

Année 2004

UNIVERSITE PARIS 6- PIERRE ET MARIE CURIE
UFR DE PHYSIQUE

THESE

pour l'obtention du Diplôme de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE PARIS 6
SPECIALITE : Physique des Solides et des Milieux Denses

présentée et soutenue publiquement par

Stéphane PAILHÈS

le 16 décembre 2004

Laboratoire d'accueil : Laboratoire Léon Brillouin, CEA Saclay, Gif-sur-Yvette

Titre :

**Etude des excitations magnétiques dans le supraconducteur à
haute température critique $Y_{1-x}Ca_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ par diffusion
inélastique des neutrons**

JURY

M. Philippe BOURGES	Directeur de thèse
M. Benoit DOUCOT	Examineur
M. Bernhard KEIMER	Invité
M. Joel MESOT	Rapporteur
M. William SACKS	Examineur
M. Alain SACUTO	Rapporteur
M. Yvan SIDIS	Invité

— Remerciements —

Ce travail a été réalisé au sein du groupe 3 axes du laboratoire Léon Brillouin (LLB, laboratoire commun CEA-CNRS) dont l'activité est essentiellement axée sur l'étude du magnétisme dans les solides en utilisant la diffusion des neutrons produit dans le réacteur Orphée à Saclay. La mise à disposition d'un appareil tel qu'un spectromètre 3 axes, unique sonde permettant d'étudier les propriétés magnétiques dans le temps et dans l'espace, nécessite une fusion des compétences à tous niveaux (électronique, mécanique, cryogénie, neutronique, sécurité, informatique etc...). Il résulte de cette fusion une dynamique de travail extraordinaire propice au progrès. Pour ma part, ce bain de savoir fait de ce type de structure un endroit idéal pour une formation à la recherche. Je tiens donc à remercier l'ensemble du personnel d'Orphée-LLB et de l'ILL(Institut Laue-Langevin) pour avoir rendu possible l'existence d'une telle étude. Naturellement, je remercie les deux équipes de direction du LLB, d'abord M. C.H. De Novion et M. J. Teixeira puis P. Monceau et M. Alba, qui se sont succédés et qui m'ont accordé leur confiance et leur soutien dans le déroulement de ce projet de thèse.

Les responsables de ce travail ont été Ph. Bourges et Y. Sidis. Je tiens à leur exprimer toute ma reconnaissance. Leur encadrement au cours de ces 3 années et 2 mois (les plus durs) fut simplement parfait. Toujours avec enthousiasme, ils m'ont fourni tant sur le plan expérimental que théorique les ingrédients nécessaires à la réussite de ce travail. Une thèse ou plus globalement un projet de recherche est avant tout une aventure humaine. La motivation, la confiance, l'écoute et l'entraide, constamment présent dans notre équipe, a permis de mener cette aventure à des buts initialement inespérés. Je pense que cette magie ne se produirait pas dans un système de recherche dans lequel la majorité des membres de l'aventure serait dans une situation sociale instable. L'objectif d'un marin ne doit pas être de pousser les membres de l'équipage pour survivre mais de s'intégrer à une équipe qui fait avancer le voilier. Ou alors, il faut une infrastructure qui permette de sauter facilement d'un bateau à l'autre. Dans une certaine mesure, la supercherie de J. H. Schön a démontré l'incompatibilité actuelle entre recherche fondamentale, haut débit et course en solitaire. Je tiens ainsi à réitérer mes remerciements à Yvan qui, à de nombreuses occasions (menace de fermeture du LLB, réalité d'un avenir dans la recherche fondamentale, fin de thèse, soucis personnels), a fait le nécessaire pour me motiver et me guider dans mon travail et dans mon projet professionnel. Puis Philippe qui a su canaliser mon énergie, diriger mon travail et optimiser les résultats de ces trois années de recherche.

Je tiens également à exprimer ma reconnaissance à B. Keimer qui m'a accordé sa confiance et qui m'a donné les moyens (échantillons, mesure de SQUID, EDX, diffusion électronique Raman, hébergement à la guesthouse, séminaire dans son groupe) de réaliser ce projet en respectant mes exigences et mes idées. A travers B. Keimer, je remercie l'ensemble du personnel du MPI à Stuttgart et tout particulièrement les gens du 7ième étage : C. Ulrich, V. Hinkov, S. Bayracki, L. Capogna avec qui j'ai collaboré au cours d'expériences sur trois axes, C. Bernhard, A. Boris, N. Kovaleva, J. Stremper, I. Zegkinoglou et M. Bakr avec qui j'ai eu de fructueuses discussions sans oublier C. Hagemann qui m'a simplifié la tâche administrative. Naturellement, cette thèse n'aurait pas pu être réalisable sans monocristaux. Je remercie donc toute l'équipe de crystallogénèse : B. Liang, C. T. Lin, H. Wendel, S. Lacher, Hinkler, D. Maier et B. Baum.

Un grand remerciement à C. Ulrich qui m'a enseigné la technique de diffusion électronique Raman et qui m'a laissé toute la liberté et le temps de faisceau pour tester mes idées. Je

le remercie également de son accueil chaleureux à chacune de mes visites et je lui discerne le prix de la pasta-salad. Enfin un second remerciement à V. Hinkov dont la motivation, la rigueur et la faculté de remise en question ont contribué fortement à la qualité de mon travail. Je le remercie également de son aide au cours de mes séjours au MPI et je m'excuse de mes victoires au ping-pong...

Un paragraphe de remerciements s'impose pour B. Hennion. De sa chaise, il a toujours trouver des solutions rapides et efficaces à tous mes problèmes d'ordres divers : technique, informatique, organisation etc... Je le remercie également pour son soutien au cours de ces trois années et dans mon projet professionnel. Enfin, je recommande à toute personne désireuse de partir en Grèce, de se faire faire un crobar de la Crète par Bernard.

L'accueil au LLB et plus particulièrement dans le groupe 3 axes a été très chaleureux. J'adresse de grands remerciements aux membres du LLB qui par leur disponibilité et leur sympathie, ont contribué au bon déroulement de cete thèse : M. Hennion, F. Moussa, L. Noirez, M. Quilichini, D. Petitgrand, J. M. Mignot, R. Kahn, S. Aubry, H. Moudden et G. Pepy. Sans oublier C. Marais, C. Abraham et C. Rousse qui ont toujours été très disponibles et très compréhensives face à mes requêtes de dernières minutes. Un grand merci à l'équipe technique du groupe 3 axes : P. Baroni, F. Maignan, P. Bouitrouille et J. Drapeau. De part leur disponibilité et leur compétence, ils ont grandement contribué au bon fonctionnement des expériences.

Je remercie également l'équipe du spectromètre IN8 de l'ILL : A. Hiess, M. Jimenez-Ruiz, S. Baudouin et P. Palleau. Un immense merci également à A. Ivanov qui apporte une dimension supplémentaire aux expériences sur 3 axes. Les échanges avec Sacha m'ont permis de progresser dans la technique de diffusion des neutrons et son intérêt pour mon travail a fortement contribué à la richesse de ce manuscrit. Naturellement, je remercie L. P. Regnault dont le scepticisme m'a poussé à me remettre en question plusieurs fois.

Je remercie tous les membres du jury de m'avoir fait l'honneur d'examiner ce pavé de plus de 250 pages.

Les paragraphes qui suivent contiennent des allusions personnelles compréhensibles uniquement par les personnes concernées.

Je tiens à remercier le groupe des thésards et postdocs du laboratoire avec qui j'ai partagé mes repas du midi : P. Kober(notre exemple à tous), L. Bourgeois(toujours de bonne humeur quand elle a son jus de pomme), H. Mendil(belle, intelligente et comique, c'est une pro. de l'imitation), F. Lemenn(la bretonne, son départ précipité dont il serait important de ne pas oublier les causes, a laissé un grand vide), S. Jakani(le roi de la boulette de papier et de la bouteille en plastique vide), O. Friedt(grand schtroumpf qui touche le plafond de mon appart.), P. Peixoto Teles(mon amoureux, qui a une voix magnifique) et B. Fauqué(qui, de l'île de la Réunion, réussi à me persécuter avec sa superbe blague : "if,if between").

Un immense merci à mes parents et à mon frère qui m'ont toujours soutenue et qui ont su être présent dans les derniers jours mouvementés de la thèse. Ma maman qui est

devenue une pro. de internet pour m'aider, mon papa à qui je dois une express et puis mon frère parfait dans son rôle de grand frère. Un énorme merci à tous les membres de ma famille et de mon entourage qui se sont déplacés le jour de ma soutenance.

Un grand merci aussi au Marcien, le roi de la contradiction et du pas comme tout le monde, toujours prêt pour un délire. Il a une expérience et une connaissance unique en AX. Et puis Cyrille, le grincheux, qui m'a prêté son ordinateur de travail pour que je puisse rédiger ma thèse. J'ai essayé de lui endormir, comme d'habitude, mais cette fois, il ne s'est pas laissé faire.

Enfin, un petit clin d'oeil à toute la tribu de Coigny et de ces alentours. Je remercie Isabelle de m'avoir soutenue pendant ces trois années et d'avoir courageusement corrigé les fautes d'orthographe dans toutes les pages de ce manuscrit. Et puis, un petit coucou à Melle Prouprout à qui il n'arrive que des merdes.

Enfin pour tous ceux qui n'ont pas trouvé leur nom, qu'ils trouvent ici la reconnaissance attendue.

Table des matières

1	Présentation générale	15
1.1	Phénoménologie des cuprates	17
1.1.1	La base commune des cuprates : le plan CuO_2	17
1.1.2	Présentation du diagramme de phase T- δ générique des oxydes de cuivre supraconducteurs à haute température critique	18
1.1.3	Une supraconductivité non-conventionnelle	20
1.2	Supraconductivité et fluctuations magnétiques	22
1.2.1	Supraconductivité d'origine purement électronique	22
1.2.2	Modélisation du plan CuO_2 : brève revue des modèles	23
1.3	Structure de bande et surface de Fermi vues par photo-émission résolue en angle	28
1.4	Etat "normal" : un métal exotique ?	31
1.5	Le spectre des excitations de spin vue par diffusion inélastique des neutrons (DIN)	33
1.5.1	L'état antiferromagnétique	33
1.5.2	Spectre des fluctuations magnétiques dans l'état normal	36
1.5.3	Le phénomène de résonance dans l'état supraconducteur	40
1.6	Manifestation de la résonance magnétique dans les propriétés électroniques	45
1.6.1	Mesure de photoémission résolue en angle : ARPES	46
1.6.2	Mesure de spectroscopie tunnel	47
1.6.3	Mesure de Raman électronique	49
1.7	Position de la thèse dans la problématique des cuprates supraconducteurs à haute température critique	51
2	Aspects expérimentaux	55
2.1	Diffusion des neutrons	57
2.1.1	Éléments théoriques de la diffusion inélastique des neutrons	58
2.1.2	Diffusion inélastique des neutrons dans un système itinérant	63
2.2	Réalisation pratique d'une mesure de DIN	67
2.2.1	Le spectromètre trois axes	67
2.2.2	Détails des différents éléments constituant un spectromètre trois axes	71
2.3	La résolution instrumentale	74
2.3.1	Définition et calcul	74
2.3.2	Prise en compte de la résolution instrumentale dans la mesure de la résonance dans YBCO	76
2.3.3	Analyse des données neutrons	83

2.4	Elements théoriques de la diffusion RAMAN	87
2.4.1	Lois de conservation	87
2.4.2	Hamiltonien d'interaction Raman - taux de diffusion	88
2.4.3	Le vertex Raman	89
2.4.4	Section efficace	92
2.4.5	La susceptibilité Raman électronique	93
2.4.6	Prise en compte des interactions : susceptibilité Raman RPA	94
2.4.7	Montage expérimental	95
2.4.8	Traitement des spectres Raman	96
2.5	Les échantillons	97
2.5.1	Le dopage au calcium	97
2.5.2	Nos échantillons de $Y_{1-x}Ca_xBa_2Cu_3O_{6+\delta}$	100
2.5.3	Les échantillons pour les mesures de DIN et Raman	107
3	Mesure de la dynamique de spin $YBa_2Cu_3O_{6.85}$ ($T_c=89K$)	111
3.1	Dimensionnalité des fluctuations magnétiques incommensurables dans l'état supraconducteur de $YBa_2Cu_3O_{6.85}$	113
3.1.1	Problématique	113
3.1.2	Etude de DIN dans deux échantillons totalement démaclés de $YBa_2Cu_3O_{6.85}$ ($T_c=89K$) et de $YBa_2Cu_3O_{6.6}$ ($T_c=60K$)	115
3.1.3	Conclusions	119
3.2	Mesure des excitations à hautes énergies dans $YBa_2Cu_3O_{6.85}$ ($T_c = 89K$) .	121
3.2.1	Conditions expérimentales	121
3.2.2	Description des résultats expérimentaux	121
3.2.3	Modélisation de la section efficace magnétique	130
3.2.4	Mise en absolu de l'intensité magnétique	135
3.3	Evolution de la résonance en fonction du nombre de plans CuO_2 au dopage optimum	141
3.3.1	La résonance dans un composé à 3 plans CuO_2	141
3.3.2	Résonance magnétique et nombre de plans CuO_2	143
3.4	Conclusion	144
4	Mesures de la dynamique de spin dans le régime surdopé	145
4.1	Le système $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$	147
4.1.1	Mesure des modes acoustique et optique par DIN	147
4.1.2	Etude de la dépendance en vecteur d'onde du mode optique	154
4.1.3	Conclusion et perspective	170
4.2	Le système $Y_{0.85}Ca_{0.15}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$	172
4.2.1	Mesure des modes acoustique et optique par DIN dans $Y_{0.85}Ca_{0.15}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ ($T_c^{onset}=75K$)	172
4.2.2	Conclusion et perspectives :	183
4.3	Mesures RAMAN dans le système $Y_{1-y}Ca_yBa_2Cu_3O_{7-\delta}$	184
4.3.1	Résultats Raman dans le système $Y_yCa_{1-y}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$	184
4.3.2	Activité des phonons	198

5	Synthèse et discussion des résultats expérimentaux	203
5.1	Evolution de la dynamique de spin du sousdopé au surdopé	205
5.1.1	Evolution du spectre acoustique du régime sousdopé au régime surdopé	205
5.1.2	Résonance magnétique acoustique / Résonance magnétique optique	207
5.2	Interprétation de nos résultats dans le cadre des approches itinérantes . . .	211
5.2.1	Estimation de la bordure du continuum d'excitations électron-trou à \vec{q}_{AF}	214
5.2.2	Mise en évidence du continuum d'excitations électron-trou : "Les bandes muettes"	219
5.2.3	Simulation des résultats expérimentaux	224
5.2.4	Ré-examen de certains résultats de DIN	230
5.3	Interprétation de nos résultats dans le cadre des approches localisées . . .	234
5.3.1	Interprétation de la forme en X du spectre magnétique - image des stripes	234
5.3.2	Les stripes dans un système à deux plans CuO_2	236
5.3.3	Universalité des fluctuations de spins dans les cuprates	237
5.4	Discussion générale	238
5.4.1	Existence d'un changement de comportement dans le régime surdopé	238
5.4.2	Pseudogap / gap supraconducteur	241
5.4.3	Evolution du ω_c déduit des mesures de DIN dans le régime sousdopé	242
5.4.4	Conclusion	247
	Conclusion générale	249

Abréviations des noms des familles de cuprates :

Y123, YBCO_x : YBa₂Cu₃O_{6+x}, YBa₂Cu₃O_x

YBCO-Ca_y : Y_{1-y}Ca_yBa₂Cu₃O_{6+x}

LSCO : La_{2-x}Sr_xCuO₄

Bi2212 : Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ}

Bi2223 : Bi₂Sr₂Ca_{b/2}Cu₃O_{10+δ}

Tl2201 : Tl₂Ba₂CuO_{6+δ}

Hg1201 : HgBa₂Cu₄O_{4+x}

Abréviations

ARPES : Photoémission Résolue en Angle (Angle Resolved Photoemission)

RMN : Résonance Magnétique Nucléaire

AF : Antiferromagnétique

DIN : Diffusion Inélastique de Neutrons

FWHM : Pleine largeur à mi-hauteur (Full Width at Half Maximum)

HWHM : Demi largeur à mi-hauteur (Half Width at Half Maximum)

HTC : Haute Température Critique

NAFL : Liquide de Fermi presque antiferromagnétique (Nearly Antiferromagnetic Fermi Liquid)

OP-SC : Paramètre d'ordre Supraconducteur

RPA : Approximation de la Phase Aléatoire (Random Phase Approximation)

SC : Supraconducteur

ODS : Ondes de spin

pzB : première zone de Brillouin

Introduction

En 1986, Müller et Bednorz mettaient en évidence une transition supraconductrice record de 33K dans LaBaCuO, un alliage à base d'oxyde de cuivre[1]. Cette valeur dépasse la valeur maximale de la température critique prédite par la théorie microscopique de Bardeen, Cooper et Schrieffer (BCS)[2] d'un appariement supraconducteur par couplage électron-phonon. Cette découverte a suscité une intense activité et initié toute une série de travaux sur de nouvelles familles d'oxydes de cuivre (ou cuprates).

De structure de type pérovskite lamellaire, ces composés ont en commun un ou plusieurs plans CuO_2 par maille élémentaire. Leurs propriétés électroniques et magnétiques sont très dépendantes du nombre moyen d'électrons par atome dans les plans cuivre-oxygène, modifiable, le dopage. En l'absence de dopage, ces composés sont des isolants ordonnés antiferromagnétiquement. En augmentant le dopage, ils deviennent métalliques puis supraconducteurs en dessous d'une température supraconductrice, T_c , pouvant atteindre des valeurs record de 138K (-135° C). Cette température critique augmente avec le dopage, régime dit sousdopé, jusqu'à un dopage dit "optimal" où la température critique passe par un maximum pour décroître ensuite avec le dopage, régime dit surdopé.

Bien qu'il n'y ait pas de théorie globale qui permette de décrire les cuprates, les fortes interactions entre électrons et la nature quasi-bidimensionnel du plan CuO_2 jouent selon toute vraisemblance un rôle central dans l'établissement des propriétés électroniques exotiques de ces composés et des hautes valeurs de température critique. L'idée d'un appariement entre porteurs, idée fondamentale de la théorie BCS, n'est pas remise en cause dans les cuprates mais le mécanisme microscopique de cet appariement n'est pas élucidé. En particulier, le problème est de comprendre comment générer, un appariement d'origine purement électronique. Par exemple, dans ^3He superfluide, les fortes fluctuations ferromagnétiques sont responsables de la formation de paires de quasiparticules dans un état de symétrie p triplet de spin[5]. De même, pour les composés fermions lourds, juste avant la découverte des cuprates supraconducteurs, il a été proposé que les fluctuations antiferromagnétiques pouvaient être à l'origine d'une supraconductivité de symétrie d et singulet de spin[4, 3]. Dans les cuprates, tous les ingrédients d'un tel mécanisme sont présents : symétrie d du gap, interactions entre électrons conduisant à des corrélations antiferromagnétiques à courte portée. La compréhension du mécanisme d'appariement dans ces systèmes nécessite donc d'étudier les fluctuations antiferromagnétiques. La technique de diffusion inélastique des neutrons joue un rôle important dans la compréhension des cuprates puisque c'est l'unique sonde qui permet une mesure directe de la transformée de Fourier de la fonction de corrélation spin-spin sur une large gamme d'énergies et de vecteurs d'ondes.

L'étude de l'évolution en fonction du dopage du spectre des fluctuations magnétiques, par diffusion inélastique des neutrons, et des corrélations magnétiques locales, par résonance magnétique nucléaire, a permis de mettre en évidence l'existence de fortes fluctuations antiferromagnétiques dans le régime sousdopé proche de l'état isolant. Celles-ci sont progressivement réduites à mesure que le dopage augmente et deviennent évanescences dans le régime surdopé. Dans un scénario où l'antiferromagnétisme intervient dans le mécanisme d'appariement, on s'attendrait naïvement à ce que la température critique soit maximum à proximité de l'état antiferromagnétique comme observé dans certains fermions lourds. Toutefois, ce n'est pas le cas dans les cuprates : dans le régime sousdopé la T_c augmente au fur et à mesure que le poids spectral des fluctuations antiferromagnétiques diminue jusqu'au dopage optimum. Par ailleurs, dans l'état normal (c'est à dire non supraconducteur)

du régime sousdopé, on observe non seulement de fortes corrélations magnétiques mais également des propriétés électroniques manifestant de nombreuses déviations par rapport à un liquide de Fermi usuel. Ce régime, dit de "pseudogap", n'est pas encore compris et notamment, nous ne savons pas s'il traduit la présence d'une phase en compétition avec la supraconductivité ou d'une phase de paires préformées qui précéderait la supraconductivité. En revanche, dans l'état normal du régime surdopé, le système retrouve un comportement métallique standard : on s'affranchit alors des complications inhérentes à la phase de pseudogap tout en conservant une supraconductivité de symétrie d avec des valeurs de températures critiques toutes aussi élevées. Cependant, les corrélations magnétiques sont faibles, ce qui limite leur étude dans le régime surdopé.

De façon intéressante même si les fluctuations magnétiques de la phase normale s'avèrent difficiles à étudier, le passage dans l'état supraconducteur peut jouer le rôle révélateur des corrélations magnétiques sousjacentes. C'est ainsi qu'en 1991, fut mise en évidence l'existence d'une excitation antiferromagnétique nouvelle, "le pic de résonance", apparaissant dans l'état supraconducteur dans le composé $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ [90]. Par la suite, l'existence de ce pic a été généralisée dans d'autres familles de cuprates. Fait remarquable s'il en est, la position en énergie de cette excitation magnétique est proportionnelle à environ cinq fois la température critique. Dans le cadre de cette thèse nous utiliserons l'existence du pic de résonance dans l'état supraconducteur pour révéler et jauger le poids des fluctuations magnétiques dans le régime surdopé. Afin de corrélérer sans ambiguïté l'observation du pic de résonance magnétique avec l'appariement des paires de Cooper, le gap supraconducteur a été mesuré, pour la première fois par diffusion électronique Raman, directement sur les échantillons utilisés pour la diffusion neutronique. Ainsi ce manuscrit présente une étude, par diffusion inélastique des neutrons(DIN), de la dynamique de spin dans l'état supraconducteur du composé $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, au voisinage du dopage optimum et dans le régime surdopé. Nous utilisons la substitution hétérovalente de l'ion Y^{3+} par l'ion Ca^{2+} afin d'augmenter le dopage des plans CuO_2 . Ceci nous permet d'explorer le régime surdopé de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ où aucune mesure de diffusion inélastique des neutrons n'existe. Pour réaliser cette expérience unique à ce jour, il a été nécessaire de coaligner plusieurs dizaines de petits monocristaux afin d'atteindre un volume nécessaire à une expérience de DIN. Nous avons également bénéficié des progrès, réalisés ces dernières années, dans le domaine de l'optique neutronique et de l'optimisation des flux de neutrons.

Le manuscrit s'articule comme suit. Dans le chapitre 1, nous rappellerons les propriétés génériques des cuprates supraconducteurs, en insistant plus particulièrement sur la phénoménologie des fluctuations antiferromagnétiques observées par DIN. Le chapitre 2 est consacré à la présentation de la technique de DIN ainsi que des éléments théoriques de la diffusion Raman électronique. Ce chapitre s'achèvera par la présentation des méthodes de préparation et de caractérisation des échantillons. Nous présenterons au cours du chapitre 3, une étude du spectre des fluctuations magnétiques dans l'état supraconducteur de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ au voisinage du dopage optimum. L'étude à hautes énergies, en particulier, mettra en lumière l'existence de nouveaux modes magnétiques résonnants, dont nous suivrons l'évolution dans le régime surdopé au chapitre 4. Enfin au chapitre 5, nous tenterons de présenter une image unifiée de l'ensemble des excitations résonnantes dans l'état supraconducteur en comparant les résultats de DIN avec les propriétés électroniques Raman et les modèles de magnétisme itinérant couramment utilisés dans les cuprates. A la lumière de l'évolution du spectre des fluctuations magnétiques en fonction du dopage,

nous discuterons de la possible existence d'un comportement critique quantique dans le régime légèrement surdopé.

Chapitre 1

Présentation générale

Dans ce chapitre, nous définissons les grandes lignes de la problématique des cuprates supraconducteurs à haute température critique en développant plus spécifiquement les aspects qui ont attiré notre attention au cours de cette thèse. Ainsi, après une présentation générale de ces systèmes, nous détaillons l'évolution, à travers le diagramme de phase, du spectre des fluctuations magnétiques mesuré par diffusion inélastique des neutrons dans l'état supraconducteur et non supraconducteur. Nous discutons notamment de l'existence d'une excitation antiferromagnétique originale, le pic de résonance magnétique, qui apparaît lorsque la supraconductivité s'établit. Les observations récentes d'anomalies dans les propriétés électroniques du système, associées à l'existence du pic de résonance magnétique, font de cette excitation un des phénomènes majeurs dans l'état supraconducteur. Enfin, nous rassemblons les éléments de cette introduction afin de positionner ce travail de thèse dans la problématique des cuprates supraconducteurs à haute température critique.

1.1 Phénoménologie des cuprates

1.1.1 La base commune des cuprates : le plan CuO_2

Les cuprates supraconducteurs présentent une structure commune caractérisée par l'empilement d'un ou plusieurs plans CuO_2 séparés par d'autres couches atomiques jouant le rôle de réservoirs de charges. Par transfert d'électrons des plans CuO_2 vers les réservoirs de charges, (ou inversement des réservoirs vers les plans), il est possible de modifier la densité électronique dans les plans CuO_2 : on parle de dopage en trous (ou en électrons). Sur la Fig.1.1 a), nous présentons la structure générique des cuprates en schématisant le processus de dopage en trous. Par la suite, nous utiliserons également le terme "plans de base" en référence à ces plans CuO_2 .

La Fig.1.1 b) montre la structure cristalline du composé $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ (Y123)[76] principalement étudié dans cette thèse. Ce système comporte une "bicouche", c'est à dire à deux plans CuO_2 par maille élémentaire. Les chaînes $\text{Cu}(1)\text{-O}(4)$ jouent le rôle de réservoir de charge. L'ajout d'atomes d'oxygène sur le site $\text{O}(4)$ augmente la concentration de trous dans les plans CuO_2 . Par simple variation de la stoechiométrie en oxygène, il est ainsi possible de faire varier continûment le dopage en trous sur un même échantillon. Sur la Fig.1.2 b), nous montrons le diagramme de phase de Y123 en fonction du taux d'oxygène dans la maille élémentaire. Malheureusement, il n'existe pas de relation bien établie entre la concentration d'oxygène dans les chaînes et le nombre de trous dans les plans. On peut également ajouter des trous dans les plans CuO_2 de Y123 en substituant α ions Y^{3+} par des ions Ca^{2+} . Par cette méthode, le taux de dopage est a priori parfaitement contrôlé : le nombre de trous ajoutés à chaque plan CuO_2 est de $\alpha/2$ pour α Ca^{2+} par bicouche.

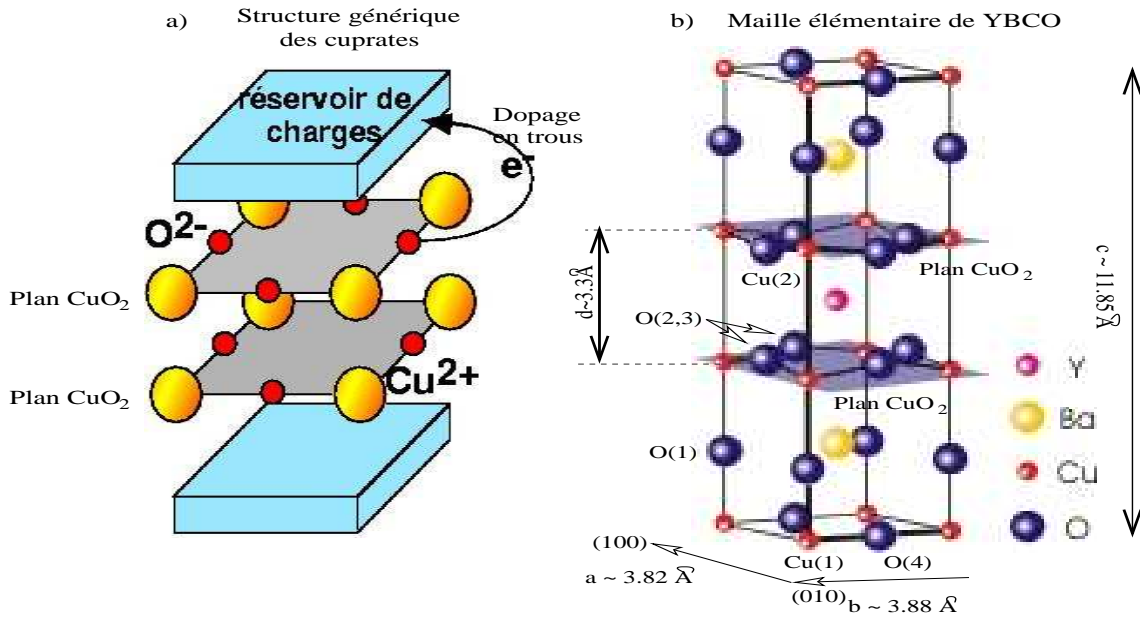


FIG. 1.1 – Sur la figure de gauche, nous montrons la structure cristallographique simplifiée des oxydes de cuivre supraconducteurs à haute température critique. On voit l'empilement des plans CuO_2 séparés par d'autres couches atomiques jouant le rôle de réservoirs de charges. Le transfert d'électrons des plans CuO_2 à ces réservoirs de charges (dopage) permet de modifier la densité électronique par atome de cuivre. Sur la figure de droite, nous montrons la structure réaliste de la maille de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ [76]

1.1.2 Présentation du diagramme de phase $T-\delta$ générique des oxydes de cuivre supraconducteurs à haute température critique

Les propriétés des cuprates sont contrôlées essentiellement par le dopage en porteurs de charges des plans CuO_2 , δ . Par la suite, nous considérons pour les valeurs positives de δ les systèmes "dopés en trous" et pour les valeurs négatives de δ les systèmes "dopés en électrons". La Fig.1.2 a) présente le diagramme de phase générique, $T-\delta$, des cuprates.

En l'absence de tout dopage ($\delta=0$), chaque ion Cu^{2+} des plans de base comporte un électron non-apparié sur l'orbitale $3d_{x^2-y^2}$. La forte répulsion coulombienne intra-site, U (voir Fig.1.3), interdit la double occupation du site de cuivre : le système est isolant et les spins $S=1/2$ du cuivre s'ordonnent antiferromagnétiquement par une interaction de super-échange le long de la liaison Cu-O-Cu . Les températures de Néel sont en général relativement élevées et avoisinent les 300-400 K.

Les trous sont introduit par dopage au niveau des orbitales $2p_\sigma$ des oxygènes du plan de base. Le recouvrement des orbitales $2p_\sigma$ et des orbitales $3d_{x^2-y^2}$ offre la possibilité au trou de dopage de se déplacer par saut d'un site à l'autre. Cependant, le mouvement du trou de dopage induit un renversement des spins et conduit donc à une frustration de la matrice antiferromagnétique (AF) dans laquelle le trou est injecté ; l'ordre AF est rapidement détruit pour un faible dopage en trous ($\delta < 2-4\%$). Bien que l'ordre AF à longue portée soit détruit, le système présente toujours de fortes corrélations de type-AF dans le

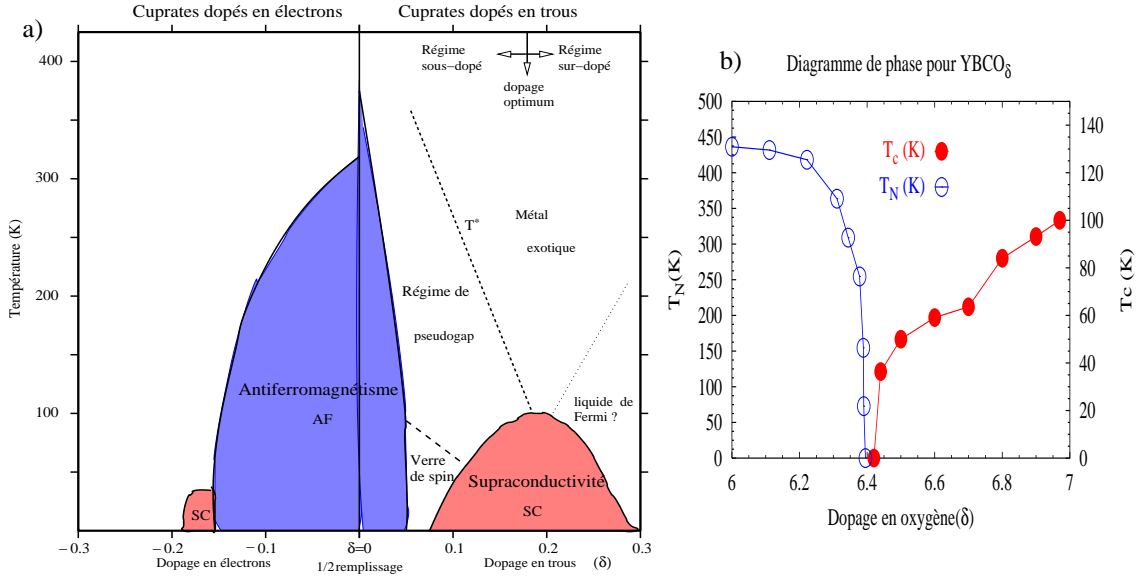


FIG. 1.2 – Sur la figure a), nous schématisons le diagramme de phase générique des cuprates dopés en électrons et en trous (δ). Sur la figure b), nous montrons le diagramme de phase du composé Y123 en fonction du taux d'oxygène[76]. Les atomes d'oxygènes additionnels viennent s'intercaler entre les sites Cu(1), Fig.1.1, ce qui permet d'augmenter le dopage en trous des plans CuO_2 .

plan de base, qui se gèlent à base température. Il en résulte une phase de type verre de spins et isolante encore mal connue ($\delta < 5-7\%$)[153].

Pour des dopages de l'ordre de 5-6%, le système devient métallique et supraconducteur. La température critique SC croît progressivement avec le dopage (régime sousdopé "UD"), atteint sa valeur maximale au dopage dit optimum, δ_{opt} , avant de redécroître dans le régime surdopé (régime surdopé "OD") jusqu'à disparaître totalement pour un dopage de l'ordre de 0.3. La relation entre T_c et le dopage (ou dôme supraconducteur) est donnée par une loi empirique [74] :

$$T_c(\delta) = T_c^{max}(1 - 82.6(\delta - \delta_{opt})^2) \quad (1.1)$$

où T_c^{max} dépend de la famille de cuprates considérée et δ_{opt} est fixé à 0.16. Dans le composé Y123, $T_c^{max} \sim 92.5\text{K}$.

Les résultats des expériences présentés dans ce manuscrit concernent des cuprates supraconducteurs dopés en trous. Toutefois, il est intéressant de remarquer qu'il y a une forte asymétrie entre la partie du diagramme de phase dopée en trous et celle dopée en électrons, voir Fig.1.2. Contrairement au cas du dopage en trous, l'état AF persiste plus longtemps dans les systèmes dopés en électrons. En augmentant le dopage en électrons, la supraconductivité apparaît avec des valeurs de T_c maximum plus petites que celles des systèmes dopés en trous. De plus, la phase de verre de spin n'est pas observée au dessus de T_c . En dépit de cette asymétrie, dont l'origine reste encore débattue, la supraconductivité paraît de part et d'autre de la phase antiferromagnétique.

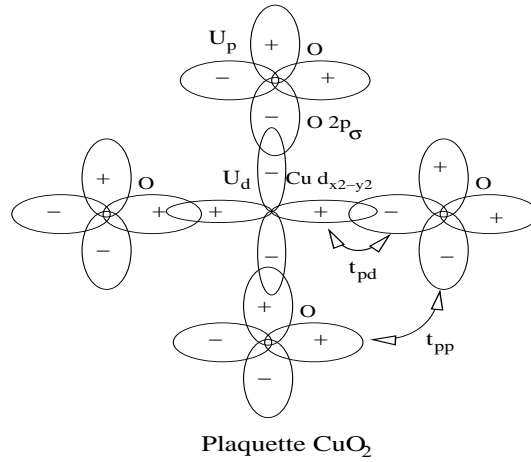


FIG. 1.3 – La figure représente les orbitales de la plaquette CuO_2 qui interviennent dans la physique de basses énergies du système. Les valeurs numériques des termes de saut principaux et d'énergies coulombiennes [8, 159] sont : $U_d \sim 9.5\text{eV}$, $U_p \sim 1\text{eV}$, $U_{pd} \sim 5\text{eV}$, $\epsilon_p - \epsilon_d \sim 3.5\text{eV}$, $t_{pd} \sim 1.5\text{eV}$, $t_{pp} \sim 0.65\text{eV}$, L'échelle d'énergie dominante dans le système est la répulsion coulombienne sur le site du cuivre. On note également que les niveaux électroniques de l'oxygène, ϵ_p , et du cuivre, ϵ_d sont relativement proches et l'intégrale de saut, t_{pd} , entre les ions de cuivre et d'oxygène est élevée.

En résumé, il y a essentiellement trois aspects qui font la spécificité des oxydes de cuivre supraconducteurs à haute température : i) la structure bidimensionnelle et la valeur 1/2 du spin du trou sur le site du cuivre qui renforce les effets quantiques, ii) la domination de l'énergie de répulsion coulombienne sur le site du cuivre qui induit de fortes corrélations, iii) un fort recouvrement des orbitales $3d_{x^2-y^2}$ du cuivre et des orbitales $2p_{\sigma}$ des oxygènes du plan de base.

1.1.3 Une supraconductivité non-conventionnelle

Du point de vue macroscopique, les cuprates supraconducteurs ne sont pas qualitativement très différents des supraconducteurs conventionnels. Les mesures d'effet Josephson[33], de quantification du flux[32] et de RMN[34] ont montré que les porteurs de charge s'appariaient en paires de Cooper dans un état singulet, similaire aux supraconducteurs BCS classiques. Cependant la longueur de cohérence, qui correspond à l'extension spatiale, d'une paire de Cooper dans le plan CuO_2 est de l'ordre de quelques dizaines d'Å, c'est à dire 10 à 100 fois plus petite que dans les supraconducteurs classiques[35]. Notons également que la longueur de cohérence suivant l'axe c , $\sim 4\text{Å}$, est inférieure à la longueur de cohérence dans le plan de base[36]. La supraconductivité est alors souvent supposée siéger uniquement dans les plans CuO_2 .

La supraconductivité dans les oxydes de cuivres est non-conventionnelle, car elle présente un paramètre d'ordre qui est anisotrope. Contrairement au supraconducteur conventionnel dont le paramètre d'ordre est de symétrie "s", le paramètre d'ordre est de symétrie $d_{x^2-y^2}$, Fig.1.4 a). Une telle symétrie signifie non seulement que le paramètre d'ordre change de signe selon la direction, mais aussi qu'il existe des zones de la surface de Fermi,

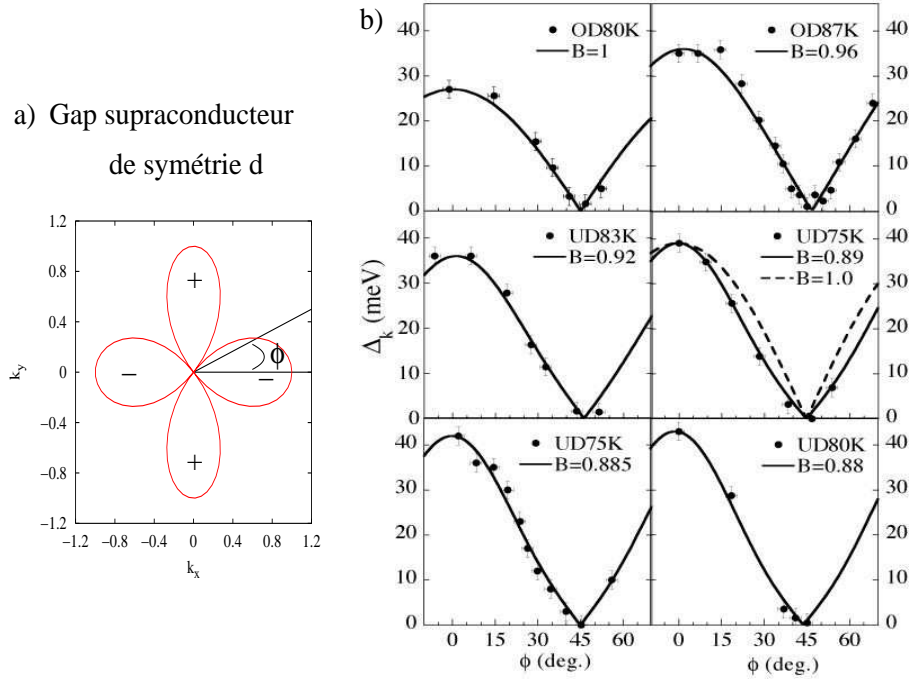


FIG. 1.4 – Sur la figure a) nous représentons le gap supraconducteur de symétrie $d_{x^2-y^2}$ définie dans l'Eq.1.2. Sur la figure b), nous reportons les mesures d'ARPES du gap supraconducteur dans le système Bi2212 à différents taux de dopage du régime sousdopé, "UD", au régime surdopé, OD, d'après [24].

suivant les diagonales, où le gap s'annule. Les expériences sensibles à l'amplitude du gap supraconducteur telles que les mesures spectroscopiques comme l'ARPES [26] où la diffusion Raman électronique[194], ainsi que les mesures de transport telle que la conductivité thermique[30] ont clairement mis en évidence la présence de noeuds dans le gap supraconducteur à 45° des axes cristallographiques. Les expériences de tricristal[31], sensible à la phase du gap supraconducteur, ont permis de prouver que le paramètre d'ordre change de signe selon la direction dans le plan de base. Pour des interactions à courte portée, la dépendance en vecteur d'onde du gap de symétrie "d" s'écrit au premier ordre :

$$\Delta_{\vec{k}} = \Delta_{max}(\cos k_x - \cos k_y)/2 = \Delta_{max}\cos(2\phi) \quad (1.2)$$

où les vecteurs d'ondes k_x et k_y sont les coordonnées du vecteur d'onde \vec{k} dans le plan réciproque du plan CuO_2 . Nous avons également donné l'expression du gap en coordonnée polaire, ϕ est alors l'angle que fait un vecteur d'onde \vec{k} avec l'axe (100). Sur la Fig.1.4 b), nous montrons l'évolution de l'amplitude du gap supraconducteur en fonction de l'angle ϕ , déduit des mesures d'ARPES dans des échantillons de Bi2212 à différents taux de dopage[24]. Dans tout le diagramme de phase, les noeuds du gap supraconducteur sont situés à 45° des axes cristallographiques en accord avec un gap de symétrie $d_{x^2-y^2}$. Les courbes noires correspondent à un ajustement par une fonction $\Delta_{\vec{k}} = \Delta_{max}(B\cos(2\phi) + (1 - B)\cos(6\phi))$, avec $0 < B < 1$ (les valeurs du paramètre B sont indiquées sur les figures). Dans le régime surdopé, le gap supraconducteur est bien décrit par l'Eq.1.2, $B \sim 1$, alors que dans le régime sousdopé, il est nécessaire d'ajouter une seconde harmonique qui diminue la valeur du gap autour des points nodaux. L'origine et la prise en compte de ce

terme supplémentaire est encore débattue[252].

Dans le modèle BCS conventionnel (couplage électron-phonon), le paramètre d'ordre supraconducteur de symétrie s, Δ_s , est directement proportionnel à la température critique : ($2\Delta_s=3.5k_B T_c$). Dans les cuprates, la situation est plus complexe. On observe un rapport $2\Delta_{max} \sim 7-8k_B T_c$ autour du dopage optimal. Dans le régime sousdopé, alors que la T_c diminue, l'amplitude du gap supraconducteur augmente jusqu'à atteindre $10k_B T_c$.

1.2 Supraconductivité et fluctuations magnétiques

1.2.1 Supraconductivité d'origine purement électronique

Bien qu'il n'y ait pas de théorie globale qui permette de décrire la physique des cuprates, la forte répulsion coulombienne entre électrons et la nature quasi bidimensionnelle du plan CuO_2 jouent, selon toute vraisemblance, un rôle important dans l'établissement des propriétés électroniques exotiques et des hautes valeurs de températures critiques. En présence d'une forte répulsion coulombienne intra-site, une paire de Cooper ne peut, en aucune façon, se trouver sur un site unique. Cette contrainte interdit une supraconductivité isotrope et impose au paramètre d'ordre supraconducteur de changer de signe et de comporter des noeuds. La symétrie d du gap supraconducteur est donc naturelle dans ces systèmes. Si les effets coulombiens sont importants, peut-on pourtant envisager raisonnablement l'établissement d'une supraconductivité d'origine purement électronique ? D'une certaine façon cela revient à formuler le paradoxe suivant : les électrons s'attirent parce qu'ils se repoussent.

Ce paradoxe entre répulsion et appariement a été étudié bien avant la découverte des supraconducteurs à haute température critique. En 1965, Kohn et Luttinger [13] ont proposé que les répulsions coulombiennes entre électrons pouvaient induire un état supraconducteur sans l'aide des phonons. En effet, dans un métal corrélé, le processus d'écrantage lié aux corrélations entre électrons fait apparaître un potentiel oscillant à longue portée de la forme : $\cos(2k_F \cdot r)/r^3$ (k_F est le vecteur de Fermi). Il est alors possible de générer un appariement en profitant des zones attractives du potentiel. Par la suite, il a été montré que, allant à l'ordre supérieur du traitement perturbatif de Kohn et Luttinger, l'opérateur de polarisation véhiculait des fluctuations ferromagnétiques qui pouvaient renforcer l'attraction effective entre électrons. L^3He superfluide a été la première réalisation d'un tel système[14]. De même, avant la découverte des cuprates, il a été proposé que les fluctuations antiferromagnétiques pouvaient être à l'origine d'une supraconductivité de symétrie d dans certains composés à fermions lourds[61], ainsi que dans les sels de Bechgaard[60]. Dans la mesure où la supraconductivité s'établit dans les cuprates au voisinage d'un état AF, il devenait raisonnable de considérer un mécanisme d'appariement par échange des fluctuations AF ou directement par l'intermédiaire du super-échange AF. En effet, quand il règne un "ordre AF local", un électron est entouré d'une région finie de polarisation AF. Un autre électron est attiré par cette polarisation en raison de l'interaction d'échange locale. Le boson échangé n'est plus un phonon mais des fluctuations AF, conduisant à la formation de paires de symétrie d.

Dans les cuprates, l'antiferromagnétisme est présent dans l'état isolant. Dans l'état métallique des corrélations AF dynamiques et à courtes portées persistent. Ces fluctuations sont très intenses dans le régime sousdopé, mais leurs poids spectraux se réduisent rapidement au fur et à mesure que le dopage en trous augmente. Dans le régime surdopé, l'intensité de ces fluctuations diminue jusqu'à devenir non détectable^{??}. Or le dôme supraconducteur est parfaitement symétrique de part et d'autre du dopage optimum : les valeurs de T_c sont toutes aussi élevées dans le régime sousdopé que dans le régime surdopé. De plus, dans un scénario où les fluctuations antiferromagnétiques sont à la base du mécanisme d'appariement, nous nous attendons à trouver la valeur maximum de T_c là où l'antiferromagnétisme est le plus important comme dans les fermions lourds. Ce n'est pas le cas dans les cuprates, Fig.1.2, le dopage optimum est loin de l'état isolant AF. Nous pouvons alors nous poser la question du rôle réel de l'interaction AF dans le mécanisme d'appariement.

Les oxydes de cuivre ne se distinguent pas des supraconducteurs conventionnels uniquement par la symétrie du paramètre d'ordre supraconducteur, mais aussi par les très grandes valeurs de Δ_{\max} , le maximum du gap supraconducteur (Eq.1.2), qui atteint plusieurs dizaines de meV. Alors que le gap des supraconducteurs conventionnels varie suivant les composés de 1.7 à $2 k_B T_c$, le rapport entre Δ_{\max} et $k_B T_c$ diminue dans les cuprates avec le dopage, pouvant aller de 5 dans le régime sousdopé à 2.5 dans le régime surdopé. Pour des supraconducteurs conventionnels, la mise en cohérence des paires de Cooper permet d'augmenter la température supraconductrice et de l'énergie d'appariement. À l'opposé, les interactions dans les cuprates sont telles que des paires pourraient se former à haute température de façon indépendante. La cohérence de phase ne s'établirait alors qu'en abaissant la température (selon un processus peut-être similaire à une condensation de Bose). À cela il faut ajouter le fait que les cuprates ont un caractère fortement 2D. Si l'appariement résulte d'une interaction attractive dans les plans de base, un appariement purement planaire est instable. La supraconductivité est obligatoirement 3D. La température critique dépend également de la capacité des paires de Cooper à se déplacer perpendiculairement aux plans de base.

Le fait que la supraconductivité ne soit pas la plus intense là où les fluctuations AF sont les plus fortes n'est pas un bon argument pour rejeter un mécanisme d'origine magnétique pour la supraconductivité de symétrie d dans les cuprates. Le vrai problème réside d'ailleurs dans le traitement des interactions entre électrons.

1.2.2 Modélisation du plan CuO_2 : brève revue des modèles

Un grand débat est ouvert autour de la question de savoir si les cuprates sont des liquides de Fermi conventionnels ou marginaux, des liquides de Luttinger ou encore des liquides de stripes. La différence entre ces approches réside dans la façon dont les interactions sont prises en compte.

Le hamiltonien le plus simple pour tenir compte des corrélations électroniques est le Hamiltonien de Hubbard :

$$H = - \sum_{i,j,\sigma} t_{ij} c_{i,\sigma}^\dagger c_{j,\sigma} + U \sum_i n_{i,\uparrow} n_{i,\downarrow} \quad (1.3)$$

où $c_{i,\sigma}^\dagger$ ($c_{i,\sigma}$) sont les opérateurs de création (d'annihilation) fermioniques usuels en seconde quantification, $n_i = c_{i,\sigma}^\dagger c_{i,\sigma}$ est l'opérateur de nombre d'occupation dans l'état $|i\rangle$. Les termes t_{ij} correspondent aux termes de saut entre le site i et le site j et U la répulsion coulombienne. Suivant le rapport U/t , cet Hamiltonien est traité soit dans la limite couplage fort, $U \gg t$, soit dans la limite couplage faible, $U \ll t$.

Dans les oxydes de cuivre, l'approche minimaliste serait de traiter le modèle de Hubbard à trois bandes (bandes de Hubbard supérieure et inférieure du cuivre et la bande de l'oxygène). En pratique, on considère le plan comme pavé de plaquettes CuO_2 et l'on se limite à traiter un modèle effectif à une seule bande dans une limite de couplage fort ou faible.

Limite couplage faible, $U \ll t$

La limite $U/t < 1$ n'est pas considérée comme une limite très réaliste pour les cuprates. Cependant loin de la transition isolant métal et plus précisément dans le régime surdopé, elle semble offrir une description simple du plan CuO_2 . Dans les théories de couplage faible, les quasiparticules sont des fermions faiblement corrélés par la répulsion intra-site U et les corrélations magnétiques sont traitées comme des perturbations. On retrouve alors les concepts habituels d'un liquide de Fermi classique avec des quasiparticules bien définies au niveau de Fermi. L'interaction U est traitée en perturbation (approximation RPA), ce qui donne pour la susceptibilité magnétique l'expression habituelle [214, 212, 213, 216, 211, 215] :

$$\chi_{RPA} = \frac{\chi_0}{1 - U\chi_0} \quad (1.4)$$

où χ_0 est la susceptibilité magnétique sans interaction, que l'on peut calculer de façon exacte, pour peu que la relation de dispersion des quasiparticules, donc la surface de Fermi, soit connue. Les mesures de photo-émission résolue en angle (ARPES) permettent d'accéder à de telles informations. Ces mesures montrent une large surface de Fermi, dont le volume est égal à $1+\delta$ en accord avec le théorème de Luttinger. Il devient alors possible de calculer la susceptibilité de spin et de la comparer au spectre d'excitations magnétiques mesuré par diffusion de neutrons. Les propriétés du système sont alors essentiellement contrôlées par les effets de Nesting de la surface de Fermi et par la proximité de la singularité de Van Hove au demi remplissage.

Dans cette limite et dans l'hypothèse d'un rôle du magnétisme dans le mécanisme de la supraconductivité, l'appariement supraconducteur résulte d'un échange de fluctuations AF et la susceptibilité de spin entre directement dans le calcul du paramètre d'ordre supraconducteur. Cependant, l'entrée dans la phase supraconductrice modifie la susceptibilité de spin, ce qui peut renforcer ou au contraire détruire la supraconductivité. La méthode nommée FLEX permet de prendre en compte de façon auto-cohérente cet effet

de feedback entre la susceptibilité de spin et la supraconductivité[62].

Limite couplage fort, $U \gg t$

Dans la limite de couplage fort, l'énergie coulombienne est forte par rapport à la largeur de bande ce qui conduit à une localisation de Mott pour un système demi-rempli ($\delta = 0$). Le plan CuO_2 est décrit comme constitué par des plaquettes CuO_2 avec 3 états de base. Les états $|1\rangle$ et $|-1\rangle$ correspondent à l'absence de trou de dopage et un spin $1/2$ sur le cuivre. L'état $|0\rangle$ est un état où un trou de dopage, délocalisé sur les quatre oxygènes entourant un cuivre, forme un état singulet avec le trou sur le cuivre : singulet de Zhang et Rice[18]. Notons que des mesures récentes de photoémission résolue en spin sur le composé Bi2212 au dopage optimum semblent confirmer l'existence d'un tel état singulet[21, 22]. La physique de basse énergie du plan CuO_2 dopé peut être décrite par un Hamiltonien de Mott-Hubbard effectif à une seule bande [233, 23, 223, 211]. En couplage fort, le Hamiltonien de Hubbard se ramène au modèle t-J

$$H = - \sum_{i,j,\sigma} t_{ij} \tilde{c}_{i,\sigma}^\dagger \tilde{c}_{j,\sigma} + \sum_{i,j} \left(J \vec{S}_i \vec{S}_j - \frac{n_i n_j}{4} \right) \quad (1.5)$$

Les opérateurs $\tilde{c}_{i,\sigma} = c_{i,\sigma}(1 - n_{i,-\sigma})$ permettent de décrire le saut des trous de dopage d'un site à un autre tout en respectant l'interdiction de double occupation des sites. Le terme $J=4t^2/U$ est l'intégrale d'échange entre spins premiers voisins. La connection avec l'état AF Heisenberg ($S=1/2$) est évidente à dopage nul. La difficulté arrive avec le dopage, le déplacement du trou de dopage est alors associé au saut du singulet qui entraîne dans son "sillage" des fluctuations de spins. Cette entité est un objet complexe qui n'obéit plus à une statistique de Fermi-Dirac (l'anticommutateur de $\tilde{c}_{i,\sigma}^\dagger$ et son complexe conjugué n'anticommutent plus), ni même à une statistique de Bose-Einstein. Il n'existe pas à l'heure actuelle de méthode rigoureuse permettant de traiter cet Hamiltonien. Les différentes méthodes utilisées consistent à introduire des (quasi)-bosons et (quasi)-fermions associés à des particules auxiliaires qui permettent de décrire des degrés de libertés du spin et de la charge, ainsi que les aspects localisés et itinérants : les spinons et les holons[234, 19]. La difficulté est que ces particules auxiliaires ne reflètent pas de vrais entités mesurables.

Le terme le plus important du modèle t-J est l'interaction d'échange J qui va être responsable non seulement des corrélations antiferromagnétiques, mais aussi être le vecteur d'une interaction directe attractive conduisant à la supraconductivité. Dans ce type d'approche, le rôle des fluctuations magnétiques est de renforcer l'effet de l'interaction à courte portée de J . Il apparaît alors un couplage AF effectif qui dépend de la susceptibilité magnétique. La réponse magnétique du système prend une forme :

$$\chi_{RPA-like} = \frac{\tilde{\chi}}{1 - J\tilde{\chi}} \quad (1.6)$$

où $\tilde{\chi}$ est la susceptibilité sans interaction. Celle-ci prend une forme qui dépend du traitement du Hamiltonien t-J. Dans le cadre de ce manuscrit, nous considérons essentiellement, les approches dites itinérantes pour lesquelles la susceptibilité sans interaction est formellement identique à celle utilisée dans un modèle de couplage faible : $\tilde{\chi} \simeq \chi_0$

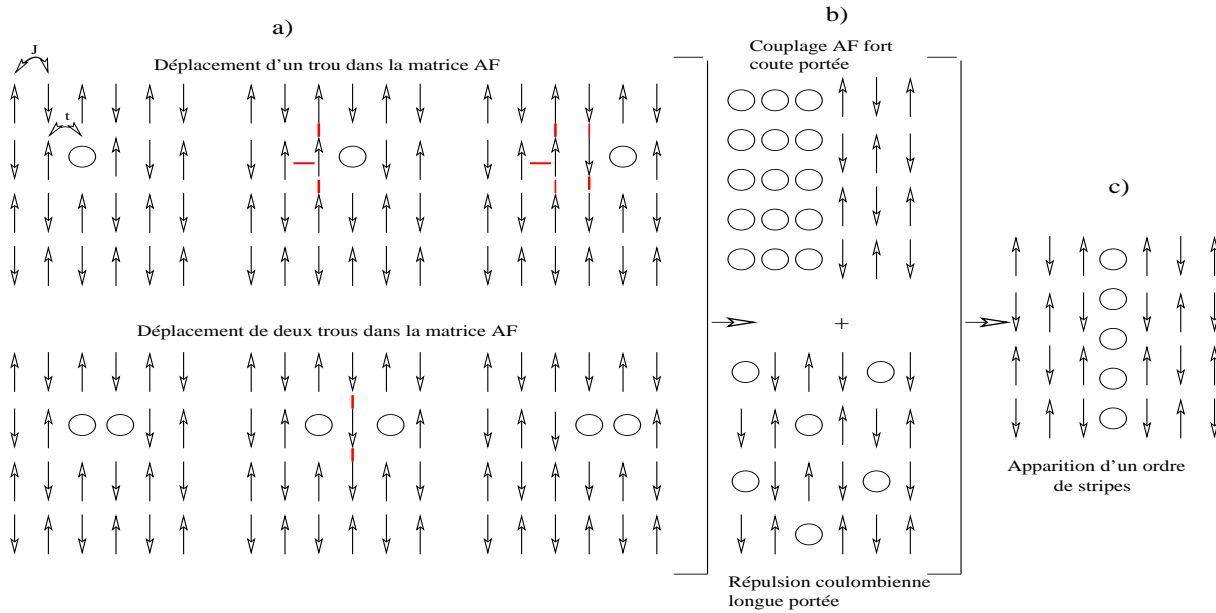


FIG. 1.5 – Sur la figure a), nous schématisons le mouvement d'un trou puis de deux trous de dopage dans un réseau de spins ordonné antiferromagnétiquement. Le mouvement du trou engendre des ruptures de liaisons antiferromagnétiques. Le passage d'un deuxième trou dans le sillon du premier permet de rétablir les liens AF. Pour minimiser la frustration magnétique, les trous se rassemblent dans des grandes poches. Mais la répulsion coulombienne inter-site provoque le déconfinement des trous et la combinaison des deux effets conduit à la formation de lignes de charges : les stripes[11, 15], figure c).

Couplage fort et ségrégation de charge : image des stripes

Dans la limite des faibles dopages, de nombreux calculs exacts sur des petits clusters ont été réalisés sur la base du modèle t-J. Ces calculs indiquent une tendance très prononcée du système à la ségrégation de charges. Pour comprendre cela de façon très qualitative, nous schématisons l'évolution d'un trou de dopage dans une matrice AF, Fig.1.5 a) : à mesure que le trou de dopage se déplace, il casse des liaisons AF sur son passage. Si un deuxième trou suit le même sillage, il rétablit les liaisons AF. Ainsi, pour minimiser le nombre de liens antiferromagnétiques brisés, les trous devraient se rassembler dans une unique grande poche et nous devrions observer une ségrégation de phase macroscopique des spins localisés et des trous de dopage. Les effets de répulsion coulombienne inter-site, qui ne sont pas inclus dans le modèle t-J devraient conduire au déconfinement des porteurs de charge. La combinaison de ces deux effets antagonistes, Fig.1.5 b), conduit à la formation de parois de discommensuration, dessinant des lignes dans les plans CuO_2 dans lesquelles viennent se loger les trous : "les stripes"[11, 15, 245], Fig.1.5 c). Ces parois (riches en trous de dopage) séparent des zones (pauvres en trous) où s'établit un ordre antiferromagnétique avec une aimantation alternée (déphasage de π) au franchissement de chaque ligne de discommensuration. Les développements récents de cette approche sont donnés dans les références [244, 245].

Dans les mesures de diffraction, un ordre de stripes suivant l'axe b implique l'existence : i) de nouveaux pics de Bragg nucléaires aux vecteurs d'onde $\vec{k} = (2\pi/a)(\pm 2\epsilon, 0)$

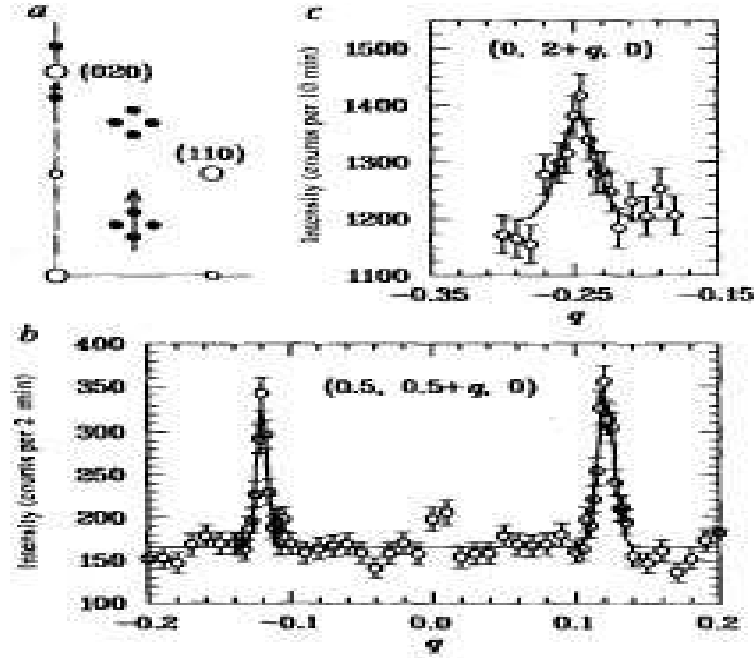


FIG. 1.6 – Mise en évidence par diffusion inélastique des neutrons d'un ordre de stripes dans le système $\text{La}_{1.6-x}\text{Nd}_{0.4}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ à la concentration $1/8$ correspondant à la suppression de la supraconductivité[123]. La figure a) est un schéma de la première zone de Brillouin où les cercles pleins représentent les pics de Bragg associés à l'ordre de charge et de spin. Les cercles vides correspondent à la position des pics de Bragg. Les coupes en vecteur d'onde des figures c) et b) sont représentées par des flèches noires. Sur la figure c), on observe le pic de sur-structure nucléaire et sur la figure b) les pics de sur structures magnétiques. Le système étant tétragonal, les stripes s'alignent indifféremment suivant les axes a et b engendrant 4 spots magnétiques autour du vecteur d'onde AF et non uniquement 2 spots.

(avec leurs harmoniques) où $1/(2\epsilon)$ est la distance entre stripes et ii) de nouveaux pics de Bragg magnétiques aux vecteurs d'onde $\vec{k} = (2\pi/a)(0.5 \pm \epsilon, 0)$. Les premières structures ordonnées de type stripe ont été observées par diffusion des neutrons dans les nickelates isolants [124]. Puis l'observation d'images de diffraction compatible avec un tel ordre dans les cuprates a été réalisée dans le système $\text{La}_{1.6-x}\text{Nd}_{0.4}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ($x \sim 1/8$)[123]. Nous montrons sur la Fig.1.6 le pic de surstructure nucléaire associé aux lignes de charges, situé en $(0, 2-2\epsilon, 0)$, ainsi que les pics magnétiques en $(0.5, 0.5 \pm \epsilon, 0)$ avec $\epsilon = 1/8 \simeq x$. Dans le composé, $\text{La}_2\text{Ba}_x\text{CuO}_4$, la supraconductivité est détruite autour de la concentration $x=1/8$. On observe alors l'image de diffraction, compatible avec celle attendue pour un système de stripes ordonnés.

Notons, toutefois, qu'à l'exception des composés $\text{La}_2\text{M}_x\text{CuO}_4$ ($M=\text{Sr}, \text{Ba}$), pour lesquels la température critique n'excède pas les 40K, il n'y a pas réellement d'autre composé présentant des indications en faveur de stripes. De plus, les composés dopés en électrons présentent des fluctuations AF commensurables : les stripes, s'ils existaient, seraient spécifiques des composés dopés en trous. Comme, la supraconductivité apparaît dans le diagramme de phase aussi bien pour le dopage en trous qu'en électrons, il est raisonnable de penser que les stripes représentent au mieux une phase en compétition

avec la supraconductivité.

1.3 Structure de bande et surface de Fermi vues par photo-émission résolue en angle

La photo-émission résolue en angle (ARPES)[26, 27] est une technique de surface qui permet d'obtenir l'énergie et le vecteur d'onde d'un état électronique occupé en dessous du niveau de Fermi. On utilise l'effet photo-électrique : un photon de haute énergie, typiquement de l'ordre de 20eV, est sélectionné par un monochromateur puis envoyé sur la surface clivée d'un monocristal sous ultra vide. Un photoélectron est alors émis de l'échantillon, la direction d'émission, vecteur d'onde \vec{k} , est mesurée par un écran fluorescent et l'énergie, ω , par un spectromètre avec une résolution comprise entre 10meV et 20meV. La technique d'ARPES nécessite une bonne qualité de surface, de ce fait, les études sont essentiellement réalisées sur le composé Bi2212 qui se clive naturellement. Notons que le composé Y123 sur lequel porte se travail de thèse n'a pas une qualité de surface suffisante et a été relativement peu étudié par ARPES

Pour des interactions faibles, un photon entraîne l'émission d'un électron et la création d'un trou dans la bande à une énergie ϵ_k . Pour de fortes interactions, l'électron est "habillé par les corrélations", en émettant un électron, on réalise une excitation individuelle (ϵ_k) ainsi qu'un nuage d'excitations collectives (à plus haute énergie). En pratique, l'ARPES donne accès à la fonction spectrale, $A(\vec{k}, \omega)$ du trou résultant de l'émission du photo-électron. La fonction spectrale du trou prend la forme d'une lorentzienne[26, 27] :

$$A(\vec{k}, \omega) = \frac{\Sigma''(\vec{k}, \omega)}{(\omega - \epsilon_k - \Sigma'(\vec{k}, \omega))^2 + (\Sigma''(\vec{k}, \omega))^2} \quad (1.7)$$

où ϵ_k est l'énergie du trou en l'absence d'interactions. Les corrections liées aux corrélations électron-électron sont exprimées en terme de "self énergie" : $\Sigma(\vec{k}, \omega) = \Sigma'(\vec{k}, \omega) + i\Sigma''(\vec{k}, \omega)$. Si l'on considère des processus de diffusion par des fluctuations magnétiques, $\Sigma''(\vec{k}, \omega)$ est proportionnelle au produit de convolution entre $g_{k,q}^2 \chi''(\vec{q}, \Omega)$ et $A(\vec{k} - \vec{q}, \omega - \Omega)$, où $g_{k,q}$ est le couplage entre les fluctuations magnétiques et les trous (couplage spinon-fermion). $\Sigma''(\vec{k}, \omega)$ et $\Sigma'(\vec{k}, \omega)$ sont reliés par les relation de Kramers-Krönig. De fait les mesures de $A(\vec{k}, \omega)$ par ARPES et de $\chi''(\vec{q}, \Omega)$ par DIN sont étroitement liées et sont indispensables à la détermination de la constante de couplage g .

L'ARPES permet de mesurer la dispersion des quasiparticules et la topologie de la surface de Fermi, en localisant la position du pic de quasiparticule dans la première zone de Brillouin. Dans le régime optimum et dans le régime sousdopé, il n'y a pas de pic de quasiparticule bien défini mais une structure très large et incohérente. Il est néanmoins possible de déterminer une surface de Fermi définie comme étant le lieu des excitations sans gap. Sur la Fig.1.7, nous montrons des exemples de mesures de surface de Fermi par ARPES. On observe sur cette figure l'évolution, à température ambiante, de la surface de Fermi dans le système Bi2212 du régime sousdopé, échantillon "UD", au régime surdopé, échantillon "OD" [258]. Dans tout le diagramme de phase, la surface de Fermi serait de

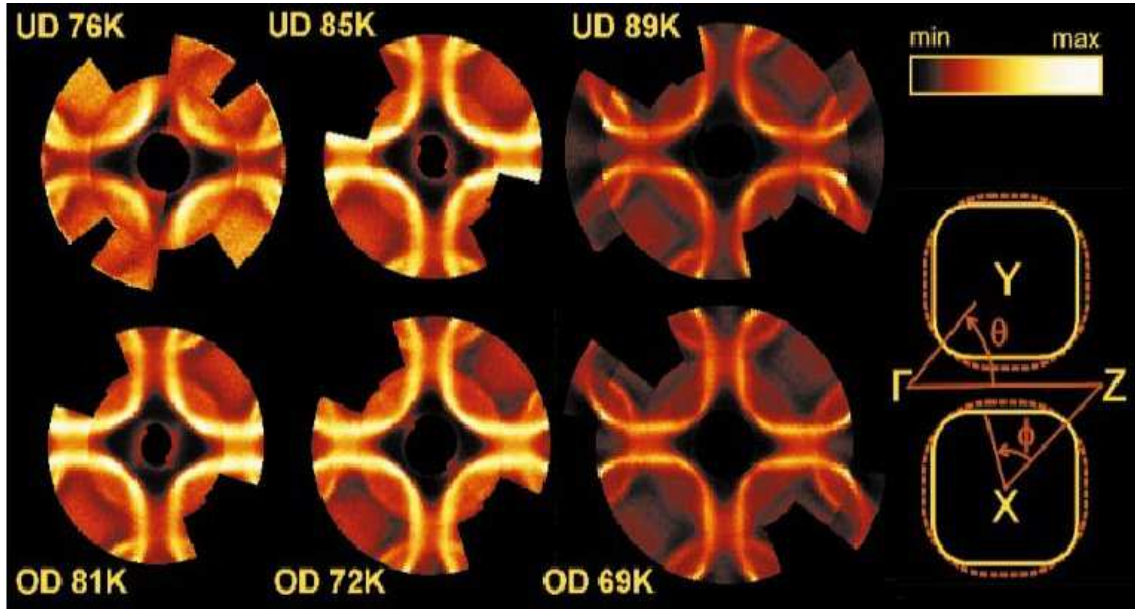


FIG. 1.7 – Mesures de la surface de Fermi dans Bi2212 à température ambiante par ARPES[258]. Les mesures ont été réalisées dans des échantillons sousdopés, "UD", et surdopés, "OD", dont les T_c sont indiquées sur les figures. Les lignes d'intensité maximales indiquent le niveau de Fermi.

type trou, c'est à dire centrée aux points $(\pm\pi, \pm\pi)$ (points X et Y). De façon surprenante, son volume serait de $1+\delta$ trous et non de δ trous uniquement. Ceci signifie que les porteurs ne sont pas uniquement les trous de dopage mais plutôt une bande composée à la fois des trous sur Cu de l'isolant et des trous ajoutés par le dopage. A mesure que le dopage augmente, on observe nettement une augmentation du volume des poches de trous qui se traduit par l'apparition de lignes parallèles, autour des points $(\pi, 0)$, de plus en plus grandes. Ainsi, dans le régime sousdopé, la surface de Fermi est quasiment ronde et elle devient carré dans le régime surdopé. En outre, dans le composé Bi2212, on n'observe pas de transition vers une surface de Fermi de type électrons, centrée au centre de zone, comme observée dans LSCO[260].

