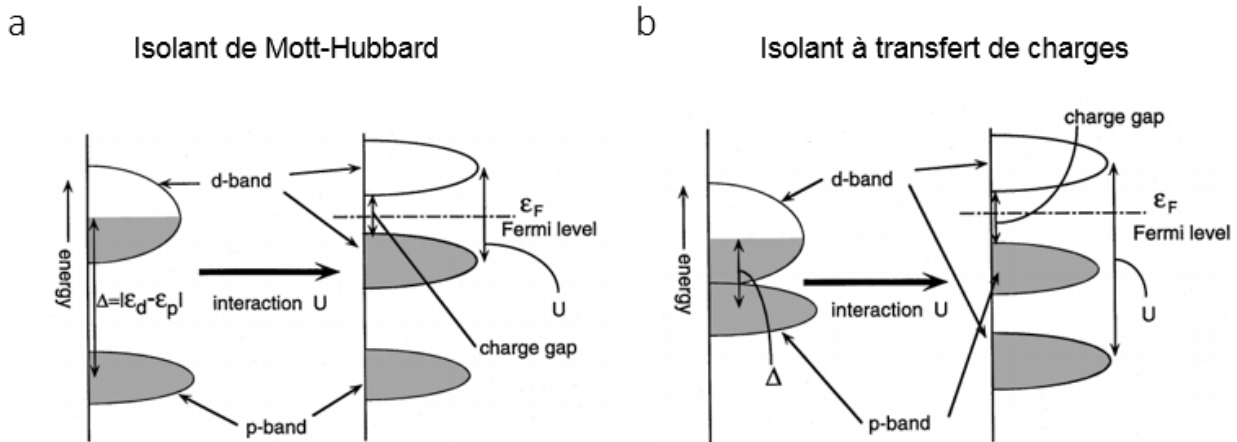


FIGURE 4.6 – Illustration des niveaux d'énergie dans le cas **a)** des isolants de Mott -Hubbard et **b)** des isolants à transfert de charges. Les cuprates sont des isolants à transfert de charges [22].

décrit par le modèle de Hubbard et l'hamiltonien de Heisenberg.

- Les cuprates sont des isolants de Mott à transfert de charge : la première bande accessible sous le niveau de Fermi est la bande p de l'oxygène.

4.1.5 Effet du dopage dans les cuprates

Le dopage est le paramètre extérieur clef pour accéder à la supraconductivité non conventionnelle dans les cuprates. Je vais maintenant décrire le mécanisme du dopage avec les quelques notions discutées dans la section précédente.

Doper un isolant de Mott à transfert de charge

L'idée la plus simple que l'on puisse se faire du dopage est la variation du potentiel chimique : l'ajout de trous abaisse le potentiel chimique et remplit la bande inférieure. Dans le cas des cuprates qui sont des isolants à transfert de charge, il s'agit de la bande p de l'oxygène. Le dopage en électrons a l'effet inverse : le potentiel chimique augmente et ajoute des électrons à la bande de Hubbard supérieure (bande d) .

Mais dans les cuprates, l'ajout de porteurs contribue aussi à diminuer les corrélations : on ne peut donc pas conserver une vision de bandes rigides. Dans LSCO, les mesures de conductivité optique montrent que le dopage en trous modifie la structure électronique : le poids spectral qui correspond au gap de transfert de charge (situé à 2 eV à dopage nul) diminue avec le dopage en trous (jusque $p \approx 0.20$) alors qu'à fort dopage ($p > 0.20$), le caractère itinérant des porteurs est complètement récupéré avec un pic de Drude à énergie nulle (figure 4.7).

Cette expérience illustre les deux limites du modèle de Hubbard : à dopage nul, les trous

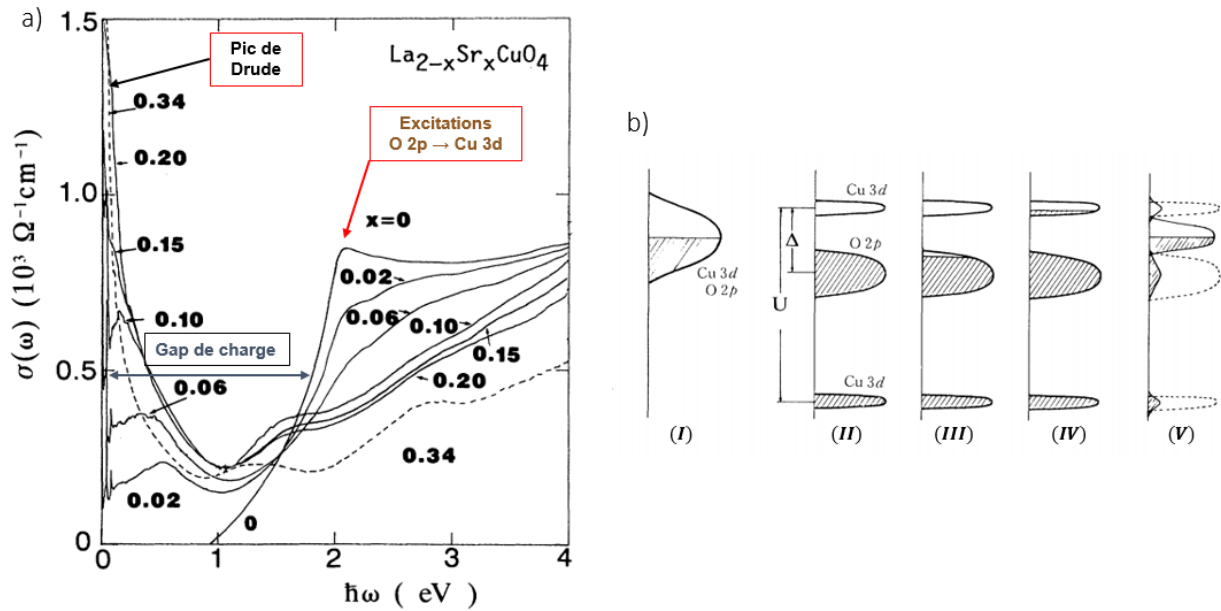


FIGURE 4.7 – a) Mesures de conductivité optique à différents dopages dans LSCO à température ambiante. Le gap de charge mesuré à dopage nul laisse place à un pic de Drude à fort dopage. b) La redistribution du poids spectral entre ces deux limites est comprise en dehors de l’approximation des bandes rigides. Sont représentés : (I) La bande demi-remplie du composé parent sans prise en compte des interactions. (II) L’état isolant de Mott à transfert de charge. (III) et (IV) L’effet du dopage respectivement en trous et en électrons dans l’approximation des bandes rigides. (V) Les états reconstruits par l’action du dopage en dehors de l’approximation des bandes rigides. D’après [77]

sont localisés, les excitations du système correspondent au gap Δ , il s'agit de la limite de fortes interactions. A fort dopage ($p > 0.20$), les propriétés conductrices des plans CuO_2 sont rétablis et les calculs de structure de bande en donnent une bonne description (Section 4.2.1).

Le singulet de Zhang-Rice

Au niveau microscopique, nous avons discuté dans la partie 4.1.4 que le modèle de Hubbard à 3 bandes était plus réaliste dans le cas des cuprates, car ce sont des isolants de Mott à transfert de charges. Mais Zhang et Rice [81] ont montré qu'un trou ajouté sur l'oxygène par dopage forme un état lié (Singulet de Zhang-Rice) avec le trou du cuivre voisin. L'hamiltonien à trois bandes peut donc être réduit à un hamiltonien effectif à une bande, appelé modèle t-J :

$$H_{t-J} = - \sum_{\langle i,j \rangle, \sigma} P_d (t_{ij} c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + h.c.) P_d + J \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \quad (4.4)$$

avec P_d l'opérateur de projection qui exclut la double occupation sur un même site. À demi-remplissage, aucun saut n'est autorisé et on retrouve l'hamiltonien de Heisenberg. La difficulté dans les cuprates est de comprendre la physique à dopage intermédiaire, où de nombreuses phases électroniques en compétition sont observées. Elles sont discutées dans le contexte du diagramme de phase $T(p)$ des cuprates.

4.2 Le diagramme de phase des cuprates

La figure 4.8 représente le diagramme de phase des cuprates dopés en trou auquel nous limiterons dans la suite de ce manuscrit : on y retrouve les principales phases mises en évidence expérimentalement et communes à tous les composés. La phase supraconductrice forme un dôme centré au dopage optimal dont la dépendance en dopage est reproduite par une loi empirique parabolique appelée loi de Tallon [82, 83] :

$$T_c/T_c^{max} = 1 - 82.6(p - 0.16)^2 \quad (4.5)$$

Par convention, on appelle la région située à gauche du dopage optimal la région sous-dopée et celle à droite la région sur-dopée. On trouve dans la région sous-dopée de nombreux ordres électroniques en compétition dont les principaux⁴ sont le pseudogap, la supraconductivité, l'antiferromagnétisme et l'ordre de charge. La région sur-dopée est caractérisée par le liquide de Fermi à fort dopage, mais aussi par le métal étrange qui correspond à l'émergence d'anomalies de transport à mesure que l'on se rapproche du dopage optimal. La limite T^* correspond à la ligne de démarcation du pseudogap. À température nulle, l'entrée dans le

4. Il existe d'autres phases qui sont observées dans certains composés comme les stripes, l'ordre de spin ou le verre de spin, mais elles ne sont pas communes à tous les composés.

pseudogap se fait au dopage critique p^* (figure 4.8).

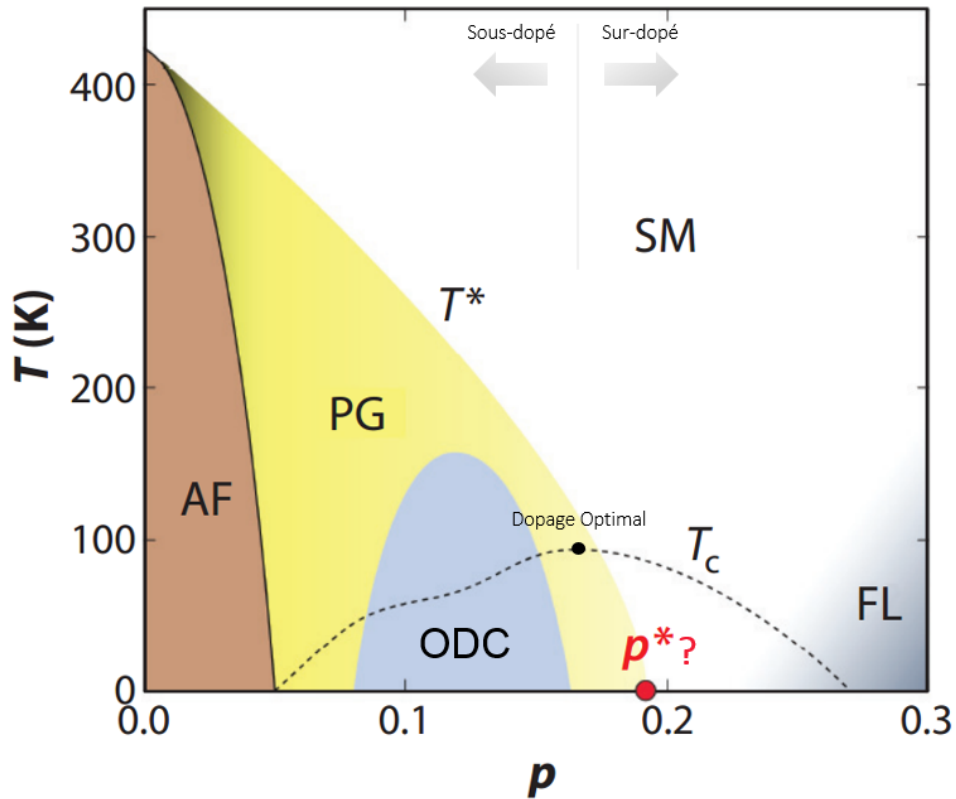


FIGURE 4.8 – Diagramme de phase type des cuprates dopés en trous. En variant le dopage depuis le composé parent, on trouve : l’antiferromagnétisme (AF), le pseudogap (PG), l’ordre de charge (ODC), le métal étrange (SM), le liquide de Fermi (FL). La ligne en pointillés représente le dôme supraconducteur. Adaptée de [84]

Les phases décrites dans le paragraphe précédent possèdent des signatures expérimentales mesurables en transport électrique. Pour accéder à ces signatures dans la limite $T \rightarrow 0$, il est nécessaire de supprimer la supraconductivité dont la résistivité nulle empêche les mesures de transport ou d’oscillations quantiques. On appelle cette partie du diagramme de phase l’état normal. Les deux méthodes pour accéder à l’état normal sont l’ajout d’impuretés et l’application de champ magnétique. Un exemple d’ajout d’impuretés est la substitution du cuivre par du zinc dans le composé $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{1-y}\text{Zn}_y\text{O}_4$ (Zn-LSCO) qui abaisse la température critique à mesure que la concentration de Zinc augmente. On note cependant que l’ajout d’impuretés diminue considérablement le temps de vie des quasiparticules et n’est donc pas compatible avec la condition $\omega_c\tau > 1$, nécessaire pour des mesures comme les oscillations quantiques.

Pour mesurer l’état normal sans altérer la qualité des échantillons, on utilise plutôt un champ magnétique (figure 4.9). La principale limitation est les très forts champs critiques ($H_{c2}(T \rightarrow 0) \sim 150T$ pour YBCO $p=0.19$) qui rendent inaccessible l’état normal pour proche

du dopage optimal dans les expériences de champ magnétique pulsé non destructifs.

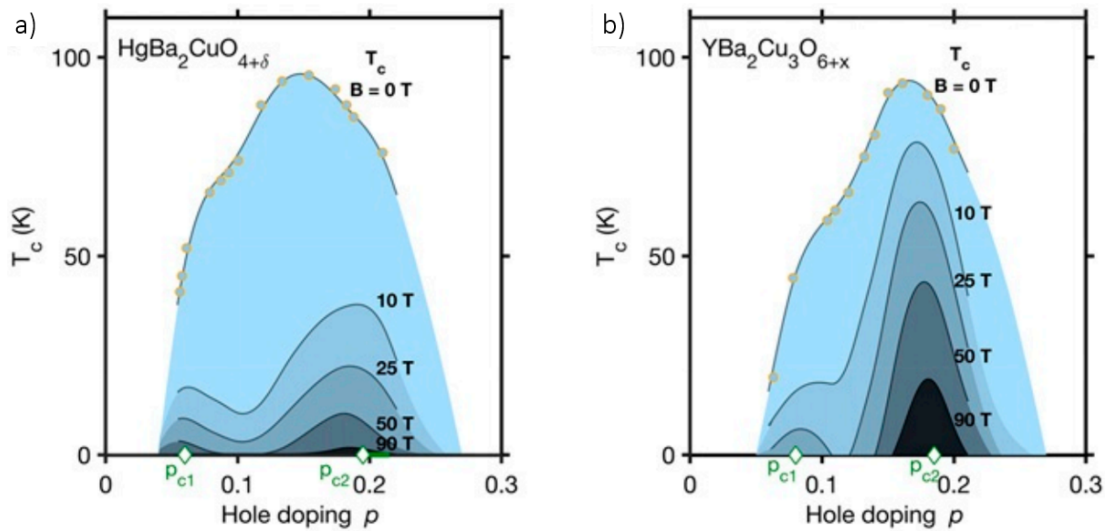


FIGURE 4.9 – Dôme supraconducteur de a) Hg-1201 et b) YBCO en fonction du dopage pour différentes valeurs de champ magnétique [85]

L'accès à l'état normal est essentiel pour comprendre l'origine de la supraconductivité qui est une instabilité de la phase normale. Dans les cuprates, le dôme supraconducteur s'étend de part et d'autre d'un diagramme particulièrement complexe (figure 4.8). L'objet de la suite de ce chapitre est de décrire les propriétés des principales phases et notamment des signatures expérimentales associées.

4.2.1 Le liquide de Fermi à fort dopage

Je vais commencer par discuter la région surdopée du diagramme de phase ($p > 0.2$) caractérisée par un comportement de type liquide de Fermi et correctement décrit par les calculs de structure de bande.

Dans un liquide de Fermi, la diffusion électron-électron est dominante à basse température et induit une dépendance en température de la résistivité en T^2 . Les mesures de résistivité du côté surdopé du diagramme de phase reproduisent cette dépendance : l'évolution en température de la résistivité suit une loi en T^2 dans l'état normal de LSCO surdopé ($p = 0.30$). Un autre test de la validité de la théorie du liquide de Fermi est la validation de la loi de Wiedemann-Franz en déduisant le nombre de Lorentz, dont la valeur attendue dans la limite $T \rightarrow 0$ est $L_0 = \rho_0 \kappa_0 / T = 2.44 \cdot 10^{-8} W \Omega / K$. Les mesures de l'état normal de $Tl_2Ba_2CuO_{6+\delta}$ (Tl-2201) ($p = 0.28$) par application de champ magnétique de 15 T ont permis de mesurer la résistivité et la conductivité thermique dans la limite $T \rightarrow 0$. La valeur du nombre de Lorentz extrait de ces mesures s'est avérée être en excellent accord avec celle attendue pour

un liquide de Fermi : $L = (0.99 \pm 0.01)L_0$.

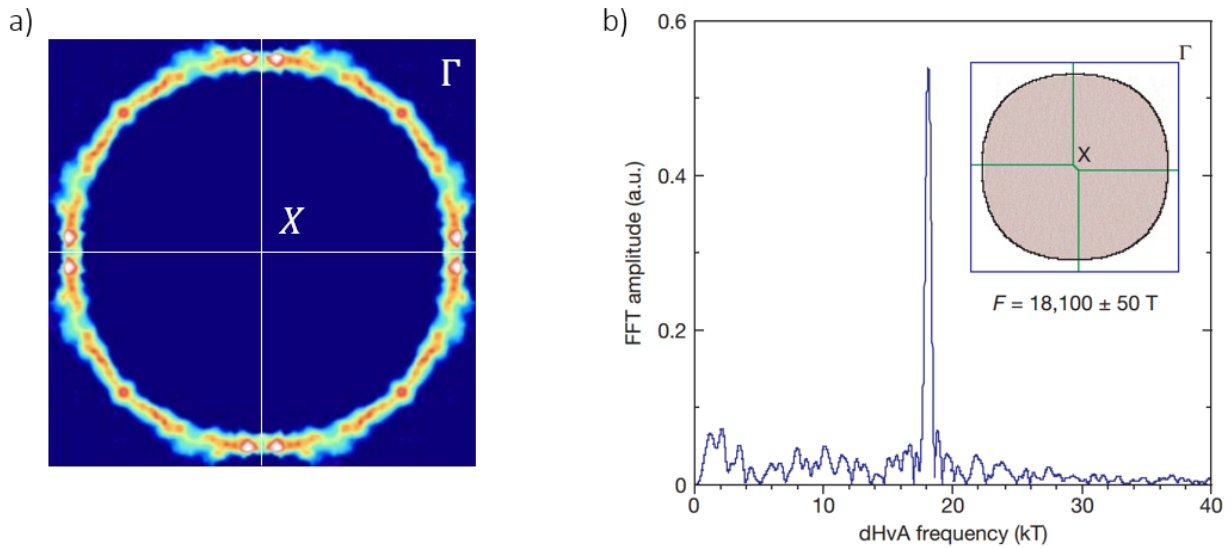


FIGURE 4.10 – **a)** Surface de Fermi de Tl-2201 surdopé ($T_c \approx 30$ K) mesurée en ARPES [86]. **b)** Spectre des oscillations quantiques (de Haas-Van Alphen) de Tl-2201 surdopé ($T_c \approx 10$ K) à $T = 0.7 \text{ K} \pm 0.2 \text{ K}$ révélant la présence d’une grande poche de $1 + p$ porteurs dans Tl-2201 [87].

La région surdopée est aussi correctement décrite par les calculs de structure de bandes. Les travaux d’ADMR (Angle-Dependent Magnetoresistance) de N.Hussey dans Tl-2201 furent les premiers à donner une cartographie de la surface de Fermi formée d’une grande poche de trous de $n = 1 + p$ porteurs [88]. Elle fût ensuite mesurée en ARPES [86] puis en oscillations quantiques avec une fréquence unique à $F \approx 18 \text{ kT}$ correspondant à 65% de la première zone de Brillouin (figure 4.10). Le caractère trou de la poche ainsi que la densité de porteurs ont été déterminés par mesures d’effet Hall avec $R_H \approx +0.8 \text{ mm}^3 / C$ qui correspond à une densité de porteurs égale à $n = 1 + p$ trous [89]. Une densité de porteurs égale à $1 + p$ trous par maille unité signifie que le trou localisé sur le site de cuivre dans la phase isolant de Mott antiferromagnétique devient mobile du côté surdopé.

Cependant, il subsiste de fortes corrélations dans la région surdopée : dans Tl-2201, la masse effective mesurée en oscillations quantiques est près de 4 fois supérieure à la masse de bande prédite en DFT, avec $m^*(OQ) = 4.1 \pm 1.0 m_0$ contre $m^*(DFT) \approx 1.2 m_0$ [87].

4.2.2 Le métal étrange

À mesure que l’on diminue le dopage, on sort progressivement du régime liquide de Fermi pour entrer dans une région du diagramme où des anomalies de transport commencent à apparaître. On appelle métal étrange la région du diagramme de phase immédiatement au-dessus de p^* , s’étendant jusqu’à l’extrémité du dôme supraconducteur.

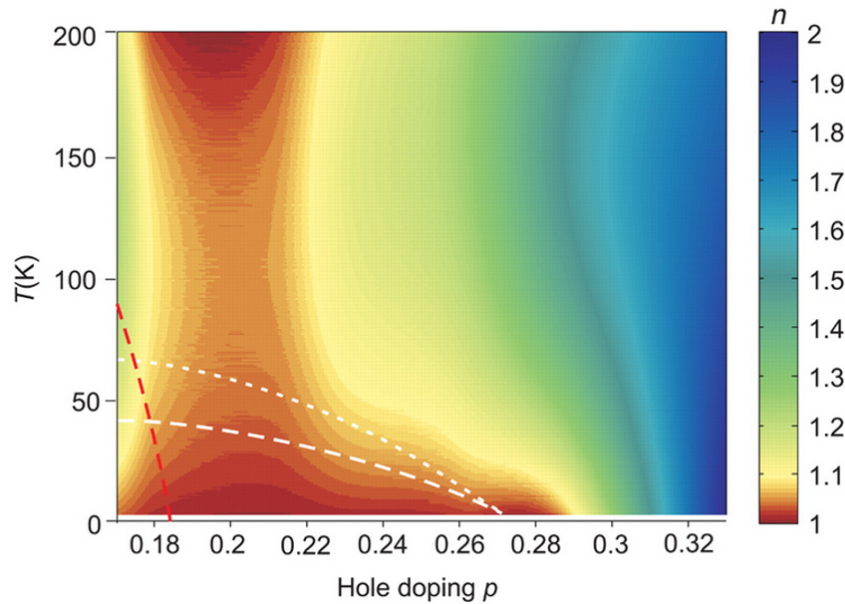


FIGURE 4.11 – Évolution du coefficient de la loi $\rho \sim T^\alpha$ dans LSCO [90]. La ligne en pointillés rouges correspond à démarcation du pseudogap. Les longs pointillés blancs délimitent le dôme supraconducteur et les pointillés resserrés l'apparition de fluctuations supraconductrices.

A haute température, ce métal étrange est qualifié de mauvais métal et se caractérise par une résistivité qui ne sature pas en température et qui dépasse la limite de Ioffe-Mott-Regel [91].

A basse température, il est caractérisé par une dépendance linéaire en température de la résistivité, s'écartant du comportement T^2 standard. Ceci est illustré sur la figure 4.11.a, où l'exposant de la dépendance de la température dans (T) pour LSCO est mappé en fonction de p et T [90]. On voit que l'exposant vaut 2 à $p = 0.33$ et évolue progressivement vers 1 lorsque $p \rightarrow p^* = 0.18-0.19$. L'évolution peut également être décrite comme une somme de deux termes, c'est-à-dire $\rho \sim T + T^2$, ce qui est très similaire à ce qui est observé dans le supraconducteur organique $(TMTSF)_2PF_6$ au-dessus de son point quantique critique anti-ferromagnétique [21]. Cependant, dans cette classe de matériaux, la résistivité reste linéaire en température jusqu'à $T \rightarrow 0$ uniquement au point quantique critique. Lorsque l'on s'écarte du point quantique critique et que l'on rentre dans la phase liquide de Fermi, la résistivité redevient T^2 à basse température. Par contraste, dans LSCO, la résistivité reste linéaire en température dans une large gamme de dopage (figure 4.11), ce qui a conduit les auteurs à parler de 'criticalité anormale'. L'origine de cette observation fait toujours débat.

Bien qu'aucune explication convaincante de la résistivité linéaire en température lorsque $p \rightarrow 0$ n'ait encore été trouvée, il a été observé empiriquement que la pente de la résistivité linéaire pour plusieurs métaux est approximativement donnée par un taux de diffusion qui a une valeur universelle, à savoir $\hbar/\tau = k_B T$ [92, 93]. Cette observation suggère qu'un régime

T-linéaire serait observé chaque fois que $1/\tau$ atteint sa limite planckienne, $k_B T/\hbar$, quel que soit le mécanisme sous-jacent de la diffusion inélastique.

4.2.3 Le pseudogap

Le pseudogap couvre une large région de la partie sous-dopée du diagramme de phase. Il est caractérisé par une chute de la densité d'état électronique au niveau de Fermi liée à l'ouverture d'un gap partiel suivant certaines directions de la surface de Fermi. Une question importante est de déterminer si un ordre peut être associé au pseudogap et, si oui, quelle est la symétrie de son paramètre d'ordre.

Chute de la densité d'états

Le pseudogap (PG) correspond à une chute de la densité d'états électroniques en dessous d'une température T^* qui a d'abord été mesurée en RMN (Résonance Magnétique Nucléaire) dans les composés YBCO [94] et LSCO [95] sous-dopés.

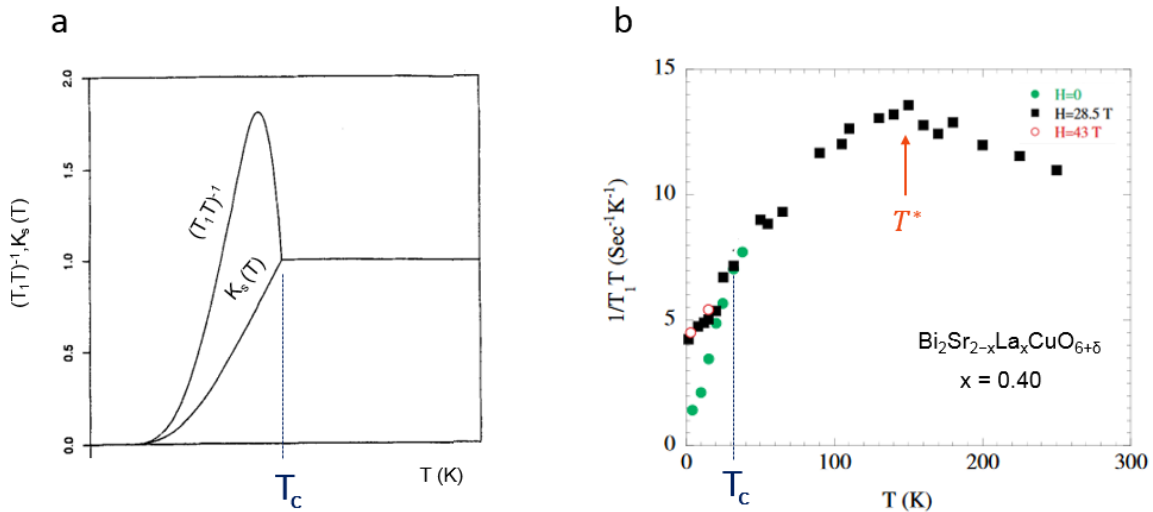


FIGURE 4.12 – a) Évolution en température du Knight shift K_S et du taux de relaxation de spin divisé par la température $(T_1 T)^{-1}$ en fonction de la température dans un supraconducteur BCS [96]. b) Taux de relaxation de spin en fonction de la température dans ($x = 0.40$). La température T^* correspond à l'ouverture du PG et à la diminution de $(T_1 T)^{-1}$. T^* est de l'ordre de 150 K, bien supérieure à $T_c \approx 30 \text{ K}$. Adapté de [97].

La RMN mesure la susceptibilité au travers du Knight Shift K et du taux de relaxation de spin $1/T_1$. Le Knight shift correspond au décalage de la fréquence de résonance magnétique nucléaire d'un noyau atomique dû à son environnement et se décompose en une partie orbitale K^{orb} , indépendante de la température, et une partie de spin K^s dépendante de la température.

Cette dernière est directement reliée à la partie réelle de la susceptibilité à $q = 0$ par la relation :

$$K^s = \frac{\bar{A}}{|g|\mu_B} \chi_0 \quad (4.6)$$

Avec A un terme de couplage, g le facteur de Landé, μ_B le magnéton de Bohr et $\chi_0 = \chi(q = 0, \omega = 0)$ la partie réelle de la susceptibilité.

Le taux de relaxation de spins divisé par la température $1/T_1 T$ est relié à la partie imaginaire de la susceptibilité par :

$$\frac{1}{T_1 T} = \frac{k_B \gamma_N^2}{(g\mu_B)^2} \sum_{\mathbf{q}} |A_{\perp}(\mathbf{q})|^2 \chi_{\perp}'' \frac{(\omega_L, \mathbf{q})}{\omega_L} \quad (4.7)$$

Avec $|A_{\perp}(\mathbf{q})|^2$ le facteur de forme, γ_N^2 le rapport gyromagnétique, ω_L la pulsation de Larmor et χ_{\perp}'' la partie imaginaire de la susceptibilité.

L'évolution en température de ces deux grandeurs pour un supraconducteur BCS est connue : pour $T > T_c$, la susceptibilité est indépendante de la température (susceptibilité de Pauli) puis diminue à $T < T_c$ en raison de la formation des paires de Cooper et de la chute de la densité d'état électronique au niveau de Fermi (apparition d'un gap) (figure 4.12.a). Dans les cuprates, la chute de la susceptibilité se produit à une température T^* supérieure à la température de transition supraconductrice (figure 4.12.b). C'est cette chute de densité d'état inattendue qui marque l'entrée dans le pseudogap.

D'autres sondes expérimentales ont par la suite mises en évidence la chute de la densité d'états. La chaleur spécifique a permis de mesurer une diminution anormale⁵ du coefficient de Sommerfeld γ à T^* dans YBCO et Bi2212 [98, 99]. Un constat intéressant est qu'aucune discontinuité n'est observée sur les données de la chaleur spécifique, indiquant que le pseudogap est un crossover. En microscopie à effet tunnel (STM), il a été suggéré la présence d'un gap dans la densité d'états centrée au niveau de Fermi qui persiste au dessus de T_c [100].

À ce stade, la chute de la densité d'états peut être comprise suivant différents scénarios. Elle peut provenir de la formation de paires de Cooper à T^* sans cohérence de phase : c'est le scénario des paires préformées qui sera discuté dans la partie dédiée aux théories des cuprates. Mais un scénario de type onde de densité, pourrait aussi amener à une chute de la densité d'états au niveau de Fermi (nesting). Il est en réalité difficile de conclure sur l'origine du PG avec les seules données de RMN et de chaleur spécifique.

Photoémission

Les mesures de photoémission résolue en angle (ARPES) offrent la possibilité de résoudre en angle les états électroniques remplis. L'observation de la surface de Fermi de Bi-2212 à

5. Le coefficient de Sommerfeld $\gamma = C_{el}/T$ est proportionnel à la densité d'état électronique au niveau de Fermi. Il est indépendant de la température dans les liquides de Fermi.

$T < T^*$ indique que la chute de la densité d'états mesurée en RMN correspond à une perte de poids spectral suivant les directions $(0, \pm\pi)$ et $(\pm\pi, 0)$ [101], appelées directions antinodales en référence au gap supraconducteur (cf partie 4.2.6). Les portions non gappées restantes sont appelées arcs de Fermi en raison de leur forme non conventionnelles (figure 4.13.a). Elles sont situées suivant les directions $(\pm\pi, \pm\pi)$ appelées directions nodales. Les dépendances en dopages et en températures montrent que la formation des arcs de Fermi correspond à l'entrée dans le PG, notamment à basse température où la perte de poids spectral aux anti-noeuds se produit à p^* .

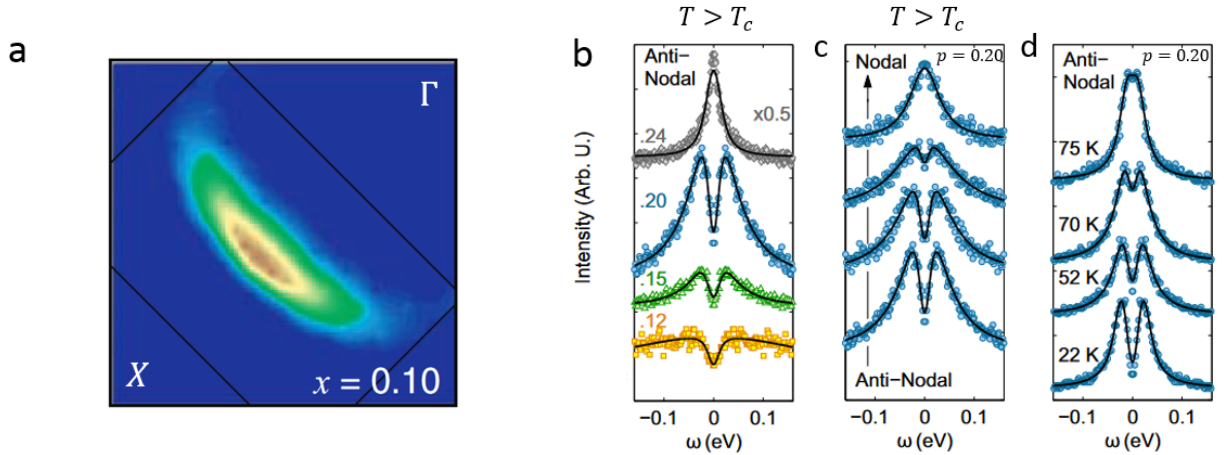


FIGURE 4.13 – **a)** Arc de Fermi mesuré en ARPES dans $\text{Ca}_{2-x}\text{Na}_x\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ à $x = 0.10$. **b) et c)** Spectres de photoémission de Nd-LSCO mesurés au-dessus de T_c pour différents dopages (**b)** et dans différentes directions de la première zone de Brillouin à $p = 0.20$ (**c**). **d)** Spectres de photoémission de Nd-LSCO à $p = 0.20$ à différentes températures [102].

Les mesures d'ARPES montrent des similarités importantes entre la supraconductivité et le PG : la symétrie du PG rappelle fortement la supraconductivité de type d dans les cuprates avec un gap non nul suivant les direction nodales. De plus, le pic de cohérence dans les parties gappées n'est défini clairement qu'en dessous de T_c . Néanmoins, des mesures plus récentes ont mises en évidence qu'il était possible de distinguer le PG du gap supraconducteur [103].

Signature en transport

Le PG se manifeste également dans les expériences de transport. En 1993, Ito et al. mirent en évidence une déviation de la loi en $\rho \sim T^\alpha$ de la résistivité dans des échantillons de YBCO sous-dopés à T^* (figure 4.14.a). La même année, Homes et al. observent que l'entrée dans le PG correspond à une diminution de la conductivité optique basse fréquence mesurée suivant l'axe **c** [104] (figure 4.14.b).

Ce qui est intéressant avec les mesures de transport, c'est que le comportement observé est différent suivant que le courant est appliqué dans le plan **ab** ou suivant l'axe **c**. Les mesures

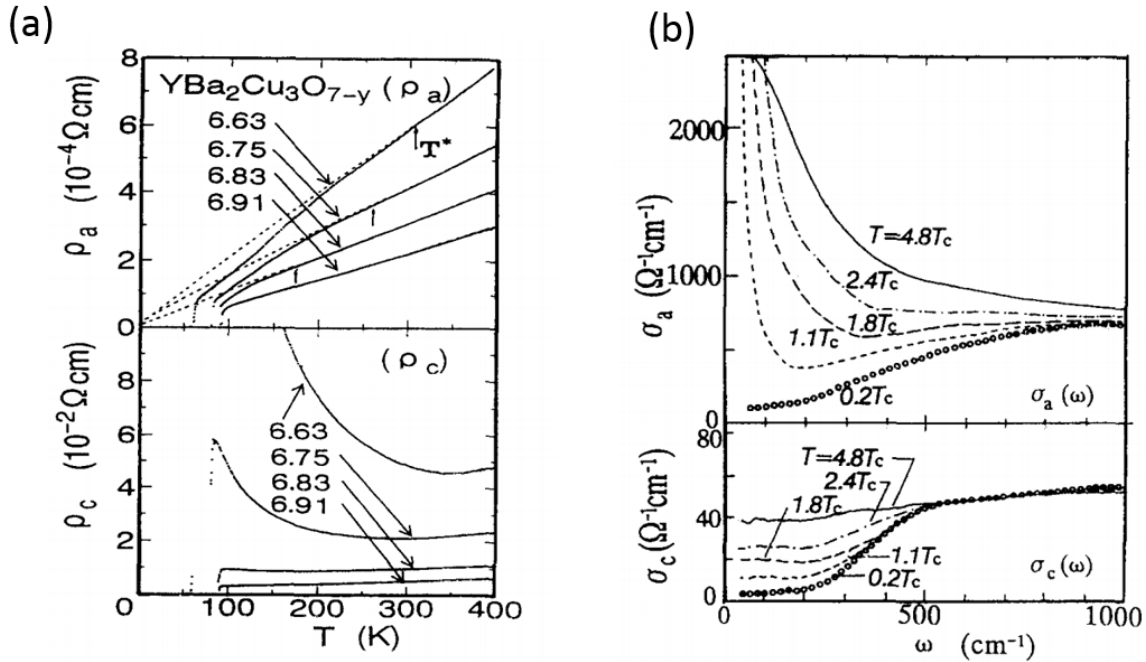


FIGURE 4.14 – **a)** Dépendance en température de la résistivité DC dans YBCO pour différents dopages. La signature du PG est différente suivant que le courant est appliqué parallèlement aux plans (baisse de la résistivité) ou perpendiculairement aux plans (hausse de la résistivité) [105]. **b)** Mesure de la conductivité optique dans YBCO, là aussi les signatures du PG sont différentes suivant la polarisation du champ électrique incident. De [106]

de résistivité DC et de conductivité optique réalisées dans les plans CuO_2 montrent que l'entrée du PG correspond à une baisse de la résistivité et à un affinement du pic de Drude en $\omega = 0$ [106]. Cette signature contraste fortement avec celle observée sur les mesures perpendiculaires aux plans : la résistivité augmente et le poids spectral diminue à basse fréquence (figure 4.14).

On peut interpréter les différentes réponses en transport à partir des données d'ARPES. Dans les cuprates, le transport suivant l'axe c est dominé par les directions $(\pm\pi, 0)$ et $(0, \pm\pi)$ de la surface de Fermi [107]. L'apparition d'un caractère isolant perpendiculaire aux plans CuO_2 est donc cohérente avec la disparition de certaines portions de la surface de Fermi suivant les directions $(\pm\pi, 0)$ et $(0, \pm\pi)$ vue dans les expériences de photoémission.

Chute de la densité de porteurs

L'effet Hall permet une mesure de la densité de porteurs par la mesure du nombre de Hall n_H . Dans le composé YBCO, R_H a pu être mesuré autour du dopage optimal à basse température par l'application de champ magnétique intense (80 T). L'extrapolation dans la limite $T \rightarrow 0$ montre qu'au passage de p^* depuis le côté surdopé, R_H passe de $0.4 \text{ mm}^3/\text{C}$

($p=0.205$) à près de $2.5 \text{ mm}^3/\text{C}$ ($p=0.16$). Rapporté en densité de porteurs, cela correspond à une chute de $1 + p$ à p porteurs par maille unité (Figure 4.15). Le passage de $1 + p$ à p a par la suite aussi été observé dans LSCO [108] et Nd-LSCO [109]. Toute la question est de savoir quelle est la forme de la surface de Fermi qui contient $n = p$ en dessous de p^* . On peut se poser la question différemment et se demander quel ordre reconstruit la grande poche de trou de $1 + p$ porteurs en plus petites poches de densité $n = p$?