Les mesures d'ARPES sont compatibles avec une modélisation, de type liaisons fortes, de la relation de dispersion[218, 257, 219] :

$$\begin{aligned} \epsilon_{\vec{k}} = & -2t_0(\cos(k_x) + \cos(k_y)) - 4t_1\cos(k_x)\cos(k_y) - 2t_2(\cos(2k_x) + \cos(2k_y)) \\ & -2t_3(\cos(2k_x)\cos(k_y) + \cos(k_x)\cos(2k_y)) - 2t_4\cos(2k_x)\cos(2k_y) - \mu \end{aligned}$$

Sur la Fig.1.8 b), nous traçons, dans la première zone de Brillouin, la surface de Fermi en utilisant les paramètres d'ajustement de la référence[257]. Sur la même figure, nous superposons la dépendance angulaire du gap supraconducteur, Eq.1.2. Les points dits "nodaux", le long des directions $(\pm\pi/2, \pm\pi/2)$ (vecteur d'onde nodal, k_N), sont les points de la surface de Fermi, où la valeur du gap est nulle contrairement aux points dits "antinodaux" (points M), le long des directions $(\pm\pi, 0)$ et $(0, \pm\pi)$, où la valeur du gap est maximum. Les points dits "chauds" correspondent aux points de la surface de Fermi connectés par le vecteur d'onde antiferromagnétique, $q_{AF}(\pi, \pi)$.

Dans le composé bicouche Bi2212, l'amélioration de la résolution en énergie a contribué à la mise en évidence des bandes liante et antiliante [253, 254, 257, 255, 259], résultant

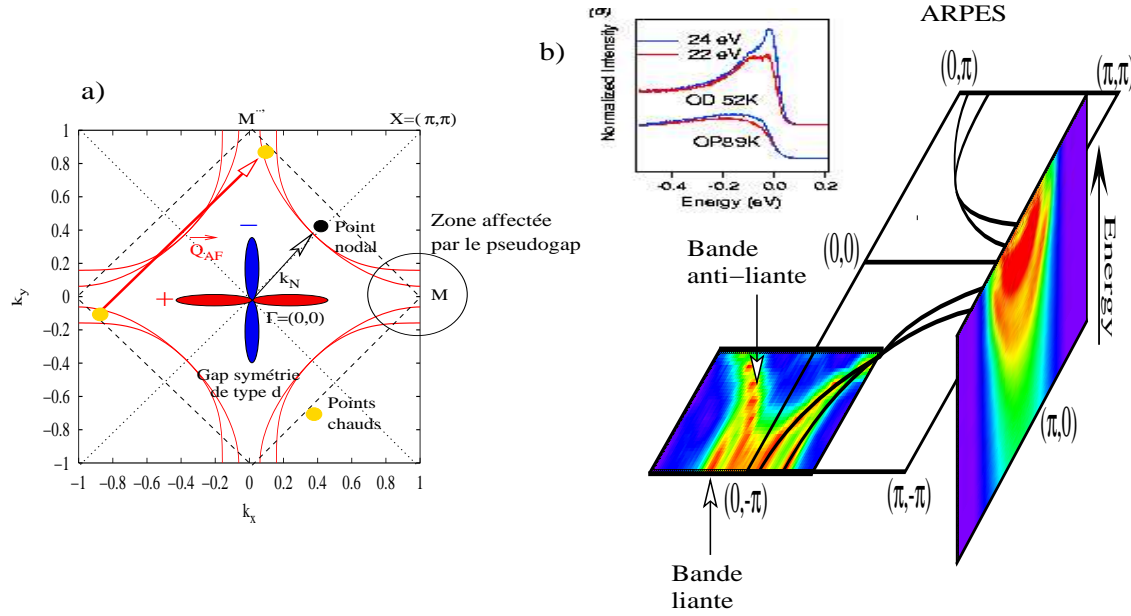


FIG. 1.8 – Sur la figure a), nous traçons la surface de Fermi mesurée dans un échantillon de Bi2212 surdopé ($T_c=69K$) et ajustée par un modèle de liaisons fortes[257]. Sur cette figure, nous représentons le gap supraconducteur, Eq.1.2, et nous indiquons les points importants de la physique des cuprates (voir texte). Sur la figure b), nous montrons les mesures d'ARPES dans un échantillon surdopé de Bi2212 ($T_c = 55K$). Le dédoublement de la surface de Fermi apparaît clairement autour du point $(0, -\pi)$ et disparaît à mesure que l'on se rapproche de la diagonale. En modifiant l'énergie des photons incidents, l'ARPES peut sélectionner soit la bande liante soit la bande antiliante.

du couplage des plans de la bicouche par un terme de saut interplan t_{\perp} tel que : $\epsilon_{\vec{k}\pm} = \epsilon_{\vec{k}} \pm t_{\perp}(\cos(k_x) - \cos(k_y))/2$.

Sur le Fig.1.8 b), nous montrons la mesure ARPES de la surface de Fermi dans un échantillon de Bi2212 surdopé ($T_c=52K$). On observe le dédoublement de la surface de Fermi autour du point $(0, -\pi)$. Celui-ci devient de moins en moins prononcé à mesure que l'on se rapproche des points antinodaux. Selon les auteurs la valeur du t_0 varie entre 150meV[218] et 400meV[257]. Le rapport U/t_0 est donc bien inférieur à 1, justifiant ainsi la limite couplage fort du traitement du Hamiltonien de Hubbard, Eq.1.5.

Les valeurs de t_{\perp} sont de l'ordre de 10meV[257, 259, 257]. Les calculs LDA[264, 265, 266] montrent que les contributions de sauts interplan les plus importantes sont celles entre les orbitales 4s des Cu_2 (voir Fig.1.1 b) pour le label des atomes) de chaque plan et entre l'orbitale 4s d'un cuivre Cu_2 dans un plan avec les orbitales 2px et 2py des atomes d'oxygènes O(2,3) voisins dans l'autre plan. Notons que les orbitales de l'ion Y^{3+} dans l'expression LDA du t_{\perp} n'interviennent pas. De ce fait, la substitution de l'ion Y^{3+} par l'ion Ca^{2+} , ne devrait pas avoir de conséquence sur l'amplitude du dédoublement de la surface de Fermi.

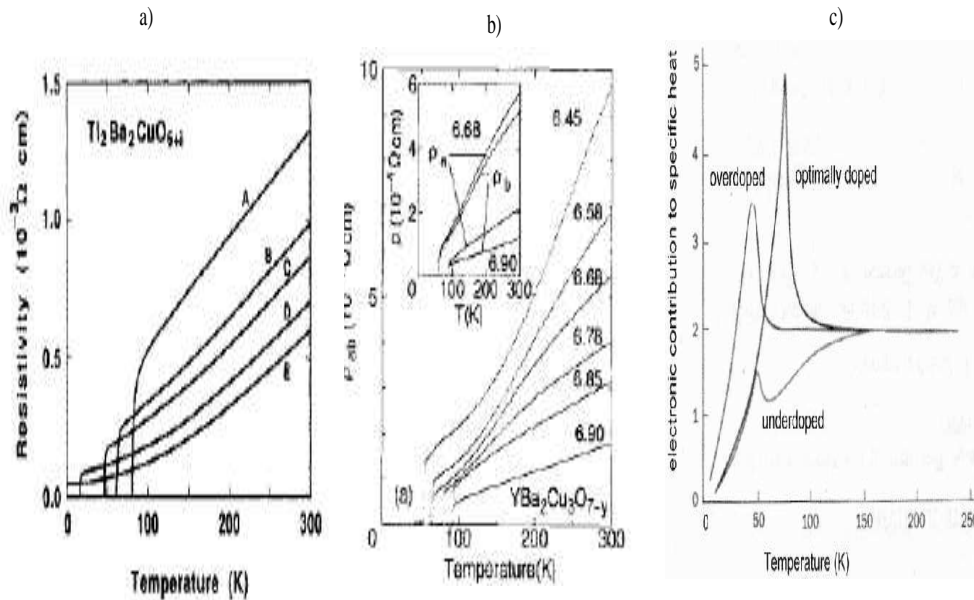


FIG. 1.9 – Sur la figure a) nous reportons l'évolution de la résistivité planaire en fonction de la température dans le régime surdopé du composé $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+\delta}$ [43] pour différentes valeurs de T_c : A=81K, B=62K, C=47K, D=16K et E=0K (échantillon le plus surdopé). Sur la figure b), nous reportons l'évolution de la résistivité planaire en fonction de la température dans le régime sousdopé et autour du dopage optimum dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ [44]. Enfin sur la figure, nous reportons la contribution électronique à la chaleur spécifique déduite des mesures de chaleur spécifique[49].

1.4 Etat "normal" : un métal exotique ?

Contrairement à l'état supraconducteur qui présente une symétrie par rapport au dopage optimum, les propriétés physiques de l'état normal (c'est à dire non supraconducteur) varient énormément en passant du régime sousdopé au régime surdopé. Alors que le régime surdopé présente un état normal proche d'un liquide de Fermi de Landau, le régime sousdopé présente des propriétés métalliques plus exotiques qui échappent à une description en terme de liquide de Fermi[63].

Le régime surdopé

Les mesures d'ARPES dans le régime surdopé montrent des pics de quasiparticules bien définis au niveau de Fermi[25, 253, 254] comme attendu dans un métal standard[26]. La résistivité dans l'état normal suit une loi en T^2 [43]. Nous reportons sur la Fig1.9 a) les mesures de résistivité planaire dans le régime surdopé et au voisinage du dopage optimum de Tl-2201[43]. On observe que le comportement en température de la résistivité est en T^2 dans le régime surdopé, comme attendu dans un liquide de Fermi. En approchant du dopage optimum, celui-ci devient de plus en plus linéaire (comportement non liquide de Fermi). La loi de Widemann-Franz est bien vérifiée dans le régime très surdopé[45] de Tl-2201 ce qui indique que les quasiparticules du système peuvent être décrites au sens de Landau usuel. Cette mesure est confirmée par les mesures d'ARPES dans LSCO[46] qui montrent l'existence d'un pic cohérent de quasiparticules. Le magnétisme dans l'état sur-

dopé semble également usuel. La susceptibilité uniforme mesurée par la RMN de l'oxygène est presque indépendante de la température comme attendu pour une susceptibilité de Pauli [47].

Le régime sousdopé

Dans l'état normal du régime sousdopé, on observe l'ouverture d'un "pseudo-gap" dans le spectre des excitations de spins et de charges en dessous d'une température T^* ($> T_c$). La température T^* disparaît à l'approche de T_c^{max} . Dans les mesures d'ARPES, le pseudo-gap se manifeste par une perte de poids spectral sur des portions de la surface de Fermi autour des points antinodaux[53]. Sur la Fig.1.8 a), nous encerclons les régions de la surface de Fermi affectées par le pseudogap. Dans la mesure où le gap supraconducteur est également maximum dans les mêmes régions de la zone de Brillouin, le pseudo-gap est souvent décrit comme ayant la même "symétrie" que le gap supraconducteur. Il s'agit d'un abus de langage qui met l'accent sur les portions de la surface de Fermi affectées par le pseudo-gap. En fonction de la température, le pseudogap commence à s'ouvrir aux points antinodaux puis s'étend vers les directions $(0,0)$ - (π, π) [53].

Les mesures de $1/T_1T$ par RMN[56, 57] du cuivre montrent une perte progressive des fluctuations AF de basses énergies en dessous de T^* . Les mesures de $1/T_{2g}$, qui sonde la susceptibilité AF statique, indiquent une saturation dans la même gamme de température[58]. Les mesures de diffusion inélastique des neutrons montrent que les fluctuations de basses énergies ne disparaissent pas complètement[99]. L'ensemble de ces mesures met en relief un transfert de poids spectral des fluctuations magnétiques vers les hautes énergies, correspondant à l'ouverture d'un pseudo-gap de spin.

Les pseudo-gaps de spin et de charge apparaissent dans la même gamme de température. De plus, les portions de la surface de Fermi sont généralement celles qui sont connectées par le vecteur d'onde AF et donc pour lesquelles les "quasiparticules" sont le plus susceptibles de subir les effets de collision avec les fluctuations AF.

Les mesures macroscopiques sont également sensibles à l'ouverture du pseudo-gap. Sur la Fig.1.9 a), on observe que la résistivité dans les plans dévie du comportement linéaire dans le sousdopé autour d'une température caractéristique T^* [44, 270]. Perpendiculairement aux plans CuO_2 , la résistivité passe d'un comportement métallique à un comportement isolant en dessous de T^* [48]. Les anomalies apparaissent également dans les mesures de chaleur spécifique. Nous montrons sur la Fig.1.9 c) l'évolution de la contribution électronique à la chaleur spécifique[48, 49]. Dans l'état normal, on observe une suppression de la contribution électronique de plus en plus marquée à mesure que l'on se rapproche de l'état AF pour des températures inférieures à 250K. Cette suppression a été interprétée comme la signature du pseudogap.

L'origine du régime pseudogap n'est pas encore élucidée. Deux approches s'opposent. Pour la première, le pseudo-gap est une propriété intrinsèque à l'état supraconducteur. Il pourrait par exemple être constitué soit par les paires supraconductrices préformées non cohérentes ou soit par une phase supraconductrice fluctuante. Dans le modèle RVB[19, 20], le spin et la charge sont découplée en spinons (fermions) et holons (bosons). Le pseudo-gap est alors associé à l'appariement des spinons, ce qui donne une sorte de "superfluide neutre" de symétrie d et singulet de spin. La supraconductivité nécessite qu'il y ait en plus une condensations de Bose des holons (La température de condensation de Bose augmente

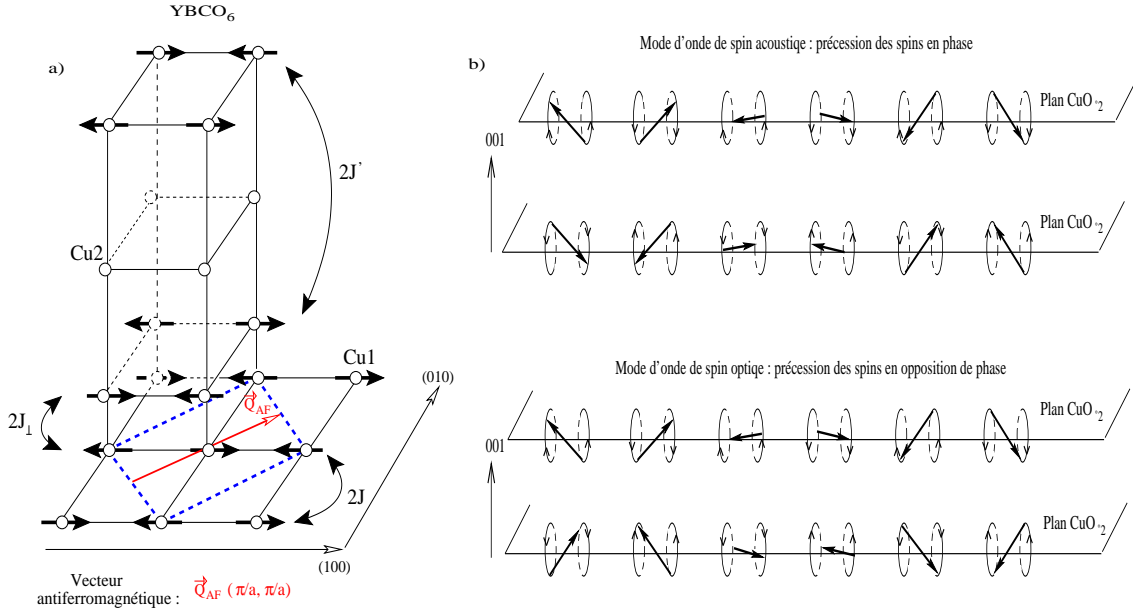


FIG. 1.10 – Sur la figure a), nous montrons la maille antiferromagnétique de YBCO₆. Nous indiquons les différents termes de couplages magnétiques observés par DIN. Comme il y a deux spins par maille magnétique, le spectre des ODS se décompose en un spectre acoustique et un spectre optique. Pour les modes acoustiques, les fluctuations de spins sont en phases d'un plan CuO₂ à l'autre, alors que pour les modes optiques, les fluctuations sont en opposition de phase.

linéairement avec le dopage en trous). Dans la seconde approche, le pseudogap est une propriété extrinsèque, qui met en relief l'existence d'une phase désordonnée ou ordonnée qui est en compétition ou coexiste avec la supraconductivité (onde de densité de spin[224], onde de densité de charge non-conventionnelle[207], liquide de stripes[11, 15, 245], courant orbitaux de Varma[16]).

1.5 Le spectre des excitations de spin vue par diffusion inélastique des neutrons (DIN)

1.5.1 L'état antiferromagnétique

A dopage nul, le système est un isolant AF ($S=1/2$) caractérisé par le vecteur d'onde antiferromagnétique $\vec{Q}_{AF} = (\pi/a, \pi/a, 0)$, représenté sur la Fig.1.10. Les petites déviations par rapport à l'ordre AF correspondent aux ondes de spins ou magnons que l'on mesure par diffusion inélastique des neutrons(DIN). Nous considérons à présent le cas du composé bicouche YBa₂CuO₆ dont l'état antiferromagnétique ($T_N=410$ K) est décrit par le Hamiltonien de Heisenberg :

$$H = \underbrace{\sum_{\langle i,j \rangle} J \vec{S}_i \vec{S}_j}_{\text{dans le plan}} + \underbrace{\sum_i J_{\perp} \vec{S}_i^1 \vec{S}_i^2}_{\text{biplan}} + \underbrace{\sum_{i,i'} J' \vec{S}_i \vec{S}_{i'}}_{\text{entre biplans}} \quad (1.8)$$

Les indices 1 et 2 correspondent aux spins d'un plan CuO₂ à l'autre à l'intérieur d'un même biplan. Le spin "i'" est situé dans la biplan au dessus du spin "i".

La Fig.1.10 a) indique sur la maille magnétique de YBCO₆ les différents termes de couplages magnétiques : J, l'interaction de super-échange entre atomes de cuivre proches voisins dans le plan de base, J_⊥, l'échange inter-plan dans la bicouche, et J', le couplage magnétique entre bicouche d'une maille à l'autre [120, 92, 55]. Le spectre des ondes de spin a été étudié par diffusion des neutrons : il est constitué de deux branches de magnons acoustique et optique. Les fluctuations de spins en phase ou en opposition de phase associées à ces deux modes sont représentées dans l'espace réel sur la Fig.1.10 b). Les magnons acoustique et optique sont facilement identifiables dans les mesures de DIN du fait de leur facteur de structure dynamique respectif. Autour du vecteur d'onde AF, la partie imaginaire de la susceptibilité de spin s'écrit[120, 92] :

$$\chi''(\vec{q}, \omega) = (\sin(\pi L z_c))^2 \chi''_{ac}(\vec{q}, \omega) + (\cos(\pi L z_c))^2 \chi''_{op}(\vec{q}, \omega) \quad (1.9)$$

où $\chi''_{ac}(\vec{q}, \omega)$ correspond à la partie imaginaire acoustique modulée en sinus suivant la direction \vec{c} perpendiculaire aux plans CuO₂ et $\chi''_{op}(\vec{q}, \omega)$ correspond à la partie imaginaire optique modulée en cosinus. L est la composante du vecteur d'onde suivant l'axe \vec{c} et $z_c \sim 0.28$ [76] est la distance réduite interplan dans Y123, $z_c = d/c$ où $d=3.3\text{\AA}$ est la distance interplan et c le paramètre de maille. Les termes $(\sin(\pi L z_c))^2$ et $(\cos(\pi L z_c))^2$ sont également appelés facteur de structure acoustique et facteur de structure optique. Selon la valeur de la composante L, nous pouvons choisir de mesurer soit les fluctuations magnétiques acoustiques soit optiques. Les composantes L correspondant aux maxima sont :

$$\begin{aligned} \text{pour le canal acoustique} \quad L &= 0, \pm 3.6, \pm 7.1 \text{ etc..} \\ \text{pour le canal optique} \quad L &= \pm 1.7, \pm 5.35 \text{ etc..} \end{aligned} \quad (1.10)$$

Une étude par DIN permet d'accéder à la dispersion des magnons et d'en déduire les constantes d'échanges. La Fig.1.11.a montre la dispersion des ondes de spins dans le canal acoustique (cercles pleins) et dans le canal optique (cercles vides). La dispersion dans le canal optique possède un gap à l'énergie $\omega_{op} = 2\sqrt{JJ_{\perp}}$. Les valeurs numériques des paramètres d'échanges J et J_⊥ sont reportées dans le Tab.1.1 : J_⊥ est approximativement un ordre de grandeur plus faible que J.

Sur la Fig.1.11 b), nous reportons l'évolution de la susceptibilité locale, χ''_{2D} qui correspond à l'intégration en vecteur d'onde de la partie imaginaire de la susceptibilité dans la plan de base :

$$\chi''_{2D} = \frac{\int_{ZB} dq_{2D} \chi''(\vec{q}, \omega)}{\int_{ZB} dq_{2D}} \quad (1.11)$$

Cette intégration en vecteur d'onde est constante pour des magnons dans le régime hydrodynamique, c'est à dire où les ondes de spins dispersent linéairement avec le vecteur d'onde. Sa valeur est de $\chi''_{2D} \sim 10\mu_B^2/eV$ [128, 97]. Nous utiliserons par la suite cette notion de susceptibilité locale pour caractériser et comparer les fluctuations magnétiques dans d'autres régions du diagramme de phase.

Avant de présenter l'évolution du spectre des excitations AF dans l'état métallique et supraconducteur, il nous semble important de faire un petit aparté sur le rôle du couplage interplan J_⊥. Nous avons expliqué que les fluctuations AF dans le plan de base, ou l'interaction J à courte portée, pouvaient conduire à une supraconductivité de symétrie d.

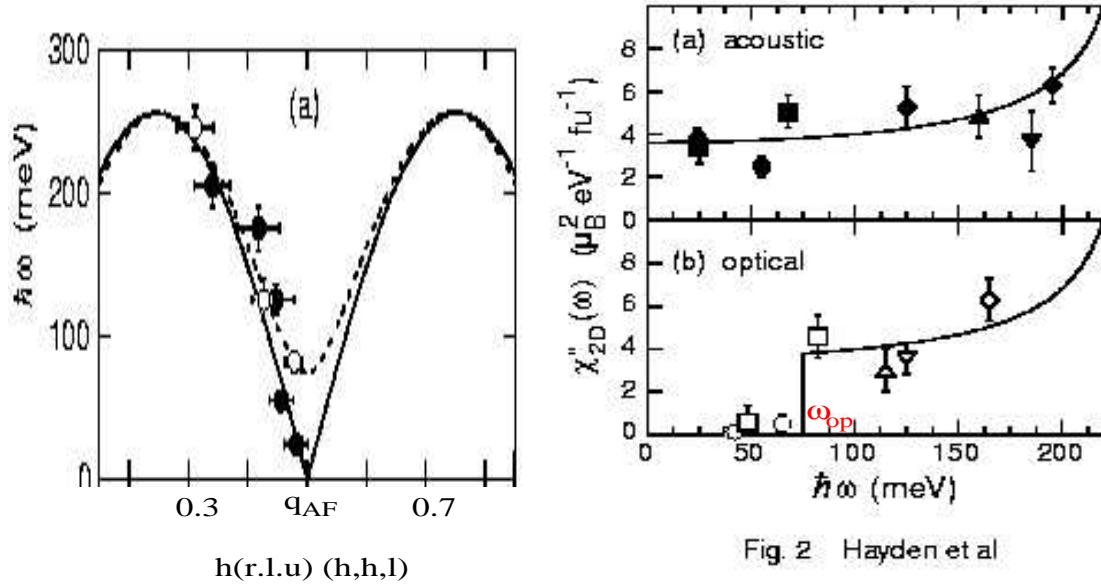


Fig. 2 Hayden et al

FIG. 1.11 – *Onde de spin dans $YBa_2Cu_3O_6$* [117]. Sur la figure a), nous reportons la dispersion des ondes de spins dans les canaux optique et acoustique. La dispersion commence à énergie quasi nulle dans le canal acoustique alors qu'il apparaît un gap dans la dispersion optique. Ce gap est lié à l'existence d'un couplage interplan. Sur la figure b), nous montrons l'évolution en fonction de l'énergie de la susceptibilité locale, χ''_{2D} (Eq.1.11), dans les canaux optique et acoustique. Sur les parties plates, le système est dans le régime hydrodynamique.

Quel est à présent l'effet du J_{\perp} et des fluctuations AF inter-plans au sein de la bicouche ? On montre que lorsque le système est métallique mais très proche de l'état AF, les fluctuations AF sont très importantes et renormalisent les termes J et J_{\perp} qui interviennent dans le mécanisme d'appariement[165]. Ainsi, de façon surprenante, le \tilde{J}_{\perp} effectif devient du même ordre de grandeur ou plus grand que le \tilde{J} effectif. Dans un système bicouche, un appariement inter-plan peut apparaître ; le paramètre d'ordre supraconducteur Δ_{\perp} est isotrope dans chaque plan et change de signe d'un plan à l'autre de la bicouche. Ceci permet de mettre en relief le fait qu'il ne faut pas sous-estimer le rôle de J_{\perp} . En pratique, nous montrerons dans ce manuscrit que son étude en fonction du dopage apporte beaucoup d'informations encore non exploitées.

Paramètres \ Auteurs	[117]	[151]
$J(\text{meV}) \pm 5$	125	120 ou 100*
$J_{\perp}(\text{meV}) \pm 2$	11	10 ou 8*
$\omega_{op}(\text{meV})$	74	67

* prend en compte les fluctuations quantiques à température nulle[151, 54, 55]

TAB. 1.1 – Valeurs numériques des couplages magnétiques J et J_{\perp}

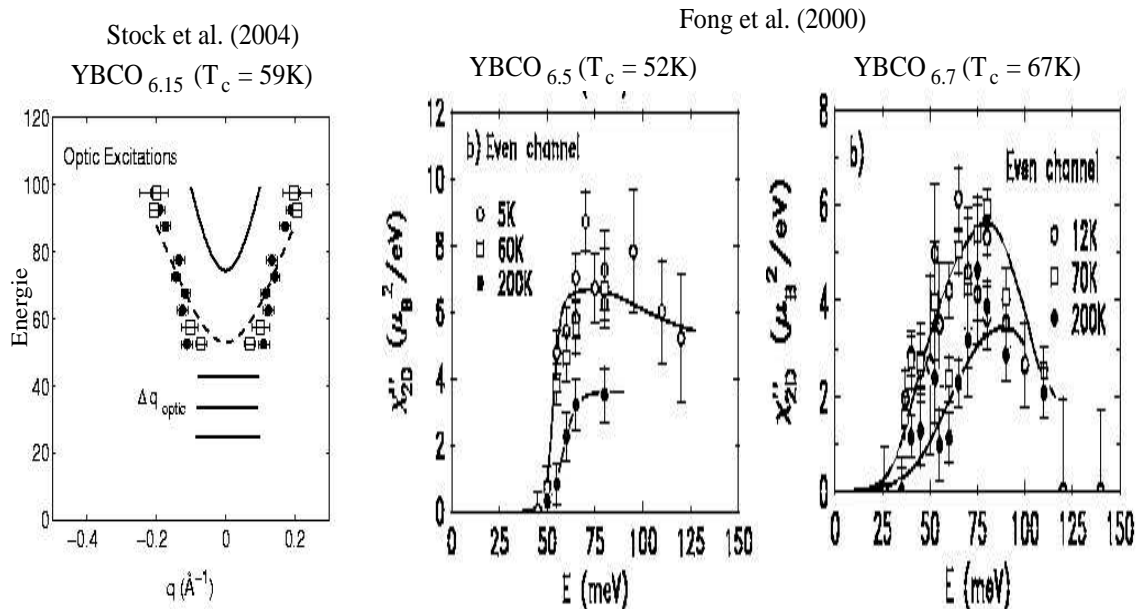


FIG. 1.12 – *Fluctuations magnétiques optique* : sur la figure a), nous montrons le spectre des fluctuations magnétiques optiques en fonction du vecteur d'onde et de l'énergie[148]. Sur les figures b) et c), nous reportons les mesures de la forme spectrale du spectre optique à deux dopages différents[128] à trois températures dans l'état normal et dans l'état supraconducteur

1.5.2 Spectre des fluctuations magnétiques dans l'état normal

Spectre des fluctuations à haute énergie

Dans l'état normal du régime sousdopé de fortes fluctuations persistent. A relative-ment haute énergie (>60 meV), le spectre des excitations magnétiques ne présente pas de variation notable en passant la transition supraconductrice, à la précision des mesures près, voir Fig. 1.14.a1). Dans le canal acoustique, il se compose de fluctuations incommensurables autour de Q_{AF} . Leur étude dans le composé $YBa_2Cu_3O_{6.5}$ ($5T_c \sim 55K$)[98, 148] indique que ces excitations peuvent être décrites comme associées à la dispersion isotrope d'excitations magnétiques autour de Q_{AF} (Fig. 1.14.b1). La célérité de ces excitations AF est de l'ordre de 60 % de celle des magnons dans la phase AF, suggérant une interaction de super-échange effective réduite dans le plan de base. L'élargissement des excitations traduit également un amortissement non négligeable. De même, dans le canal optique, Fig.1.12, les mesures révèlent la persistance d'un gap optique et d'excitations dispersives. De fait, le couplage magnétique entre les plans de la bicouche reste actif dans l'état métallique. La réduction du gap optique est en accord avec un échange effectif dans le plan égal à 60 % de J.

Au vu de cette description, nous pourrions en conclure qu'il persistent des "magnons" réminiscent de l'état AF avec des spins $S=1/2$ localisés sur le site du cuivre. Cependant, le poids spectral de ces excitations est bien plus faible que celui des magnons, comme en atteste la susceptibilité locale reportée sur la Fig.1.14.a1 (courbe à $T=60K$). Sur cette figure, la ligne pointillée représente la susceptibilité locale obtenue pour des magnons : $\chi''_{2D} \sim 10\mu_B^2/eV$.

De plus, à un dopage sensiblement plus élevé dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$ ($T_c=62$ K) [118], les fluctuations magnétiques ne sont pas distribuées de façon isotrope autour de Q_{AF} , mais sous la forme d'une structure carrée centrée à Q_{AF} avec des maxima le long des diagonales (Fig. 1.14.a5). Une structure similaire a été observée dans le composé $\text{La}_{1.875}\text{Ba}_{0.125}\text{CuO}_4$ ($T_c \sim 5\text{K}$)[126]. Ce composé présente les caractéristiques d'une phase ordonnée de type stripes. Ces fluctuations magnétiques peuvent être interprétées de deux manières radicalement opposées : (i) comme une réponse magnétique itinérante et donc associée en partie à la topologie de la surface de Fermi [118] ou (ii) associée à la dynamique de spin des stripes [126, 246, 247].

Dans le composé $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$ ($T_c=62$ K) [118], le signal à haute énergie est commensurable à température ambiante, les structures incommensurables apparaissent entre 300K et 66K. Pour les faire disparaître sous l'effet de fluctuations thermiques, il faudrait chauffer jusqu'à ~ 800 K. Dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ avec $x=0.5-0.7$, la susceptibilité locale montre systématiquement un creux entre 50 meV et 60 meV, Fig. 1.14.a1. Cette anomalie est nettement visible à 100 K ($<T^*$) et disparaît à 200 K ($>T^*$). L'origine physique de ce creux n'a pas été élucidée, nous proposerons au Chap.5 de ce manuscrit une interprétation à ce creux. La partie haute énergie du spectre est donc vraisemblablement assez représentative de la phase de pseudo-gap. Quelqu'en soit son origine, elle n'est, en première approximation, pas affectée par la supraconductivité.

Spectre des fluctuations à basses énergies

Les expériences de DIN ont mis en évidence l'existence de fluctuations AF fortes, $\gtrsim 100\mu_B^2/eV$, dans l'état normal des cuprates dans Y123[97, 128, 119] et dans LSCO[144]. Suivant le dopage, la susceptibilité locale peut même être plus importante que celle des magnons. A titre de comparaison, dans un métal paramagnétique standard (Al, Cu etc...), la susceptibilité uniforme à une amplitude de l'ordre de $1/t \sim 2-4\mu_B^2/eV$. Un système métallique peut également présenter des fluctuations AF aussi intenses, mais à condition de se trouver à proximité d'une instabilité onde de densité de spin. C'est le cas du système métallique Sr_2RuO_4 [133, 59].

Sur la Fig.1.13, nous montrons les mesures de DIN de la forme spectrale de la partie imaginaire acoustique de la susceptibilité de spin dans l'état normal au vecteur d'onde AF à $T=100\text{K}$ pour 4 taux d'oxygène différents dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ [99]. Le spectre magnétique évolue fortement en fonction du dopage. Globalement, on observe un déplacement du spectre vers les hautes énergies et une très forte réduction du poids spectral en augmentant le dopage. On distingue trois régimes[99] : le régime fortement sousdopé pour $x < 0.6$, le sousdopé et le dopage optimal pour $0.6 < x < 0.94$ et enfin le régime surdopé pour $x > 0.97$.

Dans le régime sousdopé du composé $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$, la partie basse énergie du spectre (< 50 meV) présente deux comportements distincts dans l'état normal de part et d'autre de la concentration en oxygène $x=0.6$.

Entre le régime sousdopé et le dopage optimal ($0.6 < x < 0.9$), le maximum d'intensité apparaît autour de 30meV et la susceptibilité est bien décrite par une forme lorentzienne

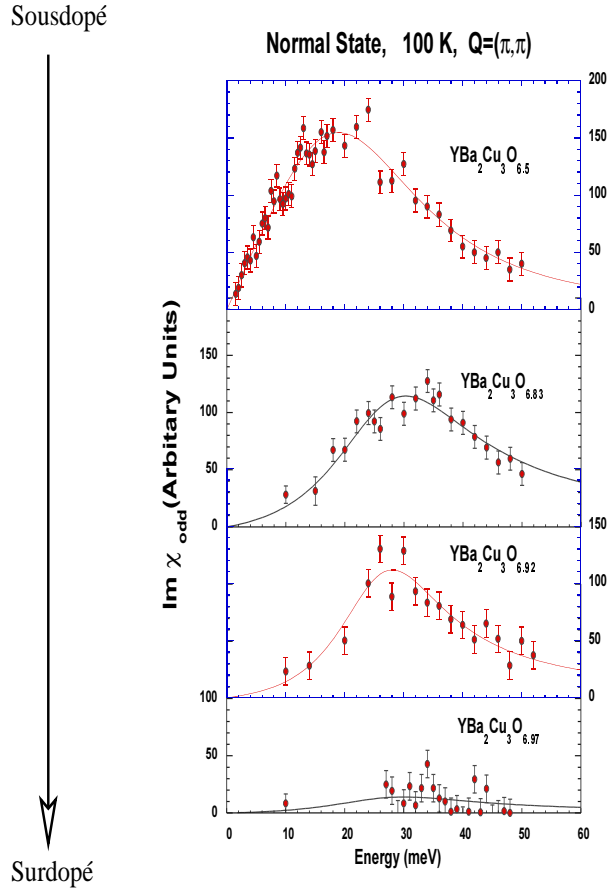


FIG. 1.13 – Mesures par DIN de la partie imaginaire de la susceptibilité de spins à $T=100K$ dans l'état normal pour 4 taux différents d'oxygène dans $YBCO_x$: $x=0.5, 0.83, 0.92$ et 0.97 avec $T_c=45K, 85K, 91K$ et $92.5K$. [99]

amortie : $\chi''(q, \omega) \sim \chi_q \omega \Gamma / (\omega - \omega_0)^2 + \Gamma^2 + (\omega \rightarrow -\omega)$). Cette forme spectrale rappelle celle des paramagnons dans les systèmes métalliques en présence de fortes interactions. A haute température, les excitations sont suramorties et leur forme en énergie est de type purement relaxationnelle. Il semble que ce n'est qu'en dessous de T^* que l'on puisse commencer à distinguer une énergie caractéristique ω_0 . Il n'y a pas de relation simple entre ω_0 qui augmente sensiblement avec le dopage et T^* qui diminue continûment avec le dopage. Par ailleurs, l'augmentation de l'intensité AF en abaissant la température et le transfert du poids spectral à haute énergie [91] font que les fluctuations AF, en dessous de ω_0 , passent par un maximum à T^* , en accord avec l'ouverture d'un pseudo-gap de spin à T^* déduit des mesures de RMN [57].

Ce dernier comportement n'est pas observé en $x < 0.6$, Fig.1.13 a. De plus, dans le régime fortement sousdopé (Fig. 1.13 a), la partie imaginaire de la susceptibilité présente un maximum d'intensité autour de 25 meV et sa forme est bien reproduite par un oscillateur harmonique amorti : $Im\chi(q, \omega) \sim \chi_q \omega_0 \Gamma / (\omega - \omega_0)^2 + \Gamma^2 - (\omega \rightarrow -\omega)$. Cette forme est caractéristique du magnétisme localisé en présence d'un ordre à courte distance.

Quelque soit la stoechiométrie en oxygène x , les corrélations magnétiques dans le ca-

a) RÉGIME SOUS DOPÉ : ÉTAT NORMAL

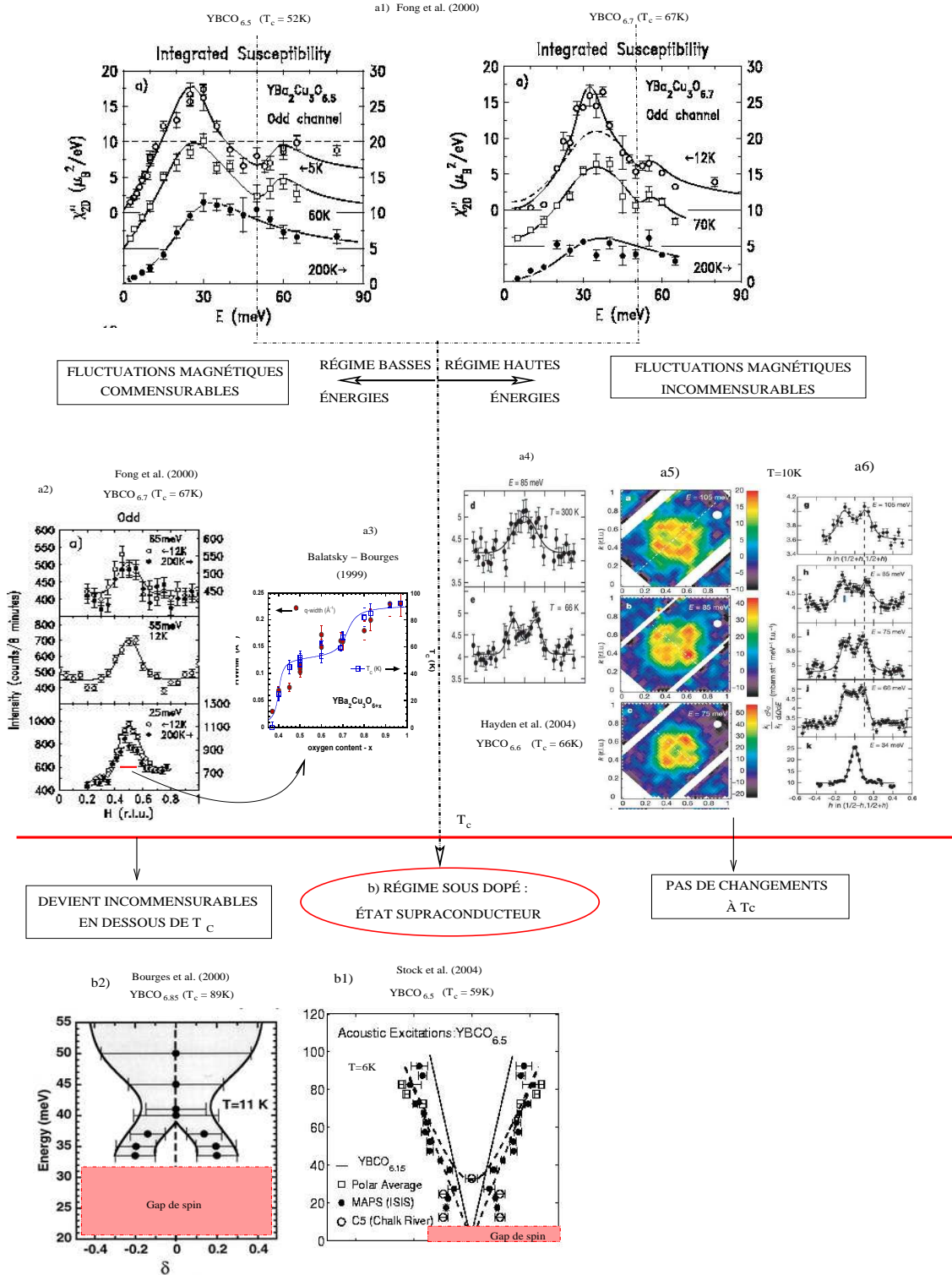


FIG. 1.14 – Résumé des faits principaux de la dynamique de spin dans le régime sousdopé mesurés par DIN. Dans l'état normal, on observe sur les courbes de la susceptibilité locale de fortes fluctuations AF, figure a1. On divise le spectre autour d'une énergie de 60meV en une partie basse énergie, a2 et a3, et en une partie basse énergie, a4 à a6. Dans le plan de base, la partie basse énergie consiste en un pic commensurable alors que la partie à haute énergie est dispersive. Pour $T < T_c$, seule la partie du spectre à basse énergie subit des modifications, b1 et b2.

nal acoustique sont caractérisées par un pic commensurable centré sur Q_{AF} et large en vecteur d'onde, Fig.1.14 a2). Cette largeur en vecteur d'onde, de l'ordre de 0.12\AA^{-1} , varie peu avec la température[93] et est peu dépendante de l'énergie[149], mais dépend du dopage en trous. En effet, la largeur en vecteur d'onde représentée en fonction du taux d'oxygène, Fig.1.14 a3), suit une évolution similaire à celle de la T_c [149, 95]. En passant la transition supraconductrice, ces fluctuations de basse énergie sont fortement modifiées, ne serait ce que par l'ouverture d'un (vrai) gap de spin et l'apparition de structures incommensurables, Fig. 1.14 b1) et b2).

Notons que dans le composé $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, les fluctuations sont dites incommensurables et apparaissent au vecteur d'onde $Q=(\pi/a(1 \pm \delta), \pi/a)$ et $(\pi/a, \pi/a(1 \pm \delta))$: δ diminue en augmentant l'énergie et $\delta(=x=\text{dopage})$ varie linéairement avec T_c .

1.5.3 Le phénomène de résonance dans l'état supraconducteur

Dans cette partie, nous discutons des fluctuations magnétiques dans la phase supraconductrice. L'existence d'une excitation antiferromagnétique, le pic de résonance magnétique, révélée par la supraconductivité, est certainement l'un des faits les plus marquant de la phénoménologie des cuprates. Cette excitation, observée directement par DIN, apparaît exclusivement dans la phase supraconductrice. Elle a suscité de nombreux développements théoriques mais son interprétation reste encore controversée. Dans certaines approches, ce pic apparaît comme une conséquence directe de la symétrie du gap et des corrélations magnétiques. En effet, le gap s'ouvre essentiellement dans une zone autour des points antinodaux de la surface de Fermi, qui inclut les points chauds connectés par le vecteur d'onde AF, Fig.1.8. Ainsi, il apparaît, dans l'état supraconducteur, une région autour du vecteur d'onde AF vide d'excitations élémentaires où un mode collectif peut se développer en présence d'interactions[222, 225, 219]. La résonance est vue comme un exciton de spin. Pour certains, elle est le boson à la base de l'appariement des paires de Cooper. Ainsi, dans cette partie, nous commençons par une synthèse des propriétés du pic de résonance magnétique dans le diagramme de phase et dans différentes familles de cuprates. Puis, nous discutons des expériences qui mettent en évidence un couplage entre cette excitation magnétique et les quasiparticules du système.

Le pic de résonance magnétique

Dès 1991, les mesures de diffusion inélastique des neutrons, réalisées dans le composé Y123 au dopage optimum($T_c=93$ K) [90, 107, 96, 129], mettent en évidence l'existence d'une excitation magnétique originale qui : (i) apparaît à une énergie caractéristique E_r de 41 meV, (ii) est centrée sur le vecteur d'onde AF planaire, $\vec{q}_{AF} = (\frac{\pi}{a}, \frac{\pi}{a})$ (a étant la distance Cu-Cu), (iii) disparaît à T_c sans changement notable de sa position en énergie (Fig. 1.15). Cette excitation présente une largeur en énergie limitée par la résolution expérimentale, comme les magnons dans les systèmes magnétiques ordonnés. La nature magnétique de cette nouvelle excitation est prouvée par diffusion des neutrons polarisés en spin [137]. De plus, des mesures sous un champ magnétique de 12 Tesla indiquent un élargissement en énergie compatible avec un état triplet de spin de cette excitation. Cette nouvelle excitation singulet-triplet dans un supraconducteur de symétrie d est baptisée "pic de résonance magnétique". Elle n'existe pas dans les supraconducteurs conventionnels.

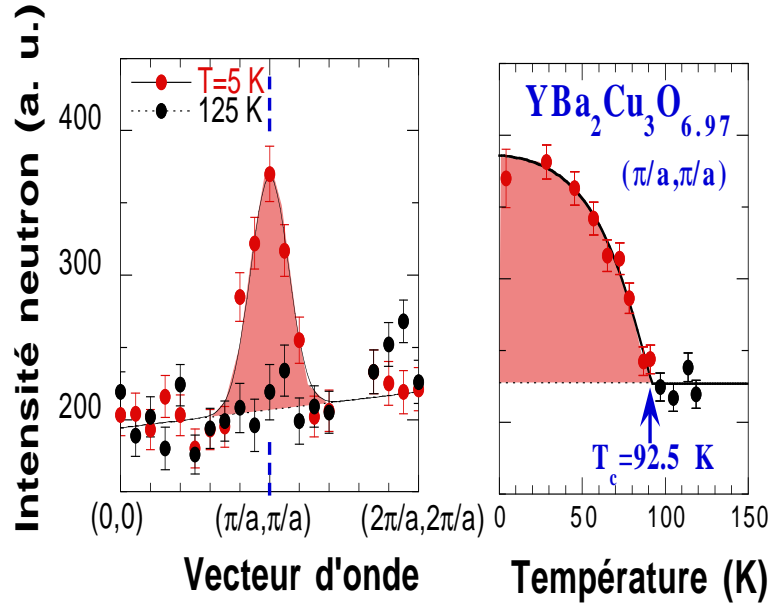


FIG. 1.15 – Dépendance en vecteur d'onde et en température du pic de résonance magnétique, mesurée pour une énergie de 40 meV, dans le composé $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.97}$ [96]. A basse température, dans l'état supraconducteur, le pic de résonance (en rouge) apparaît au vecteur d'onde $\vec{q}_{AF} = (\pi/a, \pi/a)$, qui caractérise les corrélations AF entre spins dans les plans CuO_2 . Il disparaît en même temps que la supraconductivité au dessus de $T_c=92.5$ K sans changement de sa position en énergie.

De façon pratique, dans une mesure de DIN, le pic de résonance magnétique est défini comme l'augmentation brutale de la réponse magnétique dynamique dans l'état supraconducteur. Le minimum requis pour l'identification d'un pic de résonance est : (i) des différences entre des mesures à $T < T_c$ et $T > T_c$ indiquant une augmentation de réponse magnétique à q_{AF} et à une énergie E_r , (ii) un suivi en température montrant que l'augmentation du signal apparaît bien à T_c (Fig. 1.15 et Fig. 1.16).

Le pic de résonance magnétique a été très largement étudié dans le régime sous-dopé du composé Y123[111, 97, 128]. Sa position en énergie, E_r , diminue linéairement avec T_c au fur et à mesure que la concentration en trous est réduite : $E_r \simeq 5k_B T_c$. En outre, il est également possible de faire varier T_c sans modifier la concentration en trous au dopage optimum en substituant des atomes de cuivre des plans CuO_2 par des impuretés. Ainsi, dans $\text{YBa}_2(\text{Cu}_{0.97}\text{Ni}_{0.03})\text{O}_7$ ($T_c = 80\text{K}$) [131], Fig.1.16, l'énergie de la résonance diminue en conservant un rapport $E_r/k_B T_c$ constant.

Le pic de résonance est également observé dans le composé Bi2212, au dopage optimum ($E_r=43\text{meV}$, $T_c= 90$ K[130]), Fig.1.16, et dans le régime surdopé, ($E_r=38\text{meV}$, $T_c= 80$ K [140]). Le rapport $E_r/k_B T_c$ est alors de 5.4. Ainsi, comme dans Y123, l'énergie de la résonance est liée à la température critique. En revanche, contrairement à Y123 où le pic de résonance a une largeur limitée par la résolution instrumentale, la largeur intrinsèque de la résonance dans Bi2212 est de 13meV. En plus d'un élargissement en énergie, on observe également un élargissement en vecteur d'onde de la résonance dans Bi2212 par rapport à Y123. En effet, sa largeur intrinsèque en vecteur d'onde (largeur à mi-hauteur) est de 0.45\AA^{-1} alors qu'elle est de 0.25\AA^{-1} dans Y123. Des effets

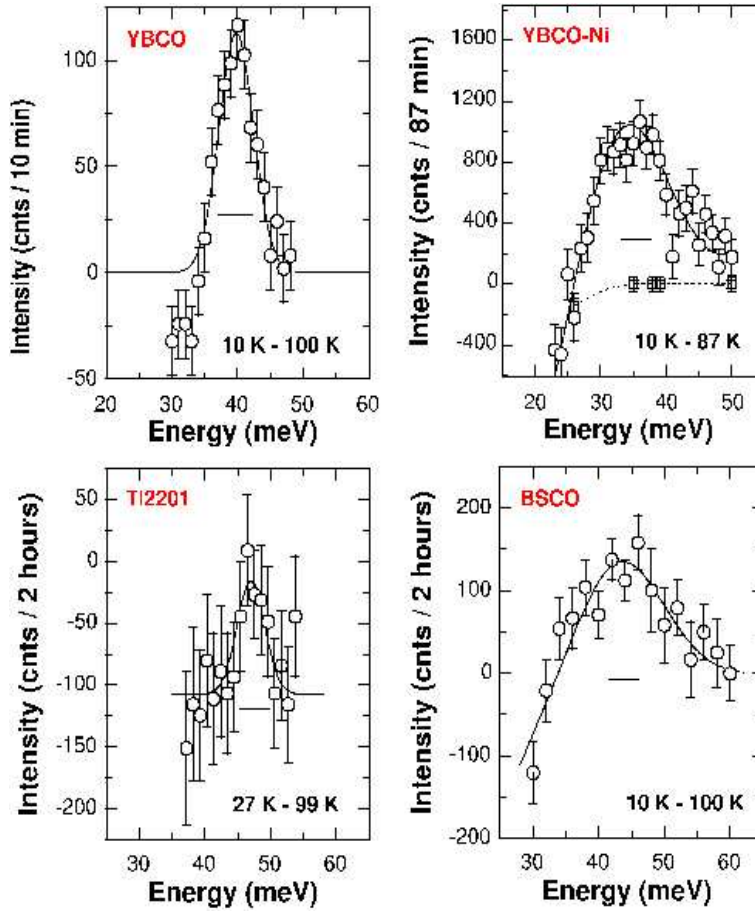


FIG. 1.16 – La résonance : une excitation magnétique commune aux cuprates[132]. Différences des coupes en énergies entre l'état supraconducteur ($T < T_c$) et dans l'état normal ($T > T_c$) : a) $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.95}$: $T_c=93\text{K}$, $V=10\text{cm}^3$ [129, 127], b) $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+\delta}$: $T_c=90\text{K}$, $V=0.11\text{cm}^3$ [141] d) $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ [130] : $T_c=91\text{K}$, $V=0.06\text{cm}^3$

d'élargissement en énergie de la résonance en présence d'impuretés sont également observés dans $\text{YBa}_2(\text{Cu}_{0.97}\text{Ni}_{0.03})\text{O}_7$, Fig.1.16 b), ou dans $\text{YBa}_2(\text{Cu}_{1-y}\text{Zn}_y)\text{O}_{6+x}$ [131]. Par analogie, l'élargissement de la résonance dans Bi2212 pourrait être associée aux effets de désordre intrinsèque de ce système. Malgré ces petites différences, il n'en demeure pas moins que les mesures dans le composé Bi2212 montrent que le pic de résonance magnétique existe dans un autre composé bicouche, ainsi que dans le régime surdopé avec un rapport $E_r/k_B T_c$ constant. Ce n'est que très récemment que l'observation du pic de résonance magnétique a pu être étendue au cas d'un composé monocouche Tl2201 ($T_c=90\text{K}$) [141]. Dans ce composé la résonance est mesurée à une énergie $E_r=47\text{meV}$, Fig.1.16 c) et le rapport $E_r/k_B T_c$ est alors de 6, légèrement plus grand que dans Y123. Comme dans Y123, la résonance a une largeur en énergie limitée par la résolution instrumentale et a une largeur intrinsèque en vecteur d'onde de 0.25\AA^{-1} . Ainsi, le pic de résonance est présent dans tous les cuprates à 1 ou 2 plans CuO_2 ayant une $T_c^{\text{opt}} \sim 90\text{K}$. Qu'en est-il dans le composé $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ pour lequel T_c^{opt} demeure inférieure à 40K ?

Le pic de résonance magnétique n'est pas observé dans $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ dans le sens où il n'apparaît pas de renforcement de la réponse magnétique au vecteur d'onde AF dans la

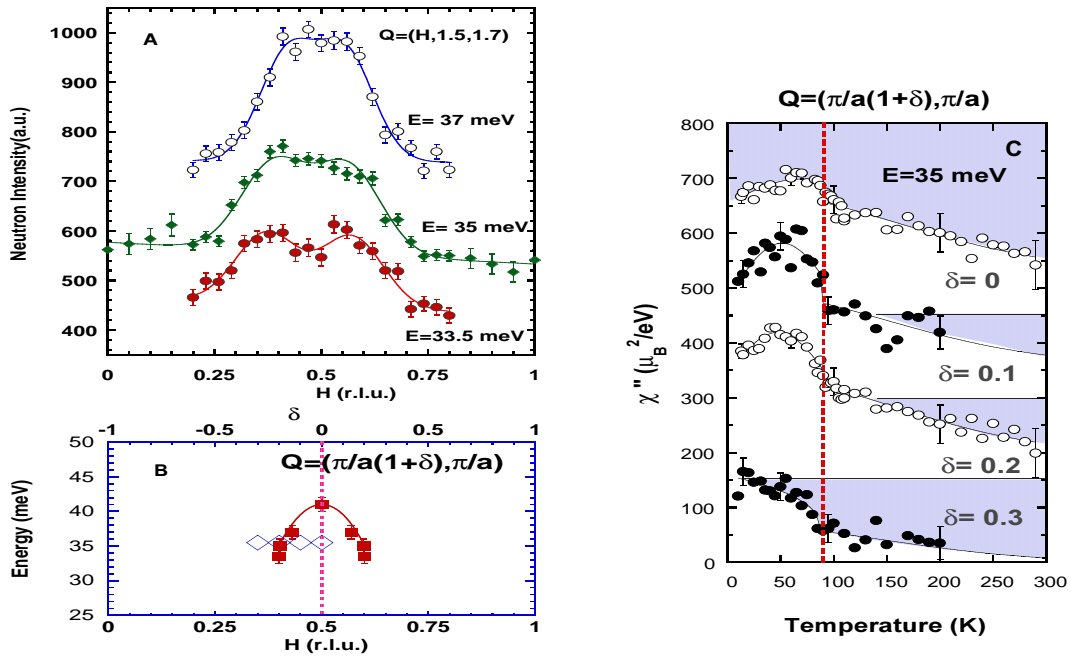


FIG. 1.17 – Un mode collectif qui disperse vers les basses énergies, Bourges *et al*[101] A) les coupes en vecteur d'onde le long de la direction a^* montrent l'existence d'incommensurabilités pour des énergies transférées inférieures à celle de la résonance. Les positions des intensités maximums des pics de chaque coupe sont reportées sur la figure B) (carrés noirs). C) Une étude en température à 35 meV sur plusieurs points du signal incommensurable (losange vide de la figure B) montre que l'incommensurabilité se referme sur q_{AF} lorsque la température augmente

phase supraconductrice. En revanche, il existe de fortes excitations magnétique présentes dans l'état normal. Ces excitations sont incommensurables et apparaissent aux vecteurs d'onde incommensurables $Q=(\pi/a(1 \pm \delta), \pi/a)$ et $(\pi/a, \pi/a(1 \pm \delta))$ [144]. En passant la transition supraconductrice, ces fluctuations magnétiques se renforcent et deviennent plus étroites en vecteur d'onde dans une gamme d'énergie de l'ordre de $5k_B T_c$ [145, 122]. Ce phénomène est souvent associé à un "effet de cohérence" de la réponse magnétique dans l'état supraconducteur. Cet effet de mise en cohérence pourrait avoir un lien de parenté avec le phénomène de la résonance mesurée dans Y123, Bi2212 et Tl2201.

L'observation de fluctuations magnétiques incommensurables dans le composé $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ a stimulé la recherche de réponses magnétiques similaires dans d'autres composés [125]. Dans le régime sousdopé du composé $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ ($x=0.6$, $T_c=63$ K, $E_r=34$ meV), des mesures de DIN ont permis de mettre en évidence l'existence d'une réponse magnétique incommensurable à 24 meV et basse température [112]. Ces excitations, qui apparaissent à plus basse énergie que le pic de résonance magnétique, ont une certaine ressemblance avec celles observées dans le composé $La_{2-x}Sr_xCuO_4$: elles sont formées de quatre maxima aux vecteurs d'ondes planaires $Q_{IC}=(\pi/a(\pm\delta), \pi/a)$, $(\pi/a, \pi/a(\pm\delta))$. L'observation de ces fluctuations incommensurables dans le canal acoustique a été confirmée pour des teneurs en oxygène plus élevées $x=0.7$ [119] et $x=0.85$ [101]. Une étude de ces incommensura-

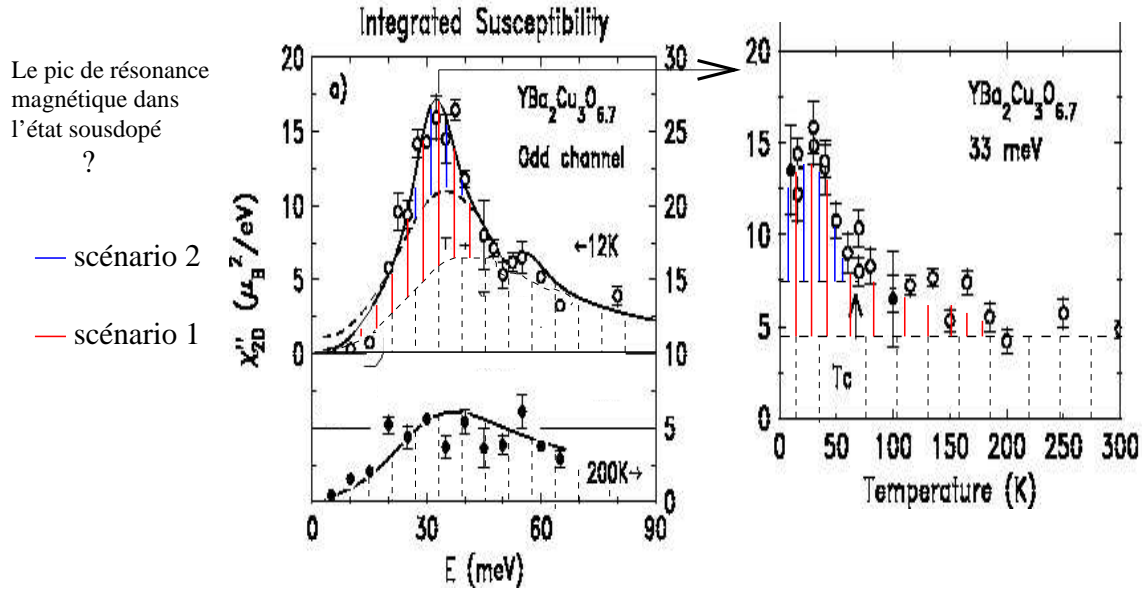


FIG. 1.18 – Du fait de la présence de fortes fluctuations magnétiques dans l'état normal, le pic de résonance magnétique est plus difficile à définir. Deux scénarios peuvent être envisagés. Dans le scénario 1, le pic de résonance pré-existe dans l'état normal mais est fortement amorti. Ainsi, la supraconductivité permet d'augmenter le temps de vie de cette excitation[114]. Dans le scénario 2, le pic de résonance est une excitation magnétique qui s'ajoute aux fluctuations magnétiques de l'état normal[128, 99].

bilités en fonction de l'énergie et de la température, Fig. 1.17, révèle que le paramètre d'incommensurabilité, δ , tend vers 0 à T_c . Par ailleurs, comme pour le pic de résonance magnétique, la dépendance en température du signal magnétique à Q_{IC} présente une discontinuité à T_c . En d'autres termes, le pic de résonance magnétique et les fluctuations incommensurables sont des propriétés intrinsèques de l'état supraconducteur. L'ensemble de ces excitations peut être décrit comme un seul et unique mode collectif de spin $S=1$, dispersant vers les basses énergies [101].

Dans le cas du dopage optimum, les fluctuations de la phase normale sont très faibles en intensité et étalées en énergie et en vecteur d'onde. La réponse magnétique obtenue par DIN se résume pratiquement à la seule observation du mode triplet résonnant (pic de résonance + incommensurabilités) dans l'état supraconducteur. Comme nous l'avons vu dans la partie 1.5.2 (Fig.1.13), il n'en va pas de même dans le régime surdopé où de fortes fluctuations sont présentes dans la phase normale et plus particulièrement dans le régime de pseudo-gap. Les fluctuations de la phase normale sont très larges en énergie et maximum à ω_0 qui croît sensiblement avec le dopage allant de 25 à 35 meV. Elles sont aussi globalement commensurables, avec une distribution en vecteurs d'onde autour de q_{AF} qui augmente avec le dopage et qui dépend peu de l'énergie. Le réponse magnétique dans l'état supraconducteur est maximum à E_r qui varie proportionnellement à T_c et qui est différent de ω_0 dans la majorité des cas. La largeur en vecteur d'onde du pic de résonance dans Y123 est constante et indépendante du dopage : elle vaut 0.25\AA^{-1} . Les excitations magnétiques résonnantes dispersent et deviennent donc incommensurables. Formellement, les excitations de la phase normale sont différentes des excitations magnétiques de la phase

supraconductrice. La discontinuité à T_c dans les suivis en température de l'intensité des excitations magnétiques le confirme.

Cependant, l'expérience ne dit pas si ces deux réponses magnétiques ont des origines différentes ou communes. En procédant de façon très schématique, il y a trois manières de voir ces excitations :

-1/ les fluctuations de la phase normal sont radicalement différentes de celles de l'état supraconducteur. Elles sont éliminées en passant T_c et font place aux excitations résonnantes.

-2/ les excitations résonnantes survivent au dessus de T_c où elle sont fortement amorties. Cela pourrait s'appliquer au modèle RVB où l'effet principal est l'ouverture du gap de spin à T^* [227].

-3/ il existe deux canaux différents pour générer des fluctuations magnétiques, ce qui engendre la superposition de deux réponses magnétiques distinctes dont une seule est fortement amplifiée en dessous de T_c . Ces deux canaux pourraient résulter d'une hétérogénéité du système, d'une séparation de phase, d'une compétition spin-itinérant/spin-localisé ou encore d'une image à deux fluides (l'un normal qui devient supraconducteur et l'autre anormal correspondant à la phase de pseudo-gap).

Sur la Fig.1.18, nous schématisons les deux interprétations 1 et 2, les plus débattues. L'ensemble des éléments expérimentaux, décrit ci-dessus, indiquent que les modifications de la réponse magnétique dans l'état supraconducteur ne sont pas connectées à la réponse magnétique dans l'état normal. Ces modifications consistent en l'apparition d'un signal magnétique supplémentaire, la résonance, engendré par la supraconductivité. Ainsi, l'interprétation 1 serait la plus probable.

En résumé

Le phénomène de résonance considéré au sens large, c'est à dire, l'amplification de la réponse magnétique en dessous de la température supraconductrice est un phénomène générique dans les cuprates supraconducteurs. Mis à part le composé LSCO, ce phénomène de résonance consiste en une excitation AF dont la position en énergie est proportionnelle à la température critique. En fait, cette excitation n'est pas isolée au vecteur d'onde AF, mais constitue le centre d'un mode collectif qui possède une dispersion vers les basses énergies. Ce mode est confiné entre l'énergie de la résonance et la position en énergie du gap de spin.

1.6 Manifestation de la résonance magnétique dans les propriétés électroniques

Il a été proposé que le pic de résonance puisse correspondre au boson à l'origine de l'appariement des électrons dans les cuprates[273, 40]. Dans un tel scénario, il doit nécessairement exister un couplage spin-fermion et, de ce fait, une signature du pic de résonance magnétique dans les propriétés électroniques du système. Dans cette partie, nous montrons les possibles manifestations du pic de résonance magnétique dans les mesures d'ARPES, de STM et Raman.

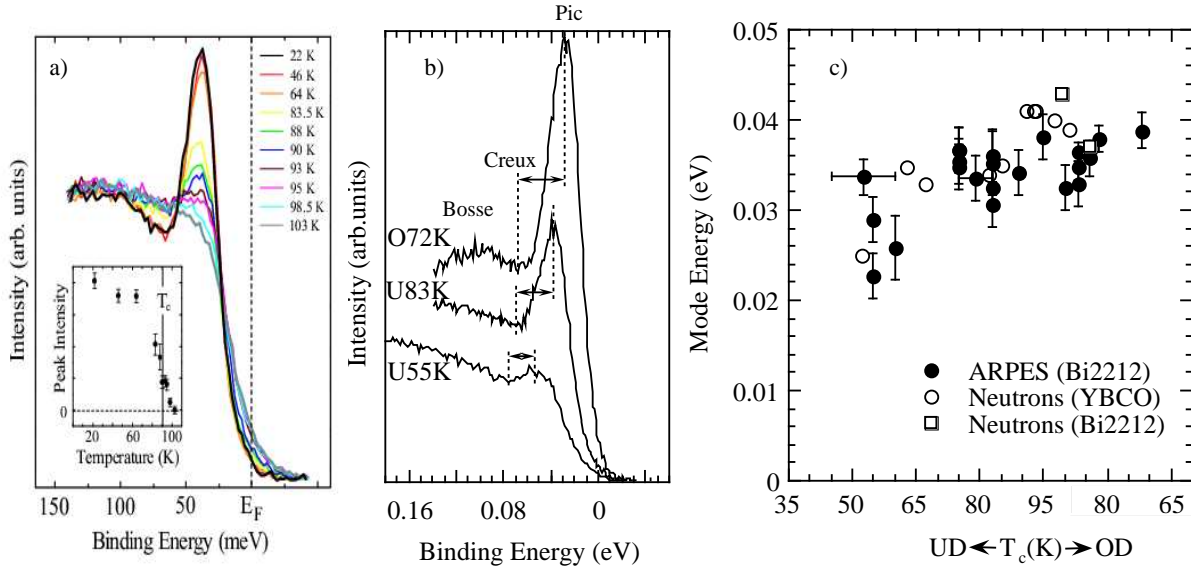


FIG. 1.19 – Sur la figure a), nous montrons l'évolution en température des coupes en énergie (EDC) autour du point $(\pi,0)$ [29]. Dans l'insert est reporté l'évolution de l'intensité du pic principal dans les EDC en fonction de la température. Sur la figure b), nous montrons les (EDC) au point antinodal de la surface de Fermi dans trois échantillons de Bi2212 à des taux de dopages différents : échantillons sousdopés, "U", et surdopés, "O". Sur chaque spectre, on observe une structure pic-creux-bosse (peak-dip-hump). Le creux est associé à la collision des quasiparticules avec un mode bosonique collectif d'énergie Ω_0 . En fonction du dopage, la position en énergie du mode bosonique, figure b), évolue proportionnellement avec la température critique et de la même manière que la position en énergie du pic de résonance magnétique. Le mode bosonique, à l'origine du creux dans l'EDC au point $(\pi,0)$, peut être associé au pic de résonance magnétique[28]

1.6.1 Mesure de photoémission résolue en angle : ARPES

Dans ce paragraphe nous nous référons essentiellement aux références [26, 27, 28]. Sur la Fig.1.19 a), nous montrons l'évolution en température des coupes en énergie (EDC) à la position $(\pi,0)$ du système Bi2212 au voisinage du dopage optimum. Dans l'état supraconducteur, on voit apparaître à l'énergie du gap, Δ_{max} , le pic de cohérence suivi d'un creux puis d'une bosse à plus haute énergie : structure dite "peak-dimp-hump". Cette structure se développe dans la phase supraconductrice, comme le montre le suivi en température de l'intensité du pic (voir Fig.1.19 a)), et autour des points antinodaux de la surface de Fermi. Sur la Fig.1.19 b), nous montrons que cette structure est présente pour différents taux de dopage. Autour des points nodaux, on observe uniquement un pic de cohérence beaucoup moins prononcé, similaire à l'EDC à haute température de la Fig.1.19 a). L'origine du peak-dip-hump est actuellement débattu. Une des difficultés principales provient de l'existence du couplage interplan qui dédouble la surface de Fermi au voisinage des points antinodaux, Fig.1.8. Ainsi dans les spectres présentés sur les Fig.1.19 a) et b), nous devrions distinguer, avec une meilleure résolution, deux contributions provenant de deux bandes différentes.

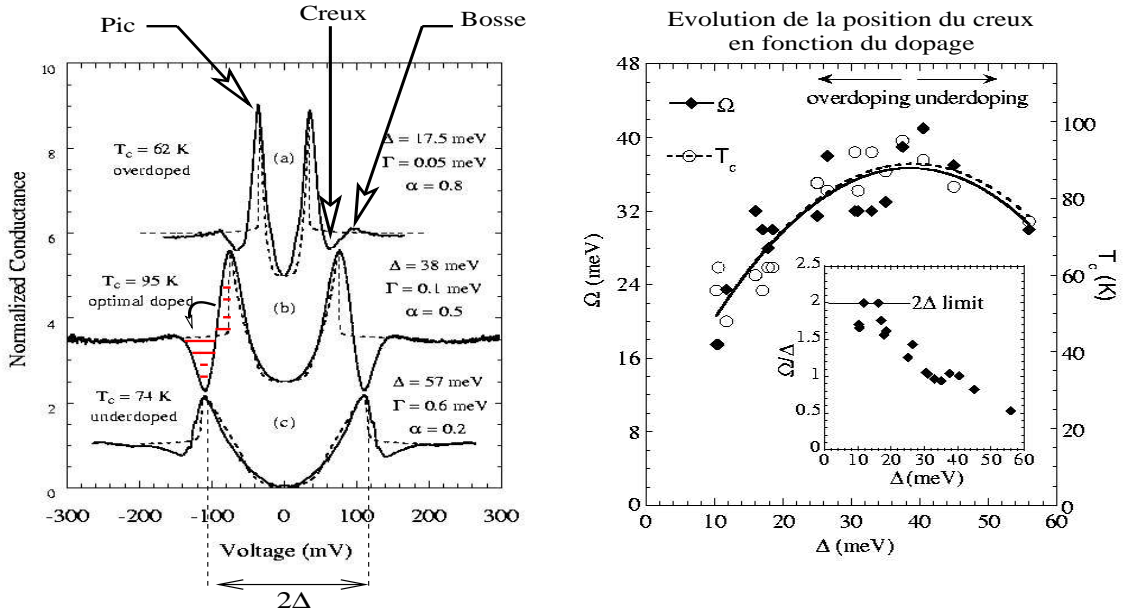


FIG. 1.20 – Sur la figure de gauche, nous reportons les mesures de la conductance dans les jonctions SIS constituées du cuprates Bi2212 à différent taux de dopage. La ligne noire correspond à un calcul dans le cadre d’une approche BCS. Sur chaque spectre, on observe une structure pic-creux-bosse (peak-dip-hump). Le creux est associé à la collision des quasiparticules avec un mode bosonique collectif d’énergie Ω_0 . En fonction du dopage, la position en énergie du mode bosonique, figure b), évolue proportionnellement avec la température critique et de la même manière que la position en énergie du pic de résonance magnétique et de manière différente du pic. Le mode bosonique, à l’origine du creux pourrait être également associé au pic de résonance magnétique[166].

Une étude en température et en dopage démontre que le pic est associé au gap supraconducteur. Sur la Fig.1.19 b), on montre que la position du pic augmente du régime surdopé au régime sousdopé comme le gap supraconducteur. Afin de reproduire le creux, il a été suggéré un couplage des quasiparticules avec un mode collectif bosonique afin de renforcer, dans un espace étroit en énergie, la self énergie[41]. Le mode collectif (q, Ω_0) interagit, dans l’état supraconducteur, avec la quasiparticule $(k, \omega - \Delta)$ qui se retrouve dans l’état $(k, \omega - \Delta - \Omega_0)$. Ainsi sur le spectre, le creux apparaît à l’énergie $\Delta + \Omega_0$. En fonction du dopage la position en énergie du mode, Ω_0 , évolue proportionnellement à la température critique et suit l’évolution de la position du pic de résonance magnétique, Fig.1.19 c). Il a alors été suggéré que le creux pouvait être la signature d’un couplage des quasiparticules avec le pic de résonance magnétique. En effet, le pic de résonance magnétique devrait engendrer un pic dans la partie imaginaire de la self énergie aux points antinodaux, du fait de la convolution avec la fonction spectrale(voir partie 1.3).

1.6.2 Mesure de spectroscopie tunnel

Les mesures de spectroscopie tunnel permettent de sonder la densité d’états, $N_s(E)$, au niveau de Fermi (DOS : density of states) : $N(E) = \int_0^{2\pi} n(E, \phi) d\phi$, où $n_s(E, \phi)$ correspond à la densité spectrale. Dans un métal supraconducteur de type BCS, la densité spectrale

au niveau de Fermi s'écrit[169] :

$$n_s(E, \phi) = n_n(E, \phi) \frac{E}{E^2 - \Delta(\phi)^2} \quad (1.12)$$

où $\Delta(\phi)$ est le gap de symétrie d donné par l'Eq.1.2 et les indices n,s apparaissent pour l'état normal et supraconducteur. Ainsi, la densité spectrale diverge à l'énergie $E = \Delta(\phi)$, pic de cohérence.

Plusieurs types de mesure existent : on utilise soit des jonctions supraconducteur-isolant-métal normal(SIN), soit des jonctions supraconducteur-isolant-supraconducteur(SIS). On applique alors une tension positive ou négative et on mesure la conductance dans la jonction.

Dans les jonctions SIN, les électrons tunnelent des états occupés du métal normal aux états non occupés du supraconducteur quand la tension appliquée est supérieure ou égale à la valeur du gap, Δ_{max} . En appliquant une tension négative égale à $-\Delta_{max}$, les électrons tunnelent des états occupés du supraconducteur aux états libres du métal normal. Un spectre SIN est donc constitué d'un gap symétrique par rapport à la tension nulle (niveau de Fermi) d'amplitude égale à $2\Delta_{max}$. Dans les jonctions SIS, en supposant que les supraconducteurs de part et d'autre de l'isolant sont identiques, la tension minimum a appliquer pour que les électrons tunnelent est égale à $2\Delta_{max}$.

Sur la Fig.1.20, nous montrons les spectres SIS dans le système Bi2212 à différents taux de dopages du régime sousdopé au régime surdopé[166]. On observe sur tous les spectres une structure de type pic-creux-bosse. Les traits en pointillés correspondent à un ajustement par une forme de densité spectrale dérivée d'un modèle BCS avec une symétrie d du gap(version améliorée de l'Eq.1.12). On remarque que la partie à bas voltage, jusqu'au pic de cohérence, est bien ajustée par ce modèle. En revanche les écarts apparaissent pour les voltages supérieurs : l'élargissement du pic ainsi que le creux ne sont pas du tout reproduits. L'élargissement du pic compense la perte d'états électroniques du creux comme indiqué par les flèches. Sur la Fig.1.22 de la référence [166], nous reportons les mesures de deux fois le gap supraconducteur, $2\Delta_{max}$, obtenu dans les jonctions SIS[166, 167, 168]. Notons que la valeur de $2\Delta_{max}$ dans un échantillon surdopé ($T_c \sim 80K$) est deux fois plus petite que dans un échantillon sousdopé ($T_c \sim 80K$) alors que leurs températures critiques sont similaires.

Similairement à l'ARPES, il est proposé que le creux soit causé par l'interaction des quasiparticules avec un mode collectif bosonique d'énergie Ω . Sur le spectre, le creux apparaît alors à l'énergie $\Delta + \Omega_0$. En fonction du dopage, Fig.1.12 b), la position en énergie du mode, Ω_0 , évolue proportionnellement à la température critique suivant la loi $5.1-5.5 k_B T_c$, donc de la même manière que la position en énergie du pic de résonance magnétique. Il est donc proposé que le mode collectif bosonique corresponde au pic de résonance magnétique[166]. D'autres interprétations de la forme pic-creux-pic existent. Il a été suggéré par [169] l'existence de deux gaps dans le système : un premier gap préexiste dans l'état normal alors que le second apparaît avec la supraconductivité. Les deux gaps coexistent et on peut reproduire la structure pic-creux-bosse dans la DOS.

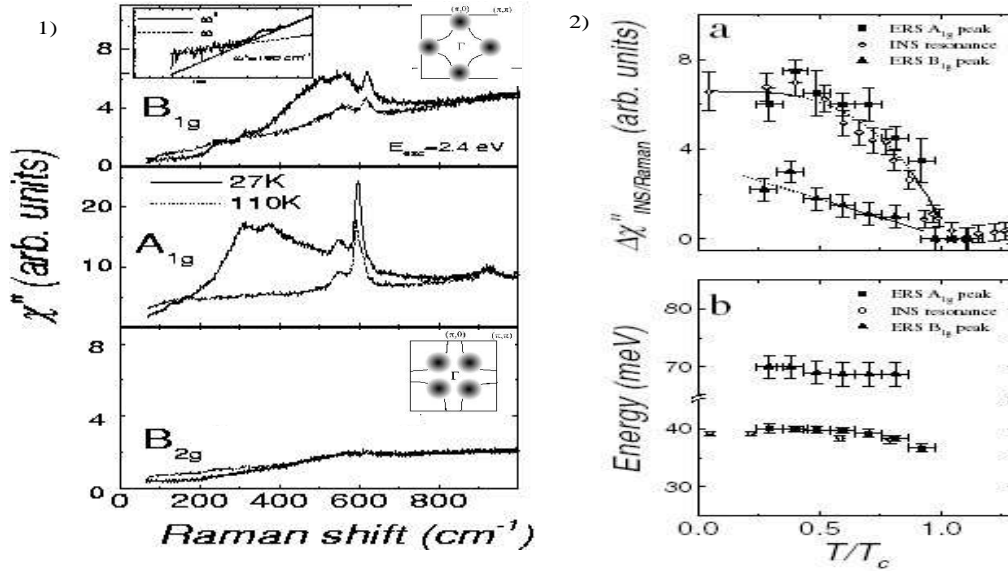


FIG. 1.21 – Sur la figure 1), nous reportons la réponse Raman mesurée dans un échantillon Hg1201 au dopage optimum dans les trois symétries B1g, A1g et B2g[191] ($1\text{meV}\sim 8\text{cm}^{-1}$). Pour chaque symétrie, la mesure a été réalisée au-dessus et en-dessous de T_c . Sur la figure 2), on montre la dépendance en température de l'intensité, a), et de la position, b), des pics Raman A1g et B1g et de la résonance magnétique dans Y123 au dopage optimum[184]

1.6.3 Mesure de Raman électronique

Dans ce manuscrit, nous discuterons plus en détail de la technique Raman dans la partie 2.4. Cette technique utilise la diffusion inélastique de la lumière afin de sonder les excitations élémentaires ou collectives dans les solides (phonons, magnons, excitons etc...) au centre de zone ($q\sim 0$). Dans les cuprates elle permet d'apporter des informations sur la symétrie et l'amplitude du gap supraconducteur. Dans les cuprates, cette technique est moins exigeante sur la qualité de surface de l'échantillon par rapport à l'ARPES où la STM, et les échantillon de Y123 peuvent être étudiés. Nous avons donc utilisé cet avantage pour extraire les valeurs du gap supraconducteur dans nos échantillons de YBCOCa_y . Un spectre Raman est constitué d'un bruit de fond électronique (continuum d'excitations élémentaires), peu intense et étalé sur une grande gamme d'énergie, surmonté de pics intenses liés aux excitations collectives (phonons, magnons). En utilisant, la diffusion Raman, il est possible de sonder la susceptibilité électronique sur différentes parties de la surface de Fermi. On sélectionne ces parties en modifiant la polarisation de la lumière. En première approximation, les cuprates appartiennent au groupe de symétrie D4h constitué des représentations irréductibles : A1g (symétrie s), A2g, B1g(symétrie $d_{x^2-y^2}$) et B2g(symétrie d_{xy}). Généralement, les études Raman du continuum électronique sont réalisées dans les trois symétries : B1g, qui allume les points $(\pm\pi, 0)$ et $(0, \pm\pi)$ de la surface de Fermi, la symétrie B2g est sensible aux points $(\pm\pi/2, \pm\pi/2)$ et enfin la symétrie A1g sonde la réponse électronique de façons isotrope dans le plan de base.

Sur la Fig.1.21 1), nous montrons les spectres Raman mesurés dans un échantillon de Hg-1201 au dessus et en dessous de la température critique dans les trois symétries B1g, A1g et B2g[191]. Les parties de la surface de Fermi allumées dans chaque symétrie sont

indiquées dans les inserts des figures. A travers T_c , on observe dans la symétrie B1g l'ouverture du continuum électronique qui se traduit par un transfert de poids spectral des basses énergies vers les hautes énergies. Le pic apparaissant dans l'état supraconducteur est généralement associé à l'ouverture du gap supraconducteur aux points antinodaux et fournit donc une mesure de $2\Delta_{max}$ [179, 194, 185]. Nous reportons sur la Fig.1.22, les mesures de $2\Delta_{max}$ obtenues par diffusion Raman[183, 185]. Comme pour les valeurs de $2\Delta_{max}$ déduites des mesures de STM, on remarque des variations importantes du $2\delta_{max}$ autour du dopage optimum. Les mesures de [183] mettent en évidence une variation de 16% du $2\Delta_{max}$ entre un échantillon de YBCO₇ et YBCO_{6.93} alors que la T_c ne varie que de 4%.

De plus, pour un gap supraconducteur de symétrie $d_{x^2-y^2}$, la présence des noeuds induit, à basse énergie, un comportement en ω^3 de la réponse électronique dans la symétrie B1g[179, 194]. Ce comportement est mis en évidence dans l'insert de la Fig1.21 1) et a été observé dans de nombreux cuprates au dopage optimum Bi-2212[195], Tl-2201[197], La-214[198], Hg-1223[200]. Au contraire, à travers T_c , les changements dans le canal B2g sont beaucoup moins visibles en accord avec la symétrie $d_{x^2-y^2}$ du paramètre d'ordre.

La réponse Raman dans la symétrie A1g est marquée par l'apparition d'un pic dans le continuum électronique à plus basse énergie que celui du canal B1g, voir Fig.1.21 1). Ce mode électronique A1g est observé dans toutes les familles de cuprates au dopage optimum : YBCO[184, 183], Bi-2212[193, 194, 196], Bi-2223 [196], Hg-1223 [200], Tl-2201 [197] et La-214 [198].

La présence d'une telle bosse dans le canal A1g, symétrie s, est anormale. En effet, les calculs de la susceptibilité Raman dans un supraconducteur BCS avec interaction montrent que la réponse dans la symétrie A1g devrait être écrantée. D'autre part, la position en énergie du maximum d'intensité dans le canal A1g devrait être proche de celle du pic B1g. Une des parties du travail de thèse de Y.Gallais[171] a été d'apporter des éléments pour la compréhension de l'origine du pic A1g. Son travail démontre que le signal électronique A1g correspond à une nouvelle échelle d'énergie indépendante de celle observée pour le signal B1g. D'autre part, son travail a mis en évidence une correspondance phénoménologique entre le pic A1g Raman et le pic de résonance neutron[184]. Sur la Fig.1.21 2), nous montrons l'évolution en température de l'intensité et de la position des pics Ramans B1g, A1g dans un échantillon de Y123 au voisinage du dopage optimum. Le pic de résonance magnétique et le mode A1g apparaissent à la même énergie, autour de 40meV, alors que le pic B1g est situé à plus haute énergie. L'intensité du pic A1g et de la résonance magnétique suivent la même dépendance en température différente de celle du pic B1g. Enfin, comme pour le pic de résonance magnétique, on observe pas de renormalisation de la position du pic A1g avec la température.

Cependant d'autres effets peuvent donner des contributions dans la symétrie A1g : les effets liés au couplage entre plans CuO₂ sont à l'origine d'un signal A1g non écranté[208], ou encore la présence d'effets résonnants[196].

1.7 Position de la thèse dans la problématique des cuprates supraconducteurs à haute température critique

Généralement, on expose la problématique des cuprates en commençant par décrire l'état antiferromagnétique auquel on ajoute des trous de dopage. Le problème consiste à comprendre comment les trous de dopage vont se déplacer dans la matrice AF où l'énergie de répulsion coulombienne, qui interdit la double occupation, est l'énergie dominante. Le problème étant de savoir quel type de quasiparticules ou quel type de liquide se développe à mesure que le dopage augmente. Les théories dites "de couplage fort" proposent plusieurs alternatives suivant l'approximation utilisée pour traiter les opérateurs de Hubbard, voir partie 1.2.2. Seule la comparaison avec l'expérience doit permettre de guider ces approximations. Il est donc nécessaire de pouvoir, expérimentalement, caractériser l'état normal. Comme nous l'avons présenté dans la partie 1.4 de ce chapitre, l'état normal de la partie sousdopé du diagramme de phase présente de nombreux écarts par rapport à un comportement standard de liquide de Fermi. En outre, nous ne savons pas si les fortes fluctuations AF, et de façon général les anomalies électroniques et magnétiques, observées dans ce régime sont liées à une phase qui précède la supraconductivité ou à une phase qui coexiste avec l'état supraconducteur. Le problème des cuprates peut être alors considéré en partant de l'autre extrémité du diagramme de phase, le régime surdopé, où l'expérience tant à montrer un comportement standard de type liquide de Fermi de l'état normal. Malheureusement, les fluctuations antiferromagnétiques de l'état normal deviennent alors trop faibles pour être détectées par DIN, Fig.1.13. Cependant, la supraconductivité semble être de même nature sur l'ensemble du diagramme de phase, Fig.1.4. En effet, la symétrie du paramètre d'ordre est la même et les valeurs des températures critiques sont tout aussi élevées. Dans un scénario où l'antiferromagnétisme joue un rôle dans le mécanisme de la supraconductivité, on peut se demander si le poids des fluctuations AF est encore suffisant dans le régime surdopé pour générer un appariement. Il est donc nécessaire de trouver un moyen pour "peser" ces fluctuations dans le régime surdopé. Par DIN, le passage dans l'état supraconducteur joue le rôle d'un révélateur des fluctuations magnétiques. En effet, comme on l'observe sur la Fig.1.15, alors que les fluctuations AF sont diluées dans l'état normal, elles se dévoilent dans l'état supraconducteur en formant un pic localisé sur une petite gamme d'énergie et de vecteur d'onde, le pic de résonance magnétique.

Au cours de cette thèse, nous nous sommes donc intéressé à caractériser l'évolution du pic de résonance, ou plus généralement du spectre magnétique, dans l'état supraconducteur de Y123 à travers le régime surdopé. Celui-ci a été très peu étudié par DIN, essentiellement lié au fait qu'il n'est pas accessible dans Y123, Fig.1.2 b). Pour accroître le dopage en trous, nous avons utilisé la substitution hétérovalente de l'ion Y^{3+} par l'ion Ca^{2+} (voir partie 1.1.1 et 2.5). Nous reportons sur la Fig.1.22 l'évolution, en fonction du dopage, de la position en énergie de la résonance, E_r , mesuré par DIN dans Y123[90, 107, 129, 96, 128, 115] et dans Bi2212[130, 141]. La ligne qui passe par les points de E_r correspond à $5.3k_B T_c$. Les mesures de DIN du coté surdopé se limite à un unique point dans un échantillon de Bi2212($T_c = 80$ K)[140].

Sur la même figure, nous reportons la position de deux fois le maximum du gap supra-

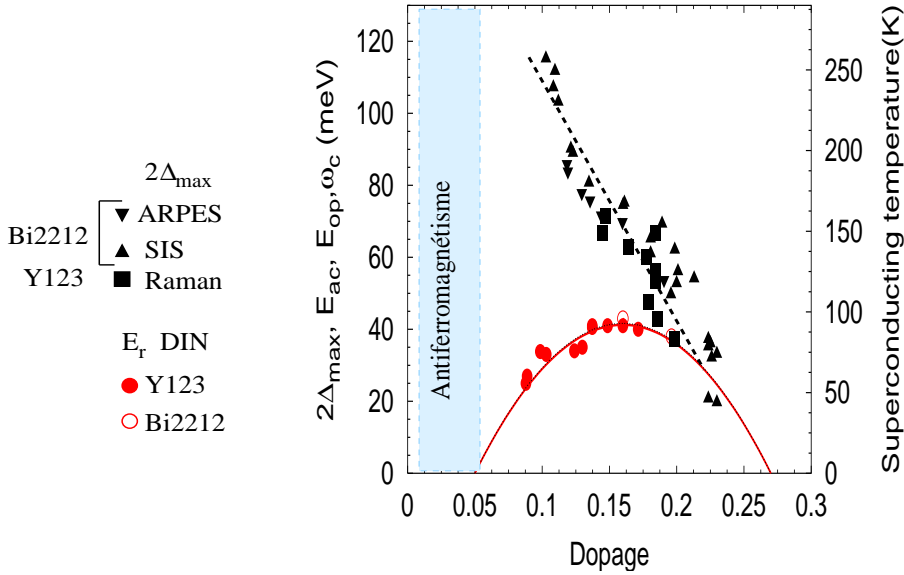


FIG. 1.22 – Evolution en fonction du dopage de la position de l'énergie de la résonance magnétique au vecteur d'onde AF, E_r , et de deux fois le maximum du gap supraconducteur, $2\Delta_{max}$. Les valeurs de $2\Delta_{max}$, symbols noirs, ont été obtenus dans le système Bi2212 par ARPES[24] (triangle inversé noir), par jonction SIS[166, 167](triangle noir) et dans le système Y123 par Raman[183, 185](carré noir). E_r a été mesurée par DIN dans Y123[90, 107, 129, 96, 128, 115], ronds rouges, et dans Bi2212[130, 141], cercles rouges.

conducteur, $2\Delta_{max}$, mesuré soit par photo-emission résolue en angle (ARPES)[24] soit dans les jonctions supraconducteur-isolant-supraconducteur (SIS)[166]. Contrairement à la résonance, $2\Delta_{max}$ ne varie pas proportionnellement avec T_c en fonction du dopage. Dans le régime sousdopé, la position en énergie du continuum est bien supérieure à celle de la résonance. Dans le régime surdopé, on observe que $2\Delta_{max}$ se rapproche de la ligne $5.3k_B T_c$. Si on suppose que l'énergie de la résonance suit la même loi dans tout le diagramme de phase, la position en énergie de la résonance et celle du gap devrait converger vers la même valeur en un point dans le régime surdopé. La question est alors de savoir comment se réalise cette rencontre? pour répondre efficacement à cette question, nous avons réalisé des mesures de diffusion Raman électronique afin d'obtenir la position du $2\Delta_{max}$ sur nos échantillons. Nous disposons ainsi de la mesure de E_r et de $2\Delta_{max}$ sur les mêmes systèmes. D'autre part, nous poursuivrons la correspondance phénoménologique entre le pic électronique A1g Raman et le pic de résonance magnétique neutron[184].

Au cours de cette thèse, nous nous sommes également intéressé à comprendre les effets associés à la présence du biplans. En effet, les systèmes Y123 et Bi2212, les plus largement étudiés, sont composés de deux plans CuO_2 par maille élémentaire, Fig1.1. Dans l'état AF de Y123, les mesures de DIN des ondes de spins mettent en évidence l'existence d'un couplage magnétique interplan, voir partie 1.5.1. Les calculs de structures de bande type LDA [159] prévoit un terme de saut interplan non négligeable. Récemment, les mesures d'ARPES dans des échantillons de Bi2212 au dopage optimum et dans le régime surdopé [253, 254, 257, 255, 259] ont confirmé l'existence de ce terme de saut interplan, Fig.1.8. Toutes ces mesures et calculs démontrent que les deux plans CuO_2 , à l'intérieur de la

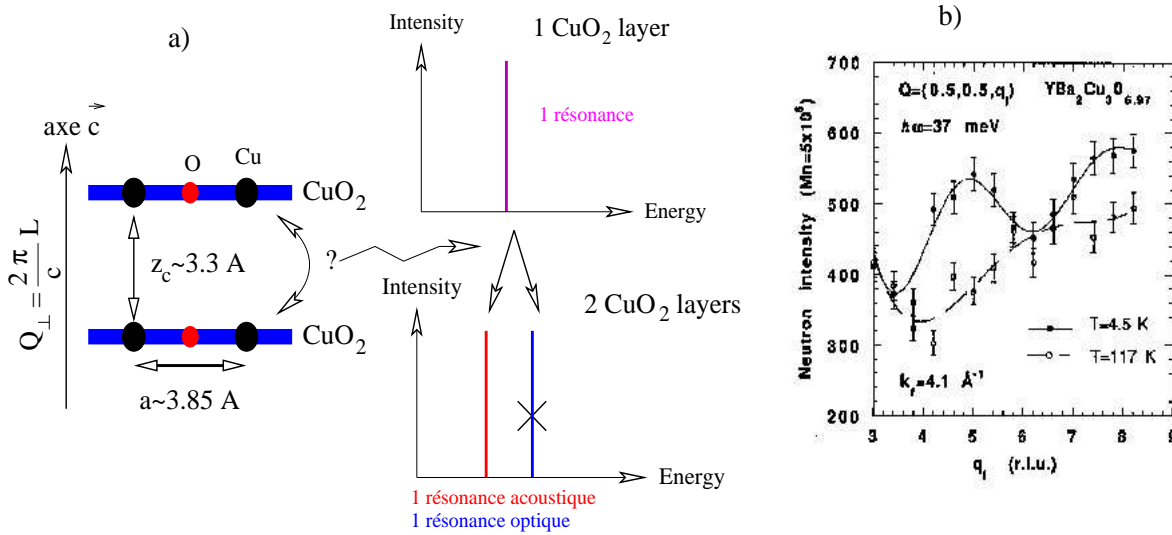


FIG. 1.23 – Sur la figure a), nous montrons que dans les systèmes à deux plans CuO_2 par maille élémentaire, tels que Y123 ou Bi2212, l'existence d'un couplage interplan (magnétique ou électronique) doit lever la dégénérescence du pic de résonance magnétique par rapport à un système ayant un unique plan CuO_2 par maille élémentaire. Par analogie aux ondes de spins dans le composé AF, nous devrions observer une résonance acoustique modulée en $(\sin(\pi L z_c))^2$ suivant l'axe \vec{c} et une résonance optique modulée en $(\cos(\pi L z_c))^2$ suivant l'axe \vec{c} . Sur la figure b), nous reportons les coupes brutes, au vecteur d'onde AF et à l'énergie de la résonance, le long de l'axe \vec{c} mesurée dans un échantillon de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.97}$ [97]. Ces coupes mettent en évidence la modulation en $(\sin(\pi L z_c))^2$ de la résonance magnétique et confirment l'existence d'un couplage interplan. Étrangement, la résonance optique n'a jamais été observée.

maille, ne sont pas indépendants. Quelque soit l'origine de l'interaction interplan, nous devrions observer une levée de dégénérescence du pic de résonance magnétique par rapport au cas d'un composé à 1 unique plan CuO_2 dans la maille élémentaire. Sur la Fig.1.23 a), nous schématisons le problème du biplans. Par analogie aux ondes de spins acoustique et optique, nous devrions observer une résonance ayant un facteur de structure acoustique modulé en $(\sin(\pi L z_c))^2$ suivant l'axe \vec{c} et une seconde résonance ayant un facteur de structure optique modulé en $(\cos(\pi L z_c))^2$ suivant l'axe \vec{c} [128, 231, 221]. En fait, depuis sa découverte, la résonance est observée avec une modulation en $(\sin(\pi L z_c))^2$ suivant l'axe \vec{c} [97], voir Fig.1.23 b). Elle correspondrait alors à la résonance acoustique. La présence de cette modulation prouve l'existence d'un couplage interplan. Naturellement, la seconde résonance(optique), modulée en $(\cos(\pi L z_c))^2$, a été recherchée mais en vain. Comment comprendre cette différence de comportement entre la réponse magnétique dans le canal acoustique et celle du canal optique? Plusieurs alternatives ont été proposées [221, 229, 231, 232]. L'idée générale est d'éteindre l'intensité de la résonance optique en rapprochant sa position de celle du gap supraconducteur. On peut rapprocher la position du mode vers celle du gap en utilisant un couplage magnétique interplan J_{\perp} [221], ou l'inverse, en utilisant un appariement supraconducteur interplan, Δ_{\perp} [231], ou encore rapprocher les positions des deux à la fois en utilisant un terme de saut interplan, t_{\perp} [232]. Là encore, il est nécessaire d'obtenir une mesure de la résonance optique et de pouvoir positionner son énergie par rapport à celle du gap supraconducteur. Grâce à l'augmentation récente

des flux de neutrons disponibles, nous avons pu nous intéresser de nouveau à l'existence d'une résonance magnétique optique.

En résumé

Cette thèse porte sur une étude des fluctuations magnétiques par DIN dans l'état supraconducteur de trois composés de YBCOCa_y : légèrement sousdopé ($y=0$, $T_c=89\text{K}$), légèrement surdopé ($y=0.1$, $T_c=85.5\text{K}$) et surdopé ($y=0.15$, $T_c=75\text{K}$). Les fluctuations magnétiques sont sondées dans les canaux acoustique et optique pour chaque échantillon. Cette étude de DIN est couplée avec une étude de diffusion électronique Raman afin d'extraire, sur les mêmes échantillons, les propriétés magnétiques et électroniques.

Chapitre 2

Aspects expérimentaux

Dans la première partie de ce chapitre, nous nous intéressons à la technique de diffusion inélastique des neutrons (DIN). Nous présentons le lien entre la section efficace de diffusion inélastique des neutrons et la susceptibilité de spin. Nous montrons alors les différentes expressions de la susceptibilité de spin dans un métal et dans un supraconducteur de type BCS avec et sans interactions. Enfin nous discutons de la réalisation pratique d'une expérience de DIN en indiquant les problèmes spécifiques à la mesure dans les cuprates. Dans la seconde partie de ce chapitre, nous décrivons les bases théoriques de la diffusion Raman électronique utiles pour les mesures dans les cuprates. Enfin, la dernière partie de ce chapitre est consacrée à la présentation des méthodes de préparation et de caractérisation des échantillons. Une étude bibliographique sur les effets de la substitution de l'ion Y^{3+} par l'ion Ca^{2+} est également présentée.

2.1 Diffusion des neutrons

Les neutrons dans les cuprates

Une des principales difficultés des cuprates est de comprendre comment se déplace un trou dans la matrice AF, i.e comment passe-t-on de l'état antiferromagnétique à l'état supraconducteur. Pour ce faire, nous pouvons regarder comment se déforme la matrice AF avec le dopage, c'est à dire sonder la fonction de corrélation spin-spin autour du vecteur d'onde AF. La **diffusion inélastique des neutrons (DIN)** est l'unique sonde qui permet une mesure directe de la transformée de Fourier de la fonction de corrélation spin-spin sur une gamme d'énergie comprise entre 1meV et 200meV et pour des vecteurs d'ondes dans l'espace réciproque. Au cours de ce chapitre, nous montrerons que la fonction de diffusion magnétique neutron, $S^{\alpha\beta}(\vec{Q}, \omega)$, est reliée à la partie imaginaire de la susceptibilité de spin :

$$S^{\alpha\beta}(\vec{Q}, \omega) \leftrightarrow \text{Im}\chi^{\alpha,\beta}(\vec{Q}, \omega) \quad (2.1)$$

où (α, β) représentent les composantes cartésiennes. La technique de diffusion des neutrons permet donc d'avoir accès au spectre des excitations magnétiques du système. La technique de DIN joue donc un rôle crucial dans la compréhension des cuprates. Tout d'abord, elle a permis de caractériser précisément les valeurs numériques des termes de couplages magnétiques dans l'état isolant AF, voir partie 1.5.1. D'autre part, les expériences de DIN permettent de reconstituer l'évolution en énergie et vecteur d'onde des fluctuations magnétiques dans l'état normal des cuprates du régime sousdopé au régime surdopé, voir partie 1.5.2. Dans l'état supraconducteur des cuprates, les expériences de DIN ont révélé l'existence d'une excitation magnétique qui apparaît exclusivement dans la phase supraconductrice au vecteur d'onde AF, voir partie 1.5.3. Cette excitation est devenue une propriété centrale pour tout modèle théorique visant à expliquer la supraconductivité.

Cependant la technique de DIN, pour l'étude des fluctuations magnétiques dans les cuprates, nécessite l'utilisation de monocristaux avec un volume au minimum de l'ordre de 0.1cm^3 . De tels volumes sont accessibles uniquement dans deux familles de cuprates qui sont donc étudiées par DIN : $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_4\text{O}_4$ et $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$. Récemment, sous l'impulsion de **B. Keimer**, les études de DIN ont pu s'ouvrir à d'autres familles de cuprates en reconstituant à partir d'un grand nombre de monocristaux de volume bien inférieurs

à 0.1cm^3 , un "pseudo-monocristal" ayant un volume suffisant pour une étude de DIN. Ce procédé a été mise en pratique et son efficacité a été démontrée pour la première fois par l'étude par DIN d'un pseudo-monocristal de 0.11cm^3 , composée de 300 petits monocristaux, de $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+\delta}$ [141]. Cette technique de montage permet également d'obtenir des monocristaux de qualité supérieure, augmentant ainsi la précision des expériences de DIN. En effet, les gros monocristaux de YBCO, type pastille de 1-2cm de diamètre[37], sont généralement de qualité cristallographique médiocre. Typiquement, la distribution angulaire des axes cristallographiques, la mosaïcité, de ces gros monocristaux est de l'ordre de 3° . Aujourd'hui, en assemblant les petits monocristaux ensemble, nous atteignons des mosaïcités inférieures à 1.5° pour le pseudo-monocristal. De plus, les effets de certains traitements (substitution, démaclage etc..) uniquement réalisables ou contrôlés sur des monocristaux de petite taille peuvent maintenant être étudiés.

La technique de DIN a été également marquée ces dernières années par des progrès importants sur l'optimisation des flux de neutrons disponible sur les spectromètres trois axes. C'est essentiellement la focalisation du faisceau de neutrons qui a engendré le plus gros gain, presque un facteur 10. En effet, on augmente les tailles des monochromateurs et analyseurs afin de minimiser les pertes de neutrons et on courbe ces éléments pour refocaliser les neutrons sur l'échantillon, Chap.2.2.1 et voir la Fig.2.9. Dans cette thèse nous montrerons que cette augmentation de flux a permis de découvrir de nouveaux signaux magnétiques et de caractériser plus précisément le spectre des fluctuations magnétiques dans les cuprates.

2.1.1 Éléments théoriques de la diffusion inélastique des neutrons

Section efficace différentielle

Dans une expérience de diffusion des neutrons, la cible est soumise à un flux monochromatique de neutrons considérés comme des ondes planes de vecteur d'onde \vec{k}_i , de spin σ et d'énergie $E_i = \frac{\hbar^2 k_i^2}{2M_n}$ où $M_n = 1.675 \cdot 10^{-27}\text{kg}$ est la masse du neutron. Il apparaît alors un potentiel d'interaction neutron-cible qui dévie les neutrons de leur trajectoire, et dans l'approximation de Born, l'onde stationnaire diffusée loin de la cible est une onde plane qui se propage dans la direction du vecteur d'onde \vec{k}_f . L'énergie totale et l'impulsion sont conservées (conditions cinématiques) :

$$\text{Conditions cinématiques} \begin{cases} \vec{k}_i - \vec{k}_f = \vec{Q} \\ E_i - E_f = \hbar\omega \end{cases} \quad (2.2)$$

où \vec{Q} et $\hbar\omega$ sont l'impulsion et l'énergie échangées par la cible avec le neutron. La section efficace différentielle ($\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega}$) est définie par la fraction du flux de neutrons incidents, $|\vec{k}_i, \sigma\rangle$, diffusés dans l'état, $|\vec{k}_f, \sigma'\rangle$, dans l'élément d'angle solide $d\Omega$ autour de la direction \vec{k}_f et avec une énergie finale comprise entre $E_f = \hbar^2 k_f^2 / 2M_n$ et $E_f + dE_f$:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = \frac{k_f}{k_i} | \langle \vec{k}_f, f | \tilde{V} | \vec{k}_i, i \rangle |^2 \delta(\hbar\omega - \hbar\omega_{f,i}) \quad (2.3)$$

où \tilde{V} est le potentiel d'interaction du neutron avec la cible.

$$\langle \vec{k}_f, f | \tilde{V} | \vec{k}_i, i \rangle = \frac{M_n}{2\pi\hbar^2} \int d\vec{r} e^{i(\vec{k}_i - \vec{k}_f) \cdot \vec{r}} V(\vec{r}) \quad (2.4)$$

Les neutrons interagissent avec la matière par les interactions fortes et électromagnétiques :
i) avec le noyau des atomes (interaction nucléaire) et avec le spin nucléaire et ii) avec le spin des électrons non appariés du solide. Dans ce qui suit, nous nous intéressons essentiellement à la diffusion par le spin des électrons.

A température non nulle, le probabilité d'occupation d'un état $|n\rangle$ d'énergie E_n est donnée par : $p_n \sim e^{-E_n/k_B T}$. En faisant la somme sur les états initiaux du système pondérés par leur probabilité d'occupation dans l'Eq.2.3, on obtient la section efficace différentielle mesurée par diffusions des neutrons :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = \frac{k_f}{k_i} \sum_i p_i |\langle \vec{k}_f, f | \tilde{V} | \vec{k}_i, i \rangle|^2 \delta(\hbar\omega - \hbar\omega_{f,i}) \quad (2.5)$$

Diffusion résultante de l'interaction avec le spin des électrons non appariés

Potentiel d'interaction :

Comme le neutron possède un spin, on observe une diffusion due à l'interaction dipolaire du moment magnétique du neutron avec le moment magnétique électronique des atomes. Le moment magnétique d'un noyau étant 1836 fois plus faible que celui d'un électron, seule la diffusion par le moment magnétique électronique est mesurable. Dans ce qui suit, nous ne prenons pas en compte la diffusion par le moment orbital induit par le mouvement de l'électron autour du noyau. Nous considérons uniquement la diffusion par le moment magnétique des électrons non appariés du solide : $\vec{\mu}_e = -2\mu_B \vec{s}$. On montre que le potentiel d'interaction est[64] :

$$V(\vec{r}) = 2\gamma\mu_n\mu_B\tilde{\sigma} \cdot \nabla \times \frac{\vec{s} \times \vec{r}}{|\vec{r}|^3} \quad (2.6)$$

où

- i) μ_n est le moment magnétique du neutron et μ_B est le moment magnétique de Bohr.
- ii) $\tilde{\sigma}$ l'opérateur de spin de Pauli du neutron.
- iii) \vec{s} opérateur de spin en \vec{r}
- iv) ∇ l'opérateur gradient

Fonction de corrélation de spin :

Pour un faisceau de neutrons incidents non polarisés, on démontre[64] que la section efficace différentielle a pour expression :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = r_0^2 \frac{k_f}{k_i} |f(\vec{Q})|^2 \exp(-2W(\vec{Q})) \sum_{\alpha,\beta} (\delta_{\alpha\beta} - \frac{Q^\alpha Q^\beta}{Q^2}) S^{\alpha\beta}(\vec{Q}, \omega) \quad (2.7)$$

où,

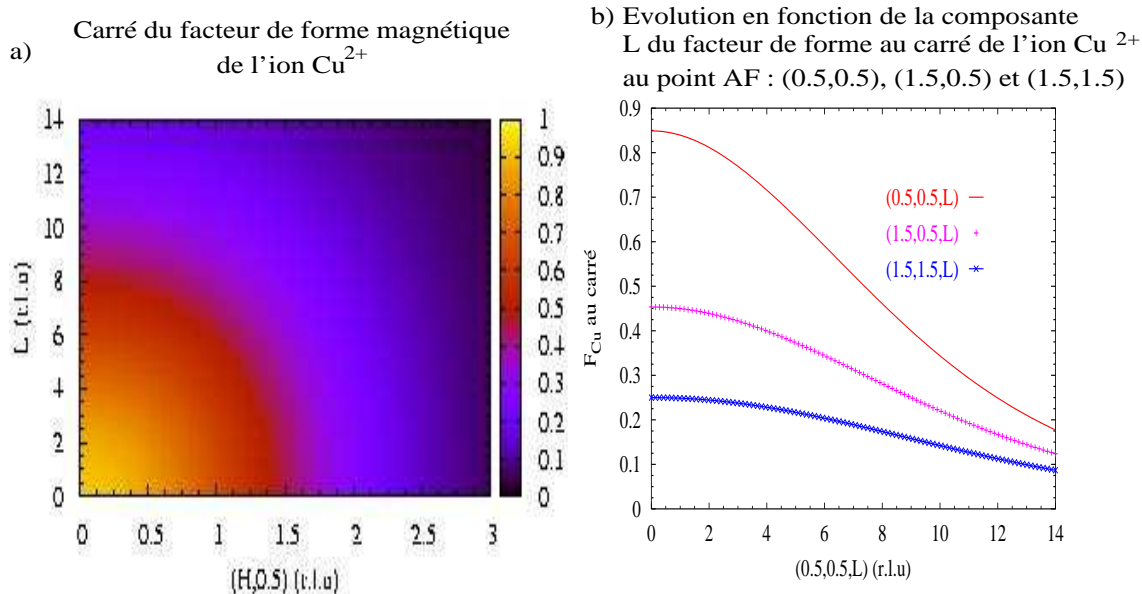


FIG. 2.1 – Sur la figure a), nous montrons une carte en couleur du facteur de forme de l'ion Cu^{2+} en fonction de la composante H dans le plan de base et L suivant l'axe \vec{c} . Les coupes suivant l'axe \vec{c} aux vecteurs d'ondes AF : $(0.5,0.5)$, $(1.5,0.5)$ et $(1.5,1.5)$ sont reportées sur la figure b)

i) α, β sont les composantes x,y et z du vecteur d'onde \vec{Q} .

ii) $r_0 = \frac{\gamma e^2}{m_e c^2} = 0.54 \cdot 10^{-12} \text{ cm}$ et $r_0^2 = 0.29 \text{ barn}$.

iii) $f(\vec{q})^2$ est le facteur de forme magnétique. Mis au carré, il est l'enveloppe du signal magnétique. Il correspond à la transformée de Fourier de la probabilité de présence de l'électron au point \vec{r} . Dans les cuprates, on observe que le comportement en vecteur d'onde des signaux magnétiques évolue comme le facteur de forme magnétique des orbitales $d_{x^2-y^2}$ de l'ion Cu^{2+} [138]. Ce facteur est anisotrope dans le plan de base. Sur la Fig.2.1 a), nous montrons une carte du carré du facteur de forme de l'ion Cu^{2+} en fonction de la composante planaire H et de la composante suivant l'axe \vec{c} , L , du vecteur d'onde transféré : $Q = \frac{2\pi}{a}(H\vec{i}_{100} + K\vec{j}_{100}) + \frac{2\pi}{c}L\vec{k}_{001}$. On observe que son intensité diminue à mesure que l'amplitude du vecteur d'onde transféré augmente. L'intensité magnétique suit donc la même tendance. C'est une propriété importante de tout signal magnétique mesuré par DIN : **contrairement à un signal d'origine nucléaire, l'intensité magnétique décroît pour les grandes valeurs de $|\vec{Q}|$** . Nous utilisons cette propriété dans les expériences de DIN non polarisées afin de prouver l'origine magnétique du signal. Sur la Fig.2.1 b), nous reportons les coupes suivant l'axe \vec{c} du carré du facteur de forme aux trois vecteurs d'onde AF fréquemment utilisés dans nos expériences : AF(0.5,0.5), AF(1.5,0.5) et AF(1.5,1.5). Sur la Fig.2.1 a), on observe que le facteur diminue rapidement avec la composante dans le plan. Dans la mesure du possible, nous réalisons donc nos expériences de DIN autour du plus petit vecteur AF.

iv) $W(\vec{Q})$ facteur de Debye-Waller. Ce terme mesure les vibrations thermiques de

l'atome autour de sa position d'équilibre et est donc fonction du désordre dans le système. Il est directement relié à la fonction d'autocorrélation densité-densité, le lecteur peut trouver sa définition exacte dans[64] (volume 1 p108). Intuitivement, deux énergies peuvent créer le désordre : l'énergie d'agitation thermique, $k_B T$, l'énergie de recul de l'atome après collision avec le neutron, $\hbar q^2/2M$. Ces deux énergies contribuent à l'expansion de l'atome en peuplant les états phononiques d'énergie, $\hbar\omega_0$. Nous avons alors : $W(\vec{Q}) \sim [(\text{énergie de recul/quantum d'énergie potentielle}) \times (\text{énergie d'agitation thermique/quantum d'énergie potentielle})] = ((\hbar q^2/2M)/(\hbar\omega_0)) \times (k_B T/\hbar\omega_0)$ que l'on peut réécrire en utilisant le déplacement moyen de l'atome autour de sa position d'origine, $\langle u^2 \rangle \sim k_B T/M\omega_0^2$, $W(\vec{Q}) \sim q^2 \langle u^2 \rangle$. Les mesures de diffractions des neutrons sur Y123[65] montrent que les déplacements moyens de l'atome du cuivre dans le plan CuO₂ sont de 0.0038Å² à T=296K et 0.0016Å² à T=45K. Ainsi, au vecteur d'onde AF, $|(0.5, 0.5)| = 1.15\text{Å}^{-1}$, nous obtenons $[\exp(-W(q_{AF}))]_{296K} \sim 0.995$ et $[\exp(-W(q_{AF}))]_{45K} \sim 0.998$. L'effet du facteur de Debye-Waller et de son évolution en température sur l'intensité magnétique sont inférieurs au pourcent. Comme nous sommes loin d'une telle précision sur les signaux magnétiques que l'on mesure, nous pouvons négliger ce facteur dans la section efficace de diffusion.

- v) le tenseur $(\delta_{\alpha\beta} - \frac{Q^\alpha Q^\beta}{Q^2})$, appelé facteur d'orientation, est lié à la nature dipolaire de l'interaction. Il indique que seules les composantes de l'aimantation perpendiculaires au vecteur de diffusion \vec{Q} contribuent à la section efficace de diffusion magnétique.

Dans cette expression, la section efficace différentielle est directement proportionnelle à la transformée de Fourier dans l'espace et dans le temps de la fonction de corrélation spin-spin, $S^{\alpha\beta}(\vec{Q}, \omega)$ qui s'écrit :

$$S^{\alpha\beta}(\vec{Q}, \omega) = \frac{1}{2\pi} \sum_{i,j} \exp(-i\vec{Q} \cdot (\vec{R}_i - \vec{R}_j)) \int dt \langle S_i^\alpha(0) S_j^\beta(t) \rangle \exp(i\omega t)$$

$S^{\alpha\beta}(\vec{Q}, \omega)$ est également nommée fonction de diffusion.

Susceptibilité magnétique :

Dans le cadre de la théorie de la réponse linéaire, on démontre que la fonction de corrélation de spin du système est directement proportionnelle à la partie imaginaire de la susceptibilité généralisée, $\chi(\vec{q}, \omega) = \chi'(\vec{q}, \omega) + i\chi''(\vec{q}, \omega)$:

$$S^{\alpha\beta}(\vec{Q}, \omega) = \frac{1 + n(\omega, T)}{\pi} \frac{\chi''_{\alpha,\beta}(\vec{q}, \omega)}{(g\mu_B)^2} \quad (2.8)$$

$\chi''_{\alpha,\beta}(\vec{q}, \omega)$ est exprimé en $\mu_B^2 \cdot eV^{-1}$. $1 + n(\omega, T) = \frac{1}{1 - \exp(\frac{-\hbar\omega}{k_B T})}$ est le facteur de balance détaillée. Celui-ci traduit l'équilibre thermique qui s'établit entre la cible et le flux de neutrons incidents, en effet, en appliquant le principe de microréversibilité, on montre que $S^{\alpha\beta}(-\vec{Q}, -\omega) = \exp(\frac{-\hbar\omega}{k_B T}) S^{\alpha\beta}(\vec{Q}, \omega)$.

La partie imaginaire de la susceptibilité est une mesure du **spectre des excitations magnétiques**. La diffusion des neutrons nous donne donc accès aux excitations propres

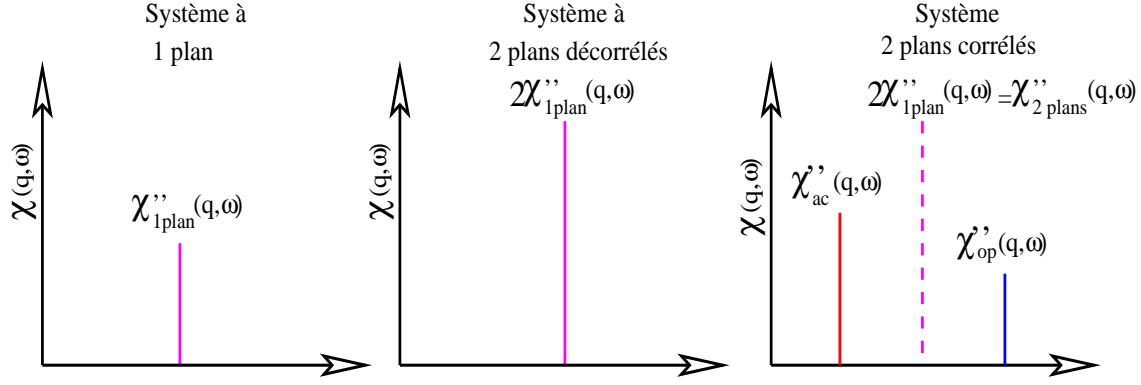


FIG. 2.2 – Passage d’une susceptibilité magnétique d’un système à 1 plan CuO_2 (ex. Tl2201) à un système à deux plans CuO_2 décorrelés puis corrélés (ex. Y123 ou Bi2212).

du système. En effet, cette quantité est non nulle chaque fois que l’énergie ω apportée au système ou cédée par le système correspond exactement à l’écart entre deux énergies propres du système étudié.

Dans ce manuscrit, nous traitons essentiellement le cas d’un système isotrope. Dans un tel système où il n’y a pas de direction privilégiée des fluctuations magnétiques, soit $\chi''_{xx}(\vec{q}, \omega) = \chi''_{yy}(\vec{q}, \omega) = \chi''_{zz}(\vec{q}, \omega)$, le facteur d’orientation vaut 2 et la section efficace de diffusion devient :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = \frac{2r_0^2 k_f}{\pi k_i} |f(\vec{Q})|^2 \exp(2W(\vec{Q})) \frac{\chi''_{zz}(\vec{q}, \omega)}{(g\mu_B)^2} \quad (2.9)$$

$\chi''_{zz}(\vec{q}, \omega)$ est la susceptibilité à 1 composante exprimée en $\mu_B^2 \cdot eV^{-1} \cdot f \cdot u^{-1}$ ("f.u." formula unit). En général, dans les travaux théoriques[225, 219, 229, 232, 220], c’est la susceptibilité transverse $\chi''_{+-}(\vec{q}, \omega)$ qui est égale à 2 fois la susceptibilité $\chi''_{zz}(\vec{q}, \omega)$ qui est calculée.

En utilisant la valeur de r_0 donnée ci-dessus et en négligeant le facteur de Debye-Waller, nous arrivons à l’expression de la section efficace utilisée dans ce manuscrit :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = \frac{k_f}{k_i} 0.0461 |f(\vec{Q})|^2 \frac{\chi''_{zz}(\vec{q}, \omega)}{(g\mu_B)^2} \quad (2.10)$$

Dans ce qui suit, nous n’écrivons plus l’indice "zz".

Susceptibilité magnétique dans un système à deux plans par maille élémentaire :

L’essentiel des expériences présentées dans ce manuscrit a été réalisé dans le système Y123 qui possède deux plans CuO_2 par maille élémentaire, Fig.1.1 b). Dans ce cas, par analogie aux ondes de spins dans le composé YBCO_6 , Chap.1.5.1, la susceptibilité $\chi''_{zz}(\vec{q}, \omega)$ pour 2 plans peut se décomposer en une partie optique et acoustique, Eq.1.9, $\chi''_{zz}(\vec{q}, \omega)_{2 \text{ plans}} = (\sin(\pi Lz_c))^2 \chi''_{ac}(\vec{q}, \omega) + (\cos(\pi Lz_c))^2 \chi''_{op}(\vec{q}, \omega)$.

Sur la Fig.2.2, nous schématisons l’évolution d’une susceptibilité magnétique pour 1 plan à une susceptibilité magnétique pour deux plans d’abord décorrelés puis corrélés. Nous de-

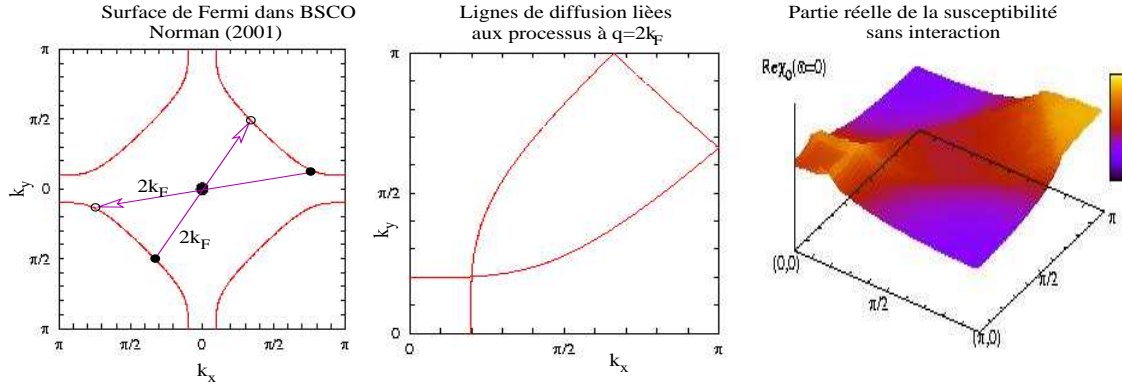


FIG. 2.3 – Sur la figure a), nous montrons une surface de Fermi obtenue par Norman[218] dans Bi2212 à partir des mesures d'ARPES, nommé tb_3 . Sur la figure b), nous montrons les lignes de diffusion des processus à $2k_F$, passant par le centre de zone, obtenues à partir de surface de Fermi de la figure a. Enfin, sur la figure c), nous reportons le résultat du calcul numérique de la partie réelle sans interaction de la susceptibilité à énergie nulle avec la surface de Fermi de la figure a.

vons vérifier la règle de conservation suivante : $\int \chi''(\vec{q}, \omega)_{2 \text{ plans}} dL = \int (\sin(\pi L z_c))^2 \chi''_{ac}(\vec{q}, \omega) + (\cos(\pi L z_c))^2 \chi''_{op}(\vec{q}, \omega) = 2\chi''(\vec{q}, \omega)_{1 \text{ plan}}$. Ceci implique, étant donné notre définition de $\chi''(\vec{q}, \omega)_{2 \text{ plans}}$, que :

$$\frac{1}{2} \left(\chi''_{ac}(\vec{q}, \omega) + \chi''_{op}(\vec{q}, \omega) \right) = 2\chi''(\vec{q}, \omega)_{1 \text{ plan}} \quad (2.11)$$

2.1.2 Diffusion inélastique des neutrons dans un système itinérant

Dans ce qui suit, nous rappelons les expressions élémentaires de la susceptibilité magnétique, $\chi(\vec{Q}, \omega)$, dans un métal standard et un métal supraconducteur BCS avec et sans interaction. L'objectif est de montrer les différents types de processus qui contribuent majoritairement à la susceptibilité et qui, de ce fait, sont susceptibles d'être mesurés par DIN.

Métal sans interaction

Dans un métal sans interactions, la susceptibilité, χ_0 , est donnée par la fonction de Lindhard[64] :

$$\chi_0(\vec{q}, \omega) = -\frac{1}{(g\mu_B)^2} \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \sum_{\vec{k}} \frac{f_{\vec{k}+\vec{q}} - f_{\vec{k}}}{\varepsilon_{\vec{k}+\vec{q}} - \varepsilon_{\vec{k}} - \hbar\omega - i\epsilon} \quad (2.12)$$

χ_0 prend en compte les excitations pour lesquelles une quasiparticule occupant un état (\vec{k}, σ') au dessous du niveau de Fermi est transférée vers un état $(\vec{k}+\vec{q}, \sigma)$ inoccupé au dessus du niveau de Fermi : excitation dite "électron-trou"¹. Ce type d'excitation coûte une énergie $\varepsilon_{\vec{k}+\vec{q}, \sigma} - \varepsilon_{\vec{k}, \sigma'}$. La relation de dispersion des quasiparticules et le niveau de Fermi contrôlent à eux seuls χ_0 . Des effets tels que la proximité d'une singularité de Van Hove

¹L'utilisation du terme "électron" est un abus de langage souvent réalisé quand on parle de métal sans interaction. En fait, un métal sans interaction est un liquide de Fermi constitué de quasiparticules bien définies au niveau de Fermi. Par la suite, ce sont ces quasiparticules que nous faisons interagir

Ouverture du continuum d'excitations électron – trou dans l'état supraconducteur
de symétrie d

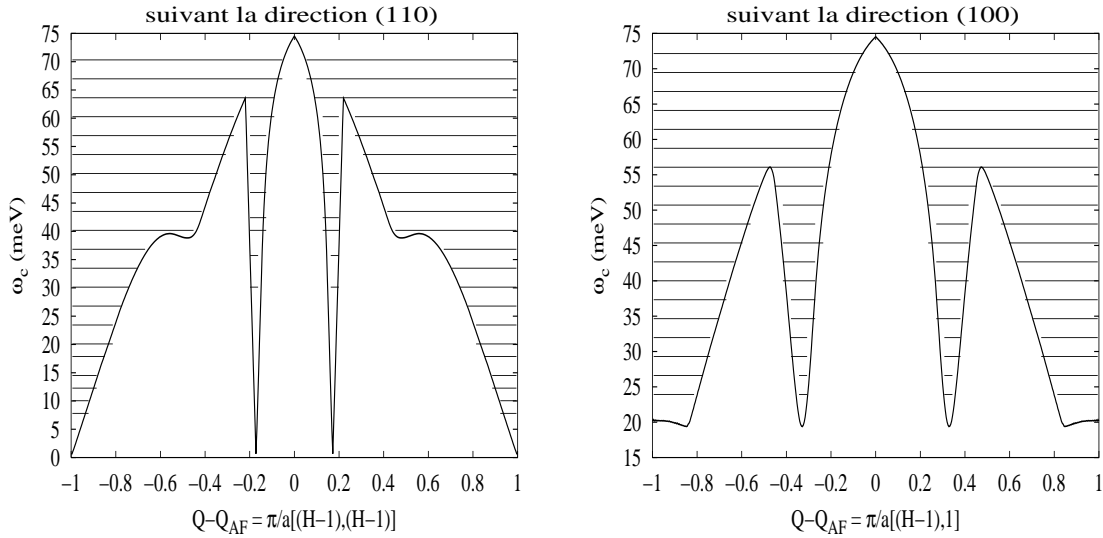


FIG. 2.4 – Sur cette figure nous montrons la bordure du continuum d'excitations électrons-trous, $\omega_c(\vec{q})$, obtenu par l'Eq.2.14 autour du vecteur d'onde AF suivant la direction 110, a), et (100), b). Nous avons utilisé la surface de Fermi de la Fig.2.3 a) et un gap supraconducteur de symétrie $d_{x^2-y^2}$, Eq.1.2, et d'amplitude $2\Delta_{max}=80\text{meV}$. La partie hachurée correspond à l'intérieur du continuum.

ou des propriétés d'emboîtement (nesting) statique ou dynamique donnent les principales contributions à χ_0 . C'est essentiellement **les processus à $\mathbf{q} = 2\mathbf{k}_F$** , où k_F est un vecteur d'onde d'une quasiparticule au niveau de Fermi, qui contribuent à la susceptibilité sans interaction.

Sur la Fig.2.3, nous illustrons ces processus à $q = 2k_F$: pour cela nous partons d'une surface de Fermi obtenue à partir des expériences d'ARPES dans Bi2212[218], Fig.2.3 a). L'ensemble des lignes de diffusion connectées par le vecteur d'onde $q = 2k_F$ (qui passe par le centre de zone, et qui de ce fait, par symétrie, apparaissent 8 fois) peut être obtenu en multipliant par 2 la surface de Fermi et en la repliant dans la première zone de Brillouin, Fig.2.3 b). Cette méthode géométrique permet d'avoir accès simplement aux lignes de diffusion les plus intenses dans le système. En effet, sur la Fig.2.3 c), nous reportons le calcul numérique de la partie réelle de la susceptibilité transverse à énergie nulle à partir de la surface de Fermi de la Fig.2.3 a). Les lignes d'intensité maximale correspondent bien aux axes de diffusion obtenus géométriquement sur la Fig.2.3 b) correspondant aux processus à $2k_F$.

Dans la référence [228], le lecteur pourra trouver une étude de la susceptibilité magnétique sans interaction dans le cas des cuprates.

Métal supraconducteur sans interaction

Dans un supraconducteur, la susceptibilité sans interaction est modifiée du fait de l'appariement des porteurs de charge en paires de Cooper. Dans le cas d'une supraconductivité singulet de spin, le paramètre d'ordre supraconducteur est un scalaire. La susceptibilité

BCS dans l'état supraconducteur est alors donnée par [225, 229, 218, 211, 220] :

$$\chi_0^{BCS}(\vec{q}, \omega) = -(g\mu_B)^2 \lim_{\epsilon \rightarrow 0} 2 \sum_{\vec{k}} \left[1 - \frac{\Delta_{\vec{k}} \Delta_{\vec{k}+\vec{q}} + \varepsilon_{\vec{k}+\vec{q}} \varepsilon_{\vec{k}}}{E_{\vec{k}+\vec{q}} E_{\vec{k}}} \right] \frac{1}{4} \frac{1 - f_{\vec{k}+\vec{q}} - f_{\vec{k}}}{E_{\vec{k}+\vec{q}} + E_{\vec{k}} - \hbar\omega - i\epsilon} \quad (2.13)$$

$$+ \left[1 + \frac{\Delta_{\vec{k}} \Delta_{\vec{k}+\vec{q}} + \varepsilon_{\vec{k}+\vec{q}} \varepsilon_{\vec{k}}}{E_{\vec{k}+\vec{q}} E_{\vec{k}}} \right] \frac{1}{2} \frac{f_{\vec{k}} - f_{\vec{k}+\vec{q}}}{\omega - E_{\vec{k}+\vec{q}} + E_{\vec{k}} + i\epsilon}$$

$E_{\vec{k}} = \sqrt{\Delta_{\vec{k}}^2 + (\varepsilon_{\vec{k}} - \mu)^2}$ représente l'énergie des nouvelles quasiparticules, qui dépend à présent de l'amplitude du gap supraconducteur $\Delta_{\vec{k}}$. Ainsi, en entrant dans la phase supraconductrice, un gap s'ouvre dans le spectre des excitations de basses énergies en suivant la symétrie du paramètre d'ordre. Pour un vecteur \vec{q} donné, la bordure du continuum d'excitations électron-trou (avec renversement du spin), $\omega_c(\vec{q})$ est donné simplement par :

$$\omega_c(\vec{q}) = \text{Min}(E_{\vec{k}+\vec{q}} + E_{\vec{k}}) \quad (2.14)$$

Sur la Fig.2.4 nous reportons le calcul de $\omega_c(\vec{q})$ autour du vecteur AF suivant la direction (110), Fig.2.4 a), et la direction (100), Fig.2.4 b). Pour le calcul, nous avons pris la surface de Fermi, Fig.2.3 a), et un gap supraconducteur de symétrie $d_{x^2-y^2}$ avec $2\Delta_{max}=80\text{meV}$, correspondant aux $2\Delta_{max}$ mesuré par ARPES[24] au voisinage du dopage optimum de Bi2212. Suivant la direction (110), le continuum tombe à énergie nulle aux vecteurs d'onde qui joignent les points nodaux de la surface de Fermi : $2k_N = (0.5 \pm \delta, 0.5 \pm \delta)$. Il est important de noter que la forme du continuum est différente suivant la direction (110) et la direction (100). Par conséquent, toute excitation collective, logeant sous ce continuum à des vecteurs d'ondes autres que q_{AF} , dont l'intensité dépend de leur proximité en énergie au continuum, ont nécessairement des intensités réparties de manière non isotrope dans le plan de base.

Les préfacteurs $1 \pm (\Delta_{\vec{k}} \Delta_{\vec{k}+\vec{q}} + \varepsilon_{\vec{k}+\vec{q}} \varepsilon_{\vec{k}}) / (E_{\vec{k}+\vec{q}} E_{\vec{k}})$, appelés facteurs de cohérence, dépendent quant à eux de la **phase** du paramètre d'ordre supraconducteur. La mesure de la susceptibilité magnétique dynamique pourrait donc en principe complètement déterminer le paramètre d'ordre supraconducteur (de façon indirecte). Les deux termes qui interviennent dans la susceptibilité correspondent respectivement à : (1) **la création ou l'annihilation de paires d'excitations** obtenues en brisant ou formant une paire de Cooper, (2) **la diffusion de quasiparticules**. Ce dernier terme est l'analogue de la la fonction de Lindhard et s'annule à $T=0$, lorsque tous les états de quasiparticules sont inoccupés. La DIN est une mesure d'interférence car elle est sensible au facteur de cohérence donc à la phase du gap supraconducteur. L'existence d'une excitation AF telle que la résonance dans l'état supraconducteur est en accord avec un gap supraconducteur de symétrie $d_{x^2-y^2}$. En effet, pour un gap de symétrie $d_{x^2-y^2}$, le facteur de cohérence est maximum au vecteur d'onde AF, il est donc normal de pouvoir mesurer une excitation à ce vecteur d'onde. Il serait en revanche plus délicat de mesurer une excitation similaire à $q=0$ où le facteur de cohérence est nul. De même, avec une symétrie isotrope s du paramètre d'ordre, $\Delta_{\vec{k}} = \Delta_s$, il serait impossible d'observer une résonance.

En théorie, la technique de DIN est la seule qui aurait la capacité de mesurer la forme du continuum d'excitations électron-trou, Fig.2.4. En pratique, l'intensité des excitations élémentaires du continuum est en dessous de la limite du seuil de détection, mais comme nous le verrons dans cette thèse, l'augmentation récente des flux de neutrons pourrait permettre de voir des structures à l'intérieur de ce continuum.

Métal avec interaction : approximation de type RPA

Il est également important de prendre en compte l'effet des corrélations. Dans un traitement de type RPA, la susceptibilité s'exprime alors en fonction de χ_0 et d'un terme d'interaction (que nous allons appeler $V(\vec{q})$ par simplicité)[225, 229, 218, 211, 220] :

$$\chi(\vec{q}, \omega)_{RPA} = \frac{\chi_0(\vec{q}, \omega)}{1 - V(\vec{q})\chi_0(\vec{q}, \omega)} \quad (2.15)$$

et donc,

$$Im\chi(\vec{q}, \omega)_{RPA} = \frac{Im\chi_0(\vec{q}, \omega)}{(1 - V(\vec{q})\chi_0'(\vec{q}, \omega))^2 + (V(\vec{q})Im\chi_0(\vec{q}, \omega))^2} \quad (2.16)$$

Les corrélations ont pour premier effet de restructurer le continuum d'excitations magnétiques. Le second effet consiste à autoriser l'apparition d'un type nouveau d'excitations : **les modes collectifs**. Ceux-ci apparaissent dès lors que le critère de Stoner dynamique, $1 - V(\vec{q})Re\chi_0(\vec{q}, \omega) = 0$, est satisfait en dehors du continuum ($Im\chi_0(\vec{q}, \omega) = 0$) d'excitations électron-trou, Fig.2.4. Dans les cuprates, du fait de la dépendance en vecteur d'onde de l'interaction, $J(\vec{q}) = \cos(q_x) + \cos(q_y)$, et de la structure de $\chi_0'(\vec{q})$, maximum autour du vecteur d'onde AF (voir Fig.2.3), ces modes collectifs sont généralement confinés dans un petit espace en vecteur d'onde et en énergie autour du vecteur d'onde AF. En effet, la surface libre entre les positions des vecteurs d'onde $q = 2k_N$, Fig.2.4, où sont confinés les excitons de spins autour du vecteur d'onde AF représente seulement $(2 * 0.2\sqrt{2}\pi/a)^2 / (2\pi/a)^2 \sim 6\%$ de la surface totale de la première zone de Brillouin.

Seule la technique de DIN permet de les observer directement, encore faut-il savoir où chercher dans un espace à 4 dimensions.

Mesure d'un mode collectif par DIN telle que le pic de résonance magnétique

Nous avons montré ci-dessus l'existence possible de mode collectif lorsque le critère dynamique de Stoner est satisfait. On mesure un pic isolé à la fréquence du mode $\omega_r(\vec{q})$. La partie imaginaire RPA peut être modélisée pour ce mode par[64] (volume 2 p. 77) :

$$Im\chi(\vec{q}, \omega)_{RPA} \sim Z(\vec{q})\delta(\hbar\omega - \hbar\omega_r(\vec{q})) \quad (2.17)$$

où $Z(\vec{q})$ correspond au poids spectral du mode. En utilisant les relations de Kramers-Kronig, $Re\chi(\vec{q}, \omega)_{RPA} = \frac{1}{\pi}\mathcal{P}\int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \frac{Im\chi(\vec{q}, \omega')_{RPA}}{\omega' - \omega}$, nous obtenons :

$$Re\chi(\vec{q}, \omega)_{RPA} \sim -\frac{1}{\pi\hbar} \frac{Z(\vec{q})}{\omega - \omega_r(\vec{q})} \quad (2.18)$$

On peut alors exprimer le poids spectral du mode collectif à partir de l'expression de la partie réelle sans interaction du système en couplant les Eq.2.18 et Eq.2.15 :

$$Z(\vec{q}) = \frac{\pi\hbar}{V(\vec{q})^2} \left[\frac{\partial}{\partial\omega} Re\chi^0(\vec{q}, \omega) \right]_{\omega=\omega_r}^{-1} \quad (2.19)$$

La mesure d'une excitation collective par DIN permet d'avoir accès au poids spectral de cette excitation, $Z(\vec{q})$. Connaissant la forme de l'interaction $V(\vec{q})^2$ et la structure de bande, nous pouvons alors remonter aux paramètres du continuum d'excitations électron-trou, dont ce manuscrit fournit une illustration.