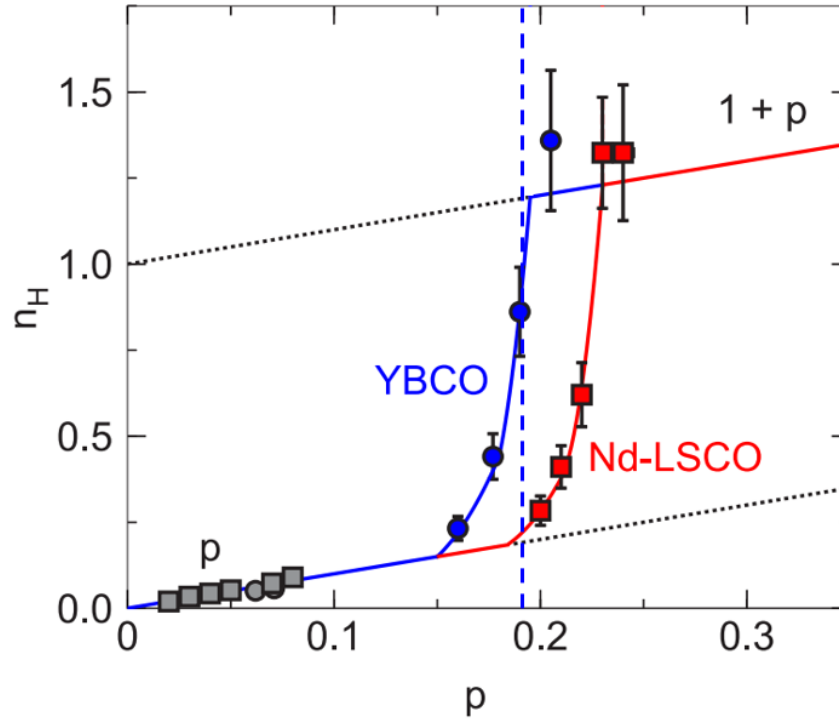


FIGURE 4.15 – Chute de la densité de porteurs de $1 + p$ à p dans YBCO et Nd-LSCO. La ligne pointillée bleue correspond à $p^* = 0.19$ [109]

Brisure de symétries associées au Pseudogap

Comme le PG possède des signatures expérimentales qui lui sont propres, il est légitime (et important) de déterminer s'il est caractérisé par un ordre qui se développerait en dessous de T^* . Si un tel ordre existe, il doit reconstruire la grande poche de trou du côté surdopé en plus petites poches (baisse de la densité de porteurs). Cette question ne fait pas encore consensus dans la communauté. Pour autant, un paramètre d'ordre semble pouvoir lui être attribué et est associé à une brisure de symétrie identifiée.

Pour une transition de phase du second ordre, on s'attend à observer une discontinuité de la chaleur spécifique à la température critique de transition. La mesure du coefficient de Sommerfeld dans $\text{Y}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (relié à la chaleur spécifique électronique par $\gamma = C_{el}/T$) indique que l'ouverture du pseudogap se caractérise par une diminution graduelle de C_{el} avec

la température, sans discontinuité apparente [110].

Concernant la recherche d'un paramètre d'ordre associé au pseudogap, les mesures de diffraction de neutrons polarisés⁶ indiquent que T^* correspond à l'apparition d'un ordre magnétique à $\mathbf{q} = 0^7$ dont la longueur de corrélation suivant l'axe \mathbf{c} est d'au moins 75 Å (limité par la résolution du spectromètre) [111]. Cet ordre est associé à des boucles de courant intra-cellule unité (figure 4.16) qui brise la symétrie d'invariance par renversement du temps, mais pas celle de translation. Des études théoriques basées sur les boucles de courant expliqueraient aussi la disparition de poids spectral suivant certaines directions de la surface de Fermi [112]. Des mesures de Torque ont suggéré que le pseudogap est associé à un ordre nématique [113]. Mais l'interprétation de ces résultats est encore discutée, car l'ordre nématique n'est pas observé sur les mesures de transport dans YBCO sous-dopé [114]. De plus, il n'est pas évident de réconcilier un ordre nématique avec une perte de densité de porteurs à T^* .

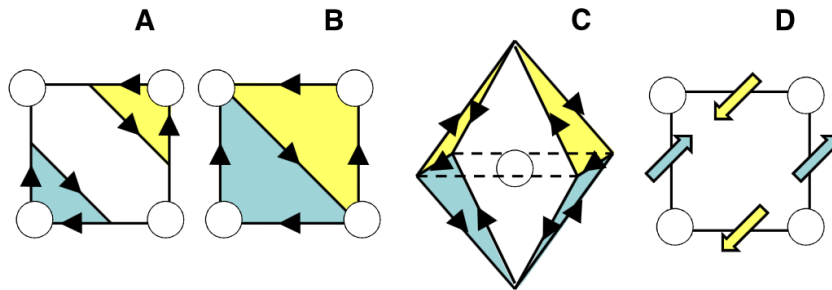


FIGURE 4.16 – Exemple de quatre différentes symétries de boucles de courant intra-cellule unité qui peuvent expliquer les données de neutrons. [111]

L'identification d'une symétrie brisée à l'entrée du pseudogap permettrait de donner des indications sur la nature de l'ordre (s'il y en a un) qui reconstruit la grande poche de trou du côté surdopé de $1 + p$ porteurs en plus petite(s) poche(s) de p porteurs. Cet exercice est complexifié par la surface de Fermi non conventionnelle du PG, formée d'arcs. A plus bas dopage, lorsque l'antiferromagnétisme réapparaît, les poches contenant les $n = p$ porteurs ont récemment été observées et contrastent avec les arcs de Fermi du pseudogap.

4.2.4 La phase antiferromagnétique et onde de densité de spin

Dans la partie sous-dopée du diagramme de phase, la phase isolant de Mott est très vite déstabilisée par le dopage en trous. En ajoutant quelques pourcents de porteurs par maille unité, une transition vers un ordre magnétique conducteur est observée par diffraction de neutrons dans YBCO [115] en dehors de la phase isolant de Mott ($0.05 < p < 0.07$), ou en RMN dans les composés multicouches [116]. Par définition, on parlera d'antiferromagnétisme

6. L'utilisation de neutrons polarisés est nécessaire pour dissocier le pic de diffraction provenant de l'ordre magnétique de celui du réseau.

7. Cela correspond à la présence de moments magnétiques antiparallèles dans la cellule unité.

(AFM) dans le cas d'un ordre de vecteur de modulation $Q_{AFM} = (\pi, \pi)$ et d'onde de densité de spin (ODS) pour un ordre non commensurable de vecteur $Q_{ODS} = (\pi \pm \delta, \pi \pm \delta)$ avec δ le vecteur d'incommensurabilité.

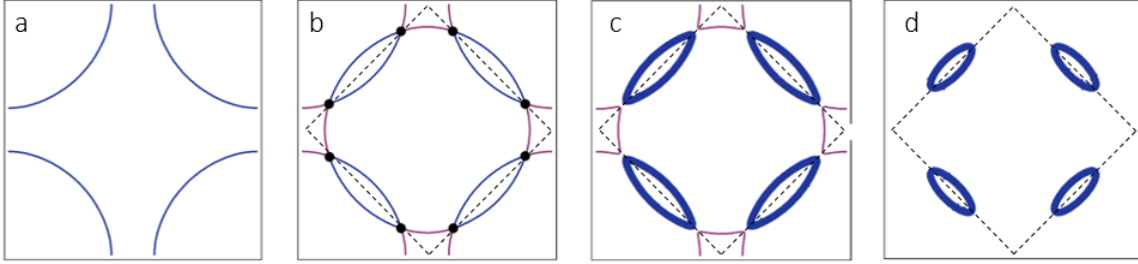


FIGURE 4.17 – Schéma de reconstruction de la surface de Fermi par un ordre AFM. **a)** Surface de Fermi non reconstruite avec 1 trou par site plus une certaine valeur de dopage. La densité de porteurs est alors $n = 1 + p$ **b)** Reconstruction par un ordre AFM : les états sont translatés d'un vecteur d'onde $q_{AFM} = (\pi, \pi)$ et la nouvelle zone de Brillouin est réduite de moitié (lignes pointillées). La surface de Fermi résultante est constituée de deux poches de trous (noeuds) et d'une poche d'électrons (antinoeuds). **c)** Ajout d'un potentiel AFM levant la dégénérescence des états aux croisements des bandes. **d)** Au delà d'une certaine valeur du potentiel AFM, seules les poches de trous demeurent avec une surface proportionnelle au dopage (théorème de Luttinger). La densité de porteurs est alors $n = p$. Adaptée de [117]

Avant de discuter plus en détail quelques signatures en transport de la phase magnétique dans les cuprates sous-dopés, je souhaite présenter comment un ordre AFM reconstruit théoriquement la grande poche de trous des cuprates surdopés. Un ordre AFM translate les états d'un vecteur Q_{AFM} et réduit la première zone de Brillouin de moitié, après une rotation de $\pi/2$. En partant de la grande poche de trous contenant $1 + p$ porteurs, l'AFM reconstruit la surface de Fermi en deux plus petites poches de trou (directions nodales) et une poche d'électron (directions anti-nodales) (figure 4.17). A bas dopage, et en prenant en compte le potentiel antiferromagnétique, la surface de Fermi après reconstruction est constituée de deux poches de trous⁸ dont la densité de porteur est $n = p$ de manière à obéir au théorème de Luttinger (Figure 4.17.d).

Ce scénario n'explique pas⁹ la chute de densité de porteurs à p^* mais donne une description de la surface de Fermi attendue dans le cas d'une reconstruction par un ordre AFM. À bas dopage, les mesures d'effet Hall dans YBCO [118] et LSCO [119] indiquent que la densité de porteurs à basse température correspond à celle attendue dans un tel scénario, soit $n = p$ trous. Dans LSCO, ces signatures perdurent jusqu'à un dopage d'environ 7%.

La surface de Fermi de la figure 4.17.d a été mesurée récemment en ARPES et oscillations quantiques dans un cuprate multicouche. Cette famille est particulièrement bien adaptée à

8. On aurait trouvé une surface de Fermi similaire en reconstruisant les arcs de Fermi du Pseudogap

9. L'antiferromagnétisme à longue portée est mesuré à des dopages très inférieurs à p^* (quelques pourcents)

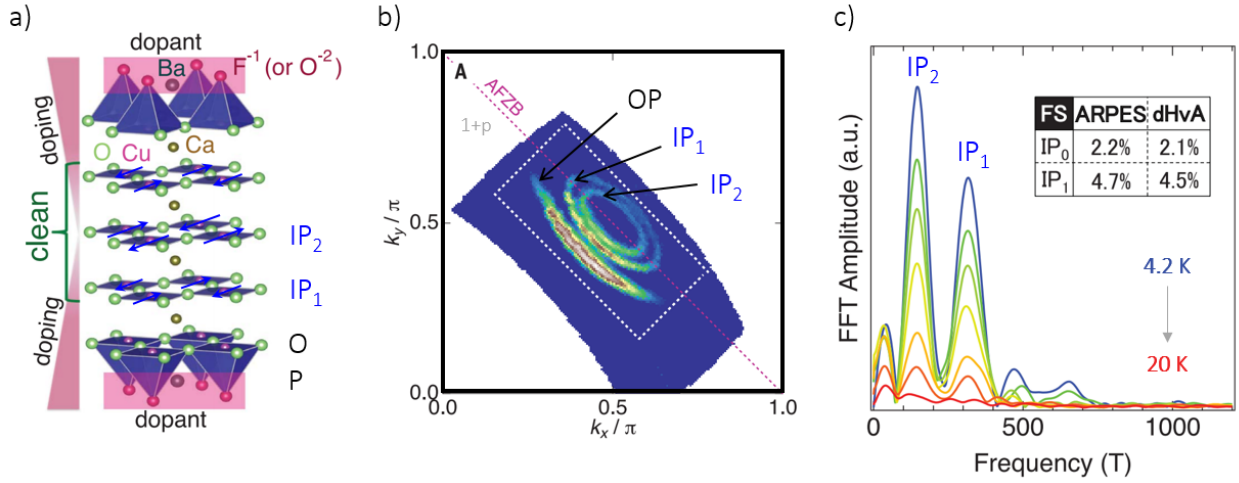


FIGURE 4.18 – **a)** Maille cristalline de 0245 composée d'un empilement de 5 plans CuO_2 . La structure induit que 3 plans soient inéquivalents en dopage. Ils sont appelés OP (plan extérieur), IP_1 (premier plan intérieur) et IP_2 (deuxième plan intérieur). **b)** Surface de Fermi de 0245F sous dopé $T_c = 65$ K mesurée à $T = 5$ K dans une fenêtre d'énergie de 10 meV autour de E_F dans la phase supraconductrice. Les flèches indiquent les surfaces de Fermi d'une ODS pour les plans intérieurs IP_0 , IP_1 , et du pseudogap (arc de Fermi) pour les plans extérieurs. La ligne grise représente la grande poche de trous des cuprates surdopés, de $n = 1 + p$ porteurs. **c)** Spectre des oscillations quantiques mesurées sur le même échantillon entre 4.2 K et 20 K. La fréquence des deux pics observés est de 147 T (IP_2) et 318 T (IP_1). Ces pics correspondent aux poches induites par l'ODS dans les deux plans IP_1 et IP_2 , en excellent accord avec les mesures d'ARPES.

l'étude de l'AFM qui est stabilisée par le couplage interplan. Elle est aussi connue pour la différence de dopage entre ses différents plans CuO_2 de la cellule unité : les plans extérieurs sont toujours plus dopés que les plans intérieurs car ils sont plus proches des réservoirs de charges ce qui favorise le transfert de charges (figure 4.18.a).

Dans le composé 5 plans $\text{Ba}_2\text{Ca}_4\text{Cu}_5\text{O}_{10}(\text{F},\text{O}_2)$ (0245), les deux plans intérieurs (IP_1 et IP_2) sont dans la phase AFM avec le plan IP_2 légèrement moins dopé que le plan IP_1 , comme révélés par ARPES et les oscillations quantiques [120]. La fréquence des oscillations quantiques est en excellent accord avec les données d'ARPES et correspond à une densité de porteurs $n \approx p$ (Figure 4.18.b, c). Pour le plan extérieur, l'observation d'un arc de Fermi est en accord avec les mesures de RMN [116], qui indiquent qu'il n'y a plus d'AFM longue portée. Aucune autre fréquence correspondant à la surface de Fermi des plans extérieurs n'est d'ailleurs mesurée en oscillations quantiques.

Ces mesures indiquent que les poches peuvent être interprétées dans un scénario de reconstruction de la grande poche de trou par un ordre de spin. Mais comme nous l'avons vu, la chute de la densité de porteurs se produit au dopage critique p^* qui correspond à l'ouverture du pseudogap et qui est supérieur aux dopages où l'ODS prend fin (estimé à ≈ 0.07 dans YBCO). La forme non-conventionnelle des arcs de Fermi indique aussi que le PG est diffi-

cilement réconciliable avec une reconstruction de la surface de Fermi par un ordre AFM, à moins que l'ARPES ne détecte qu'une partie des poches de trous.

Nous allons maintenant parler des études réalisées à basse température dans l'état normal du pseudogap qui montrent qu'un ordre de charge se développe à dopage intermédiaire, entre la phase magnétique et p^* .

4.2.5 L'ordre de charge

L'ordre de charge (ODC) est une modulation de la densité électronique accompagnée d'une distorsion du réseau. La brisure de la symétrie de translation résultante de l'émergence de l'ODC a pour effet de reconstruire la surface de Fermi à l'intérieur même du pseudogap. La première observation de l'ODC dans un cuprate remonte à 1995 par mesure de diffraction de neutrons dans $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$ (LBCO) ($p = 0.12$) [121]. Les mesures dans cette région du diagramme de phase étaient motivées par la diminution anormale de la T_c autour du dopage $p = 1/8$. Elles montrèrent que l'anomalie du diagramme de phase était associée à l'émergence d'une superstructure composée d'un ODC et d'un ordre de spin, colinéaires entre eux, appelés stripes. La modulation de charge est unidirectionnelle et commensurable à bas dopage, de période $T_{\text{charge}} = 4a_0$. Son vecteur d'onde est relié à celui de l'ordre de spin tel que $\delta_{\text{charge}} = 2\delta_{\text{spin}}$ (Figure 4.19). Les stripes ont été observés quelques années après par mesure de diffraction de rayons X [122]. L'observation de stripes dans LBCO a motivé la recherche de tels ordres dans les autres familles de cuprates, d'autant que les stripes sont prédits par le modèle de Hubbard [123].

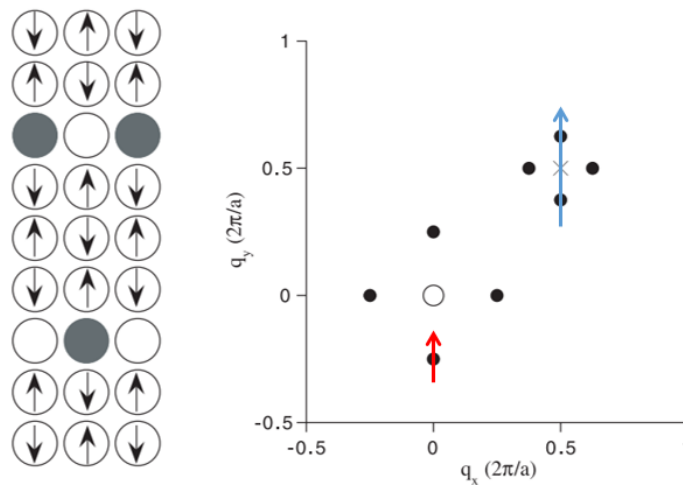


FIGURE 4.19 – Représentation des stripes (gauche) pour un dopage $\delta = 1/8$ et figure de diffraction vue en neutron (droite). La flèche bleue croise les pics liés à l'ordre de spin situés en $(0.5, 0.5, \pm\delta)$ et la flèche rouge un des pics de l'ODC en $(0.5, 0.5, \pm 2\delta)$. Adaptées de [124]

Dans les autres familles de cuprates, l'ODC est observé à des dopages similaires, mais les

mesures de diffraction de neutrons n'indiquent aucun ordre de spin (dans les limites expérimentales) [125]. On parle donc bien "d'ordre de charge" dans les cuprates, même si historiquement, il a été mis en évidence par l'observation des stripes dans LBCO. L'ODC a par la suite été observé en STM dans Bi-2212 [126], en RMN dans YBCO [127, 128] et en rayon-X dans YBCO, Hg-1201 et Bi-2201 [129-131]. Il forme un dôme à l'intérieur du pseudogap de $0.08 < p < 0.16$, centré à un dopage d'environ $1/8$ [132]. Dans le détail, deux ordres de charge distincts sont mesurés dans YBCO : un ordre 2D de courte portée, et un 3D de longue portée (figure 4.20).

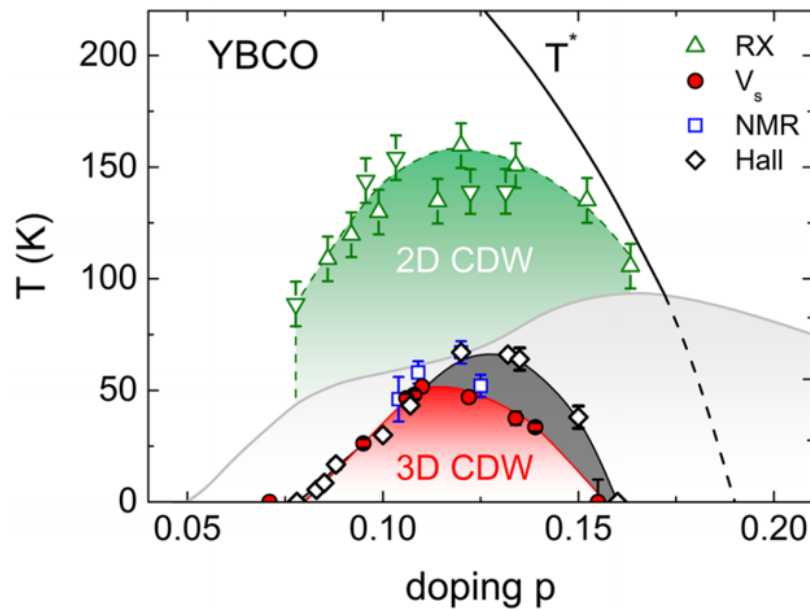


FIGURE 4.20 – Diagramme de phase d'YBCO. Le dôme d'ODC 2D est mesuré en diffraction de rayon-X (triangles verts vers le bas) et en diffusion résonante de rayon-X (RXS) (triangles verts vers le haut). Le dôme d'ODC 3D est tracé à partir des données de RMN (carrés bleus) et d'ultrason (cercles rouges). Le changement de signe de l'effet Hall est indiqué par les diamants noirs. [133]

Ordre de charge 2D

L'ordre de charge 2D est caractérisé par une modulation de la densité de charge dans les plans CuO_2 et a été largement étudié en rayon-X dans de nombreux composés. Par exemple, dans YBCO l'observation d'un pic de diffraction suivant les directions \mathbf{a} et \mathbf{b} au vecteurs d'ondes $q \approx -0.31$ r.l.u. (Figure 4.21.a) indique qu'un ODC incommensurable, avec des longueurs de corrélations d'une vingtaine de pas de réseau ($\xi^{\text{YBCO}}/a \approx 25$) et de seulement ¹⁰ quelques pas de réseau dans Hg-1201 ($\xi^{\text{Hg1201}}/a \approx 5$) [135, 136]. L'anomalie de Kohn de

10. La différence entre les longueurs de corrélation est probablement une conséquence du désordre [135].

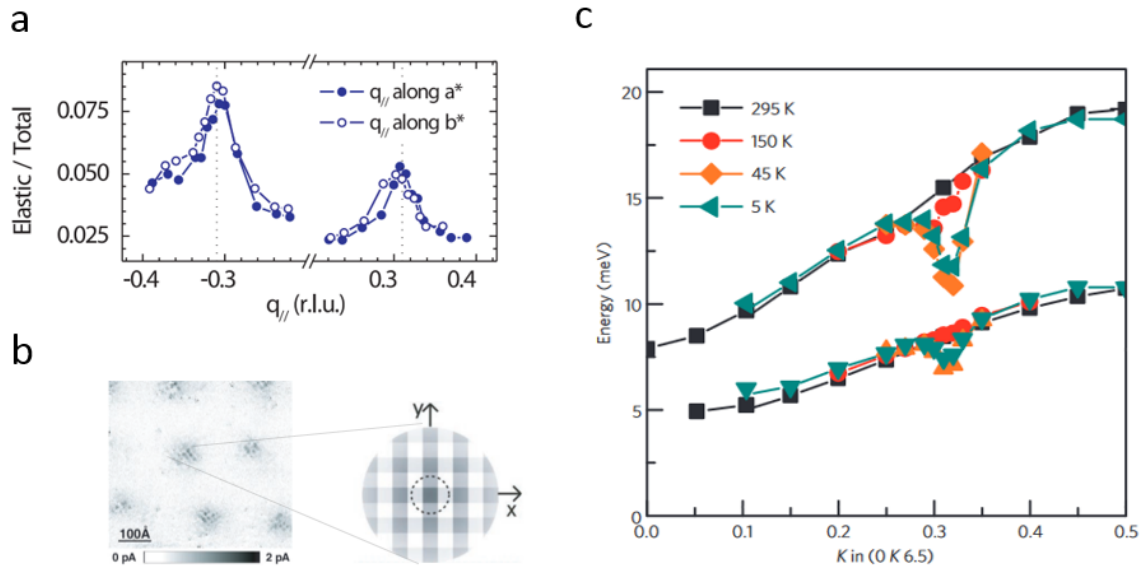


FIGURE 4.21 – **a**) Pic de diffraction vues en RXS dans YBCO ($p \approx 0.11$). La position des pics ($\delta = \pm 0.31$ r.l.u) indique un ordre incommensurable avec le pas du réseau [129]. **b**) Ordre de charge vue dans le réseau de vortex ($H/c = 5T$) de Bi-2212 en STM, la période mesurée est égale à 4 cellules unités [126]. **c**) Anomalie de Kohn à $q_{CDW} = 0.31$ r.l.u vue sur la dispersion des phonons dans YBCO ($p \approx 0.11$) [134].

l'ODC est observée dans le spectre des phonons de YBCO aux mêmes vecteurs d'onde qu'en rayon-X (Figure 4.21.b).

La visualisation directe de la modulation de la densité de charge a été faite aussi par des mesures de STM dans les composés à base de bismuth. Dans Bi-2212 $p=0.12$, l'ODC est vu dans le réseau de vortex sous l'application d'un champ magnétique de 5 T (figure 4.21.c), une étude comparative entre STM et rayon-X apporte la même conclusion sur les vecteurs de modulation établis à $\delta \approx 0.3$ r.l.u [137]. La dépendance en dopage du vecteur de modulation montre qu'il diminue à mesure que le dopage en trous augmente pour tous les cuprates, à l'exception de LSCO en raison de la structure stripes [138]. La diminution du vecteur d'onde avec le dopage est en accord avec l'augmentation de la fréquence des oscillations quantiques dans YBCO, comme nous allons le voir dans la suite.

Une difficulté est d'établir si la modulation de l'ODC est intrinsèquement biaxiale ou uniaxiale. La raison est que l'ODC apparaît sous forme de domaines, probablement liés au désordre [135, 139]. La figure de diffraction obtenue pour des domaines d'ODC uniaxial mais tournées de 90 degrés entre eux est identique à celle attendue pour des domaines d'ODC biaxial. De nombreuses mesures semblent indiquer un ordre uniaxial [140], mais comme nous le verrons dans la suite, les mesures d'oscillations quantiques sont interprétées dans un scénario d'ODC biaxial.

Compétition avec la supraconductivité

De nombreuses mesures montrent que l'ODC est en compétition avec la supraconductivité. L'effet le plus marqué est probablement la baisse de température critique autour du dopage $1/8$ qui génère une déviation à la loi de Tallon là où l'ODC existe. Ensuite, les mesures en diffraction de rayon-X montrent que la supraconductivité affecte aussi l'ODC : l'amplitude du pic de diffraction de l'ODC augmente lorsque la température diminue à mesure que l'ODC s'établit, mais une fois la température de transition supraconductrice atteinte, la tendance s'inverse et l'amplitude du pic de diffraction diminue. L'application d'un champ magnétique de 17 T suffit à supprimer la supraconductivité et à rétablir le pic de diffraction à basse température (figure 4.22). Une autre indication de la compétition entre les deux ordres est l'impact de la pression uniaxiale. Dans YBCO, l'application d'une pression suivant l'axe **a** induit une diminution de la température critique supraconductrice et un renforcement de l'ODC [141].

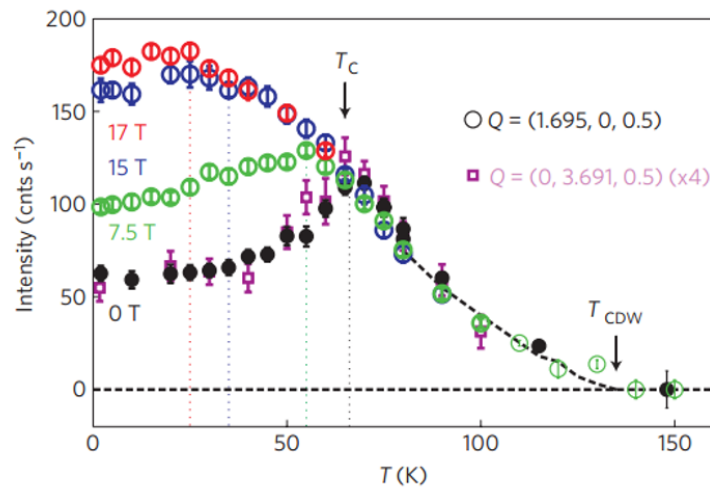


FIGURE 4.22 – Évolution de l'intensité du pic de diffraction de l'ODC vue en rayon-X pour différentes valeurs de champ magnétique dans YBCO. A champ nul, l'amplitude du pic diminue une fois la T_c franchie en raison de la compétition entre ODC et supraconductivité. Cette diminution n'est cependant pas observée sous champ, lorsque la supraconductivité est supprimée. [136]

Ordre de Charge 3D dans YBCO

Dans YBCO, le renforcement de l'ordre de charge 2D sous champ magnétique ou pression uniaxiale est suivi par l'émergence d'un ODC 3D avec une modulation suivant l'axe **c**. L'ODC 3D fût mis en évidence par mesure de RMN sous champ intense [127], puis mesuré par rayon-X [142] : en combinant les rayons-X à des champs magnétiques pulsés allant jusqu'à 28 T une nouvelle modulation de la densité de charge a été observée suivant l'axe **c** avec un vecteur

$\delta = 1$, (i.e. une période de modulation égale à la période du réseau) et une longueur de corrélation d'au moins 4 cellules unité suivant l'axe c . Le pic de Bragg correspondant à l'ordre 2D demeure indépendant du champ et ne semble pas impacté par l'établissement de l'ODC 3D (figure 4.24). La dépendance en dopage de l'ordre 3D par mesure de vitesse du son montre qu'il suit la même dépendance que l'ordre 2D, formant un dôme dans la partie sous-dopée [133] (Figure 4.20).

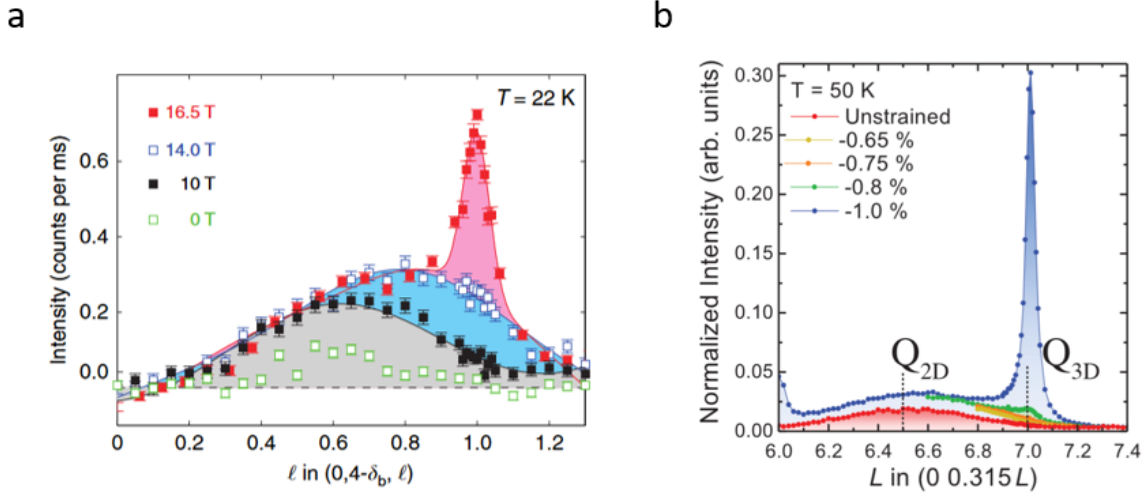


FIGURE 4.23 – **a)** Émergence de l'ODC 3D sous champ magnétique dans YBCO ($p \approx 0.12$) mesuré en diffraction de rayons-X. À $H = 16.5$ T, un pic de diffraction apparaît au vecteur de modulation $l = 1$ [143]. **b)** Émergence de l'ODC 3D sous pression uniaxiale dans YBCO ($p \approx 0.12$) mesurée en diffraction inélastique de rayon-X (IXS)RIXS. La modulation à $l = 1$ est nettement visible pour une compression suivant a de 1%. [141]

Récemment, il a été observé que l'application d'une pression uniaxiale induit aussi un ODC 3D coexistant avec l'ODC 2D dans YBCO [141]. Il semble donc que ce soit au profit de l'ODC 3D que la supraconductivité est déstabilisée par la variation de pression et de champ magnétique. Mais malgré les signatures d'une transition de phase associée à l'ODC, notamment en RMN ou en ultrasons [127, 144], il n'est pas encore établie que l'ODC 3D soit universel dans les cuprates : il n'a encore jamais été observé dans Hg-1201, où une reconstruction de la surface de Fermi est pourtant mesurée en oscillations quantiques et effet Hall.

Reconstruction de la surface de Fermi

L'ODC brise la symétrie de translation du réseau et reconstruit la surface de Fermi. La surface de Fermi résultante est composée d'une petite poche d'électrons mesurée en oscillations quantiques et effet Hall. L'origine de cette poche est comprise dans un scénario de reconstruction d'une surface de Fermi composée d'arcs ou de poches de trous par la nouvelle

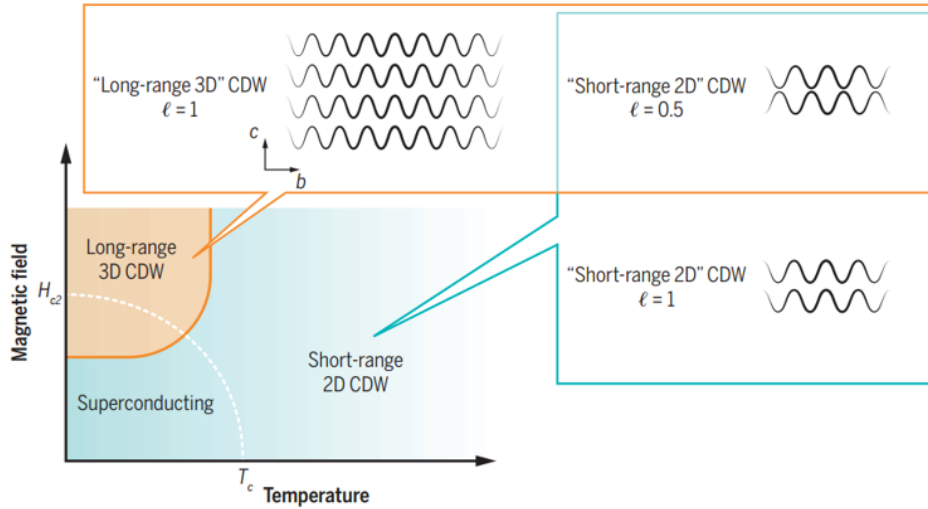


FIGURE 4.24 – Diagramme de phase $H(T)$ de YBCO avec le schéma des différents ODC [145]. L’ODC 2D est en phase entre les deux plans de la cellule unit  de YBCO (indiqu  "short-range 2D" CDW $l = 1$), mais en anti-phase entre diff rentes mailles ("short-range 2D" CDW $l = 0.5$). L’ODC 3D ($l = 1$) correspond   la mise en phase des modulations 2D le long de l’axe c ("long-range 3D" CDW $l = 1$). Les modulations 3D ($l = 1$) et 2D ($l = 0.5$) coexistent   fort champ magn tique et basses temp ratures

p riodicit  de l’ODC.

La reconstruction de la surface de Fermi par l’ODC a d’abord  t  observ e dans YBCO 10% par oscillations quantiques sous champs magn tiques intenses [146]. Le spectre des oscillations r v le la pr sence d’une petite poche d’environ 500 T  quivalente   $\sim 3\%$ de la premi re zone de Brillouin (figure 4.25.a). Le contraste est fort avec le c t  surdop  o  la fr quence mesur e est de l’ordre de 18 kT [87].

La poche li e   l’ODC est de type  lectron : les mesures d’effet Hall indiquent un changement de signe de R_H   basse temp rature dans YBCO (figure 4.25.c) [150]. Quelques ann es plus tard, les oscillations quantiques [148] et l’effet Hall n gatif [149] ont  t  observ s dans Hg-1201   dopage interm diaire, mais avec une fr quence l g rement plus  lev e ($F \approx 850T$) (figure 4.25.b).

La forme de la surface de Fermi reconstruite par l’ODC ne fait donc pas encore consensus (absence de donn es d’ARPES), elle est interpr t e pour expliquer au mieux l’ensemble des donn es exp rimentales (oscillations quantiques, rayon-X et effet Hall), sans pour autant avoir  t  r solue en \mathbf{k} . Le premier enjeu est de concilier les mesures de rayon-X avec l’aire de la poche mesur e en oscillations quantiques. Nous avons d j  discut  que l’ODC mesur  en rayon-X pouvait correspondre   un ODC biaxial ou uniaxial en raison de la formation des domaines.   ce jour beaucoup d’indices tendent   indiquer que l’ordre est uniaxial [140],

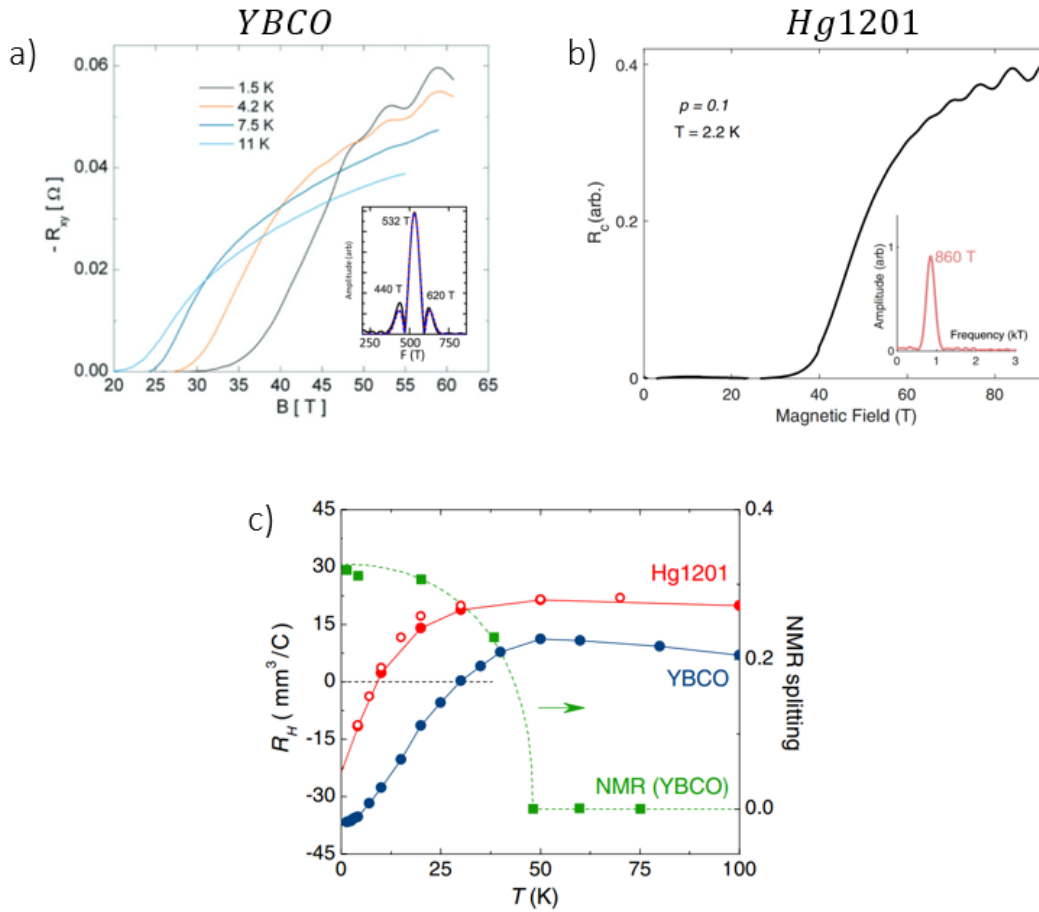


FIGURE 4.25 – **a)** Oscillations quantiques mesurées dans la phase ODC ($p = 0.10$) de YBCO en transport ($\mathbf{H} // \mathbf{c}$) [146]. La transformée de Fourier montre un lobe central centré à $F \approx 500T$ et de deux lobes satellites en raison de la structure bicouche de YBCO [147]. **b)** Oscillations quantiques mesurées dans la phase ODC ($p = 0.10$) de Hg-1201 en transport [148]. La fréquence des oscillations ($F \approx 850T$) est plus élevée que dans YBCO ($F \approx 500T$). **c)** Effet Hall dans YBCO et Hg-1201 ($p = 0.10$). A basse température, l'effet Hall négatif indique que la poche vue en oscillations quantiques est de type électrons [149].

mais la nature de la poche vue en oscillations quantiques est difficilement conciliable avec ce scénario.

Les reconstructions de la surface de Fermi par ordre de charge nécessitent de connaître la surface de Fermi initiale, puis de translater les états du vecteur d'onde d'ODC Q_{CDW} . Les scénarios de reconstructions par un ODC uniaxial ont montré que pour obtenir une poche d'électrons, le point de départ devait être la grande poche de trous du côté surdopé des cuprates, associée à un ordre nématique [151] (Figure 4.26.a). La surface de Fermi après reconstruction est formée d'une poche d'électrons provenant des états situés aux antinœuds ainsi que de bandes 1D. La chaleur spécifique après reconstruction s'estime à partir du coefficient de Sommerfeld à $\gamma_{th} \approx 11 \text{ mJK}^{-2}\text{mol}^{-1}$ dans YBCO [151, 153]. Cette valeur est bien

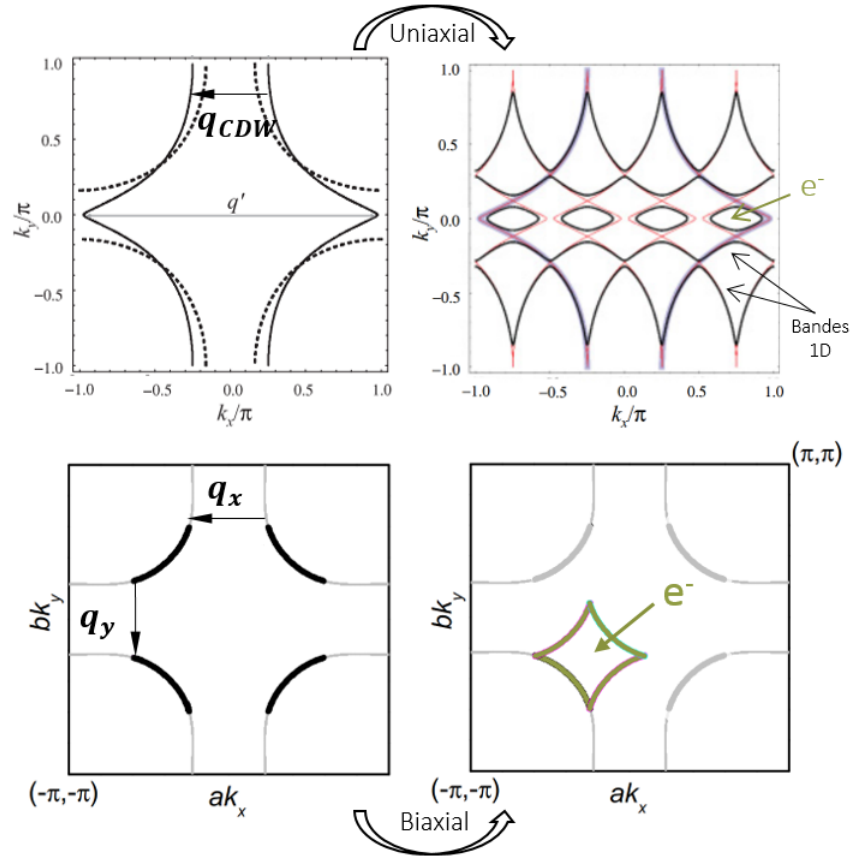


FIGURE 4.26 – a) et b) Scénario de reconstruction par un ordre de charge uniaxial de la grande poche de trous. Un ordre nématique doit être pris en compte avant reconstruction pour obtenir une petite poche d'électrons de fréquence correspondante à celle mesurée en oscillations quantiques. Des bandes 1D sont aussi présentes au niveau de Fermi après reconstruction. c) et d) Scénario de reconstruction par un ordre de charge biaxial des arcs de Fermi. La reconstruction produit une simple poche d'électrons qui correspond aux fréquences vues en oscillations quantiques. Adaptée de [151, 152]

supérieure à celle mesurée $\gamma_{exp} \approx 5.3 \text{ mJK}^{-2}\text{mol}^{-1}$ [154], ce qui indique qu'une partie des états électroniques reconstruits dans ce scénario est en réalité gappé. La localisation de la poche d'électrons aux antinœuds est aussi difficile à réconcilier avec la présence du pseudogap.

La reconstruction par un ordre biaxial apporte une meilleure description des données, mais nécessite que l'on prenne comme point de départ la surface de Fermi du pseudogap¹¹ (Figure 4.26). Dans ce modèle, proposé par N.Harrison [158], la poche d'électrons après reconstruction est placée suivant les directions nodales de la première zone de Brillouin et sa taille est

11. Dans un scénario de reconstruction par un ODC à partir de la grande poche de trous, deux petites poches supplémentaires de trous sont reconstruites aux antinœuds. Ces poches n'ont, à ce jour, jamais été mesurées en oscillations quantiques. Alors qu'une basse fréquence leur a été attribuée dans des mesures d'oscillations quantiques dans YBCO sous-dopé [155], elles peuvent être interprétées comme un effet d'interférences quantiques provenant de la structure double plan de YBCO [156, 157]

en bon accord avec les données d'oscillations quantiques (figure 4.26.d).

Le modèle de reconstruction par un ordre de charge biaxial explique aussi l'évolution en dopage de la taille de la poche d'électrons. Tabis *et al.* ont lié le vecteur d'onde de reconstruction à la taille de la poche d'électron dans l'espace réciproque à partir de leurs données de rayon-X (figure 4.27) [135]. Dans YBCO, la plus petite poche (~ 500 T) s'expliquerait par de plus grands vecteurs d'onde de reconstruction alors que dans Hg-1201, les plus petits vecteurs d'onde génèrent une poche plus grande d'environ ~ 850 T (figure 4.27). Les auteurs soulignent aussi que la poche d'électron ne peut dépasser 900 T car ses pointes qui sont dirigées suivant les directions antinodales atteignent le bord de la première zone de Brillouin (singularité de Van Hove). Au delà de 900 T, la poche attendue est donc une poche de type trou.

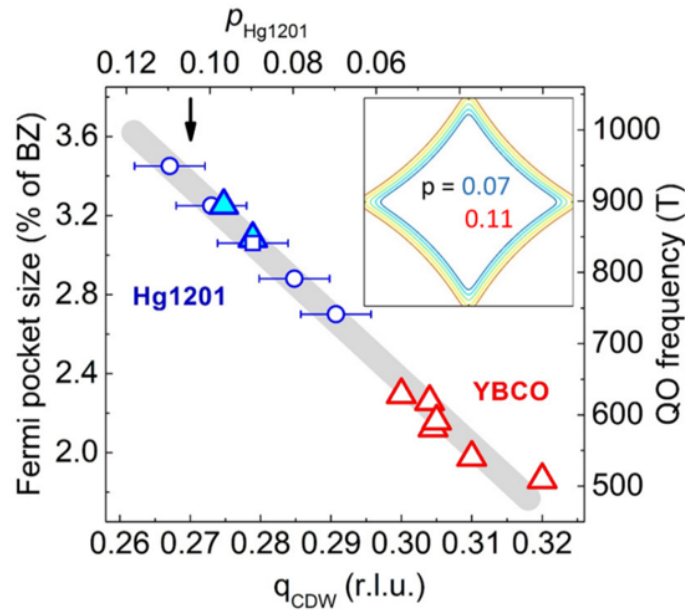


FIGURE 4.27 – Relation entre le vecteur d'onde de reconstruction q_{CDW} et la taille de la poche d'électrons mesurée en oscillations quantiques dans Hg-1201 et YBCO. Au delà d'une fréquence estimée à ~ 900 T (flèche noire), la poche d'électrons touche les bords de la 1ZB suivant les directions diagonales (singularité de Van Hove) [135].

En plus du scénario de reconstruction, des effets de structures sont à prendre en compte dans l'interprétation des données d'OQs. Dans YBCO, le spectre est composé d'une fréquence centrale et de deux pics satellites espacés de ~ 90 T (figure 4.25) contrairement à Hg-1201, où une fréquence unique est mesurée. Cette structure « trois pics » reflète la rupture magnétique entre les poches d'électrons de chaque plan de YBCO.

Dans un premier modèle, Harrison *et al.* [152] proposent que la structure 3 pics provient des bandes liantes et antiliantes liée à l'hybridation des bandes correspondant à chacun des plans (liés par un terme de saut t_{\perp} non nul) [152]. La surface de Fermi, représentée sur la

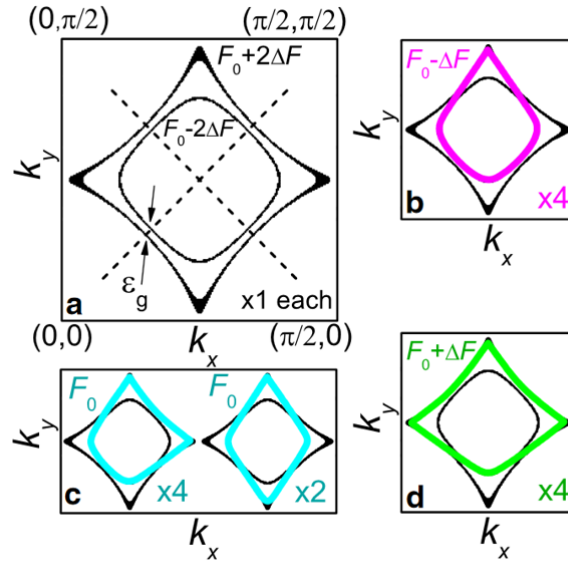


FIGURE 4.28 – a) Surface de Fermi de YBCO dans un scénario d’ODC [147]. Elle est formée de deux poches provenant des bandes liantes et antiliantes des poches d’électrons de chaque plan CuO_2 de la cellule unité [147]. b-d) Orbitales de ruptures magnétiques à l’origine de la structure 3 pics du spectre des OQs de YBCO.

figure 4.28, se compose de deux poches d’électron formées des bandes liantes et antiliantes. La fréquence centrale F_0 provient de l’orbite de rupture magnétique représentée en cyan (la plus dégénérée) et les fréquences satellites $F_0 \pm 2\Delta F$ des orbitales représentées en rose et vert. Un argument supplémentaire fut ensuite proposé par Kivelson *et al.* en soulignant que la rupture magnétique n’est possible que si la symétrie miroir entre les deux plans de YBCO est brisée [159]. La surface de Fermi du modèle minimal proposé prend alors la forme de deux poches tournées de 90 degrés l’une de l’autre, et couplées par un terme de saut t_\perp . Les six orbitales d’OQs prédites sont illustrées en figure 4.29 : la fréquence principale (notée γ_1) correspond à la poche d’électron dans chaque plan CuO_2 . Les 4 autres fréquences correspondent à des orbitales de rupture magnétique. On notera qu’en terme de fréquences d’oscillations quantiques, les deux modèles (de Kivelson et de Harrison) sont équivalents. Dans YBCO, seules 3 fréquences (la principale γ_1 et les 2 premiers satellites β et δ) sont observées de façon convaincante.

Ordre de charge et pseudogap autour de p^*

Une question actuelle est le rôle que joue l’ordre de charge dans la réduction du nombre de porteurs autour de p^* et donc son lien avec le pseudogap. Dans YBCO, les mesures de rayon-X montrent que l’ODC s’étend de 7% à 16%, au-delà de cette valeur, aucun pic de diffraction n’est vu sur les données mesurées à 10 K et proche de T_c [160]. La valeur de 16%

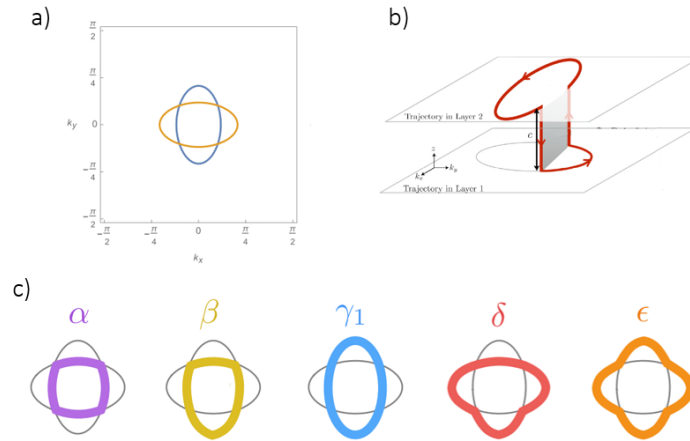


FIGURE 4.29 – **a)** Surface de Fermi de YBCO dans un scénario d’ODC avec brisure de la symétrie miroir entre les deux plans [159]. Elle est formée de deux poches de forme ovale tournées de 90 degrés l’une de l’autre et provenant de chaque plans CuO_2 . **b)** Illustration de la rupture magnétiques entre les plans. **c)** Orbites calculées à partir du modèle.

correspond au dopage optimal (loi de Tallon) et est à dissocier de $p^* \approx 0.19$. La disparition de l’ODC au dopage optimal est aussi appuyée par les mesures d’effet Hall : aucun signe de reconstruction de la surface de Fermi n’est mesuré au delà du dopage optimal [161]. Ces expériences plaident en faveur d’un ODC distinct du PG, notamment dans la gamme de dopage de 16% à 19%.

Cette distinction n’est pas si claire dans Hg-1201 où l’effet Hall mesuré sous champ magnétique intense (jusque 85 T) montre un changement de signe jusqu’à un dopage critique $p_{c,2} \approx 0.195$, proche de p^* estimé à 0.19 [85]. L’ODC est aussi observé à des dopages supérieurs à 16%, dans d’autres cuprates en rayon-X. Dans Tl-2201, des pics de diffraction correspondant à l’ODC sont mesurés jusqu’à un dopage de 26% [162], avec des longueurs de corrélations et vecteurs d’ondes sont sensiblement les mêmes que l’ODC 2D déjà discuté. Cet ODC pourrait être à l’origine de la chute de la densité de porteurs à $p = 26\%$ observée dans Tl-2201. Il est donc encore difficile de conclure quant à l’influence respective de l’ODC et du pseudogap sur la reconstruction de la surface de Fermi mesurée autour de p^* .

4.2.6 La supraconductivité

La supraconductivité dans les cuprates forme un dôme de $p \sim 0.05$ à $p \sim 0.30$ décrit par la loi de Tallon (équation 4.5, section 4.2). La température critique maximum dépend des composés, le record est détenu par le composé tricouche Hg-1223, avec une température critique maximale de $T_c \approx 133K$. Depuis la découverte des cuprates, l’état supraconducteur a été largement caractérisé, mais l’origine de l’appariement des électrons en paires de Cooper est encore inconnue.

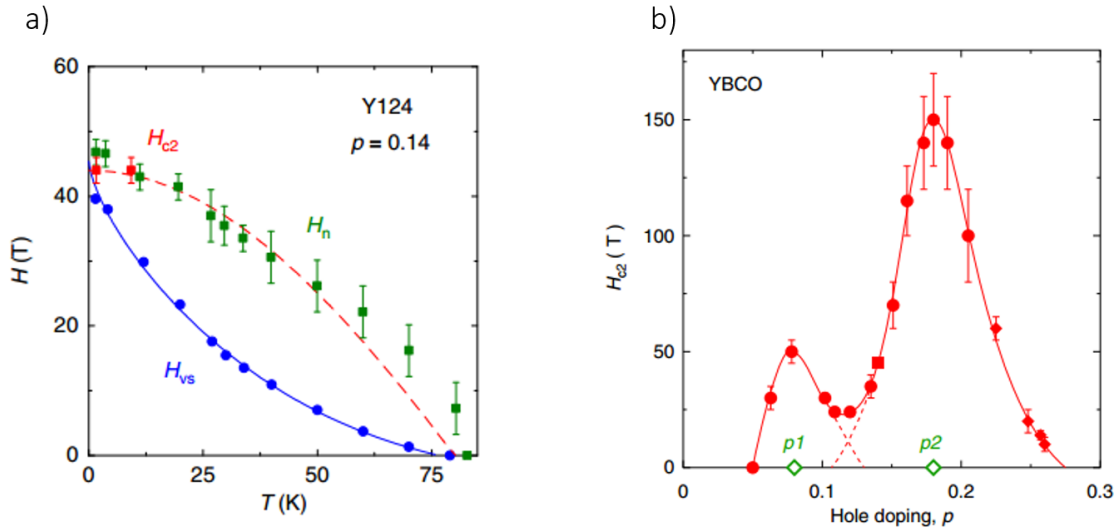


FIGURE 4.30 – **a)** Diagramme de phase $H(T)$ de YBCO ($p=0.14$) d’après les mesures de conductivité thermique [60]. **b)** Dépendance en dopage de H_{c2} dans la limite $T \rightarrow 0$ de YBCO.

La supraconductivité dans les cuprates est de type II avec un rapport de Ginzburg Landau $\kappa = \lambda/\xi$ supérieur à $1/\sqrt{2}$. Le champ critique supérieur $H_{c,2}$ atteint des valeurs particulièrement élevées et rend inaccessible l’état normal proche du dopage optimal à basse température ($H_{c2} \approx 150 T$ dans YBCO) [60].

En raison de leur caractère fortement 2D et de leur faible densité électronique, les cuprates possèdent aussi une phase liquide de vortex de résistivité non nulle. Cette phase complique la détermination de H_{c2} par des mesures de transport électrique : l’apparition d’une résistivité non nulle sous champ magnétique dans l’état supraconducteur marque la ligne de transition de vortex solide à vortex liquide (ligne H_{vs} sur la figure 4.30.a). La valeur de H_{c2} a cependant pu être déterminée en conductivité thermique, mais uniquement dans la limite $T \rightarrow 0$ où $H_{c2} \sim H_{vs}$. Cette mesure permet d’obtenir la dépendance en dopage de H_{c2} dans YBCO sur une large gamme de dopage et dans la limite $T \rightarrow 0$ (Figure 4.30.b).

Il est établi que l’état supraconducteur provient de la formation de paires de Cooper : les mesures de quantification du flux dans YBCO indiquent que les vortex transportent un quantum de flux $\phi_0 \approx h/2e$ [163]. En revanche, l’origine de l’appariement n’est probablement pas d’origine phononique comme pour les supraconducteurs conventionnels où seule la symétrie de jauge $U(1)$ est brisée à la transition (cf.chapitre 1, sect. 1.1.1). Dans les cuprates, la symétrie du gap est de type d ($S = 0, L = 2$) (figure 4.31.a) ce qui indique qu’au moins une symétrie supplémentaire est brisée [7]. Ce sont les mesures de longueur de pénétration de London dans YBCO qui ont d’abord suggérées la présence de noeuds dans le gap supraconducteur [164]. La symétrie du gap a ensuite été partiellement mesurée en ARPES avec l’observation des noeuds (régions où le gap s’annule) suivant les directions $(\pm\pi, \pm\pi)$ de la première zone de Brillouin (directions nodales) (figure 4.31.b). Cette dépendance en \mathbf{k} du gap est décrite par

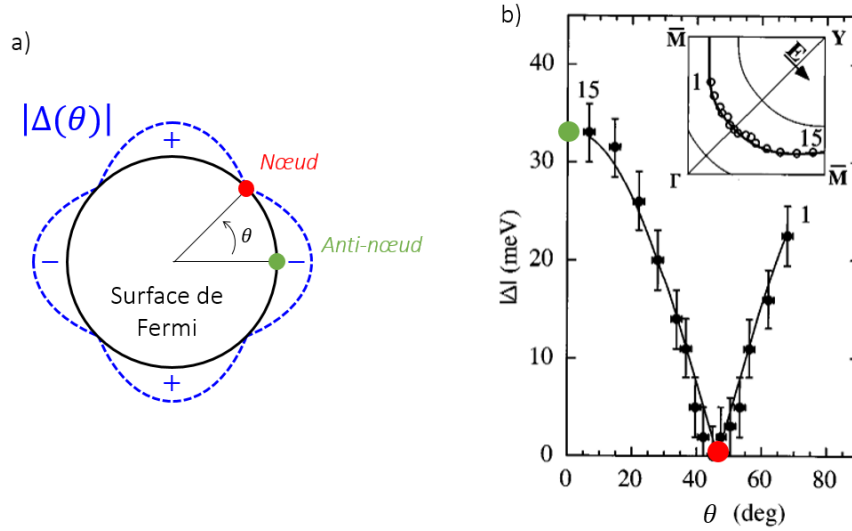


FIGURE 4.31 – **a)** Symétrie d du gap supraconducteur. Le gap s’annule suivant les directions nodales, son signe change par rotation de $\pi/2$. **b)** Dépendance angulaire du gap supraconducteur mesurée en ARPES dans Bi-2212. La ligne continue représente un fit avec l’équation (4.8) [101].

la relation :

$$\Delta(\mathbf{k}) = \Delta_d[\cos(k_x) - \cos(k_y)] \quad (4.8)$$

Les expériences de conductivité thermique ont aussi permis une observation indirecte des noeuds du gap sous la forme d’un terme résiduel à basse température dans YBCO [165]. Ce sont de nouvelles mesures de quantification du flux dans YBCO qui ont révélé le changement de signe attendu pour un gap de symétrie d [166]. Une symétrie d suggère un appariement provenant d’une interaction autre que l’interaction électron-phonon.

4.3 Quelques théories de la supraconductivité dans les cuprates

Les théories proposées pour expliquer la supraconductivité dans les cuprates sont intimement liées au phénomène du pseudogap. Il existe deux grandes familles de théories : une qui considère le pseudogap comme un précurseur de la supraconductivité et l’autre comme une phase à part entière délimitée à dopage intermédiaire par un point quantique critique autour duquel se développe le dôme supraconducteur. Les théories que je vais discuter ne sont pas exhaustives, une présentation plus complète peut être trouvée dans les réf. [124, 167, 168].

4.3.1 Paires préformées

Théorie RVB

Dans la théorie RVB (pour Resonance Valence Bound), l'état fondamental est un liquide de spin quantique formé de singulets de spin qui résonnent entre eux, associés à des sites vacants provenant du dopage en trou. Cette hypothèse fut proposée par P.W. Anderson [169] et s'appuie sur le modèle de Hubbard à une bande. Le caractère résonant provient du fait que les singulets peuvent s'interchanger entre plus proches voisins. Dans l'état RVB, l'AFM à longue portée est détruit, mais il existe toujours le gap de spin Δ_{RVB} (état lié singulet). Doper l'état RVB correspond à détruire des singulets qui génèrent la formation d'une excitation de charge $+e$ sans spin, appelée holon, et d'une excitation de spin $1/2$ sans charge, appelée spinon. Cette idée selon laquelle la charge et le spin d'une quasiparticule sont traités indépendamment est appelée fractionalisation.

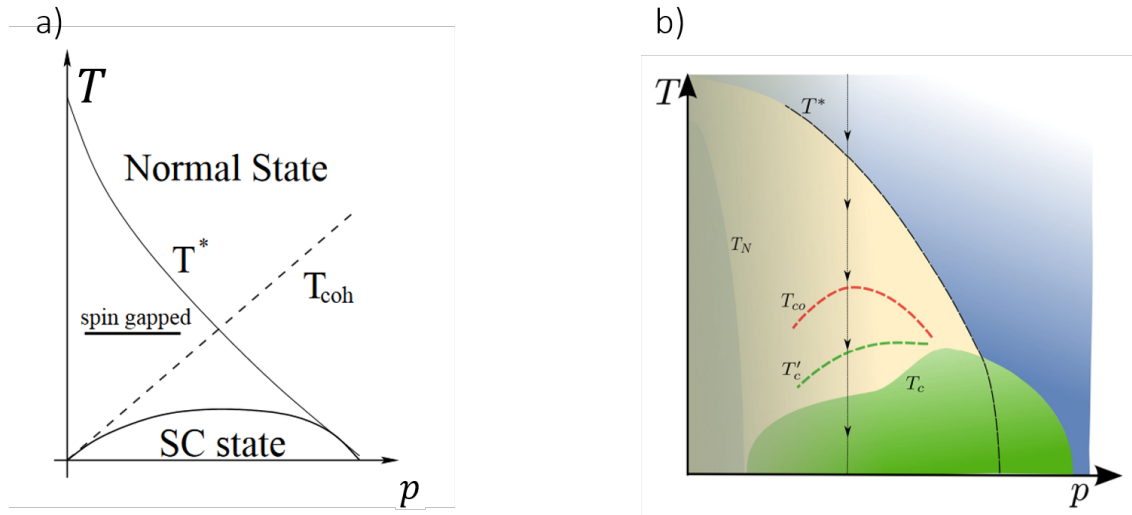


FIGURE 4.32 – a) Diagramme de phase des cuprates suivant la théorie RVB [167]. b) Dans un scénario de fractionalisation d'onde de densité de paires [170]

On peut dissocier deux échelles d'énergies dans la théorie RVB : la température caractéristique T_{RVB} qui correspond à la température de formation des singulets de spin et la température T_{coh} qui correspond à l'obtention d'une cohérence de phase entre les excitations de charge. À mesure que l'on dope l'état RVB, le caractère résonant est perdu : la température caractéristique T_{RVB} diminue et la température T_{coh} augmente. La supraconductivité de type d apparaît sous forme d'un dôme lorsque $T < T_{RVB}$ et $T < T_{coh}$ (Figure 4.32.a).

Dans la théorie RVB appliquée aux cuprates, T_{RVB} correspond au pseudogap : la baisse de susceptibilité à T^* (qui s'établit en crossover) s'explique par la formation de singulets. De plus, la présence de charge (dopage) explique le caractère métallique du pseudogap. Une des prédictions importantes de la théorie RVB est que le pseudogap est nécessaire à la for-

mation de la supraconductivité car les paires de Cooper sont pré-formées à la température T_{RVB} . C'est une des principales critiques de ce modèle : de nombreuses mesures indiquent que le pseudogap finit au dopage critique $p^* \approx 0.19$, inférieur au dopage maximum auquel la supraconductivité est mesurée [171].

Fractionalisation d'onde de densité de paire

Dans cette théorie, l'état fondamental du pseudogap est une onde de densité de paires (PDW pour Pair Density Waves en anglais) qui est fractionalisée en deux types de paires pré-formées : une paire particule-particule (PP) et une paire particule-trou (PH pour Particules-Hole) [170, 172]. Cette théorie est intimement liée à la présence d'ordre de charge dans le diagramme de phase. La supraconductivité provient de la condensation des paires PP, et l'ODC de la condensation des paires PH. Le pseudogap est alors formé d'une superposition quantique de l'ODC et de la supraconductivité, soit :

$$|PG\rangle = \hat{\chi}_{i,j}|0\rangle + \hat{\Delta}_{i,j}|0\rangle \quad (4.9)$$

avec $|0\rangle$ l'état quantique du vide et $\hat{\chi}_{i,j}$ et $\hat{\Delta}_{i,j}$ les opérateurs pour les modulations PH et PP sur une liaison $\langle i, j \rangle$.

Dans cette théorie, la délimitation du pseudogap correspond à des ordres fluctuants : en dessous de la ligne T^* aucune des deux phases n'est stabilisée. La première phase se stabilise à l'échelle de température appelée T_{co} , ce qui correspond à la température d'entrée dans l'ODC et à la condensation des PH (figure 4.32.b). Entre T_{co} et T'_c , c'est l'ordre PDW qui est présent, mais dans un régime fluctuant. La température de condensation des PP (température de transition supraconductrice) a lieu à la plus basse température T_c . On notera que dans cette théorie, le mécanisme d'appariement provient des fluctuations AFM [170].

4.3.2 Point quantique critique

Une deuxième classe de théorie est basée sur les similarités qui existent entre le diagramme de phase des cuprates et d'autres systèmes fortement corrélés. Ces théories reposent sur des phénomènes de criticalité quantique [173].

La criticalité quantique apparaît autour de points quantiques critiques (QCP). Un QCP est un point d'un diagramme de phase qui délimite deux phases électroniques de symétrie différente à $T = 0$ (figure 4.33). Le passage d'une phase à l'autre se fait en variant un paramètre extérieur comme la pression ou le dopage à $T = 0$ [174, 175]. Des signatures typiques de points quantiques critiques sont une région de résistivité linéaire en température qui finit au QCP à $T=0$ et une divergence logarithmique de la chaleur spécifique électronique en fonction du paramètre de contrôle.

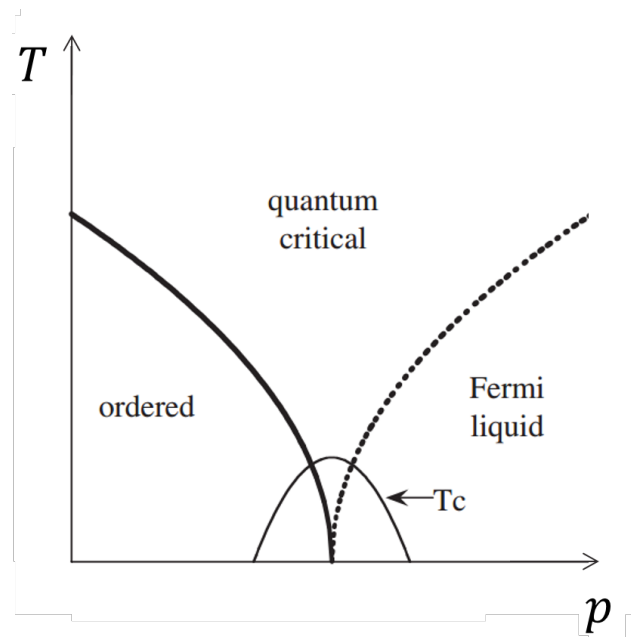


FIGURE 4.33 – Diagramme de phase $T(x)$ en présence d'un point quantique critique où x est un paramètre thermodynamique extérieur [176]

Il existe des ressemblances frappantes entre certains matériaux à transition de phases quantiques comme les pnictides, les composés organiques, les fermions lourds et les cuprates [21]. Dans tous ces matériaux, un dôme supraconducteur se développe autour d'un point quantique critique, là où prend fin un ordre magnétique (Figure 4.34). Dans les cuprates, cependant, l'ordre magnétique longue portée est détruit avec seulement quelques pourcents de dopage (5 % pour YBCO). Le dôme supraconducteur est plutôt centré autour du dopage critique p^* , qui correspond au dopage critique du pseudogap. Ainsi, dans un premier scénario de criticalité quantique, le pseudogap joue le rôle de la phase ordonnée qui prend fin au point critique (Figure 4.32.b). Or, nous l'avons vu, il n'y a pas encore de consensus quant à la nature de la brisure de symétrie associée au pseudogap. Certaines mesures comme la chaleur spécifique ou la RMN indiquent qu'il s'établit en crossover alors que la mise en évidence de boucles de courants en diffraction de neutrons suggère la présence d'un paramètre d'ordre associé. Pour valider le scénario d'un pseudogap ordonné, il faut déterminer la nature de l'ordre qui se développerait en dessous de T^* . Nous avons déjà discuté l'éventualité d'onde de densité de spin et de charge dans les parties 4.2.4 et 4.2.5. D'autres candidats ont aussi été proposés comme des ordres magnétiques orbitaux de symétrie d (DDW pour d-density wave) [177], ou des boucles de courants proposées par Varma et observées en diffraction de neutrons [178]. Dans un scénario de criticalité quantique, ce sont les fluctuations à l'approche du point critique qui sont à l'origine de l'appariement des électrons en paires de Cooper [179].

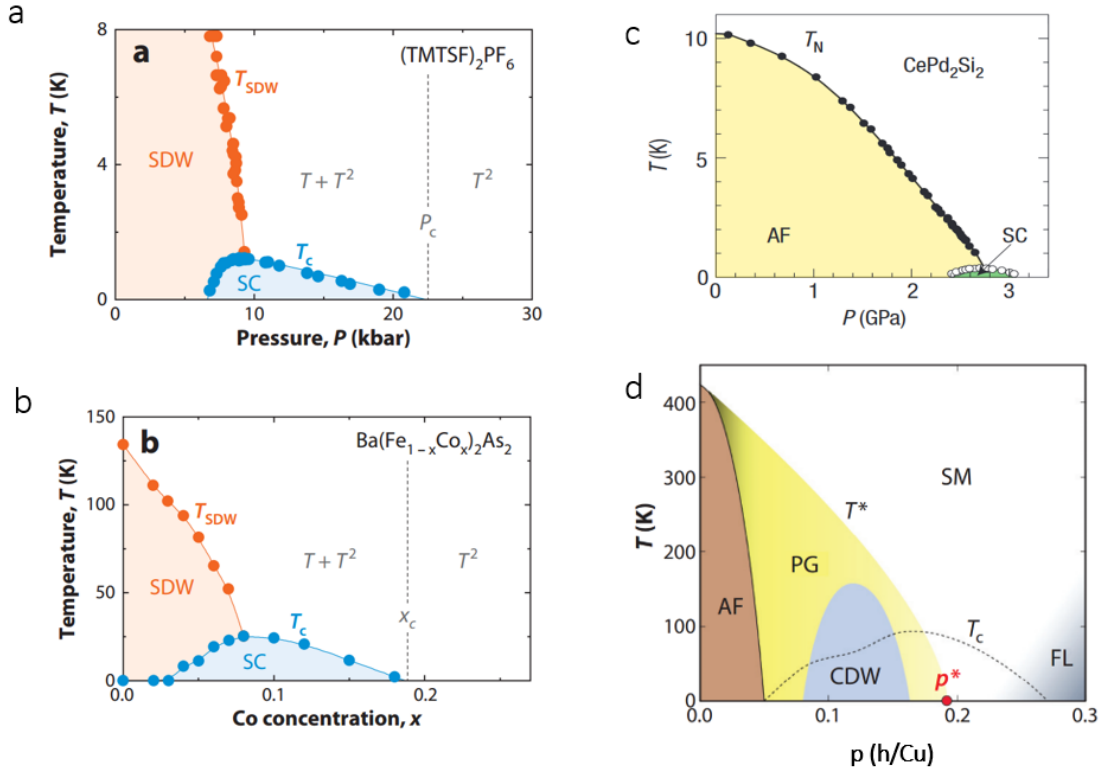


FIGURE 4.34 – Comparaison entre les diagrammes de phases **a)** des sels de Bechgaard, **b)** des pnictides, **c)** des fermions lourds et **d)** des cuprates. Dans ces trois premières familles, un dôme supraconducteur se développe proche d'un ordre magnétique. Dans le cas des cuprates, il se développe autour du point critique du pseudogap p^* [21, 84].

4.3.3 Fluctuations AFM

Une théorie d'appariement développée par Pines, Scalapino, Ueda, Moriya et al se base sur un appariement des paires de Cooper par échange de fluctuations de spin [73]. Dans cette théorie, les fluctuations AFM jouent le même rôle que les phonons dans la théorie BCS. Cette théorie nécessite deux sous-systèmes : des porteurs itinérants, qui forment les paires de Cooper, et des spins localisés qui fournissent la colle sous la forme de fluctuations magnétiques [167].

Deux points de vue peuvent être adoptés pour se représenter un tel système. D'abord, on peut supposer que les porteurs et le réseau magnétique sont deux systèmes indépendants. Dans cette vision, en dopant l'isolant de Mott, les trous sur l'orbitale p de l'oxygène forment un système de porteurs itinérants alors que les électrons non-appariés sur les sites de cuivre fournissent la colle magnétique. En dessous de la température critique T_c , les trous forment des paires par échange de fluctuations de spin. On peut aussi supposer que la colle et les porteurs proviennent des mêmes électrons, mais cette vision est conceptuellement problématique.

L'échange par fluctuations AFM permet de prédire la supraconductivité d -wave [180]. Dans ce scénario, les fluctuations sont aussi à l'origine des anomalies de transport (métal étrange).

Dans la théorie BCS (plus exactement son extension par la théorie Eliashberg), les paires d'électrons sont formées par l'échange de bosons de basse énergie. Cela n'est pas applicable dans un mécanisme d'échange basé sur les fluctuations AFM dans les cuprates, où J et U sont à de hautes échelles d'énergies.

4.3.4 Liquide de Fermi fractionnalisé (FL*)

Le dernier modèle que je souhaite discuter est un modèle proposé par Yang Qi et Subir Sachdev qui est basé sur des fluctuations locales d'ordre AFM [181, 182]. Ce modèle s'appelle FL* (Liquide de Fermi fractionnalisé). Conceptuellement, son point de départ peut être vu comme l'état RVB décrit précédemment, où des trous sans spin (les holons) sont mobiles sur un fond d'états singulets de spin résonant entre eux [183]. Les excitations de cet état sont neutres et pourtant un spin $1/2$, les spinons. La formation du modèle FL* est basée sur la supposition supplémentaire qu'il existe un potentiel attractif entre les holons et les spinons qui génère un état lié portant une charge $+e$ et un spin $1/2$. L'état fondamental est donc formé de dimères (l'état lié entre spinons et holons) et de singulet de spin (liquide de spin) qui résonnent entre eux. Ce sont ces dimères qui représentent le gaz de particules chargées, portant un spin comme dans le cas d'un liquide de Fermi.

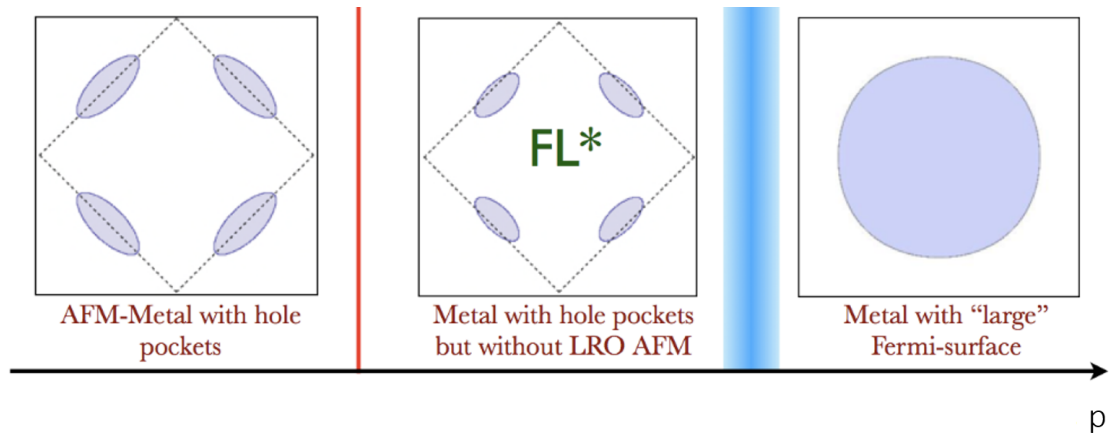


FIGURE 4.35 – Évolution de la surface de Fermi des cuprates dopés en trou dans le modèle FL*. À faible dopage, la surface de Fermi correspond à celle de l'ordre AFM longue portée, soit deux poches de trous dans une zone de Brillouin magnétique (pointillés). À dopage intermédiaire (pseudogap), la surface de Fermi est formée de 4 poches de trous de densité totale $n = p$. Comme aucun ordre longue portée AFM (LRO AFM pour Long Range Order) n'est présente dans le modèle FL*, la première zone de Brillouin magnétique (pointillées) est inexistante. La région fort dopage se compose de la grande poche de trou de $n = 1 + p$ porteurs. Adaptée de [183]

Une des conséquences principales de ce modèle est la prédiction d'une surface de Fermi

fermée dans le pseudogap : la densité de porteurs dans le modèle FL^* vaut p , mais comme aucune brisure de symétrie n'est associée à l'état fondamental (aucun ordre AFM longue portée), ces p porteurs sont dans une première zone de Brillouin non-magnétique (figure 4.35). La surface de Fermi correspondante est formée de 4 poches de trous aux noeuds, contrairement à un modèle d'onde de spin où les p porteurs sont répartis dans seulement deux poches (figure 4.35).