Courbe de Flux de IN8 (ILL) et 2T (LLB)

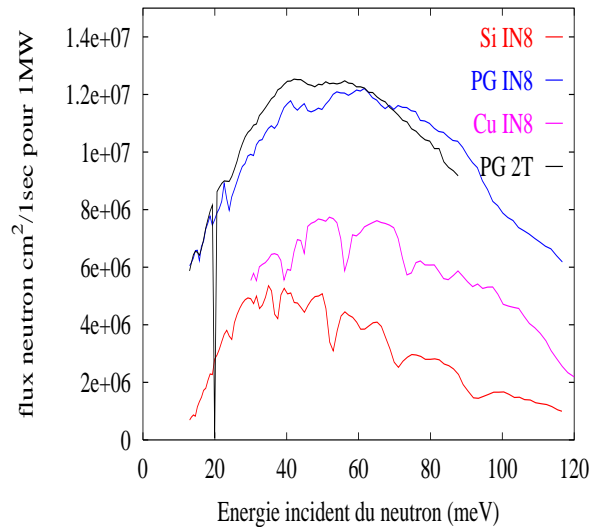


FIG. 2.5 – Les courbes de flux ont été obtenues sur IN8(pour les trois monochromateurs disponibles : le silicium, Si(111), le cuivre, Cu(200) et le graphite PG(002). L'axe des ordonnées correspond aux comptages obtenus par un moniteur calibré placé sur l'échantillon. Ce moniteur compte les neutrons ayant traversé un trou de 1 cm de diamètre et son efficacité (rendement) est de $1.81 \cdot 10^{-4}/ki$, ou ki est en A^{-1} . Les mesures ont été réalisées sans rien devant le faisceau (ni collimateur, ni filtre etc...). La courbe de flux du spectromètre 2T, obtenue avec le monochromateur graphite PG(002), a été superposée. Toutes les courbes de flux ont été ramenées à une puissance nominale de 1MW donc divisées par 54 pour les courbes de IN8 et par 14 pour 2T

2.2 Réalisation pratique d'une mesure de DIN

2.2.1 Le spectromètre trois axes

Le spectromètre 3 axes en France

En France, L'ILL et le LLB(Orphée) sont les deux réacteurs nucléaires qui produisent, pour la recherche, des neutrons par fission d ^{235}U avec une puissance respectivement de 54MW et 14MW (une centrale nucléaire classique produit de l'ordre de 1300MW).

Les neutrons que l'on utilise pour l'étude de la matière condensée ont une énergie de l'ordre de 1 à 200meV (12-2400K).

- jusqu'à 20meV les neutrons sont dits "froids". Les spectromètres froids sont 4F1 et 4F2 au LLB et IN14 et IN12 à l'ILL.
- entre 10meV et 130meV, les neutrons sont dits "thermiques". Les spectromètres trois axes thermiques sont 1T et 2T au LLB et IN8 et IN22 à l'ILL.
- entre 60meV et 500meV, les neutrons sont dits "chauds". Seul le spectromètre trois axes IN1 à l'ILL permet d'avoir accès à de telles énergies.

Les résultats présentés dans cette thèse ont été obtenus sur les spectromètres trois axes thermiques 2T du LLB et IN8 de l'ILL. Sur la Fig.2.5, nous reportons les courbes de flux normalisées à la puissance du réacteur de l'ILL (54MW)² obtenues sur le spectromètre

²Je remercie A. Ivanov, A. Hiess et M. Jimenez-Ruiz pour les courbes de flux calibrés de IN8

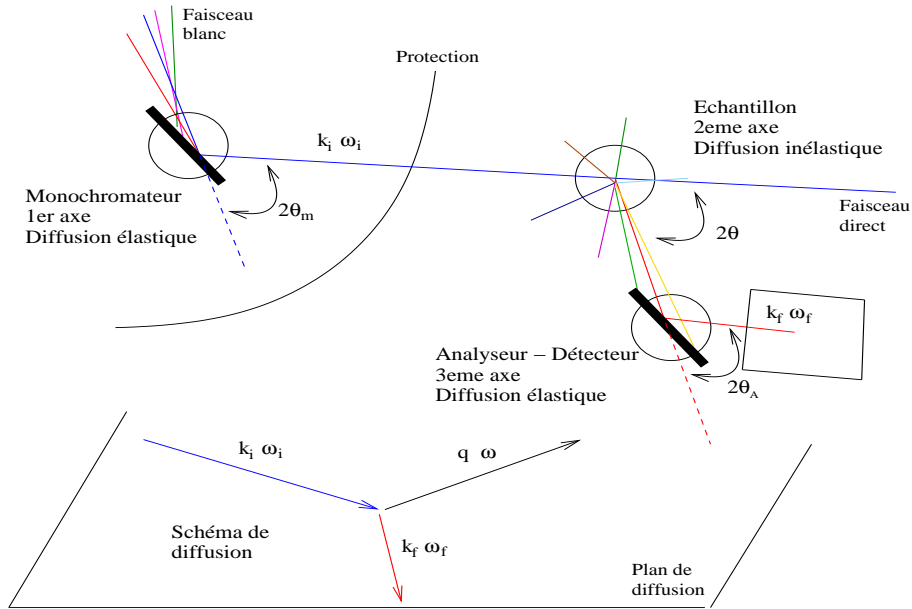


FIG. 2.6 – Schéma de principe du spectromètre trois axes. Les éléments sont arrangés en configuration "W" utilisée au cours de cette thèse.

IN8 pour les trois monochromateurs actuellement disponibles, à savoir le silicium(Si111), le cuivre(Cu200) et le graphite PG(002). La courbe de flux normalisée à la puissance du réacteur du LLB (14MW) de 2T avec le monochromateur graphite PG002 a été superposée. Pour cela, nous avons utilisé un gain moyen de 3.6 entre 2T et IN8 que nous avons déduit de plusieurs mesures de phonons sur un même échantillon de YBCO dans des conditions expérimentales similaires(analyseur et monochromateur PG002, filtre sur k_f , même plan de diffusion...).

Il est important de voir que ces flux de neutrons sont très faibles. Pour s'en rendre compte, nous pouvons par exemple calculer la densité de neutrons thermiques dans le réacteur Orphée (LLB) : le flux thermique est de l'ordre de $\phi \sim 3.10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$, en considérant une vitesse moyenne de $v \sim 2200 \text{ m.s}^{-1}$ pour les neutrons thermiques, nous obtenons une densité $n = \phi/v = 10^{17} \text{ n.m}^{-3}$. Pour avoir la même densité d'air, il faudrait pomper jusqu'à 10^{-8} mbar , donc un très bon vide.

Principe de fonctionnement :

Sur la Fig.2.6, nous montrons le principe de fonctionnement d'une expérience de DIN. Sur le faisceau blanc issu du réacteur, on interpose un premier monocristal, le monochromateur, qui sélectionne grâce à une réflexion de Bragg un vecteur d'onde k_i :

$$k_i = \frac{2\pi}{2d_m \sin\theta_m} \quad (2.20)$$

où d_m est la distance interréticulaire du monochromateur et θ_m l'angle associé.

Le monochromateur est le premier axe du spectromètre. Par rotation du monochromateur, on peut explorer le spectre du faisceau fourni par le réacteur, Fig.2.5, et sélectionner l'énergie des neutrons incidents sur l'échantillon.

Le cristal constitue le second axe du spectromètre. Le cristal diffuse les neutrons incidents

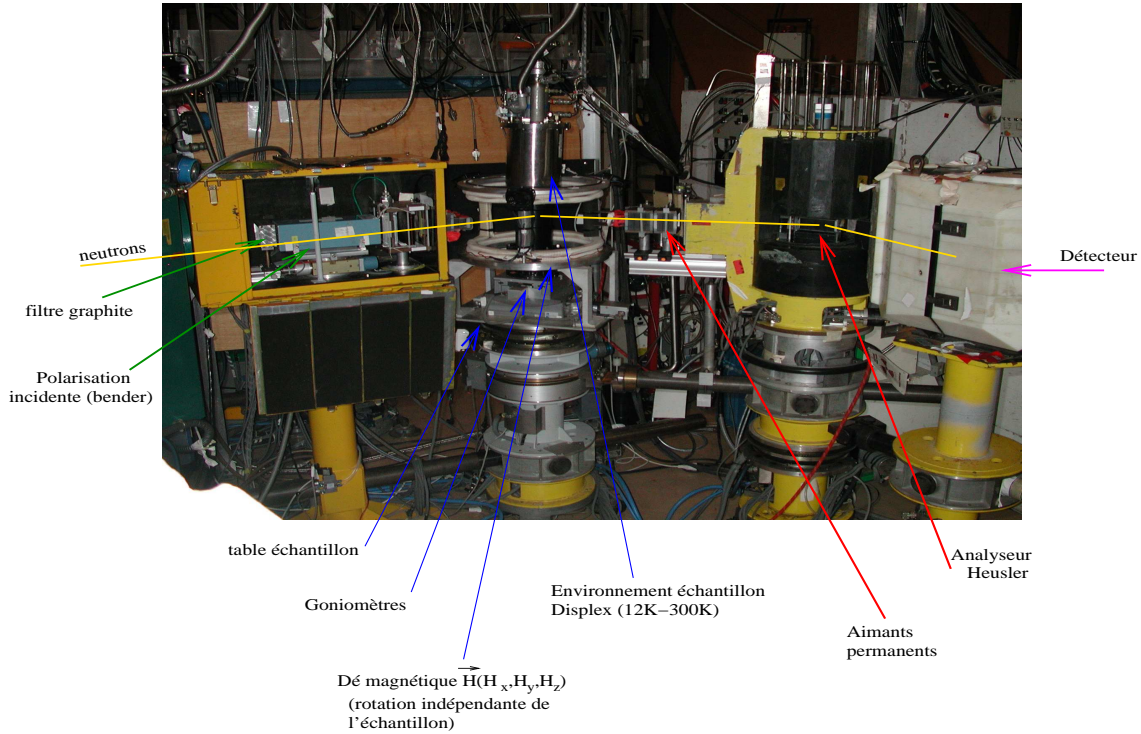


FIG. 2.7 – Spectromètre trois axes froid 4F1 du LLB en configuration neutrons polarisés. Les modules échantillons, légendes bleues, analyseur, légendes rouges, et détecteur, légende violette, sont visibles. Les éléments constituant les modules ont été ouverts pour la photo. Le trajet du neutron est indiqué en jaune. Contrairement à la configuration en "W" habituelle, le spectromètre a été positionné en configuration en "U"

provenant du monochromateur. On choisit alors de détecter les neutrons qui ont perdu une quantité d'énergie $\hbar\omega$ et le vecteur d'onde \vec{q} . Naturellement, nous devons déterminer préalablement l'orientation relative des axes cristallographiques de l'échantillon par rapport au repère du laboratoire, ce qui correspond à la procédure d'alignement de l'échantillon. L'alignement fini, nous pouvons alors faire coïncider le vecteur d'onde \vec{q} perdu par le neutron à un vecteur d'onde spécifique du réseau réciproque de l'échantillon. Nous décidons alors de la direction des neutrons diffusés par le cristal. Il reste à sélectionner leur module. Cette sélection se réalise grâce à un monocristal, l'analyseur, positionné en réflexion de Bragg pour le vecteur d'onde k_f :

$$k_f = \frac{2\pi}{2d_a \sin\theta_a} \quad (2.21)$$

L'analyseur est le troisième axe.

Le couple de vecteur (\vec{k}_i, \vec{k}_f) constitue le **plan de diffusion** de l'appareil. L'utilisateur décide du plan cristallographique de l'échantillon qu'il fait coïncider avec le plan de diffusion de l'appareil afin d'avoir accès aux vecteurs d'onde \vec{q} intéressants.

Ainsi, le spectromètre trois axes permet une analyse ponctuelle de n'importe quel point (\vec{q}, ω) où \vec{q} est un vecteur contenu dans un plan de diffusion tant que les limites cinématiques sont satisfaites, Eq.2.2.

Mesure en dehors du plan de diffusion :

L'échantillon étant monté sur un double goniomètre, Fig.2.7, il est possible de mesurer un point (\vec{q}, ω) en dehors du plan de diffusion. Cette option 3D permet, dans les limites de la mécanique³, de mesurer n'importe quel point de l'espace (\vec{q}, ω) .

Mesure à moniteur ou à temps constant :

Le temps de mesure d'un point (\vec{q}, ω) est déterminé par l'expérimentateur soit en décidant d'un certain laps de temps, expérience à temps constant, soit en décidant d'un certain nombre de neutrons incidents sur l'échantillon compté par un détecteur (appelé moniteur), expérience à moniteur constant. Généralement, on préfère réaliser l'expérience à moniteur constant car on s'affranchit alors des variations de flux de neutrons liées soit au changement d'énergie incidente, Fig.2.5, soit aux fluctuations de puissance du réacteur. Le moniteur est un détecteur placé sur le faisceau incident, k_i , qui prélève une petite fraction du faisceau.

Mesure à $|\vec{k}_f|$ ou à $|\vec{k}_i|$ constant

La loi de Bragg n'est pas satisfaite uniquement pour une seule longueur d'onde. Toutes les longueurs d'onde définies par $\lambda = 2d \sin(\theta)/n$, où n est un entier représentant les ordres multiples, sont susceptibles d'être diffusées par le monocristal (monochromateur et analyseur). Pour éviter ces ordres multiples, on place un filtre sur le trajet des neutrons incidents (si $|\vec{k}_i|$ est constant) ou sur le trajet des neutrons diffusés (si $|\vec{k}_f|$ est constant). Nous travaillons généralement à $|\vec{k}_f|$ constant. Ceci permet de ne pas changer la géométrie du spectromètre après l'échantillon d'un point à l'autre (donc l'angle θ_a et la position relative de l'analyseur par rapport au détecteur). On évite ainsi toute variation, due à des effets intrinsèques du spectromètre, du flux de neutrons diffusé par l'échantillon. Les variations du flux incident associées au changement de k_i sont contrôlées par le moniteur. Cependant, le moniteur compte les harmoniques $2|\vec{k}_i|, 3|\vec{k}_i|, \dots$; pour ne garder que les "bons neutrons" ($|\vec{k}_i|$), il faut corriger les mesures par un facteur multiplicatif qui dépend de la distribution maxwellienne de longueurs d'onde du faisceau de neutron délivré par la source, Fig.2.5. Les possibilités de filtrage sont limitées, d'où l'utilisation systématique de valeurs particulières des vecteurs d'ondes diffusés. Sur la Fig.2.8, nous reportons la transmission d'un filtre graphite fréquemment utilisé dans les expériences de DIN. Nous y indiquons par des flèches les trois vecteurs d'onde incidents que l'on a utilisés dans les expériences présentées dans cette thèse : $k_f = 2.662 \text{ \AA}^{-1}, 3.85 \text{ \AA}^{-1}$ et 4.1 \AA^{-1} . Pour chacune de ces longueurs d'ondes, le deuxième ordre de diffusion est indiqué par une flèche de même couleur à $2k_f$.

³les mouvements en dehors du plan de diffusion sont assurés par les goniomètres. Par rapport à la position plate, nous pouvons tilter les goniomètres sur une amplitude d'environ 13° à 18° suivant le spectromètre et l'environnement de l'échantillon

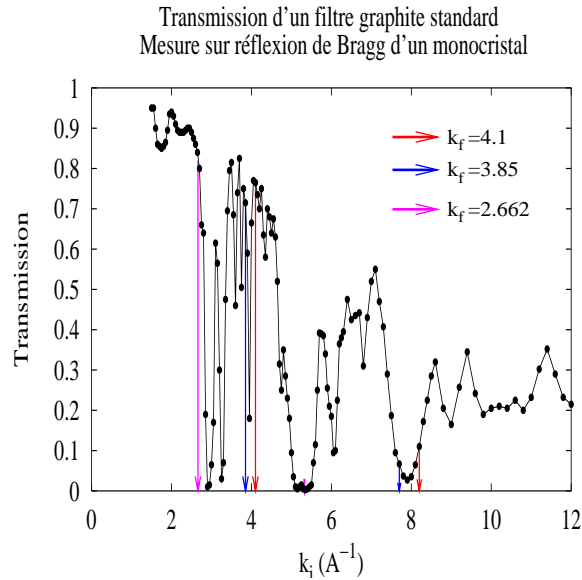


FIG. 2.8 – Nous reportons la transmission d'un filtre mesure par diffusion sur un pic de bragg nucléaire d'un monocristal en fonction du vecteur d'onde incident. Les flèches indiquent les positions en vecteur d'onde les plus fréquemment utilisées dans cette thèse à savoir $k_i=2.662, 3.85$ et 4.1\AA^{-1} .

2.2.2 Détails des différents éléments constituant un spectromètre trois axes

Sur la Fig.2.7, nous montrons une photo du spectromètre trois axes 4F1 du LLB (spectromètre froid) en configuration neutrons polarisés utilisé pour l'étude de l'état verre de spin du composé $\text{YBCO}_6\text{Ca}_{10\%}$ non présentée dans ce manuscrit. On observe le module échantillon, constitué de la table échantillon, qui permet les mouvements de rotation dans le plan de diffusion et qui est surmonté de deux goniomètres afin de réaliser des déplacements en dehors du plan de diffusion. On observe également le module analyseur. L'analyseur n'est pas bien visible car il est protégé par des bloc de B_4C (mis en "position levée" pour la photo). Enfin, le dernier module correspond au détecteur. Chaque module est muni d'un système de déplacement sur coussin d'air. L'ensemble des moteurs de tous les modules sont contrôlés informatiquement à l'extérieur de l'aire expérimentale. Pour l'expérience, nous avons ajouté quelques éléments qui permettent une étude de DIN polarisée. Devant le module échantillon, on observe un premier module (ouvert pour la photo) qui contient un polariseur magnétique (bender) qui permet de polariser le faisceau de neutrons avant l'échantillon. La direction de la polarisation des neutrons est ensuite imposée par un champ magnétique guide vectoriel, le dé magnétique, sur le module échantillon. Après l'échantillon, la polarisation est analysée par un monochromateur fait d'un alliage d'Heusler qui sélectionne une direction de spin (le Heusler).

Le monochromateur et l'analyseur

Les monocristaux utilisés comme monochromateur/analyseur sont généralement : du cuivre, du graphite pyrolytique, du silicium, du germanium. Le choix des monocristaux

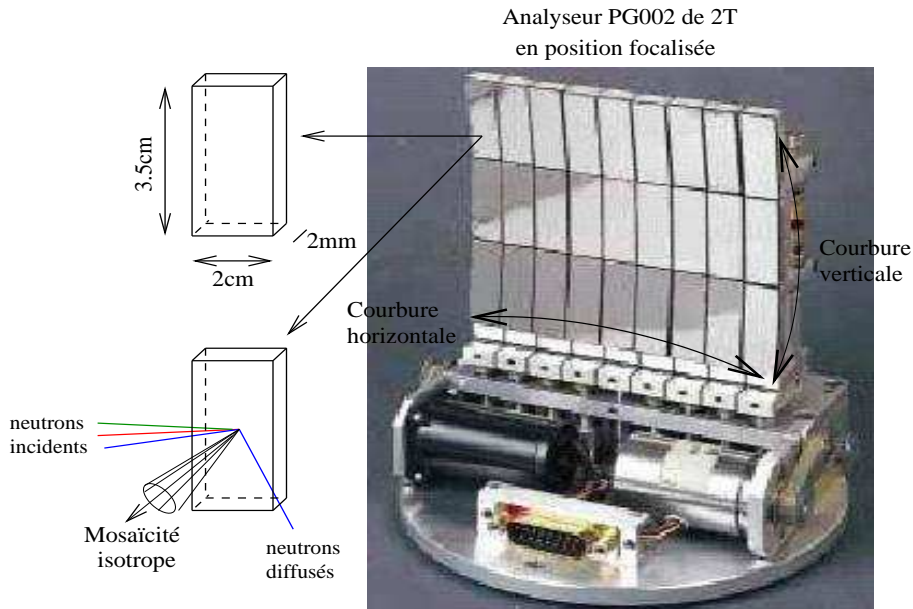


FIG. 2.9 – Analyseur graphite PG002 sur le spectromètre 2T du LLB. Il est constitué d'un montage de 27 lames de surface $3.5\text{cm} \times 2\text{cm}$. Sur chaque lame est déposé un cristal de graphite sur une épaisseur d'environ 2mm dont l'orientation cristallographique est quelconque dans le plan de lame mais orienté suivant la direction perpendiculaire avec une distribution angulaire (mosaïcité) d'environ 0.5 degrés. L'ensemble du montage peut être courbé horizontalement, courbure horizontale, et verticalement, courbure verticale, permettant ainsi la focalisation du faisceau de neutrons

tient au fait qu'ils peuvent être obtenus avec des dimensions importantes, des mosaïcités à peu près contrôlées et une réflectivité satisfaisante. Les monocristaux de graphite pyrolytique sont intéressants en raison de leur excellente réflectivité ce qui permet d'obtenir les plus hauts flux, Fig.2.5. Sur la Fig.2.9, nous montrons le montage constituant l'analyseur graphite, PG002, disponible sur le spectromètre 2T du LLB. Il est constitué d'un montage de 27 lames alignées optiquement ensemble. Le tout peut être courbé verticalement et horizontalement afin d'optimiser le flux sur l'échantillon.

La mosaïcité des monocristaux de graphite est isotrope et de l'ordre de $30'$ à $50'$ suivant l'axe perpendiculaire aux plans de graphite. En revanche, l'orientation cristallographique est quelconque dans les plans graphites. La mosaïcité des monocristaux de cuivre est davantage contrôlée, elle est autour de $10'$ - $30'$, et peut être différente en vertical et en horizontal. Le cuivre (200) disponible sur le spectromètre IN8 de l'ILL a une mosaïcité verticale de $10'$ et horizontale de $30'$, ce qui permet d'optimiser au mieux toute la divergence verticale de l'appareil.

Le choix des monocristaux dépend également de leurs distances interréticulaires, $d_{m,a}$ ("m" pour monochromateur et "a" pour analyseur). Dans le Tab.2.1 nous indiquons les différentes distances interréticulaires (en Å) des monocristaux fréquemment utilisés.

Les distances interréticulaires permettent de faire la correspondance entre le vecteur d'onde incident k_i et l'angle de diffusion. Pour une étude de DIN à haute énergie, on utilise le monochromateur qui a le plus petit d_m pour avoir le plus grand angle 2θ afin d'être loin du faisceau direct, voir Fig.2.6. En outre, plus les distances interréticulaires sont petites, plus le faisceau de neutrons est bien défini et donc plus la résolution en énergie est bonne.

PG002	3.3535	2T/IN8
Si111	3.135	IN8
Cu111	2.087	2T
Cu200	1.807	IN8

TAB. 2.1 – Distances interréticulaires (en Å)

L'aspect résolution sera développé plus loin, mais il fait partie intégrante du choix du monochromateur.

Enfin, les monocristaux sont également choisis en fonction de leur capacité de filtrage. Le monocristal Si111 présente l'avantage de supprimer l'harmonique d'ordre 2 en raison de sa structure diamant. Au contraire, le PG002, ne filtre pas ces harmoniques. Il est donc systématiquement utilisé avec un filtre(transmission) réduisant le flux.

Le détecteur - le moniteur

Les détecteurs utilisés pour les neutrons thermiques sont des compteurs proportionnels à gaz. Le gaz absorbant utilisé est de l' 3He ou BF_3 . Le neutron incident est absorbé au cours de la réaction : neutron + $^3He \rightarrow$ proton + 3T (où T est le tritium, isotope radioactif de l'hydrogène constitué de 1 proton et de deux neutrons) dont la section efficace est de 5333barn. Sous l'effet de cette réaction, le gaz est ionisé et les électrons sont alors accélérés en imposant une différence de potentiel (de l'ordre de 2-4kV), phénomène d'avalanche électronique.

Une infime partie des neutrons réfléchis par le monochromateur est prélevée par un détecteur de faible efficacité qui constitue le moniteur. Celui-ci loge donc entre le monochromateur et l'échantillon et permet de contrôler le nombre de neutrons incidents sur l'échantillon.

L'environnement de l'échantillon

Dans cette thèse nous avons utilisé deux types d'environnement : le cryostat et le displax. Les cryostats utilisés sont les cryostats usuels à doigt froid à circulation d'hélium liquide. La régulation de l'hélium liquide est assurée par une vanne froide pilotable et la régulation de la température se fait via une résistance chauffante (puissance de 2mW, pour chauffer, à 0.2mW). La température est sondée au niveau du doigt froid et au niveau de la régulation de l'hélium. L'ensemble est contrôlé informatiquement, dans le meilleur des cas, ou contrôlable à distance. On peut atteindre une gamme de températures comprises entre 1.5K et 300K. En revanche, le cryostat présente le désavantage d'un temps d'action très long. Typiquement, nous devons attendre plus d'une heure pour passer de 100K à 10K.

Le temps neutron étant précieux, nous utilisons également un displax. Sur le principe, un displax peut être associé à un réfrigérateur à gaz d'Helium. Il a l'avantage d'un temps d'action court, entre 20mn et 30mn pour passer de 10K-100K, mais il ne permet pas de descendre la température en dessous de typiquement 10K.

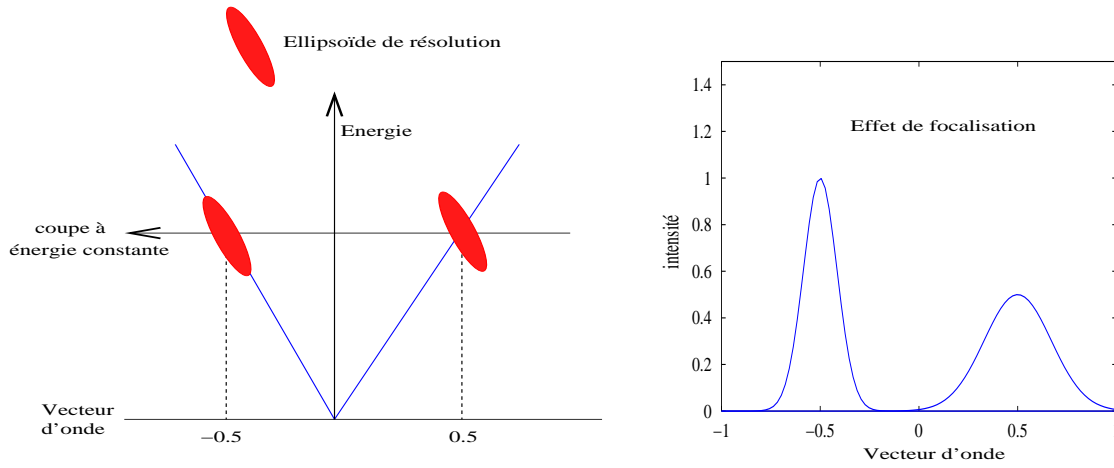


FIG. 2.10 – Du fait des imperfections de l'appareil, nous mesurons par DIN un petit volume autour d'un point (\vec{q}, ω) , l'ellipsoïde de résolution. Ellipse en rouge sur la figure. La forme et l'orientation relative de cet ellipsoïde par rapport à une dispersion engendre des effets d'asymétrie ou effets de focalisation.

2.3 La résolution instrumentale

Nous avons montré ci-dessus que la technique de DIN permettait de mesurer, pour un vecteur d'onde \vec{q} , et une énergie ω , de notre choix, la partie imaginaire de la susceptibilité magnétique. En fait, à cause des imperfections de l'appareil, nous ne mesurons pas exactement un point (\vec{q}, ω) mais un petit volume autour de ce point, nommé "ellipsoïde de résolution". Un expérience de DIN consiste donc à déplacer cet ellipsoïde de résolution à travers une certaine nappe de dispersion. L'intensité mesurée provient de la convolution du phénomène physique avec cet ellipsoïde. Elle dépend alors de la forme de l'ellipsoïde et de son orientation par rapport à la surface de dispersion. Sur la Fig.2.10, nous schématisons une coupe à énergie constante à travers une dispersion symétrique par rapport à 0. On observe que en -0.5, le grand axe de l'ellipsoïde est aligné suivant la pente de la dispersion, **position focalisée**, alors que en 0.5, le grand axe est quasiment perpendiculaire à la pente de la dispersion, **position défocalisée**. De ce fait, le résultat consiste en deux pics d'intensités différentes. Cette asymétrie résulte donc d'un simple effet de convolution nommé fréquemment "effet de focalisation".

En contrôlant les paramètres qui définissent l'ellipsoïde de résolution, on peut optimiser les conditions de mesure et extraire, par déconvolution, la section efficace de diffusion du phénomène physique.

2.3.1 Définition et calcul

Définition

En raison des divergences angulaires et de la mosaïque des cristaux (monochromateur, échantillon et analyseur) l'intensité mesurée correspond en fait à une intégration au voisinage du point (\vec{q}_0, ω_0) [66, 67, 68] :

$$I(\vec{q}_0, \omega_0) = \int S(\vec{q}, \omega) \cdot R(\vec{q} - \vec{q}_0, \omega - \omega_0) d^3\vec{q}, d\omega \quad (2.22)$$

$S(\vec{q}, \omega)$ est la section efficace de diffusion des neutrons, qui dépend de la physique de l'échantillon.

$R(\vec{q} - \vec{q}_0)$ est la fonction de résolution du spectromètre, centrée en (\vec{Q}_0, ω_0) , qui décrit la probabilité qu'un neutron franchisse les différents segments de l'appareil en respectant, au niveau de l'échantillon, les règles de conservation de la quantité de mouvement et de l'énergie, Eq.2.2.

Calcul analytique

Historiquement, M.J Cooper et R.Nathan[66] ont été les premiers à calculer analytiquement cette fonction de résolution et à rendre compte de son importance dans les expériences de neutrons. Au premier ordre, ils ont abouti à la forme suivante de la résolution :

$$R(\vec{Q} - \vec{Q}_0, \omega - \omega_0) = R_0 \exp \left\{ - \sum_{i,j=1-4} X_i A_{ij} X_j \right\} \quad (2.23)$$

où $X_{1-3} = (\vec{Q} - \vec{Q}_0)_{x,y,z}$ et $X_4 = \omega - \omega_0$.

X_1 et X_2 correspondent aux composantes contenues dans le plan de diffusion alors que X_3 correspond à la composante verticale. Au premier ordre, la résolution horizontale est indépendante de la résolution verticale et donc tous les coefficients A_{3j} ($j \neq 3$) sont nuls. La matrice A est une matrice symétrique 4×4 dont toutes les valeurs propres sont positives. Le volume à 4 dimensions, défini par $R(\vec{Q} - \vec{Q}_0, \omega - \omega_0) = \text{cte}$, est donc un ellipsoïde dit "ellipsoïde de résolution". Il caractérise l'extension apparente dans l'espace, d'une impulsion localisée au point (\vec{q}_0, ω_0) .

Pour définir complètement l'ellipsoïde, il reste à donner l'expression de R_0 . Pour cela, Dorner et al.[67] ont introduit les volumes de l'ellipsoïde incident V_i et diffusé V_f définis par :

$$V_i = \int A'(|\vec{k}_i|) p_i(\vec{k}_i) dV_i \propto k_i^3 \cotan(\theta_m) \quad (2.24)$$

$$V_f = \frac{\hbar}{m} \int p_f(\vec{k}_f) dV_f \propto k_f^3 \cotan(\theta_a) \quad (2.25)$$

où $A'(|\vec{k}_i|)$ est la distribution maxwellienne du flux de neutrons délivrée par le réacteur. $p_i(\vec{k}_i)$ et $p_f(\vec{k}_f)$ sont les probabilités de trouver un neutron avec respectivement les vecteurs d'ondes \vec{k}_i et \vec{k}_f . Le préfacteur R_0 , qui normalise la fonction de résolution, s'exprime simplement en fonction de V_i et V_f :

$$V_i V_f = \int R(\vec{Q} - \vec{Q}_0, \omega - \omega_0) d\vec{Q} d\omega = \frac{\pi^2 R_0}{\sqrt{\det A}} \quad (2.26)$$

L'expression 2.25 montre essentiellement que le volume de l'ellipsoïde est déterminé par les valeurs de k_i et k_f . Pour les mesures de DIN à moniteur constant, les modifications de volume associées aux changements de k_i sont compensées par le moniteur, $V_i = \text{cte}$. C'est essentiellement la valeur du k_f qui détermine la qualité de la résolution. Ainsi, la meilleure résolution est obtenue avec les plus petites valeurs de k_f .

Le calcul analytique de M.J Cooper et R.Nathans[66] prend en compte uniquement les variables angulaires du spectromètre (mosaïcités verticales et horizontales, collimations). D'autres calculs ont été réalisés afin d'intégrer les effets liés aux tailles des différents éléments et aux courbures du monochromateur et de l'analyseur [67, 68, 69]. On démontre que l'on peut retrouver l'écriture standard de Cooper et Nathans après une renormalisation des éléments de la matrice liée à ces effets.

Les calculs analytiques sont soutenables au premier ordre mais des effets du deuxième ordre peuvent avoir de l'importance. Par exemple, on suppose en général que les composantes de la trajectoire du neutron en dehors et à l'intérieur du plan de diffusion sont découplées. Cette approximation est valable tant que les divergences verticales ne sont pas trop grandes. Cependant, dans la course au flux, les neutroniciens ont été amenés à augmenter la taille de leurs monochromateurs et analyseurs pour capter le plus de neutrons. On peut alors être sensible à des effets de deuxième ordre. Des méthodes numériques de Monte Carlo ont été développées pour rendre compte de ces effets de second ordre[70]. Le désavantage de ces méthodes numériques est qu'on ne visualise pas les différentes étapes du calcul.

2.3.2 Prise en compte de la résolution instrumentale dans la mesure de la résonance dans YBCO

Pour rendre compte des tailles caractéristiques de l'ellipsoïde de résolution par rapport aux tailles de la physique que nous recherchons, nous avons superposé, sur la Fig.2.11, l'ellipsoïde de résolution et le continuum d'excitations électron-trou, délimité par $\omega_c(\vec{q})$, déterminé dans le paragraphe précédent suivant la direction (110), Eq.2.14 et Fig.2.4 a). Nous avons calculé l'ellipsoïde de résolution au vecteur d'onde AF(0.5,0.5) au maximum de la modulation de la résonance, $L=5.2$, en considérant des conditions expérimentales de l'expérience décrite au Chap.3 qui sont tout à fait habituelles pour l'étude de la résonance magnétique. On observe que la surface de l'ellipsoïde représente une portion non négligeable de notre espace physique. C'est essentiellement la résolution en vecteur d'onde qui est mauvaise par rapport à la physique. En effet, les bords de l'ellipsoïde touchent les vecteurs d'ondes $q=2k_N$, où la bordure du continuum chute à zéro, de part et d'autre le vecteur AF. En énergie, la résolution est satisfaisante, $\sim 5\text{meV}$, par rapport à la taille du continuum, $\omega_c \sim 75\text{meV}$. **Il est important de réaliser que l'image de le Fig.2.11 n'est pas figée** dans le sens où on peut chercher des conditions expérimentales pour améliorer la résolution suivant une certaine direction, ce qui fait partie de la richesse de la technique de DIN. Par exemple, pour améliorer notre résolution en vecteur d'onde, on peut essayer d'insérer des collimateurs, en contrepartie d'une certaine perte de flux. Le but est d'obtenir le meilleur compromis entre un flux important et une certaine qualité de résolution désirée par l'expérimentateur. Il est bien évident que le niveau d'exigence et de précision des expériences de DIN sur les cuprates augmente d'année en

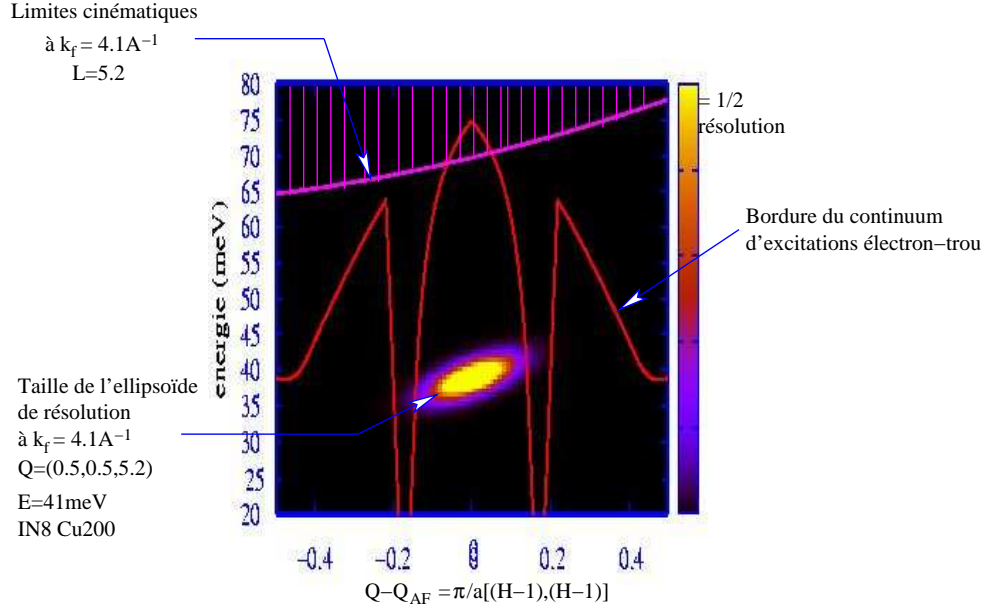


FIG. 2.11 – Le but de cette figure est de rendre compte des tailles de résolution par rapport aux tailles de la physique qui nous intéresse. Pour cela nous avons calculé et reporté l'ellipsoïde de résolution au point AF(0.5,0.5,5.2) à 39meV et nous avons superposé la bordure du continuum d'excitations électron-trou de la Fig.2.4 a). La ligne violette indique, pour un vecteur d'onde donné, l'énergie de transfert maximale accessible. Pour les énergies supérieures, les conditions cinématiques ne sont plus satisfaites, Eq.2.2.

année et les expérimentateurs explorent de plus en plus le détail du spectre des fluctuations magnétiques. En effet, d'une excitation antiferromagnétique localisée au vecteur d'onde AF à 41meV, la résonance, le spectre s'est enrichi ces dernières années d'une dispersion de cette excitation vers les basses énergies[101] et vers les hautes énergies[150]. Actuellement, on se pose la question de savoir quelle est la géométrie du spectre dans le plan de base (spots incommensurables, distribution isotrope etc...). La prise en compte de la résolution instrumentale devient donc nécessaire dans l'analyse des résultats. Le but est alors d'extraire la physique intrinsèque du système, déconvoluée de la fonction de résolution. Pour cela, nous devons postuler une forme de la susceptibilité magnétique et effectuer numériquement le produit de convolution à 4 dimensions de cette forme avec la fonction de résolution. Ce type d'analyse des résultats sera fréquemment utilisé au cours de cette thèse.

Dans ce qui suit, nous discutons plus en détails de la résolution instrumentale dans le cadre de la physique qui nous intéresse.

Conditions expérimentales

Dans ce qui suit, nous considérons les conditions expérimentales utilisées dans l'expérience sur l'échantillon de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$ ($T_c=89\text{K}$) décrite au Chap.3.2 de ce manuscrit. L'expérience a été réalisée sur la spectromètre 3 axes IN8 avec le monochromateur de cuivre Cu200. L'échantillon a été aligné dans le plan de diffusion $\{(110);(001)\}$, ce qui permet d'avoir accès à des vecteurs d'ondes de la forme $\mathbf{Q}=(H,H,L)$, où H et L sont les composantes du vecteur \vec{Q} suivant les vecteurs du réseau réciproque $\vec{a}^* = \frac{2\pi}{a}\vec{i}_{100}$, $\vec{b}^* = \frac{2\pi}{a}\vec{j}_{010}$ et $\vec{c}^* = \frac{2\pi}{c}\vec{k}_{001}$

avec $a=b=3.85\text{\AA}$ et $c=11.85\text{\AA}$. Nous avons travaillé à énergie finale fixe égale à 35meV soit $k_f \sim 4.1\text{\AA}^{-1}$.

Test des programmes de calcul de la résolution expérimentale

Dans cette partie, nous discutons du programme utilisé dans cette thèse afin de calculer l'ellipsoïde de résolution. Nous répertorions également les tests expérimentaux dont nous disposons afin de vérifier le calcul.

Dans cette expérience l'expression analytique de la résolution expérimentale est :

$$R(\vec{Q} - \vec{Q}_0, \omega - \omega_0) = R_0 \exp \left\{ - \sum_{i,j=1-4} X_i A_{ij} X_j \right\} \quad (2.27)$$

où X_1 et X_2 sont les composantes horizontales, c'est à dire dans le plan de diffusion, suivant l'axe (110) et (001) et X_3 est la composante dite verticale suivant l'axe (1-10). X_4 est la composante suivant l'énergie.

Test sur mesure de pics de Bragg nucléaire et mesure du vanadium

Une fois que sont caractérisés tous les éléments et toutes les distances qui définissent la trajectoire des neutrons dans l'espace réel de la source au détecteur, nous pouvons calculer numériquement les coefficients A_{ij} et en déduire les largeurs en énergie et vecteur d'onde de notre résolution expérimentale en chaque point (\vec{Q}, ω) . Dans la mesure du possible, la robustesse des programmes est éprouvée par des mesures de pics de Bragg nucléaires pour la résolution en vecteur d'onde et par la mesure du signal incohérent du vanadium et de l'échantillon pour la résolution en énergie. Dans le tableau ci-dessous, nous comparons ces largeurs mesurées à celles obtenues par le programme B.Hennion (les résultats obtenus par le programme de P.Bourges ne sont pas présentés ici car ils sont parfaitement équivalents à ceux de B.Hennion).

type de mesure	LG à mi-hauteur	B.Hennion
SC L. sur Bragg -1-10	0.061	0.058
SC L. sur Bragg 006	0.285	0.25
Gonio sur Bragg -1-10	0.18	0.18
Vanadium	3.8	3.85

Mesure d'un phonon optique - calibration du spectromètre

1) Section efficace de diffusion :

Nous nous servons également de l'existence dans YBCO d'un phonon optique correspondant à un mode de vibration des atomes d'oxygène du plan CuO_2 suivant l'axe \vec{c} dont nous connaissons la section efficace de diffusion. Le test consiste alors à réaliser la convolution entre la section efficace de ce phonon avec l'ellipsoïde de résolution et de comparer le résultat du calcul avec la mesure. Ce test est très pertinent dans la mesure où

Phonon optique

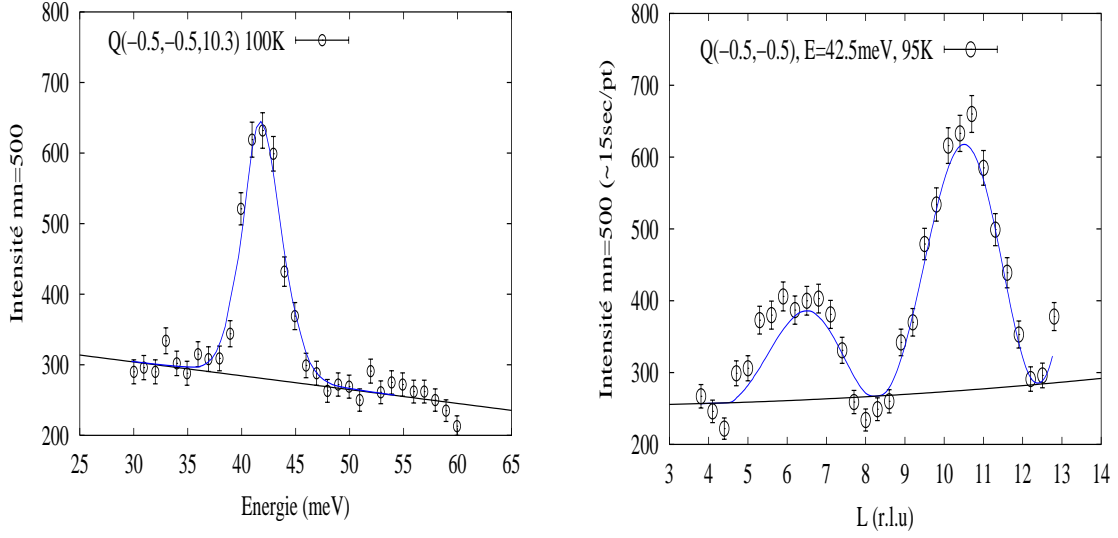


FIG. 2.12 – Mesures du phonon optique correspondant à un mode de vibration des atomes d'oxygène du plan CuO_2 le long de l'axe \vec{c} : a) coupe en énergie et b) coupe le long de la direction (001). Les lignes bleues correspondent aux résultats du produit de convolution entre la section efficace du phonon, Eq.2.29, et la fonction de résolution instrumentale.

la position en vecteur d'onde et en énergie de ce phonon est très proche de celle du signal magnétique recherché. En effet, ce mode apparaît à une énergie de 42.5meV au vecteur d'onde $\vec{Q} = (-0.5, -0.5, Q_l = 2\pi L/c)$. Il est très peu dispersif dans le plan (\vec{a}, \vec{b}) et est modulé sinusoidalement suivant l'axe \vec{c} .

La section efficace de ce phonon est[127] :

$$\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E} = N \frac{\hbar b_o^2 Q_l^2 \sin^2(Q_l z c)}{m_o \omega_{\vec{q}}} \frac{1}{2} (\delta(\hbar\omega - \hbar\omega_{\vec{q}}) - \delta(\hbar\omega + \hbar\omega_{\vec{q}})) \quad (2.28)$$

avec $\hbar = 1.055 \cdot 10^{-34}$ J.s, $m_o = \frac{16 \cdot 10^{-3}}{6.022 \cdot 10^{23}} = 2.67 \cdot 10^{-26}$ kg, $b_o = 0.58 \cdot 10^{-12}$ cm soit $b_o^2 = 0.336$ barn et $Q_l = Q_l$ (en \AA^{-1}). 10^{10} m^{-1} . En utilisant l'oscillateur harmonique amorti comme forme approchée de la fonction de Dirac⁴, nous obtenons :

$$\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E} = 6.735 \cdot 10^{-3} Q_l^2 \sin^2(Q_l z c) \frac{\gamma \omega}{(\omega^2 - \omega_{\vec{q}}^2)^2 + (\gamma \omega)^2} \quad (2.29)$$

Cette section efficace est exprimée en barn.THz⁻¹ (unité utilisée dans le programme de B. Hennion) et Q_l en \AA^{-1} .

Sur la Fig.2.12, nous superposons le résultat de la convolution de cette section efficace avec l'ellipsoïde de résolution, lignes bleues, et les points de la mesure suivant une coupe en énergie, Fig.2.12 a), suivant une coupe le long de l'axe \vec{c} , Fig.2.12 b). On observe un bon accord entre le calcul et la mesure. En chaque point des deux coupes, l'ellipsoïde de

⁴ $\{\delta(\hbar\omega - \hbar\omega_{\vec{q}}) - \delta(\hbar\omega + \hbar\omega_{\vec{q}})\} = \frac{2\hbar\omega_{\vec{q}}}{\pi} \frac{\gamma\hbar\omega}{(\hbar\omega^2 - \hbar\omega_{\vec{q}}^2)^2 + (\gamma\hbar\omega)^2}$, le lecteur peut retrouver la démonstration de cette transformation dans [64] (volume 1 p. 296)

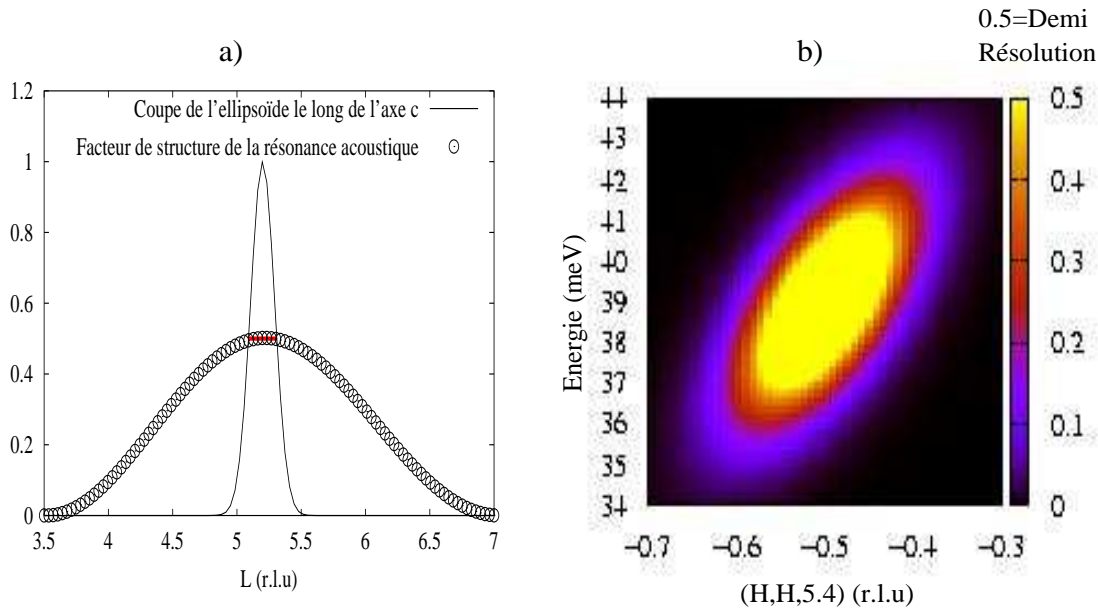


FIG. 2.13 – Sur la figure a), nous comparons la taille de l'ellipsoïde de résolution suivant l'axe \vec{c} à la modulation de la résonance dans YBCO en $(\sin(\pi Lz_c))^2$. Sur la figure b), nous montrons l'ellipsoïde de résolution dans le plan $\{(-1-10), \text{énergie}\}$ au point $(\vec{Q}(-0.5,-0.5,5.4), E=39\text{meV})$. Cet ellipsoïde a été calculé à partir des conditions expérimentales détaillées dans le texte correspondant à l'expérience décrite au chapitre 3. Les coefficients de l'ellipsoïde ont été intégrés suivant l'axe \vec{c}

résolution est d'abord calculé puis le programme réalise la convolution à 4 dimensions⁵ entre la section efficace de ce phonon et l'ellipsoïde de résolution.

2) Calibration du flux du spectromètre :

A partir de la mesure du phonon optique, nous pouvons calibrer l'intensité du spectromètre. En effet, l'intensité observée résulte de la convolution entre la section efficace du phonon et la fonction de résolution instrumentale, le tout multiplié par un pré-facteur, $I_{spectro}$, qui dépend essentiellement du flux de neutrons et qui est indépendant du point de mesure dans une expériences à moniteur constant.

$$I(\vec{Q}_0, \omega_0) = I_{spectro} \int \frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E} \cdot R(\vec{Q} - \vec{Q}_0, \omega - \omega_0) d^3 \vec{Q}, d\omega \quad (2.30)$$

En mesurant ce phonon, nous avons donc accès à $I_{spectro}$. Ceci nous permet par la suite de mettre en unité absolue l'intensité des signaux magnétiques.

Résolution expérimentale pour la mesure

Intégration de l'ellipsoïde suivant l'axe \vec{c} :

⁵Dans le cas de ce phonon des simplifications de calculs sont naturellement réalisables. Mais le but ici, est de réaliser un test sur le programme brut

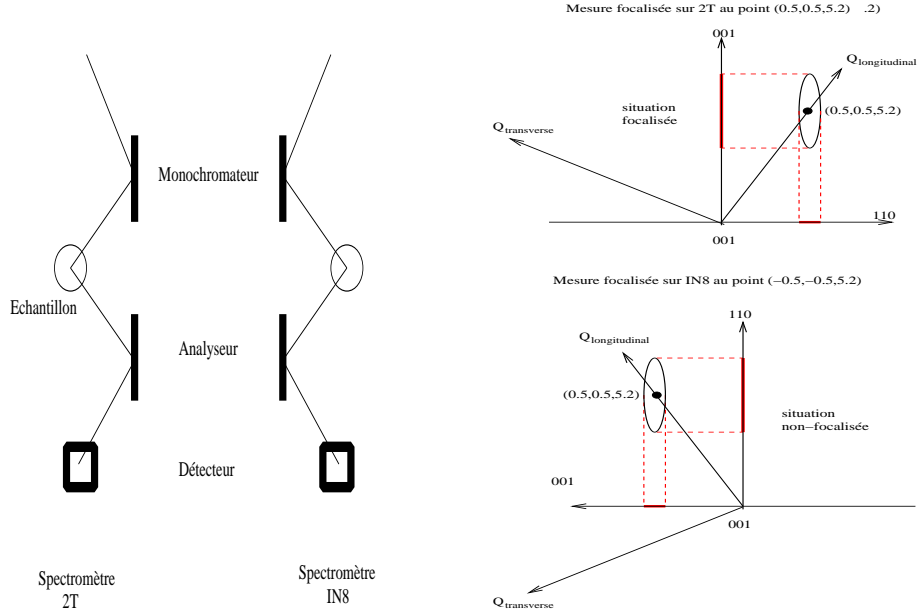


FIG. 2.14 – Figure a : Configuration en "W" des spectromètres 2T du LLB et IN8 de l'ILL. Sur la figure b) nous montrons l'orientation de l'ellipsoïde au point de mesure (0.5,0.5,5.2) sur 2T et IN8. Par rapport à notre physique, la configuration en "W" du spectromètre 2T permet une mesure focalisée alors que celle de IN8 est défocalisée. Nous devons de ce fait mesurer, sur IN8, le point (-0.5,-0.5,5.2).

Les tailles de résolution pertinentes dépendent de la physique mesurée. Par exemple, nous montrons sur la Fig.2.13 a) que la taille de l'ellipsoïde suivant l'axe \vec{c} est négligeable par rapport à la période de la modulation du signal magnétique. L'intensité magnétique est par conséquent systématiquement intégrée sur la taille de l'ellipsoïde suivant cette direction.

Sur la figure Fig.2.13.b, nous montrons la forme de l'ellipsoïde de résolution intégrée suivant l'axe \vec{c} dans le plan $\{(-1-10), \text{énergie}\}$ à la position de la résonance ⁶. Le tableau ci-dessous indique les pleines largeurs à mi-hauteur caractéristiques en énergie et suivant la direction (110) sur deux points importants de l'expérience⁷ :

point	ΔE_{reso} (meV)	ΔQ_{110} (r.l.u)*
$\vec{Q}(-0.5,-0.5,5.4)$ E=39meV	3.24	0.11
$\vec{Q}(-0.5,-0.5,7)$ E=53meV	3.78	0.13

* ΔQ_{110} (\AA^{-1}) = $\frac{2\pi}{a} \sqrt{2} \Delta Q_{110}$ (r.l.u)

L'idéal serait de travailler avec l'axe \vec{c} perpendiculaire au plan de diffusion, L=0. Ceci permettrait d'intégrer la modulation de la résonance sur toute la divergence verticale de l'appareil. Mais malheureusement la résonance magnétique a une modulation en

⁶L'intégration se fait alors sur la variable X_2 de l'ellipsoïde de résolution Eq.2.27. Après intégration nous avons : $A'_{11} = A_{11} - \frac{A_{12}^2}{A_{22}}$, $A'_{44} = A_{44} - \frac{A_{24}^2}{A_{22}}$, $A'_{14} = A_{14} - \frac{A_{14}A_{24}}{A_{22}}$ et $A'_{33} = A_{33}$.

⁷Les largeurs en énergie et vecteur sont alors simplement données par : $\Delta E_{reso} = 2\sqrt{\left(\frac{\ln(2)}{A'_{44}}\right)}$ et $\Delta Q_{110} = 2\sqrt{\left(\frac{\ln(2)}{A'_{11}}\right)}$

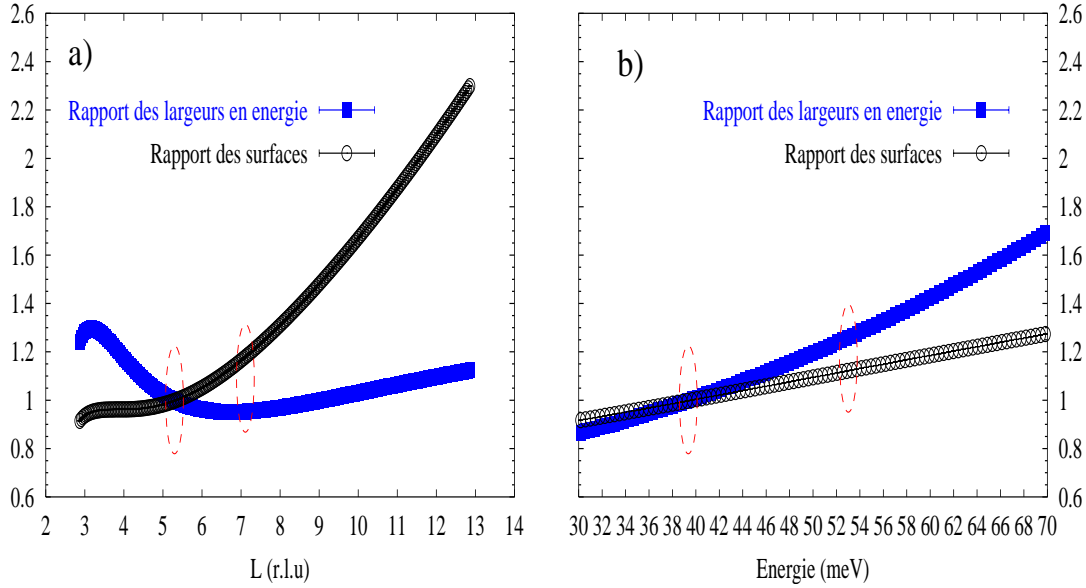


FIG. 2.15 – Evolution en fonction de L , figure de gauche, et de l'énergie, figure de droite, du rapport des surfaces de l'ellipsoïde dans le plan $\{(-1 - 10), (1 - 10)\}$ et du rapport des largeurs en énergie à q_{AF} . Le point de référence est $\vec{Q}(-0.5, -0.5, 5.4)$ et 40.5meV sur la figure de gauche et le point $\vec{Q}(-0.5, -0.5, 6)$ et 40.5meV sur la figure de droite. L'intégration suivant l'axe \vec{c} est prise en compte.

$(\sin(\pi L z_c))^2$ suivant l'axe \vec{c} qui s'annule donc en $L=0$ [97]. Dans cette thèse, nous avons trouvé la résonance optique qui a la modulation en $(\cos(\pi L z_c))^2$. Nous avons donc appliqué ce raisonnement afin de gagner de l'intensité magnétique. Cependant, nous montrerons au Chap.4.1.2 que ce raisonnement (qui paraît pourtant évident) ne fonctionne pas en pratique à cause de la spécificité du signal mesuré.

Mesure sur IN8 au vecteur AF(-0.5,-0.5,5.2) / mesure sur 2T au vecteur AF(0.5,0.5,5.2)

Sur la Fig.2.14 a) nous représentons les configurations en "W" réelles des spectromètres 3 axes 2T du LLB et IN8 de l'ILL. On observe que l'un est l'image de l'autre. La conséquence de cette différence est schématisée sur la Fig.2.14 b). En fait, sur 2T, si nous mesurons la résonance au point AF(0.5,0.5,5.2), le grand axe de l'ellipsoïde est bien aligné sur l'axe 001 de la modulation de la résonance, ce qui pour nous correspond à la bonne configuration, i.e la configuration focalisée (pour la mesure de la résonance). Si on mesure le même point sur IN8, le grand axe de l'ellipsoïde se retrouve sur l'axe 110, nous sommes alors en situation défocalisés. Nous devons de ce fait mesurer sur IN8 le point AF(-0.5,-0.5,5.2).

Le lecteur peut ainsi comprendre le choix de la mesure au vecteur d'onde AF(0.5,0.5,5.2) ou AF(-0.5,-0.5,5.2) des différentes publications.

Modifications des tailles de l'ellipsoïde en fonction de l'énergie et de la composante L suivant l'axe \vec{c}

Dans cette thèse nous sommes amenés à mesurer la résonance acoustique modulée en

$(\sin(\pi Lz_c))^2$ et la résonance optique modulée en $(\cos(\pi Lz_c))^2$. Nous mesurons la résonance acoustique au point AF(0.5,0.5,5.4) et la résonance optique au point AF(0.5,0.5,7). Nous montrerons que la résonance optique est positionnée à 53meV et la résonance acoustique à 40.5meV dans l'échantillon de YBa₂Cu₃O_{6.85} (T_c=89K), Chap.3.2. Naturellement, nous essayerons d'extraire des informations sur la physique du système à partir de la comparaison(intensité, largeur etc...) des deux résonances. Pour que cette comparaison ait du sens nous devons prendre en considération les modifications de l'ellipsoïde de résolution entre la position du mode acoustique, AF(0.5,0.5,5.4) et E=41meV, et celle du mode optique, AF(0.5,0.5,5.4) et E=53meV. Sur la Fig.2.13, nous montrons l'évolution de la largeur en énergie et de la surface de l'ellipsoïde dans le plan de CuO₂⁸ en fonction de la composante L suivant l'axe \vec{z} , Fig.2.15 a), et en fonction de l'énergie, Fig.2.15 b). Sur les deux figures, tout est normalisé au point AF(0.5,0.5,5.4) à 41meV et les points de mesures sont entourés en rouge. On voit, qu'entre les points (L=5.4,40.5meV) et (L=7,53meV), la résolution se dégrade d'environ 30% en surface et en énergie. Cet effet est important pour des excitations résolues en énergie et vecteur d'onde comme la résonance. Une même fonction de Dirac serait vue plus large et moins intense à mesure que nous augmentons l'énergie et la quantité de mouvement transférée. Ainsi, afin de comparer les intensités des deux modes résonnants dispersifs, nous devons nous affranchir de ces effets de résolution afin d'extraire une intensité, déconvoluée, pertinente pour les modèles théoriques.

Résumé du choix des conditions expérimentales

Nous avons positionné dans cette partie l'espace de l'ellipsoïde de résolution dans celui de la physique qui nous préoccupe. Nous avons montré qu'il est important de prendre en considération la forme et l'orientation de l'ellipsoïde de résolution afin d'extraire des informations plus précises sur la physique du système.

Enfin, considérant maintenant l'ellipsoïde de résolution, le choix des conditions expérimentales consiste en une combinaison judicieuse qui permet d'optimiser le flux et la résolution instrumentale. Sur la Fig.2.16, nous essayons de résumer les différentes possibilités de choix de conditions expérimentales en fonction de leurs effets sur le flux et la résolution instrumentale (en énergie et vecteur d'onde).

2.3.3 Analyse des données neutrons

Le signal non magnétique - le bruit de fond

Tous les résultats de DIN présentés dans ce manuscrit ont été obtenus avec un faisceau de neutrons non polarisés. Dans ce cas, la section efficace neutron-matière étant avant tout d'origine nucléaire, l'essentiel de la diffusion mesurée est d'origine nucléaire. Le signal magnétique que nous cherchons à isoler est donc bien souvent noyé au milieu des modes de phonons. Sur la Fig.2.17, nous montrons une coupe usuelle en énergie au vecteur d'onde AF réalisée sur le spectromètre 3 axes 1T au LLB à T=90K sur un échantillon de Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba₂Cu₃O_{7- δ} . Le bruit de fond est composé d'une partie constante (traits violet et noir) et d'une large contribution nucléaire (A) surmontée de modes de phonons

⁸La surface de l'ellipsoïde au point (\vec{Q},ω) , intégré suivant l'axe \vec{z} , dans le plan $\{(110), (1-10)\}$ est donnée par $S(\vec{Q},\omega)=\pi \ln 2 \left(\frac{1}{A'_{11}A'_{33}} \right)_{\vec{Q},\omega}$ où A'_{11} et A'_{33} ont été définis précédemment 2.3.2

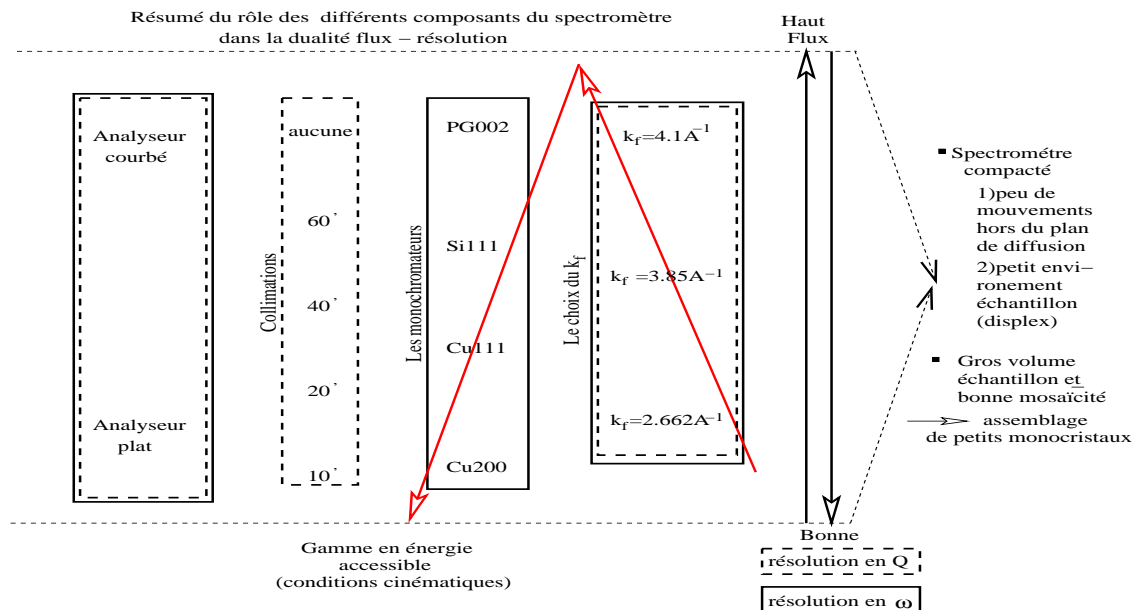


FIG. 2.16 – Sur cette figure nous ordonnons sur une double échelle flux-résolution les différentes possibilités de choix de conditions expérimentales dont nous disposons. Les éléments sont ordonnés à l'intérieur d'un bloc mais il n'y a aucun ordre des éléments d'un bloc à un autre. Les blocs sont soit encadrés en trait plein soit en trait pointillé suivant que l'effet concerne la résolution en vecteur d'onde, Q , ou en énergie, ω .

(B,C,D)[96]. La partie constante est constituée du bruit de fond intrinsèque au spectromètre, qui ne passe pas par l'échantillon, 5 coups/mn, et du bruit inhérent au montage échantillon (nous reviendrons sur ce point plus loin).

Les contributions A et B ne présentent qu'une très faible dépendance en vecteur d'onde suivant les directions (110) et (001). La contribution A est bien décrite par un oscillateur harmonique amorti ($\hbar\omega_0 \sim 22 \text{ meV}$, $\Gamma = 26 \text{ meV}$)[95] et sa dépendance en température suit le facteur de balance détaillé, Eq.2.8. L'intensité de la contribution A augmente lorsque le vecteur d'onde croît. A l'opposé, la contribution B décroît très lentement lorsque le vecteur d'onde augmente dans la direction (110). L'intensité de la contribution B décroît lentement lorsque la température augmente. Les deux contributions A et B ne peuvent pas être décrites comme des modes de phonon dans la mesure où elles se caractérisent respectivement par un fort amortissement et une dépendance en température anormale. Les contributions C et D, centrées en $\hbar\omega \sim 30 \text{ meV}$ et $\hbar\omega \sim 42 \text{ meV}$ sont attribuées à des modes de phonon. La contribution D a clairement été identifiée comme étant liée à un mode de vibration des atomes d'oxygène dans le plan CuO_2 [127]. Ces contributions de modes de phonon sont suffisamment à haute énergie pour ne pas présenter de grande dépendance en température dans la gamme de température qui nous intéresse, typiquement entre 5K et 100K.

Le signal magnétique

Typiquement, le rapport signal magnétique sur bruit de fond est au mieux $\sim 10\%$ dans nos mesures de DIN de la résonance. Le signal magnétique est donc difficile à extraire sur une seule mesure (ou coupe). C'est en accumulant plusieurs informations sur

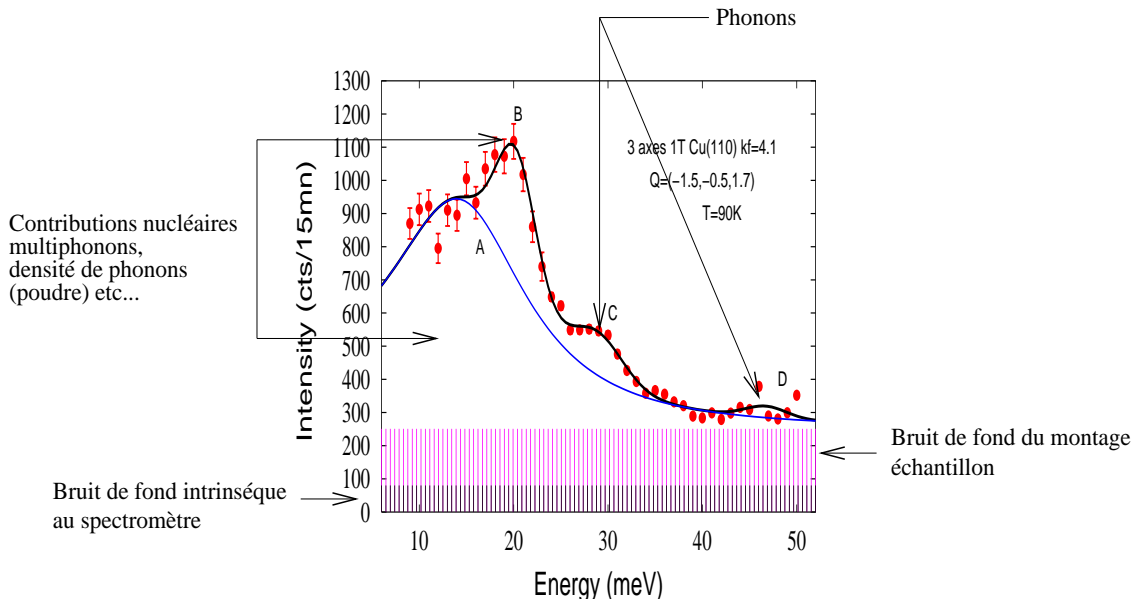


FIG. 2.17 – Coupe en énergie au vecteur d'onde $AF(0.5, 0.5, 5.4)$ caractéristique dans Y123. Les différentes contributions nucléaires sont décrites dans le texte et labellées sur la figure

plusieurs coupes que l'on arrive à extraire et à authentifier le magnétisme. Depuis 1991, une méthode expérimentale a été établie afin d'extraire le signal magnétique dans les cuprates[96]. Nous répertorions ci-dessous les différents arguments permettant de vérifier l'origine magnétique du signal dans les cuprates (et plus spécifiquement YBCO) :

- i) l'élimination du signal nucléaire est d'abord basée sur la différence de deux spectres réalisés pour deux températures différentes. En effet, usuellement, l'intensité de la diffusion magnétique décroît fortement à haute température alors que l'intensité des modes de phonon (dans la gamme d'énergie qui nous préoccupe, $>30\text{meV}$) ne varie que très peu car leur population thermique reste faible. Le calcul de la différence donc d'éliminer ces contributions et de ne conserver, avec une bonne approximation, que le signal magnétique. Dans cette thèse nous sommes focalisés essentiellement sur l'étude de la résonance, excitation propre de l'état supraconducteur. Nous réalisons donc systématiquement nos spectres à $T < T_c$ et $T > T_c$ et nous présentons leurs différences. Nous faisons toujours des suivis en température du signal afin de vérifier qu'il apparaît bien à T_c
- ii) les variations de l'intensité du signal magnétique en fonction du vecteur d'onde constituent un second critère. On observe que l'intensité du signal magnétique diminue en augmentant le vecteur d'onde transféré en suivant le carré du facteur de forme magnétique du cuivre, Fig.2.1. Un phonon suit la tendance opposée, son intensité augmente en $|Q|^2$. Dans YBCO, la présence de la bicouche induit une modulation de l'intensité magnétique suivant l'axe \vec{c} avec une période z_c correspondant à la distance entre plans CuO_2 . Afin de vérifier si le signal détecté respecte bien ces critères nous réalisons les coupes suivant l'axe \vec{c} et nous le mesurons dans différentes zones de Brillouin.

- iii) les coupes en vecteur d'onde dans le plan de base permettent également de faire la différence entre un signal non magnétique, comme les contributions A et B de la Fig.2.17, peu dépendantes du vecteur d'onde et un signal magnétique, comme la résonance, confiné dans un petit espace autour du vecteur d'onde AF.
- iv) nous déduisons également l'origine du signal détecté en comparant son comportement en vecteur d'onde, en énergie et en température à celui de la résonance dont l'origine magnétique n'est plus discutée.

Présentation des résultats de DIN

Dans ce manuscrit, les résultats sont montrés et analysés en deux étapes. La première consiste en une analyse des résultats la plus simple possible afin d'extraire l'information principale de l'expérience. Pour cela, nous utilisons des ajustements avec des formes gaussiennes dont les largeurs en énergies et vecteur d'onde résultent de la convolution "gaussienne" entre le signal intrinsèque et la fonction de résolution, Tab.2.2.

$$\begin{cases} \Delta E_{mesure} = \sqrt{\Delta E_{reso}^2 + \Delta E^2} \\ \Delta Q_{mesure} = \sqrt{\Delta Q_{reso}^2 + \Delta Q^2} \end{cases}$$

TAB. 2.2 – Largeurs des fonctions gaussiennes utilisées pour les ajustements. $\Delta(E, Q)_{reso}^2$ correspondent à la demi-largeur de l'ellipsoïde en énergie et en vecteur d'onde et $\Delta(E, Q)$ sont les largeurs intrinsèques du signal

Dans une seconde étape, nous présentons une modélisation de la section efficace du signal magnétique. L'ajustement des paramètres du modèle se réalise alors en calculant le produit de convolution numérique (PCN) entre la fonction de résolution instrumentale et notre modèle. Nous simulons de cette manière chaque coupe (en vecteur d'onde, en énergie) de l'expérience et le but est d'ajuster les paramètres du modèle afin de reproduire l'ensemble des résultats expérimentaux.

2.4 Elements théoriques de la diffusion RAMAN

Nous avons utilisé la technique de diffusion Raman, en parallèle à la technique de diffusion inélastique des neutrons, afin d'obtenir, sur les mêmes échantillons, les propriétés électroniques et magnétiques. L'utilisation des deux techniques permet d'estimer la distance en énergie entre la position de la résonance magnétique, E_r , et la position du continuum d'excitations électron-trou, ω_c . Dans une approche itinérante[221, 225], cette distance $\omega_c - E_r$ correspond à l'énergie de liaison du mode magnétique. Elle est liée à la force des interactions dans le système.

Le second intérêt des mesures couplées DIN/Raman est de confirmer et de poursuivre, dans le régime surdopé, la correspondance phénoménologique réalisée entre le pic de résonance magnétique et le pic électronique dans le canal A1g[184, 171].

Nous donnons ci-dessus quelques éléments théoriques nécessaire à l'analyse des spectres dans un supraconducteur de symétrie $d_{x^2-y^2}$.

Le lecteur pourra trouver des détails plus précis sur la technique de la diffusion Raman électronique et sur son application dans la physique des hauts- T_c dans les références suivantes[176, 177, 175, 171, 174].

2.4.1 Lois de conservation

Dans le principe, une expérience de diffusion Raman est similaire à celle d'une expérience de diffusion inélastique des neutrons. En effet, les deux techniques sondent des excitations de la matière en analysant les modifications d'une onde monochromatique incidente après diffusion sur l'échantillon. Celle-ci formée de bosons, photons où neutrons, est généralement décrite par une onde plane, définie par un vecteur d'onde et une fréquence. Ainsi, comme l'énergie transférée en neutron, le déplacement Raman, ω , correspond à la différence entre l'énergie du photon incident, ω_L ("incident light" provenant du Laser), et celle du photon diffusé, ω_S ("Scattered light") :

$$\omega = \omega_L - \omega_S \quad (2.31)$$

et la conservation de la quantité de mouvement entre le vecteur d'onde \vec{k}_L de l'onde plane incidente et le vecteur d'onde \vec{k}_S de l'onde plane diffusée s'écrit :

$$\vec{k}_L = \vec{k}_S \pm \vec{q} \quad (2.32)$$

En Raman, une radiation lumineuse dans le visible est caractérisée typiquement par un vecteur d'onde : $\kappa \sim 5000 \text{ \AA}^{-1}$ donc bien plus grand qu'un paramètre de maille dans un solide et quasiment trois ordres de grandeurs plus grand que le vecteur de Fermi dans les cuprates, de l'ordre de $k_F \sim 0.5 \text{ \AA}^{-1}$. Le vecteur d'onde transféré est donc quasiment nul et par conséquent on sonde essentiellement des excitations au centre de zone, $\vec{q} = \vec{0}$. Dans notre étude, nous utilisons la raie verte du laser(514nm) dont la longueur de pénétration est $\delta \sim 0.1 \mu\text{m}$ soit une centaine de mailles de Y123. La résolution en énergie est typiquement de l'ordre de $\sim 5 \text{ cm}^{-1}$ soit $\sim 0.5 \text{ meV}$.

2.4.2 Hamiltonien d'interaction Raman - taux de diffusion

Par diffusion Raman l'interaction entre le solide et la lumière intervient à travers le couplage entre le potentiel vecteur $\vec{A}(\vec{r})$ du champ électromagnétique et les degrés de liberté de charge et de spin des électrons. On peut donc mesurer, au centre de zone, des excitations de charge(phonons) ou de spin(magnons). Dans ce qui suit, nous nous focalisons sur l'interaction avec la charge des électrons.

Nous nous intéressons essentiellement à la diffusion électronique Raman par les degrés de liberté de charge du système. L'interaction entre le solide et la lumière intervient à travers le couplage entre le potentiel vecteur $\vec{A}(\vec{r})$ du champ électromagnétique et la charge des électrons. En considérant un potentiel vecteur $\vec{A}(\vec{r})$ défini en jauge de Coulomb ($div\vec{A}(\vec{r}) = 0$), le hamiltonien s'écrit :

$$H = H_0 - e \int \vec{j}(\vec{r}) \vec{A}(\vec{r}) d\vec{r} + \frac{e^2}{2m} \int \rho(\vec{r}) \vec{A}(\vec{r})^2 d\vec{r} \quad (2.33)$$

où H_0 est le Hamiltonien non-perturbé du système, $\vec{j}(\vec{r})$ et $\rho(\vec{r})$ sont les opérateurs courant et densité de charges.

Règle d'or de Fermi :

Afin de calculer la section efficace, nous devons estimer la probabilité par unité de temps pour que le système passe d'un état initial $|\Psi_i\rangle$ à un état final $|\Psi_f\rangle$. Cette probabilité de transition (ou taux de diffusion) se calcule à partir de la règle d'or de Fermi (où approximation de Born) :

$$P_{if} = \frac{2\pi}{\hbar} \langle \Psi_f | H | \Psi_i \rangle \delta(E_i - E_f) \quad (2.34)$$

Soit n_L le nombre de photons incidents de vecteur d'onde κ_L , de fréquence ω_L et de polarisation ϵ_L et n_S le nombre de photons incidents de vecteur d'onde κ_S , de fréquence ω_S et de polarisation ϵ_S . Un état du champ électromagnétique du système est constitué de l'ensemble des photons incidents et diffusés et par conséquent décrit par le ket $|n_1, \dots, n_i, \dots, n_L, n_S\rangle$ (pour simplifier l'écriture nous ne considérons dans le ket uniquement que les nombres quantiques des photons qui participent au processus de diffusion). La probabilité recherchée concerne des transitions entre état initiaux et finaux du système photons-solide définis par :

$$\begin{aligned} |\Psi_i\rangle &= |n_L, n_S\rangle |i\rangle \\ |\Psi_f\rangle &= |n_L - 1, n_S + 1\rangle |f\rangle \end{aligned} \quad (2.35)$$

$|i\rangle$ et $|f\rangle$ sont les états de Fock initiaux et finaux du système à N électrons. On montre alors que le taux de diffusion à pour expression :

$$P_{if} = \frac{\pi \hbar e^4 n_L}{2\epsilon_0^2 m^2 V^2 \omega_S \omega_L} | \langle f | \tilde{\rho}_q | i \rangle |^2 \delta(\epsilon_{\vec{k}} - \epsilon_{\vec{k}-\vec{q}} - \hbar\omega) \quad (2.36)$$

ϵ_0 est la permittivité diélectrique dans le vide, m la masse des électrons et V le volume de l'expérience. L'opérateur $\tilde{\rho}_q$ est l'opérateur de densité effective :

$$\tilde{\rho}_q = \sum_{\vec{k}} \gamma_{\vec{k}}(\epsilon_L, \epsilon_S) c_{\vec{k}}^\dagger c_{\vec{k}-\vec{q}} \quad (2.37)$$

où $c_{\vec{k}}^\dagger$ $c_{\vec{k}}$ sont les opérateurs fermioniques habituels de création et d'annihilation d'un électron dans le système. $\gamma_{\vec{k}}(\epsilon_L, \epsilon_S)$ est appelé le vertex Raman que nous développons ci-dessous. Toute la spécificité de la diffusion Raman apparaît dans cet opérateur qui fait intervenir la polarisation incidente et diffusée de la lumière. On introduit un opérateur de densité effective pondéré par le vertex Raman, différent de l'opérateur densité usuel, $\rho_q = \sum_{\vec{k}} c_{\vec{k}}^\dagger c_{\vec{k}-\vec{q}}$. En changeant la polarisation de la lumière, on peut donc éteindre ou allumer des états électroniques.

2.4.3 Le vertex Raman

L'expression du vertex Raman dans la limite où $q \rightarrow 0$ est :

$$\gamma_{\vec{k},n}(\vec{\epsilon}_S^*, \vec{\epsilon}_M) = \vec{\epsilon}_S^* \vec{\epsilon}_M + \frac{1}{m} \sum_l \frac{\langle \vec{k}, n | \vec{P} \vec{\epsilon}_S^* | \vec{k}, l \rangle \langle \vec{k}, l | \vec{P} \vec{\epsilon}_L^* | \vec{k}, n \rangle}{\epsilon_{\vec{k},n} - \epsilon_{\vec{k},l} + \hbar\omega_S} \quad (2.38)$$

$$+ \frac{\langle \vec{k}, n | \vec{P} \vec{\epsilon}_L^* | \vec{k}, l \rangle \langle \vec{k}, l | \vec{P} \vec{\epsilon}_S^* | \vec{k}, n \rangle}{\epsilon_{\vec{k},n} - \epsilon_{\vec{k},l} - \hbar\omega_L} \quad (2.39)$$

$$(2.40)$$

Le premier terme provient de la contribution $\rho(\vec{r}) \vec{A}(\vec{r})^2$ au Hamiltonien Eq.2.33. Il ne contient que les transitions intrabandes et n'est jamais divergent. Le second terme est issue du terme $\vec{j}(\vec{r}) \vec{A}(\vec{r})$ du Hamiltonien Eq.2.33. Il fait intervenir des excitations interbandes et est divergent lorsque l'énergie du photon incident ou diffusé est telle que : $\hbar\omega_{S,L} = \epsilon_{\vec{k},n} - \epsilon_{\vec{k},l}$. Dans ce cas, le temps de vie de l'état intermédiaire excité est grand et la probabilité de transition est importante. Ces processus sont associés à des "phénomènes résonnants".

En supposant que nous sommes loin de tout phénomène résonnant, nous montrons ci-dessous deux manières de simplifier l'utilisation du vertex Raman.

Utilisation de la théorie des groupes :

Une approche consiste à utiliser la théorie des groupes et à décomposer le vertex Raman sur la base des représentations irréductibles du groupe ponctuel du cristal. Dans les cuprates, la base commune des plans CuO_2 est en première approximation tétragonale et appartient donc au groupe de symétrie D_{4h} . Ce groupe de symétrie est constitué de quatre représentations irréductibles : B_{1g} , B_{2g} , A_{1g} et A_{2g} . Ainsi, le vertex Raman se décompose sur cette base en :

$$\gamma_{\vec{k}} = \gamma_{\vec{k}}^{B_{1g}} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} + \gamma_{\vec{k}}^{B_{2g}} \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} + \gamma_{\vec{k}}^{A_{1g}} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} + \gamma_{\vec{k}}^{A_{2g}} \begin{pmatrix} 0 & i \\ -i & 0 \end{pmatrix} \quad (2.41)$$

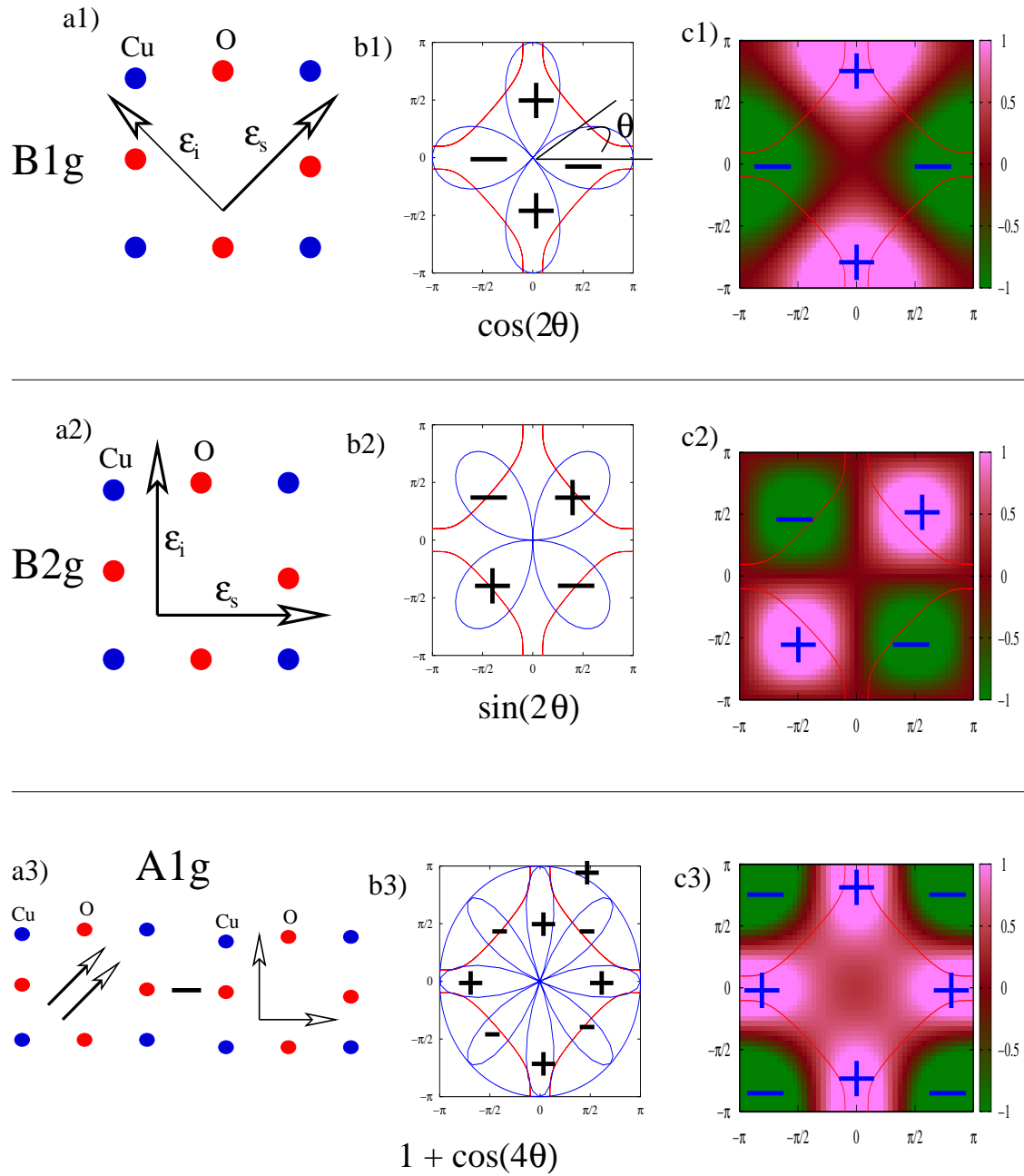


FIG. 2.18 – Récapitulatif du vertex Raman dans les trois symétries du groupe D_{4h} . Les figures a1), a2) et a3) donnent les configurations de polarisation initiale et finale dans chaque symétrie. Les figures b1), b2) et b3) correspondent au développement du vertex Raman en harmoniques de la surface de Fermi dans les 3 symétries. Enfin, les figures c1), c2) et c3) sont des cartes couleurs du vertex Raman calculées à partir de l'approximation de la masse effective, Eq.2.43. Les zones éclairées correspondent au maximum du vertex.

En général la contribution dans la symétrie A_{2g} n'est pas prise en compte car celle-ci implique une brisure de symétrie de l'état fondamental par renversement du temps [171] (p.57).

La contraction du vertex Raman, par les polarisations des champs électriques incident et diffusé, permet alors de sélectionner une ou deux composantes du vertex total. Le tableau ci-dessous attribue à toutes les configurations possibles des polarisations incidente et diffusée les composantes du vertex Raman activées définies dans le repère \vec{a}, \vec{b} où \vec{a} et \vec{b} sont parallèles aux liaisons Cu-O dans le plan de base :

Config. 1	$\vec{\epsilon}_S \perp \vec{\epsilon}_L // \vec{a} + \vec{b}$	$\gamma_{B_{1g}}$
Config. 2	$\vec{\epsilon}_S \perp \vec{\epsilon}_L // \vec{a}$	$\gamma_{B_{2g}}$
Config. 3	$\vec{\epsilon}_S // \vec{\epsilon}_L // \vec{a}$	$\gamma_{A_{1g}} + \gamma_{B_{1g}}$
Config. 4	$\vec{\epsilon}_S // \vec{\epsilon}_L // \vec{a} + \vec{b}$	$\gamma_{A_{1g}} + \gamma_{B_{2g}}$

Nous avons considéré uniquement les configurations accessibles par des polarisations rectilignes car nous n'avons pas utilisé de lumière polarisée circulairement.

Les symétries B_{1g} et B_{2g} peuvent être sondées directement en choisissant les configurations 1 et 2 alors que la symétrie A_{1g} n'est accessible que par différences des configurations 3 et 1 ou des configurations 4 et 2. Du fait de la faible activité dans le canal B_{2g} , le signal mesuré dans la configuration 4 provient essentiellement de la contribution de la composante du vertex isotrope A_{1g} . De ce fait, nous déduirons la réponse Raman dans le canal A_{1g} en réalisant la différence des configurations 4 et 2. Notons que le spectre A_{1g} peut être directement accessible en utilisant une polarisation circulaire de la lumière.

Le vertex Raman étant décomposé sur une base de 3 axes de symétrie, on peut projeter l'opérateur de densité effective sur cette base. En choisissant le référentiel local de la surface de Fermi, on exprime le vertex Raman en harmoniques de ces symétries sur le contour de surface de Fermi. Au deuxième ordre, cette décomposition donne :

$$\begin{aligned}\gamma^{B_{1g}} &= \gamma_{L=2}^{B_{1g}} \cos(2\theta) + \dots \\ \gamma^{B_{2g}} &= \gamma_{L=2}^{B_{2g}} \sin(2\theta) + \dots \\ \gamma^{A_{1g}} &= \gamma_{L=0}^{A_{1g}} + \gamma_{L=2}^{B_{1g}} \cos(2\theta) + \dots\end{aligned}$$

L'ordre $L=0$ correspond au cas du surface de Fermi parfaitement cylindrique. Les ordres supérieurs du vertex Raman correspondent à la déformation de la surface de Fermi dans le plan de base par rapport au cas cylindrique.

L'avantage de cette approche est qu'elle montre simplement les zones de la surface de Fermi allumées dans chaque symétrie. En revanche, les constantes γ_L^μ n'étant pas simple à déterminer, il est difficile de calculer l'intensité Raman.

L'approximation de la masse effective :

Dans cette approche trois approximations sont réalisées :

- i la première consiste à négliger la quantité de mouvement transférée au cours du processus de diffusion ce qui, comme nous l'avons vu ci-dessus, se justifie parfaitement.
- ii la deuxième consiste à négliger les transitions interbandes dans le processus.

iii enfin la dernière approximation consiste à supposer que l'énergie des photons peut être négligée devant l'énergie des transitions électroniques interbandes (qui interviennent comme états virtuels dans le processus de diffusion intrabande). Soit : $\hbar\omega_{S,L} \ll \epsilon_{\vec{k},n} - \epsilon_{\vec{k},l}$. Ce qui élimine tout effet résonant. Cette approximation est plus difficile à justifier dans les cuprates car des expériences montrent qu'il existe des transitions interbandes dans le visible[180].

En formulant ces trois approximations on peut démontrer que le vertex Raman n'est autre que le tenseur de la masse effective contracté par les vecteurs de polarisation des photons incidents et diffusés :

$$\gamma_{\vec{k}}(\epsilon_L, \epsilon_S) = \frac{m}{\hbar^2} \sum_{i,j} \epsilon_S^{i*} \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial k_i \partial k_j} \right)^{-1} \epsilon_L^j \quad (2.42)$$

Cette équation montre que le vertex Raman se calcule à partir de la structure de bande.

On peut appliquer cette formule au cas des cuprates en choisissant comme relation de dispersion des quasiparticules : $\epsilon_{\vec{k}} = -2t(\cos(k_x) + \cos(k_y)) - 4t' \cos(k_x)\cos(k_y)$. Nous calculons dans ce cas :

$$\begin{aligned} \gamma^{B1g} &\propto t(\cos(k_x a) - \cos(k_y a)) \\ \gamma^{B2g} &\propto 4t' \sin(k_x a) \sin(k_y a) \\ \gamma^{A1g} &\propto t(\cos(k_x a) + \cos(k_y a)) - 4t' \cos(k_x a) \cos(k_y a) \end{aligned} \quad (2.43)$$

Sur la Fig.2.18, nous montrons la carte couleur ces vertex Ramans obtenus dans les trois symétries en utilisant un rapport t'/t de 0.4.

Les effets résonnants

Un effet résonnant apparaît lorsque l'énergie du photon incident ou diffusé égale une distance interbande : $\hbar\omega_{S,L} = \epsilon_{\vec{k},n} - \epsilon_{\vec{k},l}$. Dans les cuprates, ces effets apparaissent de façon importante pour des énergies de photon autour de 2eV et supérieures à 2.5eV. On détecte un effet résonnant en changeant l'énergie du photon incident. La compréhension de ces effets résonnants permet d'obtenir des informations sur la structure de bande[176].

2.4.4 Section efficace

La section efficace différentielle Raman a pour expression :

$$\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \omega_s \Omega} = \frac{\omega_s}{\omega_L} S(q, \omega) \quad (2.44)$$

où $S(q, \omega)$ est le facteur de structure dynamique définie par :

$$S(q, \omega) = \int \frac{dt}{2\pi} e^{i\omega t} \langle \tilde{\rho}_{q,t}^\dagger \tilde{\rho}_{q,0} \rangle \quad (2.45)$$

($\tilde{\rho}_{q,t}$ est l'opérateur densité effective, Eq.2.37, en représentation d'Heisenberg).

Ainsi la section efficace Raman est directement proportionnelle à la fonction de corrélation

densité-densité dans le temps et l'espace. En utilisant le théorème de Fluctuation-dissipation, nous relierons cette fonction de corrélation à la partie imaginaire de la susceptibilité électronique Raman, $\chi''(q, \omega)$:

$$S(q, \omega) = \frac{1}{\pi}(1 + n(\omega, T))\chi''(q, \omega) \quad (2.46)$$

2.4.5 La susceptibilité Raman électronique

Le lecteur pourra trouver le développement détaillé de la réponse Raman dans le cas d'un gaz d'électrons avec et sans interaction et dans un métal supraconducteur dans la référence[171]. Nous reprenons ci-dessous les principaux résultats du calcul dans un supraconducteur de symétrie s et d.

Réponse Raman dans un supraconducteur :

Dans le cas d'un supraconducteur décrit par un modèle BCS, on montre que la réponse Raman dans la limite $q \rightarrow 0$ et considérée au voisinage de la surface de Fermi est donné par :

$$\chi''(q, \omega) = \frac{2\pi\rho_f}{\omega} Re \left\langle \frac{|\gamma_k|^2 |\Delta_k|^2}{[\omega^2 - 4|\Delta_k|^2]^{1/2}} \right\rangle_f \quad (2.47)$$

où ρ_f est la densité au niveau de Fermi et $\langle \dots \rangle_f = \int d^3k \delta(\epsilon_k) (\dots) / \int d^3k \delta(\epsilon_k)$ correspond à une moyenne sur des vecteurs k au voisinage de la surface de Fermi pour $\omega > 2\Delta_k$.

Ainsi la diffusion Raman permet d'avoir accès au module du gap supraconducteur dans différentes régions de l'espace des \vec{k} suivant la symétrie choisie. En revanche, nous n'avons pas accès à sa phase.

$\chi''(q, \omega)$ dépend essentiellement de deux paramètres inconnus : le vertex Raman, γ_k , et le gap supraconducteur, Δ_k . Nous choisissons de décrire le vertex Raman en harmonique de la surface de Fermi décrit ci-dessus. Dans ce cas, la partie imaginaire de la susceptibilité Raman pour une symétrie notée μ sera donnée par l'expression :

$$\chi''_\mu(\omega) = 2\pi\rho_f Re \int_0^{2\pi} \frac{\gamma_\mu^2(\theta) \Delta^2(\theta)}{\omega(\omega^2 - 4\Delta^2)^{1/2}} d\theta \quad (2.48)$$

Cas d'un paramètre d'ordre de symétrie s :

Un gap de symétrie s est un gap isotrope dans l'espace des phases et qui conserve toujours le même signe. Il est décrit par : $\Delta_k = \Delta_0$.

Si on suppose une surface de Fermi circulaire dans le plan de base, la réponse du système est nécessairement isotrope dans l'espace des phases. Par conséquent, les parties imaginaires des susceptibilités Raman associées aux symétries $A1_g$, $B1_g$ et $B2_g$ sont équivalentes :

$$\chi''(\omega) \propto \frac{\Delta_0^2}{\omega(\omega^2 - 4\Delta_0^2)^{1/2}} \quad (2.49)$$

La susceptibilité diverge dans les trois symétries à la fréquence $\omega = 2\Delta_0$.

Cas d'un paramètre d'ordre de symétrie d :

Le gap de symétrie d est non isotrope dans le plan de base et est décrit, en coordonnée cylindrique, par : $\Delta(\theta) = \Delta_0 \cos(2\theta)$, où θ correspond à l'angle entre le vecteur \vec{a} et une direction dans le plan de base. Ce gap s'annule sur les diagonales $(\pm\pi, \pm\pi)$ et change de signe de part et d'autre de ces diagonales. Ainsi, la réponse électronique, dans l'état supraconducteur, est très différente entre la symétrie $B1_g$ et $B2_g$. Dans la symétrie $B1_g$, on sonde essentiellement la région de la surface de Fermi où l'amplitude du gap est maximum. La réponse électronique diverge alors à $2\delta_{max}$ dans le canal $B1_g$. Dans le canal $B2_g$, on sonde la région de la surface de Fermi où le gap s'annule. La réponse, dans ce canal, est donc beaucoup plus faible. Ainsi, dans le cas d'un gap de symétrie "d", on observe un pic électronique dans le canal $B1_g$ associé à $2\delta_{max}$ dont l'intensité est plus importante que le pic dans le canal $B2_g$ localisé à plus basses températures.

L'étude du comportement aux basses fréquences de la réponse électronique Raman permet d'apporter des informations plus précises sur la symétrie du gap. On peut effectivement démontrer que, aux basses énergies, [194, 179] :

$$\chi''_{A1g}(\omega) \propto \frac{\rho_f}{\Delta_0} \omega \quad (2.50)$$

$$\chi''_{B1g}(\omega) \propto \frac{\rho_f}{\Delta_0^3} \omega^3 \quad (2.51)$$

$$\chi''_{B2g}(\omega) \propto \frac{\rho_f}{\Delta_0} \omega \quad (2.52)$$

Ainsi, la réponse Raman à basse fréquence est quasi nulle aux basses énergies dans le canal $B1g$ car la symétrie $B1_g$ allume la zone de la surface de Fermi où le gap est maximum. Inversement, dans la symétrie $B2_g$, les excitations de basses énergies sont autorisées car la symétrie $B2_g$ allume une région où le gap s'annule. Nous discuterons de la réponse dans la symétrie $A1_g$ au paragraphe suivant.

Ce sont ces comportements aux basses énergies de la susceptibilité Raman qui permettent d'obtenir des informations précises sur la dépendance angulaire du paramètre d'ordre.

2.4.6 Prise en compte des interactions : susceptibilité Raman RPA

Pour tenir compte de l'interaction de Coulomb, on utilise l'approximation RPA. Par rapport à la situation usuelle, il faut intégrer le vertex Raman dans le traitement RPA. Ainsi, il faut associer un vertex Raman au potentiel Coulombien, V . Comme celui-ci est isotrope, $V = \frac{4\pi}{q^2}$, le vertex Raman de Coulomb sera pris égal à 1. L'expression de la susceptibilité Raman RPA dans la limite $q \rightarrow 0$ est :

$$\chi_{\mu}^{RPA}(\omega) = \chi_{\mu\mu}^0(\omega) - \frac{\chi_{\mu 1}^0(\omega) \chi_{1\mu}^0(\omega)}{\chi_{11}^0(\omega)} \quad (2.53)$$

Il apparaît donc une nouvelle symétrie dans le problème : celle du potentiel coulombien. L'expression ci-dessus nous montre que la susceptibilité Raman d'un canal qui possède la même symétrie que celle du potentiel coulombien est nulle (attention, ceci n'est vrai que si

la surface de Fermi est également isotrope). Ainsi, dans le cas d'un supraconducteur ayant un gap de symétrie d , seul le vertex Raman dans le canal A_{1g} est écranté efficacement (complètement si la surface de Fermi est supposée isotrope). Au contraire, les expériences dans les cuprates montrent qu'il apparaît dans l'état supraconducteur un pic électronique dans le canal A_{1g} d'intensité supérieure à celui du B_{1g} et situé à plus basse énergie que le pics B_{1g} [184, 183, 194].

2.4.7 Montage expérimental

Nous avons réalisé toutes nos expériences sur le même montage. C'est essentiellement un spectromètre Dilor à 3 monochromateurs et à détection multicanale. Pour le détail :

- i la source lumineuse utilisée est générée par un laser d'un mélange mixte de gaz Argon-Krypton qui permet d'avoir accès à 10 longueurs d'ondes. Nous avons toujours travaillé avec la raie à 514.5nm (2.4eV, là où la contribution des effets résonnants est faible). Nous utilisons une puissance laser autour de 20mW. Juste à la sortie du laser nous avons inséré une fente pour réduire le diamètre du faisceau et un filtre plasma afin de réduire les émissions additionnelles liées aux fréquences plasma du laser.
- ii pour la polarisation nous disposons d'un polariseur rotatif, qui permet fournir une polarisation rectiligne dans une direction donnée au degré près, avant l'échantillon. Après l'échantillon et avant l'entrée dans le monochromateur, nous utilisons un analyseur (polariseur rectiligne)
- iii l'échantillon est fixé au doigt froid d'un cryostat à circulation d'hélium liquide. Le cryostat dispose de 4 fenêtres en silice pour le passage du faisceau lumineux. L'échantillon est d'abord fixé avec de la laque d'argent sur une petite pastille de cuivre. En utilisant le Laue, nous repérons les axes du cristal sur la pastille de cuivre que l'on fixe par la suite sur un bloc de cuivre qui se visse sur la canne du cryostat. Nous avons la place de mettre typiquement 3 petites pastilles de cuivre sur le bloc de cuivre. Ceci permet de changer d'échantillon sans tout démonter. D'autre part, le cryostat est alimenté continûment par une bonbonne d'hélium liquide qui nous permet de travailler quasiment 1 semaine entière sans grandes vibrations du cryostat.
- iv l'analyseur est constitué d'un système de trois monochromateurs. En fait, les deux premiers sont utilisés essentiellement pour filtrer la diffusion élastique. Seul le troisième joue le vrai rôle de monochromateur et envoie les différentes longueurs d'ondes sur la caméra CCD. Cette caméra est constituée de multicanaux, de taille caractéristique de l'ordre de $10\mu\text{m}$, qui nous permet de mesurer instantanément un signal sur une gamme d'énergie entre 0 et 1000 cm^{-1} . Elle est refroidie par azote liquide. Le temps d'acquisition typique est d'environ une l'heure.

Le remplissage du détecteur par de l'azote et les changements de polarisations sont les seules perturbations extérieures que nous avons au cours de nos expériences. La partie soft (récupération des données, traitement des résultats etc...) est réalisée à l'extérieure de la pièce.

2.4.8 Traitement des spectres Raman

Nous mesurons fréquemment, typiquement avant et après la mesure des trois spectres (B1g, B2g et A1g+B2g) à une température donnée, le spectre d'un gaz d'argon afin de calibrer le spectromètre. Les spectres que nous montrons sont systématiquement corrigés du facteur de Bose et la fréquence est ajustée en utilisant la calibration par l'argon. D'autre part, nous supposons que les modifications de l'intensité à haute fréquence (entre 85meV et 125meV) sont liées à des changements de conditions expérimentales (stabilité du spot, désalignement). Nous considérons alors la partie haute énergie du spectre comme la ligne de référence et nous normalisons systématiquement les spectres sur la partie haute énergie des spectres à basse température. Le coefficient de renormalisation varie entre 1 et 1.3. La température sur le spot n'est pas celle indiquée par le régulateur à cause de l'échauffement laser. Typiquement l'échauffement est considéré de l'ordre d'une dizaine de Kelvin.

2.5 Les échantillons

2.5.1 Le dopage au calcium

Nouveaux régimes accessibles dans YBCO

Le dopage au calcium consiste en la substitution hétérovalente de l'ion Y^{3+} par celle de l'ion Ca^{2+} . L'ion Y^{3+} étant à mi-distance entre les deux plans CuO_2 , Fig.1.1 b), la substitution par x ions Ca^{2+} entraîne une augmentation du nombre de trous de $x/2$ dans les plans CuO_2 . Ainsi, l'utilisation du calcium permet de faire varier de façon contrôlée le nombre de trous dans les plans CuO_2 .

La première réalisation d'un tel dopage a été achevée par McCarron et al.[72]. Ils ont observé, pour la première fois, de la supraconductivité à 50K dans un échantillon de $Y_{0.8}Ca_{0.2}Ba_2Cu_3O_6$. Sur la Fig.2.19 a), nous montrons le diagramme de phase du composé $Y_{1-y}Ca_yBa_2Cu_3O_6$ obtenu par trois groupes[73, 74, 75]. On observe pour une concentration de calcium comprise entre 0.07 et 0.16 la phase verre de spin intermédiaire entre l'isolant AF et l'état supraconducteur. Cette phase n'apparaît pas avec le dopage par l'oxygène à cause de la présence d'une transition structurale tétragonale - orthorhombique pour une concentration en oxygène d'environ 6.4. En effet, comme on peut le voir sur le diagramme de phase de YBCO de la Fig.2.19 b), l'intervalle entre la phase isolante AF et le régime supraconducteur est très réduit. Nous avons initié au cours de cette thèse une étude par DIN polarisé de cette phase dans un échantillon dopé avec 10% de calcium mais les résultats ne seront pas décrits dans ce manuscrit.

L'idée est de combiner le dopage de YBCO avec le calcium puis avec l'oxygène afin d'atteindre un autre régime inaccessible : le régime surdopé. Sur la Fig.2.19 b), nous superposons le diagramme de phase du composé YBCO[76] avec celui de $Y_{0.8}Ca_{0.2}Ba_2Cu_3O_{6+\delta}$ [77]. On observe que le dopage avec le calcium décale tout le diagramme de phase du composé pur vers les petits dopages. Ainsi, le dopage avec le calcium permet de découvrir le dôme supraconducteur dans le régime surdopé du diagramme de phase. Nous avons alors accès à une partie du diagramme de phase de YBCO encore inexploree. L'étude par DIN du régime surdopé en utilisant le dopage au calcium constitue une partie importante de ce travail de thèse.

Mécanisme du dopage au calcium

1) Diminution de T_c^{opt} avec le taux de calcium :

Comme on peut le voir sur le diagramme de phase de $Y_{0.8}Ca_{0.2}Ba_2Cu_3O_{6+\delta}$, Fig.2.19 b), la température critique maximum, T_c^{opt} , est plus petite que celle du composé pur. La baisse de T_c^{opt} avec l'augmentation du taux de calcium est inexploree. Sur la Fig.2.19 c), nous reportons l'évolution de T_c^{opt} en fonction du taux de calcium mesuré par différents groupes[77, 78, 79, 80]. Nous avons réalisé un ajustement linéaire de ces mesures et nous obtenons comme dépendance de T_c^{opt} en fonction du taux de calcium x_{Ca} exprimé en % :

$$\boxed{T_c^{opt}(x_{Ca}) = 90.6 - 0.3918x_{Ca}} \quad (2.54)$$

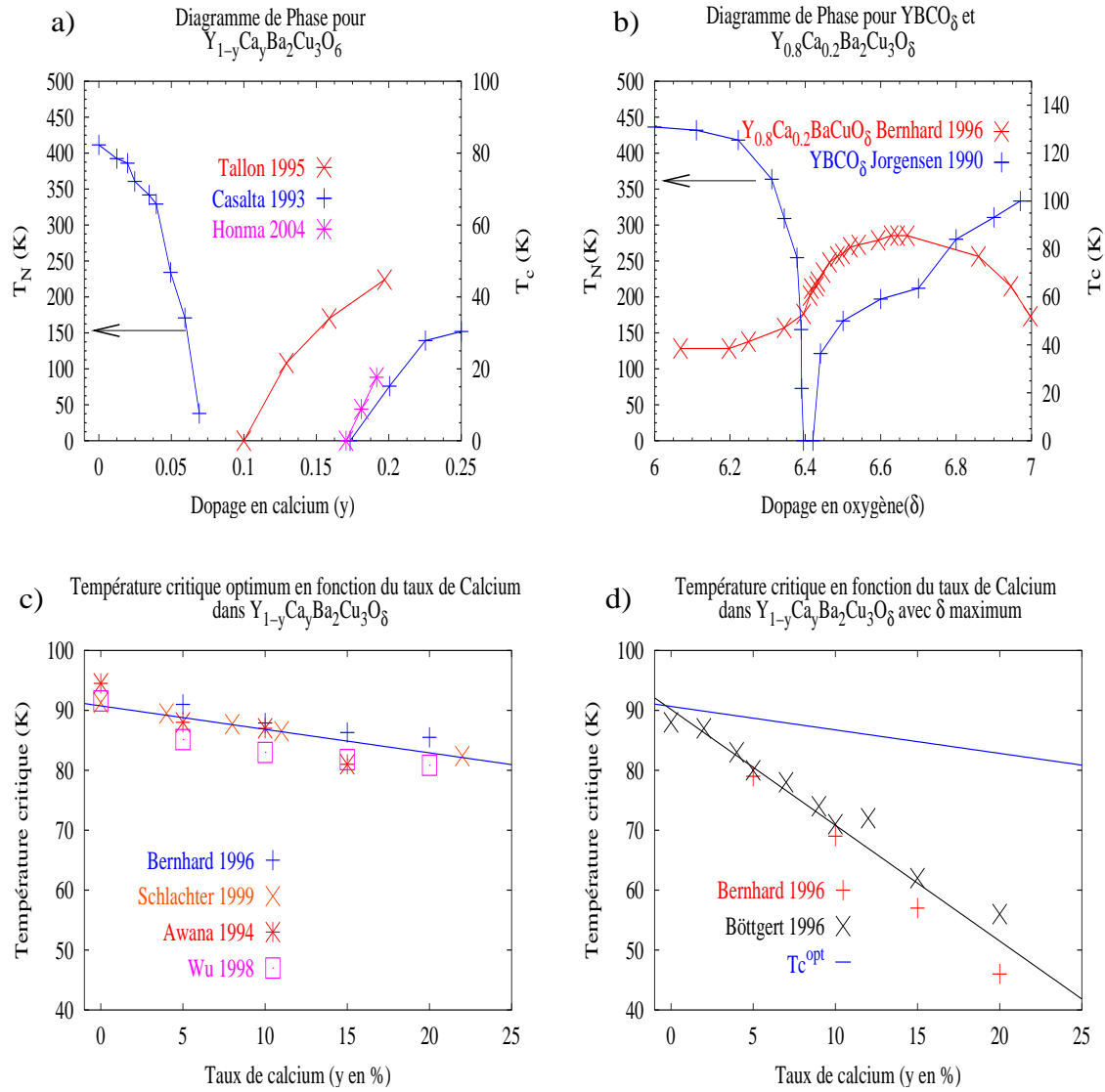


FIG. 2.19 – a) diagramme de phase de $Y_{1-y}Ca_yBa_2Cu_3O_6$ en fonction de y déterminé par [73, 74, 75]. b) diagramme de phase de YBCO[76] et de $Y_{0.8}Ca_{0.2}Ba_2Cu_3O_{6+x}$ [77]. c) Température critique optimum, T_c^{opt} , en fonction du taux de calcium[77, 78, 79, 80]. d) Température critique minimum accessible de la température critique dans le régime surdopé T_{max}^{ov} [77, 82]. Sur les deux figures, les flèches noires indiquent les points associés à l'échelle de gauche, T_N , les autres sont associés à l'échelle de droite

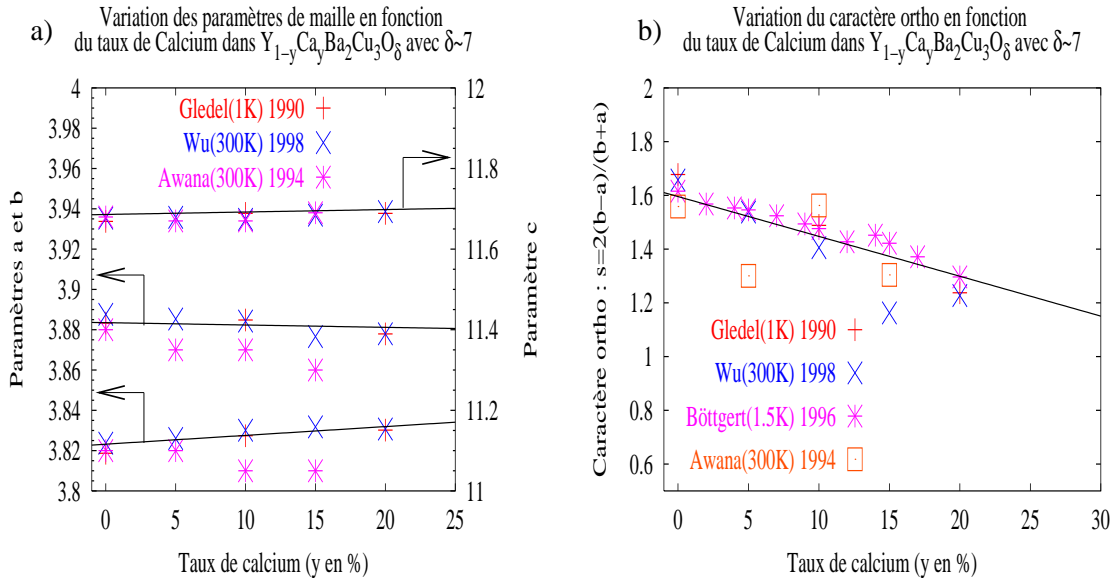


FIG. 2.20 – a) évolution des paramètres de maille, a , b et c , en fonction du taux de calcium [81, 80, 79]. b) évolution du caractère orthorhombique, $s=2(b-a)/(b+a)$, en fonction du taux de calcium [81, 80, 79, 82]

La substitution par le calcium dope-t-elle réellement les plans CuO_2 ?

Il est admis que le calcium augmente bien le nombre de trous de $x_{Ca}/2$ d'un échantillon de $YBCO_6$. En revanche, l'effet de la substitution du calcium dans $YBCO_7$, et donc la possibilité d'accéder au régime surdopé, est davantage discutée. Quel est le problème ? Pour répondre à cette question, regardons les changements de structure induits par la substitution au calcium. La Fig.2.20 e), montre l'évolution des paramètres de maille a , b et c mesurée par différents groupes dans $Y_{1-y}Ca_yBa_2Cu_3O_{\delta}$ avec $\delta \sim 1$ [81, 80, 79]. Toutes les mesures ont été rassemblées et ajustées par une droite en fonction du taux de calcium exprimé en % :

$$\begin{aligned}
 a(x_{Ca}) &= 3.8232 + 0.000436523x_{Ca} \\
 b(x_{Ca}) &= 3.8835 - 0.00011629x_{Ca} \\
 c(x_{Ca}) &= 11.6859 + 0.0006087x_{Ca}
 \end{aligned} \tag{2.55}$$

Les modifications principales de structure consistent en une augmentation du paramètre c et à un rapprochement des paramètres a et b . Pour plus de détails sur les changements structuraux induits par le calcium le lecteur peut se référer à [82].

L'augmentation du paramètre c peut être attribuée à un simple effet stérique car le rayon ionique de l'ion Ca^{2+} en coordinence 8 est de 1.12Å , plus grand que celui de l'ion Y^{3+} qui est de 1.019Å [72, 82].

Le rapprochement des paramètres a et b implique une diminution du caractère orthorhombique de la maille. Nous reportons sur la Fig.2.19 f) l'évolution du caractère orthorhombique défini par $s=2(b-a)/(b+a)$ en fonction de x_{Ca} obtenue par plusieurs groupes [81, 80, 79, 82]. Notre ajustement de ces mesures donne :

$$s(x_{Ca}) = 1.59403 - 0.01483x_{Ca} \quad (2.56)$$

La diminution du caractère orthorhombique traduit soit une diminution du taux d'oxygène dans la maille soit une délocalisation des oxygènes O(4) sur les sites O(5) (soit les deux processus à la fois), Fig.1.1 b). Une diminution du taux d'oxygène de $-0.5x_{Ca}$ est rapportée par [83, 81] et associée à un simple balance de charge introduit par la substitution de l'ion Y^{3+} par l'ion Ca^{2+} . Egalement, plusieurs groupes montrent que le calcium introduit du désordre dans les chaînes CuO[84, 85, 78] (ce qui peut être à l'origine de la difficulté de démacler des échantillons dopés au calcium⁹). Ainsi, l'introduction de calcium semble induire une perte d'atomes d'oxygène et un désordre des chaînes. La question est de savoir si l'augmentation du dopage introduit par le calcium est plus importante que sa diminution engendrée par la perte d'oxygène. Les mesures optiques[86], de NEXAFS[87], de pouvoir thermoélectrique[77], de susceptibilité sous haute pression[78], qui ont un accès plus ou moins direct à la concentration des porteurs, indiquent toutes que le calcium surdope YBCO₇. Cependant à cause de la perte d'oxygène le dopage n'est pas aussi efficace qu'espéré.

Sur la Fig.2.19 d), nous reportons la T_c minimum accessible dans le régime surdopé (ou l'état surdopé maximum), T_{min}^{ov} , en fonction du taux de calcium déterminé par [77, 82]. L'ajustement de ces données donne :

$$T_{min}^{ov}(x_{Ca}) = 90.073 - 1.93296x_{Ca} \quad (2.57)$$

Notons que la limite de solubilité totale de l'ion Ca^{2+} est d'environ 0.15, pour les concentrations supérieures le calcium commence à se substituer au baryum[77].

2.5.2 Nos échantillons de $Y_{1-x}Ca_xBa_2Cu_3O_{6+\delta}$

Synthèse et caractérisation des échantillons

Synthèse :

La synthèse des échantillons de $Y_{1-x}Ca_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ a été réalisée au MPI par **B. Liang** et **C. T. Lin**[89]. Ils ont utilisé la méthode TSSG (Top-Seeded Solution Growth) dont le montage expérimental est représenté dans[89]. Le mélange initial est composé de Y_2O_3 , $BaCO_3$, $CaCO_3$ et de CuO . Il n'y a donc pas de phase Y-211, phase verte dans les échantillons synthétisés par cette méthode. Ils obtiennent des monocristaux de taille typique : $5 \times 5 \times 3$ (mm³).

Caractérisation du taux de Calcium par EDX :

La technique EDX "Energy Dispersive X-ray Analysis" : on utilise une méthode de microscopie électronique à balayage (MEB), le TESCAN SEM avec un détecteur Röntec qui a une résolution de 138eV. Celle-ci consiste à mettre l'échantillon sous vide et à le bombarder avec un faisceau d'électrons, électrons primaires. Ces électrons frappent la surface sur une épaisseur d'environ 1-3 μ m et sont diffusés de manière élastique (électrons

⁹En appliquant le procédé pour démacler les échantillons de YBCO purn, V. Hinkov[135] a beaucoup plus de difficulté à démacler les échantillons dopés au calcium

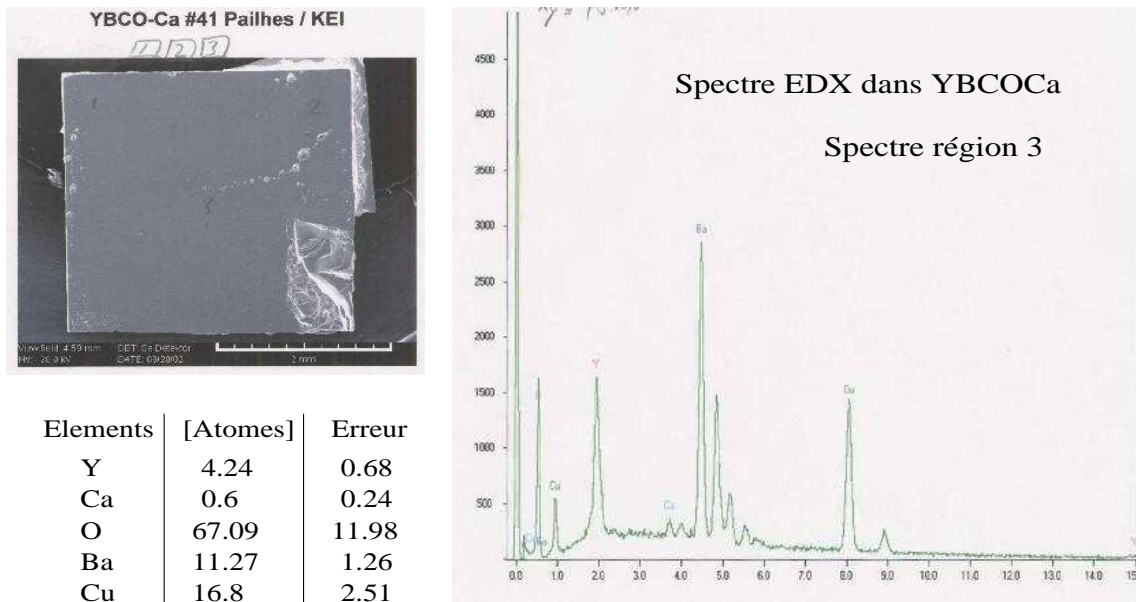


FIG. 2.21 – Sur la figure a), nous montrons une photo d'un de nos échantillons de YBCO-Ca10% obtenue par MEB. Sur la figure b), nous montrons le spectre EDX réalisé sur la région 3 à la surface de l'échantillon de la figure a). Enfin le tableau reporte les résultats de l'analyse EDX pour chaque élément sondé avec les barres d'erreur indiquées par la machine

rétrodiffusés) et inélastique. La perte d'énergie de l'électron primaire provoque l'ionisation de l'atome par éjection d'un électron dit secondaire. Un électron d'une couche supérieure descend alors pour occuper la place vide, ce qui provoque l'émission soit d'un photon X soit d'un électron Auger. Le EDX est une méthode d'analyse des rayons X émis lors de ce processus de désexcitation des atomes. En analysant le spectre des rayons X, on a accès aux concentrations relatives des atomes les uns par rapport aux autres. Le faisceau balayant l'écran, on peut dresser une cartographie chimique. A cause de la résolution de l'appareil (138eV), on détecte les éléments à partir de l'azote, $Z=7$.

Nos mesures : les mesures de EDX sont réalisées au MPI à Stuttgart par **Mrs Hinkler**. Sur la Fig.2.21 a), nous montrons l'image de la surface observée par MEB d'un de nos échantillons de YBCO-Ca10%. Nous réalisons typiquement trois points de mesure à la surface de l'échantillon pour détecter les éventuels gradients de calcium à la surface. Sur le Fig.2.21 a), nous montrons un spectre EDX pris en un point de l'échantillon de la Fig.2.21 a). Etant donné son numéro atomique, $Z=20$, et de sa faible concentration, le pic de Calcium n'est pas très important. Nous avons typiquement une erreur de 3% à 6% sur la mesure du taux de Calcium. Nous estimons le taux de Calcium en pré-supposant l'existence de la phase $Y_{1-x}Ca_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. Le baryum est choisi comme élément de référence et les concentrations de Calcium et d'Yttrium sont déterminées par : $x = 2[Ca]^{mesure}/[Ba]^{mesure}$ et $1-x = 2[Y]^{mesure}/[Ba]^{mesure}$. On vérifie alors dans les barres d'erreur que $(x)+(1-x)=1$ ". Malgré l'erreur instrumentale, nous trouvons des écarts de taux de calcium, déterminé par cette méthode, très petit sur un même échantillon (sur la surface et sur la surface opposée, perpendiculairement à l'axe \vec{c}), de l'ordre du 1%. Il n'y a donc pas de gradient de calcium dans le plan et suivant l'axe \vec{c} . De même sur des échantillons provenant d'une même synthèse, les écarts du taux de calcium sont faibles et

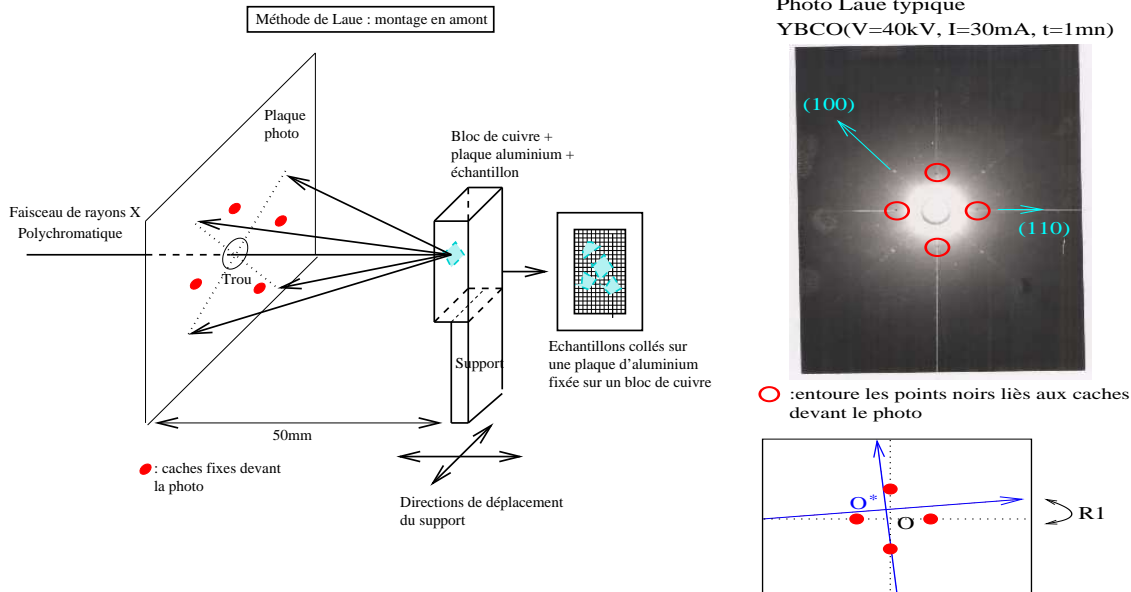


FIG. 2.22 – Sur cette figure, nous résumons les différentes étapes de l'alignement des échantillons. Un échantillon est collé sur une plaque d'aluminium que l'on fixe sur un support et placé ensuite sur un montage Laue dit "en amont". Avant que la colle sèche, nous disposons d'une vingtaine de minutes pour prendre des clichés et orienter l'échantillon par rapport au repère fixe de la machine, représenté par les ronds rouges.

compris entre 1% et 2%.

Caractérisation de la température critique par mesure SQUID :

Etant donnée la faible précision de la mesure EDX, il est important d'avoir une méthode de caractérisation complémentaire des échantillons. Nous avons alors réalisé des mesures de susceptibilité en utilisant un magnétomètre à SQUID (Superconducting Quantum) standard. Nous réalisons nos mesures de susceptibilité par la méthode "zero field cooled" : on descend la température de l'échantillon en dessous de T_c (typiquement 50K) puis, on applique un petit champ statique parallèle à l'axe \vec{z} de 10Oe et enfin on mesure la susceptibilité DC par palier de 1K. Une mesure consiste à déplacer un échantillon dans des bobines captrices (gradientmètre), à une température donnée et dans un champ magnétique homogène. Lorsqu'on introduit un échantillon dans le gradientmètre, le champ magnétique est perturbé et produit une variation de flux magnétique, qui induit un courant dans les bobines du gradientmètre. On réalise ainsi en déplaçant l'échantillon d'un bout à l'autre du gradientmètre, une intégration de flux. Un transformateur de flux permet de transmettre le signal issu du gradientmètre au SQUID. Le SQUID est le détecteur de champ magnétique le plus sensible qui existe (10^{-8} uem/1Tesla). C'est un convertisseur flux-tension. L'amplitude du signal mesuré est proportionnelle au moment magnétique de l'échantillon.

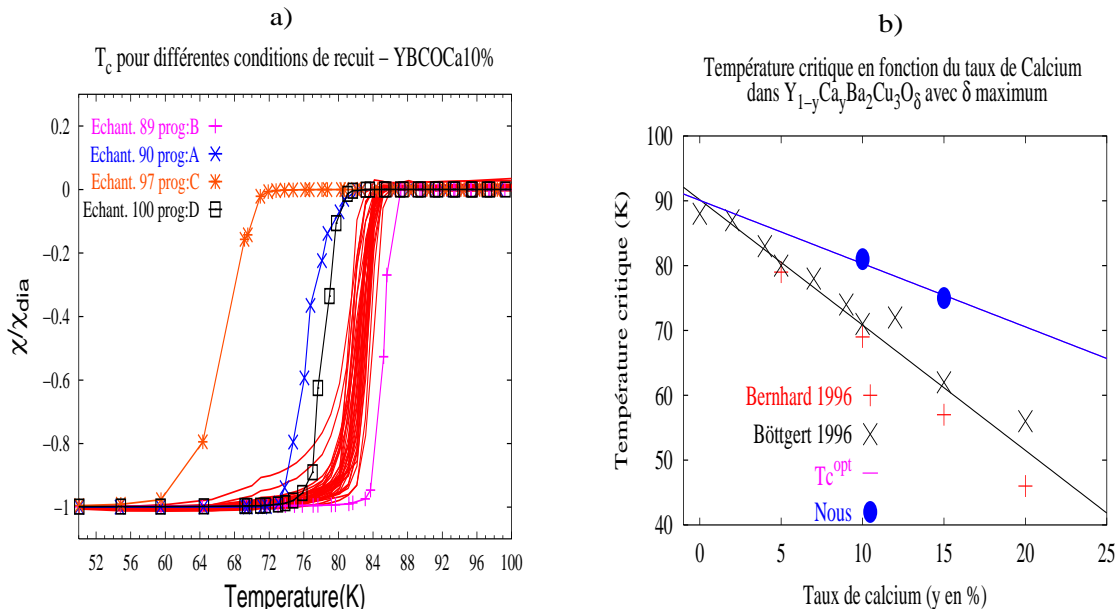


FIG. 2.23 – Sur la figure a), nous reportons en courbes rouges les mesures de susceptibilité (zero field cooled, 100e) des échantillons d'une fournée de $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$. Quatre échantillons de ce paquet rouge ont été traités de quatre façons différentes (voir texte) et nous montrons leur courbe de susceptibilité après traitement. Sur la figure de droite, nous reprenons la Fig.2.19 d) en ajoutant la $T_{min}^{ov}(Ca)$ de nos échantillons, cercles pleins bleus, obtenus après recuit avec le programme E(voir texte)

Alignement des échantillons par méthode Laue : construction du pseudo-monocristal pour les expériences de DIN

Une fois les échantillons caractérisés par la méthode de EDX et par SQUID, nous éliminons les échantillons qui présentent un écart trop important en T_c ou en taux de Calcium par rapport à la moyenne. Généralement, les deux vont de pair.

Nous alignons alors les échantillons ensemble par la méthode de Laue qui permet de déterminer les directions des vecteurs du réseau réciproque (mais pas leur module). Nous utilisons un montage Laue en amont comme représenté sur la Fig.2.22 a). Avec un montage en amont, nous travaillons en réflexion, ce qui permet d'étudier les monocristaux épais. Les rayons X sont fournis par un tube à rayons X standard. On lui applique une tension accélératrice d'environ 40kV et un courant de filament de 30mA, ce qui permet d'obtenir des clichés corrects dans Y123 en ~ 1 minute.

Ci-dessous nous énumérons les deux étapes de l'alignement des échantillons :

- i Collage de l'échantillon sur la plaque en aluminium. Nous utilisons un vernis acheté à la General Electrics (GE) dont la formule exact du polymère reste un secret. Ce vernis est un liquide épais mielleux de couleur jaune foncé qui durcit à l'air ambiante et qui se dissout par l'acétone. Dans un petit récipient, on prépare une goutte de ce vernis en ajoutant de l'acétone. L'ajout d'acétone permet d'obtenir une certaine texture du vernis (pas trop filandreux, ni trop liquide ect..) propice au collage de l'échantillon. Par expérience, on reconnaît la texture idéal du vernis. Quelque fois, on doit répéter plusieurs fois le mélange afin d'obtenir cette texture. Une fois la texture obtenue, on dépose, en regardant au microscope, une gouttelette de colle sur

la plaque d'aluminium où nous avons préalablement gravé la place de l'échantillon. Puis on dépose l'échantillon.

- ii Nous avons alors entre 10mn et 20mn pour aligner l'échantillon par rapport aux autres sur la plaque d'aluminium. Ce qui correspond en moyenne à une quinzaine de clichés de Laue (le prix d'une photo est d'environ 1euro). Il y a deux corrections à faire : la plus simple est la rotation de l'échantillon dans le plan de la plaque, R1 sur la Fig.2.22 c), et la seconde correspond aux inclinaisons de l'échantillon en dehors de la plaque liées aux défauts de surface de l'échantillon, quand $O \neq O^*$ sur la Fig.2.22 c). Généralement, on arrive à l'oeil (ou en lumière polarisée¹⁰) à ne pas obtenir un R1 trop important. On commence donc par corriger le tilt en dehors de la plaque. Pour cela, on utilise des petites boulettes de papier d'aluminium pour caler l'échantillon. On détermine l'inclinaison(en degrés) verticale et horizontale en fonction des distances verticale et horizontale de d_{O-O^*} (en mm) mesurées sur la photo : $t=0.5*\text{atan}(d_{O-O^*}/50)$, où 50mm est la distance photo-échantillon. On s'autorise une déviation de 1mm à 3mm correspondant à un écart de l'ordre du pourcent sur le paramètre c du cristal.

Sur la Fig.2.22 b), nous montrons la photo Laue d'un échantillon considéré comme aligné. Les traits blancs joignent les points noirs de référence de l'appareil (entourés en rouge). On observe que les lignes de diffusion 110 et 1-10 se superposent aux traits blancs.

Conditions de recuit - preuve de l'effet du calcium

Avec l'aide de **F. Jean** et **N. Blanchard**¹¹, nous avons mené des expériences simples sur nos échantillons de $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ afin de savoir : i)si nos échantillons étaient bien surdopés, ii)estimer la température optimum et iii)obtenir les conditions de recuit qui permettent une oxygénation maximale.

Pour cela, nous avons prélevé 4 échantillons d'une fournée. Les T_c de tous les échantillons de cette fournée (y compris les échantillons prélevés) forment le paquet rouge de la Fig.2.23. Nous avons alors appliqué 4 traitements différents résumés dans le tableau ci-dessous :

Prog. A (surdopé)	$T_{\text{ambiante}} \xrightarrow{4h00} 350^\circ\text{C}, 2h00 \xrightarrow{2h00} 310^\circ\text{C}, 200h \xrightarrow{5h00} T_{\text{ambiante}}$
Prog. D (surdopé)	$T_{\text{ambiante}} \xrightarrow{4h00} 650^\circ\text{C}, 5h00 \xrightarrow{2h00} 400^\circ\text{C}, 200h \xrightarrow{4h00} T_{\text{ambiante}}$
Prog. E (surdopé)	$T_{\text{ambiante}} \xrightarrow{4h00} 650^\circ\text{C}, 5h00 \xrightarrow{2h00} 300^\circ\text{C}, 500h \xrightarrow{4h00} T_{\text{ambiante}}$
Prog. B (sousdopé)	$T_{\text{ambiante}} \xrightarrow{6h00} 500^\circ\text{C}, 46h00 \xrightarrow{\text{trempe}} T_{\text{ambiante}}$
Prog. C (sousdopé)	$T_{\text{ambiante}} \xrightarrow{6h00} 650^\circ\text{C}, 46h00 \xrightarrow{\text{trempe}} T_{\text{ambiante}}$

Nous avons ensuite mesuré la courbe de susceptibilité des échantillons après les traitements, Fig.2.23 a)(la correspondance entre les courbes de susceptibilité et les traitements

¹⁰Avec la lumière polarisée, nous distinguons parfaitement les macles de l'échantillon. Nous pouvons ainsi faire un pré-alignement d'un échantillon au microscope en s'alignant sur les domaines mâclés

¹¹F. Jean a été en postdoc dans le groupe de cristallogénèse de **G. Collin** au LLB. N. Blanchard est permanente dans le même groupe.

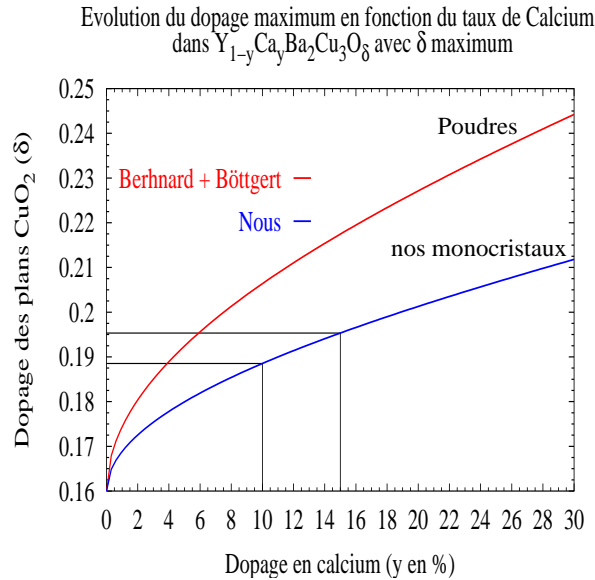


FIG. 2.24 – La courbe rouge représente le dopage maximum accessible des plans CuO_2 en fonction du taux de calcium. La courbe a été obtenue à partir de la formule de Tallon[74] en considérant les fonctions $T_{min}^{ov}(Ca)$, Eq.2.57, et $T_c^{opt}(Ca)$, Eq.2.54. La courbe bleue est obtenue de manière similaire à la courbe rouge avec l'évolution de $T_{min}^{ov}(Ca)$ obtenue à partir de nos échantillons

en oxygène est indiquée dans la légende de la figure). Les protocoles A et D ont pour but d'oxygéner encore plus les échantillons et donc d'augmenter leur dopage. Ces deux recettes nous ont été données par **G. Collin** (Prog. A) et **C. Bernhard**(Prog. D). On observe que le Prog.A permet d'obtenir une meilleure oxygénation de nos échantillons, Fig.2.23 a). Le Prog. D possède une étape à très haute température dont le but est de briser d'éventuelles barrières de potentiel empêchant la diffusion de l'oxygène dans le cristal. Cette étape nous semble utile. Nous avons donc établi un programme mixte entre le A et le D pour atteindre l'oxygénation maximum, Prog.E. Le Prog.E a été appliqué pour le traitement des échantillons de $Y_{0.85}Ca_{0.15}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$. Nous avons 2 fournées et nous avons recuit avec le Prog.E une partie dans un four au LLB et une autre partie dans un four au MPI. Les mesures de T_c ont montré que les échantillons des deux fournées sont dopés de façon équivalente. Nous pensons donc que le Prog.E permet d'atteindre la limite supérieure d'oxygénation de nos échantillons. Il reste naturellement à optimiser le temps de recuit.

Les programmes B et C ont pour but de désoxygéner l'échantillon. Le Prog. B montre que l'on peut augmenter la T_c des échantillons en les désoxygénant, ce qui prouve que les échantillons sont initialement surdopés, Fig.2.23. Nous montrons également que la T_c optimum est au minimum de 88K pour ces échantillons. Enfin, les échantillons deviennent sousdopés avec le Prog.C.