Le modèle FL^* possède des similarités avec un ansatz proposé par Yang Zang et Rice pour décrire la surface de Fermi du pseudogap [184]. Cet ansatz permet de reproduire certaines propriétés du pseudogap à savoir la perte de poids spectral aux antinœuds, mais aussi la chute de la densité de porteurs de p à $1 + p$ au passage de T^* [185]. Néanmoins, le modèle FL^* est déduit de considération microscopique, contrairement à l'ansatz de YZR.

Conclusion

Ce chapitre a été dédié à une revue (bien modeste) de la littérature des cuprates. Bien que la découverte de la supraconductivité à haute température critique ait largement motivé les recherches dans le domaine, l'incroyable complexité du diagramme de phase a fait des cuprates des matériaux types pour l'étude de la physique des ordres en compétition. Le rôle de ces ordres dans le mécanisme de la supraconductivité reste à déterminer. Cela motive à poursuivre les recherches dans ce domaine, aussi bien sur le plan théorique qu'expérimental. Dans la suite, je vais présenter pour la première fois des mesures de l'état normal du cuprate Hg-1223 sous-dopé. Plusieurs scénarios de surface de Fermi seront proposés à partir de nos mesures d'oscillations quantiques et d'effet Hall sous champ magnétique intense.

Chapitre 5

Coexistence entre ordre de charge et antiferromagnétisme dans Hg-1223

Sommaire

5.1	Les cuprates multicouches	131
5.1.1	Quelques propriétés des cuprates multicouches	131
5.1.2	L'ordre antiferromagnétique	133
5.1.3	Le composé Hg-1223	136
5.2	Mesures de transport dans Hg-1223 sous-dopé	138
5.2.1	Oscillations quantiques	138
5.2.2	Effet Hall	145
5.2.3	Comparaison avec Hg-1201	146
5.3	Scénario de surface de Fermi	147
5.3.1	Calculs de structure de bandes	147
5.3.2	Modèles de reconstruction	148
5.4	Discussion	154
	Conclusion	155

Les cuprates multicouche possèdent non seulement les plus hautes températures de transitions supraconductrices mais également des plans CuO_2 internes homogènes et protégés du désordre. La différence de dopage entre les plans et la stabilisation de l'ordre antiferromagnétique par le couplage interplans permettent aussi de mesurer différents ordres coexistants ou en compétition avec la supraconductivité. Dans ce chapitre, nous proposons une étude du cuprate trois plans $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+\delta}$ sous-dopé et rapportons des mesures d'oscillations quantiques et d'effet Hall dans un champ magnétique allant jusqu'à 88 T. Nous avons interprété nos résultats par la coexistence d'un ordre antiferromagnétique dans le plan interne et d'un ordre de charge dans les plans externes.

5.1 Les cuprates multicouches

5.1.1 Quelques propriétés des cuprates multicouches

Le terme cuprates multicouche regroupe tous les cuprates ayant au moins 3 plans CuO_2 par maille unité. Les cuprates à base de mercure se déclinent dans la sous famille $\text{HgBa}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+2+\delta}$, abrégée $\text{Hg}12(n-1)n$, avec n , le nombre de plans par cellule unité (figure 5.1.a). Les plans CuO_2 sont séparés entre eux par un atome de calcium et le contrôle du dopage se fait dans les plans réservoirs de charge (CRL) par l'ajout/retrait d'oxygène O_δ . Ce chapitre est dédié à l'étude du composé tri-couche de cette famille, Hg-1223.

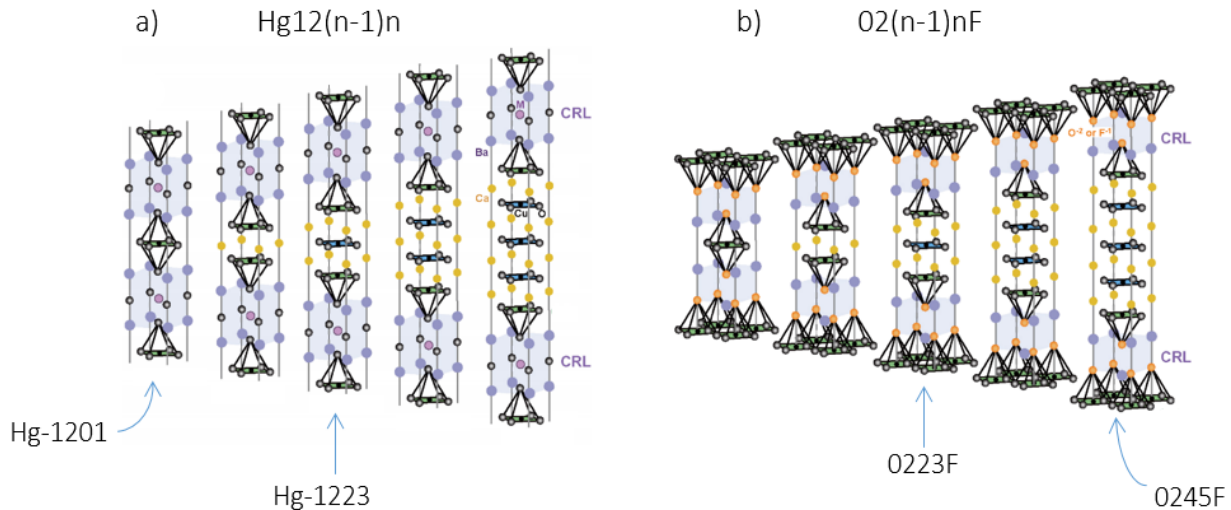
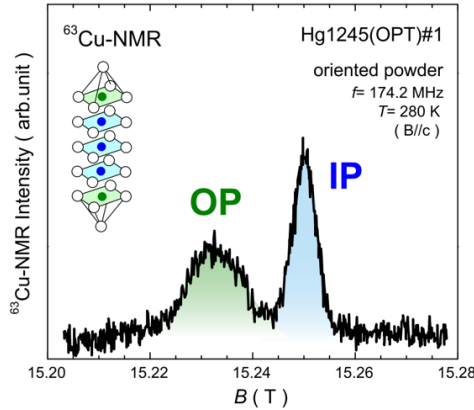


FIGURE 5.1 – Structure cristalline de deux familles de cuprates à n plans. **a)** Famille $\text{Hg}12(n-1)n$, dont le dopage est contrôlé par ajout/retrait d'oxygène apical O_δ . **b)** Famille $\text{O}2(n-1)n\text{F}$. Le dopage y est réalisé par substitution. Figure adaptée de [116].

Une famille cousine est la famille $\text{Ba}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n}(F_y\text{O}_{1-y})$, abrégée $\text{O}2(n-1)n\text{F}$ (figure 5.1.b). Les plans CuO_2 sont aussi séparés par un atome de Ca, mais le contrôle du dopage se

fait par substitution d'un ion d'oxygène apical O^{-2} par ion fluor F^{-1} dans les CRL. Les composés $O2(n-1)nF$ sous-dopés ont été largement étudiés en résonance magnétique nucléaire (RMN) et les principaux résultats sont résumés dans une revue de H.Mukuda *et al.* [116].

a) Plan(s) intérieur(s) homogène(s)



b)

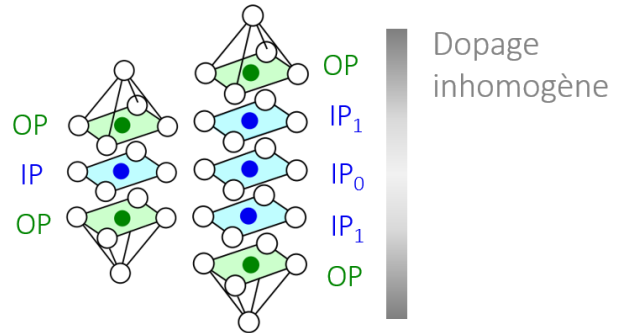


FIGURE 5.2 – **a)** Spectre RMN du cuivre dans Hg-1245 au dopage optimal. Les raies du cuivre sont différentes pour les plans extérieurs (environnement pyramidal) et les plans intérieurs (environnement carré). La plus fine raie RMN des plans intérieurs indique qu'ils sont plus ordonnés [116]. **b)** Illustration du dopage non-équivalent entre les plans intérieurs (IP) et extérieurs (OP).

En RMN, le Knight shift K correspond au décalage de la fréquence de résonance magnétique nucléaire d'un noyau atomique dû à son environnement. Dans les cuprates multicouche, les atomes de cuivre des plans CuO_2 en contact avec les réservoirs de charges, sont dans un environnement de symétrie pyramidale, alors que ceux des plans intérieurs sont dans une symétrie carrée. La RMN permet donc de discerner les plans CuO_2 extérieurs (OP) des plans intérieurs (IP) et montre qu'ils ne sont pas équivalents en dopage et en désordre :

- **Sur-dopage des OP** : Les OP, en contact avec les réservoirs de charge, sont toujours plus dopés que les IP ce qui rend possible la coexistence de différents ordres.
- **IP plus homogènes** : les IP sont protégés du désordre provenant des CRL par les OP, comme en atteste la plus fine largeur de raie RMN des plans intérieurs (figure 5.2.a). Cela fait des cuprates multicouche de bons candidats pour les expériences d'oscillations quantiques, qui nécessitent des plans CuO_2 ordonnés et homogènes.

Le dopage inhomogène entre les plans peut apporter de la confusion dans les estimations du dopage. Une relation empirique a été proposée pour évaluer le dopage des plans CuO_2 à partir du Knight Shift. Nous noterons donc dans la suite les dopages extraits à partir des mesures de RMN par $p_{IP,OP}$ en référence aux plans intérieurs et extérieurs. Les autres évaluations de dopage calculées à partir de la relation empirique de Tallon $T_c/T_c^{max} = 1 - 82.6(p - 0.16)^2$ (comme dans la réf. [186]) seront notées p .

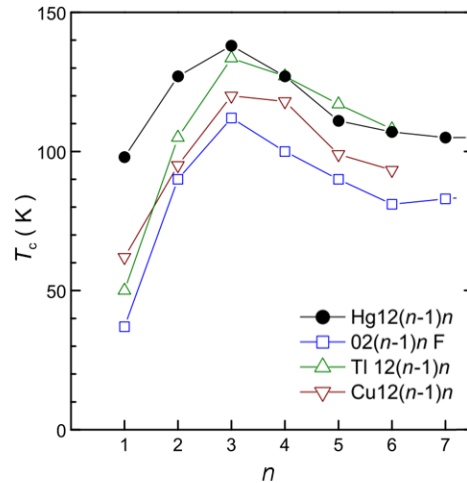


FIGURE 5.3 – Dépendance de la température critique au dopage optimal en fonction du nombre de plans n dans différentes familles de cuprates. La T_c passe par un maximum à $n = 3$ [116]

Dans les cuprates multicouche, la température critique maximale est fonction de nombre de plans n par cellule unité. Cette dépendance est représentée en figure 5.3 qui montre que la T_c^{max} augmente avec n , jusqu'à $n = 3$, puis diminue. La configuration 3 plans, semble être optimale pour maximiser la T_c quelle que soit la famille de cuprates. Il n'y a pas encore de consensus quant à l'origine de cet effet [120, 187]. Certaines études mettent en cause le mécanisme tunnel de paires de Cooper entre les plans [188] et d'autres pointent l'importance de la différence de dopage des IP et OP, qui est nécessaire à prendre en compte pour reproduire la forme caractéristique de la courbe $T_c(n)$ [189]. Du point de vue expérimentales, les études RMN montrent que l'ordre AFM est stabilisé à d'autant plus fort dopage que le nombre de plan augmente (figure 5.4.b). Cette observation est intéressante étant donné que les interactions magnétiques sont supposées jouer un rôle dans le mécanisme de la supraconductivité dans les cuprates [73].

5.1.2 L'ordre antiferromagnétique

Le diagramme de phase des cuprates multicouche est marqué par une phase antiferromagnétique métallique (AFM) particulièrement étendue, stabilisée par le couplage interplan (figure 5.4). Dans le composé parent des cuprates, l'échelle d'énergie dominante est l'interaction de superéchange J_{in} entre les spins des cuivres avec $J_{in} \sim 1300$ K. Comme les plans CuO_2 sont quasi-2D, l'ordre à longue portée ne se stabilise qu'à ~ 300 K à $p = 0$. Il est très vite déstabilisé par le dopage en trous avec un point critique AFM pour LSCO à $p \sim 2\%$. Dans les cuprates multicouche, le couplage magnétique entre les plans stabilise la phase AFM via un terme d'échange interplans $\sqrt{J_c J_{out}(n)}$ avec J_c le couplage entre les OP au travers des

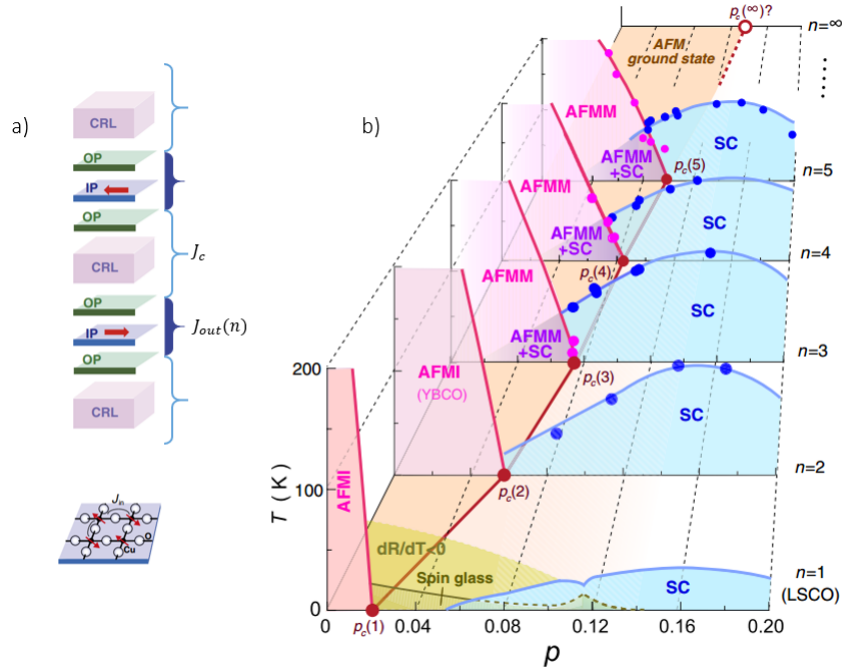


FIGURE 5.4 – a) Illustration des différents termes de couplages dans les cuprates multicouche. Le couplage magnétique s'exprime $J = \sqrt{J_c J_{out}(n)}$ avec J_c le couplage entre les OP au travers des CRL, et $J_{out}(n)$ le couplage entre IPs. b) Diagrammes de phases des cuprates multicouche en fonction du nombre de plans n . La phase AFM est stabilisée à d'autant fort dopage que n augmente. Adaptées de [116].

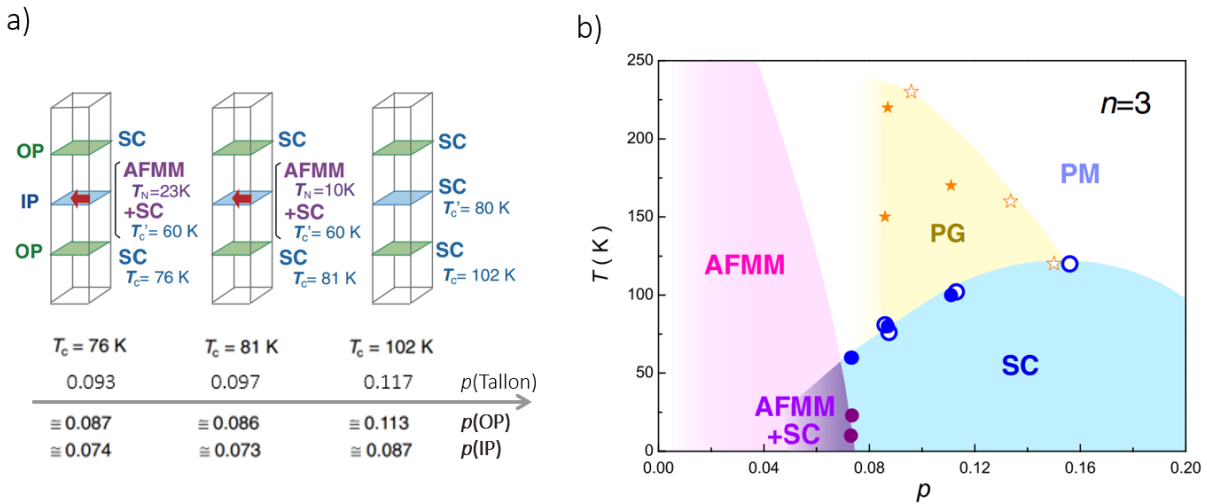


FIGURE 5.5 – a) Illustration de la dépendance en dopage de l'ordre AFM mesuré dans le plan intérieur. Les valeurs de dopage estimées par la relation de Tallon et la RMN sont présentées. b) Diagramme de phase mesurée en RMN. Les cercles vides (remplis) correspondent aux plans extérieurs (intérieurs). L'ordre AFM est stabilisé jusqu'à $p \sim 7 \%$ et coexiste avec la SC. Adaptées de [116].

CRL, et $J_{out}(n)$ le couplage entre IPs (figure 5.4.a). Ce dernier augmente avec n . Le couplage interplans stabilise l'AFM à d'autant plus fort dopage que le nombre de plans est important. L'AFM a été mis en évidence en RMN dans plusieurs composés de la famille $02(n-1)n$. Il se manifeste par un décalage de la fréquence de résonance magnétique du cuivre en dessous de la température de Néel [190]. Dans le composé 3 plans 0223F, l'AFM est mesuré jusqu'à un dopage $p_{IP} \approx 0.073$ dans l'IP et coexiste avec la SC (figure 5.5) : la transition de Néel, mesurée à $T \approx 10$ K, est précédée d'une transition supraconductrice dans le même plan à $T_c \approx 60$ K. Dans le même échantillon, les plans extérieurs plus fortement dopés ($p_{OP} \approx 0.086$) montrent des signatures typiques du pseudogap (chute de $1/T_1T$ à T^*) indiquant la coexistence possible entre différentes phases au sein de la même cellule unité.

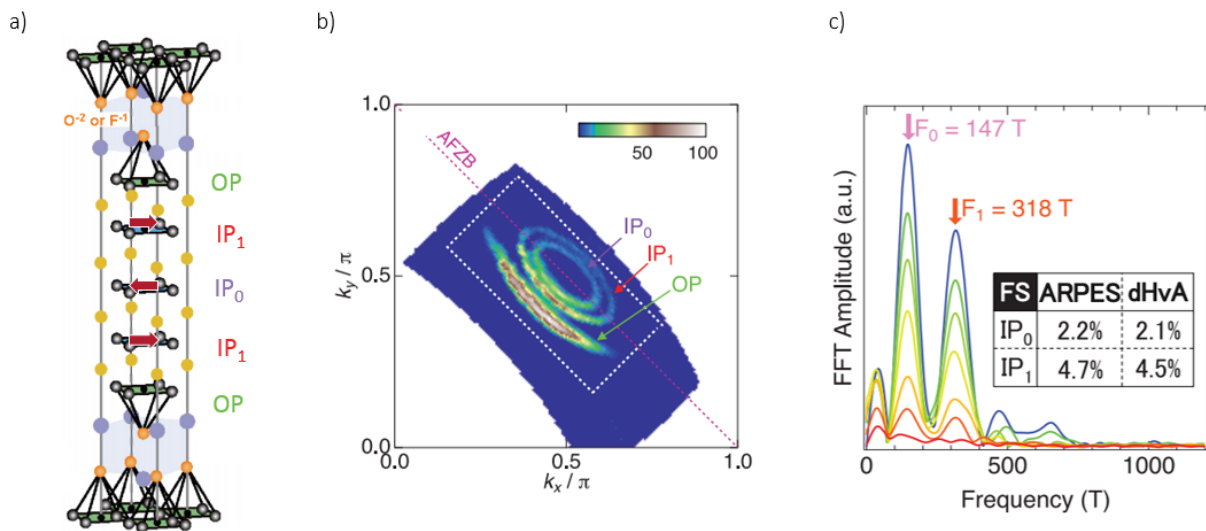


FIGURE 5.6 – a) Cellule unité de 0245F avec les 3 plans non-équivalents IP₀, IP₁ et OP. b) Surface de Fermi de 0245F sous-dopé $T_c = 65$ K mesurée à $T = 5$ K dans une fenêtre d'énergie de 10 meV autour de E_F dans la phase supraconductrice. Les flèches indiquent les surfaces de Fermi des plans intérieurs IP₀, IP₁ (ordre AFM) et des plans extérieurs OP (arcs de Fermi du pseudogap). c) Transformée de Fourier des oscillations quantiques montrant 2 pics correspondant aux poches des deux plans IP₀ et IP₁ mesurées en oscillations quantiques. Les densités de porteurs calculées à partir des fréquences $F_0 = 147$ T et $F_1 = 318$ T sont en très bon accord avec les données d'ARPES (table en insert). [120]

Dans le composé 5 plans 0245F sous dopé ($T_c = 65$ K), la coexistence entre ces trois phases s'observe par la mesure de la surface de Fermi des 3 plans non-équivalents IP₀, IP₁ et OP en ARPES et en oscillations quantiques (figure 5.6) [120]. La surface de Fermi des plans extérieurs se compose d'arcs de Fermi caractéristiques du pseudogap alors que la surface de Fermi des plans IP₀ et IP₁ est formée de deux petites poches de trous de densité $n = p$ porteurs. Ces poches sont aussi mises en évidence par des mesures d'oscillations quantiques jusqu'à 60 T. Les fréquences d'oscillation $F_0 = 147$ T et $F_1 = 318$ T correspondent à des aires

de 2.1 % et 4.5 % de la 1ZB, en très bon accord avec les données d'ARPES¹. La différence de fréquence reflète la différence de densité de porteurs à cause du dopage non homogène (Le plan IP_0 est plus éloigné des CRL que les plans IP_1). Pour rappel, deux poches de trous de $n = p$ porteurs correspondent à la surface de Fermi d'un ordre AFM de vecteur d'onde $Q_{AFM} = (\pi, \pi)$. Les plans intérieurs sont donc dans un ordre AFM alors que les plans extérieurs dans la phase pseudogap. Cette étude pointe aussi la coexistence entre SC et AFM : le gap supraconducteur est mesuré à $T = 5$ K sur la poche de trou de l' IP_1 et vaut ≈ 5 meV au plus loin des directions diagonales (figure 5.7).

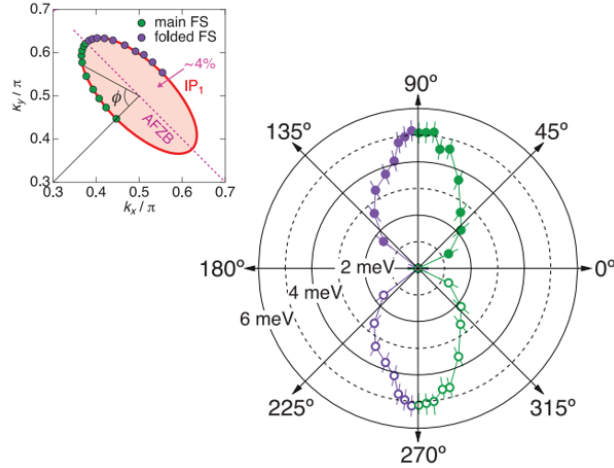


FIGURE 5.7 – Dépendance angulaire du gap supraconducteur mesuré sur la poche de trou de l' IP_1 en ARPES. Le gap est maximum (≈ 5 meV) pour $\phi = \pi/2$ et s'annule suivant les directions diagonales (symétrie d -wave). [120]

La possible coexistence entre les ordres rend les cuprates multicouche particulièrement intéressants pour comprendre le lien entre la supraconductivité et les ordres en compétition. Parmi toutes les familles de cuprates, la configuration 3 plans par maille unité est la configuration qui maximise la température critique et nous proposons dans la suite une étude du cuprate 3 plans de la famille des mercures, où des signatures d'ordre de charge sont aussi mesurées.

5.1.3 Le composé Hg-1223

Parmi tous les cuprates, le composé 3 plans Hg-1223 possède la plus haute température critique avec $T_c \approx 133$ K et $T_c \approx 160$ K sous ~ 20 GPa [191]. Ce qui est connu de son diagramme de phase est représenté en figure 5.8. On y trouve notamment le pseudogap mesuré

1. Les températures de Dingle et de masses extraites des mesures d'OQ indiquent aussi que les plans intérieurs IP_0 sont plus ordonnés que les plans extérieurs IP_1 , avec un rapport de mobilité égale à $M = \frac{\mu_{IP,0}}{\mu_{IP,1}} = \frac{T_{D,IP1} m_{c,IP1}}{T_{D,IP0} m_{c,IP0}} \approx 2$.

en RMN et la phase supraconductrice. Des signatures de l'ordre de charge (ODC) n'ont été mises en évidence que récemment en spectroscopie Raman dans la géométrie B_{2g} . Celle-ci sonde préférentiellement des directions nodales de la 1ZB où la surface de Fermi n'est pas gappée par le pseudogap. La signature de l'ODC dans le spectre Raman prend la forme d'une diminution de poids spectral à basse énergie accompagnée d'un transfert de poids spectral à plus haute énergie, à mesure que l'ordre se développe à basse température. Les limites du dôme de la figure 5.8 correspondent donc à la température en dessous de laquelle le pic à haute énergie se développe. La signature d'ODC est observée jusqu'au dopage limite inférieur de l'étude $p = 11\%$ et une température caractéristique de 175 K.

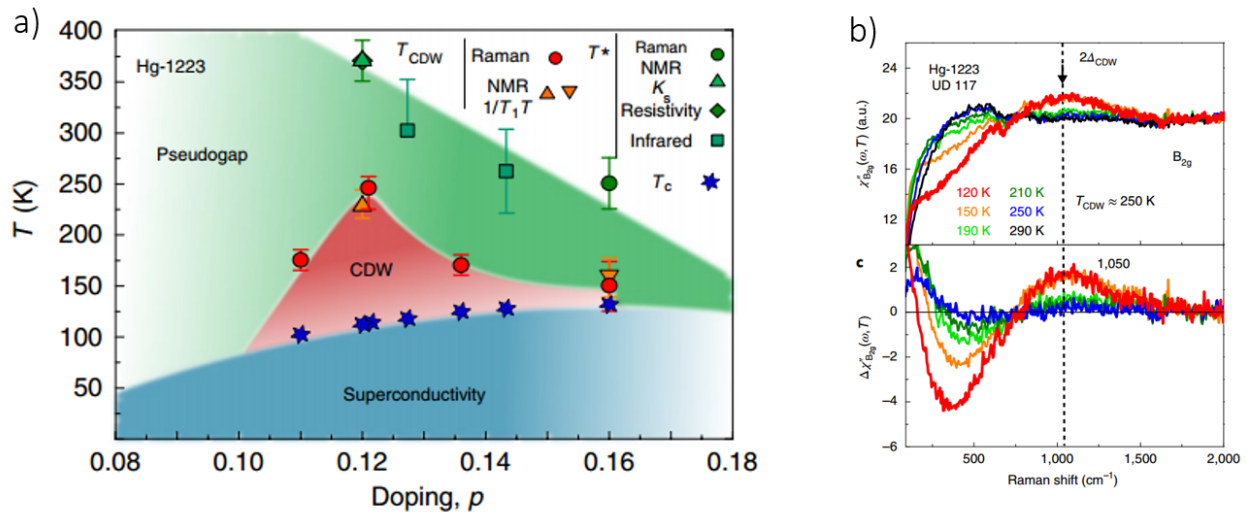
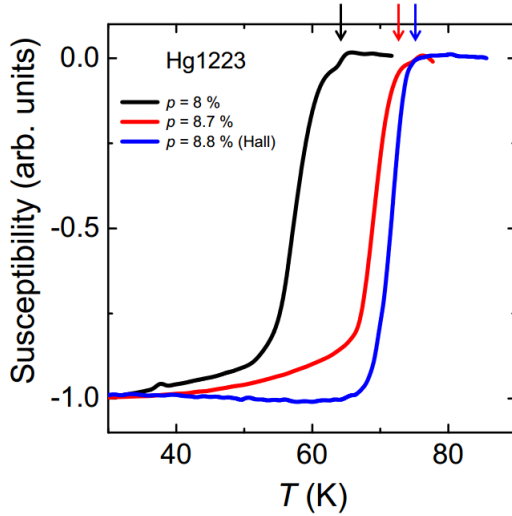


FIGURE 5.8 – a) Diagramme de phase de Hg-1223. Des signatures d'ODC sont mesurées jusqu'au dopage optimal en spectroscopie Raman. Le dopage est ici estimé par la relation de Tallon. b) Signature Raman de l'ODC dans la symétrie B_{2g} . L'ODC génère une bosse à $2\Delta_{CDW}$ sur le spectre Raman. Cette bosse est mise en évidence après soustraction des données à 270 K (figure du bas) [192].

Dans le composé monocouche de la famille des Hg, Hg-1201, l'ODC s'étend jusqu'à $p \approx 6\%$ et est supposé reconstruire la surface de Fermi donnant lieu à une fréquence unique en oscillations quantiques $F \approx 850$ T et à un effet Hall négatif [85]. Dans le composé 2 plans YBCO, l'ODC est mesuré jusqu'à un dopage minimum de $p \approx 7.8\%$ en rayons-X [160] avec les mêmes signatures en transport [193, 194]. Le spectre d'oscillations quantiques est composé d'une fréquence principale et de deux pics satellites qui sont interprétés comme une conséquence de la rupture magnétique entre les deux plans CuO_2 . Dans le composé 3 plans Hg-1223, la gamme de dopage a récemment pu être étendue dans la région sous-dopée jusqu'à $p \approx 7\%$ ($T_c \approx 42$ K). La possibilité d'étudier des échantillons à plus faible dopage est intéressante : les signatures d'ODC dans Hg-1223, associées aux mesures de l'ordre AFM dans le composé cousin 0223F rendent particulièrement attractive cette région du diagramme de phase, où différents ordres semblent pouvoir coexister.



Mesures	T_c	p
OQs	64 K	8.0 %
OQs	74 K	8.7 %
Hall	78 K	8.8 %

FIGURE 5.9 – Mesure de la susceptibilité magnétique (SQUID) des 3 échantillons de Hg-1223. Les flèches indiquent les températures de transition. Les transitions supraconductrices sont relativement étroites ($\Delta T \sim 5$ K).

Dans la suite, je vais présenter une première étude du cuprate 3 plans Hg-1223 en champ magnétique intense dans la gamme de dopage 8.0% - 9.0%. Nos mesures d'oscillations quantiques et d'effet Hall nous amènent à proposer une surface de Fermi issue de la coexistence entre ODC et AFM.

5.2 Mesures de transport dans Hg-1223 sous-dopé

Nous avons mesuré 3 échantillons de Hg-1223 sous dopés sous champ magnétique (88 T) et à basses températures (0.6 K). Deux échantillons de dopage $p = 8.0$ % ($T_c = 64$ K) et $p = 8.7$ % ($T_c = 74$ K) ont été mesurés en oscillations quantiques. Le dernier échantillon de dopage $p = 8.8$ % ($T_c = 78$ K) a été mesuré en effet Hall. Les valeurs de dopages sont estimées par la relation de Tallon à partir des transitions supraconductrices mesurées en susceptibilité magnétique (figure 5.9).

5.2.1 Oscillations quantiques

Les deux échantillons mesurés en TDO sont de dimensions typique $500 \times 500 \times 100 \mu\text{m}^3$ et sont placés dans une bobine solénoïde compensée. La fréquence de résonance typique des circuits est de ~ 25 MHz et le signal est démodulé à une fréquence de 1 MHz par démodulation hétérodyne.

Résultats

Les résultats de nos mesures sont présentés sur la figure 5.10, qui montre la variation de la fréquence de résonance en fonction du champ magnétique jusqu'à 88 T à différentes températures. Le signal est constitué d'une partie monotone (provenant du circuit TDO et de la magnétorésistance des échantillons) et d'oscillations quantiques clairement visibles.

Après soustraction de la monotone, une première analyse de la partie oscillatoire (figure 5.11) nous conforte dans le fait que nous mesurons bien des oscillations quantiques. D'abord, l'amplitude des oscillations décroît à mesure que la température augmente, comme attendu dans la théorie de Lishitz-Kosevich. Ensuite, une superposition des signaux sur la montée et descente du champ et une comparaison à différentes températures, montrent que les oscillations sont reproductibles. Sans effectuer d'analyse de Fourier, on peut déjà dire que les parties oscillatoires sont composées de plusieurs fréquences.

Effectivement, les transformées de Fourier montrent que le spectre se compose d'au moins 3 fréquences et des harmoniques, si on néglige le pic basse fréquence, attribué à une soustraction imparfaite de la monotone² (figures 5.12). Ces trois fréquences valent $F_1 \approx 350T$, $F_2 \approx 500T$ et $F_3 \approx 850T$ et on peut noter ici que $F_1 \approx F_3 - F_2$. Certaines harmoniques et des combinaisons de fréquences de plus faible amplitude sont également présentes à des fréquences plus élevées. Les masses effectives déduites de la dépendance en température des OQs sont aussi résumées dans la table 5.1.

T_c	p	m_{c1}^*	m_{c2}^*	m_{c3}^*
64 K	8.0 %	0.75 ± 0.2	1.0 ± 0.2	1.5 ± 0.2
74 K	8.7 %	n/a	2.2 ± 0.3	2.4 ± 0.2

TABLE 5.1 – Masses effectives déduites de l'analyse de Fourier.

Ajustement

Une difficulté dans cette analyse est la plage de champ réduite associée à la proximité des fréquences F_1 et F_2 . Dans ces conditions, les valeurs des fréquences obtenues à partir de l'analyse de Fourier peuvent être faussées par la relation de phase entre les signaux (figure 5.13). Une méthode efficace pour parer à cet artefact est l'ajustement des OQs par la fonction de LK. J'ai donc utilisé un algorithme de Levenberg-Marquardt associé à une méthode des moindres carrés pour trouver l'ensemble de paramètres p_1, p_2, \dots, p_M qui minimise la fonction

2. Un argument fort contre la présence d'une fréquence aussi basse d'oscillations quantiques est la dépendance de la température du pic dans la transformée de Fourier, qui n'est pas en accord avec le comportement attendu d'après la théorie LK.

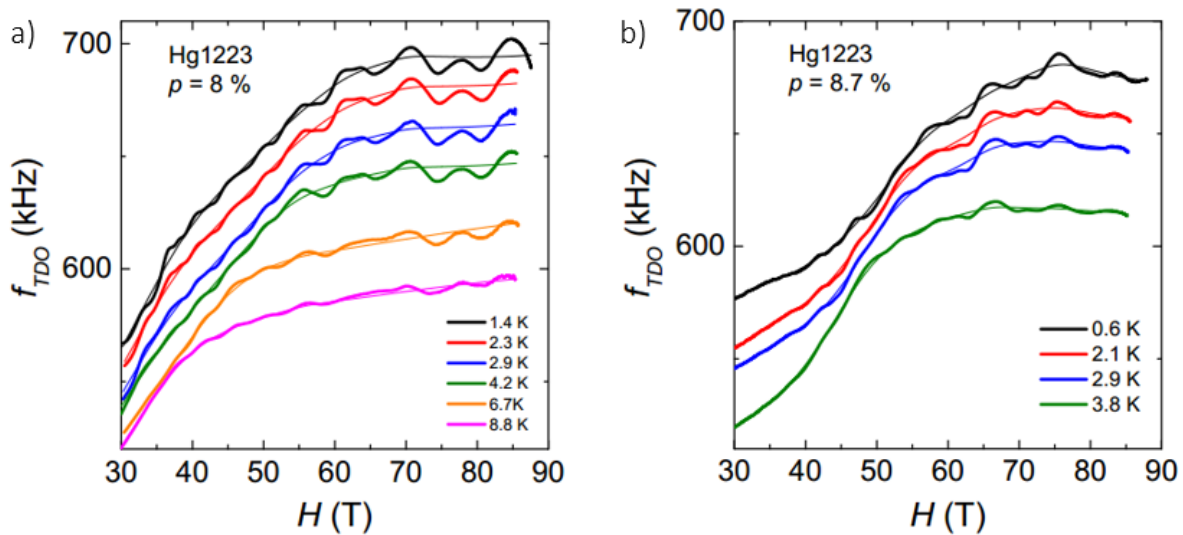


FIGURE 5.10 – **a)** Dépendance en champ de la fréquence de résonance du circuit TDO après démodulation hétérodyne pour l'échantillon à $p = 8.0\%$ à différentes températures. Les lignes minces représentent la monotone (spline) du signal TDO. **b)** Même graphique pour l'échantillon à $p = 8.7\%$.

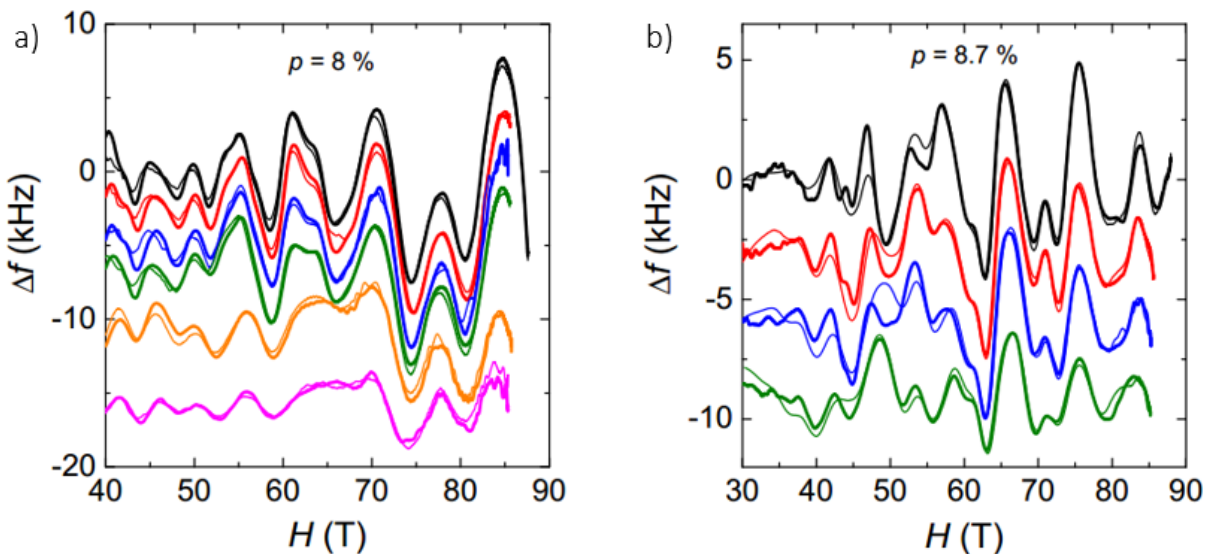


FIGURE 5.11 – **a)** Parties oscillatoires après soustraction de la partie monotone (spline) pour l'échantillon à $p = 8.0\%$. Les lignes minces (épaisses) correspondent à la montée (descente) du champ magnétique. **b)** Même graphique pour l'échantillon à $p = 8.7\%$.