A partir des fonctions $T_{min}^{ov}(x_{Ca})$, Eq.2.57, et $T_c^{opt}(x_{Ca})$, Eq.2.54, nous pouvons tracer l'évolution du plus fort dopage accessible dans le régime surdopé, δ^{max} , en fonction du taux de calcium. Nous avons pour cela utilisé la loi phénoménologique de Tallon[74]. Nous montrons cette évolution sur la Fig.2.24, courbe rouge. Contrairement aux données de

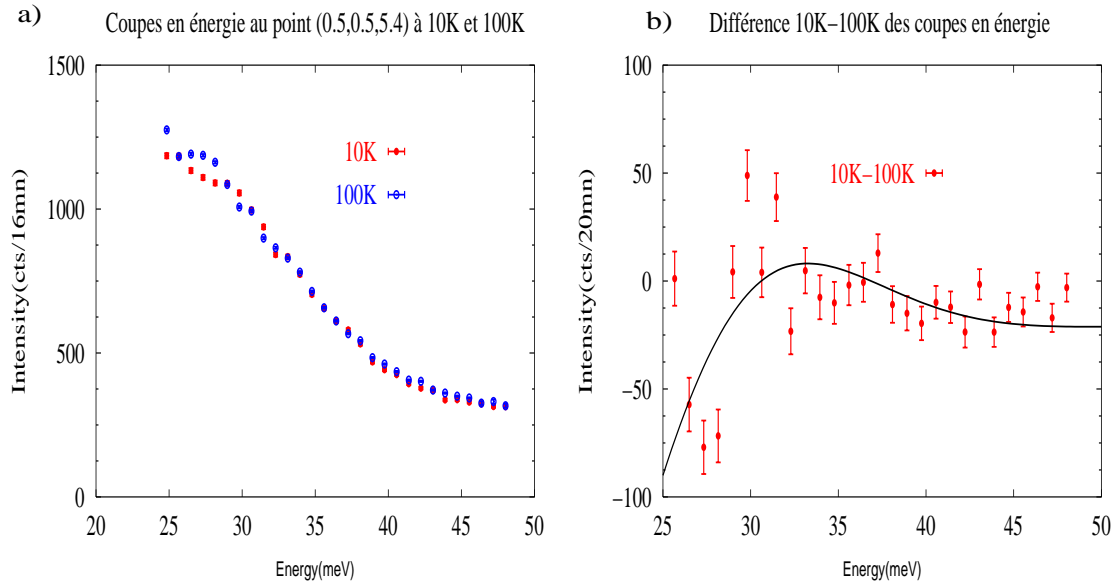


FIG. 2.25 – Sur la figure a), nous montrons les coupes en énergie réalisées à 10K et 100K sur le spectromètre 2T : analyseur/monochromateur PG002, $k_f=4.1\text{\AA}^{-1}$, 1 filtre PG002 sur k_f . Le système étudié est constitué de deux plaques d'aluminium avec 180mg de colle. L'intensité a été divisée par un facteur 15(voir texte). Sur la figure b), nous reportons la différence 10K-100K de ces coupes

Bernhard[77] et Böttgert[82] sur poudre, nous ne sommes pas arrivés à surdoper aussi efficacement nos monocristaux. Le minimum de la température critique, $T_{min}^{ov,nous}(x_{Ca})$, que nous avons réussi à atteindre dans le régime surdopé en fonction du taux de calcium est donné par :

$$T_{min}^{ov,nous}(x_{Ca}) = 90.073 - 0.9748x_{Ca} \quad (2.58)$$

D'après C. Bernhard (communication privée), ces différences pourraient provenir du fait qu'une partie des ions Ca^{2+} se placent sur le site de l'ion Ba^{2+} et non sur celui de l'ion Y^{3+} rendant le dopage en calcium inefficace. Ce processus serait dépendant de la pression partielle d'oxygène au cours de la synthèse.

Sur la Fig.2.24 courbe bleue, nous montrons l'évolution du plus fort dopage accessible dans le régime surdopé en fonction du taux de calcium pour nos échantillons. Cette courbe a été obtenue à partir de la loi de Tallon en utilisant $T_{min}^{ov,nous}(x_{Ca})$, Eq.2.58, et $T_c^{opt}(x_{Ca})$, Eq.2.54.

Effet de la colle dans les expériences de neutrons

Nous avons réalisé une expérience sur le spectromètre 2T afin de quantifier les effets de la colle organique(Hydrogène) sur notre bruit de fond. Pour cela, nous avons distribué une quantité importante, 180mg, de colle sur deux plaques d'aluminium montées ensemble. Nous estimons la quantité de colle nécessaire à fixer un échantillon sur la plaque d'aluminium comprise être entre $[> 0.1\text{mg}, 0.5\text{mg}]$. Ainsi pour 60 échantillons (cas du pseudo-monocristal de $\text{Y}_{0.9}\text{Ca}_{0.1}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$) nous avons environ 12mg de colle. Pour la mesure, nous nous sommes placés dans des conditions de mesures identiques à

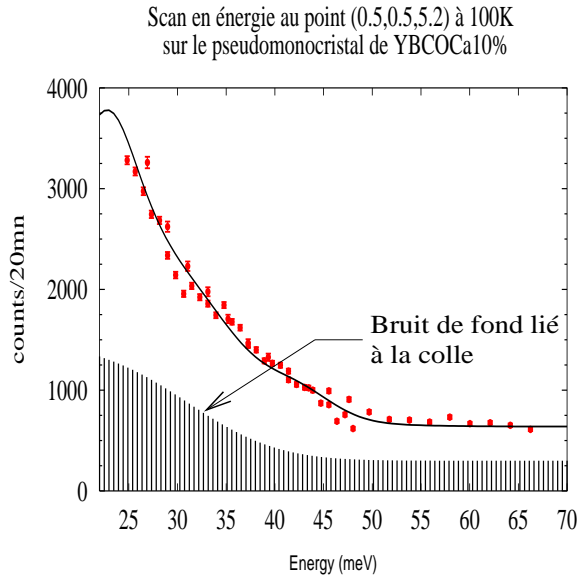


FIG. 2.26 – Coupes en énergie réalisées à 10K et 100K sur le spectromètre 2T : analyseur/monochromateur PG002, $k_f=4.1\text{\AA}^{-1}$, 1 filtre PG002 sur k_f . Le système étudié est le pseudo-monocristal de $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$. Les lignes noires indiquent la contribution de la colle

celles utilisées pour la mesure de la résonance : analyseur et monochromateur graphite PG002, un filtre graphite sur k_f . Nous avons réalisé des coupes en énergie à 10K et à 100K au vecteur d'onde AF (0.5,0.5,5.2) avec un moniteur de $1e5$ correspondant à environ 20mn/pt. Nous montrons sur la Fig.2.25 a), les coupes brutes en énergie. L'intensité de ces coupes a été divisée par un facteur 15 afin de simuler l'intensité de 12mg de colle. On observe un bruit de fond incohérent qui peut être décrit par un profil gaussien centré à énergie nulle. L'intensité de ce bruit de fond est multiplié par un facteur 4 entre 50meV et 25meV. Sur la Fig.2.25 b), la différence 10K-100K est négative, $\sim -25\text{cnts}/20\text{mn}$, et plate entre 40meV et 50meV. Une petite structure de 25cnts apparaît autour de 32meV. Pour les énergies inférieures à 32meV, la différence devient très bruitée. Nous avons réalisé un ajustement de ces coupes par deux fonctions gaussiennes. Sur la Fig.2.26 nous montrons une coupe en énergie au vecteur d'onde (0.5,0.5,5.2) à 100K réalisée sur le pseudo-monocristal de $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ dans des conditions expérimentales identiques. Cette coupe a été ajustée en utilisant l'ajustement précédent de la forme en énergie de la colle à 100K et la forme du bruit de fond usuel dans YBCO[96]. **On observe que la moitié du bruit de fond total peut être attribué à l'ensemble {colle, plaque aluminium, spectromètre} et l'autre moitié est intrinsèque à l'ensemble l'échantillon.**

2.5.3 Les échantillons pour les mesures de DIN et Raman

Les échantillons pour les expériences de DIN :

Les pseudo-monocristaux de $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ et de $Y_{0.85}Ca_{0.15}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$

Sur la Fig.2.27 a), nous montrons le pseudo-monocristal de $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ final.

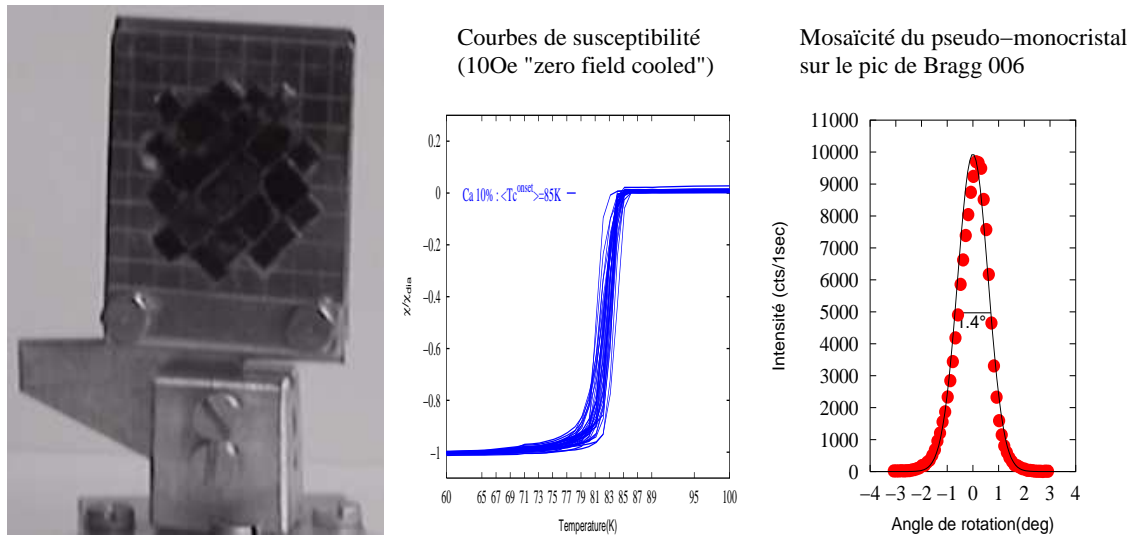


FIG. 2.27 – Le pseudomonocrystal de $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$: nous montrons sur cette figure une photo du montage final. Seulement une face est visible, mais les échantillons sont répartis sur les deux faces des plaques d'aluminium et sur 2 plaques d'aluminium. Nous montrons également l'ensemble des courbes de susceptibilité des petits monocristaux participant au montage. Enfin, nous reportons la mesure d'un pic de Bragg nucléaire (raie 006) sur ce pseudo-monocrystal qui présente une mosaïcité de 1.4°

Il est constitué de deux plaques d'aluminium sur lesquelles sont collés, sur les deux faces, 60 échantillons. Les cristaux ont été recuits en suivant le programme D, Tab.2.5.2. Ils ne sont donc pas surdopés au maximum.

L'ensemble des caractéristiques des deux systèmes est résumé dans le Tab.2.3.

Sur les Fig.2.27 b), nous montrons les courbes de susceptibilité des monocristaux des deux systèmes. Sur les 2.27 c), nous reportons la mesure de la Bragg 006 sur les deux pseudo-monocristaux. La mosaïcité est inférieure à 1.5° dans les deux systèmes.

Les échantillons pour l'étude Raman

Nous avons étudié la réponse Raman dans 5 échantillons de $Y_{1-y}Ca_yBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ à des niveaux de dopages différents. Pour chaque échantillon le taux de calcium a été estimé à partir des mesure de EDX et la température critique à partir des mesures de susceptibilité magnétique. Le tableau ci-dessous donne la liste de chaque échantillon avec ces caractéristiques :

Les échantillons R10a et R10b sont au même niveau de dopage que les échantillons constituant le système de $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ étudié en neutron (paquet de courbes bleues sur la Fig.2.28). De la même manière, l'échantillon R15b et R15c sont au même niveau de dopage que les échantillons constituant le système de $Y_{0.85}Ca_{0.15}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ étudié en neutron (paquet de courbes rouges sur la Fig.2.28). **Les échantillons utilisés pour l'étude de DIN et pour l'étude Raman proviennent de la même fournée.** L'échantillon R15a est à un dopage intermédiaire entre les deux gros paquets de courbes. Cet échantillon n'a été en oxygénation que pendant 1 semaine alors que les autres échantillons de calcium 15% sont restés 4 semaines dans le four pour atteindre l'oxygénation maximale.

Pseudo-monocristal pour étude par DIN		
Système	$Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$	$Y_{0.85}Ca_{0.15}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$
Masse totale	2246.2mg	1648.5mg
Volume total ($\rho=6.4g/cm^3$)	0.35cm ³	0.257cm ³
$\langle T_c^{onset} \rangle$	85.5K	75K
$\sqrt{\langle (T_c^{onset} - \langle T_c^{onset} \rangle)^2 \rangle}$	0.6K	2K
$\langle [Ca] \rangle$	10%	15%
$\sqrt{\langle ([Ca] - \langle [Ca] \rangle)^2 \rangle}$	1%	1.5%
Dopage(δ) loi Tallon[74]	0.175*	0.195
avec $T_c^{opt}(x_{Ca})$, Eq.2.54		

* échantillon non surdopé au maximum, donc la T_c est inférieure à $T_{min}^{ov}(Ca)$ de la Fig.2.24

TAB. 2.3 – Caractéristiques des pseudo-monocristaux utilisés pour la mesure neutron

Monocristaux pour l'étude Raman					
Nom de l'échantillon	T_c^{onset} (K)	largeur de la transition	Contenance en Calcium (%)	Dopage(δ)	
R10a	85.1	6	10	0.175	
R10b	84.1	6	10	0.18	
R15a	81	7	14	0.186	
R15b	77	6	15	0.193	
R15c	73.2	4	15	0.20	

TAB. 2.4 – Caractéristiques des monocristaux utilisés pour la mesure Raman

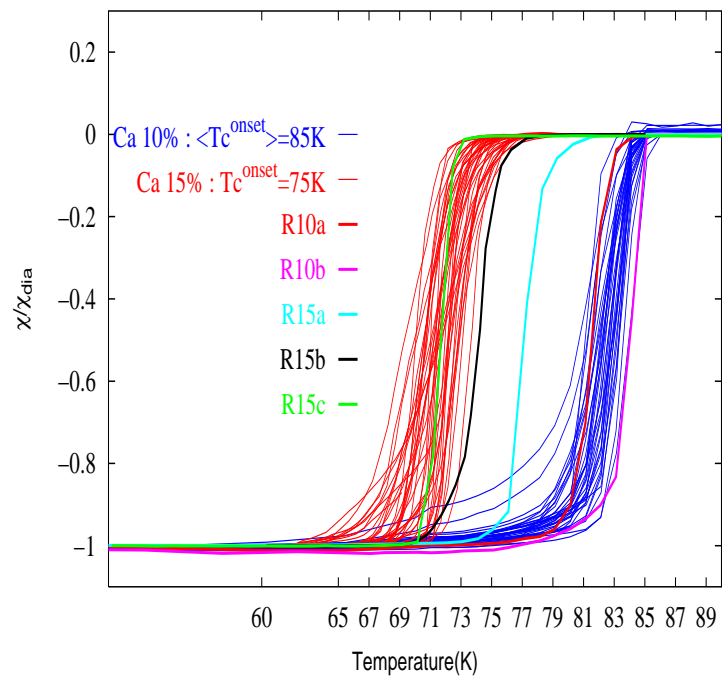


FIG. 2.28 – Nous reportons sur cette figure toutes les courbes de susceptibilité magnétique (zero field cooling) qui ont été collectées pour caractériser les échantillons étudiés en neutron et Raman. Les deux gros paquets bleus et rouges correspondent aux échantillons constituant les deux systèmes de YBCOCa10% et YBCOCa15% étudiés en neutron. Les autres courbes appartiennent aux échantillons étudiés en Raman et dont les caractéristiques sont reportées dans le Tab.2.4

Chapitre 3

Mesure de la dynamique de spin
 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$ ($T_c=89\text{K}$)

Ce chapitre est essentiellement consacré à l'étude des fluctuations magnétiques dans l'état supraconducteur du composé $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$ ($T_c = 89\text{K}$) légèrement sousdopé. Il est constitué de trois parties. Dans les deux premières parties nous montrons les résultats de nos études des excitations résonnantes magnétiques pour des énergies inférieures et supérieures à l'énergie du pic de résonance. La dispersion vers les basses énergies de la résonance est étudiée dans un échantillon démaclé afin d'élucider le problème de la dimensionnalité des fluctuations magnétiques dans le plan de base. Nous reportons ensuite des mesures à plus hautes énergies qui ont permis de mettre en évidence de nouvelles excitations résonnantes. Notamment, nous apportons la première observation du pic de résonance magnétique optique. Enfin, dans la dernière partie de ce chapitre, nous discutons de l'évolution des fluctuations magnétiques en fonction du nombre de plans CuO_2 dans la maille élémentaire. Nous reportons les résultats de la première mesure de DIN dans le composé à trois plans CuO_2 , Bi2223.

3.1 Dimensionnalité des fluctuations magnétiques incommensurables dans l'état supraconducteur de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$

En plus du pic de résonance magnétique apparaissant à une énergie de 41meV, au vecteur d'onde AF, les expériences de DIN dans l'état supraconducteur de Y123 ont mis en évidence une dispersion incurvée vers les basses énergies [101, 112, 119, 125] (voir la partie 1.5.3). Dans le plan de base, l'intensité de ces fluctuations magnétiques incommensurables est plus importante suivant les axes (100) et (010) dans l'état sousdopé [113] et au dopage optimum [101]. Cependant, la dimensionnalité de ces incommensurabilités n'a pas été clairement prouvée et est l'objet d'un débat intense.

3.1.1 Problématique

Le système YBCO_x , pour $6.4 < x < 7$, est orthorhombique ($a \sim 3.82\text{\AA}$ et $b \sim 3.88\text{\AA}$ pour Y123 au voisinage du dopage optimum) et, sans l'application de contraintes extérieures durant le processus d'oxygénation, le matériau minimise son énergie par une inversion régulière des axes a et b. Cette alternance de domaines orthorhombiques forme un réseau de plans de macles de direction (110)(-110). Toute la difficulté réside dans ce maillage naturel qui impose, à tout signal observé, d'être symétrique par rapport à l'axe (110). Ainsi, nous ne pouvons pas faire la différence entre un signal intrinsèquement à deux dimensions avec des maxima suivant les axes (100) et (010) et un signal purement uniaxial, qui du fait du maillage de l'échantillon, est symétrisé dans le plan de base. Nous schématisons cette problématique du maillage sur la Fig.3.1 : quelle est la nature intrinsèque des structures incommensurables ? Cette question est importante car elle confronte deux approches théoriques complètement opposées : une approche itinérante fondée sur l'existence d'une surface de Fermi et qui de ce fait prévoit une physique intrinsèque des plans CuO_2 à 2 dimensions, Fig.3.1 b), et une approche localisée basée sur l'existence de stripes qui prévoit une physique intrinsèque à 1 dimension, Fig.3.1 c). Dans Y123, les stripes sont supposés être alignés parallèlement aux chaînes CuO, donc le long de l'axe (010). Sur la Fig.3.1 d), nous montrons la géométrie des incommensurabilités dans le plan de base déterminée

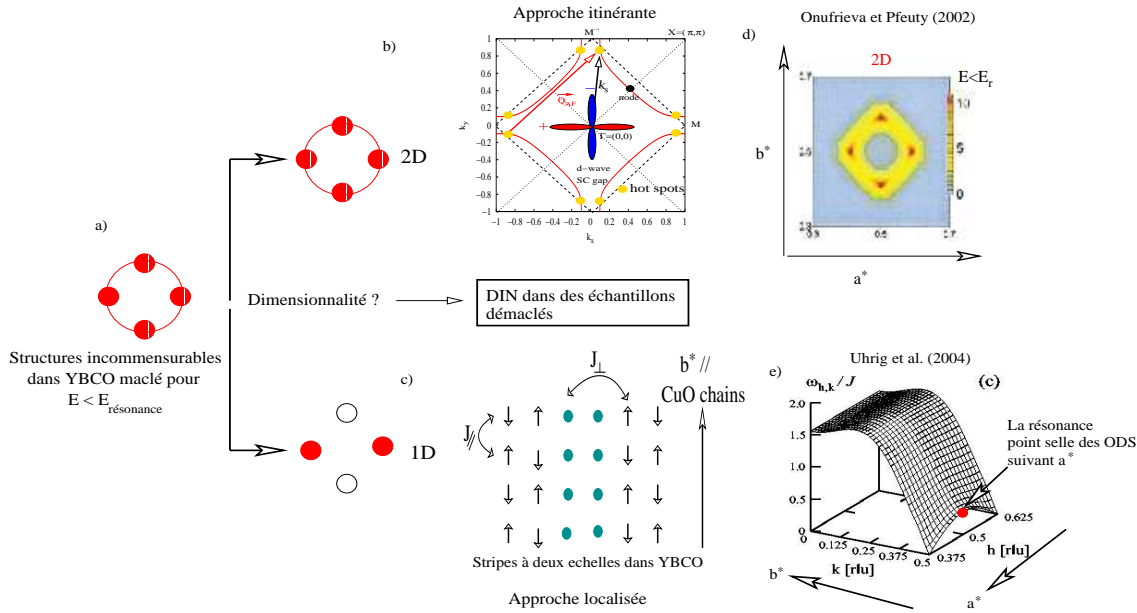


FIG. 3.1 – Les expériences de DIN ont mis en évidence une répartition non isotrope du signal incommensurable, pour $E < E_r$ dans le plan de base [109, 101, 147], figure a). Celui-ci est plus intense suivant les axes a^* et b^* du cristal. Cependant, les échantillons de YBCO étudiés par DIN sont maclés (voir texte). Nous ne pouvons donc connaître la physique intrinsèque du système et deux approches opposées sont proposées : une approche itinérante, schéma b), prévoit un spectre intrinsèque 2D et une image localisée prévoit un spectre intrinsèque 1D, schéma c). Sur la figure d) nous montrons une carte de l'intensité dans le plan de base du mode résonnant pour $E < E_r$ déterminée par Onufrieva et Pfeuty [225]. Sur la figure f), nous reportons le calcul récent de la dispersion des ondes de spins pour le système de stripes de la figure e) réalisé par Uhrig et al. [248]

dans le cadre d'une approche itinérante [225]. On observe une distribution de l'intensité en forme de losange avec des maxima suivant les axes $a^*(100)$ et $b^*(010)$. Sur la Fig. 3.1 c), nous représentons un système de stripes où les charges sont localisées sur les liaisons CuO séparant des échelles de spins à deux montants. Le résultat du calcul des ondes de spins dans ce système est montré sur la Fig. 3.1 e). Dans cette approche, la résonance apparaît comme un point selle de la dispersion des ondes de spins suivant la direction a^* engendré par le couplage ferromagnétique des spins à travers les échelles de stripes. Une coupe en vecteur d'onde suivant a^* pour une énergie inférieure à l'énergie du point selle, consiste alors en deux spots suivant a^*

Pour résoudre ce problème, une étude par DIN a été réalisée dans un échantillon sousdopé de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$ partiellement démaclé [109] : le taux de domaines démaclés est de 50%. Cette étude a mis en évidence une répartition anisotrope de l'intensité des incommensurabilités dans le plan de base : le signal est beaucoup plus intense suivant a^* que suivant b^* . En revanche, sans avoir la statistique correcte et un taux de démaclage suffisant, les auteurs ont affirmé que leur résultat prouvait l'unidimensionnalité des incommensurabilités suivant a^* et de fait, l'existence de stripes statiques dans le système. De plus, leur étude a été réalisée à une seule énergie de transfert, en dessous de l'énergie de la résonance. Nous n'avons donc aucune information sur l'évolution de cette anisotropie en fonction de l'énergie. Par la suite, une autre équipe a répété une expérience similaire sur un échantillon

de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ ($T_c=59\text{K}$) dont le taux de domaines démaclés est inférieur à 50%[147]. Ils ont également observé une répartition anisotrope de l'intensité magnétique et en ont conclu l'existence de stripes.

Nous avons entrepris une étude en énergie de la géométrie des incommensurabilités dans deux échantillons de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ quasiment parfaitement démaclés dans le régime sous-dopé et au régime optimum.

3.1.2 Etude de DIN dans deux échantillons totalement démaclés de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$ ($T_c=89\text{K}$) et de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$ ($T_c=60\text{K}$)

L'étude du spectre des fluctuations magnétiques dans le système Y123 démaclés est l'objet du travail de thèse de V. Hinkov[135] en collaboration avec notre équipe. J'ai donc pris part aux différentes expériences réalisées sur ce système. Les études de DIN réalisées sur ce système ont donné lieu à une publication[134] : Nature **430**, 650 (2004).

Dans cette partie, nous rapportons l'essentiel des résultats de notre étude par DIN sans rentrer dans le détail de l'analyse qui constituera une partie du manuscrit de V.Hinkov.

Echantillons et conditions expérimentales

Les échantillons de Y123 démaclés :

On démaclé Y123 en appliquant sur l'échantillon une pression uniaxiale, perpendiculairement à l'axe \vec{c} , à une température et une atmosphère qui dépend du régime désiré dans le diagramme de phase. La pression appliquée est de l'ordre de $5 \cdot 10^7 \text{ N.m}^{-2}$. Pour obtenir un échantillon démaclés de Y123 au dopage optimum, on applique la pression uniaxiale à une température d'environ 520° sous atmosphère d'oxygène pendant 4 heures. Naturellement l'échantillon a été préalablement recuit pour obtenir la concentration d'oxygène 6.85. Pour des raisons techniques¹ lors de l'application de cette pression, il n'est possible de démacler parfaitement que des petits échantillons sur une surface d'environ $0.5\text{mm} \times 0.5\text{mm}$. V. Hinkov a procédé au démaclage d'une grande quantité de petits échantillons qui ont ensuite été co-alignés pour produire une mosaïque d'environ 80 échantillons de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$ ($T_c = 89\text{K}$) avec un volume de $\sim 0.2\text{cm}^3$ et de 120 échantillons de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$ ($T_c = 66\text{K}$) avec un volume de $\sim 0.3\text{cm}^3$. La mesure par diffusion des neutrons des pics de Braggs (200) et (020) donne un **taux de démaclage supérieur à 90%**.

Conditions expérimentales :

Nous allons essentiellement détailler les résultats obtenus dans l'échantillon de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$ ($T_c=89\text{K}$). Ceux-ci ont été obtenus sur le spectromètre trois axes 2T au LLB. La résonance dans cet échantillon apparaît à 41meV au vecteur d'onde AF. Afin d'avoir une bonne résolution en énergie, nous avons fixé la valeur finale du vecteur d'onde des neutrons

¹La pression est simplement appliquée par un étau en métal de cuivre. La taille maximum du cristal à démacler est fonction du parallélisme entre les surfaces opposées de cet étau et de la qualité cristalline de l'échantillon(moins il y a de monodomains et plus le démaclage est efficace).

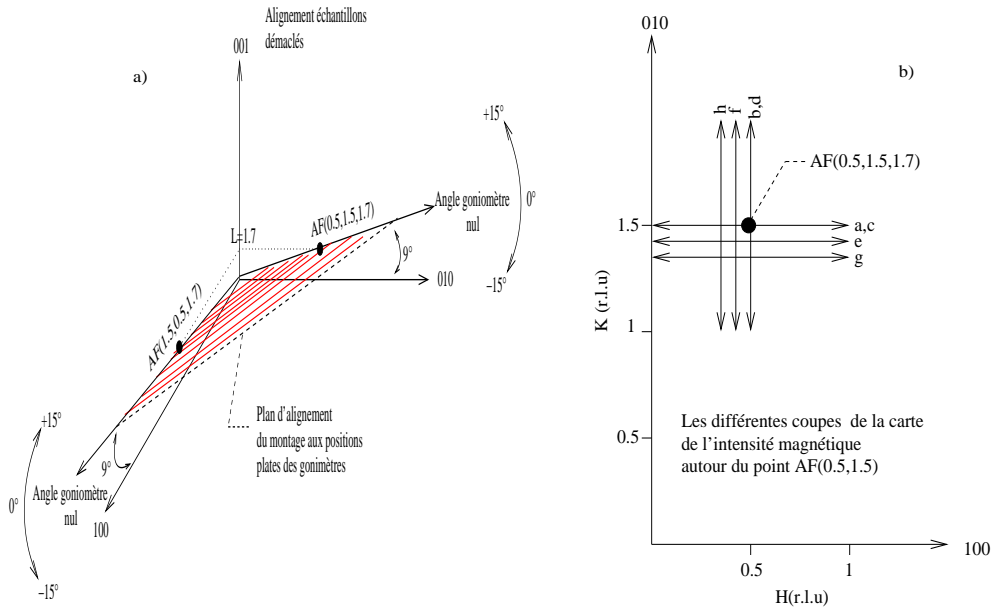


FIG. 3.2 – Sur la figure a), nous montrons le plan d'alignement de l'échantillon, traits rouges, correspondant à la position plate des deux goniomètres (angles nuls) alignés suivant les axes (100) et (010) de l'échantillon. En tournant un des goniomètres de 9° , nous pouvons alors choisir de mesurer soit dans le plan de diffusion $[(H, 0, L), (0, K, 0)]$ autour du vecteur $AF(1.5,0.5,1.7)$ soit dans le plan diffusion $[(H, 0, 0), (0, K, L)]$ autour du vecteur $AF(0.5,1.5,1.7)$. Sur la figure b), nous représentons, dans l'espace réciproque de l'échantillon, les coupes réalisées au cours de l'expérience, Fig.3.3

fixée à $k_f=2.662\text{\AA}^{-1}$ et, pour avoir le maximum de flux, nous avons choisi le monochromateur graphite PG002, voir Chap.2.3.2. Pour cette petite valeur de k_f , les conditions cinématiques, Eq.2.2, nous imposent de travailler autour du point $AF(1.5,0.5)$.

Comme nous voulons étudier la dispersion de la résonance acoustique, nous devons avoir une composante non nulle suivant l'axe \vec{c} . Or, nous désirons faire une carte de l'intensité dans le plan de base, ce qui implique de pouvoir se déplacer suivant les directions (100) et (010). Enfin, pour éliminer tout effet de résolution, nous voulons avoir la possibilité de vérifier si nos observations au point $AF(1.5,0.5)$ sont identiques à celles du point $AF(0.5,1.5)$. Nous ne pouvons donc pas faire la mesure en gardant un plan de diffusion fixe. Nous avons donc utilisé l'option 3D du spectromètre 2T, Chap.2.2.1, afin de faire des mesures en dehors du plan de diffusion, en utilisant les goniomètres de la table échantillon. Sur la Fig.3.2 a), nous représentons en rouge le plan de l'échantillon correspondant à la position plate (angles nuls) des goniomètres. Les axes du cristal, a^* et b^* , sont alignés aux axes des goniomètres mais décalés de 9° suivant l'axe \vec{c} . Ces 9° permettent d'avoir accès à la composante $L=1.7$ r.l.u du vecteur d'onde, suivant l'axe \vec{c} , correspondant au premier maximum de la modulation acoustique. En tournant un des goniomètres, nous pouvons alors choisir de mesurer soit dans le plan de diffusion $[(0, K, 0), (H, 0, L)]$ soit dans le plan diffusion $[(H, 0, L), (0, K, 0)]$. Nous bénéficions de toute l'amplitude d'action des goniomètres ($\sim 15^\circ$) ce qui nous permet d'atteindre les vecteurs d'onde en bord de zone.

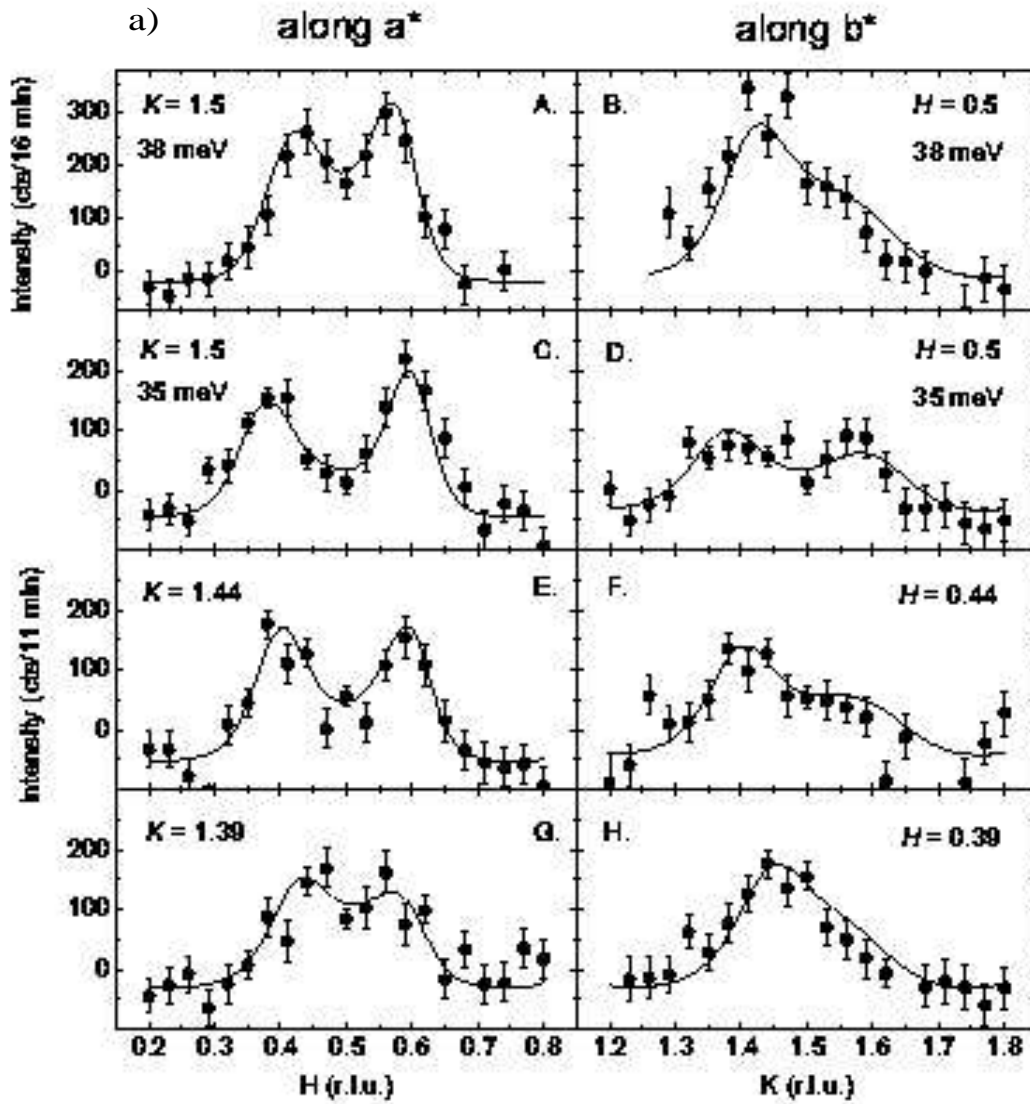


FIG. 3.3 – Résultats de DYN dans l'échantillon à 90% démaclé de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$ ($T_c = 89\text{K}$) (V.Hinkov *et al*[134]) : a) différences $10\text{K}-100\text{K}$ des scans réalisés suivant les directions a^* et b^* à 38meV (A et B) et à 35meV (de C à H). Les différentes coupes de C à H permettent de cartographier l'intensité magnétique dans le plan a^*, b^* et les chemins de ces coupes sont représentés sur la Fig.3.2. Sur un même scan, les différences d'intensité des pics incommensurables de part et d'autre q_{AF} sont liées à des effets de focalisation.

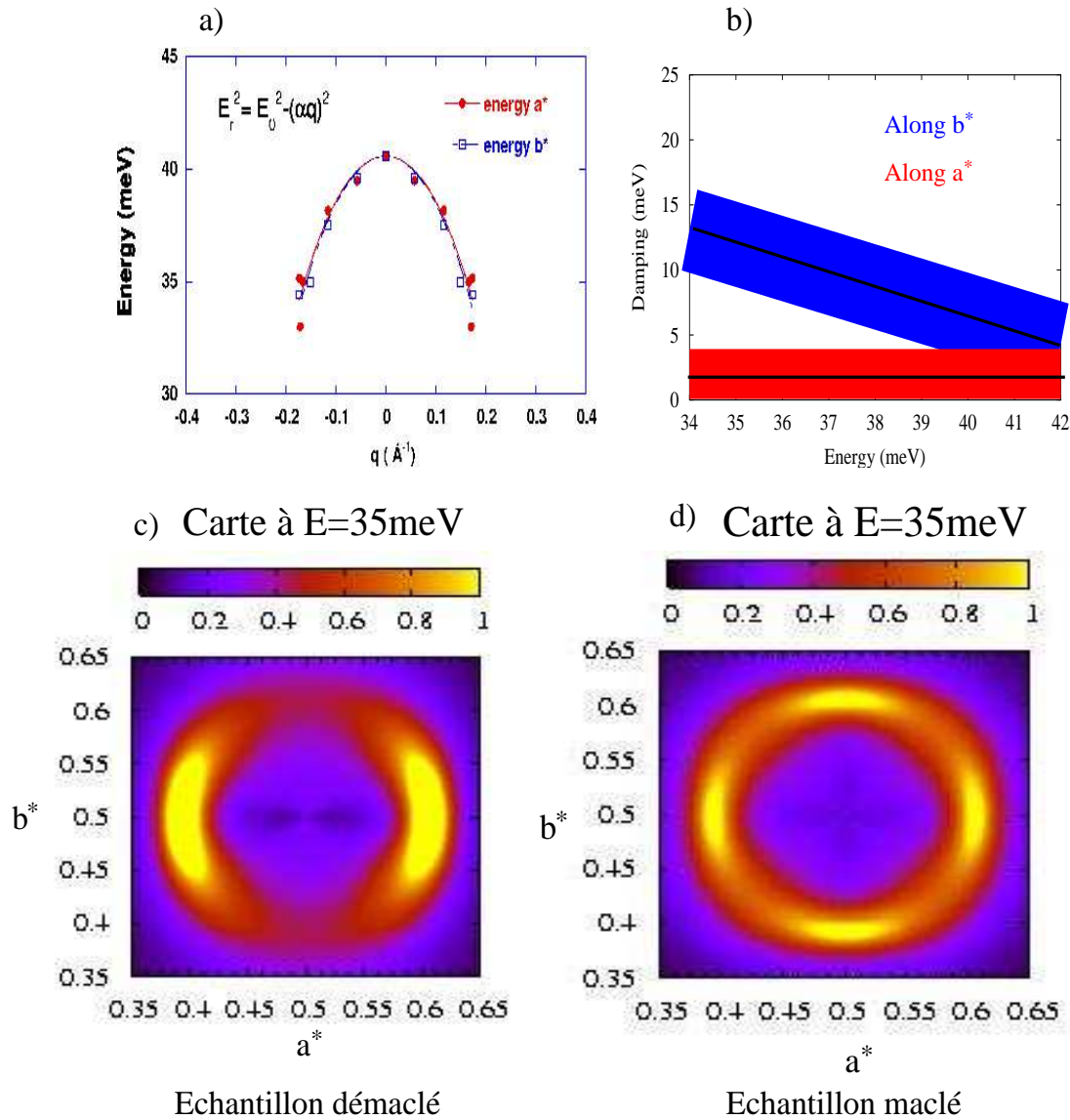


FIG. 3.4 – Modélisation des résultats de DIN dans l'échantillon à 90% démaclé de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$ ($T_c = 89\text{K}$) (V.Hinkov *et al*[134, 135]) : L'ajustement de l'ensemble des résultats en tenant compte de la fonction de résolution expérimentale permet de modéliser le spectre des fluctuations magnétiques. Sur les figures b) c) d) nous représentons les résultats de notre modélisation après ajustement : b) dispersion suivant les axes a^* et b^* , c) évolution en fonction de l'énergie de l'amortissement du signal suivant l'axe a^* et b^* , et d) est une carte couleur du modèle déconvolué à 35meV. Enfin e) représente une carte similaire pour un échantillon totalement maclé déduite par symétrisation de la carte d)

Résultats de DIN sur le système $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$ ($T_c=89\text{K}$)

Dans cet échantillon, la résonance apparaît à 41meV au vecteur d'onde AF et le gap de spin autour de 33meV. Nous avons donc réalisé des coupes en vecteur d'onde suivant les axes a^* et b^* pour des énergies de transfert égales à 33, 35 et 38 meV. Sur la Fig.3.3, nous montrons les différences 10K-100K des coupes le long des axes a^* et b^* pour une énergie de transfert de 38meV, Fig.3.3 A et B, et pour une énergie de transfert de 35meV, Fig.3.3 C et D. Sur la Fig.3.2 b), nous traçons, dans le plan de base, les différentes coupes en vecteur d'onde de la Fig.3.3. Aux deux énergies, nous mesurons, dans cet échantillon presque totalement démaclé, un signal incommensurable suivant les deux axes du cristal. La conclusion est alors immédiate et simple : **la géométrie du spectre magnétique dans l'état supraconducteur de Y123 est intrinsèquement bidimensionnelle**. A 38meV, Fig.3.3 A et B, l'intensité suivant les deux directions est similaire. La déformation du signal suivant b^* , Fig.3.3 B, est liée à un effet de focalisation (voir Fig.2.10). En diminuant l'énergie de transfert, on observe à 35meV, Fig.3.3 C et D, que l'intensité suivant b^* est deux fois plus petite que celle suivant a^* . Enfin à 33meV (non montré) on mesure un petit signal suivant a^* et plus rien suivant b^* . Ceci confirme les résultats antérieurs [109, 147], à savoir l'existence d'une anisotropie de l'intensité magnétique suivant les axes a^* et b^* du cristal. Seulement cette anisotropie n'existe pas à toutes énergies, elle se développe à mesure que l'on diminue l'énergie de transfert entre l'énergie de la résonance et le gap de spin. Ce résultat s'oppose à l'existence de stripes statiques dans le système comme dessiné sur la Fig.3.1.

A 35meV, nous avons réalisé une carte de l'intensité magnétique en utilisant les coupes en vecteur d'onde montrées sur la Fig.3.2 b). Les différences 10K-100K de ces coupes sont reportées sur les Fig.3.3 C, D, E, F, G et H. Nous avons modélisé l'ensemble de nos résultats en utilisant des dispersions et des amortissements différents suivant l'axe a^* et l'axe b^* . Toutes les lignes noires sur la Fig.3.3 correspondent à ce modèle après convolution avec la fonction de résolution instrumentale : i) nous trouvons des dispersions identiques suivant les deux axes, Fig.3.4 a), ii) nous reproduisons l'anisotropie en supposant des comportements en énergie différents de l'amortissement du signal suivant a^* et l'axe b^* , Fig.3.4 b). Le signal sur l'axe a^* est faiblement amorti alors que l'amortissement sur l'axe b^* est petit à l'énergie de la résonance et augmente pour des énergies plus basses. Sur la Fig.3.4 c), nous avons tracé une coupe du modèle à 35meV qui montre bien l'anisotropie du signal suivant a^* et b^* . En symétrisant ce modèle, nous avons reproduit sur la Fig.3.4 d) la même coupe pour un échantillon maclé en accord avec les mesures antérieures [101].

3.1.3 Conclusions

Ainsi, le spectre des excitations magnétiques dans l'état supraconducteur de Y123 est constitué d'un mode dispersif suivant a^* et b^* . La dispersion est centrée à l'énergie de la résonance et au vecteur d'onde AF et se développe vers les basses énergies jusqu'à l'énergie du gap de spin. En dispersant, l'intensité du mode devient anisotrope dans le plan de base et apparaît plus intense suivant a^* que b^* . Nous obtenons des conclusions similaires sur l'échantillon sousdopé de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$ ($T_c = 66\text{K}$) [134, 135].

Ce résultat est incompatible avec l'existence de stripes statiques dans le système, Fig.3.1 c). Cependant le spectre que nous obtenons peut certainement être interprété avec une image plus dynamique des stripes dont la direction pourrait fluctuer [245]. Pour les

approches itinérantes, ce résultat démontre l'existence d'une anisotropie importante dont l'origine reste à préciser : est-ce une anisotropie de la surface de Fermi ? ou est-ce une anisotropie du gap supraconducteur ? ou les deux ? Des expériences de ARPES[261] et Raman[192] montrent des différences importantes (près de 50%) dans l'amplitude du gap entre a^* et b^* dans Y123. On peut rendre compte simplement d'une telle différence en considérant un gap supraconducteur de symétrie $d_{x^2-y^2} + is$ [243, 242]. Seule une expérience d'ARPES [262] dans Y123 indique l'existence d'une anisotropie de la surface de Fermi. Des calculs récents ont été réalisés afin d'inclure un effet d'anisotropie dans les intégrales de saut suivant a^* et l'axe b^* [241]. L'origine de cette anisotropie est sans doute reliée à l'orthorhombicité du composé, mais peut être également causée par une instabilité de la surface de Fermi. Effectivement, une instabilité originale dite de "Pomeranchuk" [239, 240], peut être à l'origine de la brisure de la symétrie tétragonale du plan CuO_2 et donc à l'origine de la déformation du spectre magnétique. Cette instabilité est liée à l'existence de fortes interactions attractives entre les quasiparticules sur des coins opposés de la surface de Fermi, et répulsives entre quasiparticules sur des coins proches voisins de la surface de Fermi. Cette instabilité affecte donc essentiellement les points antinodaux de la surface de Fermi et est, de fait, amplifiée à l'approche de la singularité de Van Hove[239, 240].

3.2 Mesure des excitations à hautes énergies dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$ ($T_c = 89\text{K}$)

Dans ce qui suit nous décrivons les résultats de DIN obtenus sur un échantillon maclé de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$ ($T_c = 89\text{K}$) au voisinage du dopage optimum. Cette étude a permis l'observation du mode résonnant optique et fournit une mesure précise des fluctuations magnétiques localisées au dessus de l'énergie de la résonance dans l'état supraconducteur. Ces résultats ont fait l'objet d'une publication[143] : Phys. Rev. Lett. **91**, 237002 (2004)

3.2.1 Conditions expérimentales

Des expériences préliminaires, réalisées sur le spectromètre 3 axes 2T au LLB dans les conditions optimum de flux, nous ont indiqué l'existence d'un signal dans le canal optique, pour une énergie supérieure à celle de la résonance et d'intensité très faible, à la limite du seuil de détection. Nous avons, par conséquent, continué cette étude sur le spectromètre 3 axes IN8 à Grenoble où le flux, pour cette gamme d'énergie, est environ 4 fois plus important, Fig.2.5. Dans cette expérience, nous nous intéressons à l'évolution du spectre des fluctuations magnétiques à des énergies supérieures de celle de la résonance. Ainsi, afin de bien suivre l'évolution en énergie, nous avons choisi les conditions expérimentales permettant d'obtenir une bonne résolution en énergie.

Nous avons donc utilisé le monochromateur de Cuivre (200) qui a la plus petite distance interréticulaire des trois monochromateurs disponibles sur IN8, Tab.2.1. Le graphite PG (002) a été utilisé comme analyseur et orienté pour sélectionner les neutrons ayant une énergie finale de 35meV ($k_f \sim 4.1\text{\AA}^{-1}$), chap.2.2.1. Un filtre graphite a été placé entre l'échantillon et l'analyseur afin de couper les ordres multiples, Fig.2.8. Nous n'avons mis aucun collimateur sur le trajet des neutrons afin d'avoir le flux maximum.

L'échantillon a été aligné dans le plan $\{(110);(001)\}$. Ceci permet d'avoir accès à des vecteurs d'onde de la forme $Q=(H,H,L)$, où H et L sont les composantes du vecteur \vec{Q} suivant les vecteurs du réseau réciproque $\vec{a}^* = \frac{2\pi}{a}\vec{i}_{100}$, $\vec{b}^* = \frac{2\pi}{a}\vec{j}_{010}$ et $\vec{c}^* = \frac{2\pi}{c}\vec{k}_{001}$ avec $a=b=3.85\text{\AA}$ et $c=11.85\text{\AA}$. Nous disposons alors de 4 variables² de mesure : la composante planaire H, la composante suivant l'axe \vec{c} , L, l'énergie et enfin la température.

Comme expliqué au Chap.2.3.2, Fig.2.14, les conditions de focalisation sont satisfaites pour les valeurs négatives de H. Nous avons donc mesuré autour du point $(-0.5,-0.5,L>0)$.

3.2.2 Description des résultats expérimentaux

Résonance magnétique acoustique et optique

Dans la première partie de cette étude, nous nous sommes d'abord intéressés à l'existence d'un signal magnétique à q_{AF} dans le canal optique.

Sur la figure 3.5, nous montrons les coupes en énergie réalisées au vecteur d'onde AF(-0.5,-0.5,5.2), 3.5 a), et au vecteur d'onde AF(-0.5,-0.5,7), 3.5 b). Nous rappelons que la composante L=5.2, suivant l'axe \vec{c} , correspond à un maximum du facteur de structure

²Dans cette expérience nous n'avons pas réalisé de mesure hors du plan de diffusion, sinon nous disposerions d'une 5ième variables de mesure

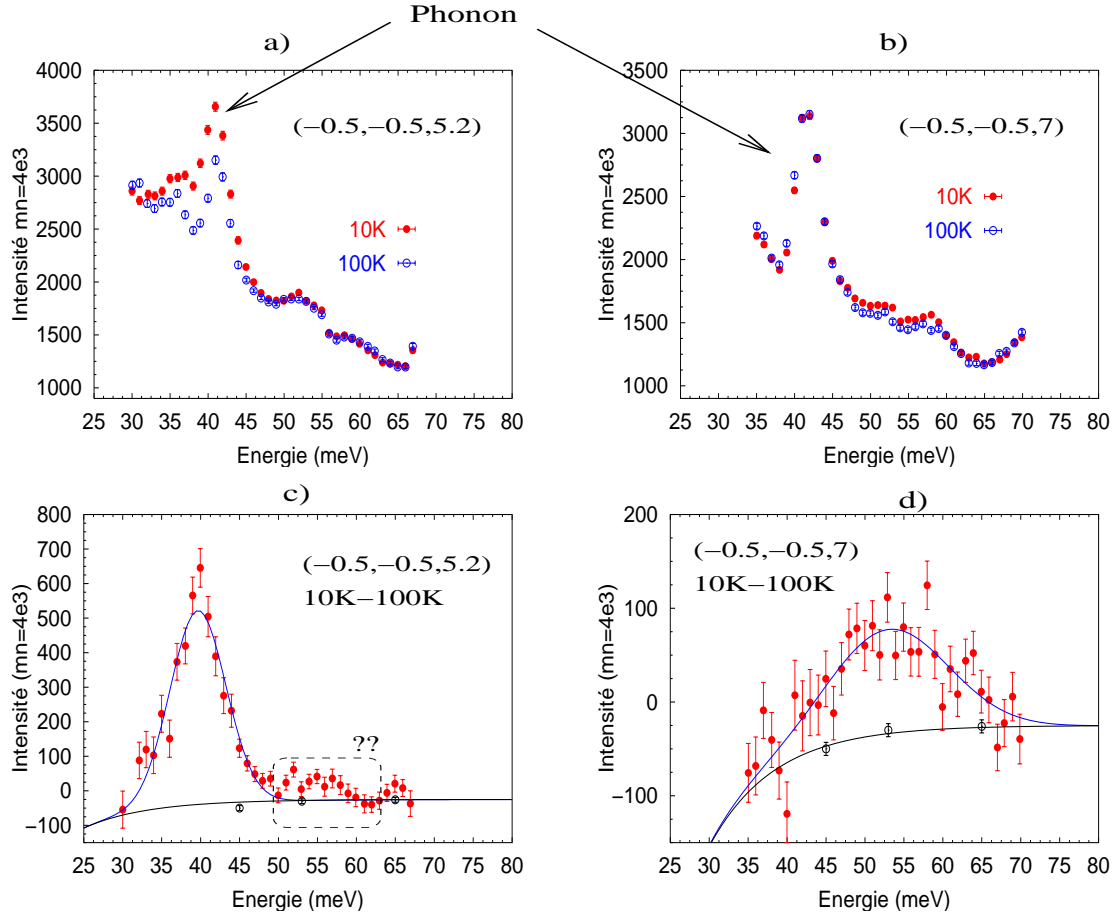


FIG. 3.5 – Sur les figures a) et b), nous reportons les coupes en énergie mesurées à 10K et 100K au point AF(-0.5,-0.5,5.2) et au point AF(-0.5,-0.5,7). Sur les figures c) et d) nous montrons les différences 10K-100K entre ces coupes. Les points du bruit de fond ont été obtenus à partir d'un ajustement gaussien des différences des coupes en vecteur d'onde de la Fig.3.10 a) et de la Fig.3.6 d)

acoustique alors que la composante $L=7$ correspond à un maximum du facteur de structure optique, Eq.1.11. Le pic intense autour de 42meV commun aux deux figures, de part et d'autre de T_c , correspond au phonon optique discuté dans le Chap.2.3.2. Sur les Fig.3.5 c) et d), nous reportons les différences 10K-100K des coupes a) et b). L'intensité de la résonance acoustique, Fig.3.5 c), est maximum à $E_0^{ac}=40\text{meV}$ et présente une largeur intrinsèque (voir Tab.2.2) en énergie à mi-hauteur de $\Delta E^{ac}=6\text{meV}$ en accord avec les mesures déjà publiées sur cet échantillon[101]. Nous avons un rapport signal sur bruit de l'ordre de 10%. La différence 10K-100K dans le canal optique révèle un nouveau signal à plus haute énergie. L'intensité maximum de ce signal apparaît à une énergie de $E_0^{op}=53\text{meV}$, Fig.3.5 d), et est 6 fois plus petite que celle de la résonance acoustique. Cette nouvelle structure, ajustée par une fonction gaussienne, a une largeur intrinsèque de $\Delta E^{op}=14\text{meV}$ à mi-hauteur.

Sur la Fig.3.6, nous reportons les coupes en vecteur d'onde suivant la direction (110) à $E=39\text{meV}$ et en $L=5.2$, Fig.3.6 a), et à $E=53\text{meV}$ et en $L=7$, Fig.3.6 b). Les différences 10K-100K de ces coupes sont montrées sur les Fig.3.6 c) et d). Les deux signaux sont commensurables et centrés à q_{AF} . Outre la différence entre leurs intensités, on observe

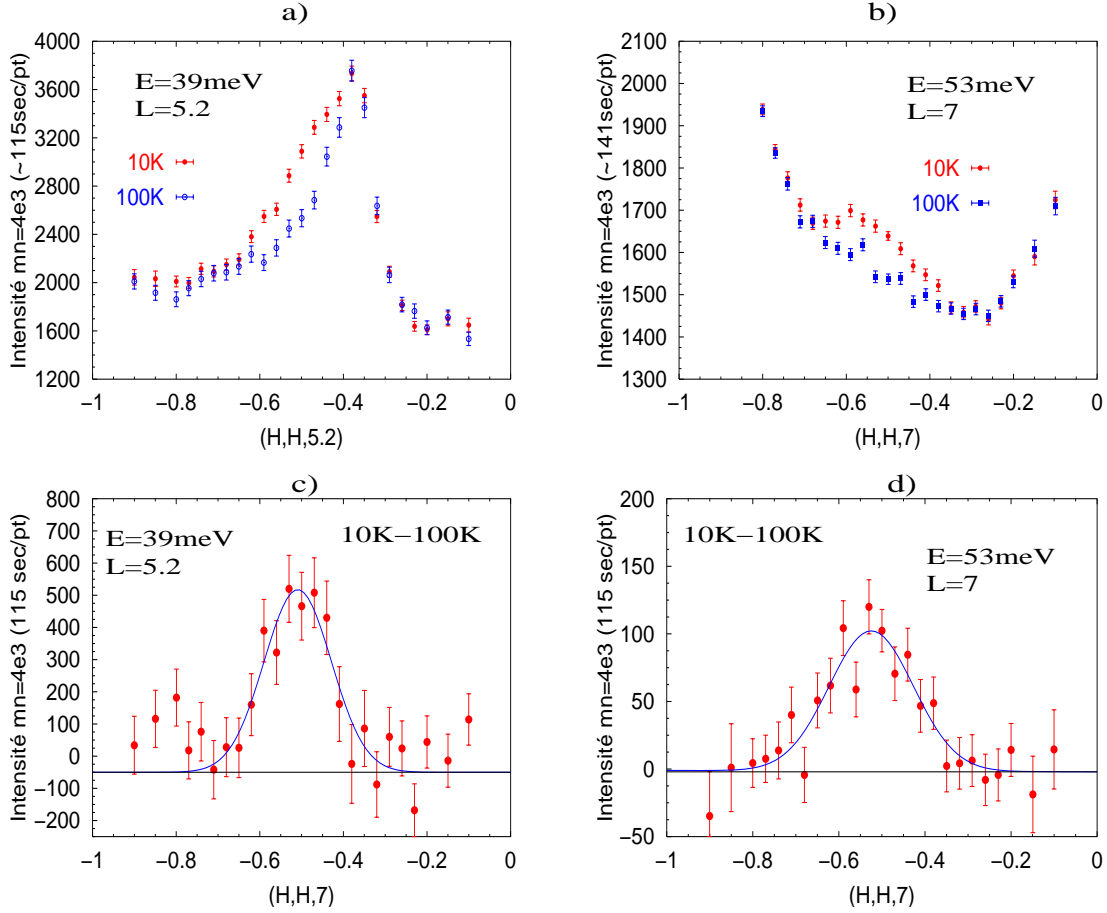


FIG. 3.6 – Sur les figures a) et b) nous montrons les coupes en vecteur d'onde suivant la direction (110) à la position de la résonance acoustique ($L=5.2$, $E=E_0^{ac}$) et à la position du signal optique ($L=7$, $E=E_0^{op}$). Les différences 10K-100K de ces coupes sont montrées sur les figures c), pour l'acoustique, et d), pour l'optique.

également une largeur intrinsèque à mi-hauteur plus importante du signal optique, $\Delta q^{op}=0.46\text{\AA}^{-1}$ par rapport à la résonance acoustique, $\Delta q^{ac}=0.3\text{\AA}^{-1}$.

Pour étudier la symétrie des modes, on réalise des coupes suivant la ligne magnétique (001). Sur la Fig.3.7, nous montrons les différences des coupes entre 12K et 95K le long de la ligne magnétique (001) à $E=E_0^{ac}$, Fig.3.7 a), et à $E=E_0^{op}$, Fig.3.7 b). Les lignes pointillées noires représentent respectivement le facteur de structure acoustique et optique, Eq.1.9. La résonance à E_0^{ac} suit la modulation acoustique en $\sin^2(\pi z_c L)$. En revanche, le signal optique à E_0^{op} est modulé en $\cos^2(\pi z_c L)$. Le signal optique suit donc le facteur de structure optique de la bicouche. Enfin, sur la Fig.3.9, nous montrons le suivi en température de l'intensité optique au point AF(-0.5,-0.5,7) et à une énergie de transfert de 53meV(= E_0^{op}). Nous superposons le suivi en température de la résonance acoustique qui a été mesuré au cours d'une expérience antérieure au point AF(1.5,0.5,1.7)[101]. De la même manière que la résonance acoustique, l'intensité du signal optique disparaît à T_c .

Outre la symétrie, on observe sur les Fig.3.7 a) et b), que les intensités de la résonance acoustique et du signal optique diminuent pour les grandes valeurs de la composante L suivant l'axe \vec{c} . De même, la différence des coupes en $L=7$ et 53meV dans une autre zone de

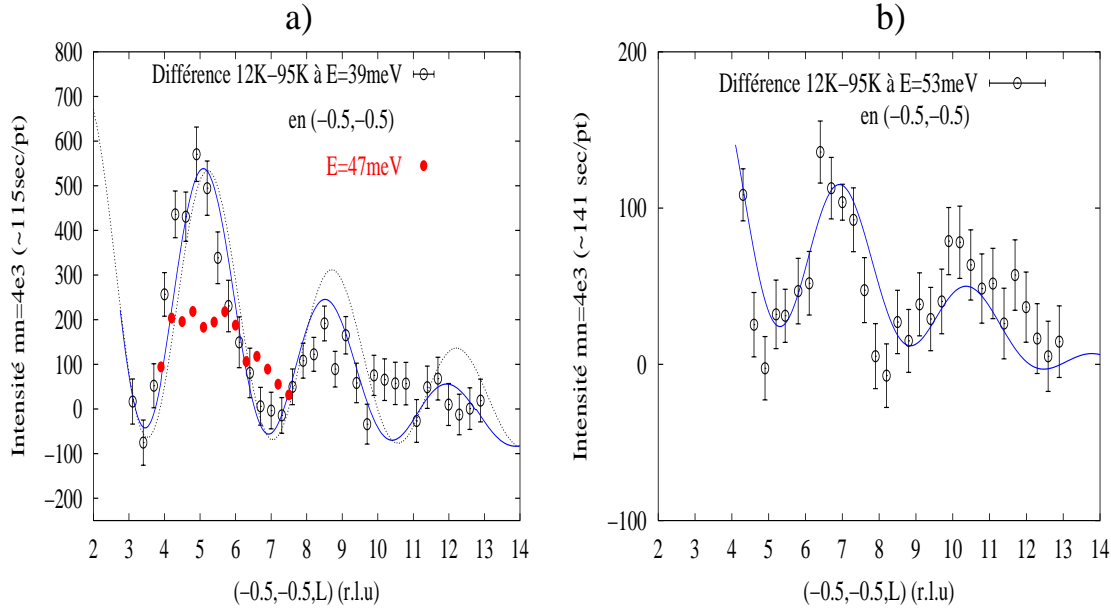


FIG. 3.7 – Différences des coupes mesurées le long de la direction (001) à q_{AF} et à 39meV, a), et 53meV, b). La résonance à 39meV est modulée en $\sin^2(\pi z_c L)$ alors que le signal à 53meV est modulé en $\cos^2(\pi z_c L)$. La ligne noire montre le facteur de structure acoustique théorique. Les écarts observés par rapport à celui-ci pour les grandes valeurs de L peuvent en partie être attribués à la dégradation de la résolution (voir texte). Les points rouges sans barres d'erreur correspondent à la différence des coupes mesurées le long de la direction (001) à q_{AF} et à 47meV

Brillouin autour du vecteur AF(-1.5,-1.5), Fig.3.8, montre que l'intensité du mode optique décroît³ avec la composante planaire, H. Cette diminution de l'intensité avec l'augmentation du vecteur d'onde transféré constitue la preuve de l'origine magnétique du signal (voir la partie 2.1.1).

Conclusion :

Nous avons mis en évidence ci-dessus, l'existence d'un signal magnétique optique qui apparaît dans l'état supraconducteur. Ses comportements en énergie, en vecteur d'onde et en température sont très similaires à ceux de la résonance acoustique. Seul le facteur de structure de ce nouveau mode diffère de celui de la résonance acoustique par un déphasage d'une demi-période. Tous les éléments (facteur de structure, preuve de l'origine magnétique, disparition à T_c) sont rassemblés afin d'affirmer que le signal détecté à $E_0^{op}=53\text{meV}$ dans le canal optique correspond à la résonance magnétique optique. Ce sont les mesures, énumérées ci-dessus, considérées dans leur ensemble, qui nous permettent d'affirmer que le signal mesuré en $L=7$ à 53meV est bien l'équivalent optique de la résonance mesurée dans le passé et désormais baptisée "résonance magnétique acoustique".

³Sur la Fig.3.8 nous montrons un ajustement avec le facteur de forme magnétique de l'ion Cu^{2+} qui n'est pas isotrope dans le plan de base, Fig.2.1. En fait, l'ajustement est meilleur avec un facteur de forme isotrope dans le plan de base

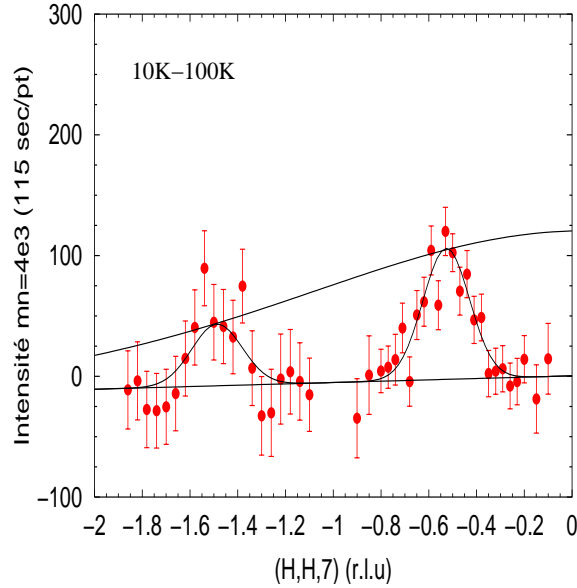


FIG. 3.8 – Différences des coupes mesurées suivant la direction (110) autour des vecteurs AF(-0.5,-0.5,7) et AF(-1.5,-1.5,7) à une énergie de transfert de 53meV. La ligne noire passant par les points correspond à un ajustement du signal par une fonction gaussienne pondéré par le facteur de structure optique. L'enveloppe du facteur de structure, égale au carré du facteur de forme magnétique des ions Cu^{2+} , est également montrée

Fluctuations de haute énergie dans le canal acoustique

Précédemment, nous avons mis en évidence, pour la première fois, l'existence de la résonance magnétique optique à 53meV. Une des grandes difficultés de son observation réside dans le fait que son intensité est 6 fois moins importante que celle de la résonance acoustique. De plus, elle apparaît à 53meV, soit 12meV au-dessus de la résonance acoustique. En gardant le même grossissement, intéressons nous maintenant aux fluctuations magnétiques acoustiques pour des énergies de transfert supérieures à E_0^{ac} (zone délimitée par un rectangle en trait pointillé sur la Fig.3.5). Pour cela nous avons réalisé une série de coupes suivant la ligne magnétique (110) dans le canal acoustique ($L \sim 5.2$) pour différentes valeurs d'énergie transférée entre l'énergie de la résonance et l'énergie maximale accessible, Fig.2.11 (dans ce qui suit nous qualifions de "hautes énergies" cette gamme en énergie du spectre). Sur la Fig.3.10 a) sont reportées les différences 10K-95K de ces coupes. On observe clairement du signal pour des énergies de transfert supérieures à E_0^{ac} qui disperse à mesure que l'on augmente l'énergie transférée jusqu'à 60meV. Le suivi en température de l'intensité sur la position incommensurable (-0.62,-0.62,5.4), à une énergie de transfert de 54meV, Fig.3.9 b), montre que l'intensité de ces structures à hautes énergies disparaît au voisinage de T_c . D'autre part, la différence 10K-100K des coupes en vecteur d'onde suivant l'axe \vec{z} , sur la même position incommensurable, Fig.3.11, montre que l'intensité décroît à grand vecteur d'onde confirmant ainsi l'origine magnétique de ces structures incommensurables. Toutes les coupes de la Fig.3.10 a) ont été ajustées par deux fonctions gaussiennes centrées en $(-0.5 \pm \delta, -0.5 \pm \delta, 0)$. Les positions des incommensurabilités obtenues d'après ces ajustements sont reportées sur la Fig.3.10 b). Sur la même figure nous reportons les positions des incommensurabilités de basses énergies déterminées

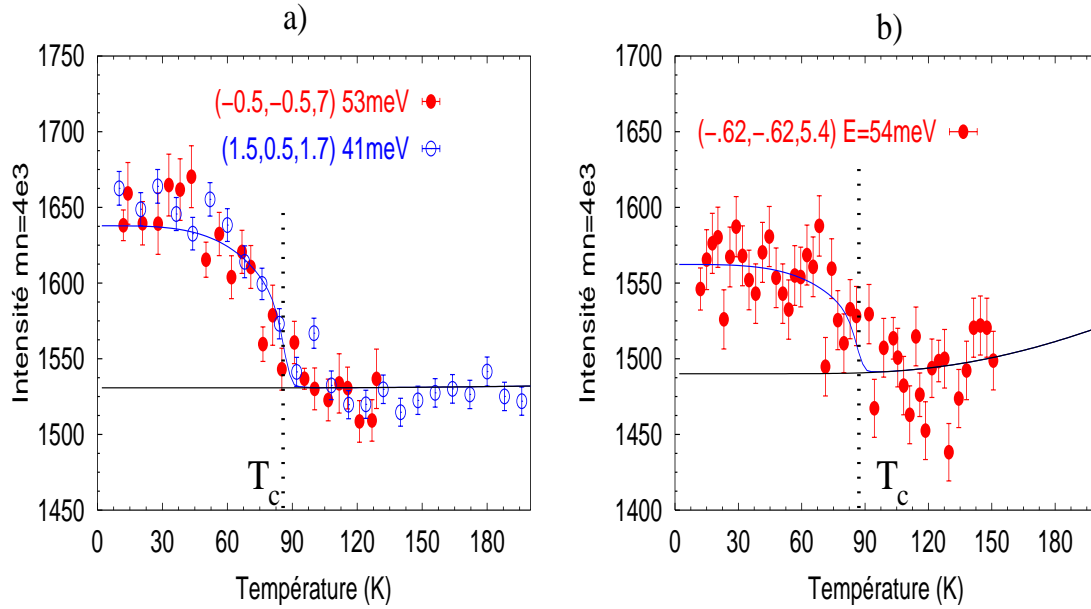


FIG. 3.9 – Sur le graphique de gauche, nous superposons les dépendances en température à q_{AF} de la résonance acoustique mesurée antérieurement[101], et de la résonance optique. Le graphique de droite, montre la dépendance en température d'un point incommensurable du spectre des fluctuations magnétiques au-dessus de E_0^{ac}

antérieurement[101]. On observe une forme en X du spectre acoustique (X-shape). Nous avons déjà discuté de formes en X du spectre des fluctuations magnétiques dans le régime sousdopé dans le chapitre d'introduction[118, 148], Chap.1.5.2. Mais ces formes sont essentiellement présentes dans l'état normal ou, tout du moins, nous avons montré que seule la partie basses énergies, $E < E_0^{ac}$, est sensible à l'apparition de la supraconductivité. La forme en X que nous détectons ici, apparaît dans l'état supraconducteur et pour un échantillon qui est loin de l'état isolant AF. Ces structures incommensurables ont initialement été mis en évidence dans un échantillon de $YBCO_{6.95}$ ($T_c = 93K$)[150].

Une anomalie dans le spectre acoustique à 49meV :

En regardant plus attentivement les différences des coupes en vecteur d'onde de la Fig.3.10 a), nous remarquons une diminution soudaine de l'intensité du signal incommensurable à 49meV. En reportant la valeur moyenne de l'intensité magnétique aux positions des pics incommensurables de chaque coupe en fonction de l'énergie, on met clairement en évidence un creux du signal autour de 49meV, Fig.3.5 c). L'apparition de ce creux divise le spectre acoustique en deux parties et on se pose la question de la continuité du spectre de part et d'autre de 49meV. Nous avons alors étudié la symétrie (acoustique/optique) du signal de part et d'autre de 49meV.

Analyse du spectre entre $E_0^{ac} < E < 49meV$:

Nous disposons d'une unique différence à 45meV, Fig.3.10 a). L'analyse de cette différence par un ajustement gaussien fait apparaître deux pics incommensurables de part et d'autre du vecteur d'onde AF avec un profil d'intensité asymétrique, Fig.3.10 b).