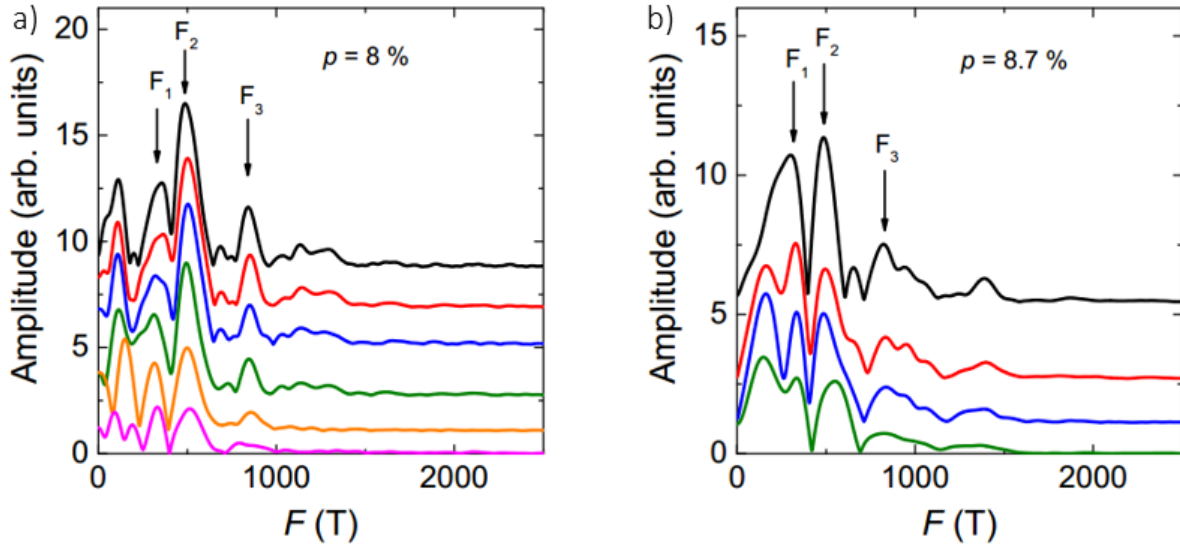


FIGURE 5.12 – a) Transformée de Fourier de la partie oscillatoire de l'échantillon à $p = 8.0\%$ dans la gamme de champs $H = 35 - 85.5 T$. b) Transformée de Fourier de la partie oscillatoire de l'échantillon à $p = 8.7\%$ dans la gamme de champs $H = 37 - 85.3 T$. Les trois flèches sur les figures a) et b) indiquent les fréquences extraites de notre analyse.

d'erreur :

$$\chi^2 = \sum_i [y_i - y(x_i; p_1, p_2, \dots, p_M)]^2 \quad (5.1)$$

Avec y_i les points expérimentaux et $y(x_i; p_1, p_2, \dots, p_M)$ la fonction d'essai évaluée au point i avec le set de paramètres p_1, p_2, \dots, p_M . J'ai utilisé cet algorithme pour ajuster la fonction LK (eq. 5.2) aux OQs pour chaque température. La principale difficulté rencontrée avec cette approche est le grand nombre de paramètres (5 paramètres par poche i : $A_{0,i}$, F_i , $m_{c,i}$, $T_{D,i}$ et γ_i) qui induit un grand nombre de minimums locaux dans la fonction d'erreur. En conséquence, les ajustements ne donnaient pas toujours les mêmes valeurs de fréquences pour des températures différentes. Afin de nous assurer de la valeur des fréquences, j'ai exploré au cours de cette thèse des nouvelles techniques d'analyse.

J'ai d'abord utilisé une méthode alternative à la transformée de Fourier appelée matching pursuits avec le logiciel Guimauve [195]. La méthode du matching pursuits (introduite par Mallat et Zhang [196]) est une technique de traitement du signal qui permet de décomposer un signal en une famille de fonctions localisées à la fois en temps (ici en $1/B$) et en fréquence (ici en B), appelées atomes. Ces fonctions sont regroupées dans un dictionnaire et l'algorithme du matching pursuits permet de décomposer le signal en piochant des formes d'ondes depuis ce dictionnaire. Cette technique m'a permis de confirmer la valeur de la fréquence F_3 mais ne s'est pas avérée efficace pour démêler les fréquences F_1 et F_2 (Figure 5.14).

J'ai ensuite exploré les options d'ajustement des données. Le problème de grand nombre de

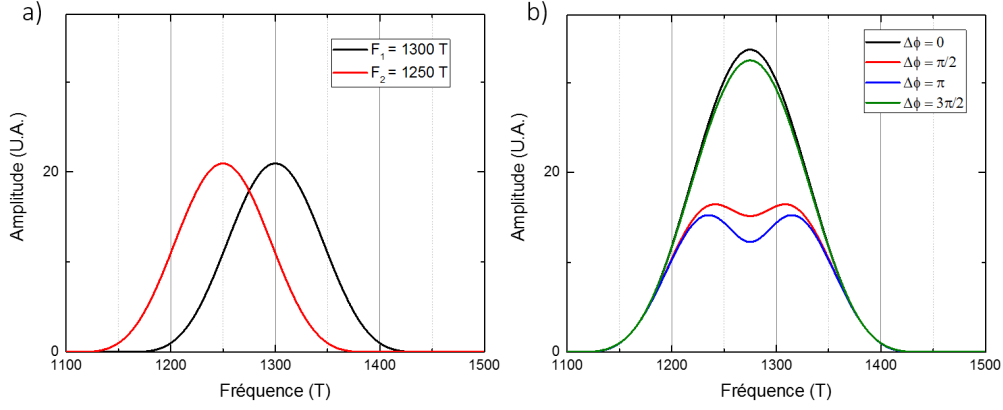


FIGURE 5.13 – **a)** Transformée de Fourier de deux signaux oscillatoires de fréquences proches pris indépendamment dans une fenêtre de largeur 0.022 T^{-1} , fenêtre Hamming. **b)** Transformée de Fourier de la somme des signaux oscillatoires, pour quatre valeurs de différences de phases. La phase a pour effet de fausser la lecture du spectre : la positions des pics est différente suivant la phase.

minimums locaux dans les ajustements avec la fonction LK a été soulevé dans la thèse de Brad Ramshaw dans le cadre de l'étude du spectre des OQs de YBCO. Il a alors proposé une implémentation d'un algorithme appelé algorithme génétique [197] qui reprend des concepts similaires à ceux de la sélection naturelle. Plutôt que de partir d'un seul set de paramètres initiaux, l'algorithme génétique génère de manière aléatoire un grand nombre de set de paramètres de départ, appelés "parents" dans les limites spécifiées. Ces paramètres sont ensuite légèrement modifiés (mutation), pour produire un nouvel ensemble de paramètres. Ce dernier est alors mis en compétition avec les "parents" (sélection) via une évaluation de la fonction d'erreur (χ^2). Les ensemble de paramètres conservés produisent une nouvelle génération, et le processus de sélection recommence. Grâce à la conception de l'algorithme, les minimums locaux peuvent être évités. L'application de cette méthode a donné de meilleurs résultats que le matching pursuits et a notamment permis de résoudre les fréquences F_1 et F_2 . Cependant, les fréquences n'étaient toujours pas reproductibles d'une température à l'autre. Nous avons donc soupçonné que la soustraction de la monotone du TDO, qui peut différer d'une température à l'autre, pouvait fausser l'évaluation des fréquences.

Je suis parvenu à converger à des valeurs de fréquences reproductibles par l'amélioration de notre programme d'ajustement : plutôt que d'ajuster la fonction LK pour chaque température, la fonction est ajustée à toutes les températures à la fois. Une partie monotone est aussi ajoutée à la fonction (polynômes) mais est indépendante pour chaque température. La fonction à ajuster aux données est donc $f_{TDO} = (a_0 + a_1 H + a_2 H^2 + \dots) + \Delta f_{osc}$, le premier terme est la monotone attribuée au TDO et le second est donné par la théorie de Lifshitz-Kosevich :

$$\Delta f_{osc} = \sum_i A_{0,i} R_{th,i} R_{D,i} \sin\left[2\pi\left(\frac{F_i}{H} - \gamma_i\right)\right] \quad (5.2)$$

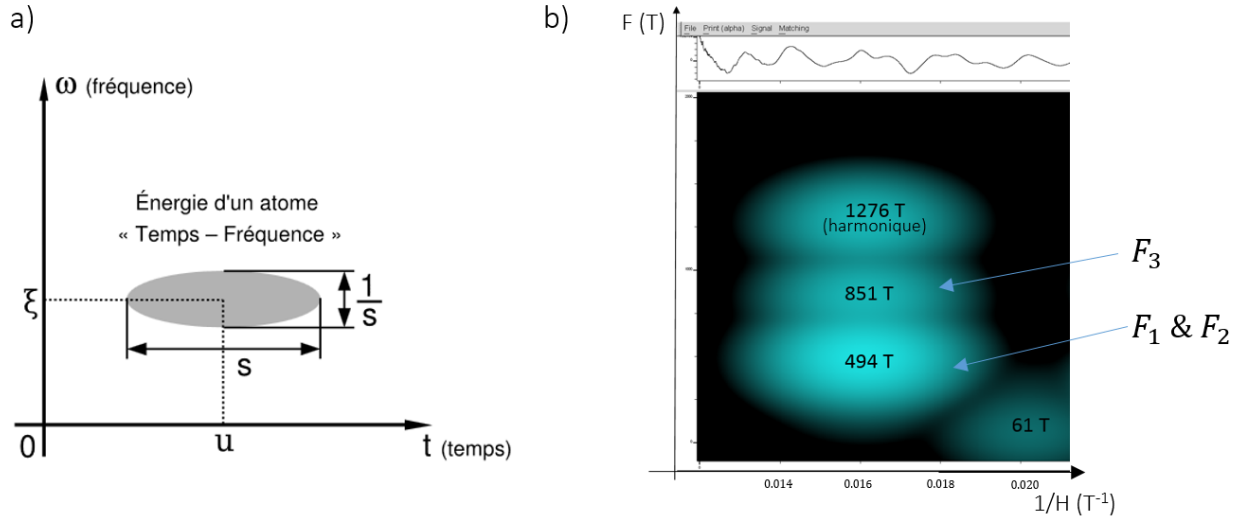


FIGURE 5.14 – a) Exemple d'un atome dans la méthode du matching poursuit. Un atome est localisé à la fois en temps (de manière équivalente en $1/B$) et en fréquence (de manière équivalente en B). b) Exemple de figure obtenue pour une analyse des oscillations quantiques de Hg-1223 ($T = 2.9$ K, $p = 8.0$ %) avec le logiciel Guimauve [195]. L'atome correspondant à F_3 est visible, mais la faible résolution en fréquence empêche de dissocier les atomes de F_1 et F_2 .

Avec $R_{th,i}$ et $R_{D,i}$ les facteurs de réduction thermique et de Dingle de la fréquence F_i . Les effets de rupture magnétique et Zeeman sont négligés. Elle se compose de quatre fréquences : les trois fréquences principales F_1 , F_2 et F_3 et une des harmoniques que nous avons appelé F_4 .

Nous avons contraint les valeurs des masses effectives (pour être en accord avec l'analyse de Fourier) et les températures de Dingle (pour tenir compte du plus faible désordre du plan intérieur) (cf. section 5.3.2). L'algorithme a convergé pour les basses températures, de $T = 1.4$ K à $T = 4.2$ K pour l'échantillon à $p = 8.0$ % et de $T = 0.6$ K à $T = 2.9$ K pour l'échantillon à $p = 8.7$ %, les résultats sont résumés dans la table 5.2. En raison de la monotone du TDO qui n'est pas parfaitement polynomiale et des harmoniques non prises en compte, notre ajustement ne reproduit pas parfaitement les données (figure 5.15.a), mais permet néanmoins de confirmer les valeurs de fréquences mesurées sur la transformée de Fourier. La procédure d'ajustement donne $F_1 = 331$ T, $F_2 = 500$ T et $F_3 = 866$ T pour l'échantillon à $p = 8.0$ % et $F_1 = 333$ T, $F_2 = 514$ T et $F_3 = 820$ T pour l'échantillon à $p = 8.7$ %, en bon accord avec les fréquences mesurées sur la transformée de Fourier. La contribution de chacune des fréquences au spectre est représentée en figure 5.15.b pour l'échantillon à $p = 8.0$ %.

La comparaison entre les deux analyses permet d'identifier clairement au moins trois fréquences dans le spectre des OQ de Hg-1223 à $p \approx 8 - 9\%$ et environ égales à :

$$F_1 \approx 350 T$$

$$F_2 \approx 500 T$$

$$F_3 \approx 850 T$$

Avec :

$$F_3 \approx F_1 - F_2 \quad (5.3)$$

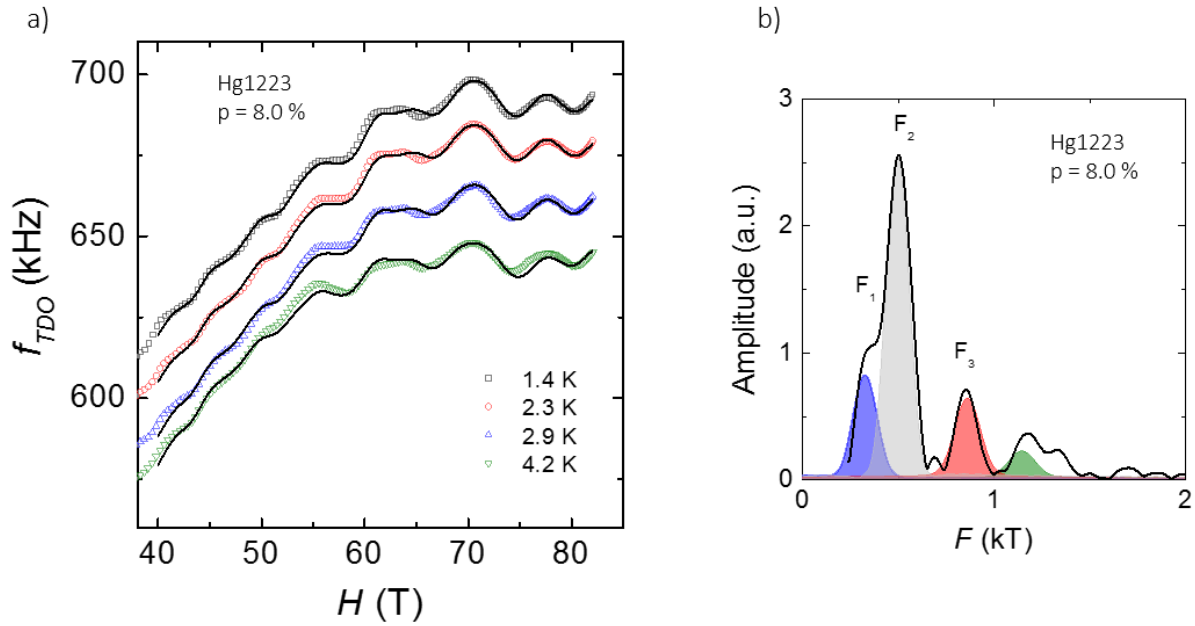


FIGURE 5.15 – a) Ajustement de la fonction LK aux courbes pour l'échantillon à $p = 8.0\%$ dans la gamme de champ $H = 40 - 83 T$. c) Analyse de Fourier de la partie oscillatoire à $T = 1.5$ K de l'échantillon $p = 8.0\%$ avec les contributions des fréquences F_1 (bleue), F_2 (grise) et F_3 (rouge). La composante verte correspond à une harmonique/comboinaison de fréquence prise en compte pour améliorer l'ajustement.

	$p = 8\%$			$p = 8.7\%$		
	F_1	F_2	F_3	F_1	F_2	F_3
F (T)	331	500	866	333	514	820
m_c^* (m_e)	1.9	1.2	1.6	1.6	2	2.2
T_D (K)	8	7	14	5	7	16

TABLE 5.2 – Fréquences d'OQs, masses effectives et températures de Dingle déduites des ajustements pour les échantillons à $p = 8\%$ et $p = 8.7\%$

5.2.2 Effet Hall

Pour obtenir plus d'informations sur la surface de Fermi, nous avons réalisé des mesures d'effet Hall sur l'échantillon $p = 8.8\%$, de dimensions $700 \times 450 \times 90 \mu\text{m}^3$ par une méthode 4 pointes avec un courant de 5 mA et une fréquence de 60 kHz. Afin de limiter les résistances de contact (inférieures à 1Ω à basse température), nous diffusons des contacts d'or par pulvérisation cathodique sur la surface de l'échantillon³. L'expérience est réalisée en appliquant le champ magnétique perpendiculairement aux plans CuO_2 et suivant les deux polarités du champ. Les données jusqu'à 10 K ont été mesurées dans la bobine 70 T et celles à plus basse températures dans la bobine 90 T en raison des forts champs critiques.

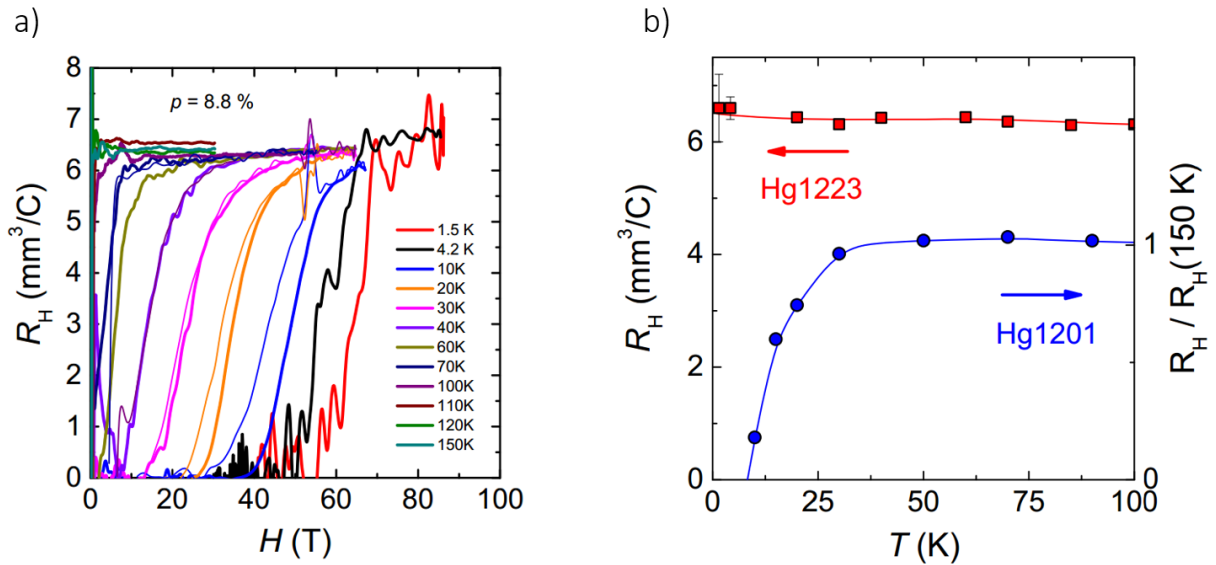


FIGURE 5.16 – **a)** Dépendance en champ du coefficient de Hall R_H pour Hg-1223 $p = 8.8\%$ à différentes températures. Pour les mesures jusqu'à 68 T, les lignes épaisses (fines) correspondent à la descente (montée) du champ magnétique. **b)** Dépendance en température du coefficient de Hall R_H dans l'état normal de Hg-1223 $p = 8.8\%$ (courbe rouge). R_H est positif et vaut $R_H \approx 6.5 \text{ mm}^3/\text{C}$ dans la limite $T \rightarrow 0$, équivalent à une concentration de porteurs de $p = 7.5\%$. Le signe de R_H contraste avec le composé 1 plan Hg-1201 au même dopage ($p = 9.0\%$), où l'effet Hall change de signe à basse température (courbe bleue).

La dépendance en champ du nombre de Hall ($R_H = \rho_{xy}/B$) est présentée en figure 5.16.a pour des températures allant de 150 K à 1.5 K. Les courbes à 1.5 K et 4.2 K sont plus bruyantes car les mesures sont réalisées jusqu'à 88 T : le pulse de la bobine 90 T étant plus court, cela induit un plus fort dB/dt et plus de bruit sur nos mesures. Néanmoins, nous pouvons constater que le coefficient de Hall reste positif dans l'état normal et est indépendant du champ.

3. La procédure d'élaboration des contacts est la suivante : un échantillon de $T_c = 110 \text{ K}$ est poli puis des contacts d'or sont diffusés par pulvérisation cathodique sur la surface en présence d'un masque. L'échantillon est ensuite sous dopé jusqu'à la T_c voulut en procédant à un recuit pour diminuer son taux d'oxygène. Cette étape permet aussi de faire diffuser les contacts d'or.

Le tracé de $R_H(T)$ mesuré dans l'état normal (figure 5.16.b) indique que R_H dépend peu de la température et vaut $R_H \approx +6.5 \text{ mm}^3/\text{C}$ dans la limite $T \rightarrow 0$. Cette valeur correspond à une concentration de porteurs de $0.075 \text{ h}/\text{Cu}$ et indique que l'état normal de Hg-1223 à $p = 8.8\%$ contient des porteurs de type trous qui dominent le transport. Il est intéressant de constater qu'une densité de porteurs de $0.075 \text{ h}/\text{Cu}$ réparti sur deux poches à la surface de Fermi correspond à une fréquence d'oscillations quantiques de $F \approx 500 \text{ T}$, c'est-à-dire à la fréquence dominante du spectre des OQ que nous avons appelé F_2 .

5.2.3 Comparaison avec Hg-1201

Comparons les données d'oscillations quantiques de Hg-1223 avec celles du composé monocouche Hg-1201. La figure 5.17.a montre les parties oscillatoires mesurées en TDO pour les deux échantillons de Hg-1223 et de Hg-1201 à un dopage similaire ($p = 9.0\%$). Comme nous l'avons déjà discuté dans notre analyse, le spectre de Hg-1223 est composé d'au moins 3 fréquences et contraste avec celui de Hg-1201 qui n'en contient qu'une seule, attribuée à la poche d'électrons [148, 149] issue de la reconstruction de la surface de Fermi par ODC. Cette dernière a cependant une valeur proche à la fréquence F_3 du spectre de Hg-1223 (figure 5.17.b) où des signatures d'ODC ont aussi été mesurées à un dopage légèrement supérieur [186].

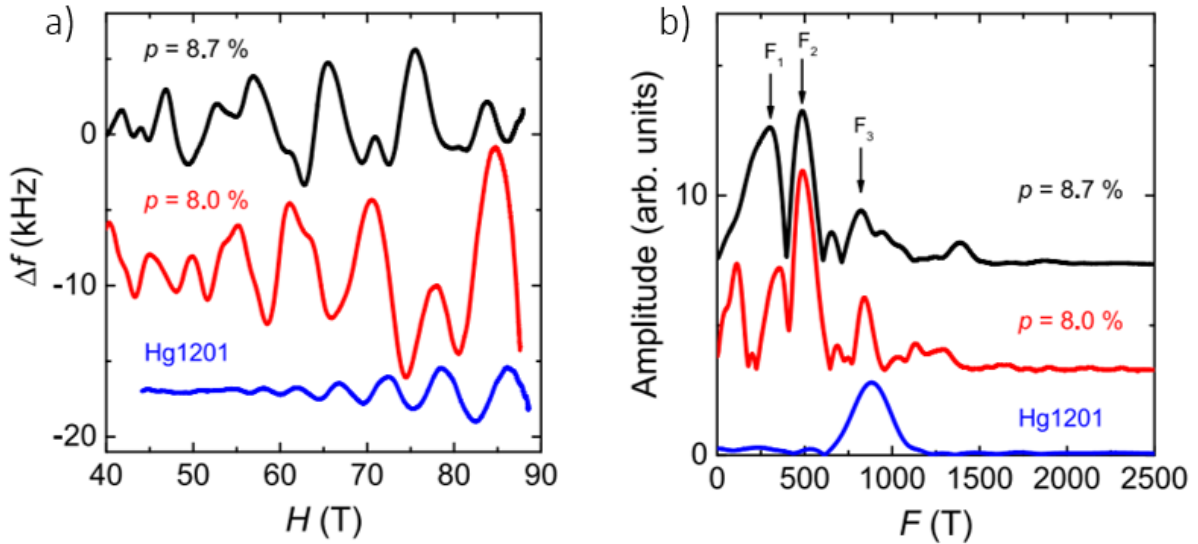


FIGURE 5.17 – **a)** Partie oscillatoire des OQs de Hg-1223 $p = 8.7\%$ (noir) et $p = 8.0\%$ (rouge) comparées à celle de Hg-1223 $p = 9.0\%$ (bleue). **b)** Comparaison des spectres de Fourier de Hg-1223 et Hg-1201. La fréquence $F_3 = 850 \text{ T}$ s'observe sur les spectres des 3 échantillons et est attribuée à la reconstruction par ODC dans Hg-1201.

Il est donc tentant d'identifier la fréquence F_3 à la même poche d'électrons que celle mesurée

dans Hg-1201. Mais la situation diffère par le signe de l'effet Hall qui reste positif dans Hg-1223 dans la limite ($T \rightarrow 0$) (figure 5.17) indiquant des porteurs de type trous, alors qu'il est négatif dans Hg-1201.

5.3 Scénario de surface de Fermi

Pour expliquer nos données, nous avons comparé plusieurs modèles de surface de Fermi aux fréquences d'oscillations quantiques et à la densité de porteurs extraite par effet Hall. Parmi les 4 scénarios discutés, la coexistence entre un ordre AFM dans le plan intérieur et un ODC dans les plans extérieurs est celui qui permet de mieux réconcilier toutes les données.

5.3.1 Calculs de structure de bandes

En premier lieu, comparons nos données aux calculs de structure de bandes (LDA) qui indiquent que la surface de Fermi de Hg-1223 stoechiométrique est composée de 3 grandes poches de trous 2D centrées en M de densité équivalente à $n = 1 + p$ pour chaque feuillet CuO_2 , et de deux petites poches d'électrons aux antinœuds qui disparaissent avec le dopage [198] (figure 5.18). Pour un dopage de $p = 8.0\%$, la taille des grandes poches de trous se traduit en terme d'oscillations quantiques par une fréquence de $F \approx 15$ kT qui est bien supérieure aux fréquences mesurées. Ce résultat n'est pas une surprise, les cuprates étant mal décrits par les calculs de structure de bandes dans la région sous-dopé, où les corrélations électroniques sont importantes.

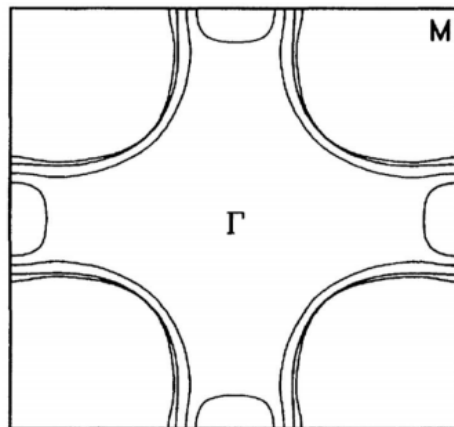


FIGURE 5.18 – Surface de Fermi de Hg-1223 déduite des calculs de structure de bande (LDA). Elle se compose de 3 tubes centrés en M pour chaque feuillet CuO_2 et de deux poches d'électrons suivant les directions antinodales, qui disparaissent avec le dopage. [198]

5.3.2 Modèles de reconstruction

Dans la suite, nous allons discuter trois scénarios de reconstructions de surface de Fermi de Hg-1223 par ODC et/ou par ordre AFM. Pour conserver un modèle simple, nous avons traité de manière indépendante le plan intérieur et les plans extérieurs, même si ces derniers sont couplés par un terme de saut t_{\perp} [198].

Pour illustrer les reconstructions provenant d'un ODC ou d'un ordre AFM, nous prenons comme point de départ la grande poche de trous du côté sur-dopé, reproduite par une équation type de liaison forte :

$$E(k) = -2t_1(\cos(ak_x) + \cos(bk_y)) - 4t_2(\cos(ak_x) \times \cos(bk_y)) - 2t_3(\cos(2ak_x) + \cos(2bk_y)) - 4t_4(\cos(2ak_x) \times \cos(bk_y) + \cos(ak_x) \times \cos(2bk_y)) - \mu \quad (5.4)$$

Avec k_x et k_y les vecteurs d'ondes dans le plan et a et b les paramètres de maille. Les termes de saut sont choisis pour reproduire les données d'ARPES de Hg-1201 de la réf. [199], et valent : $(t_1, t_2, t_3, t_4) = (0.48, -0.105, 0.08, -0.02)$ eV. La symétrie tétragonale de Hg-1201 implique $a = b = 3.88$ Å et nous ajustons le potentiel chimique (μ) à $\mu = -0.355$ eV pour obtenir une grande poche de trous de taille de $n = 1 + p$ avec $p = 8.5$ %. La surface de Fermi résultante est représentée en traits minces sur les figures 5.19, 5.20 et 5.21.

AFM plan intérieur

Dans ce scénario, la grande poche de trous du côté surdopé est reconstruite par un ordre AFM de vecteur d'onde $Q_{AFM} = (\pi, \pi)$. Ce modèle est proposé par analogie avec le composé cousin 0223F, où de l'AFM est mesuré dans le plan intérieur en RMN à dopage équivalent. Dans ce scénario, les oscillations quantiques proviennent uniquement des quasiparticules du plan intérieur protégé du désordre.

Dans un scénario de reconstruction par un ordre AFM, la poche de trous est translatée d'un vecteur d'onde $Q_{AF} = (\pi, \pi)$ et la 1ZB est réduite de moitié après rotation de $\pi/2$. Si le potentiel AFM n'est pas trop important, la surface de Fermi est composée de deux poches de trous suivant les directions nodales, et d'une poche d'électrons suivant les directions antinodales (figure 5.19). Un tel scénario nous permet d'identifier la fréquence F_3 aux poches de trous ($F_3 = F_{trous} = 850$ T) et la fréquence F_2 à la poche d'électrons ($F_2 = F_{\text{électrons}} = 500$ T). La fréquence F_1 s'expliquerait alors naturellement par de la rupture magnétique entre les deux poches de type de porteurs différents, induisant $F_1 = F_{MB} = F_{hole} - F_{\text{électrons}} = 350$ T.

Pour illustrer ce scénario, nous avons reproduit la surface de Fermi obtenue après reconstruction par l'ordre AFM, qui correspond aux états propres de l'Hamiltonien suivant :

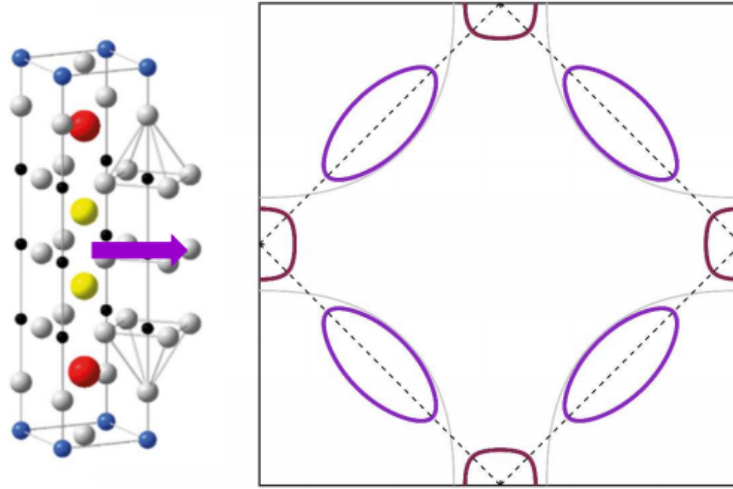


FIGURE 5.19 – Surface de Fermi dans un scénario de reconstruction par un ordre AFM. Les deux poches de trous (violet) correspondent à la fréquence $F_3 = 850$ T et la poche d'électron à la fréquence $F_3 = 500$ T. La rupture magnétique entre les deux poches pourrait expliquer la présence de la fréquence $F_1 = F_3 - F_2 = 350$ T. Une estimation du champ de rupture magnétique montre cependant qu'il est supérieur au champ mis en jeu pendant l'expérience.

$$H_{AFM} = \begin{pmatrix} E(\mathbf{k}) & V_{AFM} \\ V_{AFM} & E(\mathbf{k} + \mathbf{Q}_{AFM}) \end{pmatrix} \quad (5.5)$$

Et dont les énergies propres sont décrites par les formules analytiques suivantes pour les bandes d'électrons $E_e(k)$ et de trous $E_h(k)$:

$$E_e(k) = \frac{E(k) + E(k + Q_{AF})}{2} + \sqrt{\frac{(E(k) + E(k + Q_{AF}))^2}{4} + V_{AF}^2} \quad (5.6)$$

$$E_h(k) = \frac{E(k) + E(k + Q_{AF})}{2} - \sqrt{\frac{(E(k) + E(k + Q_{AF}))^2}{4} + V_{AF}^2} \quad (5.7)$$

avec V_{AF} le potentiel AFM et $Q_{AF} = (\pi, \pi)$. Nous obtenons les poches de trous et d'électrons de fréquences respectives 850 T et 500 T en ajustant le potentiel AFM à $V_{AF} = 0.25$ eV.

Dans ces conditions, le champ de rupture magnétique entre les deux poches est considérable. Nous pouvons l'estimer à partir du critère de Blount :

$$B_0 = \frac{m^*}{e\hbar} \times \frac{E_g}{E_F} \quad (5.8)$$

où $E_F = \frac{e\hbar}{m^*} \times F_{QO}$ est l'énergie de Fermi, E_g celle du gap du à l'AFM, m^* la masse effective

et F_{QO} la fréquence d'oscillations quantiques. En prenant $E_g = 0.25$ eV, $m^* = 1.6 m_0$ ($1.2 m_0$) et $F_{QO} = 850$ T (500 T) le champ de rupture magnétique est estimé à $B_0 \approx 13000$ T (14000 T), plus de trois ordres de grandeurs plus grand que le champ utilisé pendant l'expérience. Ce scénario ne permet donc pas d'expliquer la présence de la fréquence F_1 . Il est aussi difficile de réconcilier la présence d'une poche d'électrons suivant les directions antinodales avec le pseudogap [192].

Ordre de charge sur les 3 plans

Un second scénario étudié est la présence d'ODC dans les 3 plans de Hg-1223. L'ODC est une propriété universelle des cuprates sous-dopés et reconstruit la surface de Fermi dans Hg-1201 et YBCO [146, 148]. Si le scénario exact de reconstruction est encore débattu, un ODC bi-axial permet d'expliquer le spectre des oscillations quantiques de YBCO et Hg-1201 par la présence d'une petite poche d'électron suivant les directions nodales [135, 152]. Alors que dans Hg-1201, une seule fréquence $F_e \approx 850$ T est observée, la situation est plus compliquée dans YBCO où le spectre des OQs se compose d'un pic centrale $F_e \approx 540$ T entouré de deux pics satellites à $F_e = 540 \pm 90$ T à $p = 11$ %. L'origine de cette structure est supposée provenir de la rupture magnétique entre les deux plans de la cellule unité (cf. chapitre 4, section 4.2.5).

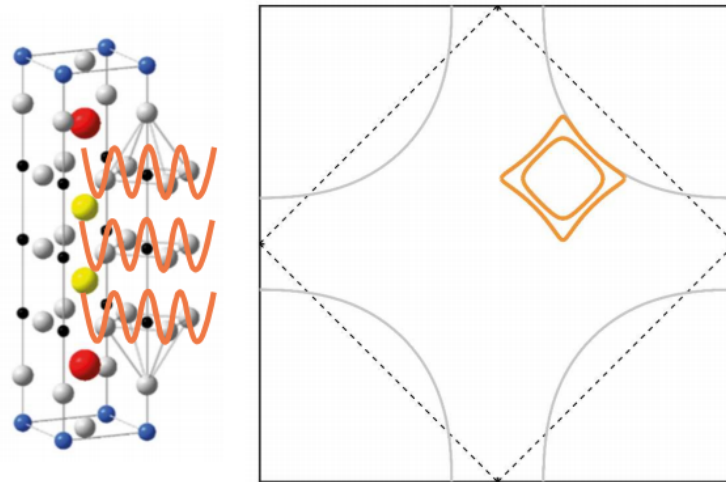


FIGURE 5.20 – Surface de Fermi de Hg-1223 en présence d'ODC sur les 3 plans. Les deux poches sont formées par les bandes liantes et antiliantes dues au couplage entre les plans.

Ce scénario suppose que l'ODC se développe dans les 3 plans de Hg-1223 et reconstruit la surface de Fermi en une poche d'électron de fréquence $F_e = 850$ T (par analogie avec Hg-1021), située sur les plans extérieurs, et une autre poche d'électrons de fréquence $F_e = 500$ T (par analogie avec YBCO) sur le plan intérieur (figure 5.20).

Pour illustrer la surface de Fermi résultante, nous avons réalisé des calculs de reconstruction

par un ODC bi-axial en ne considérant que les translations du premier ordre de la surface de Fermi par un vecteur d'onde Q_{CDW} [158]. Afin de reproduire l'effet du pseudogap, la surface de Fermi choisi avant reconstruction est composé de deux poches de trous aux noeuds. Les scénarios de reconstructions montrent qu'une reconstruction de ce type produit la même poche d'électrons que celle provenant du pseudogap [200]. L'Hamiltonien de dimensions 4×4 , que nous appelons $H_{CDW_{3layers}}$ est diagonalisé numériquement avec un nombre de points de 10^6 et prend la forme :

$$H_{CDW_{3layers}} = \begin{pmatrix} \varepsilon(\mathbf{k}) & V_{CDW} & V_{CDW} & 0 \\ V_{CDW} & \varepsilon(\mathbf{k} + \mathbf{Q}_x) & 0 & V_{CDW} \\ V_{CDW} & 0 & \varepsilon(\mathbf{k} + \mathbf{Q}_y) & V_{CDW} \\ 0 & V_{CDW} & V_{CDW} & \varepsilon(\mathbf{k} + \mathbf{Q}_x + \mathbf{Q}_y) \end{pmatrix}$$

Avec V_{CDW} le potentiel d'ODC. Nous avons choisi $Q_{CDW} = 0.275$ r.l.u et $V_{CDW} = 0.075$ eV pour reproduire les poches d'électrons de 850 T et de 500 T (figure 5.20).

Deux arguments nous permettent d'écarter ce scénario. D'abord, l'effet Hall attendu en présence de 3 poches d'électrons est négatif (une poche par plan), en désaccord avec nos mesures qui montrent un effet Hall positif dans la limite $T \rightarrow 0$. Ensuite, ce scénario ne permet pas d'expliquer la fréquence $F_1 = 350$ T par de la rupture magnétique entre les poches (poches de même type de porteurs).

Coexistence CDW et AFM

Dans ce dernier scénario, nous nous basons sur une des propriétés des cuprates multicouche, à savoir que le plan intérieur est toujours moins dopé que les plans extérieurs. Supposons donc qu'un ordre AFM soit présent sur le plan intérieur, par analogie avec le composé 0223F. Mais contrairement au scénario précédent d'AFM, la surface de Fermi contient seulement deux poches de trous de fréquence $F_h = 500$ T. Une surface de Fermi similaire est mesurée en ARPES à plus faible dopage dans les plans intérieurs du composé 5 plans 0245F. Pour les plans extérieurs, plus dopés, nous supposons qu'un ODC reconstruit la surface de Fermi sous la forme d'une poche d'électron située suivant les parties nodales de la 1ZB et de fréquence $F = 850$ T, par analogie avec Hg-1201.

La surface de Fermi résultante est représentée en figure 5.21 et a été calculée suivant les méthodes développées dans les deux parties précédentes. Dans ce modèle, la présence de la fréquence $F_1 = F_e - F_h$ provient de la rupture magnétique entre les deux poches de type de porteurs différents. Si le champ de rupture magnétique ne peut pas être estimé avec la formule de Blount (l'énergie du gap est inconnue), un argument en faveur d'un faible champ de rupture magnétique est que les poches d'électron et de trous sont formées à partir des mêmes sections de surface de Fermi, situées suivant les directions nodales et donc proches

dans l'espace réciproque.

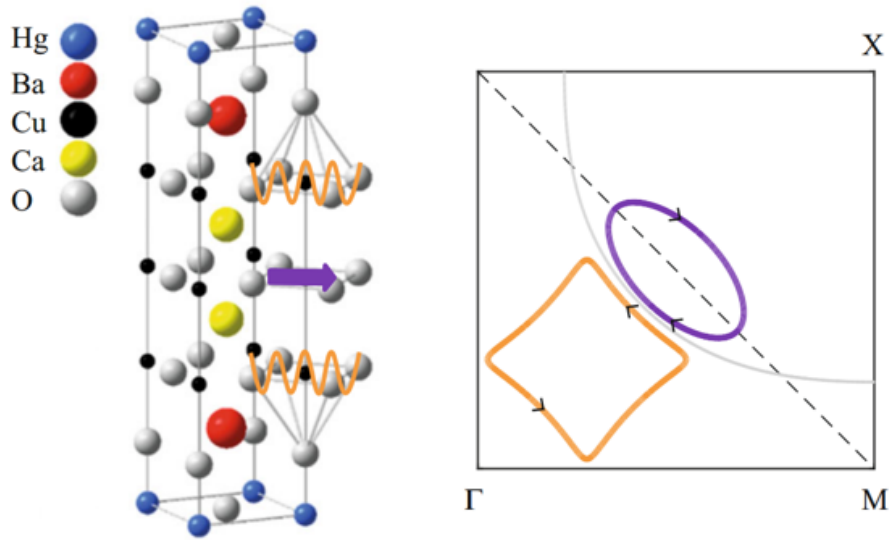


FIGURE 5.21 – Surface de Fermi de Hg-1223 en présence d'un ordre de charge dans les plans extérieurs et d'un ordre AFM dans le plan intérieur. L'ODC reconstruit la surface de Fermi en une poche d'électron $F_3 = 850$ T et l'AFM en deux poches de trous $F_2 = 500$ T. Les deux poches sont situées suivant les directions nodales et sont proches dans l'espace réciproque. La fréquence F_1 s'explique naturellement par de la rupture magnétique entre les deux poches donnant $F_1 = F_{MB} = F_3 - F_2$.

Ce scénario explique notre spectre d'OQs, mais qu'en est-il de l'effet Hall? Dans la limite faible champ, le coefficient de Hall à deux bandes est indépendant du champ et dépend des concentrations de porteurs en trous n_h et en électrons n_e et du rapport des mobilités des deux bandes $M = \mu_h/\mu_e$:

$$R_H = \frac{M^2 n_h - n_e}{(n_e + n_h M)^2} \quad (5.9)$$

En connaissant les concentrations de porteurs, nous pouvons estimer quel rapport de mobilité entre les poches induit un coefficient de Hall égal à $R_H \approx +6.5$ mm³/C. Pour calculer les concentrations de porteurs, nous utilisons les valeurs de fréquence d'OQs, reliées à l'aire extrême de la surface de Fermi par la relation d'Onsager :

$$A_{FS} = \frac{2\pi e F}{\hbar}, \quad (5.10)$$

avec F la fréquence d'oscillation. Le nombre de porteurs par plan et par poche est donné par :

$$N = \frac{2A_{FS}}{A_{1BZ}}, \quad (5.11)$$

où $A_{1\text{BZ}}$ est la taille de la première zone de Brillouin. Parmi les 3 plans de Hg-1223 et en accord à notre modèle, nous considérons que la surface de Fermi des plans extérieurs ne contient qu'une poche d'électrons due à la reconstruction par l'ODC. La surface de Fermi du plan intérieur contient deux poches de trous due à la reconstruction par l'ordre AFM. La densité de porteurs $n_{h(e)}$ de trous (électrons) se calcule par :

$$n_h = \frac{2N_h}{V} \qquad n_{el} = 2 \times \frac{N_{el}}{V} \qquad (5.12)$$

avec $V = 236.9 \text{ \AA}^3$ le volume de la cellule unité de Hg-1223. En connaissant les densités, nous pouvons montrer à partir de la formule (5.9) que $R_H \approx +6.5 \text{ mm}^3/\text{C}$ correspond à un rapport de mobilités $M = \mu_h/\mu_e \approx 3$, en bon accord avec le plus faible désordre dans le plan intérieur. À titre comparatif, le rapport de mobilités entre les deux plans intérieurs dans le système 5 plan 0245F est estimé à 2 [120].

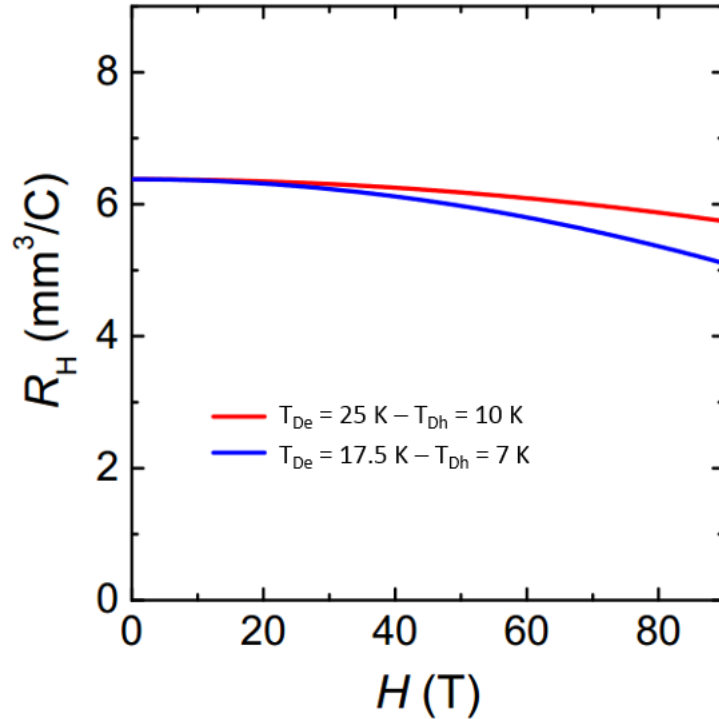


FIGURE 5.22 – Simulation de la dépendance en champ du coefficient de Hall dans un modèle à deux bandes. Nous avons utilisé $m_{ce} = 2.5 m_0$ et $m_{ch} = 2.2 m_0$ pour les masses effectives des électrons (plans externes) et des trous (plan interne), respectivement.

Nous devons maintenant justifier la limite faible champ. Dans sa formulation générale, l'effet Hall à deux bandes dépend du champ magnétique et est donné par :

$$R_H(B) = \frac{1}{e} \frac{n_h \mu_h^2 - n_e \mu_e^2 - \mu_e^2 \mu_h^2 (n_e - n_h) B^2}{(n_e \mu_e + n_h \mu_h)^2 + \mu_e^2 \mu_h^2 (n_e - n_h)^2 B^2} \qquad (5.13)$$

La Figure 5.22 montre une simulation du coefficient de Hall en utilisant des paramètres compatibles avec les mesures de masses effectives dans les barres d'erreur et avec les valeurs de température de Dingle pour l'échantillon à $p = 8.7\%$. Nous avons utilisé les paramètres de l'échantillon à $p = 8.7\%$ car l'effet Hall a été mesuré dans un échantillon de dopage similaire à $p = 8.8\%$. Comme nous pouvons le constater sur la figure 5.22, nous devons nous attendre à une légère déviation à la limite bas champ qui se manifeste par une valeur du R_H dépendante du champ. En raison du rapport signal/bruit à basse température et à fort champ magnétique, il est difficile de savoir si une telle déviation existe. De plus, il est important de préciser que notre modèle est relativement simpliste étant donné qu'il ne prend pas en considération d'éventuelles courbures de la surface de Fermi ou anisotropies du taux de diffusion qui peuvent être importantes dans les cuprates. Cette simulation a pour objectif principal de montrer qu'un effet Hall positif peut être compris à partir de notre modèle.

Notre interprétation, basée sur une coexistence entre AFM et CDW, permet d'expliquer à la fois les données d'oscillations quantiques et la valeur du nombre de Hall à basse température. Néanmoins, nous ne pouvons pas exclure que le champ magnétique influence l'état normal, comme c'est le cas par exemple pour l'ODC 3D de YBCO [127]. Cependant, nous constatons que ce n'est pas le cas pour le cuprate multicouche 0245F, où les données zéro champ d'ARPES et d'oscillations quantiques montrent la même surface de Fermi pour les deux plans non équivalents en dopage [120].

5.4 Discussion

Notre interprétation des résultats implique que dans le cuprate Hg-1223 qui possède la température critique la plus élevée, un état antiferromagnétique métallique subsiste jusqu'à un dopage $p \sim 9\%$ où le composé devient supraconducteur à une température $T_c = 80$ K. Cet ordre AFM pourrait être à l'origine des fluctuations magnétiques observées à plus forts dopages par diffraction de neutron [201, 202] et par mesure de RIXS [203]. Ces interactions magnétiques sont considérées jouer un rôle crucial dans le mécanisme de la supraconductivité à haute température critique, bien qu'une théorie microscopique fait toujours débat dans la communauté. Dans la phase isolant de Mott antiferromagnétique, la dispersion d'excitations magnétiques appelées magnons a été mesurée par diffraction de neutrons dans LSCO [204], ce qui a notamment permis d'estimer précisément la constante d'interaction antiferromagnétique (super-échange) $J = 157$ meV. A plus fort dopage, les mesures RIXS ont montré la présence de paramagnons [203], des excitations magnétiques dont l'énergie est atténuée par rapport à des magnons mais qui dispersent dans la première zone de Brillouin. Ces excitations ont un poids spectral suffisamment important pour éventuellement produire une interaction d'appariement des électrons. Récemment, une étude RIXS a mis en évidence les paramagnons dans Hg-1201 et Hg-1212 dont la dispersion est très similaire mais avec une échelle d'énergie relative

des paramagnons qui est proportionnelle au rapport des températures supraconductrices au dopage optimum [205]. Cette expérience peut être interprétée comme l'analogie de l'effet isotopique dans les supraconducteurs conventionnels mais pour les excitations magnétiques dans les cuprates. Nos résultats questionnent si cette loi d'échelle persiste pour Hg-1223, c'est-à-dire si l'échelle d'énergie des paramagnons est plus importante que dans Hg1212.

Conclusion

Dans ce chapitre, j'ai présenté nos mesures d'oscillations quantiques et d'effet Hall dans le cuprate Hg-1223 dans la gamme de dopage $p = 8-9\%$. Nos mesures ont permis pour la première fois de caractériser l'état normal de Hg-1223 sous-dopé. Notre scénario de surface de Fermi se base sur la différence de dopage entre les plans et indique qu'un ordre de charge dans les plans extérieurs coexiste avec un ordre AFM dans le plan intérieur. La présence d'un ordre AFM stabilisé à fort dopage peut laisser penser que l'échelle d'énergie des fluctuations magnétiques est plus importante dans le cuprate à la plus haute température critique.

Chapitre 6

Mise en évidence d'une transition de phase dans Hg-1223 par mesure de transport

Sommaire

6.1	Signatures d'une transition de phase	159
6.1.1	Changement de signe de l'effet Hall	159
6.1.2	Changement du spectre des oscillations quantiques	162
6.2	Modèle de surface de Fermi	166
6.2.1	Surface de Fermi haute température	166
6.2.2	Surface de Fermi basse température	167
	Conclusion	175

Dans Hg-1223, nous avons vu qu'à un dopage de $p = 8 - 9 \%$, les données d'oscillations quantiques et d'effet Hall pouvaient s'interpréter comme de la coexistence entre un ordre AFM dans le plan intérieur et un ODC dans le plan extérieur. Nous avons aussi observé que l'effet Hall demeurait constant et positif dans la limite $T \rightarrow 0$ en raison de la plus grande mobilité des porteurs du plan intérieur. Dans ce chapitre, je vais présenter de nouvelles mesures d'effet Hall et d'oscillations quantiques dans Hg-1223 dans la gamme de dopage $p = 10 - 11 \%$ où nous avons mesuré un changement de signe de l'effet Hall à basse température associé à une reconstruction de la surface de Fermi. Nos données d'oscillations quantiques nous permettent pour la première fois de mettre en évidence cette reconstruction en fonction de la température dans un cuprate. La transition de phase est caractérisée par le passage d'une basse fréquence (~ 600 T) à 4.2 K à de plus hautes fréquences supérieures à 2 kT à 1.5 K. Je discuterai plusieurs scénarios pour expliquer nos données, l'enjeu étant de trouver quel ordre reconstruit la surface de Fermi "haute température" en une surface de Fermi "basse température" caractérisée par un effet Hall négatif et une fréquence d'oscillations quantiques rapide.

6.1 Signatures d'une transition de phase par mesure de transport

Nous avons mesuré l'effet Hall et les oscillations quantiques dans Hg-1223 à des dopages de l'ordre de $p = 10 - 11 \%$ où des signatures Raman d'ODC ont été mesurées [186]. Trois échantillons de dopage $p \approx 10 \%$ ($T_c = 88$ K, $T_c = 95$ K) et $p \approx 11 \%$ ($T_c = 108$ K) ont été mesurés en effet Hall et deux autres $p \approx 10 \%$ ($T_c = 95$ K) et $p \approx 11 \%$ ($T_c = 108$ K) en oscillations quantiques. Nous avons estimé les dopages à partir de la relation de Tallon et des données SQUID de la figure 6.1. Pour l'échantillon $p \approx 11 \%$, la configuration de mesure en transport permet aussi de mesurer la magnéto-résistance longitudinale R_{xx} mais en raison d'une contamination¹ suivant l'axe \mathbf{c} il n'a pas été possible d'estimer correctement la résistivité longitudinale ρ_{xx} . Je ne discuterai donc que les valeurs de résistance.

6.1.1 Changement de signe de l'effet Hall

Nous avons mesuré l'effet Hall à des hautes températures et jusque 20 K dans la bobine 70 T. Pour les températures inférieures, l'expérience a été réalisée dans la bobine 90 T en raison des forts champs critiques ($H_{irr} \sim 70$ T à 1.5 K dans l'échantillon à $p = 10 \%$). Les mesures pour l'échantillon à $p = 10\%$ ($T_c = 95$ K) sont présentées en figure 6.2 et comparées à l'effet Hall pour le dopage inférieur $p = 9 \%$.

1. Cette contamination n'affecte pas R_H car elle est soustraite lors de l'anti-symétrisation (cf. chapitre 2, section 2.2.1).

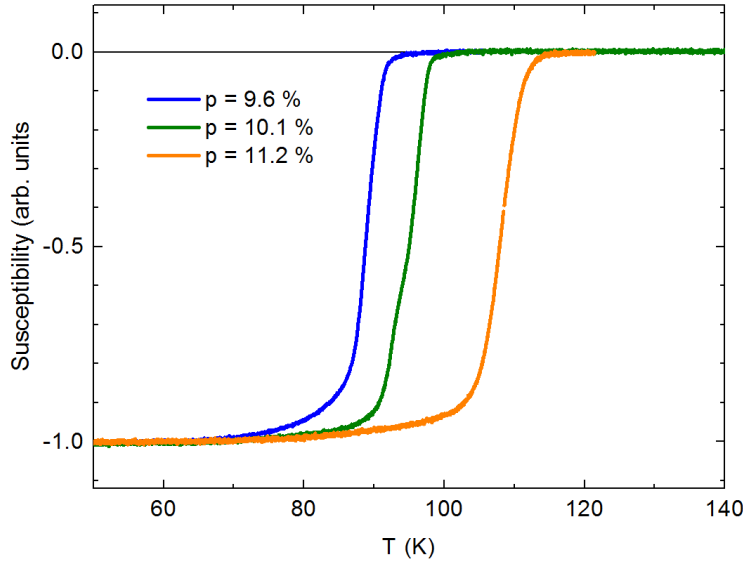


FIGURE 6.1 – Données SQUID des 3 échantillons mesurés en effet Hall : $p \approx 10\%$ ($T_c = 88$ K, $T_c = 95$ K) et $p \approx 11\%$ ($T_c = 108$ K).

À $p = 9\%$, R_H est constant et positif dans la limite $T \rightarrow 0$ et vaut $R_H \approx 6.5 \text{ mm}^3/\text{C}$ (figure 6.2.a). La concentration équivalente n_H vaut p porteurs par site de cuivre, soit ce qui est attendu dans le cas d'un ordre AFM. À $p = 10\%$ (figure 6.2.b) et haute température la résistance de Hall est indépendante du champ magnétique et vaut $R_H \approx 4.5 \text{ mm}^3/\text{C}$ correspondant à une concentration de porteur plus importante que pour l'échantillon à 9% , aussi équivalente à p . Cette valeur est presque constante jusqu'à $T \approx 20$ K.

Entre $T \approx 20$ K et $T \approx 1.5$ K, la résistance de Hall change brutalement de signe passant de $R_H(40 \text{ K}) \approx +4.8 \text{ mm}^3/\text{C}$ à $R_H(1.5 \text{ K}) \approx -4.6 \text{ mm}^3/\text{C}$ à 85 T (figure 6.2.b). Le changement de signe s'opère aussi pour l'échantillon à $p = 11\%$ et une comparaison de la dépendance en température de R_H mesurée dans l'état normal aux 3 dopages $p = 9, 10$ et 11% montre la transition nette observée sur les deux échantillons les plus dopés (fig. 6.3). Pour l'échantillon à $p = 9\%$, l'effet Hall reste positif dans la limite $T \rightarrow 0$, comme discuté dans le chapitre précédent. À plus fort dopage ($p = 10 - 11\%$) R_H est positif à haute température puis chute à $T \approx 20$ K vers des valeurs négatives à basse température. Le changement de signe se produit entre $T \approx 10$ K et $T \approx 4.2$ K à une température que nous appelons T_H . Pour le dopage $p = 10\%$, on a $T_H \approx 6$ K (figure 6.4). Nous avons reproduit le changement de signe en mesurant un échantillon de dopage similaire ($T_c = 88$ K soit $p \sim 10\%$) dans la bobine 70 T. A basse température, 70 T est suffisant pour observer le changement de signe de R_H mais pas pour atteindre l'état normal.

Pour l'échantillon à $p \sim 11\%$, le changement de signe de l'effet Hall a lieu à légèrement plus haute température que pour l'échantillon à 10% : $T_H \approx 8$ K. Le nombre de Hall R_H dans la limite $T \rightarrow 0$ vaut $R_H(T \rightarrow 0) \approx -3.6 \text{ mm}^3/\text{C}$. À haute température il est estimé à

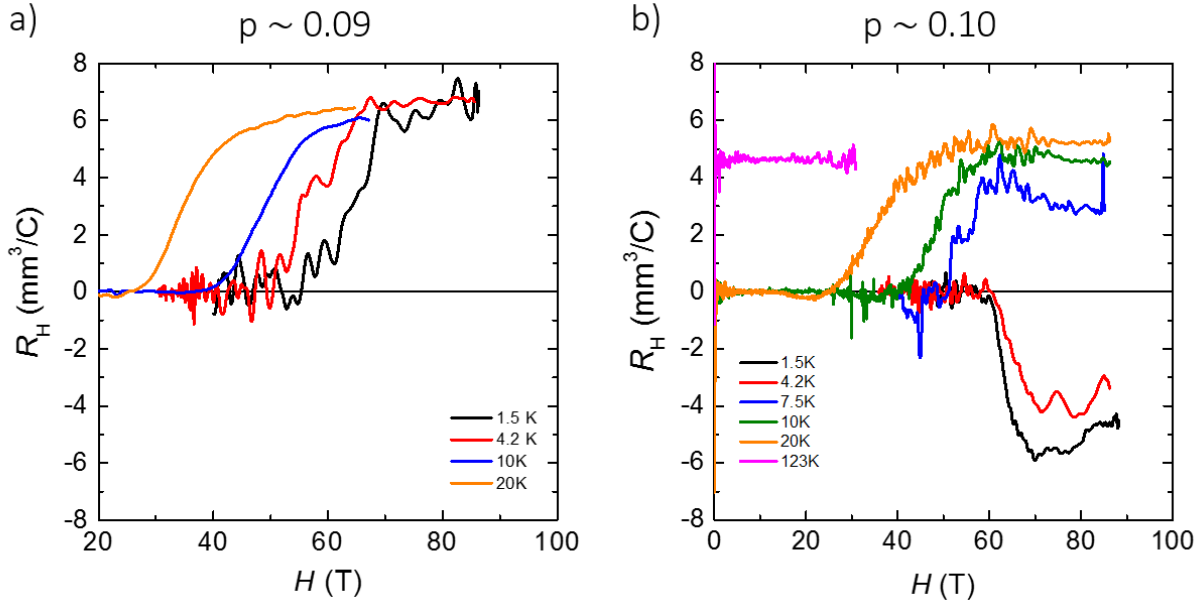


FIGURE 6.2 – Dépendance en champ magnétique de R_H . **a)** Dans l'échantillon à $p = 9\%$, déjà discuté dans le chapitre précédent. Les deux courbes à 1.5 K et 4.2 K ont été mesurées dans la bobine 90 T et sont plus bruyantes dû aux vibrations lors du tir. **b)** Dépendance en champ magnétique de R_H dans l'échantillon à $p = 10\%$: un changement de signe de R_H est clairement visible à basse température dans l'état normal. La valeur relevée à 85 T passe de $R_H \approx +4.8 \text{ mm}^3/\text{C}$ à 40 K à $R_H \approx -4.6 \text{ mm}^3/\text{C}$ à 1.5 K. Le niveau de bruit est inférieur aux mesures de l'échantillon $p = 9\%$, laissant percevoir la basse fréquence d'OQs à 1.5 K aussi mesurée en TDO et en transport.

$$R_H(T = 40\text{K}) \approx +2.3 \text{ mm}^3/\text{C}.$$

Les courbes de la figure 6.3 montrent qu'une transition de phase s'opère à basse température dans Hg-1223 pour $p > 9\%$. Une signature supplémentaire de cette transition est visible sur les données de magnétorésistance où l'on mesure une anomalie prenant la forme d'un pic sur la dépendance en température de la résistance R_{xx} dans l'état normal (figure 6.4). Ce pic est caractéristique de l'ouverture d'un gap, c'est en tout cas l'interprétation qui en est faite dans Hg-1201 [85] où une anomalie similaire de la magnétorésistance prend aussi la forme d'un pic à la température T_H (figure 6.4.a). Ce pic est précédé d'un minimum que les auteurs appellent T_ρ . Ils attribuent cette anomalie à l'ouverture d'un gap qui induit en premier lieu une chute de la densité de porteurs et donc une augmentation de la résistivité. Une fois le gap complètement formé, un comportement métallique est récupéré et la résistivité diminue de nouveau avec la température. Ce comportement, visible sur nos données, est une indication supplémentaire d'une transition de phase et de l'ouverture d'un gap en dessous de la température caractéristique T_H .

Nos mesures d'effet Hall indiquent donc qu'un changement de surface de Fermi s'opère dans Hg-1223 à basse température. Le changement de signe de l'effet Hall semble accompagné d'un

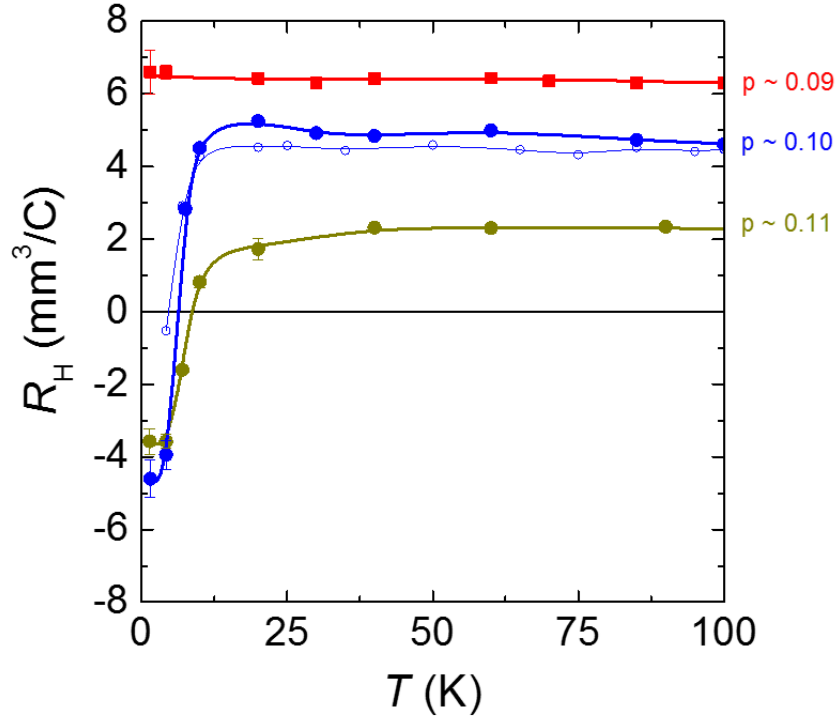


FIGURE 6.3 – Dépendance en température de R_H pour trois dopages différents de Hg-1223. À $p \sim 9\%$, l'effet Hall est positif jusqu'à basse température (courbe rouge). Pour les dopages $p \sim 10\%$ (courbes bleues des deux échantillons) et $p \sim 11\%$ (courbe verte), l'effet Hall change de signe à $T \sim 6$ K et s'établit à une valeur négative dans la limite $T \rightarrow 0$. Les valeurs de R_H sont relevées à 85 T à basse température ($T < 20$ K) et à 65 T pour les plus hautes températures ($T > 20$ K).

pic de magnétorésistance caractéristique de l'ouverture d'un gap. Des signatures similaires ont déjà été mesurées dans Hg-1201 [85] et YBCO [150] dans les cuprates sous-dopés et sont connues pour être une conséquence de l'ordre de charge, qui reconstruit la surface de Fermi en une petite poche d'électrons [146, 148, 152].

6.1.2 Oscillations quantiques : changement du spectre en température

Nous avons complété les mesures d'effet Hall par des mesures d'oscillations quantiques à des dopages similaires ($T_c = 95$ K et $T_c = 108$ K) grâce à la technique TDO. Dans l'échantillon à $p \sim 11\%$ ($T_c = 108$ K), des oscillations quantiques sont clairement visibles à basse température et fort champ magnétique, au-delà de 65 T (figure 6.5). Une première observation étonnante est que le spectre des OQs change drastiquement en diminuant la température : il passe d'une oscillation de large amplitude / basse fréquence à 4.2 K à une de faible amplitude / haute fréquence à 1.5 K.

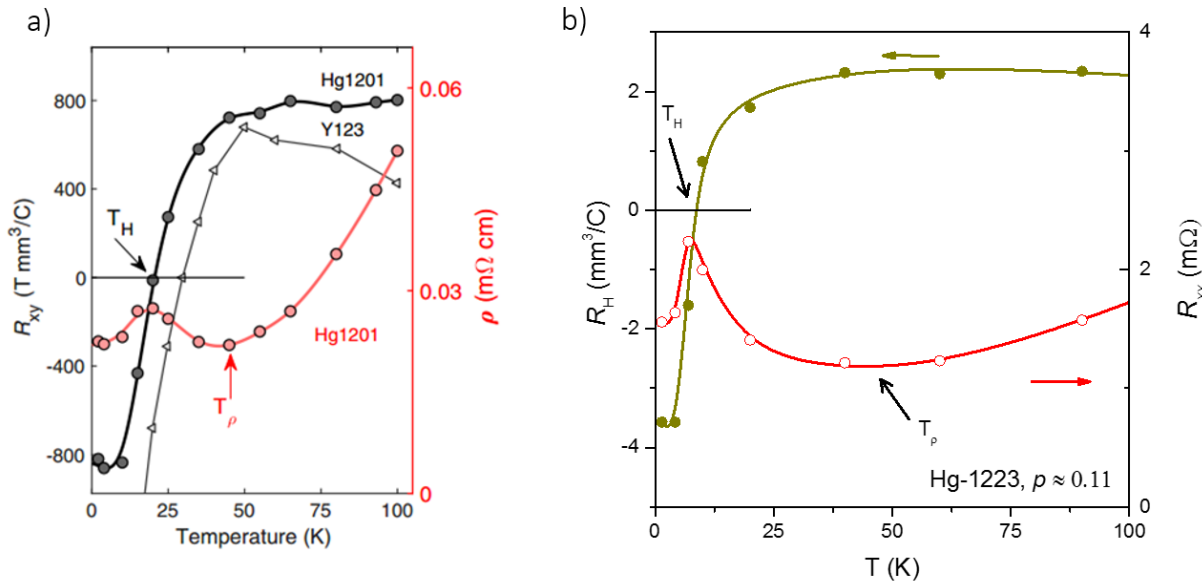


FIGURE 6.4 – **a)** Pic caractéristique de l’ouverture d’un gap à la température T_ρ sur les données de magnétorésistances de Hg-1201 $p = 9 \%$ [85]. **b)** Un pic similaire est visible sur les données R_{xx} de Hg-1223 ($p = 11 \%$) mesurées dans l’état normal.

Cette tendance se confirme par l’analyse de la partie oscillatoire après soustraction d’une monotone (figure 6.6.a) : l’amplitude des oscillations mesurée à 80 T (exprimée en Hz dans le cas de la technique TDO), passe de $\sim 12 \text{ kHz}$ à 4.2 K à $\sim 2 \text{ kHz}$ à 1.5 K. Cette chute d’amplitude est associée à un changement de la structure de la partie oscillatoire. À 4.2 K, la partie oscillatoire se compose d’une basse fréquence que nous pouvons estimer à environ 700 T dont l’amplitude diminue progressivement jusqu’à 1.5 K au profit d’une plus haute fréquence d’environ $\sim 2800 \text{ T}$.

Le changement de spectre s’opère graduellement en température et suit un comportement qui n’est pas décrit par la théorie de LK où l’amplitude des oscillations doit croître à mesure que la température diminue. Pour nous conforter dans le fait que nous mesurons bien des oscillations quantiques, nous constatons l’absence d’oscillation à 10 K mais aussi que la phase de la basse fréquence est constante en diminuant la température (même si son amplitude diminue), avec deux maxima autour de 72 T et 80 T.

Le spectre des oscillations quantiques nous permet de faire une analyse plus fine. À 4.2 K, on mesure une basse fréquence à $F_\alpha = 725 \pm 25 \text{ T}$ ainsi que son harmonique, dont l’amplitude décroît en diminuant la température (figure 6.6.b et 6.7). À 1.5 K, le spectre est toujours dominé par une basse fréquence que nous attribuons encore à la fréquence F_α et dont l’harmonique est encore visible, mais deux nouveaux pics, $F_\beta = 2000 \pm 200 \text{ T}$ et $F_\gamma = 2800 \pm 100 \text{ T}$ sont aussi présents (figure 6.6.b). L’analyse est compliquée par la faible amplitude des nouveaux pics (par rapport aux pics à basse fréquence) ainsi que par la plage de champ réduite disponible. De plus, nous ne pouvons pas exploiter l’algorithme de fit utilisé pour l’analyse

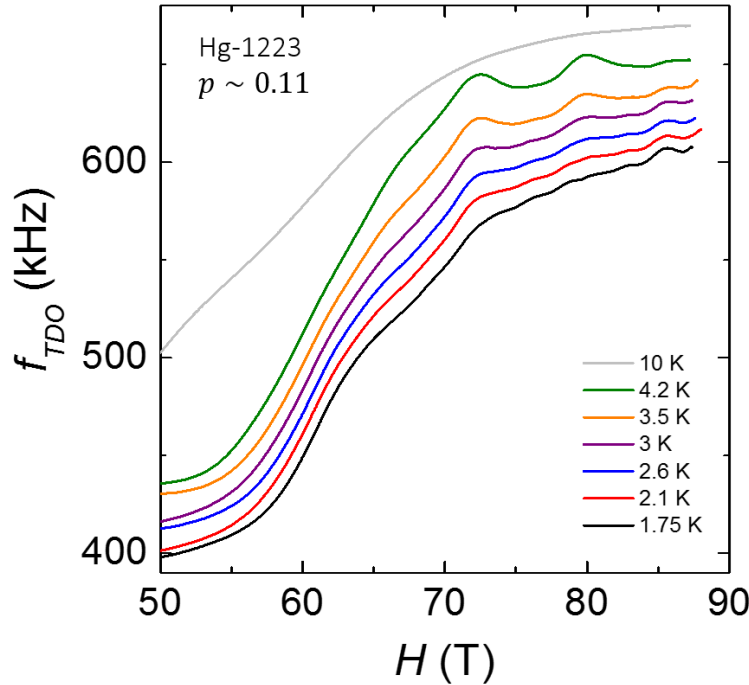


FIGURE 6.5 – Dépendance en champ de la fréquence de résonance du circuit TDO après démodulation hétérodyne pour l'échantillon à $p = 11\%$ à différentes températures.

des données du chapitre précédent car l'évolution en amplitude des oscillations avec la température ne suit pas la fonction décrite dans la théorie de LK. Nous avons reproduit ces mesures sur l'échantillon à plus faible dopage ($T_c = 95$ K, $p \sim 10\%$) montré sur la figure 6.8. Le même comportement est observé sur la dépendance en amplitude des oscillations : une basse fréquence $F_\alpha = 650 \pm 30$ T à 4.2 K voit son amplitude diminuer au profit de deux hautes fréquences à $F_\beta = 1910 \pm 30$ T et $F_\gamma = 2485 \pm 15$ T à basse température.

À ce dopage, le niveau de bruit était suffisamment faible pour observer également les oscillations quantiques sur les données de transport. D'abord, sur les mesures d'effet Hall où l'amplitude de l'oscillation basse fréquence est plus importante que le niveau de bruit à 4.2 K et au-delà de 70 T (figure 6.9.a). Puis sur les données de magnétorésistance (6.9.b) où la diminution graduelle de l'amplitude des oscillations s'observe clairement à 80 T passant de ~ 4 m Ω à 4.2 K à ~ 1 m Ω à 1.5 K. Le rapport d'amplitude est similaire à celui extrait des mesures TDO.

Les fréquences d'OQs pour les deux dopages sont résumées dans la table 6.2. Si elles sont proches, on constate qu'elles sont plus importantes d'environ 10% pour l'échantillon à $p = 11\%$ ($T_c = 108$ K) par rapport à celui à $p = 10\%$ ($T_c = 95$ K). Cette différence peut provenir de la différence de dopage entre les deux échantillons, aussi estimée à 10% par la loi de Tallon.

Nos mesures indiquent donc qu'une reconstruction de la surface de Fermi s'opère à basse température dans Hg-1223 sous-dopé dans la gamme de dopage $p = 10 - 11\%$. La signature

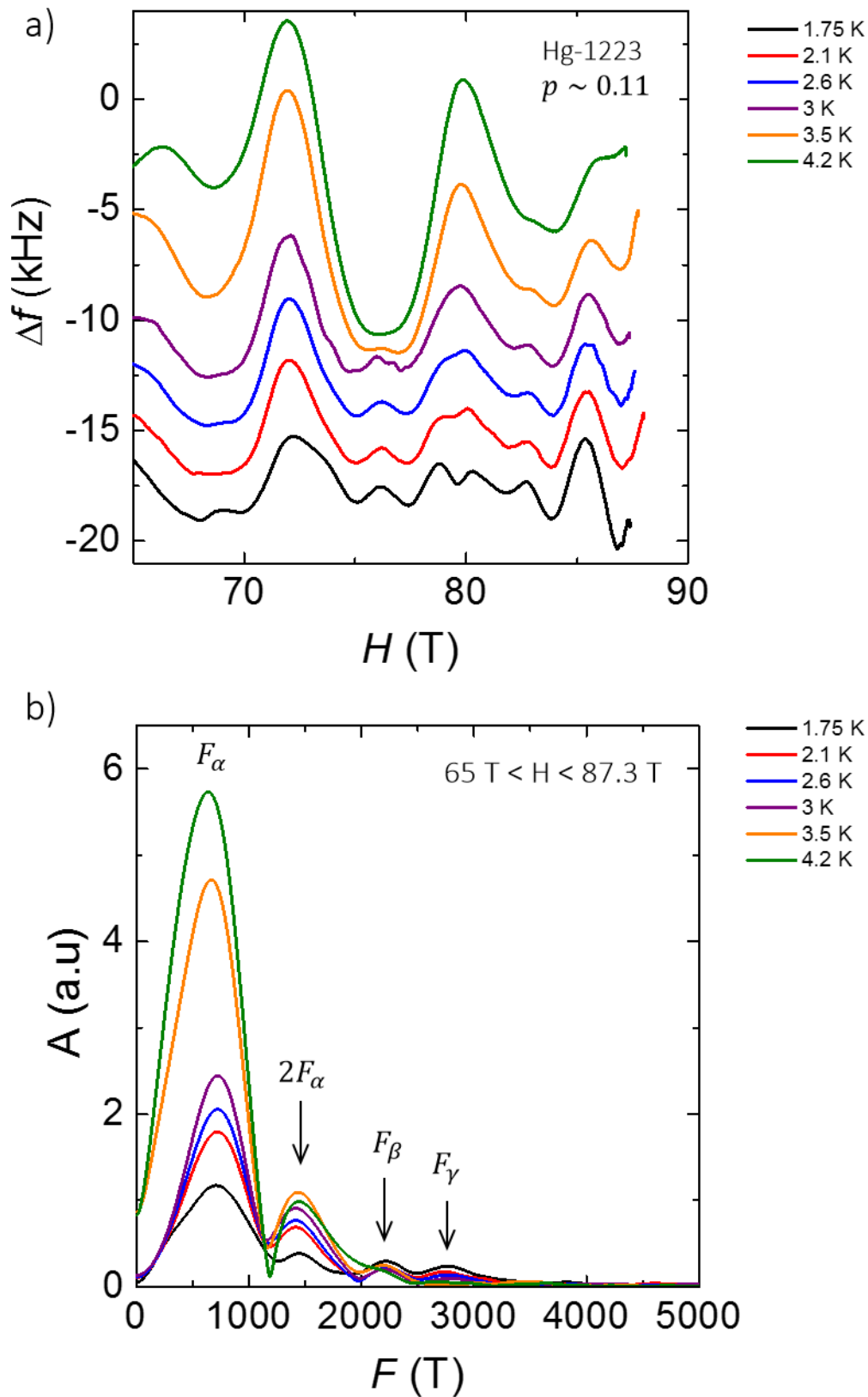


FIGURE 6.6 – a) Parties oscillatoires issues des courbes de la figure 6.5. En diminuant la température, l’amplitude de la basse fréquence décroît et laisse place à une plus haute fréquence. b) TFs des parties oscillatoires. Un changement du spectre est aussi observé avec la basse fréquence (~ 700 T) à 4.2 K qui est remplacée par une plus haute fréquence à 1.5 K, de l’ordre de 2000 - 2800 T.

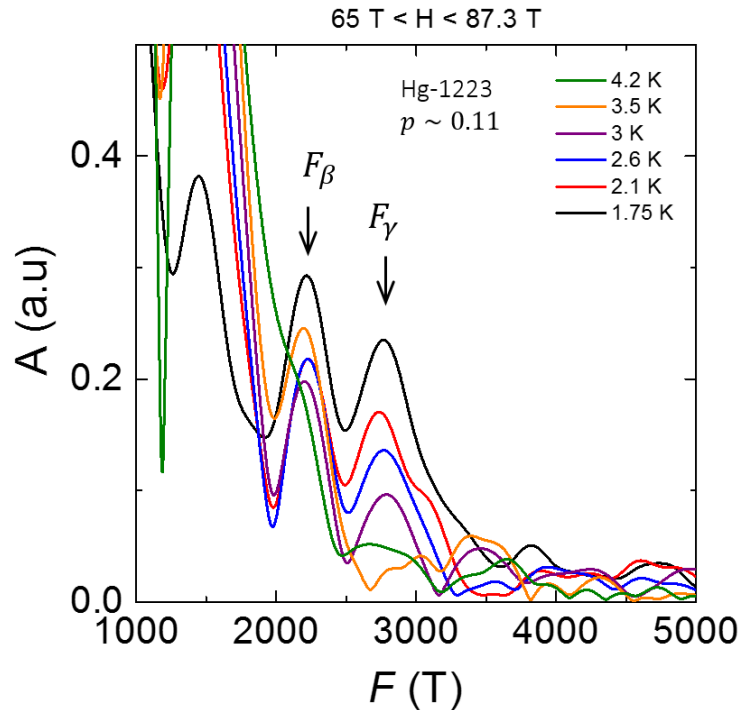


FIGURE 6.7 – Agrandissement de la transformée de Fourier des oscillations sur les plus hautes fréquences $F_\beta = 2000 \pm 200$ T et $F_\gamma = 2800 \pm 100$.

de cette reconstruction, d'abord mesurée sous la forme d'un changement de signe dans l'effet Hall à basse température s'accompagne d'une reconstruction du spectre des oscillations quantiques entre 4.2 K et 1.5 K.