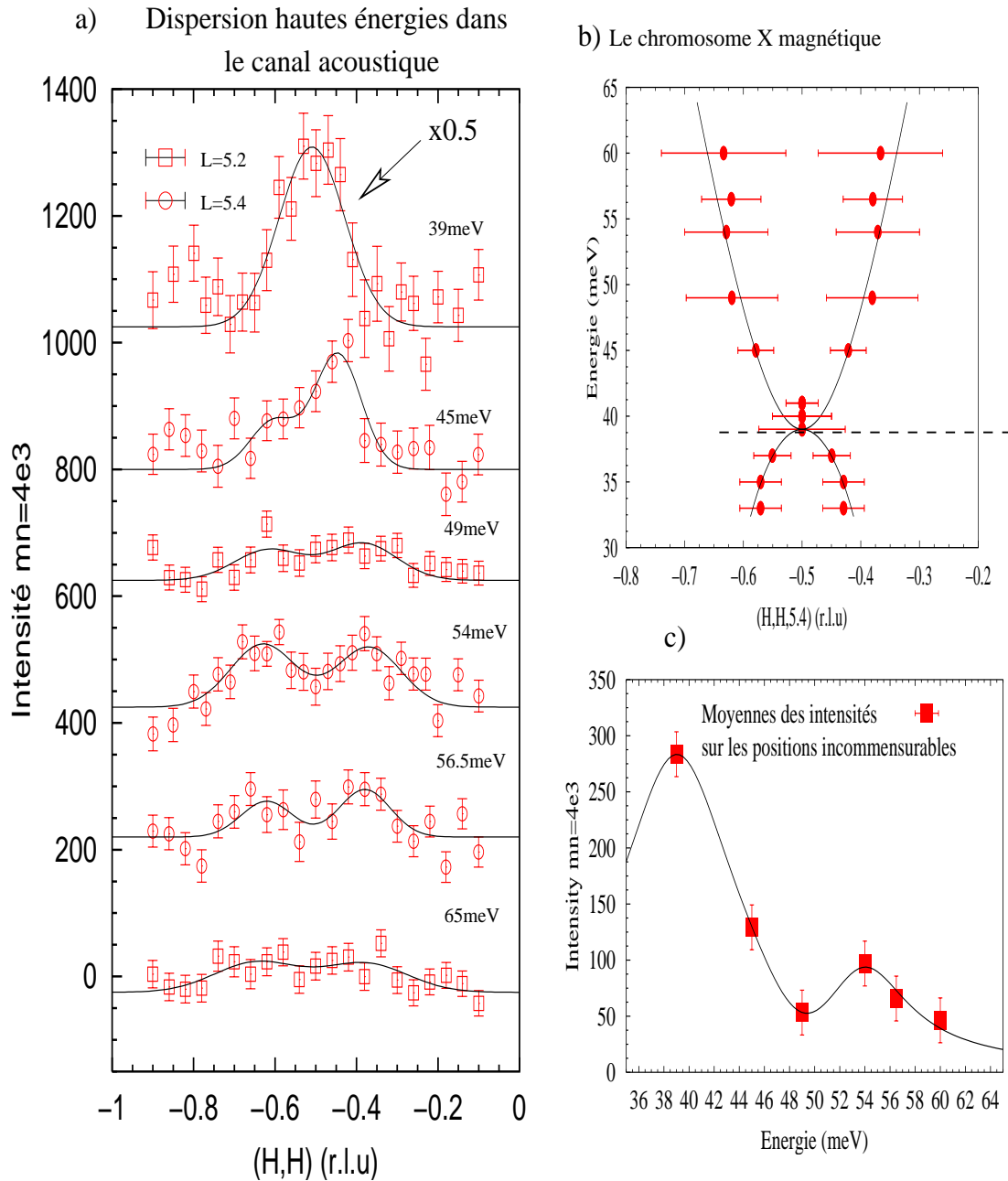


FIG. 3.10 – Sur la figure a), nous reportons les différences 10K-100K des coupes réalisées le long de la direction $(H,H,L=5.2$ ou $5.4)$ pour différentes valeurs d'énergie transférée indiquées à droite de la figure. Pour chaque énergie, les lignes noires représentent un ajustement par deux fonctions gaussiennes centrées en $(-0.5 \pm \delta, -0.5 \pm \delta, 0)$. Les positions incommensurables déduites de cet ajustement sont reportées sur la figure b). Nous avons également reporté sur la figure b) les positions incommensurables obtenus lors d'une précédente mesure[101]. Les barres d'erreur correspondent aux largeurs intrinsèques à mi-hauteur de chaque pic. Sur la figure c), nous montrons l'évolution en énergie de la moyenne des intensités des pics aux positions incommensurables

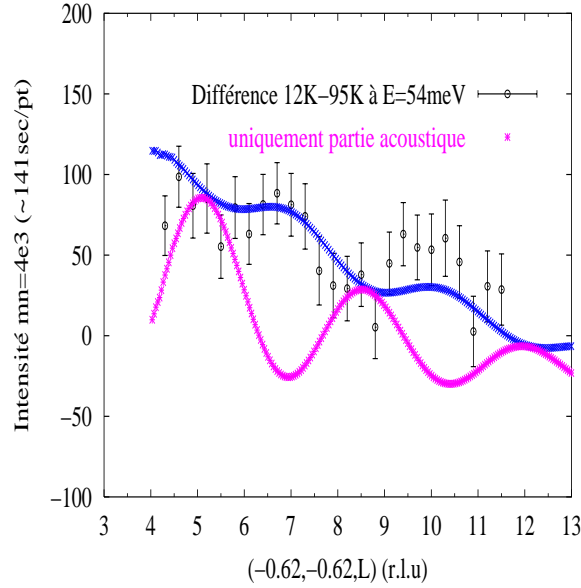


FIG. 3.11 – Différence 10K-100K des coupes réalisées le long de la direction (001) sur le point incommensurable $(-0.62, -0.62, 5.4)$ à $E=54\text{meV}$. La ligne bleue résulte de la convolution entre la section efficace, Eq.3.6, et la fonction de résolution instrumentale. La ligne violette donne le résultat de la convolution avec uniquement la partie acoustique de la section efficace, Eq.3.6.

Il est important de savoir si ces deux pics sont bien réels ou si l'intensité de la différence à 45meV ne résulte pas d'un simple effet de résolution. Nous représentons la situation sur la Fig.3.12 a) où nous montrons l'ellipsoïde de résolution⁴ et la dispersion de la résonance vers les basses énergies[101]. Nous avons simulé la coupe à 45meV , en réalisant la convolution de cet ellipsoïde de résolution avec : i) un spectre acoustique constitué uniquement de la dispersion de la résonance vers les basses énergies et ii) un spectre acoustique ayant une forme en "X" où l'intensité et la dispersion de la branche vers les hautes énergies a été ajustée de tel sorte à reproduire l'observation. Nous reportons le résultat de cette simulation⁵ sur la Fig.3.12 b). On observe que l'intensité mesurée à 45meV ne peut pas être reproduit en considérant uniquement la dispersion vers les basses énergies de la résonance, ligne violette. Nous devons introduire une dispersion vers les hautes énergies pour reproduire l'intensité observée et l'effet d'asymétrie aux petites valeurs de vecteur d'onde (voir Fig.2.10). Le résultat de la simulation avec les deux branches de dispersion, ligne bleue, permet de reproduire la différence à 45meV . Nous confirmons ainsi l'existence d'une dispersion vers les hautes énergies entre E_0^{ac} et 49meV .

La seconde étape est de savoir si cette nouvelle branche de dispersion a le même facteur de structure que la résonance acoustique. Pour cela, nous avons réalisé des coupes à 10K et 100K du signal à 47meV suivant l'axe \vec{c} au vecteur d'onde AF. Nous montrons la différence $10\text{K}-100\text{K}$ de ces coupes sur la Fig.3.7 (points rouges). On observe que l'intensité suit la première modulation du facteur de structure acoustique.

Analyse du spectre pour $E > 49\text{meV}$:

⁴La détermination de l'ellipsoïde de résolution pour cette expérience a été discuté au Chap.2.3.2

⁵Le produit de convolution a été préalablement calibré sur la coupe à 39meV de la résonance acoustique

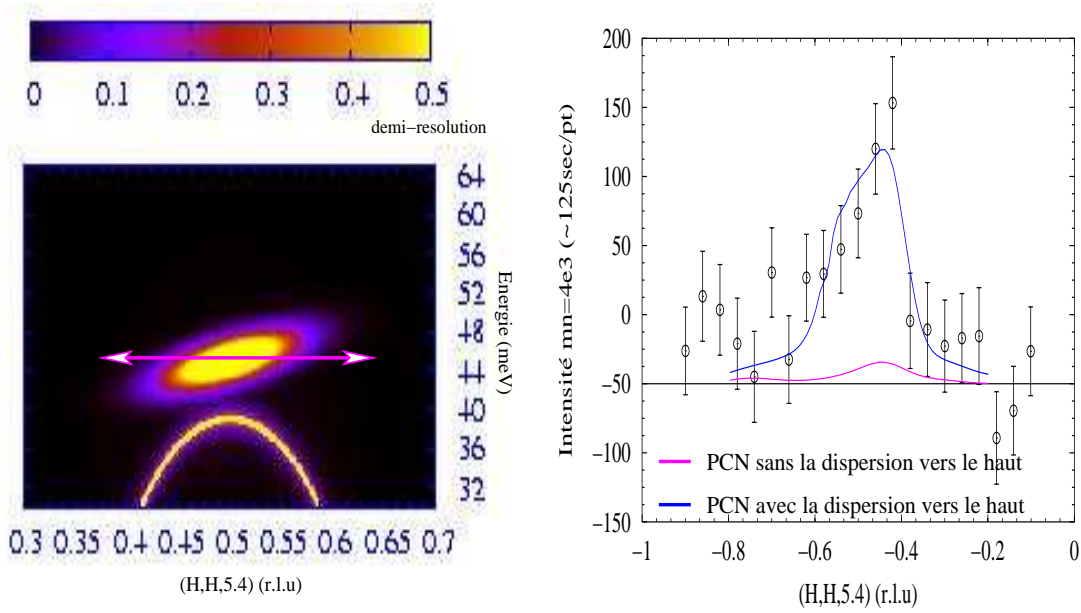


FIG. 3.12 – La simulation numérique du scan à 45meV avec uniquement la dispersion vers le bas, courbe violette sur la figure de droite, montre que l'intensité obtenue est bien trop faible. Ceci met en évidence la présence d'un signal au-dessus de E_0^c . Comme le simule la figure de gauche où est représenté l'ellipsoïde de résolution intégré suivant l'axe \vec{c} à 45meV, ce résultat était prévisible étant donné la bonne résolution en énergie.

Les différences des coupes en vecteur d'onde sont clairement incommensurables dans cette partie du spectre, Fig.3.10 a). Il nous reste à trouver le facteur de structure de ces signaux magnétiques. Nous avons donc étudié la symétrie des incommensurabilités au-dessus de 49meV en réalisant des coupes le long de la direction (001). Sur la Fig.3.11, nous montrons la différence des coupes suivant \vec{c} sur la position incommensurable (-0.62,-0.62) à 54meV. L'analyse de cette différence n'est pas évidente. En effet, à cette même énergie nous avons démontré ci-dessus, qu'il existait un mode optique commensurable aux valeurs optiques de la composante verticale L, Fig.3.7. Pour faire un ajustement cohérent nous avons considéré l'ensemble des données des Fig.3.7 b), Fig.3.10 a)(à 54meV), Fig.3.11, Fig.3.5. Nous avons ajusté simultanément cet ensemble de données en prenant en compte les contraintes de résolution instrumentale et en supposant une dépendance en L des incommensurabilités à 53meV de la forme :

$$f^2(Q)(\gamma \sin^2(\pi zl) + (1 - \gamma) \cos^2(\pi zl))$$

Le résultat de l'ajustement fournit un $\gamma=0.8\pm 0.15$. Le facteur de structure des incommensurabilités à $E>49$ meV a donc essentiellement un caractère acoustique. Tout semble donc indiquer que l'ensemble du spectre à haute énergie n'est constitué que d'une seule branche de dispersion interrompue localement à 49meV.

Conclusion

En résumé, ces résultats mettent en évidence : i) la présence d'une résonance magnétique dans le canal optique d'intensité plus faible et localisée à plus haute énergie par rapport

à la résonance magnétique acoustique et ii) l'existence d'une dispersion vers les hautes énergies ($> E_0^{ac}$) dans le canal acoustique dont l'intensité, qui diminue à mesure que l'énergie transférée augmente, présente une anomalie à 49meV.

3.2.3 Modélisation de la section efficace magnétique

Dans ce qui suit, nous montrons une modélisation possible de la section efficace de diffusion à partir des résultats précédents en tenant compte de la résolution instrumentale. La méthode consiste à supposer un modèle pour décrire la section efficace associée au spectre magnétique et à réaliser numériquement la convolution à 4 dimensions. La comparaison avec la mesure permet d'ajuster les paramètres du modèle.

Modélisation du spectre acoustique

En accord avec des mesures similaires[150], notre étude de DIN démontre que le spectre magnétique dans l'état supraconducteur de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ est constitué de deux branches de dispersion de part et d'autre de E_0^{ac} dont une, la plus intense, disperse vers les basses énergies alors que l'autre disperse vers les hautes énergies. Le spectre magnétique ne peut plus être modélisé par un unique pic centré au vecteur d'onde AF. Notamment, le traitement séparé de la dépendance en énergie et en vecteur d'onde de la partie imaginaire de la susceptibilité n'est plus valide.

Dans ce qui suit, nous reprenons une modélisation qui prend en compte la forme en "X" développé par[150]. Nous supposons des dispersions isotropes dans le plan a^* et b^* paramétrisées par :

$$E_r(\vec{q}) = \sqrt{(E_0^{ac})^2 + (\alpha_{\mp}(\vec{q} - \vec{q}_{AF}))^2} \quad (3.1)$$

où E_0 est l'énergie du maximum de l'intensité magnétique au vecteur d'onde AF et α_- (respec. α_+) est le coefficient de dispersion pour le mode dispersif vers les basses (respec. vers les hautes) énergies.

La relation de dispersion, Eq.3.1, est une première approximation pour décrire la branche de dispersion vers les basses énergies. En effet, nous venons de montrer (voir partie 3.1) que la dispersion de la branche vers les basses énergies est non isotrope dans le plan de base[134, 101, 112, 119, 125]. En revanche les mesures récentes à hautes énergies[150], indiquent une distribution isotrope de l'intensité magnétique dans le plan de base de la branche de dispersion vers les hautes énergies. Ainsi, l'Eq.3.1 est donc un bon point de départ pour notre modélisation. Nous choisissons comme fonction d'ajustement l'oscillateur harmonique amorti :

$$\chi''(\vec{q}, \omega)_{ac} = \chi(q_{AF}, 0) E_r^2(\vec{q}) \frac{\gamma\omega}{(\omega^2 - E_r^2(\vec{q}))^2 + (\gamma\omega)^2} \quad (3.2)$$

où $\chi(q_{AF}, 0)$, exprimée en $\mu_B^2 \cdot \text{eV}^{-1}$, correspond à la contribution du mode résonnant au vecteur d'onde AF à la susceptibilité statique.

1) *Spectre acoustique pour $E < E_0^{ac}$:*

La partie basse énergie du spectre magnétique dans le canal acoustique, $E < E_0^{ac}$, a déjà été caractérisée au cours d'expériences antérieures sur le même échantillon[101].

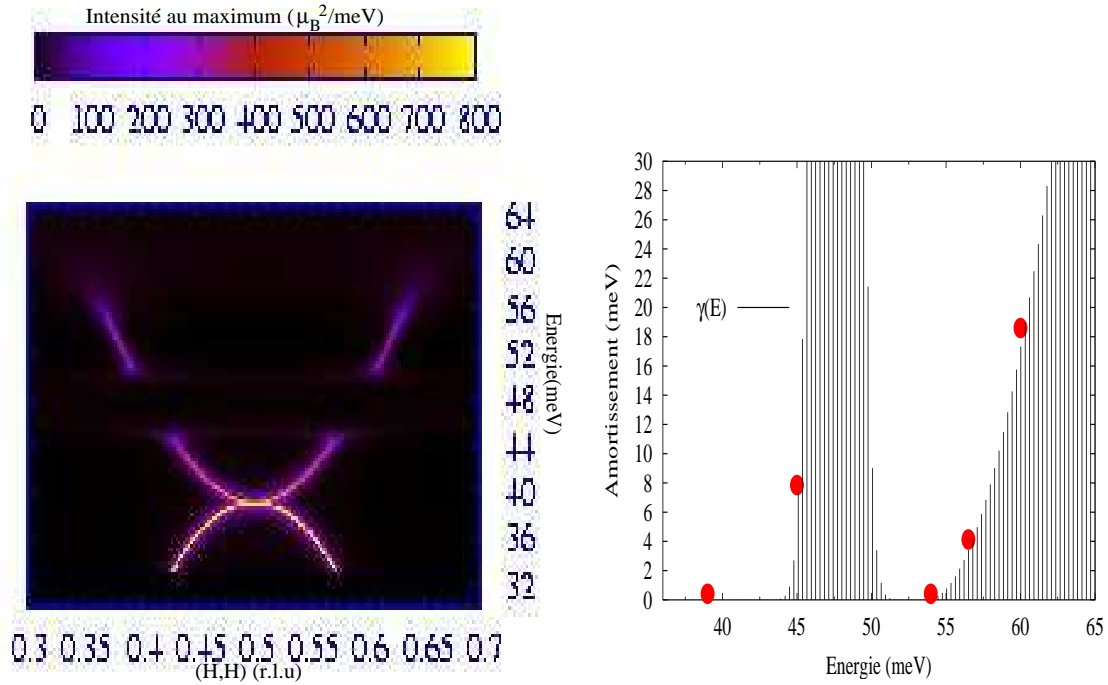


FIG. 3.13 – Modélisation du spectre acoustique : la figure de gauche est une carte de la partie imaginaire de la susceptibilité dans le plan $\{(110); \text{énergie}\}$ en $L=5.4$, Eq.3.4. La partie haute énergie est décrite par une unique branche de dispersion dont l'amortissement change avec l'énergie comme représenté sur la figure de droite. L'anomalie à 49meV est modélisée en supportant par un fort amortissement entre 45meV et 50meV.

Nous utilisons la même description, à savoir, un coefficient $\alpha_- = 125 \text{meV} \cdot \text{\AA}^{-1}$ et un faible amortissement en énergie, $\gamma \sim 0.5 \text{meV}$.

2) Spectre acoustique pour $E > E_0^{ac}$:

Nous proposons de modéliser la partie hautes énergies du spectre, $E < E_0^{ac}$, par une unique⁶ branche de dispersion acoustique qui démarre de E_0^{ac} et qui est sur amortie ponctuellement autour de 49 meV.

L'ajustement sur l'ensemble des positions des pics incommensurables observés pour $E > E_0^{ac}$ fournit une dispersion vers le haut de type :

$$E_r(\vec{q}) = \sqrt{(E_0^{ac})^2 + (\alpha_+(\vec{q} - \vec{q}_{AF}))^2} \quad (3.3)$$

avec $\alpha_+ = 145 \text{meV} \cdot \text{\AA}$.

Pour reproduire les intensités des pics, nous avons introduit une dépendance en énergie de l'amortissement, $\gamma \rightarrow \gamma(\omega)$. La procédure d'ajustement, consiste à calibrer l'intensité du modèle, donc le terme $\chi(q_{AF}, 0)$ de l'Eq.3.2, à partir de la simulation du signal à 39meV. Puis nous simulons chaque coupe en vecteur d'onde de la Fig.3.10 a), en gardant

⁶Nous montrons l'ajustement avec une unique branche de dispersion afin de limiter le nombre de paramètres. Cependant l'ajustement est meilleur si on utilise des dispersions différentes de part et d'autre de 49meV

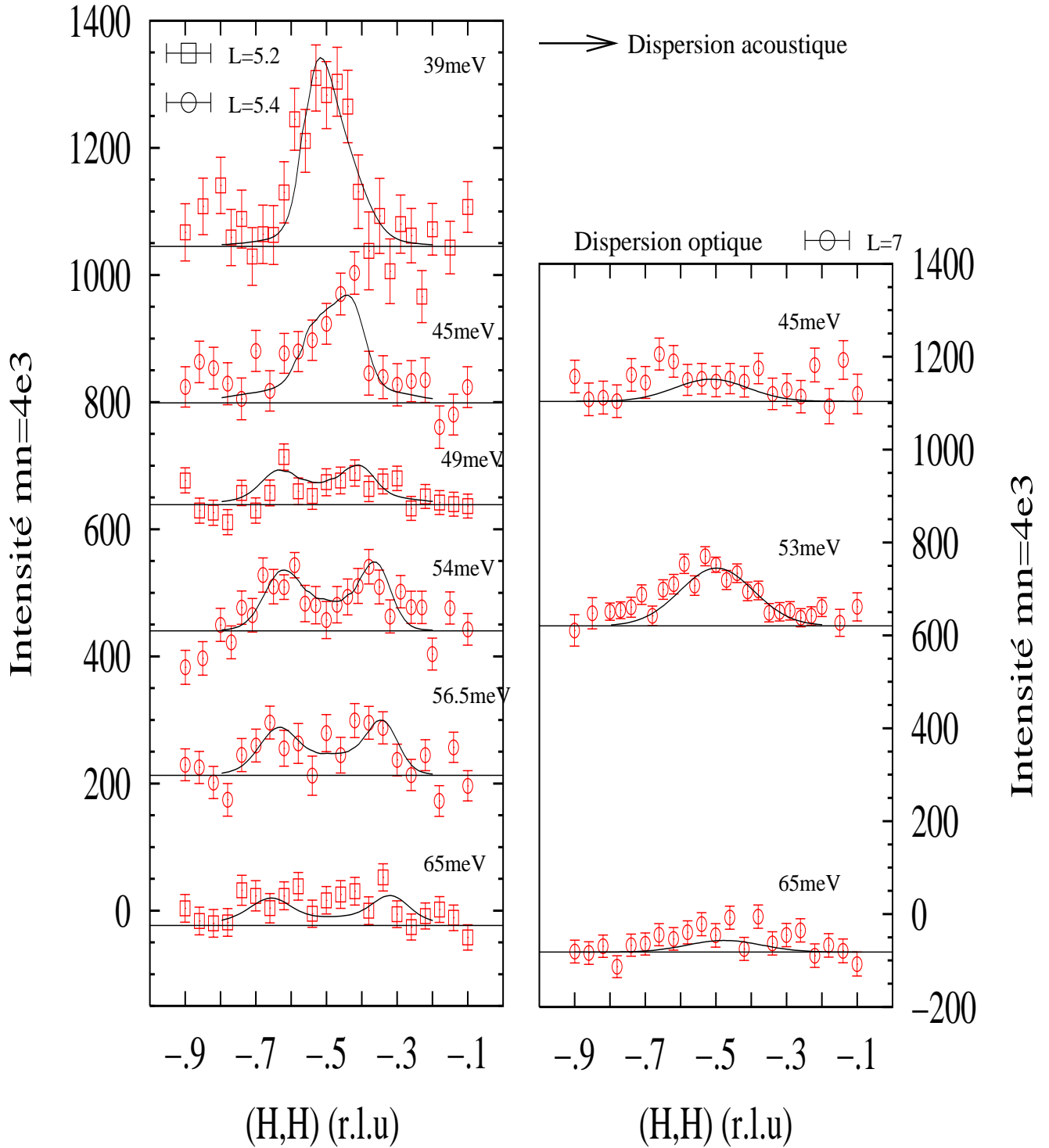


FIG. 3.14 – Sur les spectres acoustique et optique présentés sur les Fig.3.10 et Fig.3.6 d), nous reportons le résultat de la convolution entre la section efficace totale, Eq.3.6, et la fonction de résolution instrumentale. Chaque ligne noire sur cette figure résulte de ce produit de convolution.

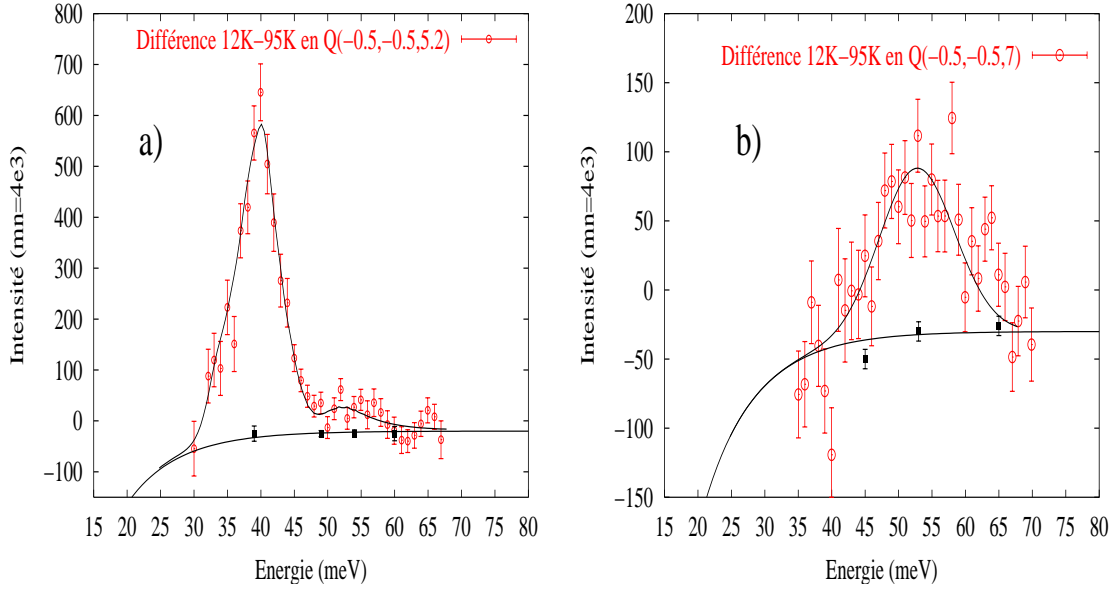


FIG. 3.15 – Nous montrons sur les figures a) et b) les différences des coupes en énergie des figures 3.5 c) et d). Nous reportons sur ces différences le résultat de la convolution entre la section efficace total, Eq.3.6, et la fonction de résolution instrumentale.

constant le préfacteur $\chi(q_{AF}, 0)$, et nous ajustons l'amortissement γ de façon à trouver les bonnes intensités. Enfin, nous réalisons un ajustement des valeurs de γ par des fonctions polynomiales et une fonction lorentzienne, pour reproduire le fort amortissement à 49meV. On obtiens la loi $\gamma(\omega)$, Fig.3.13 b). Cette loi est alors ré-injectée dans le programme et ré-ajustée par simulation des coupes en vecteur d'onde de la Fig.3.10.

Les choix des valeurs de α_+ et γ sont très restreint par les contraintes de résolution expérimentales. Globalement, les positions des pics incommensurables ainsi que le degré d'asymétrie des différences imposent une erreur sur la valeur de α_+ de $\pm 15\text{meV}\cdot\text{\AA}$. Enfin les largeurs et intensités mesurées fournissent la dépendance de l'amortissement en fonction de l'énergie avec une erreur d'environ 1meV sur chaque coupe. Nous représentons sur la Fig.3.13 a) l'ensemble du spectre acoustique qui inclut les dispersions vers les hautes et basses[101] énergies. L'anomalie à 49meV dans la branche de dispersion vers les hautes énergies est reproduit en supposant un amortissement très fort entre 45meV et 50meV, Fig.3.13 b). De même, la diminution de l'intensité du signal à plus haute énergie est reproduite en faisant croître l'amortissement.

3) Spectre acoustique total :

La partie imaginaire de la susceptibilité dans le canal acoustique s'écrit :

$$\frac{1}{E_r^2(\vec{q})} \frac{\chi''(\vec{q}, \omega)_{ac}}{\chi(q_{AF}, 0)_{ac}} = \left(\frac{\gamma\omega}{(\omega^2 - (E_r^{ac})^2 + (\alpha_-(q - q_{AF}))^2 + (\gamma\omega)^2)} \right) + r \times \left(\frac{\gamma\omega\omega}{(\omega^2 - (E_r^{ac})^2 - (\alpha_+(q - q_{AF}))^2 + (\gamma\omega)^2)} \right) \quad (3.4)$$

où $r = 0.78$, $\chi(q_{AF}, 0)_{ac} = 9.96 \mu_B^2 \cdot \text{eV}^{-1}$, $\alpha_+ = 145\text{meV}\cdot\text{\AA}$ et $\alpha_- = 125\text{meV}\cdot\text{\AA}$ sont les

valeurs des paramètres du modèle obtenues après ajustement.

Partie optique

Bien que tous les éléments expérimentaux soient réunis pour affirmer l'existence de la résonance magnétique optique, nous verrons dans les chapitres suivant, sur un échantillon d'Y123 dopé au calcium, que l'analyse du spectre optique est assez complexe. Toute la difficulté est de comprendre l'élargissement en vecteur d'onde du mode par rapport à la résonance acoustique (près de 25 % d'écart sur les largeurs). Nous n'avons pas réussi à modéliser la section efficace optique à l'image de l'acoustique car il est bien difficile, avec de simples dispersions⁷, de reproduire à la fois la largeur en énergie et la largeur en vecteur d'onde.

Nous avons analysé le signal dans le canal optique en utilisant une fonction gaussienne en vecteur d'onde et en énergie. C'est à dire que nous ne prenons pas compte de l'existence de dispersions dans le canal optique et nous traitons la dépendance en énergie du signal indépendamment de sa dépendance en vecteur d'onde. Nous avons modélisé la partie imaginaire de la susceptibilité magnétique par :

$$\chi''(\vec{q}, \omega)_{op} = \chi(\vec{q}_{AF}, 0)_{op} \exp -4 \ln 2 \left(\frac{(\omega - E_0^{op})^2}{\Delta_\omega^2} + \frac{|\vec{q} - \vec{q}_{AF}|^2}{\Delta_q^2} \right) \quad (3.5)$$

Cette fonction d'essai ne respecte pas la causalité, l'emploi du terme "susceptibilité" n'est pas rigoureusement correct. Après ajustement, nous obtenons $\Delta_q=0.55\text{\AA}^{-1}$, $\Delta_\omega=12.4\text{meV}$ et $\chi(\vec{q}_{AF}, 0)_{op} \sim 42\mu_B^2.\text{eV}^{-1}$. En réalisant une analyse similaire du spectre acoustique, nous obtenons $\Delta_q=0.3\text{\AA}^{-1}$, $\Delta_\omega=6.2\text{meV}$ et $\chi(\vec{q}_{AF}, 0) \sim 280\mu_B^2.\text{eV}^{-1}$.

Section efficace totale

La section efficace est la somme des susceptibilités acoustique, Eq.3.4, et optique, Eq.3.5, pondérées par leur facteur de structure respectif. Elle s'écrit donc :

$$\frac{1}{0.0461f(\vec{q})^2} \left(\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E} \right)^\dagger = \sin^2(\pi z_c L) \chi''(\vec{q}, \omega)_{ac} + \cos^2(\pi z_c L) \chi''(\vec{q}, \omega)_{op} \quad (3.6)$$

L'ensemble des courbes sur les Fig.3.14, Fig.3.7 et Fig.3.11 résultent du produit de convolution numérique à 4 dimensions de la section efficace totale avec la fonction de résolution instrumentale.

Il est important de noter que cette modélisation n'est pas unique. Nous avons supposé ici que l'ensemble de la partie haute énergie n'est constitué que d'une unique courbe de dispersion et nous avons optimisé les paramètres d'amortissement et de courbure des dispersions pour reproduire au mieux les mesures. Cependant, il serait tout à fait possible d'envisager une modélisation différente pour les parties du spectre de part et d'autre de 49meV.

⁷Nous ne supposons que des amortissement raisonnable entre 5meV et 10meV

Dans le programme de convolution numérique, nous avons implémenté la section efficace totale définie par l'Eq.3.6. Nous avons alors pu simuler l'ensemble des résultats expérimentaux. Sur les Fig.3.14, Fig.3.15, Fig.3.7 et Fig.3.11 les lignes noires correspondent aux résultats de ces simulations.

Nous reproduisons bien les différentes coupes en vecteur d'onde dans le canal acoustique, Fig.3.14. Seule la forme asymétrique de la coupe à 45meV pose problème.

Pour les coupes suivant l'axe (001), Fig.3.7 a) et b), l'ajustement est correct sur la première modulation. Sur la deuxième modulation de la résonance acoustique, l'intensité des différences à grand vecteur d'onde ne suit pas le facteur de structure acoustique théorique (traits pointillés), elle chute plus rapidement. La convolution permet en partie de gommer les petits écarts. En fait, comme nous le montrons sur le Fig.2.15 a), la largeur en énergie et la surface de l'ellipsoïde dans le plan de base augmente avec la composante L. Ainsi, l'ellipsoïde de résolution se dilate à mesure que L augmente. L'effet sur un signal tel que la résonance acoustique, qui est une excitation localisée en (\vec{q}, ω) , consiste en une diminution de l'intensité mesurée car l'ellipsoïde est moins focalisé sur le point (\vec{q}, ω) . En revanche, pour un signal comme le mode optique, qui est large en vecteur d'onde et en énergie, cet effet de dilatation augmente l'intensité car on intègre alors le signal sur une plus grande surface. On comprend ainsi les écarts par rapport aux facteurs de structure théoriques.

Enfin sur la Fig.3.11, nous montrons le résultat de la simulation des coupes suivant la direction (001) au vecteur d'onde $(-0.62, -0.62)$ à $E=54\text{meV}$. Nous superposons également le résultat du calcul numérique uniquement avec la partie acoustique de la section efficace totale, Eq.3.6. L'espace vide entre les deux courbes provient de la contamination de la résonance optique. On reproduit correctement l'observation aux petites valeurs de vecteur d'onde jusqu'à $L=9$, au delà, l'intensité calculée est sous estimée.

3.2.4 Mise en absolu de l'intensité magnétique

La mise en absolu de l'intensité magnétique de la résonance a été initiée en 1996 par Fong *et al*[127]. Le but était alors de trouver un moyen d'extraire une quantité comparable d'un système à un autre, d'une mesure à une autre et d'une technique à une autre (voir la comparaison RMN/neutron dans [105]). La résonance était analysée comme un objet unique ayant une expansion intrinsèque en énergie et vecteur d'onde. La découverte des dispersions de part et d'autre de E_0^{ac} montre qu'une partie des largeurs observées peut être attribuée à des effets d'intégration de l'ellipsoïde de résolution sur ces courbes de dispersion. Le poids spectral, qui était alors attribué à la résonance, correspond en fait à la somme du vrai poids spectral de la résonance à (\vec{q}_{AF}, E_0^{ac}) plus des poids spectraux des excitations élémentaires appartenant à la portion de la courbe de dispersion contenue dans le volume de la résolution. Or, la taille et l'orientation relative de l'ellipsoïde et des courbes de dispersion changent d'une expérience à une autre. Par conséquent l'évaluation du poids spectral de la résonance peut être variable si on ne tient pas compte de l'intégration des dispersions sur le volume de l'ellipsoïde.

Grâce à la modélisation de la section efficace réalisée dans la partie précédente, nous pouvons actualiser la mise en absolu de l'intensité magnétique. En effet, nous pouvons

définir et calculer le poids spectral de chaque point (\vec{q}, ω) sur la courbe de dispersion. Au cours de cette thèse, nous avons développé et systématisé cette méthode d'analyse du spectre magnétique.

Technique de mise en absolu

Pour calibrer l'intensité du faisceau de neutrons, nous devons disposer d'un signal dont l'expression théorique de la section efficace de diffusion est connue. Usuellement, nous utilisons la diffusion incohérente d'une masse connue de vanadium⁸. Le rapport des masses entre l'échantillon et le vanadium permet alors de calibrer l'intensité d'un signal de l'échantillon. Dans cette méthode, une erreur importante peut être commise si on ne connaît pas la masse de toutes les phases chimiques parasites, telle la phase verte, présentes dans l'échantillon.

La solution à ce problème est de calibrer le faisceau de neutrons sur un signal, de section efficace connue, de l'échantillon lui-même. Ainsi, après avoir modélisé la dynamique de réseau d'Y123, on dérive une expression du facteur de structure d'un phonon optique à 42.5meV[127]. Dans le Chap.2.3.2, nous avons exprimé la section efficace de ce phonon. Nous avons montré que ce phonon était non seulement un test pour les programmes de résolution mais également un moyen de calibrer le flux du spectromètre.

Définitions

Dans ce qui suit nous définissons les termes de poids spectral à q_{AF} , susceptibilité locale et poids spectral total qui sont utilisés couramment dans la littérature[127, 106, 142, 141, 108, 116] pour caractériser le poids spectral des fluctuations magnétiques dans l'état normal et dans l'état supraconducteur des cuprates. Ces définitions seront utilisées tout au long du manuscrit.

1) Intensité magnétique au maximum du mode à q_{AF}

Nous nommons, $\chi''(q_{AF}, \omega_0)$ l'intensité magnétique au maximum des mode à E_0^{ac} et E_0^{op} au vecteur d'onde AF, exprimée en $\mu_B^2.eV^{-1}$. Pour la résonance acoustique en $\omega = E_0^{ac}$, d'après 3.4 :

$$\chi''(q_{AF}, E_0^{ac})_{ac} = (1 + r)\chi(q_{AF}, 0)\frac{E_0^{ac}}{\gamma} \quad (3.7)$$

La valeur $\chi''(q_{AF}, E_0^{ac})$ dépend du choix de l'amortissement, γ . Celui-ci est ajusté afin de reproduire les résultats, néanmoins, dans le cas d'un mode fin en énergie comme la résonance acoustique, nous ne pouvons pas obtenir une valeur unique de γ . En effet, le résultat de la convolution pour des valeurs de γ plus petites que la taille de la résolution en énergie donnent des ajustements identiques. Ainsi, seule la valeur de $\chi''(q_{AF}, \omega_0)$ associée à son γ est pertinente pour la modélisation théorique. Nous trouvons ainsi dans la littérature des chiffres nettement différents en fonction des conditions expérimentales : ainsi, on trouve des valeurs autour de $400\mu_B^2.eV^{-1}.fu^{-1}$ [101] et des de l'ordre de $1000\mu_B^2.eV^{-1}.fu^{-1}$ [147]

⁸la section efficace du vanadium est $\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E} = 0.131 \frac{\gamma}{\omega^2 + \gamma^2}$

quand la résolution est meilleur.

Les grandeurs que nous définissons ci-dessous sont indépendante de la valeur γ .

2) Poids spectral à q_{AF}

Le poids spectral du mode au vecteur d'onde AF est calculé par l'intégration en énergie de la partie imaginaire de la susceptibilité prise à \vec{q}_{AF} :

$$W(\vec{q}_{AF}) = \int_0^{+\infty} \chi''(\vec{q}_{AF}, \omega) d\omega \quad (3.8)$$

Il s'exprime en $\mu_B^2 \cdot \text{fu}^{-1}$.

3) Susceptibilité locale

La susceptibilité locale, $\chi''_{2D}(\omega)$ (voir Chap.1.5.1 pour un exemple dans le cas des ondes de spins dans YBCO₆), est obtenue en effectuant une intégration bidimensionnelle en vecteur d'onde de la partie imaginaire de la susceptibilité magnétique, puis en normalisant à la surface de la zone de Brillouin :

$$\chi''_{2D} = \frac{\int_0^{2\pi/a} \int_0^{2\pi/a} \chi''(\vec{q}, \omega) dq_{2D}}{\int_0^{2\pi/a} \int_0^{2\pi/a} dq_{2D}} \quad (3.9)$$

Ces unités sont des $\mu_B^2 \cdot \text{eV}^{-1} \cdot \text{fu}^{-1}$. Dans Y123, $a \sim b \sim 3.85 \text{Å}$, la surface de la zone de Brillouin est égale à $4\pi^2/a^2 \sim 2.66 \text{Å}^{-2}$

4) Poids spectral

Le poids spectral total, nommé poids spectral, est obtenu en effectuant une intégration bidimensionnelle en vecteur d'onde et en énergie de la partie imaginaire de la susceptibilité magnétique, puis en normalisant à la surface de la première zone de Brillouin :

$$\langle W \rangle = \frac{\int_0^\infty \int_0^{2\pi/a} \int_0^{2\pi/a} \chi''(\vec{q}, \omega) dq_{2D} d\omega}{\int_0^{2\pi/a} \int_0^{2\pi/a} dq_{2D}} \quad (3.10)$$

Il s'exprime en $\mu_B^2 \cdot \text{fu}^{-1}$.

Applications

1) Application restreinte à cette expérience

Nous donnons dans le Tab.3.1, les valeurs numériques de ces différentes grandeurs obtenues à partir de notre modélisation, Eq.3.6. Pour le spectre acoustique, nous comparons ces valeurs à celles obtenues par une modélisation utilisant une forme gaussienne centrée de type Eq.3.5 (approximation pic unique utilisé pour le spectre optique). On observe que le poids spectral obtenu par la modélisation, Eq.3.6, est plus important que celui déduit de la modélisation par une fonction gaussienne. Ce qui est trivial car, avec la fonction gaussienne, nous prenons en compte uniquement l'intensité au vecteur d'onde AF. L'intensité des signaux incommensurables à hautes énergies, les plus éloignés du vecteur d'onde AF,

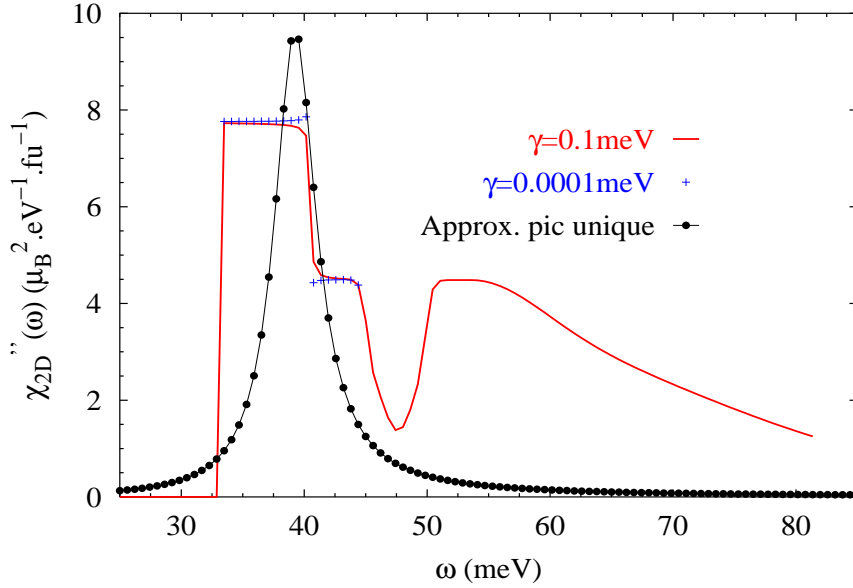


FIG. 3.16 – Evolution en fonction de l'énergie de la susceptibilité locale dans le canal acoustique. Pour les excitations principales autour E_0^{ac} dont l'amortissement ne peut être déterminé, nous montrons $\chi''_{2D}(\omega)$ pour deux valeurs de γ . La différence entre la courbe rouge et points bleus montre que le résultat n'est quasiment pas dépendant de la valeur de γ .

n'est pas prise en compte.

Sur la Fig.3.16 courbe rouge, nous reportons l'évolution de la susceptibilité locale obtenue à partir de notre modèle du spectre acoustique Fig.3.14 et Eq.3.4. La courbe noire correspond à la susceptibilité locale obtenue à partir d'une modélisation avec une unique gaussienne (approximation du pic unique). La susceptibilité locale est constituée de deux plateaux de part et d'autre de l'énergie de la résonance en accord avec d'autres mesures[150]. Nous trouvons un rapport d'intensité de 1.7 entre ces deux plateaux alors que Reznik et al.[150] trouve un rapport de l'ordre de 1.5. La présence de ces plateaux est liée au choix de la fonction d'essai. Il rappelle le comportement des ondes de spins dans le composé ordonné AF, YBCO₆, partie 1.5.1 : le signal disperse dans le plan de base en conservant son intensité. Il n'y a aucun élément théorique qui justifie cette conservation. Nous avons calculé la susceptibilité locale pour un amortissement bien inférieur à notre résolution, croix bleues sur la Fig.3.16. On observe pas de différence entre un $\gamma = 0.1 \text{ meV}$ et un $\gamma = 0.001 \text{ meV}$. Ceci montre que cette quantité, contrairement à $\chi''(q_{AF}, \omega_0)$, est indépendante des petites valeurs de l'amortissement et donc de la qualité de la résolution. Enfin, on voit nettement l'effet de l'anomalie à 49 meV qui est de creuser ponctuellement la susceptibilité locale. Ce creux n'avait pas été identifié dans la mesure de [150]. On peut néanmoins observer sur les résultats de cette référence, figure 2.a, qu'il apparaît plus d'intensité à 55 meV que à 51 meV. A 51 meV, la ligne de modélisation passe au dessus des points expérimentaux alors que à 55 meV la ligne passe en-dessous.

2) Poids spectral de la résonance, $\langle W \rangle$, dans les différents cuprates

Du régime sousdopé au régime optimum, le poids spectral total dans Y123 est, dans les

Spectre	Modèle Eq.3.6			Approx. pic unique
	$\chi''(\vec{q}, \omega)_{ac,-}$	$\chi''(\vec{q}, \omega)_{ac,+}$	total	$\chi''(\vec{q}, \omega)_{ac}$
acoustique				
$W(q_{AF}) (\mu_B^2 \cdot \text{fu}^{-1})$	0.6	0.4	1	1.8
$\chi''_{2D} (\mu_B^2 \cdot \text{eV}^{-1} \cdot \text{fu}^{-1})$	7.8	5.8	13.6	10.
$\langle W \rangle (\mu_B^2 \cdot \text{fu}^{-1})$	0.054	0.04*	0.094	0.07
Spectre optique	Approx. pic unique, Eq.3.5			
$W(q_{AF}) (\mu_B^2) \cdot \text{fu}^{-1}$				0.35
$\chi''_{2D} (\mu_B^2 \cdot \text{eV}^{-1} \cdot \text{fu}^{-1})$				4.5
$\langle W \rangle (\mu_B^2 \cdot \text{fu}^{-1})$				0.03

* chiffre obtenu par l'intégration numérique en énergie entre 40.5 et 65meV de la formule 3.4

TAB. 3.1 –

barres d'erreurs ($\sim 30\%$) présenté comme étant constant et égale à $\langle W \rangle = 0.05 \mu_B^2 \cdot \text{fu}^{-1}$ [106, 128].

Dans la Tab.3.2, nous reportons les valeurs du poids spectral de la résonance dans différentes familles de cuprates au voisinage du dopage optimum. Dans le composé monoplan Tl2201, nous devons multiplier la valeur du poids spectral par 4 afin de pouvoir le comparer avec le poids spectral de la résonance dans Y123, voir la Fig.2.2. On trouve alors $0.08 \mu_B^2 / f.u.$, ce qui est plus grand que le poids de la résonance acoustique seul. Cependant, si on considère maintenant le poids de la résonance magnétique optique, que l'on estime être d'après notre mesure sur le Y123 ($x_0=6.85$), environ 40% du poids spectral de la résonance acoustique, nous trouvons que le poids spectral des modes résonnants acoustique et optique dans YBCO₇ est de $\langle W \rangle_{ac+op} = 0.05 + 0.02 = 0.07 \mu_B^2 / f.u$ qui est plus proche du poids spectral du Tl₂Ba₂CuO_{6+ δ} .

Dans le cadre de l'approximation du pic unique, le poids spectral à q_{AF} du mode acoustique est environ 5 fois plus grand que celui du mode optique quasiment en accord avec le rapport des intensités au maximum des pics. En revanche, du fait de la largeur en vecteur d'onde du mode optique, on observe seulement un rapport de 2 entre les poids spectraux totaux des deux modes.

Dans le composé Bi2212, le poids spectral est environ 4.5 fois plus grand que le poids spectral dans Y123. En fait, cette grande différence révèle toute la difficulté de cette mise en absolu. Une partie peut être intrinsèque et une autre peut provenir d'erreurs d'estimation. En effet, dans Bi2212 on observe une résonance 2 fois plus large en vecteur d'onde et

Cuprates	2 plans	CuO ₂	1 plan CuO ₂
	YBCO	BSCO	Tl-2201
Energie de la résonance(meV)	41	43	47
$E_r/k_B T_c$	5.1	5.4	6
Δ_q (Å ⁻¹)	0.25	0.52	0.23
$\int d\omega Im\chi^{res}(q_{AF}, \omega)(\mu_B^2)$	1.6	1.9	0.7
$\int d\omega d\vec{q}_{2D} Im\chi^{res}(q_{AF}, \omega)(\mu_B^2/f.u)$	0.043	0.23	0.02

TAB. 3.2 – Poids spectral de la résonance dans différentes familles de cuprates au dopage optimum[106]

plus large en énergie[130], donc nécessairement le poids spectral déduit d'un ajustement gaussien est très grand. Mais cette différence peut être en partie comprise, si par exemple la dispersion de la résonance dans Bi2212 est moins bien définie (plus amortie) que dans Y123. A ce moment, le signal au vecteur d'onde AF est nécessairement plus important. Si nous regardons le poids spectral que nous avons trouvé dans Y123, avec notre modélisation qui tient compte de la dispersion de la résonance, nous réduisons l'écart à un facteur 2.4. Ce facteur 2.4 reste important mais d'autres effets entrent en jeu.

En conclusion, notre modélisation permet de prendre en compte les intensités des incommensurabilités de hautes et basses énergies dans le calcul du poids spectral total acoustique. Nous trouvons ainsi une augmentation de 35% du poids spectral acoustique. D'autre part, l'observation du mode optique, augmente d'environ 40% le poids des fluctuations magnétiques total dans Y123. L'ordre de grandeur du poids spectral total dans Y123 serait donc plus proche de $0.07\mu_B^2/f.u$, et donc, similaire à celui dans le composée Tl2201, soit 5% du poids spectral des ondes de spins dans YBCO₆.

3.3 Evolution de la résonance en fonction du nombre de plans CuO_2 au dopage optimum

Les expériences de DIN ont mis en évidence l'existence de la résonance magnétique, dans tous les cuprates à 1 ou 2 plans CuO_2 , ayant une $T_c^{opt} \sim 90\text{K}$, voir Chap.1.5.3. Mais il n'existe pas encore de mesures sur un système à 3 plans CuO_2 .

Ci-dessous, nous montrons les premiers résultats de DIN sur le système $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$ (Bi2223) à trois plans CuO_2 ($T_c=110\text{K}$). Cette étude constitue une partie du travail post-doctoral de **S. Bayrakci** [152] en collaboration avec notre équipe. J'ai donc pris part aux différentes expériences réalisées sur ce système.

3.3.1 La résonance dans un composé à 3 plans CuO_2

Le pseudo-monocristal de Bi2223

Le pseudo-monocristal de Bi2223 est constitué d'environ 40 échantillons et a une $T_c=110\text{K}\pm 10\text{K}$. Ce pseudo-monocristal n'a pas été évident à réaliser. Tout d'abord, il est très difficile de faire croître des cristaux de Bi2223 sans avoir des phases d'inclusion du composé biplan Bi2212. Les échantillons de Bi2223 ont été synthétisés au MPI Stuttgart par **B. Liang**[88]. Une première sélection des échantillons a été réalisée à partir des mesures de susceptibilité magnétique. En fonction, de la proportion de phase Bi2212 par rapport à la phase Bi2223, la courbe de susceptibilité (zero field cooled) présente une marche plus ou moins importante. Puis une deuxième sélection a été réalisée par des mesure de l'axe \vec{c} en neutron. Au total, sur environ 400 monocristaux seuls 40 ont été retenus pour l'étude de DIN. Mais une difficulté supplémentaire s'ajoute au cours du processus d'alignement des échantillons. En effet, la qualité de surface des échantillons étant mauvaise, il est difficile de faire un alignement par la méthode Laue, rayon X, voir la partie 2.5.2. S. Bayrakci a donc utilisé un spectromètre neutron 2 axes pour l'alignement.

Résultats de DIN sur le système Bi2223

Sur la Fig.3.17 a), nous reportons les différences 10K-125K des coupes en énergie au vecteur d'onde AF(1.5,0.5,5.6). Cette différence, ajustée par une fonction gaussienne, est maximum à $E_0=42\text{meV}\sim 4k_B T_c$ et a une largeur intrinsèque en énergie de $\Delta E_0=12\text{meV}$. Les différences 10K-125K des coupes en vecteur d'onde pour une énergie de transfert de 42meV, Fig.3.17 b), montre que le signal est commensurable, centré au vecteur d'onde AF avec une largeur intrinsèque en vecteur d'onde de $\Delta_q = 0.54\text{\AA}^{-1}$. En fonction de la température, Fig.3.17 c) (points rouges), l'intensité de ce signal, au vecteur d'onde AF(1.5,0.5,5.6) et à une énergie de transfert de 42.2meV, rejoint le niveau de bruit de fond⁹(points bleus) au dessus de T_c . Enfin, les différences des coupes 10K-125K suivant l'axe \vec{c} au vecteur d'onde AF(1.5,0.5) à une énergie de transfert de 42.2meV montre que l'intensité du signal décroît aux grandes valeurs de vecteur d'onde prouvant son origine magnétique.

L'ensemble de ces résultats prouvent l'existence de la résonance magnétique dans ce composé à 3 plans CuO_2 , à une énergie $E_0^{ac}=42\text{meV}$ et centrée au vecteur d'onde AF.

⁹Les points bleus de bruit de fond ont été obtenus au vecteur d'onde (1.37,0.82,5.12) et (1.55,0.25,5.8) pour une énergie de transfert de 42.2meV

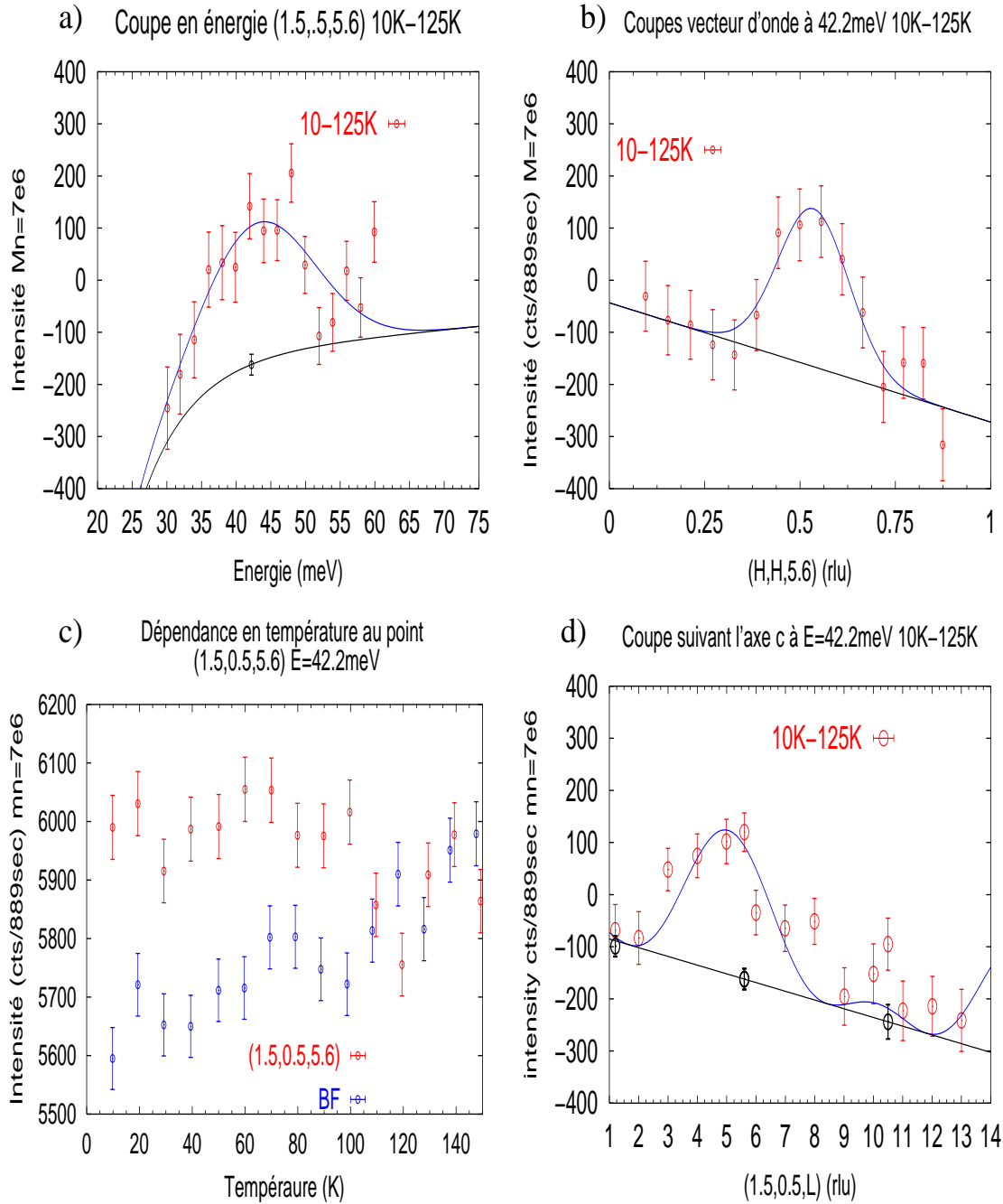
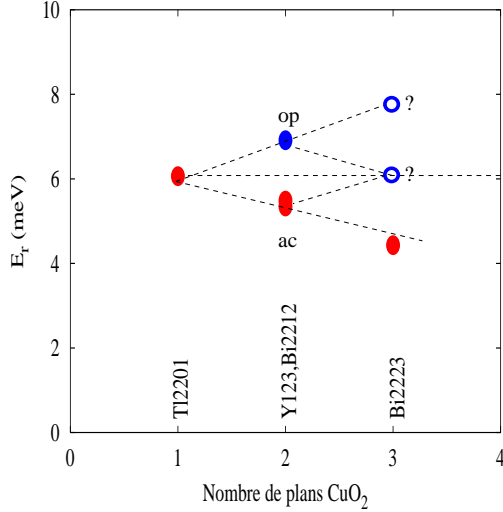


FIG. 3.17 – sur les figures a) et b), nous montrons les différences en énergie et en vecteur d'onde des coupes en énergie mesurées à 10K et 125K au vecteur d'onde AF dans le système Bi2223. La figure c) correspond au suivi en température de l'intensité magnétique au vecteur d'onde AF, points rouges. L'évolution en température du bruit de fond, en bordure des coupes, est montrée en points bleus. Enfin, sur la figure d), nous montrons la différence des coupes suivant la direction (001) au vecteur d'onde AF.



Nombres de plans CuO ₂	E _r /k _B T _c (dopage optimum)	Composé
1	5.9	Tl2201
2	5.2	Y123, Bi2212
3	4.4	Bi2223

TAB. 3.3 – Evolution de $E_r/k_B T_c$ en fonction de l'énergie

Il reste à discuter du facteur de structure de la résonance dans ce système à 3 plans CuO₂. En effet, plusieurs arrangement des spins entre plans sont possibles : i) pour un arrangement de type AF : +1 -1 +1, le facteur de structure est donné par $F(L) = (1 - 2\cos(2\pi z_c L))^2$, ii) pour un arrangement de type F/AF : +1 +1 -1, le facteur de structure est donné par $F(L) = (4\sin(\pi z_c L))^2 + 1$ iv) pour un arrangement de type F : +1 +1 +1, le facteur de structure est donné par $F(L) = (1 + 2\cos(2\pi z_c L))^2$. Nous avons trouvé que le facteur de structure AF reproduit le mieux la modulation suivant l'axe \vec{c} . Sur la Fig.3.17 d), la ligne bleue correspond au facteur de structure AF multiplié par le carré du facteur de forme de l'ion Cu²⁺, Fig.2.1.

Conclusions

Cette expérience démontre l'existence de la résonance magnétique dans le composé Bi2223 à 3 plans CuO₂, à une énergie $E_0^c=42\text{meV}$ et centrée au vecteur d'onde AF. Les largeurs en énergie et vecteur d'onde sont respectivement $\Delta E=12\text{meV}$ et $\Delta_q=0.54\text{\AA}^{-1}$ similaires à celles de la résonance dans le système Bi2212[130]. L'intensité de la résonance suit le facteur de structure AF. Une expérience complémentaire serait de sonder les fluctuations magnétiques au minimum de ce facteur de structure afin de révéler les modes magnétiques ayant des symétries différentes.

3.3.2 Résonance magnétique et nombre de plans CuO₂

Dans le Tab.3.3, nous reportons l'évolution du rapport $E_r/k_B T_c$ en fonction du nombre de plans CuO₂ par maille élémentaire. On observe une diminution linéaire de ce rapport, d'environ -0.7, par plans CuO₂. Sur la figure incluse dans le Tab.3.3, nous montrons l'évolution de la position en énergie de la résonance en fonction du nombre de plans. La mesure du mode optique permet de comprendre l'évolution du rapport $E_r/k_B T_c$ comme une conséquence de la levée de dégénérescence du mode résonnant causée par des effets

interplans. On peut dessiner une arborescence qui reflète les interactions entre plan. Nous extrapolons ainsi la position en énergie de modes résonnants à rechercher dans le composé Bi2223, indiquée par des cercles vides. Ainsi, le rapport $E_r/k_B T_c$ moyenné sur les modes résonnants est identique dans tous les composés et égal à ~ 6 . Les écarts à cette valeur peuvent être interprétés comme des effets liés aux couplages interplans.

3.4 Conclusion

Ce chapitre présente une étude par DIN de la dynamique de spin dans l'état supraconducteur du composé YBCO_{6.85} ($T_c=89\text{K}$, légèrement sousdopé) et du composé Bi2223 ($T_c=110\text{K}$, dopage optimum). Nous avons mis en évidence les points suivants[143, 134, 152] :

- 1) **Nouvelle excitation magnétique au vecteur d'onde antiferromagnétique.**
Ce nouveau signal magnétique apparaît à plus haute énergie (53meV), est 6 fois moins intense et possède une largeur en vecteur d'onde 2 fois plus grande que le pic de résonance magnétique à 41meV. Suivant l'axe \vec{c} , ces deux signaux suivent la même modulation déphasée d'une demi-période. Cette nouvelle excitation est liée à la présence d'un couplage entre les deux plans CuO₂ de la maille élémentaire. L'origine de ce couplage reste à préciser. Par analogie aux ondes de spins dans l'état antiferromagnétique isolant, le spectre des fluctuations magnétiques se décompose en une contribution acoustique et en une contribution optique. La mesure du pic de résonance magnétique dans le composé à trois plans CuO₂, Bi2223, indique une évolution linéaire de ce rapport en fonction du nombre de plans CuO₂. Grace à l'observation du mode optique, cette évolution apparaît naturellement comme une conséquence de l'existence de termes de couplages interplans.
- 2) **Nouveaux signaux magnétiques incommensurables, de part et d'autre du vecteur d'onde antiferromagnétique, situés dans une gamme en énergie comprise entre 41meV et 60meV.** Dans cet intervalle, nous avons montré qu'il existait une zone muette autour de 49meV où le signal magnétique est fortement atténué. Ainsi, l'ensemble du spectre magnétique acoustique est constitué d'une résonance centrée au vecteur d'onde AF d'où partent une dispersion vers les basses énergies et une dispersion vers les hautes énergie interrompue localement autour de 49meV. Le tout forme un X et est contenu dans une gamme d'énergie comprise entre 30meV, énergie du gap de spin, et 60meV. Intégrée en vecteur d'onde dans le plan de CuO₂, la susceptibilité locale a une forme de type pic-creux-pic où le creux est causé par l'anomalie à 49meV.
- 3) **Anisotropie de la géométrie de l'intensité magnétique dans le plan CuO₂ pour des énergies de transfert inférieures à l'énergie de la résonance.** La dispersion vers les basses énergies est identique suivant a^* et b^* . En revanche, à mesure que l'on abaisse l'énergie transférée entre l'énergie de la résonance et l'énergie du gap de spin, nous observons une réduction plus importante de l'intensité suivant b^* par rapport à celle suivant a^* .

Chapitre 4

Mesures de la dynamique de spin dans le régime surdopé

Dans ce chapitre nous nous intéressons à l'étude des fluctuations magnétiques dans le régime surdopé. Les deux premières parties de ce chapitre sont consacrées à l'étude par diffusion inélastique des neutrons des fluctuations magnétiques dans l'état supraconducteur de deux composés surdopés : le premier, $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ ($T_c=85K$), est légèrement surdopé et le second, $Y_{0.85}Ca_{0.15}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ ($T_c=75K$), est plus surdopé. Dans les deux systèmes, nous montrons les réponses magnétiques dans les canaux acoustique et optique. Par ailleurs, nous reportons la première mesure des excitations magnétiques de part et d'autre de l'énergie du mode optique. La dernière partie de ce chapitre est constituée d'une étude de diffusion de Raman électronique sur des échantillons de $Y_{1-x}Ca_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ dans le régime surdopé. Nous discutons alors de l'ensemble des propriétés électroniques et magnétiques extraites des mesures de DIN et de diffusion Raman électronique sur les mêmes échantillons.

4.1 Le système $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$

4.1.1 Mesure des modes acoustique et optique par DIN

Conditions expérimentales

Les résultats présentés dans cette partie ont été obtenus sur les spectromètres trois axes 2T et IN8 : l'étude de la résonance acoustique a été réalisée sur le spectromètre 2T au LLB et celle de la résonance optique sur le spectromètre IN8 à l'ILL. Pour chaque expérience, l'échantillon a été aligné dans le plan de diffusion $\{(110);(001)\}$ ce qui permet d'avoir accès à des vecteurs d'onde de la forme $Q=(H,H,L)$, où H et L sont les composantes du vecteur \vec{Q} suivant les vecteurs du réseau réciproque $\vec{a}^* = \frac{2\pi}{a}\vec{i}_{100}$, $\vec{b}^* = \frac{2\pi}{a}\vec{j}_{010}$ et $\vec{c}^* = \frac{2\pi}{c}\vec{k}_{001}$ avec $a=b=3.85\text{\AA}$ et $c=11.65\text{\AA}$. Nous avons travaillé à énergie finale des neutrons fixe, égale à 35meV (soit $k_f \sim 4.1\text{\AA}^{-1}$). Sur 2T, nous avons utilisé le monochromateur et analyseur graphite PG002 afin d'avoir le maximum de flux. Pour éliminer les contaminations des diffusions d'ordre multiple, nous avons utilisé un filtre graphite sur k_f . Sur IN8, pour des raisons de disponibilité, nous avons utilisé le monochromateur silicium Si(111) et l'analyseur graphite PG(002). Avec le monochromateur Si(111), nous n'avons pas utilisé de filtre graphite car la réflexion d'ordre supérieure principale Si(222) est interdite. Pour l'expérience sur IN8, l'échantillon a été fixé au bout de la canne d'un cryostat orange qui permet de descendre jusqu'à 5K. Pour l'expérience sur 2T, l'échantillon a été placé dans une boîte d'aluminium remplie de gaz d'hélium attachée à la tête froide d'un dispex qui permet d'atteindre une température de 12K.

Le résultat de cette expérience fait l'objet d'une publication : Phys. Rev. Lett. **91**, 23 (2003)

La résonance dans l'état surdopé :

Sur la Fig.4.1 a), nous montrons la différence des coupes en énergie au vecteur d'onde AF(-0.5,-0.5,5.2) entre $T=10K(< T_c)$ et $T=100K(> T_c)$ dans le canal acoustique. On observe le pic de résonance apparaître à une énergie de $E_0^{ac}=36\text{meV}$ avec une largeur gaussienne déconvoluée, ΔE^{ac} , de 7meV. Le suivi en température de l'intensité au point

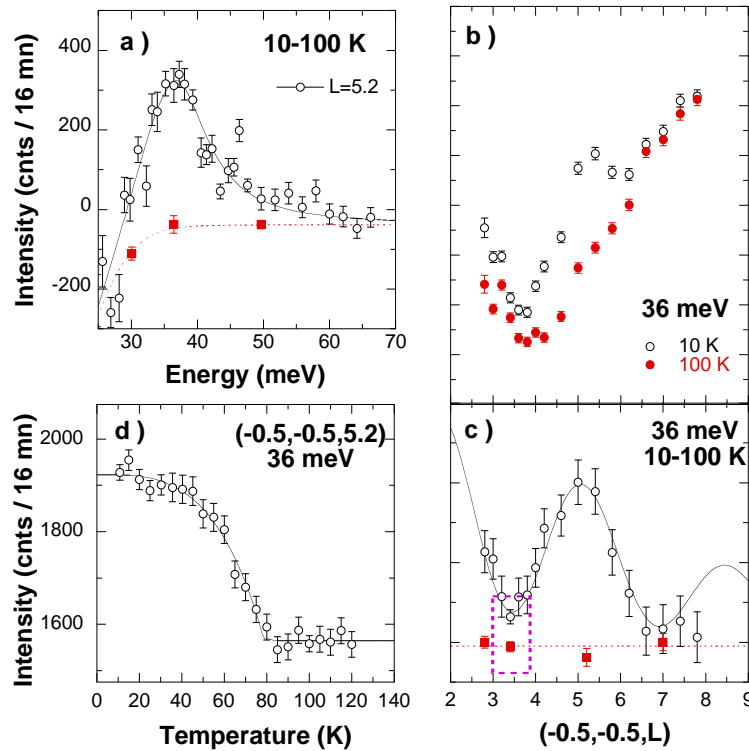


FIG. 4.1 – *Mesures sur 2T* : a) différence des coupes en énergie au vecteur d'onde AF(-0.5,-0.5,5.2) entre $T=10K(< T_c)$ et $T=100K(> T_c)$ dans le canal acoustique. b) coupes à l'énergie de la résonance suivant la direction (-0.5,-0.5,L) à 10K en cercles ouverts et 100K en cercles pleins. Leur différence 10K-100K est représentée sur la figure c). d) suivi en température du maximum de l'intensité de la résonance au vecteur AF(-0.5,-0.5,5.2). Sur les figures a) et b), les carrés rouges correspondent aux points de bruit de fond obtenus par les différences 10K-100K des coupes à énergie constante autour du vecteur d'onde AF le long de la direction (110)

AF(-0.5,-0.5,5.2) à une énergie de $E=36\text{meV}$, Fig. 4.1 d), montre que l'intensité de la résonance disparaît brutalement au-dessus de T_c . Les coupes suivant la ligne magnétique (001) au vecteur d'onde AF(-0.5,-0.5,L), à une énergie de 36meV sont montrées sur la figure Fig. 4.1 b). La différence de ces coupes, Fig. 4.1 c), met en évidence la modulation en $\sin^2(\pi z_c L)$ de l'intensité magnétique à E_0^{ac} le long de l'axe \vec{c} . La largeur intrinsèque à mi-hauteur en vecteur d'onde du signal à E_0^{ac} , obtenue par les différences des scans suivant la ligne magnétique (110), est de $\Delta q^{ac}=0.36\pm 0.05\text{\AA}^{-1}$.

L'ensemble de ces observations est cohérent avec les caractéristiques de la résonance observées dans d'autres systèmes [96, 130, 141]. Elles prouvent l'existence de la résonance acoustique à $E_0^{ac}=36\text{meV}$ dans cet échantillon légèrement surdopé. Cette position est compatible avec la loi empirique $E_0^{ac} \sim 5k_B T_c$ [102] puisque $5k_B T_c \sim 36.5\text{meV}$ ($T_c=85.5\text{K}$).