C'est la première observation convaincante d'une transition de phase en fonction de la température dans un cuprate supraconducteur par mesure de transport et oscillations quantiques. Ces mesures sont donc l'occasion d'étudier des modèles de reconstruction en ayant des indications sur la surface de Fermi avant et après reconstruction.

6.2 Modèle de surface de Fermi

Je vais maintenant proposer des scénarios pour expliquer la reconstruction de la surface de Fermi. Je qualifierai de "haute température" la surface de Fermi à 4.2 K et de "basse température" celle à 1.5 K. Dans la suite, nous considérerons que le changement de signe de l'effet Hall et le changement du spectre des OQs sont les signatures de la même transition de phase.

6.2.1 Surface de Fermi haute température

D'abord, nous cherchons à décrire la surface de Fermi haute température. Les oscillations quantiques à 4.2 K indiquent qu'elle est composée de petites poches équivalentes à une

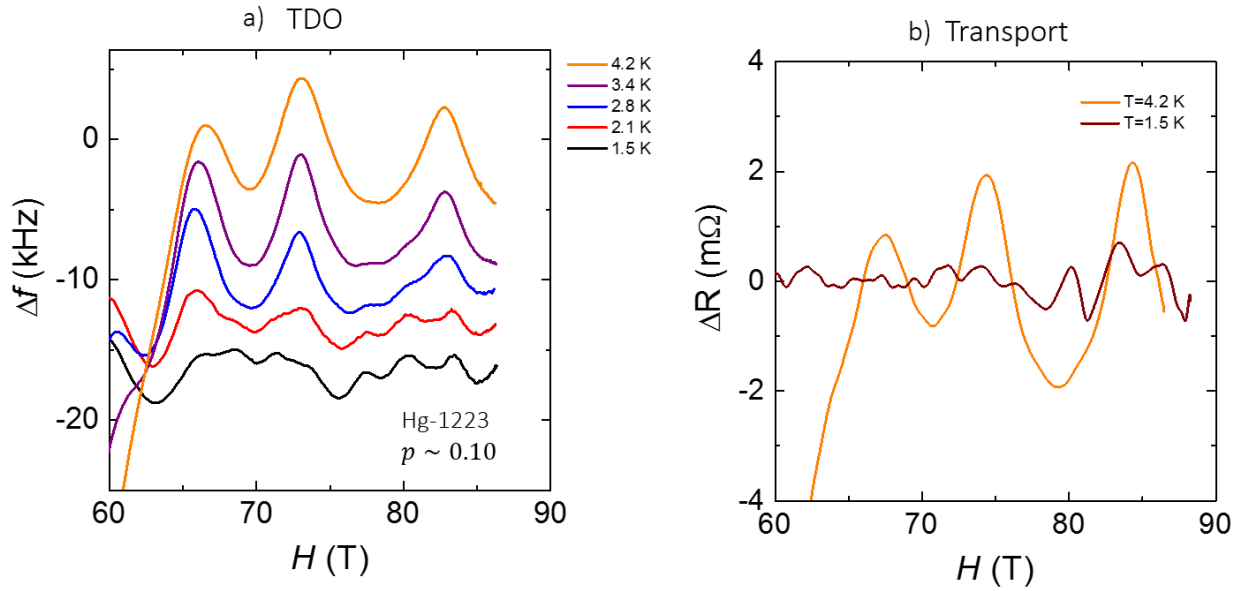


FIGURE 6.8 – Oscillations quantiques pour l'échantillon $p \sim 10\%$ en **a)** TDO et **b)** transport. Comme pour l'échantillon à $p \sim 11\%$, la partie oscillatoire change avec la température, passant d'une basse fréquence de forte amplitude à 4.2 K à une haute fréquence de plus faible amplitude à 1.5 K.

fréquence de $\sim 600 - 700$ T et de porteurs de type trous dont la mobilité domine les propriétés de transport (effet Hall positif).

La figure 6.10.a montre le nombre de Hall $n_h = \frac{1}{eR_H}$ (triangles rouges) mesuré à $T = 40$ K pour 4 échantillons à différents dopages de Hg-1223 étudiés en effet Hall dans ce travail de thèse. On constate que si l'on interprète le nombre de Hall comme une densité de porteur (modèle à 1 bande), celle-ci vaut environ p porteurs par plan CuO_2 dans la gamme de dopage étudiée. Si l'on convertit la fréquence d'oscillation à $T = 4.2$ K des échantillons $T_c = 95$ K ($F_\alpha = 650$ T) et $T_c = 108$ K ($F_\alpha = 725$ T) en densité de porteurs, on trouve aussi des valeurs proches de p porteurs par plan CuO_2 (étoiles rouges sur la fig. 6.10.a). Le nombre de Hall à haute température ainsi que les fréquences d'oscillations quantiques mesurées à $T = 4.2$ K correspondent à une densité de porteurs attendue en présence d'un ordre AFM. Elle suit à peu près la ligne $n = p$ comme indiquée par la ligne rouge de la figure 6.10.a.

6.2.2 Surface de Fermi basse température

Notre interprétation des données à 4.2 K semble indiquer la présence d'un ordre AFM dans le plan interne jusqu'à un dopage de $p \approx 11\%$ sous champ magnétique dans Hg-1223. La surface de Fermi résultante est décrite par deux poches de trous situés suivant les directions nodales. Nous allons maintenant proposer des modèles pour décrire la reconstruction de la surface de Fermi qui s'opère à basse température. Le modèle doit notamment expliquer la

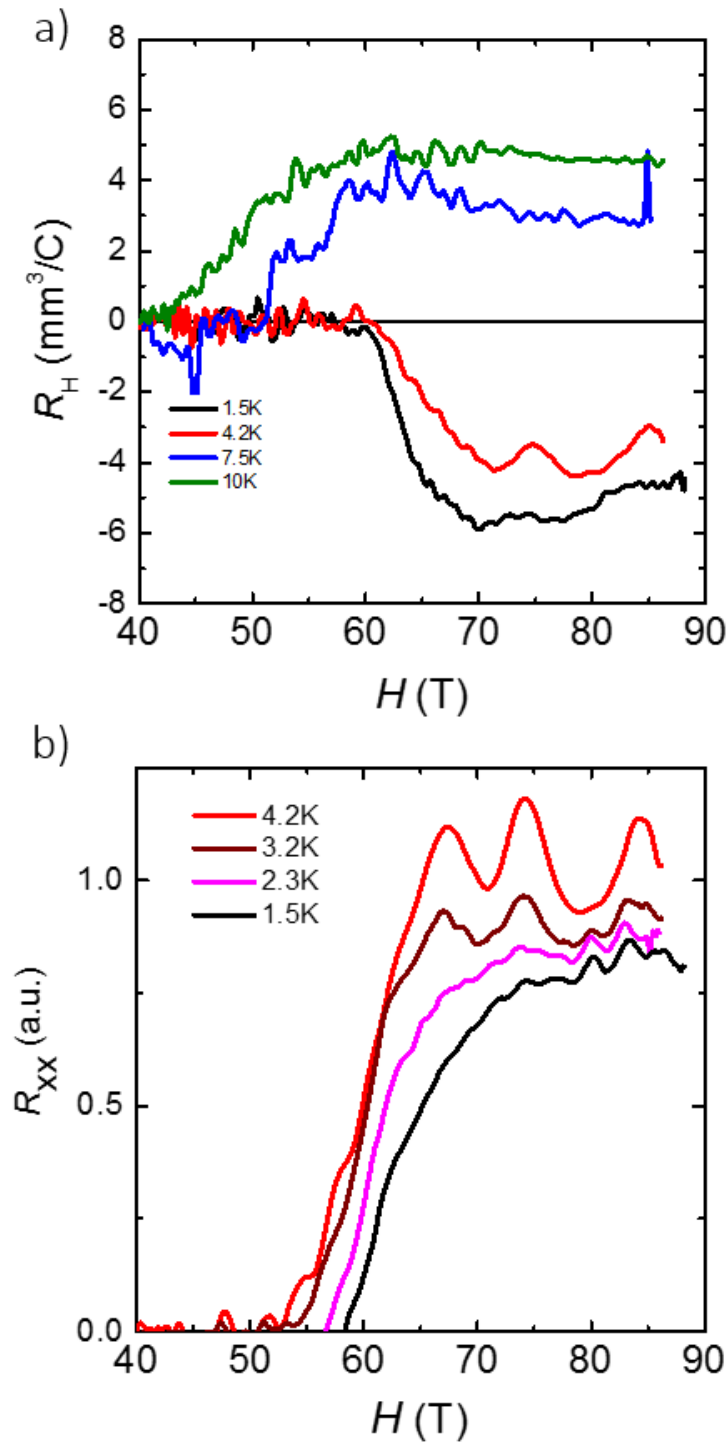


FIGURE 6.9 – **Transition de phase dans Hg-1223 p = 10%.** a) Changement de signe de l'effet Hall à basse température b) Oscillations quantiques (magnétorésistance). Les courbes sont normalisées à la valeur dans l'état normal à 4.2 K et décalées en y. La diminution d'amplitude de la fréquence lente au profit d'une fréquence rapide est perceptible. On constate que l'effet Hall change de signe à une température (~ 10 K) légèrement supérieure à celle correspondant au changement de spectre d'oscillations quantiques (entre 3 K et 1.5 K). C'est comme si l'effet Hall était sensible à transition de phase avant la reconstruction complète de la surface de Fermi.

Nom	Fréquence (kT)		Température
	$T_c = 95$ K	$T_c = 108$ K	
F_α	650 (30)	725 (25)	4.2 K
$2F_\alpha$	1210 (50)	1475 (25)	
F_β	1910 (30)	2000 (200)	1.5 K
F_γ	2485 (15)	2800 (100)	

TABLE 6.1 – Récapitulatif des fréquences mesurées en oscillations quantiques pour les deux échantillons de Hg-1223. Les fréquences de l'échantillon à 11% sont supérieures d'environ 10% par rapport au dopage de 10 %.

chute de l'effet Hall et l'apparition d'une haute fréquence supérieure à 2 kT.

Oscillations quantiques et ODC dans le plan interne

Considérons un modèle basé sur l'émergence d'un ODC biaxial à basse température qui reconstruit la surface de Fermi AFM. De telles reconstructions ont déjà été étudiées dans la littérature [200, 206, 207]. Avant reconstruction par l'ordre de charge (ODC), la surface de Fermi est constituée des deux petites poches de trous de $n = p$ porteurs (figure 6.11 a) suivant les régions nodales de la première zone de Brillouin, en accord avec nos données.

La reconstruction par un ODC biaxial a pour effet de translater les bandes d'un vecteur d'onde Q_{CDW} . Pour un choix de $Q_{CDW} = 0.33$ r.l.u [200], la surface de Fermi résultante est composée d'une petite poche d'électron dont la fréquence est estimée à $F_e \approx 500$ T (figure 6.11 b). À ce stade, ce scénario peut expliquer la chute de l'effet Hall à basse température, mais pas l'apparition des fréquences rapides de l'ordre de 2 kT. En effet, une poche de 2 kT correspond à une surface supérieure à celle de la 1ZB (représentée en pointillés jaunes sur la figure 6.12). Nous pouvons l'estimer avec la relation :

$$F_{1BZ}^{CDW+AFM} = \frac{Q_{CDW}^2}{2} \times F_{1BZ} \quad (6.1)$$

Avec $F_{1BZ} = 27.9$ kT. Pour $Q_{CDW} = 0.33$ r.l.u, l'aire correspondante vaut $F_{1BZ}^{CDW+AFM} \approx 1.5$ kT et est donc plus faible que l'aire correspondante aux fréquences mesurées à basse température.

Pour expliquer la haute fréquence, nous devons donc supposer que de la rupture magnétique se produit entre les poches d'électrons, comme représenté sur la figure 6.12.a. Un tel scénario de rupture magnétique entre les poches d'électrons formées par un ODC biaxial a récemment été discuté dans la réf. [208].

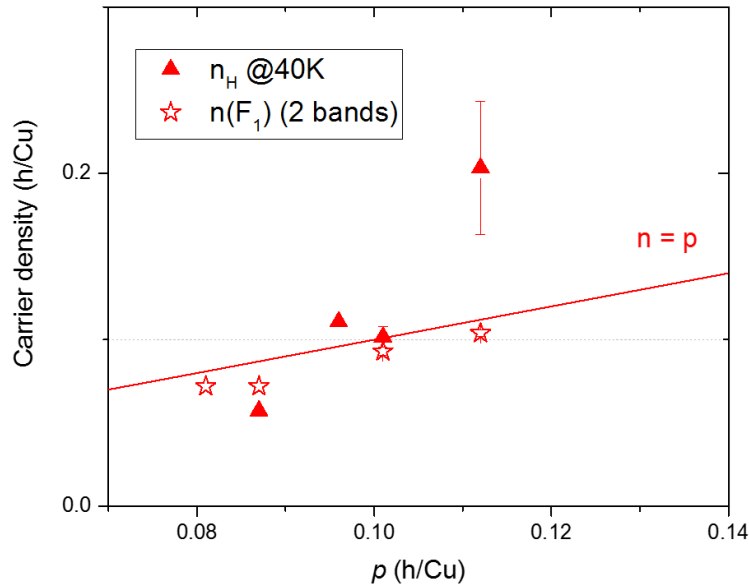


FIGURE 6.10 – Densité de porteurs n_h extraite à partir de l’effet Hall à $T = 40K$ dans 4 échantillons de Hg-1223 ($T_c = 74$ K, 88 K, 96 K et 108 K) et représentés en triangles rouges. La densité extraite à partir de la fréquence lente des oscillations quantiques est aussi représentée par des étoiles rouges, pour les deux échantillons $T_c = 96$ K et 108 K. L’évolution en dopage suit la ligne $n = p$.

En considérant de la rupture magnétique entre 4 poches d’électrons des zones de Brillouin voisines (pointillés bleu sur la figure 6.12.a), une orbite de type trou d’environ $F_h \approx 3$ kT peut apparaître (figure 6.12.b), ainsi que les combinaisons $F_{MB} = F_h - N \times F_e$ avec F_e correspondant aux poches d’électrons adjacentes à la poche de trou et N le nombre de poches d’électron contribuant à l’orbite de rupture magnétique.

La taille de l’orbite de trou peut être déterminée par des considérations géométriques et le théorème de Luttinger. À partir de la figure 6.12.a, on obtient :

$$F_h = 2 F_{1BZ}^{CDW+AFM} - F_e \quad (6.2)$$

En combinant avec l’équation (6.1), on en déduit :

$$F_h = Q_{CDW}^2 \times F_{1BZ} - F_e \quad (6.3)$$

Une détermination expérimentale de F_e (et donc de F_h) peut être déduite des travaux de rayons-X de Tabis *et al.* [135] (cf. chapitre 4, section 4.2.5). Les valeurs obtenues pour une reconstruction avec $Q_{CDW} = 0.33$ et $Q_{CDW} = 0.34$ sont résumées dans la table 6.2 . Pour ces choix de vecteurs d’ondes, la fréquence de trou provenant de la rupture magnétique est en accord avec la fréquence F_γ dans les deux échantillons. Les fréquences F_β peuvent aussi être retrouvées en invoquant de la rupture magnétique avec les poches d’électrons

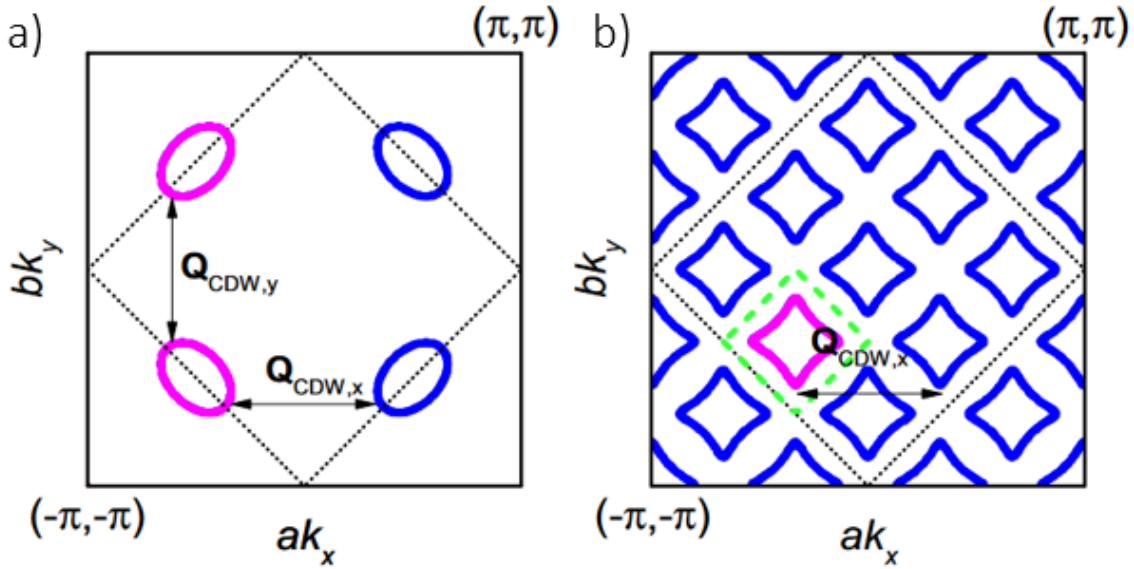


FIGURE 6.11 – a) Reconstruction de la surface de Fermi AFM par un ordre de charge biaxial de vecteur d'onde $Q_{CDW} = 0.33$. b) La surface de Fermi résultante est composée d'une petite poche d'électrons centrée sur la nouvelle 1ZB et de fréquence $F_e \approx 500$ T. La zone en pointillés jaunes représente la nouvelle première zone de Brillouin. [200]

voisines. Pour l'échantillon $T_c = 95$ K, la fréquence F_β peut être alors associée à la fréquence $F_h - F_e = 1970$ T et pour l'échantillon $T_c = 108$ K à la fréquence $F_h - 2F_e = 2060$ T. Ce

Q_{CDW} (r.l.u)	F_h (T)	F_e (T)
0.34	2800	370
0.33	2450	480

TABLE 6.2 – Fréquences de trous (F_h) issues de la rupture magnétique (orbite rouge de la figure 6.12.b) et d'électrons (F_e) obtenues dans le cas d'une reconstruction de type AFM + CDW pour deux valeurs de vecteurs d'onde. Les valeurs de F_h sont en bon accord avec la fréquence F_γ mesurée dans les 2 échantillons.

modèle basé sur la de rupture magnétique permet donc d'expliquer les fréquences rapides ainsi que l'effet Hall négatif. Il possède cependant des imperfections. En effet, des poches d'électrons correspondantes à des fréquences de l'ordre de 400 - 500 T ne sont pas en accord avec nos données à basse température. De plus, aux vecteurs d'ondes considérés, les poches d'électrons sont relativement petites par rapport à la taille de la première zone de Brillouin rendant moins probable la rupture magnétique entre les poches.

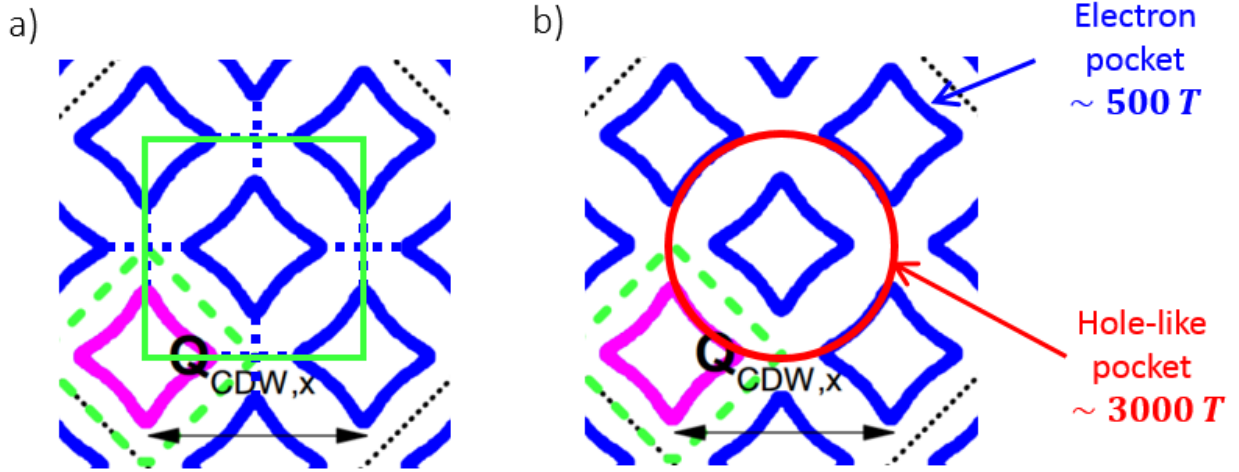


FIGURE 6.12 – **a)** Poches d'électrons formées par une reconstruction de type AFM + ODC (identiques à celles de la figure 6.11). La délimitation en traits pleins verts vaut $2F_{1BZ}^{CDW+AFM}$. Les pointillés représentent les chemins de rupture magnétique entre les orbites d'électrons. **b)** Formation d'une orbite de 2000 T - 2800 T (orbite rouge) de type trous (F_h) par rupture magnétique entre les poches d'électrons. La présence de cette orbite rend possible l'observation des combinaisons d'orbites $F_h - NF_e$, avec F_e correspondant aux poches d'électrons voisines (illustrations adaptée de [200]).

ODC sur les 3 plans

À plus faible dopage ($p = 8 - 9\%$), nous avons proposé dans le chapitre précédent un scénario basé sur de la coexistence entre un ODC biaxial sur les plans externes, et un ordre l'AFM sur le plan interne. Considérons maintenant qu'un ODC biaxial se développe dans les trois plans.

La surface de Fermi correspondante a déjà été discutée dans le chapitre précédent et est représentée en figure 6.13. Elle est composée de deux poches d'électrons associées à chaque plan² et nous permet donc, dans un premier temps, d'expliquer l'effet Hall négatif. Dans le cas de la reconstruction de la figure 6.13.a, où le vecteur d'onde choisi vaut $Q_{CDW} = 0.275$ r.l.u. (en accord avec les données de rayon-X de Hg-1201), la taille de la première zone de Brillouin est estimée à :

$$F_{1BZ}^{CDW} = 0.275^2 \times 27900kT \approx 2100kT$$

2. En supposant des poches de tailles équivalentes sur chaque plan et pour un t_{\perp} non nul, on s'attend à une surface de Fermi proche de celle présentée en figure 6.13. Elle serait alors formée des bandes liantes et antiliantes provenant de l'hybridation des deux poches (cf. chapitre 4, section 4.2.5).

La taille de la première zone de Brillouin est donc supérieure à la taille de la poche F_γ , mais peut éventuellement expliquer la présence de la fréquence F_β .

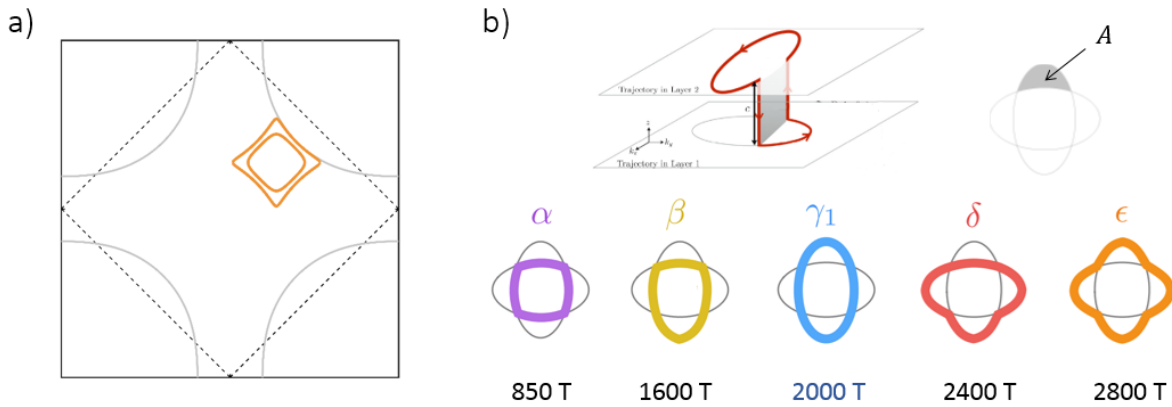


FIGURE 6.13 – **a)** Surface de Fermi de Hg-1223 dans un scénario d'ordre de charge biaxial dans tous les plans de la cellule unitaire. Elle est alors composée de deux poches d'électrons associées à chacun des plans (IP et OPs). Pour la reconstruction, nous avons utilisé les vecteurs d'ondes $Q_{CDW} = 0.275$ r.l.u et un potentiel d'ordre de charge $V_{CDW} = 0.075$ eV. **b)** Fréquences obtenues dans un scénario de rupture magnétique entre les plans à partir du modèle de la réf. [159].

Afin d'expliquer des fréquences plus grandes que la première zone de Brillouin, considérons maintenant de la rupture magnétique entre les plans CuO_2 . Nous avons utilisé le modèle développé proposé par Kivelson [159] et dont les orbites sont rappelées en figure 6.13. Dans ce modèle, les poches d'électrons associées à chaque plan correspondent à la fréquence γ_1 que nous fixons ici égale à 2000 T. C'est la principale limitation de ce modèle. En effet, comme discuté dans la réf. [135], dans un scénario de reconstruction par un ordre biaxial, la poche d'électrons passe une singularité de Van Hove lorsque sa fréquence dépasse ~ 900 T pour former une poche de trous. Dans un tel scénario, la surface de Fermi se composerait alors d'une poche de trou donnant un effet Hall positif, en désaccord avec nos données. Cependant, il ne faut pas oublier qu'un traitement quantique du système tricouche avec des plans internes et externes non équivalents et un couplage intraplan, ne va pas nécessairement donner les mêmes résultats qu'un système bicouche. Des calculs théoriques précis sont donc nécessaires pour pouvoir conclure quant à ce scénario de rupture magnétique entre les plans.

Reconstruction de la surface du Fermi du pseudogap dans un modèle YZR ou FL*

Le dernier scénario que je souhaite discuter est le scénario de reconstruction par un ODC biaxial de la surface de Fermi du pseudogap décrite par le modèle Yang Zhang Rice (YZR) [184] ou FL* [181]. Dans ce modèle, la SF du pseudogap est constituée de 4 poches de trou

identiques aux antinoeuds de densité totale de porteurs égale à p et qui correspondent à une fréquence appelée F_γ (figure 6.14) [209]. Les deux modèles FL* et YZR n'associent pas de brisure de symétrie à la phase pseudogap donc la zone de Brillouin garde sa taille originale et la surface des poches γ est contrainte par la formule :

$$S_\gamma/S_{BZ} = p/8 \quad (6.4)$$

La reconstruction proposée par les auteurs se limite aux premières translations des bandes par le vecteur d'onde Q_{CDW} , définissant ainsi une première zone de Brillouin différente de celle décrite précédemment. Elle est représentée en gris sur la figure 6.14³. La surface de Fermi résultante est composée d'une poche d'électron α formée par les états de la face interne de la poche γ , et d'une grande poche de trou, appelée β , formée par l'autre face de la poche γ . On remarque que la poche d'électron est similaire à celle déjà discutée dans les scénarios précédents. La taille des deux poches est liée au dopage et contrainte par la relation :

$$2(S_\beta - S_\alpha) = pS_{BZ} \quad (6.5)$$

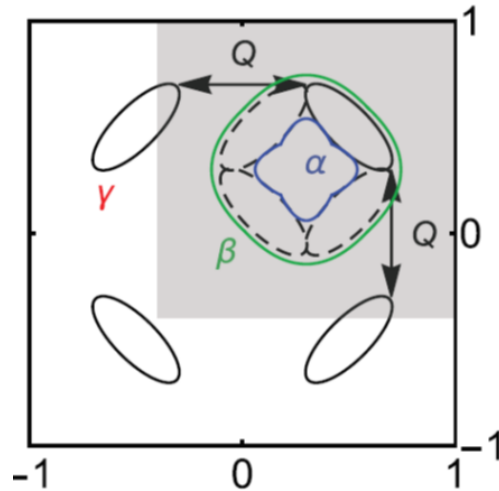


FIGURE 6.14 – Reconstruction de la surface de Fermi du pseudogap dans un scénario YZR par un ordre de charge biaxial. Avant reconstruction, la surface de Fermi est composée de 4 poches de trous de densité totale p . La reconstruction génère une poche d'électron α en forme de diamant ainsi qu'une grande poche de trou β (d'après [209]).

En considérant la poche γ correspondant à $F_\gamma = 350$ T et la poche α à $F_\alpha = 850$ T, la fréquence β s'estime à $F_\beta = 2200$ T. Cette valeur est proche des fréquences rapides mesurées à basse température sur nos données. Ce modèle ne permet cependant pas de reproduire toutes nos signatures expérimentales. En effet, nous ne mesurons pas la fréquence γ à haute

3. Ce type de reconstruction ne prenant en compte que les premières translations des états est aussi décrite, par exemple dans [206].

température : les fréquences mesurées à 4.2 K sont de l'ordre de 700 T, et plutôt en accord avec des poches de trou dans un ordre AFM. Ensuite, la poche α doit ici être contrainte à 850 T pour obtenir des hautes fréquences en accord avec nos mesures. Or, il est difficile de dire si une telle fréquence est présente à basse température : à 1.5 K, la fréquence F_α est toujours celle qui domine le spectre des OQ et la faible fenêtre de champ empêche de résoudre une éventuelle fréquence à 850 T.

Conclusion

Dans ce chapitre, j'ai présenté de nouvelles mesures d'effet Hall et d'oscillations quantiques dans Hg-1223 dans la gamme de dopage $p = 10 - 11$ %. Nos données indiquent qu'une transition de phase a lieu à basse température, caractérisée par un changement de signe de l'effet Hall associé à un changement drastique du spectre des oscillations quantiques. L'état normal à basse température est alors caractérisé par un effet Hall négatif associé à des fréquences d'oscillations quantiques rapides, supérieures à 2 kT. J'ai discuté l'origine des fréquences observées et le changement de signe de l'effet Hall dans trois scénarios de reconstruction de la surface de Fermi. Bien que chaque scénario permette d'expliquer une partie des données, des investigations théoriques plus poussées sont nécessaires pour prendre en compte, par exemple, les effets de la structure 3 plans.

Conclusion générale

Dans ce manuscrit de thèse, j'ai présenté nos résultats de mesures de surface de Fermi de supraconducteurs non-conventionnels sous champs magnétiques intenses. Les mesures d'oscillations quantiques ont été réalisées grâce à la technique de mesure sans contact TDO. L'amélioration et la fiabilisation de cette technique nous a permis d'observer de nouvelles fréquences dans le spectre des OQs de Sr_2RuO_4 provenant de phénomènes d'interférences quantiques (cf. chapitre 3). Dans la seconde partie de ce manuscrit, j'ai présenté une étude du cuprate Hg-1223 sous-dopé en TDO et effet Hall qui a permis de mesurer sa surface de Fermi dans la gamme de dopage $p = 8-11\%$.

Antiferromagnétisme

Les deux techniques utilisées pour mesurer l'état normal de Hg-1223 sous dopé nous permettent d'avancer qu'un ordre AFM se développe jusqu'à $p \sim 11\%$ dans le plan interne et coexiste avec un ODC qui se trouve dans le plan externe. L'effet Hall est positif dans la gamme de dopage $8-11\%$ dans la limite $T \rightarrow 0$ pour les échantillons à 8 et 9% et jusqu'à 20 K pour ceux à 10 et 11% . La dépendance en dopage du nombre de Hall n_H indique que dans un modèle simple où $n = n_H$, la concentration suit la ligne $n = p$ (triangles rouges sur la figure 6.15) comme attendu pour un ordre AFM. Ensuite, nos mesures d'oscillations quantiques ont systématiquement révélé la présence de fréquence dont l'aire équivalente correspond aux poches de trous d'un ordre AFM de vecteur de reconstruction (π, π) (figure 6.15). Les densités de porteurs déduites de ces fréquences suivent d'ailleurs la même dépendance en $n = p$ que l'effet Hall, comme attendu dans un tel scénario (étoiles rouges sur la figure 6.15).

La présence d'ordre AFM à fort dopage va dans le sens des études de RMN des composés mutiplans qui indiquent que l'ordre AFM est stabilisé à fort dopage par le couplage interplans [116]. Dans le composé tricouche 0223F, l'AFM est mesuré jusqu'à un $p \sim 9\%$ [116], mais dans Hg-1223 notre travail montre qu'il persiste au moins jusqu'à 11% . Il n'est cependant pas exclu que dans notre cas, l'AFM soit stabilisé par les forts champs magnétiques mis en jeu dans les expériences.

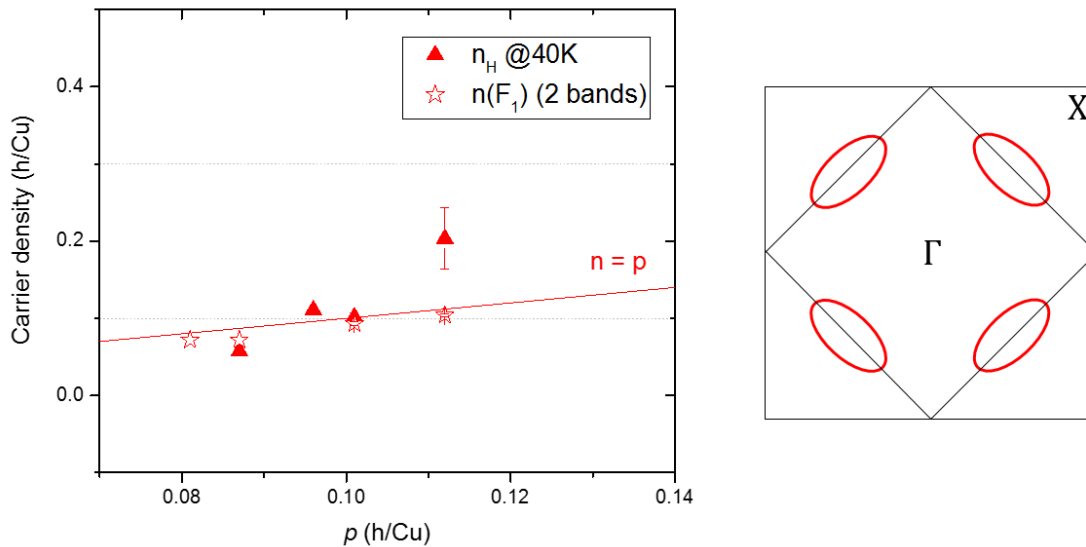


FIGURE 6.15 – Évolution de la densité de porteurs en fonction du dopage dans Hg-1223 à partir des mesures d’effet Hall (triangles rouges) et des oscillations quantiques (étoiles rouges). Les points de mesures suivent la ligne $n = p$, comme attendu pour un ordre AFM. La surface de Fermi déduit de nos mesures est représentée sur la droite.

Ordre de Charge

À plus fort dopage ($p \sim 10-11\%$), nos mesures semblent indiquer qu’un ordre de charge se développe à plus basse température. On peut donc parler de compétition entre ODC et AFM qui s’observe nettement sur nos mesures d’oscillations quantiques discutées dans le chapitre 6. Nous ne sommes pas en mesure de définir clairement la surface de Fermi résultante, mais tout porte à croire qu’elle provient d’une reconstruction par un ordre de charge, comme observé dans YBCO et Hg-1201.

Cette interprétation s’appuie sur les données d’effet Hall, présentées dans le chapitre 6, qui montrent qu’un changement de signe de R_H s’opère à basse température aux dopages où nous mesurons la reconstruction du spectre des OQs (figure 6.16). Dans YBCO et Hg-1201, le changement de signe de R_H à dopage équivalent est attribué à l’ordre de charge. Dans Hg-1223, la chute de R_H se produit à une température plus faible et de manière plus soudaine (figure 6.16), ce qui explique peut-être pourquoi nous sommes en mesure de voir la transition en fonction de la température sur les données d’oscillations quantiques. Dans Hg-1201 et YBCO, la reconstruction de la surface de Fermi est comprise à partir d’un scénario d’ODC biaxial, mais nos résultats indiquent que ce scénario ne suffit pas à lui seul pour expliquer les hautes fréquences mesurées dans Hg-1223, à moins d’invoquer des phénomènes de rupture magnétique. Il est cependant clair que notre interprétation est limitée par la complexité de la structure de Hg-1223 et notamment par la différence de dopage entre les plans.

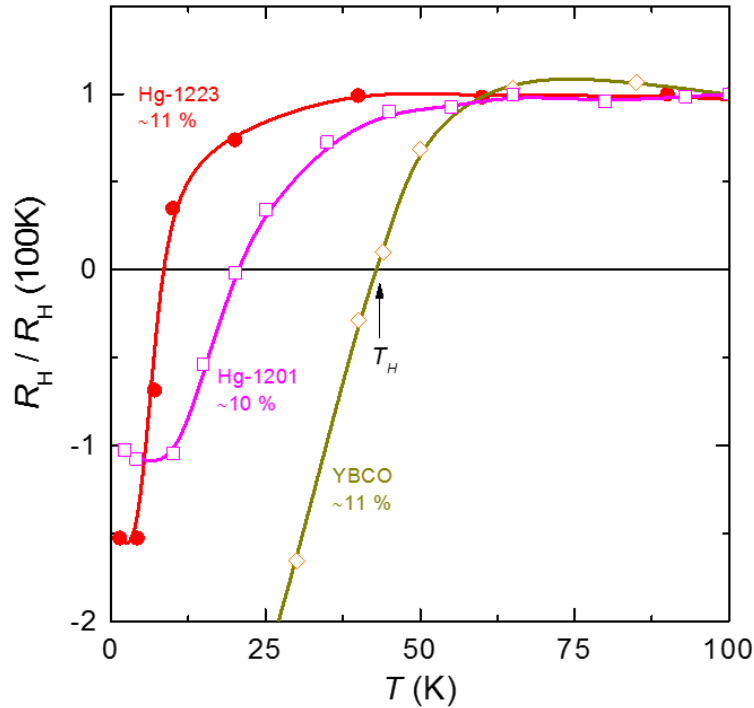


FIGURE 6.16 – Comparaison des dépendances en température de R_H (normalisée à $R_H(100\text{ K})$) dans l'état normal pour Hg-1223, YBCO et Hg-1201. Pour Hg-1223, le signe de R_H change à $T_H \sim 8\text{ K}$, une température plus basse que pour Hg-1201 ($T_H \sim 20\text{ K}$) et YBCO ($T_H \sim 40\text{ K}$). Cette différence peut expliquer pourquoi nous sommes en mesure d'observer la transition en oscillations quantiques dans Hg-1223. Les données de Hg-1201 proviennent de la réf. [85].

Effet de la différence de dopage

En effet, une des difficultés de ce travail de thèse a été d'interpréter les données connaissant la différence de dopage inhérente à la structure 3 couches de Hg1223. Il est d'ailleurs intéressant de comparer les spectres d'oscillations quantiques des cuprates monocouche Hg-1201, bicouche YBCO (à un dopage où l'ODC est établie) au composé tricouche Hg-1223 à dopage équivalent. Dans Hg-1201, le spectre se compose d'une fréquence unique qui proviendrait de la poche d'électron de l'ordre de charge. Dans le composé bicouche YBCO, le spectre est plus complexe et est composé d'un pic central et de deux pics satellites. Ces derniers sont expliqués par la prise en compte de la rupture magnétique entre les poches d'électron de chacun des plans de la cellule unité. Dans Hg1223, la structure du spectre de Fourier composé de fréquences inégalement espacées est difficile à expliquer en ne considérant que la rupture magnétique. Il nous a donc semblé nécessaire de prendre en compte la différence de dopage entre le plan interne et les plans externes dans une interprétation basée sur de la coexistence entre les phases (chapitre 6).

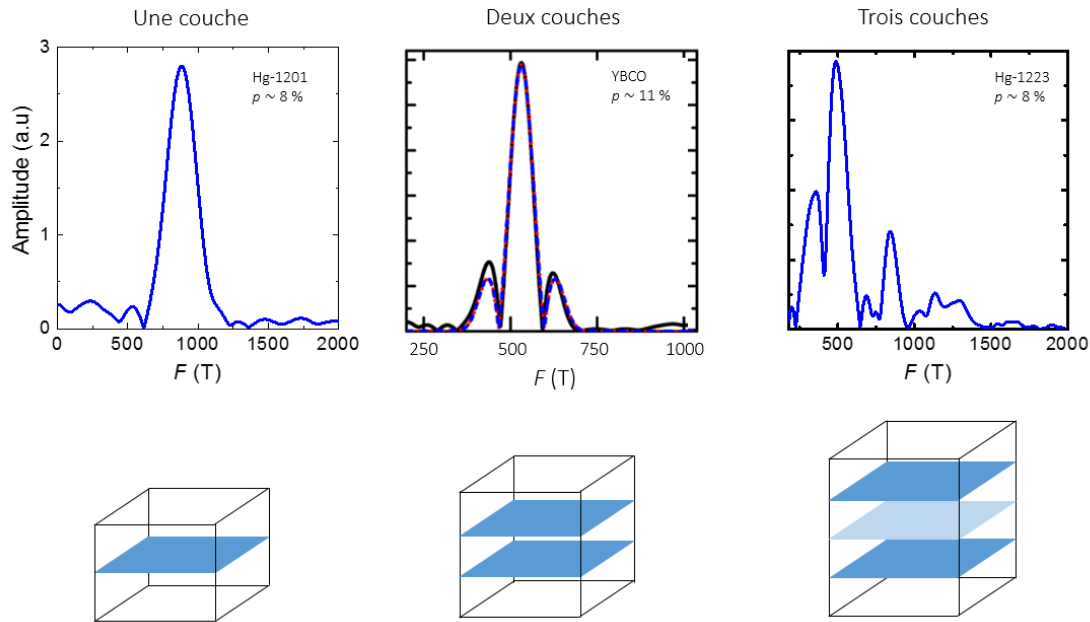


FIGURE 6.17 – Spectres d’oscillations quantiques de 3 cuprates sous-dopés qui diffèrent par leur nombre de couches par cellule unité. Pour le cuprate monocouche Hg-1201, le spectre se compose d’une fréquence unique (poche d’électron). Pour le composé bicouche YBCO [147], le spectre est composé d’un pic central et de deux pics satellites en raison de la rupture magnétique. Dans le composé tricouche Hg1223, la structure du spectre de Fourier est composé de fréquences inégalement espacées. Cette structure nous amène à proposer des scénarios de reconstruction basés sur la différence de dopage entre les couches (illustration).

Dans le composé 5 plans 0245F, la visualisation des poches de l’AFM et des arcs de Fermi dans le même échantillon montre que la phase AFM et le pseudogap peuvent coexister [120]. Dans Hg1223, nos mesures à plus fort dopage ($p = 8-9\%$) que l’étude de la réf. [120] suggèrent que l’AFM peut aussi coexister avec l’ordre de charge. Il est cependant clair que notre interprétation est limitée par la complexité de la structure de Hg1223 qui nécessiterait des calculs plus avancés que ceux présentés dans les chapitres 5 et 6, où le couplage interplan a été négligé.

Pour conclure, les récentes études de la surface de Fermi des cuprates multicouches [116, 120], incluant ce travail de thèse, démontrent que ces systèmes peuvent apporter des informations pertinentes dans l’étude de la supraconductivité à haute température critique. D’abord, leurs plans propres et homogènes sont particulièrement adaptés aux mesures de la surface de Fermi par oscillations quantiques. Ensuite, ces composés favorisent la coexistence/compétition entre les phases dont le rôle dans le mécanisme de la supraconductivité est encore débattu. Ces considérations appellent à poursuivre les recherches expérimentales et théoriques dans les cuprates multicouches.

Bibliographie

- [1] F. LONDON, H. LONDON et F. A. LINDEMANN, Proceedings of the Royal Society of London. Series A - Mathematical and Physical Sciences **149**, 71 (1935).
- [2] I. YOUSEPT, SIAM Journal on Control and Optimization **55**, 2305 (2017).
- [3] B. S. DEEVER JR et W. M. FAIRBANK, Physical Review Letters **7**, 43 (1961).
- [4] E. MAXWELL, Physical Review **78**, 477 (1950).
- [5] W. CORAK, B. GOODMAN, C. SATTERTHWAITTE et A. WEXLER, Physical Review **102**, 656 (1956).
- [6] L. N. COOPER, Physical Review **104**, 1189 (1956).
- [7] J. F. ANNETT, Contemporary Physics **36**, 423 (1995).
- [8] P. TOWNSEND et J. SUTTON, Phys. Rev. **128**, 591 (1962).
- [9] H. A. LEUPOLD et H. A. BOORSE, Phys. Rev. **134**, A1322 (1964).
- [10] J. NAGAMATSU, N. NAKAGAWA, T. MURANAKA, Y. ZENITANI et J. AKIMITSU, nature **410**, 63 (2001).
- [11] W. MCMILLAN, Physical Review **167**, 331 (1968).
- [12] F. STEGLICH, J. AARTS, C. BREDL, W. LIEKE, D. MESCHÉDE, W. FRANZ et H. SCHÄFER, Physical Review Letters **43**, 1892 (1979).
- [13] D. JÉROME, A. MAZAUD, M. RIBAUT et K. BECHGAARD, Journal de Physique Lettres **41**, 95 (1980).
- [14] J. G. BEDNORZ et K. A. MÜLLER, Zeitschrift für Physik B Condensed Matter **64**, 189 (1986).
- [15] M.-K. WU, J. R. ASHBURN, C. TORNG, P.-H. HOR, R. L. MENG, L. GAO, Z. J. HUANG, Y. WANG et a. CHU, Physical review letters **58**, 908 (1987).
- [16] Y. MAENO, H. HASHIMOTO, K. YOSHIDA, S. NISHIZAKI, T. FUJITA, J. BEDNORZ et F. LICHTENBERG, nature **372**, 532 (1994).
- [17] Y. KAMIHARA, T. WATANABE, M. HIRANO et H. HOSONO, Journal of the American Chemical Society **130**, 3296 (2008).

- [18] D. LI, K. LEE, B. Y. WANG, M. OSADA, S. CROSSLEY, H. R. LEE, Y. CUI, Y. HIKITA et H. Y. HWANG, *Nature* **572**, 624 (2019).
- [19] B. KEIMER, S. A. KIVELSON, M. R. NORMAN, S. UCHIDA et J. ZAAANEN, *Nature* **518**, 179 (2015).
- [20] P. HIRSCHFELD, M. KORSHUNOV et I. MAZIN, *Reports on Progress in Physics* **74**, 124508 (2011).
- [21] L. TAILLEFER, *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* **1**, 51 (2010).
- [22] M. IMADA, A. FUJIMORI et Y. TOKURA, *Rev. Mod. Phys.* **70**, 1039 (1998).
- [23] C. BERGEMANN, “Magnetic effects in unconventional superconductors”, thèse de doct. (University of Cambridge, 1999).
- [24] S. NISHIZAKI, Y. MAENO et T. FUJITA, *Journal of the Physical Society of Japan* **65**, 1876 (1996).
- [25] L. D. LANDAU, *Soviet Physics JETP-USSR* **3**, 920 (1957).
- [26] M. EL-BATANOUNY, *Advanced Quantum Condensed Matter Physics: One-Body, Many-Body, and Topological Perspectives* (Cambridge University Press, 2020).
- [27] G. D. MAHAN, *Many-particle physics* (Springer Science & Business Media, 2013).
- [28] A. J. SCHOFIELD, *Contemporary Physics* **40**, 95 (1999).
- [29] K. KADOWAKI et S. WOODS, *Solid state communications* **58**, 507 (1986).
- [30] G. GRUNER, *Density waves in solids* (CRC press, 2018).
- [31] P. MONCEAU, *Advances in Physics* **61**, 325 (2012).
- [32] J. M. ZIMAN, *Principles of the Theory of Solids* (Cambridge university press, 1972).
- [33] J. LEVALLOIS, “Oscillations quantiques et magnéto-transport dans des systèmes à fortes corrélations électroniques”, thèse de doct. (Université Paul Sabatier-Toulouse III, 2008).
- [34] N. W. ASHCROFT et N. D. MERMIN, *Solid state physics* (Cengage Learning, 2022).
- [35] B. K. KERDI, “Transport quantique des trous dans une monocouche de WSe₂ sous champ magnétique intense”, thèse de doct. (Toulouse 3, 2021).
- [36] L. SHUBNIKOV et W. de HAAS, in *Proc. Netherlands Roy. Acad. Sci.*, t. 33 (1930), p. 363.
- [37] L. LANDAU, *Zeitschrift für Physik* **64**, 629 (1930).
- [38] D. SHOENBERG, *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences* **255**, 85 (1962).

- [39] S. BADOUX, “Propriétés de l’état normal des cuprates sous-dopés sous champ magnétique intense”, thèse de doct. (Université de Toulouse, Université Toulouse III-Paul Sabatier, 2014).
- [40] C. BERGEMANN, A. MACKENZIE, S. JULIAN, D. FORSYTHE et E. OHMACHI, *advances in Physics* **52**, 639 (2003).
- [41] A. AUDOUARD, C. JAUDET, D. VIGNOLLES, R. LIANG, D. BONN, W. HARDY, L. TAILLEFER et C. PROUST, *Physical Review Letters* **103**, 157003 (2009).
- [42] M. H. COHEN et L. FALICOV, *Physical Review Letters* **7**, 231 (1961).
- [43] E. BLOUNT, *Physical Review* **126**, 1636 (1962).
- [44] R. CHAMBERS, *Proceedings of the Physical Society (1958-1967)* **88**, 701 (1966).
- [45] M. VAN DELFT, S. PEZZINI, T. KHOURI, C. MÜLLER, M. BREITKREIZ, L. M. SCHOOP, A. CARRINGTON, N. HUSSEY et S. WIEDMANN, *Physical review letters* **121**, 256602 (2018).
- [46] A. B. PIPPARD, *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences* **270**, 1 (1962).
- [47] R. STARK et C. FRIEDBERG, *Journal of Low Temperature Physics* **14**, 111 (1974).
- [48] P. KAPITZA, *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character* **105**, 691 (1924).
- [49] J. BÉARD, J. BILLETTE, N. FERREIRA, P. FRINGS, J.-M. LAGARRIGUE, F. LECOUTURIER et J.-P. NICOLIN, *IEEE Transactions on Applied Superconductivity* **28**, 1 (2017).
- [50] S. LEPAULT, “Étude de la reconstruction de la surface de Fermi des cuprates supraconducteurs dopés en trous”, thèse de doct. (Université de Toulouse, Université Toulouse III-Paul Sabatier, 2013).
- [51] L. ESAKI, *Physical review* **109**, 603 (1958).
- [52] C. T. VAN DEGRIFT, *Review of Scientific Instruments* **46**, 599 (1975).
- [53] T. COFFEY, Z. BAYINDIR, J. DECAROLIS, M. BENNETT, G. ESPER et C. AGOSTA, *Review of Scientific Instruments* **71**, 4600 (2000).
- [54] E. OHMACHI, E. KOMATSU et T. OSADA, *Review of scientific instruments* **75**, 2094 (2004).
- [55] L. E. WINTER, “High frequency inductive measurements of organic conductors with the application of high magnetic fields and low temperatures”, thèse de doct. (The Florida State University, 2015).
- [56] L. DRIGO, F. DURANTEL, A. AUDOUARD et G. BALLON, *The European Physical Journal Applied Physics* **52**, 10401 (2010).

- [57] H. NAGAOKA, The journal of the College of Science, Imperial University of Tokyo, Japan= ., 1 (1909).
- [58] K. ADITYA, Electrical Engineering **100**, 1819 (2018).
- [59] M. RABA, “Études de FeSe et CePt₂In₇ sous conditions extrêmes”, thèse de doct. (Université Grenoble Alpes, 2018).
- [60] G. GRISSONNANCHE, O. CYR-CHOINIÈRE, F. LALIBERTÉ, S. RENÉ DE COTRET, A. JUNEAU-FECTEAU, S. DUFOUR-BEAUSEJOUR, M.-E. DELAGE, D. LEBOEUF, J. CHANG, B. RAMSHAW et al., Nature communications **5**, 1 (2014).
- [61] A. MACKENZIE, S. JULIAN, A. DIVER, G. MCMULLAN, M. RAY, G. LONZARICH, Y. MAENO, S. NISHIZAKI et T. FUJITA, Physical review letters **76**, 3786 (1996).
- [62] A. P. MACKENZIE, S.-i. IKEDA, Y. MAENO, T. FUJITA, S. R. JULIAN et G. G. LONZARICH, Journal of the Physical Society of Japan **67**, 385 (1998).
- [63] F. LICHTENBERG, A. CATANA, J. MANNHART et D. SCHLOM, Applied physics letters **60**, 1138 (1992).
- [64] C. BERGEMANN, J. BROOKS, L. BALICAS, A. MACKENZIE, S. JULIAN, Z. MAO et Y. MAENO, Physica B: Condensed Matter **294**, 371 (2001).
- [65] C. BERGEMANN, S. JULIAN, A. MACKENZIE, S. NISHIZAKI et Y. MAENO, Physical review letters **84**, 2662 (2000).
- [66] M. HAVERKORT, I. ELFIMOV, L. TJENG, G. SAWATZKY et A. DAMASCELLI, Physical Review Letters **101**, 026406 (2008).
- [67] A. TAMAI, M. ZINGL, E. ROZBICKI, E. CAPPELLI, S. RICCÒ, A. DE LA TORRE, S. M. WALKER, F. Y. BRUNO, P. D. KING, W. MEEVASANA et al., Physical Review X **9**, 021048 (2019).
- [68] Y. YOSHIDA, A. MUKAI, R. SETTAI, K. MIYAKE, Y. INADA, Y. ŌNUKI, Y. AOKI et H. SATO, Journal of the Physical Society of Japan **68**, 3041 (1999).
- [69] E. J. ROZBICKI, J. F. ANNETT, J.-R. SOUQUET et A. P. MACKENZIE, Journal of Physics: Condensed Matter **23**, 094201 (2011).
- [70] M. KIM, J. MRAVLJE, M. FERRERO, O. PARCOLLET et A. GEORGES, Physical review letters **120**, 126401 (2018).
- [71] R. HOTT, R. KLEINER, T. WOLF et G. ZWICKNAGL, “Review on Superconducting Materials”, in *digital Encyclopedia of Applied Physics* (John Wiley & Sons, Ltd, 2016), p. 1-55.
- [72] A. DAMASCELLI, Z. HUSSAIN et Z.-X. SHEN, Rev. Mod. Phys. **75**, 473 (2003).
- [73] D. J. SCALAPINO, Rev. Mod. Phys. **84**, 1383 (2012).

- [74] H. A. JAHN et E. TELLER, Proceedings of the Royal Society of London. Series A-Mathematical and Physical Sciences **161**, 220 (1937).
- [75] N. M. PLAKIDA, in (2010).
- [76] L. F. MATTHEISS, Phys. Rev. Lett. **58**, 1028 (1987).
- [77] S. UCHIDA, T. IDO, H. TAKAGI, T. ARIMA, Y. TOKURA et S. TAJIMA, Phys. Rev. B **43**, 7942 (1991).
- [78] R. COLDEA, S. M. HAYDEN, G. AEPPLI, T. G. PERRING, C. D. FROST, T. E. MASON, S.-W. CHEONG et Z. FISK, Phys. Rev. Lett. **86**, 5377 (2001).
- [79] P. W. ANDERSON, Phys. Rev. **79**, 350 (1950).
- [80] V. J. EMERY, Phys. Rev. Lett. **58**, 2794 (1987).
- [81] F. C. ZHANG et T. M. RICE, Phys. Rev. B **37**, 3759 (1988).
- [82] M. PRESLAND, J. TALLON, R. BUCKLEY, R. LIU et N. FLOWER, Physica C: Superconductivity **176**, 95 (1991).
- [83] J. L. TALLON, C. BERNHARD, H. SHAKED, R. HITTERMAN et J. JORGENSEN, Physical Review B **51**, 12911 (1995).
- [84] C. PROUST et L. TAILLEFER, Annual Review of Condensed Matter Physics **10**, 409 (2019).
- [85] M. K. CHAN, R. D. McDONALD, B. J. RAMSHAW, J. B. BETTS, A. SHEKHTER, E. D. BAUER et N. HARRISON, Proceedings of the National Academy of Sciences **117**, 9782 (2020).
- [86] M. PLATÉ, J. MOTTERSHEAD, I. ELFIMOV, D. PEETS, R. LIANG, D. BONN, W. HARDY, S. CHIUZBAIAN, M. FALUB, M. SHI et al., Physical review letters **95**, 077001 (2005).
- [87] B. VIGNOLLE, A. CARRINGTON, R. COOPER, M. FRENCH, A. MACKENZIE, C. JAUDET, D. VIGNOLLES, C. PROUST et N. HUSSEY, Nature **455**, 952 (2008).
- [88] N. HUSSEY, M. ABDEL-JAWAD, A. CARRINGTON, A. MACKENZIE et L. BALICAS, Nature **425**, 814 (2003).
- [89] C. PUTZKE, S. BENHABIB, W. TABIS, J. AYRES, Z. WANG, L. MALONE, S. LICCIARDELLO, J. LU, T. KONDO, T. TAKEUCHI et al., Nature Physics **17**, 826 (2021).
- [90] R. COOPER, Y. WANG, B. VIGNOLLE, O. LIPSCOMBE, S. HAYDEN, Y. TANABE, T. ADACHI, Y. KOIKE, M. NOHARA, H. TAKAGI et al., Science **323**, 603 (2009).
- [91] N. HUSSEY, K. TAKENAKA et H. TAKAGI, Philosophical Magazine **84**, 2847 (2004).
- [92] J. BRUIN, H. SAKAI, R. PERRY et A. MACKENZIE, Science **339**, 804 (2013).

- [93] A. LEGROS, S. BENHABIB, W. TABIS, F. LALIBERTÉ, M. DION, M. LIZAIRE, B. VIGNOLLE, D. VIGNOLLES, H. RAFFY, Z. LI et al., *Nature Physics* **15**, 142 (2019).
- [94] H. ALLOUL, T. OHNO et P. MENDELS, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 1700 (1989).
- [95] D. C. JOHNSTON, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 957 (1989).
- [96] R. WALSTEDT et W. WARREN, *Applied Magnetic Resonance* **3**, 469 (1992).
- [97] G.-q. ZHENG, P. L. KUHN, A. P. REYES, B. LIANG et C. T. LIN, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 047006 (2005).
- [98] J. W. LORAM, K. A. MIRZA, J. R. COOPER et W. Y. LIANG, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1740 (1993).
- [99] J. LORAM, J. LUO, J. COOPER, W. LIANG et J. TALLON, *Journal of Physics and Chemistry of Solids* **62**, 59 (2001).
- [100] C. RENNER, B. REVAZ, J.-Y. GENOUD, K. KADOWAKI et Ø. FISCHER, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 149 (1998).
- [101] H. DING, T. YOKOYA, J. C. CAMPUZANO, T. TAKAHASHI, M. RANDEIRA, M. NORMAN, T. MOCHIKU, K. KADOWAKI et J. GIAPINTZAKIS, *Nature* **382**, 51 (1996).
- [102] C. E. MATT, C. G. FATUZZO, Y. SASSA, M. MÅNSSON, S. FATALE, V. BITETTA, X. SHI, S. PAILHES, M. BERNTSEN, T. KUROSAWA et al., *Physical Review B* **92**, 134524 (2015).
- [103] T. YOSHIDA, M. HASHIMOTO, I. M. VISHIK, Z.-X. SHEN et A. FUJIMORI, *Journal of the Physical Society of Japan* **81**, 011006 (2011).
- [104] C. C. HOMES, T. TIMUSK, R. LIANG, D. A. BONN et W. N. HARDY, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1645 (1993).
- [105] T. ITO, K. TAKENAKA et S. UCHIDA, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 3995 (1993).
- [106] S. UCHIDA, *Physica C Superconductivity* **282**, 12 (1997).
- [107] T. XIANG et J. M. WHEATLEY, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 4632 (1996).
- [108] F. LALIBERTÉ, W. TABIS, S. BADOUX, B. VIGNOLLE, D. DESTRAZ, N. MOMONO, T. KUROSAWA, K. YAMADA, H. TAKAGI, N. DOIRON-LEYRAUD et al., arXiv preprint arXiv:1606.04491 (2016).
- [109] C. COLLIGNON, S. BADOUX, S. A. A. AFSHAR, B. MICHON, F. LALIBERTÉ, O. CYR-CHOINIÈRE, J.-S. ZHOU, S. LICCIARDELLO, S. WIEDMANN, N. DOIRON-LEYRAUD et L. TAILLEFER, *Phys. Rev. B* **95**, 224517 (2017).
- [110] J. LORAMA, K. MIRZA, J. COOPER et J. TALLON, *Journal of Physics and Chemistry of Solids* **59**, 2091 (1998).

- [111] P. BOURGES et Y. SIDIS, *Comptes Rendus Physique* **12**, 461 (2011).
- [112] C. VARMA, *Physical Review B* **73**, 155113 (2006).
- [113] V. HINKOV, D. HAUG, B. FAUQUÉ, P. BOURGES, Y. SIDIS, A. IVANOV, C. BERNHARD, C. LIN et B. KEIMER, *Science* **319**, 597 (2008).
- [114] G. GRISSONNANCHE, O. CYR-CHOINIÈRE, J. DAY, R. LIANG, D. BONN, W. HARDY, N. DOIRON-LEYRAUD et L. TAILLEFER, arXiv preprint arXiv:2205.05233 (2022).
- [115] D. HAUG, V. HINKOV, Y. SIDIS, P. BOURGES, N. B. CHRISTENSEN, A. IVANOV, T. KELLER, C. LIN et B. KEIMER, *New Journal of Physics* **12**, 105006 (2010).
- [116] H. MUKUDA, S. SHIMIZU, A. IYO et Y. KITAOKA, *Journal of the Physical Society of Japan* **81**, 011008 (2011).
- [117] S. SACHDEV, M. A. METLITSKI et M. PUNK, *Journal of Physics: Condensed Matter* **24**, 294205 (2012).
- [118] K. SEGAWA et Y. ANDO, *Phys. Rev. B* **69**, 104521 (2004).
- [119] Y. ANDO, Y. KURITA, S. KOMIYA, S. ONO et K. SEGAWA, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 197001 (2004).
- [120] S. KUNISADA, S. ISONO, Y. KOHAMA, S. SAKAI, C. BAREILLE, S. SAKURAGI, R. NOGUCHI, K. KUROKAWA, K. KURODA, Y. ISHIDA, S. ADACHI, R. SEKINE, T. K. KIM, C. CACHO, S. SHIN, T. TOHYAMA, K. TOKIWA et T. KONDO, *Science* **369**, 833 (2020).
- [121] J. TRANQUADA, B. STERNLIEB, J. AXE, Y. NAKAMURA et S. UCHIDA, *nature* **375**, 561 (1995).
- [122] M. v. ZIMMERMANN, A. VIGLIANTE, T. NIEMÖLLER, N. ICHIKAWA, T. FRELLO, J. MADSEN, P. WOCHNER, S. UCHIDA, N. ANDERSEN, J. TRANQUADA et al., *EPL (Europhysics Letters)* **41**, 629 (1998).
- [123] J. ZAAANEN et O. GUNNARSSON, *Physical Review B* **40**, 7391 (1989).
- [124] M. NORMAN et C. PÉPIN, *Reports on Progress in Physics* **66**, 1547 (2003).
- [125] J. M. TRANQUADA, *Advances in Physics* **69**, 437 (2020).
- [126] J. HOFFMAN, E. W. HUDSON, K. LANG, V. MADHAVAN, H. EISAKI, S. UCHIDA et J. DAVIS, *Science* **295**, 466 (2002).
- [127] T. WU, H. MAYAFFRE, S. KRÄMER, M. HORVATIĆ, C. BERTHIER, W. HARDY, R. LIANG, D. BONN et M.-H. JULIEN, *Nature* **477**, 191 (2011).
- [128] T. WU, H. MAYAFFRE, S. KRÄMER, M. HORVATIĆ, C. BERTHIER, P. L. KUHN, A. P. REYES, R. LIANG, W. HARDY, D. BONN et al., *Nature communications* **4**, 1 (2013).

- [129] G. GHIRINGHELLI, M. LE TACON, M. MINOLA, S. BLANCO-CANOSA, C. MAZZOLI, N. BROOKES, G. DE LUCA, A. FRANO, D. HAWTHORN, F. HE et al., *Science* **337**, 821 (2012).
- [130] W. TABIS, Y. LI, M. L. TACON, L. BRAICOVICH, A. KREYSSIG, M. MINOLA, G. DELLEA, E. WESCHKE, M. VEIT, M. RAMAZANOGLU et al., *Nature communications* **5**, 1 (2014).
- [131] R. COMIN, A. FRANO, M. M. YEE, Y. YOSHIDA, H. EISAKI, E. SCHIERLE, E. WESCHKE, R. SUTARTO, F. HE, A. SOUMYANARAYANAN et al., *Science* **343**, 390 (2014).
- [132] S. BLANCO-CANOSA, A. FRANO, E. SCHIERLE, J. PORRAS, T. LOEW, M. MINOLA, M. BLUSCHKE, E. WESCHKE, B. KEIMER et M. LE TACON, *Physical Review B* **90**, 054513 (2014).
- [133] F. LALIBERTÉ, M. FRACHET, S. BENHABIB, B. BORGNIC, T. LOEW, J. PORRAS, M. LE TACON, B. KEIMER, S. WIEDMANN, C. PROUST et al., *npj Quantum Materials* **3**, 1 (2018).
- [134] M. LE TACON, A. BOSAK, S. SOULIOU, G. DELLEA, T. LOEW, R. HEID, K. BOHNEN, G. GHIRINGHELLI, M. KRISCH et B. KEIMER, *Nature Physics* **10**, 52 (2014).
- [135] W. TABIS, B. YU, I. BIALO, M. BLUSCHKE, T. KOLODZIEJ, A. KOZLOWSKI, E. BLACKBURN, K. SEN, E. M. FORGAN, M. v. ZIMMERMANN et al., *Physical Review B* **96**, 134510 (2017).
- [136] J. CHANG, E. BLACKBURN, A. HOLMES, N. B. CHRISTENSEN, J. LARSEN, J. MESOT, R. LIANG, D. BONN, W. HARDY, A. WATENPHUL et al., *Nature Physics* **8**, 871 (2012).
- [137] E. H. da SILVA NETO, P. AYNAJIAN, A. FRANO, R. COMIN, E. SCHIERLE, E. WESCHKE, A. GYENIS, J. WEN, J. SCHNEELOCH, Z. XU et al., *Science* **343**, 393 (2014).
- [138] A. FRANO, S. BLANCO-CANOSA, B. KEIMER et R. J. BIRGENEAU, *Journal of Physics: Condensed Matter* **32**, 374005 (2020).
- [139] E. G. DALLA TORRE, D. BENJAMIN, Y. HE, D. DENTELSKI et E. DEMLER, *Physical Review B* **93**, 205117 (2016).
- [140] R. COMIN, R. SUTARTO, E. da SILVA NETO, L. CHAUVIERE, R. LIANG, W. HARDY, D. BONN, F. HE, G. SAWATZKY et A. DAMASCELLI, *Science* **347**, 1335 (2015).
- [141] H.-H. KIM, S. SOULIOU, M. E. BARBER, E. LEFRANÇOIS, M. MINOLA, M. TORTORA, R. HEID, N. NANDI, R. A. BORZI, G. GARBARINO et al., *Science* **362**, 1040 (2018).
- [142] S. GERBER, H. JANG, H. NOJIRI, S. MATSUZAWA, H. YASUMURA, D. BONN, R. LIANG, W. HARDY, Z. ISLAM, A. MEHTA et al., *Science* **350**, 949 (2015).

- [143] J. CHANG, E. BLACKBURN, O. IVASHKO, A. HOLMES, N. B. CHRISTENSEN, M. HÜCKER, R. LIANG, D. BONN, W. HARDY, U. RÜTT et al., *Nature communications* **7**, 1 (2016).
- [144] D. LEBŒUF, S. KRÄMER, W. HARDY, R. LIANG, D. BONN et C. PROUST, *Nature Physics* **9**, 79 (2013).
- [145] M.-H. JULIEN, *Science* **350**, 914 (2015).
- [146] N. DOIRON-LEYRAUD, C. PROUST, D. LEBŒUF, J. LEVALLOIS, J.-B. BONNEMAISON, R. LIANG, D. BONN, W. HARDY et L. TAILLEFER, *Nature* **447**, 565 (2007).
- [147] S. E. SEBASTIAN, N. HARRISON, R. LIANG, D. BONN, W. HARDY, C. MIELKE et G. LONZARICH, *Physical Review Letters* **108**, 196403 (2012).
- [148] N. BARIŠIĆ, S. BADOUX, M. K. CHAN, C. DOROW, W. TABIS, B. VIGNOLLE, G. YU, J. BÉARD, X. ZHAO, C. PROUST et al., *Nature Physics* **9**, 761 (2013).
- [149] N. DOIRON-LEYRAUD, S. LEPAULT, O. CYR-CHOINIÈRE, B. VIGNOLLE, G. GRISSONNANCHE, F. LALIBERTÉ, J. CHANG, N. BARIŠIĆ, M. CHAN, L. JI et al., *Physical Review X* **3**, 021019 (2013).
- [150] D. LEBŒUF, N. DOIRON-LEYRAUD, J. LEVALLOIS, R. DAOU, J.-B. BONNEMAISON, N. HUSSEY, L. BALICAS, B. RAMSHAW, R. LIANG, D. BONN et al., *Nature* **450**, 533 (2007).
- [151] H. YAO, D.-H. LEE et S. KIVELSON, *Physical Review B* **84**, 012507 (2011).
- [152] N. HARRISON et S. SEBASTIAN, *New Journal of Physics* **14**, 095023 (2012).
- [153] O. ANDERSEN, A. LIECHTENSTEIN, O. JEPSEN et F. PAULSEN, *Journal of Physics and Chemistry of Solids* **56**, 1573 (1995).
- [154] S. C. RIGGS, O. VAFEK, J. KEMPER, J. BETTS, A. MIGLIORI, F. BALAKIREV, W. HARDY, R. LIANG, D. BONN et G. BOEBINGER, *Nature Physics* **7**, 332 (2011).
- [155] N. DOIRON-LEYRAUD, S. BADOUX, S. RENÉ DE COTRET, S. LEPAULT, D. LEBŒUF, F. LALIBERTÉ, E. HASSINGER, B. RAMSHAW, D. BONN, W. HARDY et al., *Nature communications* **6**, 1 (2015).
- [156] S. E. SEBASTIAN, N. HARRISON, F. BALAKIREV, M. ALTARAWNEH, P. GODDARD, R. LIANG, D. BONN, W. HARDY et G. LONZARICH, *Nature* **511**, 61 (2014).
- [157] N. HARRISON et S. SEBASTIAN, *Physical Review B* **92**, 224505 (2015).
- [158] N. HARRISON et S. SEBASTIAN, *Physical Review Letters* **106**, 226402 (2011).
- [159] A. V. MAHARAJ, Y. ZHANG, B. RAMSHAW et S. KIVELSON, *Physical Review B* **93**, 094503 (2016).

- [160] M. HUECKER, N. B. CHRISTENSEN, A. HOLMES, E. BLACKBURN, E. M. FORGAN, R. LIANG, D. BONN, W. HARDY, O. GUTOWSKI, M. v. ZIMMERMANN et al., *Physical Review B* **90**, 054514 (2014).
- [161] S. BADOUX, W. TABIS, F. LALIBERTÉ, G. GRISSONNANCHE, B. VIGNOLLE, D. VIGNOLLES, J. BÉARD, D. BONN, W. HARDY, R. LIANG et al., *Nature* **531**, 210 (2016).
- [162] C. TAM, M. ZHU, J. AYRES, K. KUMMER, F. YAKHOU-HARRIS, J. COOPER, A. CARRINGTON et S. HAYDEN, *Nature Communications* **13**, 1 (2022).
- [163] C. GOUGH, M. COLCLOUGH, E. FORGAN, R. JORDAN, M. KEENE, C. MUIRHEAD, A. RAE, N. THOMAS, J. ABELL et S. SUTTON, *Nature* **326**, 855 (1987).
- [164] W. HARDY, D. BONN, D. MORGAN, R. LIANG et K. ZHANG, *Physical Review Letters* **70**, 3999 (1993).
- [165] L. TAILLEFER, B. LUSSIER, R. GAGNON, K. BEHNIA et H. AUBIN, *Physical review letters* **79**, 483 (1997).
- [166] C. TSUEI, J. R. KIRTLEY, C. CHI, L. S. YU-JAHNES, A. GUPTA, T. SHAW, J. SUN et M. KETCHEN, *Physical Review Letters* **73**, 593 (1994).
- [167] N. SINGH, *Physica C: Superconductivity and its Applications* **580**, 1353782 (2021).
- [168] A. ABANOV, A. V. CHUBUKOV et J. SCHMALIAN, *Advances in Physics* **52**, 119 (2003).
- [169] P. W. ANDERSON, *science* **235**, 1196 (1987).
- [170] M. GRANDADAM, D. CHAKRABORTY et C. PÉPIN, *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism* **33**, 2361 (2020).
- [171] J. L. TALLON et J. LORAM, *Physica C: Superconductivity* **349**, 53 (2001).
- [172] C. PÉPIN, D. CHAKRABORTY, M. GRANDADAM et S. SARKAR, *Annual Review of Condensed Matter Physics* **11**, 301 (2020).
- [173] S. SACHDEV, *Physics world* **12**, 33 (1999).
- [174] S. SACHDEV et B. KEIMER, *arXiv preprint arXiv:1102.4628* (2011).
- [175] S. SACHDEV, *Science* **288**, 475 (2000).
- [176] M. R. NORMAN, D. PINES et C. KALLIN, *Advances in Physics* **54**, 715 (2005).
- [177] S. CHAKRAVARTY, R. LAUGHLIN, D. K. MORR et C. NAYAK, *Physical Review B* **63**, 094503 (2001).
- [178] C. VARMA, *Physical Review Letters* **83**, 3538 (1999).
- [179] T. MORIYA et K. UEDA, *Reports on Progress in Physics* **66**, 1299 (2003).
- [180] D. J. SCALAPINO, *Physics Reports* **250**, 329 (1995).

- [181] Y. QI et S. SACHDEV, *Physical Review B* **81**, 115129 (2010).
- [182] S. CHATTERJEE et S. SACHDEV, *Physical Review B* **94**, 205117 (2016).
- [183] D. CHOWDHURY, “Interplay of Broken Symmetries and Quantum Criticality in Correlated Electronic Systems”, thèse de doct. (2016).
- [184] K.-Y. YANG, T. RICE et F.-C. ZHANG, *Physical Review B* **73**, 174501 (2006).
- [185] J. STOREY, *EPL (Europhysics Letters)* **113**, 27003 (2016).
- [186] B. LORET, N. AUVRAY, Y. GALLAIS, M. CAZAYOUS, A. FORGET, D. COLSON, M.-H. JULIEN, I. PAUL, M. CIVELLI et A. SACUTO, *Nature Physics* **15**, 771 (2019).
- [187] S. IDETA, K. TAKASHIMA, M. HASHIMOTO, T. YOSHIDA, A. FUJIMORI, H. ANZAI, T. FUJITA, Y. NAKASHIMA, A. INO, M. ARITA, H. NAMATAME, M. TANIGUCHI, K. ONO, M. KUBOTA, D. H. LU, Z.-X. SHEN, K. M. KOJIMA et S. UCHIDA, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 227001 (2010).
- [188] A. J. LEGGETT, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 392 (1999).
- [189] S. CHAKRAVARTY, H.-Y. KEE et K. VÖLKER, *Nature* **428**, 53 (2004).
- [190] S. SHIMIZU, S.-i. TABATA, H. MUKUDA, Y. KITAOKA, P. M. SHIRAGE, H. KITO et A. IYO, *Physical Review B* **83**, 214514 (2011).
- [191] M. NUNEZ-REGUEIRO, J.-L. THOLENCE, E. ANTIPOV, J.-J. CAPPONI et M. MAREZIO, *Science* **262**, 97 (1993).
- [192] B. LORET, A. FORGET, J.-B. MOUSSY, S. POISSONNET, P. BONNAILLIE, G. COLLIN, P. THUÉRY, A. SACUTO et D. COLSON, *Inorganic Chemistry* **56**, 9396 (2017).
- [193] D. LEBOEUF, N. DOIRON-LEYRAUD, B. VIGNOLLE, M. SUTHERLAND, B. RAMSHAW, J. LEVALLOIS, R. DAOU, F. LALIBERTÉ, O. CYR-CHOINIERE, J. CHANG et al., *Physical Review B* **83**, 054506 (2011).
- [194] B. RAMSHAW, S. SEBASTIAN, R. McDONALD, J. DAY, B. TAN, Z. ZHU, J. BETTS, R. LIANG, D. BONN, W. HARDY et al., *Science* **348**, 317 (2015).
- [195] F. BRACHET, *Project : metiss, LastWave*, (2021) <https://raweb.inria.fr/rapportsactivite/RA2002/metiss/uid32.html> (visité le 28/08/2021).
- [196] S. G. MALLAT et Z. ZHANG, *IEEE Transactions on signal processing* **41**, 3397 (1993).
- [197] B. RAMSHAW, “Shubnikov-de Haas measurements and the spin magnetic moment of YBaCuO.”, thèse de doct. (University of British Columbia, 2012).
- [198] D. J. SINGH, *Physical Review B* **48**, 3571 (1993).
- [199] I. VISHIK, N. BARIŠIĆ, M. CHAN, Y. LI, D. XIA, G. YU, X. ZHAO, W. LEE, W. MEEVASANA, T. DEVEREAUX et al., *Physical Review B* **89**, 195141 (2014).

- [200] N. HARRISON, *Physical Review B* **97**, 245150 (2018).
- [201] S. HAYDEN, H. MOOK, P. DAI, T. PERRING et F. DOĞAN, *Nature* **429**, 531 (2004).
- [202] H. WOO, P. DAI, S. M. HAYDEN, H. A. MOOK, T. DAHM, D. J. SCALAPINO, T. G. PERRING et F. DOĞAN, *Nature Physics* **2**, 600 (2006).
- [203] M. LE TACON, G. GHIRINGHELLI, J. CHALOUPIKA, M. M. SALA, V. HINKOV, M. HAVERKORT, M. MINOLA, M. BAKR, K. ZHOU, S. BLANCO-CANOSA et al., *Nature Physics* **7**, 725 (2011).
- [204] N. S. HEADINGS, S. M. HAYDEN, R. COLDEA et T. G. PERRING, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 247001 (2010).
- [205] L. WANG, G. HE, Z. YANG, M. GARCIA-FERNANDEZ, A. NAG, K. ZHOU, M. MINOLA, M. L. TACON, B. KEIMER, Y. PENG et al., *Nature Communications* **13**, 1 (2022).
- [206] N. HARRISON, *Physical Review B* **94**, 085129 (2016).
- [207] W. ATKINSON, A. P. KAMPF et S. BULUT, *New Journal of Physics* **17**, 013025 (2015).
- [208] A. KADIGROBOV, B. KERAN et D. RADIĆ, *Physical Review B* **104**, 155143 (2021).
- [209] L. ZHANG et J.-W. MEI, *EPL (Europhysics Letters)* **114**, 47008 (2016).