Nous confirmons ainsi la diminution de la position en énergie de la résonance dans l'état surdopé, déjà observée dans le système $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$. En effet dans ce système, la résonance acoustique apparaît à une énergie de 43meV dans un échantillon proche du dopage optimum [130], $T_c=91\text{K}$, et à 38meV dans un échantillon surdopé [140], $T_c=83\text{K}$. Par d'autres aspects la résonance dans cet échantillon est différente de la résonance mesurée dans le composé pur $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ au voisinage du régime optimum et dans l'état

sous-dopé [96, 115] :

- i la largeur en énergie de la résonance, Fig. 4.1 a), dépasse celle de la résolution expérimentale contrairement aux mesures dans les autres régimes. Le signal possède un profil en énergie légèrement asymétrique avec une longue traînée à haute énergie jusqu'à environ 60meV.
- ii la largeur en vecteur d'onde, $\Delta q^{ac}=0.36\pm 0.05\text{\AA}^{-1}$, est également plus grande que la largeur habituelle de la résonance dans le composé pur. Nous rappelons que celle-ci est constante du régime sous-dopé au dopage optimum et égale à $\Delta q=0.25\pm 0.05\text{\AA}^{-1}$ [95].
- iii dans la différence des coupes le long de l'axe \vec{c} , Fig.4.1 c), nous mettons en évidence, par un carré en pointillé violet, un résidu d'intensité au minimum du facteur de structure acoustique en $L=3.6$. Des coupes similaires réalisées dans un échantillon de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.97}$ montrent, au contraire, que l'intensité de la résonance rejoint bien le niveau de bruit de fond aux noeuds du facteur de structure acoustique[96].

L'absence d'une modulation sinusoïdale parfaite peut être interprétée comme une indication d'une décorrélation partielle de la bicouche. Nous montrons dans ce qui suit que l'étude du spectre en énergie au minimum du facteur de structure acoustique permet d'aboutir à une tout autre conclusion : la présence d'un mode optique à plus haute énergie que la résonance acoustique.

Mesure de la résonance optique

La suite de cette étude a été réalisée sur le spectromètre 3 axes IN8 de l'ILL.

Sur la figure 4.2 a) (cercles pleins en noir), nous montrons la différence 10K-95K des coupes en énergie réalisées au vecteur d'onde AF(-0.5,-0.5,7) au maximum du facteur de structure optique. Il apparaît un signal centré à $E_0^{op}=43\text{meV}$ avec une largeur gaussienne déconvoluée, ΔE^{op} , de 12meV. L'intensité au maximum de ce signal est trois fois plus petite que celle de la résonance acoustique mesurée au vecteur d'onde AF(-0.5,-0.5,5.2), Fig. 4.1 a)(cercles vides). Nous montrons, sur la Fig.4.2 c), les coupes suivant la ligne magnétique (110) en $L=3.5$ et à 45meV($\sim E_0^{op}$) dans l'état normal et dans l'état supraconducteur. La différence de ces coupes met en évidence un signal commensurable qui présente une largeur gaussienne déconvoluée, Δq^{op} , de $0.45\pm 0.05\text{\AA}^{-1}$.

Un tel signal n'avait jamais été observé dans les cuprates. Nous avons donc réalisé les mesures afin de caractériser son origine, sa dépendance en température ainsi que son facteur de structure :

- i Nous montrons sur la figure 4.3 le suivi en température au vecteur d'onde AF(-0.5,-0.5,3.5) à 45meV $\sim E_0^{op}$. Ce suivi en température superposé à celui de la résonance acoustique met en évidence les comportements similaires en température des deux signaux. Ce nouveau signal apparaît donc dans l'état supraconducteur.
- ii Pour prouver l'origine magnétique de ce nouveau signal, nous avons étudié la dépendance de son intensité en fonction de l'amplitude du vecteur d'onde transféré. La différence 10K-100K des coupes suivant la direction (-0.5,-0.5,L) à 45meV($\sim E_0^{op}$), Fig.4.2

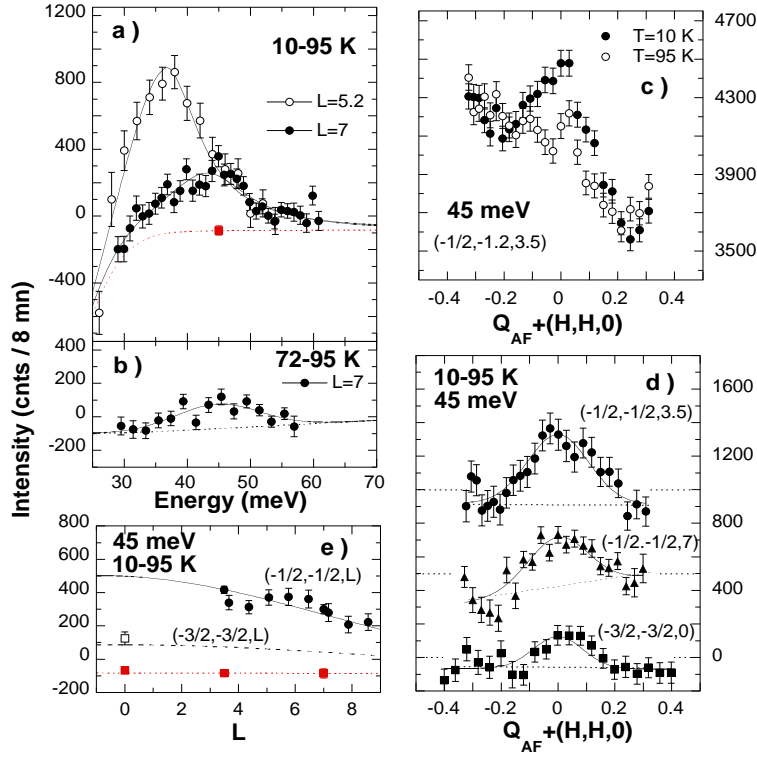


FIG. 4.2 – Mesures sur IN8 : a) superposition des différences 10K-100K des coupes en énergie au vecteur d'onde AF obtenues au maximum ($L=5.2$), cercles ouverts, et au minimum ($L=7$), cercles pleins, du facteur de structure acoustique. La résonance apparaît bien à $E_0^{ac}=36\text{meV}$, comme mesurée sur 2T, Fig.4.1 a). Sur la figure du bas de a), nous montrons la même différence entre 72K et 100K. c) coupe en vecteur d'onde suivant la direction (110) à 45meV et à $L=3.5$ obtenue à 10K et 100K. Sur la figure d), nous montrons les différences des coupes suivant la direction (110) autour du vecteur d'onde AF(-1.5,-1.5,0), figure du bas, et AF(-0.5,-0.5,L) ($L=3.5, 7$), figures du haut et du milieu. Les différences des coupes de la figure d) ont été écartées de 300 coups. e) différence 10K-100K des coupes en vecteur d'onde suivant la direction (001) au vecteur d'onde AF et à 45meV. Les lignes correspondent au facteur magnétique du cuivre suivant la direction $(-0.5, -0.5, L)$, en trait plein, et la direction $(-1.5, -1.5, L)$, en trait pointillé.

e), montre que l'intensité du signal décroît à mesure que la composante L augmente. D'autre part les différences 10K-100K des coupes suivant la ligne magnétique (110) autour du point AF(-0.5, -0.5, L) ($L=3.5, 7$) et AF(-1.5, -1.5, 0), Fig.4.2 d), montre que le signal est centré au vecteur d'onde AF pour la première et la deuxième zone de Brillouin et que le maximum d'intensité diminue avec l'augmentation de l'amplitude du vecteur d'onde. Nous avons ajouté sur la figure Fig.4.2 e) l'intensité mesurée au point AF (-1.5, -1.5, 0), carré vide, et nous montrons que l'évolution du signal en fonction de l'amplitude du vecteur d'onde transféré est en accord avec l'évolution du facteur de forme magnétique du cuivre, représenté en trait plein le long de la direction $(-0.5, -0.5, L)$ et en pointillé le long de la direction $(-1.5, -1.5, L)$. Ces résultats démontrent l'origine magnétique du signal.

iii sur la figure 4.2 b) nous montrons la différence 72K-95K des coupes en énergie réalisées au vecteur d'onde AF(-0.5,-0.5,7). Cette différence est également centrée en E_0^{op} . Nous montrons ainsi que tout comme la résonance, ce signal magnétique ne

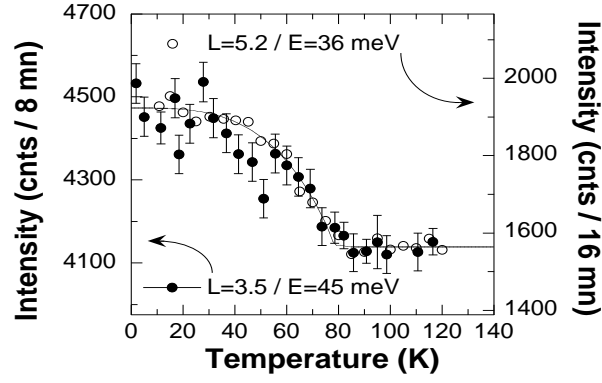


FIG. 4.3 – Echelle de gauche : suivi en température réalisé sur IN8 au vecteur d’onde $AF(-0.5, -0.5, 3.5)$ et 45meV ($\sim E_0^{op}$). Echelle de droite : nous superposons le suivi en température réalisé sur 2T, Fig.4.1 d), de la résonance acoustique au vecteur d’onde $AF(-0.5, -0.5, 5.2)$ et à E_0^{ac} sans les barres d’erreur par souci de clarté

se renormalise pas en énergie à l’approche de la transition supraconductrice [100].

- iiv enfin, un problème a été de savoir si ce nouveau signal magnétique possède une modulation en $\cos^2(\pi z_c L)$ suivant l’axe \vec{z} , attendue pour un signal optique. Toute la difficulté vient du simple fait que l’intensité magnétique à 45meV dans le canal acoustique en $L=5.2$ est, dans nos barres d’erreur, identique à celle mesurée à 45meV en $L=7$ comme on peut le voir sur la figure 4.2 a). De ce fait, même si l’étude en fonction de L du signal à 45meV , Fig. 4.2 e), ne présente pas de modulation, nous ne pouvons conclure sur le facteur de structure de ce nouveau mode magnétique.

Ces mesures ont clairement mis en évidence l’existence, dans l’état supraconducteur, d’un signal magnétique commensurable centré au vecteur d’onde AF et maximum pour une énergie de $E_0^{op}=43\text{meV}$, supérieure à l’énergie de la résonance, $E_0^{ac}=36\text{meV}$. Dans la mesure où nous ne pouvons, au cours de cette expérience, discerner le facteur de structure de ce nouveau signal magnétique, deux interprétations sont à envisager : soit ce signal correspond à la résonance optique, soit ce signal est une mesure directe du continuum d’excitations électron-trou, auquel cas le spectre dans le canal acoustique doit se décomposer en un mode collectif, étroit en énergie, surmonté à plus haute énergie d’une structure large en énergie. Nous montrons sur la Fig.4.4 a), un exemple d’ajustement par deux fonctions gaussiennes du spectre dans le canal acoustique (équivalent à celui de la Fig.4.1 a). La gaussienne située à plus basse énergie a une largeur limitée par la résolution instrumentale et représente la contribution de la résonance magnétique. L’autre gaussienne, à plus haute énergie, constitue une portion du continuum électronique. Le spectre déconvolué est alors représenté sur la Fig.4.4 b). Nous avons alors répété l’étude du spectre acoustique sur le spectromètre 2T avec le monochromateur de cuivre Cu(111) qui nous permet d’améliorer d’environ 30% la résolution en énergie. La différence 10K-100K des coupes en énergie au vecteur d’onde AF obtenues avec le monochromateur de cuivre est reportée sur la Fig.4.4 c) et est superposée à celle de la Fig.4.4 a) obtenue avec le monochromateur de graphite. Du fait des rapports de flux entre les deux monochromateurs, nous avons multiplié la différence obtenue avec le cuivre par un facteur 2. Si l’hypothèse du continuum était valide, en améliorant la résolution en énergie, nous aurions dû observer une diminution de la largeur de la résonance et une augmentation du rapport $\frac{\text{intensité de la résonance}}{\text{intensité du continuum}}$ de l’ordre de

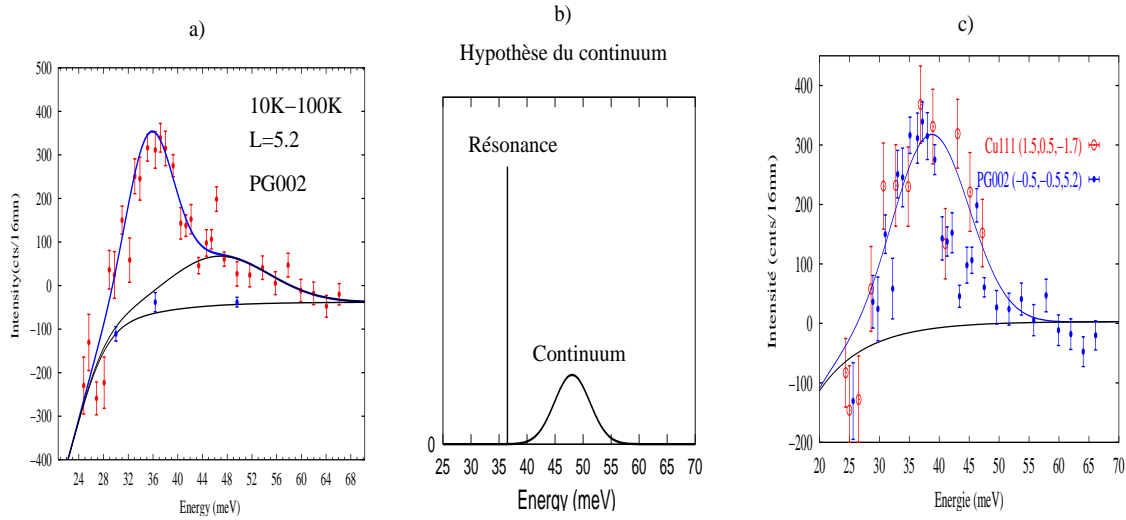


FIG. 4.4 – Sur la figure a) nous avons reporté la différence 10K-100K des coupes en énergie au vecteur d'onde AF(-0.5,-0.5,5.2) de la Fig.4.1 a). Nous montrons un ajustement de cette différence par deux fonctions gaussiennes dont une associée à la résonance et l'autre au continuum d'excitations électron-trou. Sur la figure b), nous montrons le spectre en énergie déconvolué résultant de l'ajustement précédent. Sur la figure c) nous reportons la différence des coupes en énergie au vecteur d'onde AF (1.5,0.5,1.7) réalisées sur 2T avec le monochromateur de cuivre Cu(111) à $k_f=4.1\text{\AA}^{-1}$ dans le plan de diffusion $\{(310)(001)\}$. Sur la même figure, nous avons superposé la différence de la figure a).

60%, égale au rapport entre la résolution en énergie du graphite sur celle du cuivre. Or la différence 10K-100K des scans en énergie obtenue avec le monochromateur cuivre, Fig.4.4 c), étant aussi large que celle obtenue avec le monochromateur graphite, Fig.4.1, nous avons éliminé l'hypothèse du continuum. Nous avons ainsi interprété le nouveau signal magnétique à 43meV comme étant le mode optique. Par la suite, les mesures réalisées sur l'échantillon de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, chapitre précédent, ont confirmé l'existence du mode optique, ce qui a conforté notre interprétation.

Mise en unité absolue de l'intensité magnétique

Pour calibrer l'intensité du faisceau de neutrons, nous avons utilisé la mesure du phonon optique à 42.5meV dont la section efficace a été donnée dans la partie 2.3.2. Sur les Fig.4.5 a) et b), nous montrons le résultat de la convolution numérique entre cette section efficace et l'ellipsoïde de résolution suivant une coupe en énergie, a), et une coupe à énergie constante suivant l'axe \vec{c} , b).

Pour modéliser la dépendance en énergie et en vecteur d'onde de la section efficace, nous avons utilisé le produit de deux fonctions gaussiennes. Les résultats de la calibration sont résumés dans le Tab.4.1. On observe un rapport de 3 entre les poids spectraux des modes magnétiques, similaire à leur rapport d'intensité maximum. En revanche, du fait de la largeur du mode optique, les poids spectraux totaux des modes sont proches.

Mode acoustique	
Poids spectral	$W(Q_{AF})=1.18 \mu_B^2$
Susceptibilité locale	$\chi''_{2D}=4.96 \mu_B^2 \cdot eV^{-1} \cdot fu^{-1}$
Poids spectral total	$\langle W \rangle = 0.065 \mu_B^2 \cdot fu^{-1}$
Mode optique	
Poids spectral	$W(Q_{AF})=0.6 \mu_B^2$
Susceptibilité locale	$\chi''_{2D}=3.38 \mu_B^2 \cdot eV^{-1} \cdot fu^{-1}$
Poids spectral total	$\langle W \rangle = 0.052 \mu_B^2 \cdot fu^{-1}$

TAB. 4.1 –

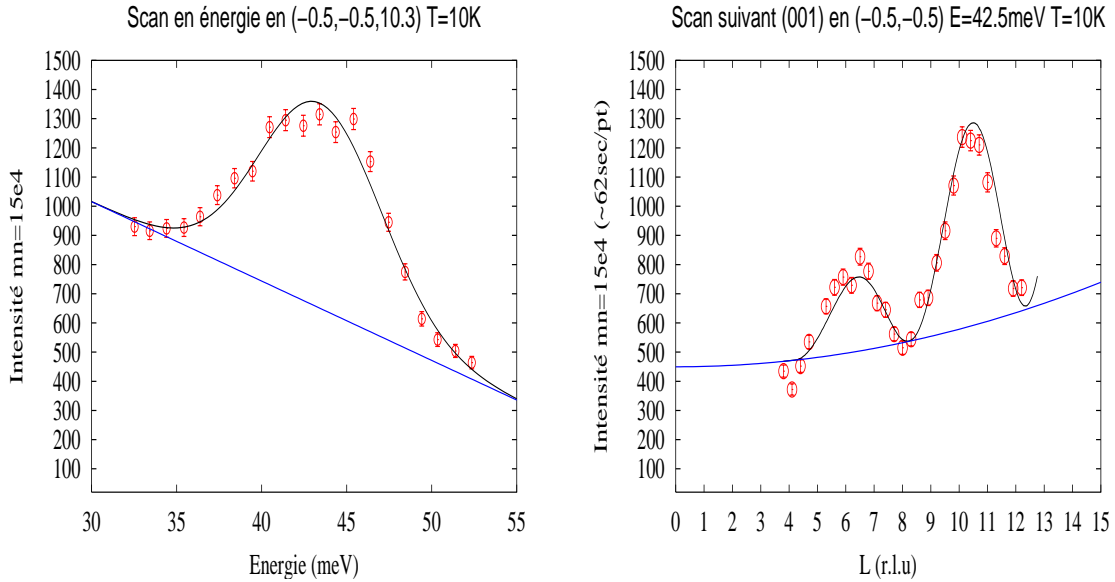


FIG. 4.5 – Phonon optique à 42.5meV : nous reportons sur la figure a) le scan en énergie au vecteur d'onde $(-0.5,-0.5,10.3)$ et sur la figure b), un scan suivant l'axe \vec{c} à 42.5meV réalisé à $T=10K$. Les ligne noires correspondent au résultat du produit de convolution numérique entre la section efficace du phonon et l'ellipsoïde de résolution

4.1.2 Etude de la dépendance en vecteur d'onde du mode optique

Conditions expérimentales : utilisation d'un nouveau plan de diffusion pour mesurer dans le canal optique

Dans cette expérience, nous nous sommes focalisés sur l'étude des fluctuations magnétiques dans le canal optique de part et d'autre de $E_0^{op}(=43\text{meV})$. En raison du facteur de structure optique, il est possible d'aligner l'échantillon dans le plan de diffusion $\{(100);(010)\}$ et de mesurer la résonance optique avec une composante nulle suivant l'axe \vec{c} , $L=0$. Dans ces conditions, l'axe \vec{c} est perpendiculaire au plan de diffusion et nous profitons alors de toute la divergence verticale de l'instrument, ce qui permet d'intégrer le signal magnétique sur une grande portion de la modulation optique, (Fig.4.6 a). Pour satisfaire les équations de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement, Eq.2.2, nous devons mesurer autour du point AF (1.5,0.5,0), et non (0.5,0.5,0), pour des énergies de transfert autour de $E_0^{op}=43\text{meV}$.

Cette expérience a été réalisée sur le spectromètre IN8 à l'ILL. Nous avons utilisé le monochromateur et l'analyseur graphite PG002 et travaillé à énergie finale des neutrons fixe, $E=35\text{meV}$ ($k_f \sim 4.1\text{\AA}^{-1}$). L'échantillon étant aligné dans le plan de diffusion $\{(100);(010)\}$, nous avons accès à des vecteurs d'onde de la forme $Q=(H,K,0)$, où H et K sont les composantes du vecteur \vec{Q} suivant les vecteurs du réseau réciproque $\vec{a}^* = \frac{2\pi}{a}\vec{i}_{100}$, $\vec{b}^* = \frac{2\pi}{a}\vec{j}_{010}$ avec $a=b=3.85\text{\AA}$. Pour éliminer les diffusions d'ordre supérieur, un filtre graphite a été inséré entre l'échantillon et le détecteur. L'échantillon a été placé dans le cryostat orange standard.

Gain d'une mesure avec l'axe \vec{c} vertical :

Sur la figure Fig.4.6 a), nous avons représenté la taille de l'ellipsoïde de résolution suivant l'axe \vec{c} dans le plan de diffusion $\{(100);(010)\}$ au point de mesure (1.5,0.5,0), gaussienne en trait noir, et dans le plan de diffusion usuel $\{(110);(001)\}$ au point de mesure (0.5,0.5,7), gaussienne en trait violet. Nous montrons ainsi que la portion de la modulation optique intégrée sur la largeur de la résolution instrumentale est environ 3 fois plus importante au point (1.5,0.5,0) par rapport au point (0.5,0.5,7). L'intensité de la modulation optique restant quasiment constante sur la largeur de l'ellipsoïde, ce facteur 3 représente le gain d'intensité du signal magnétique mesuré au point (1.5,0.5,0) par rapport à celle au point (0.5,0.5,7). Cependant, ce gain est réduit à cause du facteur de forme magnétique du cuivre car, du fait de son anisotropie dans le plan (\vec{a}, \vec{b}) (voir Fig.2.1), celui-ci, au carré, est environ 1.15 fois plus grand au vecteur (0.5,0.5,7) par rapport au vecteur (1.5,0.5,0) même si en module : $|(1.5, 0.5, 0)|(\sim 2.5\text{\AA}^{-1}) < |(0.5, 0.5, 7)|(\sim 3.9\text{\AA}^{-1})$. Ainsi, le gain de la mesure du mode optique au point (1.5,0.5,0) par rapport au point (0.5,0.5,7) est :

$$G = \frac{(\text{taille resolution suivant } \vec{c} \times \text{facteur de forme})_{1.5,0.5,0}}{(\text{taille resolution suivant } \vec{c} \times \text{facteur de forme})_{0.5,0.5,7}} \sim 2.6 \quad (4.1)$$

Pour vérifier ce gain, nous pouvons comparer la mesure du mode optique du chapitre précédent réalisé avec le monochromateur Si111 sans filtre graphite où nous avons environ 300cts/480sec de mode optique au point (-0.5,-0.5,7) et la mesure de ce chapitre avec le monochromateur PG002 et un filtre graphite où nous avons 300cts/230sec de mode optique au point (1.5,0.5,0) (les intensités étant prise à 43meV). En tenant compte du rapport

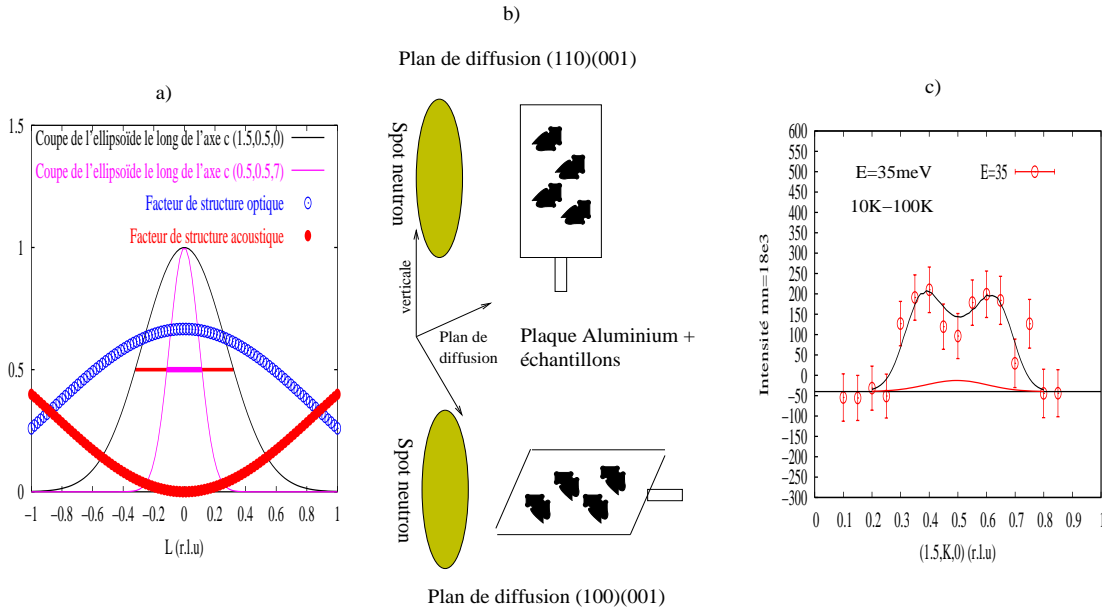


FIG. 4.6 – Sur la figure a), nous représentons la coupe de l'ellipsoïde de résolution suivant l'axe \vec{c} au point de mesure $(1.5, 0.5, 0)$, gaussienne en trait noir, et au point de mesure $(0.5, 0.5, 7)$, gaussienne en trait violet. Le facteur de structure optique (resp. acoustique) est représenté en cercles bleus (respect. cercles rouges pleins). Sur la figure b), nous montrons l'orientation des plaques d'aluminium avec les échantillons par rapport au spot du faisceau de neutrons dans les deux plans de diffusion utilisés. Sur la figure c), nous montrons le signal magnétique le long de b^* . La contribution de l'intégration du signal acoustique via l'ellipsoïde de résolution est représentée par la courbe rouge.

des flux entre les deux monochromateurs à 43meV , voir Fig.2.5, égal à $\text{PG002/Si111} \sim 4$, du facteur de transmission du filtre à $k_f = 4.1\text{\AA}^{-1}$, égale à 0.5, nous obtenons un gain expérimental d'environ $G_{exp} \sim 1$. La différence par rapport au gain estimé précédemment peut se comprendre si nous tenons compte de la surface de l'ellipsoïde de résolution dans le plan de base. Pour un signal large en vecteur d'onde et en énergie, comme c'est le cas de la résonance optique, plus la surface de l'ellipsoïde est importante et plus l'intensité du signal est grande. Dans ce cas le gain à pour expression :

$$G' = \frac{(\text{taille resolution suivant } \vec{c} \times \text{facteur de forme})_{0.5, 0.5, 7} S_{\text{ellipsoïde}}^{0.5, 0.5, 7}}{(\text{taille resolution suivant } \vec{c} \times \text{facteur de forme})_{0.5, 0.5, 7} S_{\text{ellipsoïde}}^{1.5, 0.5, 0}} \sim 1.4 \quad (4.2)$$

$S_{\text{ellipsoïde}}^i$ correspond à la surface de l'ellipsoïde de résolution dans le plan de base¹. D'autre part, Fig.4.6 b), étant aligné dans le plan $\{(100); (010)\}$, les plaques des échantillons sont perpendiculaires à la direction verticale du spectromètre. Ainsi, l'éclairage de l'échantillon par le faisceau de neutrons est moins efficace et les processus de multi-diffusion plus importants dans le plan de diffusion $\{(100); (010)\}$ où les plaques sont parallèles à la direction

¹La surface de l'ellipsoïde de résolution au point (\vec{Q}, ω) dans le plan de base est donnée par $S(\vec{Q}, \omega) = \pi \sqrt{\left(\ln \frac{2}{A'_{ii}} \ln \frac{2}{A'_{jj}} \right)_{\vec{Q}, \omega}}$ où A'_{ii} et A'_{jj} sont les coefficients de l'ellipsoïde suivant les axes de l'ellipsoïde contenus dans le plan de base

verticale du spectromètre. Cet effet de géométrie peut expliquer la différence restante entre le gain théorique, G' , et le gain expérimental, G_{exp} .

Ainsi, contrairement à ce que nous pensions, la mesure du mode optique est équivalente dans les deux plans de diffusion. Ceci provient de la spécificité du mode optique qui est large en vecteur d'onde et en énergie, nous aurions une conclusion différente dans le cas d'une excitation mieux définie(phonons, magnons etc...).

Contribution du spectre acoustique :

Du fait de la taille de l'ellipsoïde suivant l'axe \vec{c} , il est important d'estimer la contribution du spectre acoustique. Etant donné le choix du plan de diffusion et de l'environnement de l'échantillon(cryostat), il nous était difficile de mesurer la résonance acoustique. Nous avons déduit l'intensité du mode acoustique à partir de la modélisation simple du mode optique, par le produit de deux fonctions gaussiennes en énergie et en vecteur d'onde. Pour modéliser la section efficace de la résonance acoustique, nous avons supposé le même ajustement centré à 36meV, avec une intensité au maximum multipliée par un facteur 2.2 afin de retrouver les bons rapports des poids spectraux au vecteur d'onde AF. Afin d'obtenir la contribution acoustique maximum, nous avons calculé la convolution entre la section efficace acoustique et la fonction de résolution suivant une coupe le long de la direction (1.5,H,0) à E=36meV. Le résultat du calcul est représenté sur la Fig.4.6 c), ligne rouge, et est comparé aux points mesurés suivant une même coupe à E=35meV. Nous montrons ainsi, que la contribution acoustique est négligeable dans les barres d'erreur car elle représente $\sim 10\%$ du signal mesuré.

Dispersion dans le canal optique - présence de nouveaux signaux magnétiques

Description des résultats expérimentaux : dispersion dans le canal optique :

Sur la Fig.4.7 a), nous montrons les différences 10K-100K des coupes en vecteur d'onde le long de la direction (1.5,K,0) pour différentes valeurs d'énergie transférée de part et d'autre de $E_0^{op}(=43meV)$. Les coupes en vecteur d'onde à 10K et 100K pour une énergie de transfert de 38meV sont montrées sur la Fig.4.7 b). Nous avons un rapport signal/bruit de l'ordre de 10%. A basse énergie l'augmentation du bruit de fond rend difficile l'étude du spectre pour des énergies de transfert inférieures à 33meV. Nous nous sommes dans cette expérience limités aux énergies de transfert supérieures à 33meV.

Sur la Fig.4.7 a), il apparaît clairement, en plus du mode optique commensurable à $E_0^{op} = 43meV$, des signaux incommensurables pour des énergies inférieures et supérieures à E_0^{op} sur une large gamme d'énergie. Sur la Fig.4.7 a), les lignes noires correspondent à un ajustement par deux fonctions gaussiennes centrées en (1.5,0.5 $\pm\delta$,0). Nous résumons sur la Fig.4.7 c), l'ensemble des positions incommensurables obtenues par cet ajustement. Le spectre des fluctuations magnétiques détectables s'étale de 33meV à 53meV : il est constitué de deux branches de dispersion dont une, la plus intense, disperse vers les basses énergies alors que l'autre disperse vers les hautes énergies. L'ensemble du spectre tend vers une forme en "H" ("H-shape") légèrement différente de la forme en "X" ("X-shape") du spectre acoustique observé dans l'échantillon d'YBCO_{6.85}, étudié au Chap.3. Le suivi en température sur une position incommensurable (1.5,0.6,0) à 38meV, Fig.4.8 d), révèle que ces structures incommensurables apparaissent dans l'état supraconducteur. Sur les Fig.4.8 a) et b), nous montrons les différences 10K-100K des coupes en énergie réalisées

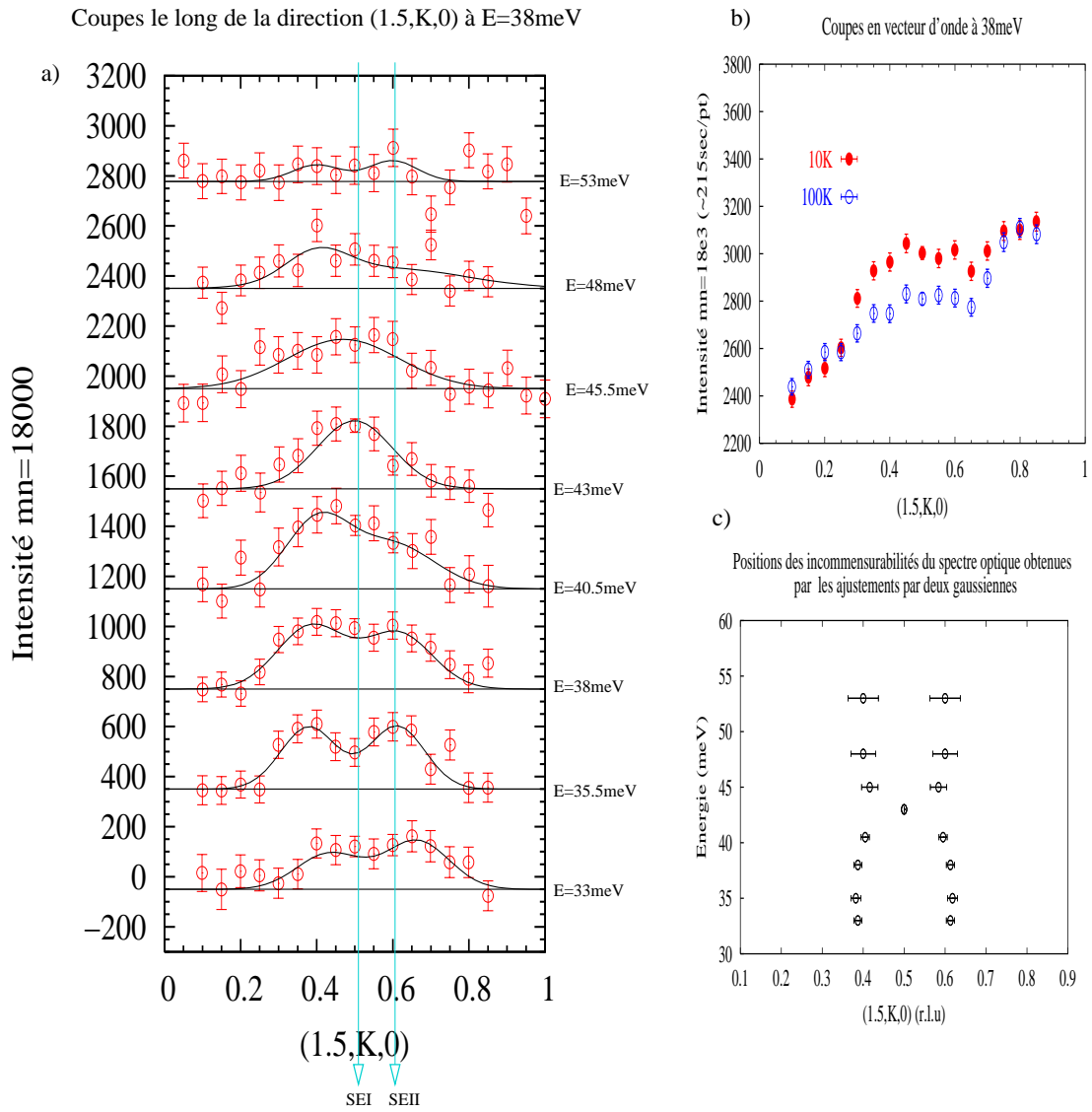


FIG. 4.7 – Sur la figure b), nous montrons les coupes en vecteur d'onde à 10K et 100K pour une énergie de transfert de 38meV . Sur la figure a), nous reportons les différences $10\text{K}-100\text{K}$ des coupes réalisées le long de la direction $(1.5, K, 0)$ pour différentes valeurs d'énergie transférée indiquées à droite de la figure. Pour chaque énergie, les lignes noires représentent un ajustement par deux fonctions gaussiennes centrées en $(1.5, 0.5 \pm \delta, 0)$. Les positions incommensurables déduites de cet ajustement sont reportées sur la figure c).

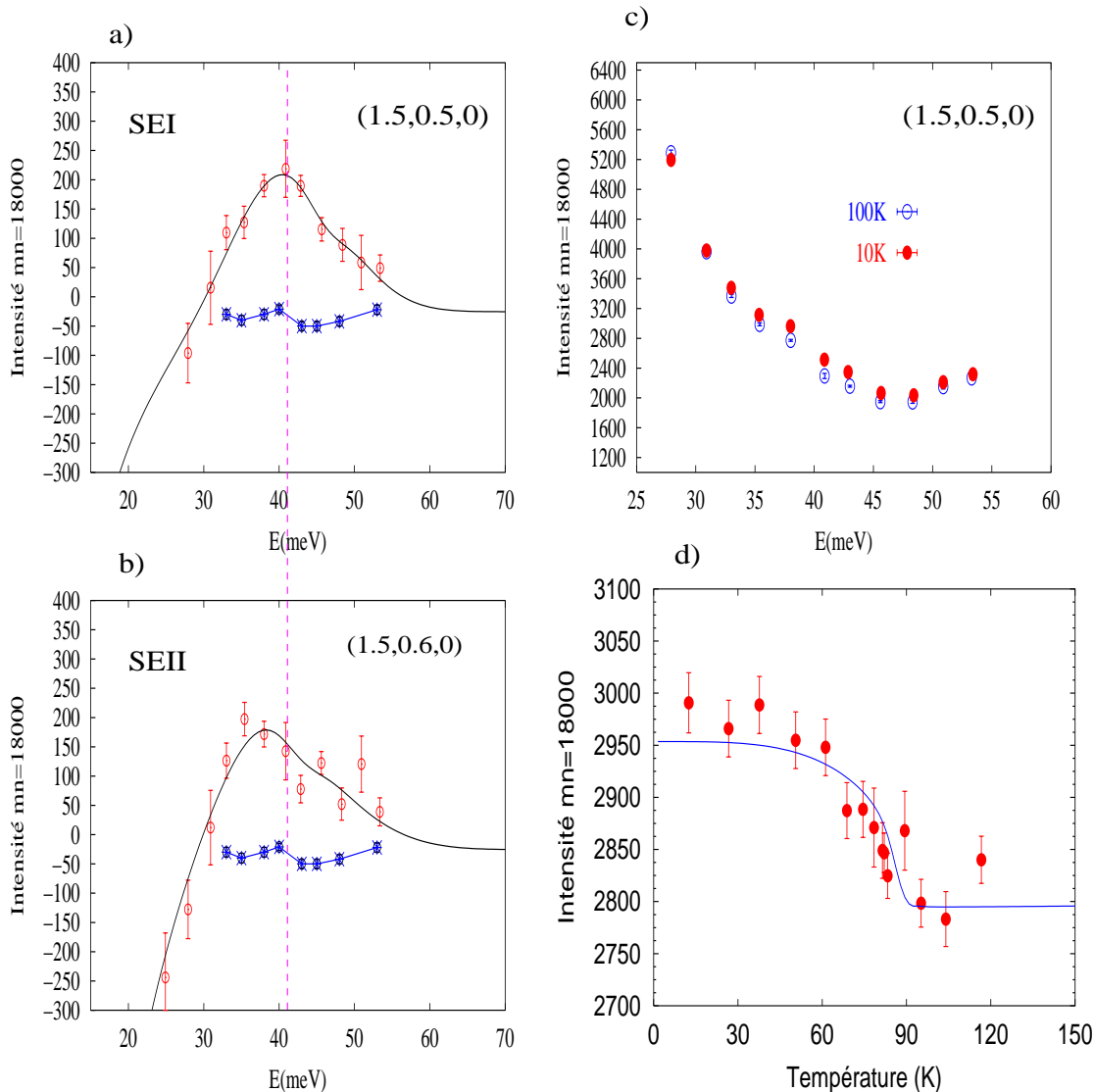


FIG. 4.8 – Sur les figures a) et b) nous reportons les différences 10K-100K des coupes en énergie réalisées au vecteur d'onde $(1.5, 0.5, 0)$, SEI, et $(1.5, 0.6, 0)$, SEII. Les positions en vecteur d'onde de ces coupes sont également indiquées par les droites noires de la Fig.4.7. Les points de bruit de fond ont été obtenus à partir des coupes en vecteur d'onde de la Fig.4.7. Les lignes noires sur chaque différence correspondent à un ajustement par une fonction gaussienne, en tenant compte de la forme du bruit de fond. Sur la figure c), nous montrons les coupes en énergie au vecteur d'onde $(1.5, 0.5, 0)$. Enfin sur la figure d), nous reportons le suivi en température de l'intensité au vecteur d'onde $(1.5, 0.6, 0)$ à une énergie de 38meV.

aux vecteurs d'ondes (1.5,0.5,0), coupe SEI, et (1.5,0.6,0), coupe SEII. Les points de bruit de fond sur les Fig.4.8 a) et b) sont obtenus à partir des coupes en vecteur d'onde de la Fig.4.7 a). Un ajustement par une fonction gaussienne de ces coupes en énergie montre que le maximum d'intensité de la coupe SEI est localisé à 41meV alors que celui de la coupe SEII est localisé à 37.5meV. Ainsi à mesure que l'on s'écarte du vecteur d'onde AF le maximum d'intensité apparaît pour une énergie plus petite, ce qui indique clairement l'existence d'une dispersion vers les basses énergies. Étonnamment, les intensités maximums des coupes SEI et SEII sont peu différentes dans les barres d'erreur, nous obtenons 240cts à 41.5meV pour la différences en (1.5,0.5,0) et 220cts à 37.5meV pour la différence en (1.5,0.6,0). Sur l'ensemble des coupes de la Fig.4.7 a), nous remarquons également que l'intensité maximum sur les positions incommensurables à 35meV et à 38meV est quasiment identique à celle du mode optique commensurable à 43meV. Ce n'est pas un comportement habituel de la dispersion vers les basses énergies observées jusqu'à présent dans Y123 dans le canal acoustique. En effet, phénoméologiquement, l'intensité intégrée en vecteur d'onde dans le plan de base reste constante sur toute la dispersion de la résonance acoustique [134, 150]. En d'autres termes, on observe généralement que l'intensité du signal magnétique diminue à mesure que l'on s'écarte du vecteur d'onde AF, ce qui n'est pas le cas du spectre optique que nous montrons sur la Fig.4.7 a).

La différence en énergie au vecteur d'onde (1.5,0.5,0) est maximum à 41.5meV et non à 43meV comme mesuré dans l'expérience précédente dans le plan de diffusion (110)(001). Cette différence peut être en partie liée à un mauvais alignement du spectromètre, mais surtout une partie peut également être attribuée aux changements de la fonction de résolution instrumentale entre le plan de diffusion (110)(001) de l'expérience précédente et le plan (100)(010) de cette expérience.

Cette première description des résultats expérimentaux montre clairement que le spectre optique, tout comme le spectre acoustique, est constitué d'une dispersion vers les basses et hautes énergies connectées à une énergie E_0^{op} . Cependant, le spectre dans le canal optique présente deux différences importantes par rapport au comportement usuel du spectre dans le canal acoustique : i) il a plutôt une forme en H qu'une forme en X ii) le maximum d'intensité magnétique n'apparaît pas uniquement au vecteur d'onde AF.

Tentative de modélisation : la forme en X ne suffit pas

En première approximation, ce spectre optique ressemble au spectre acoustique mesuré dans l'échantillon de YBCO_{6.85} au chap.3.2. Nous avons donc essayé une modélisation en "X-shape" similaire à ce qui a été fait au dans la partie 3.2.3. C'est à dire, nous supposons des dispersions isotropes dans le plan de base, paramétrisées par :

$$E_r^{op}(q) = \sqrt{E_0^{op2} \pm (\alpha_{\mp}(q - q_{AF}))^2} \quad (4.3)$$

où α_- (respec. α_+) est le coefficient de dispersion pour le mode dispersif vers les basses énergies (respec. vers les hautes énergies).

Comme dans la partie 3.2.3, nous avons choisi l'oscillateur harmonique amorti comme fonction d'ajustement. La partie imaginaire de la susceptibilité dans le canal optique

s'écrit alors :

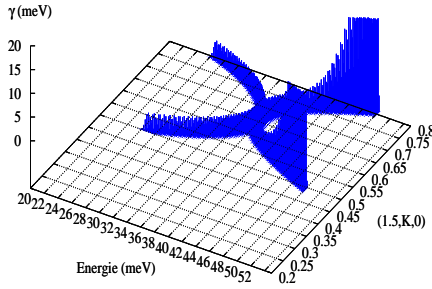
$$\frac{1}{E_0^{op2}} \frac{\chi''(\vec{q}, \omega)_{op}}{\chi(\vec{q}_{AF}, 0)} = \left(\frac{\gamma_- \omega}{(\omega^2 - E_r^2 + (\alpha_- (q - q_{AF}))^2 + (\gamma_- \omega)^2)} \right)_{E > E_g} + r \times \left(\frac{\gamma_+ \omega}{(\omega^2 - E_r^2 - (\alpha_+ (q - q_{AF}))^2 + (\gamma_+ \omega)^2)} \right) \quad (4.4)$$

où γ_- (respec. γ_+) sont les amortissements des branches de dispersion vers le bas (respec. le haut). r donne le rapport d'intensité entre les deux branches. E_g est la position du gap de spin à basses énergies. Rappelons que dans la limite d'un petit amortissement, l'intégration de la partie imaginaire dans le plan de base est une constante : $\int_0^{2\pi/a} \int_0^{2\pi/a} \chi''(\vec{q}, \omega)_{op} dq_{2D} = cste$.
La section efficace est :

$$\frac{1}{0.0461 f(\vec{q})^2} \left(\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E} \right)^\dagger = Residu_{ac} + \cos^2(Q_{Iz} c) \chi''(\vec{q}, \omega)_{op} \quad (4.5)$$

$Residu_{ac}$ correspond a la contribution du signal acoustique déterminée précédemment, Fig.4.6 c).

Sur la Fig.4.9 b), nous montrons une forme en X qui permet de reproduire au mieux les résultats. Les paramètres de cette forme sont :



Paramètres de $\chi''(\vec{q}, \omega)_{op}$

$$\alpha_- = 103 \text{ meV} \cdot \text{Å}, \alpha_+ = 60 \text{ meV} \cdot \text{Å}, \gamma_- = 4 \text{ meV}, r = 0.8$$

$\gamma_+(\omega)$ représenté en bleu sur la figure à gauche

TAB. 4.2 – Valeurs des paramètres d'ajustement de la section efficace optique, Eq.4.5. La figure représente la dépendance en énergie de l'amortissement de la forme en X

Toutes les courbes noires sur la Fig.4.9 a) correspondent au résultat de la convolution de ce modèle avec la fonction de résolution instrumentale. Cette modélisation ne permet pas de reproduire l'ensemble des points expérimentaux et nous expliquons ci-dessous les principales difficultés :

- i La première difficulté est d'être capable de reproduire la largeur en vecteur d'onde importante du mode optique à E_0^{op} en utilisant des branches de dispersions. Pour cela, nous devons prendre des petites valeurs pour α_+ et α_- . De ce fait, l'intensité

Modèle de la forme en X seule

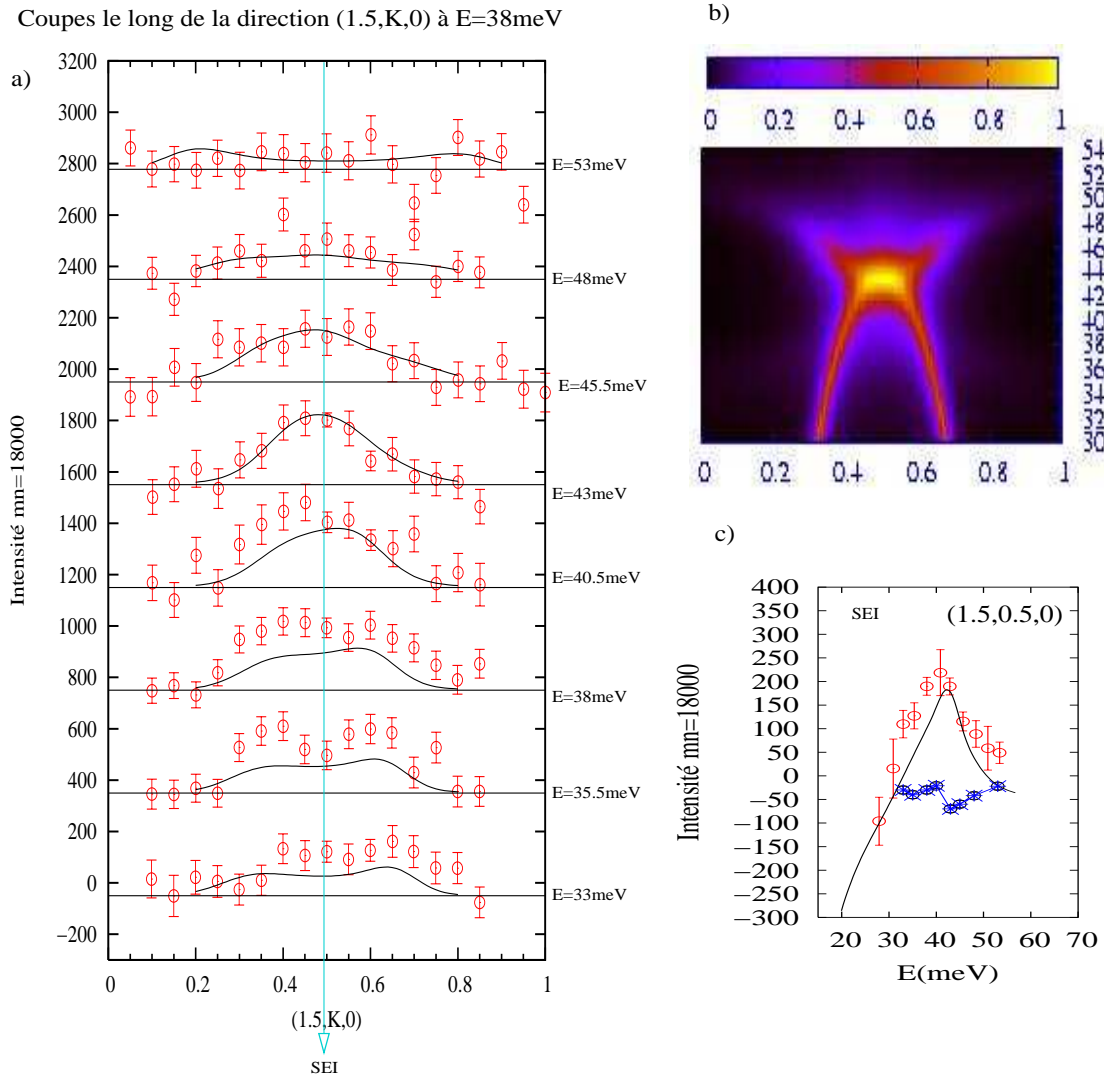


FIG. 4.9 – Sur la figure a), nous reportons sur le spectre magnétique optique de la Fig.4.7, les résultats de la convolution entre la modèle en forme de X amorti de la figure b) et la fonction de résolution instrumentale, lignes noires. De même sur la figure c), nous montrons le résultat de la convolution suivant une coupe en énergie.

à basses et hautes énergies au vecteur d'onde AF est alors sous-estimée et nous ne pouvons pas reproduire la largeur de la différence 10K-100K des coupes en énergie au vecteur d'onde (1.5,0.5,0), comme nous le montrons sur la Fig.4.9 c). Sur cette figure, la courbe noire correspond à la convolution de la forme en X de la Fig.4.9 b) avec la fonction de résolution instrumentale. Naturellement, il est toujours possible d'augmenter les valeurs des coefficients d'amortissement en énergie, γ_+ et γ_- . Nous avons pu en effet, reproduire la largeur en énergie en choisissant des amortissements de l'ordre de 10meV. Dans le cas d'une forme en X sur-amortie, la simulation des coupes en vecteur d'onde pour des énergies de transfert inférieures à 43meV fournit des formes larges et centrées au vecteur d'onde AF ne permettant pas de reproduire les formes incommensurables des différences à 38meV et 35.5meV, Fig.4.9 a).

Nous avons réalisé des tentatives d'ajustement similaires pour le spectre du mode optique dans l'échantillon de YBCO_{6.85} dans la partie 3.2.3. Pour les mêmes raisons, nous ne sommes pas parvenu à reproduire l'expérience. Notons que dans cet échantillon, le mode acoustique est parfaitement décrit par une forme en X non-amortie. La largeur du mode optique est donc intrinsèque à la physique du système dans l'échantillon de YBCO_{6.85}. Nous pensons qu'il en est de même dans cet échantillon de YBCO_{Ca10%}.

- ii) comme nous pouvons le voir sur la Fig.4.9 a), nous ne reproduisons pas l'intensité du signal des coupes en vecteur d'onde aux basses énergies (inférieures à 43meV). Comme nous l'avons précisé plus haut, l'intensité intégrée en vecteur d'onde dans le plan de base de l'oscillateur est constante. Les coefficients de dispersion étant petits, l'intensité magnétique pour des énergies inférieures à E_0^{op} est donc rapidement répartie sur un cercle de diffusion dans le plan de base.
- iii) L'effet de focalisation (voir Fig.2.10) observé à 38meV et 40.5meV ne correspond pas à celui espéré pour une dispersion vers les basses énergies, Fig.4.9 a). En effet, nous obtenons des effets de focalisations inverses, c'est à dire que l'intensité calculée est plus importante aux grandes valeurs de vecteur d'onde contrairement à l'observation.

Ainsi, dans les deux échantillons de Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba₂Cu₃O_{7- δ} et, dans une moindre mesure, YBa₂Cu₃O_{6.85}, le spectre dans le canal optique ne peut pas être reproduit en considérant uniquement un "X-shape" comme dans le canal acoustique. Une contribution supplémentaire doit être ajoutée afin de reproduire la largeur du mode optique et les intensités des signaux incommensurables.

Modélisation par une forme en X renforcée par de nouveaux signaux incommensurables

Nous avons donc introduit un objet supplémentaire aux basses énergies, voir Fig.4.10 a), qui disperse de manière opposée à la dispersion de la résonance optique, afin de reproduire l'intensité aux énergies inférieures à E_0^{op} et les effets de focalisation. Cet objet dont l'intensité est maximum à 35meV est constitué de signaux incommensurables distants de 0.17 r.l.u du vecteur d'onde AF. Cette distance au vecteur d'onde AF est équivalente à celle des signaux incommensurables observés dans l'échantillon de YBCO_{6.85}

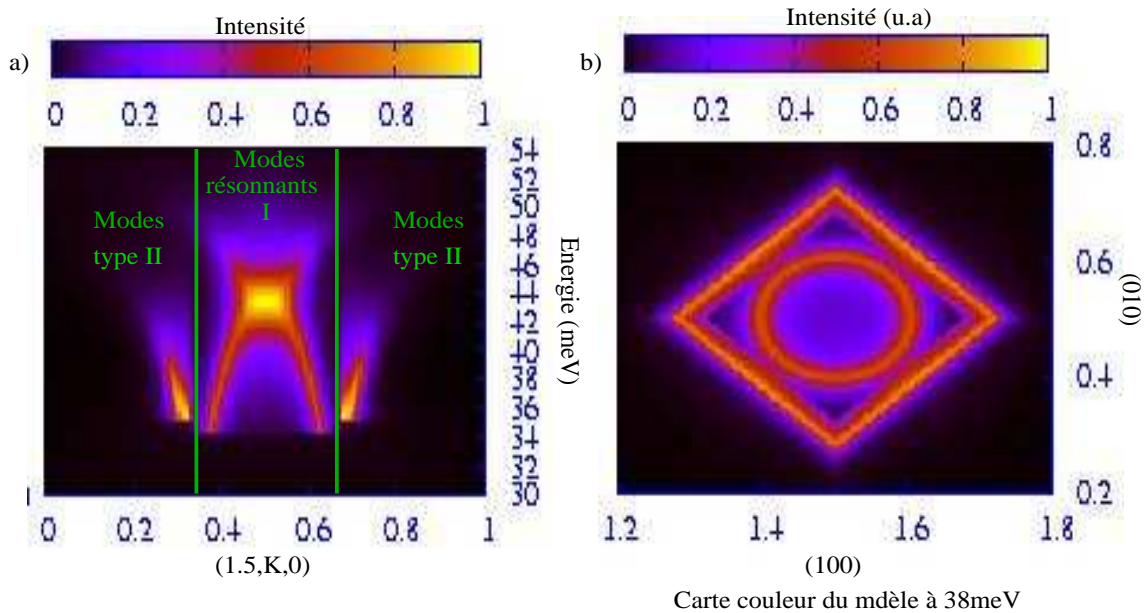


FIG. 4.10 – Sur la figure a) nous représentons le résultat final de la modélisation de la section efficace totale dans le canal optique. Celle-ci est constituée d'une partie "mode résonnant optique" qui a une forme en X et de signaux supplémentaires à basses énergies, "modes de type II". Les traits verticaux verts représentent une zone où l'amortissement est important que nous nommons "bandes muettes". Celle-ci sépare les modes résonnants des modes de type II. Sur la figure b) nous montrons une coupe dans le plan (a^*, b^*) à 38meV de cette section efficace totale optique.

à des énergies supérieures de l'anomalie à 49meV (qui était 0.12r.l.u suivant la direction (110) soit $0.12 \times \sqrt{2} = 0.17$ r.l.u suivant la direction (010)). Par continuité, nous supposons dans notre modélisation que le spectre dans le canal optique peut être décomposé en une composante dite "mode résonnant optique" décrit par l'Eq.4.4 et par des signaux incommensurables à basse énergie que nous nommerons "modes de type II". Comme le suggère les lignes vertes de la Fig.4.10 a), la séparation des deux contributions peut alors être attribuée à la présence d'une zone étroite en vecteur d'onde de fort amortissement. Celle-ci est située à 0.15 r.l.u du vecteur AF suivant la direction (010) (où (100)). Pour définir la forme géométrique dans le plan de base des modes de type II, nous avons réalisé une carte de l'intensité magnétique à 43meV, Fig.4.12, et 38meV, Fig.4.13.

Cartes de l'intensité magnétique à 38meV et 43meV

Nous montrons les différences 10K-100K obtenues suivant plusieurs directions dans le plan de base pour une énergie transférée de 38meV sur la Fig.4.13 b) et de 43meV sur la Fig.4.12 b).

Pas de contribution des chaînes CuO :

Les différences reportées sur les Fig.4.13 et 4.12, montrent que le signal observé ne peut pas provenir des chaînes CuO. En effet, un signal provenant des chaînes serait constitué de lignes d'intensité suivant les directions (100) et (010). De ce fait, nous devrions observer

Coupes le long de la direction $(1.5, K, 0)$ à $E=38\text{meV}$

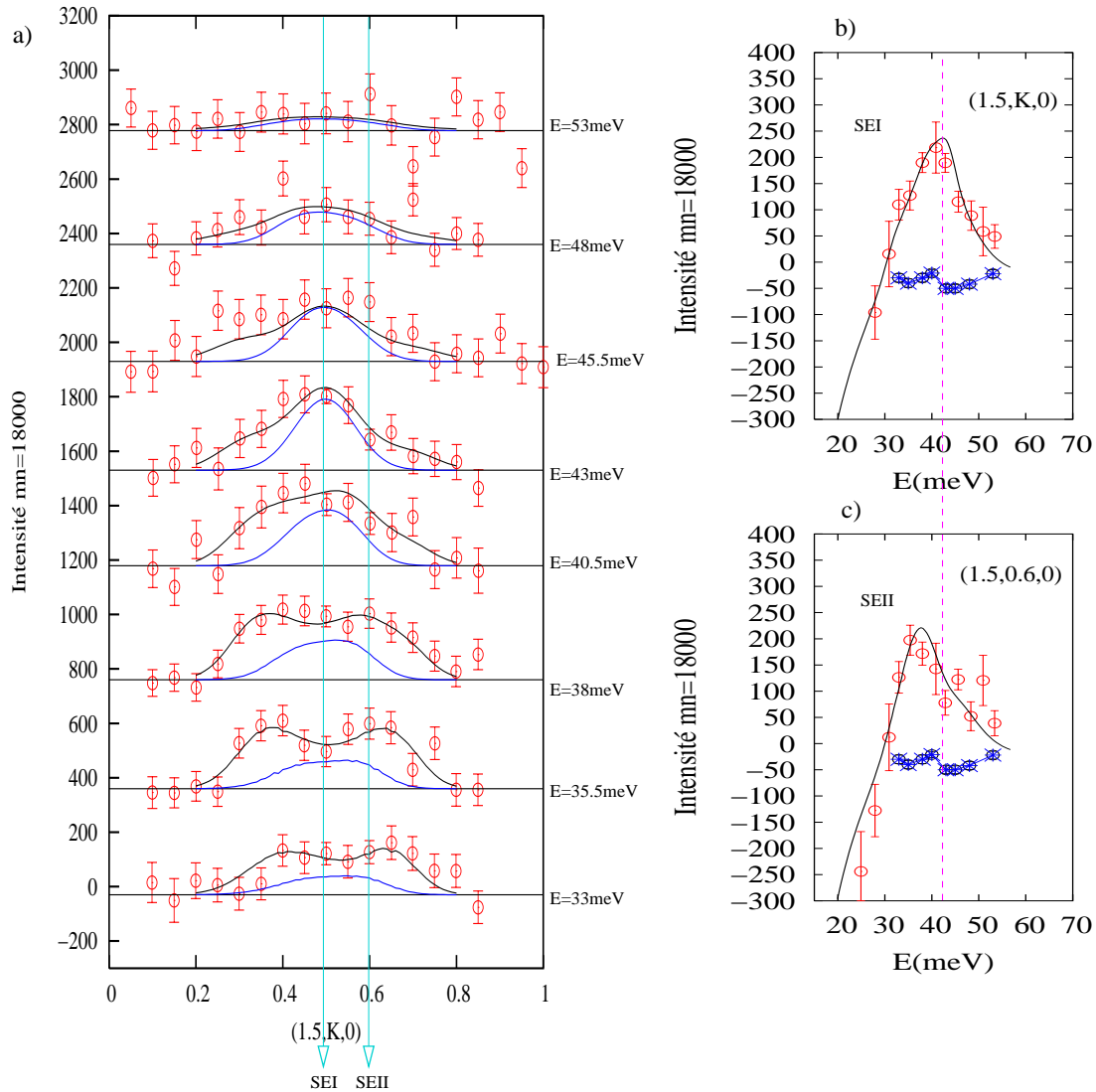


FIG. 4.11 – Figure a) : Différence 10K-100K des coupes réalisées le long de la direction $(1.5, K, 0)$ pour différentes valeurs d'énergie transférée. Pour chaque énergie, les lignes bleues représentent la contribution des modes résonnants optiques uniquement, Eq.4.4. Figures b) et c) : Différence 10K-100K des coupes en énergie réalisées aux vecteurs d'ondes $(1.5, 0.5, 0)$, figure a), et $(1.6, 0.5, 0)$, figure b). Sur toutes les figures, les lignes noires représentent le résultat de la convolution entre la section efficace optique (mode optique + modes de type II) de la Fig.4.10 avec la fonction de résolution. Les étoiles bleues indiquent le niveau de bruit de fond obtenu dans les coupes à énergie constante de la figure a)

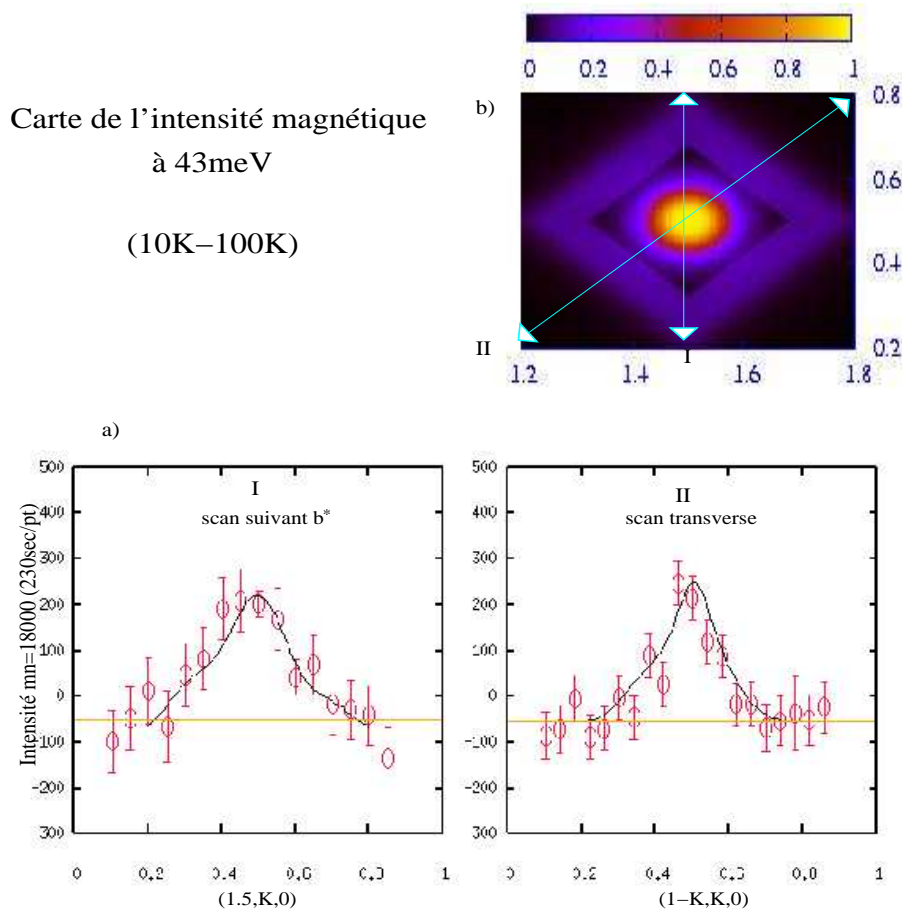


FIG. 4.12 – a), Différences 10K-100K des coupes en vecteur d'onde réalisées à 43meV suivant la direction $(1.5, K, 0)$ et la direction transverse comme schématisé par les flèches bleues sur la carte en couleur, b). Les lignes noires représentent le résultat de la convolution entre la section efficace totale optique (modes résonnants optiques + modes de type II) de la Fig.4.10 avec la fonction de résolution. La carte en couleur correspond à la coupe de la section efficace totale à 43meV

une intensité double au point de croisement des chaînes suivant la direction (110) . Or l'intensité de la différence suivant la direction transverse est seulement légèrement plus grande que l'intensité de la différence suivant b^* comme l'indique les traits en pointillé violet de la Fig.4.13 b).

Modélisation du signal dans le plan de base :

Nous rappelons que la partie "mode résonnant optique", décrite par l'Eq.4.4, est supposée isotrope dans le plan de base. Une coupe à 38meV de cette contribution consiste en un cercle isotrope, voir Fig.4.10 b). Pour les "modes de type II", nous avons envisagé différents profils simples : carré, losange, cercle. Le losange creux au centre donne le meilleur ajustement de l'ensemble des données, Fig.4.10 b). La section efficace des modes de type II s'écrit alors :

$$\frac{1}{E_0^{rII^2}} \frac{\chi''(\vec{q}, \omega)_{opII}}{\chi(\vec{q}_{AF}, 0)} = \left(\frac{\gamma_{II}(\omega)\omega}{(\omega^2 - E_{rII}^2 + \alpha_{II}^2 D(H, K)^2 + (\gamma_{II}(\omega)\omega)^2)} \right)_{E > E_{rII}} \quad (4.6)$$

Carte de l'intensité
magnétique à 38meV
(10K–100K)

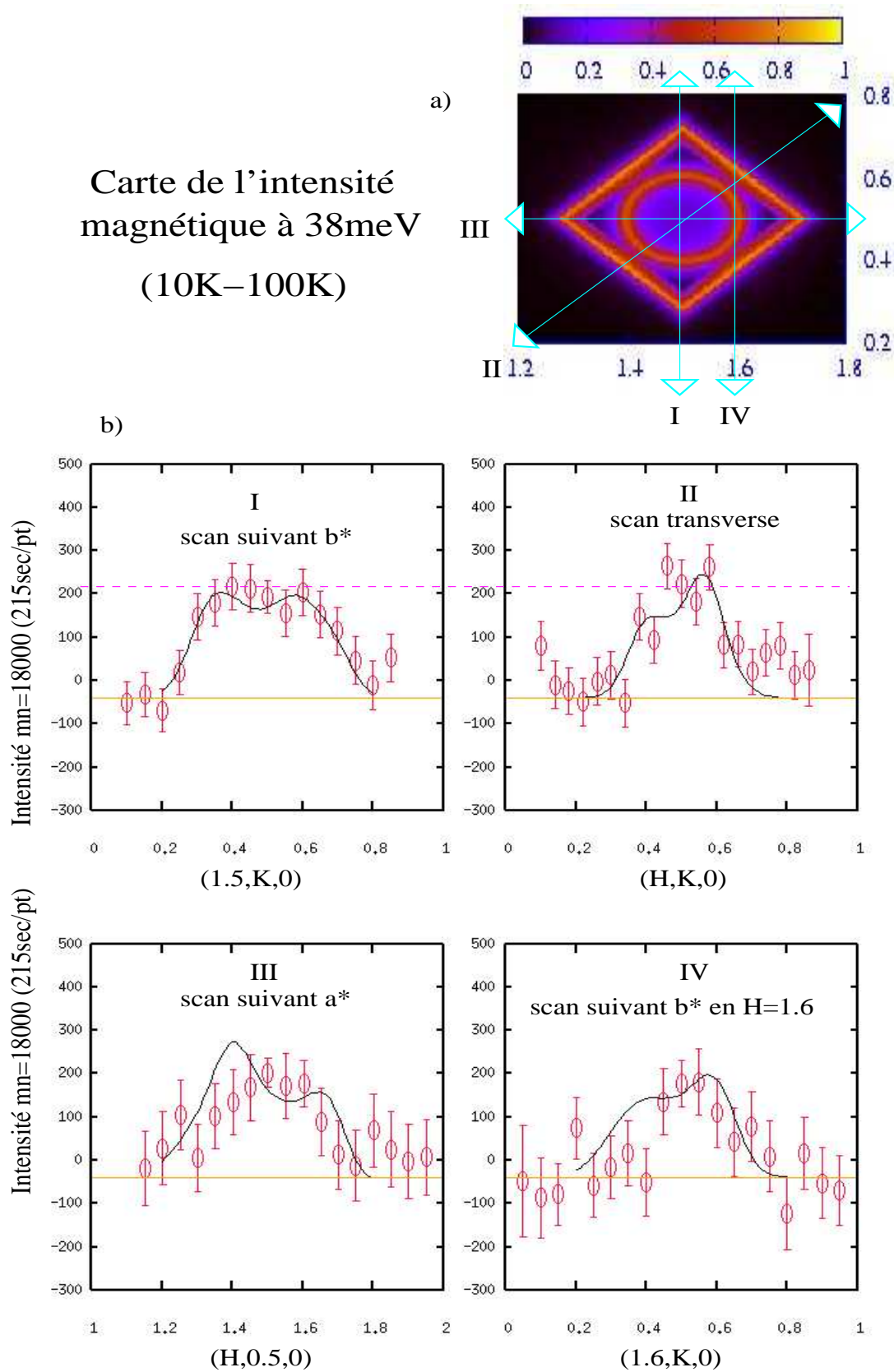
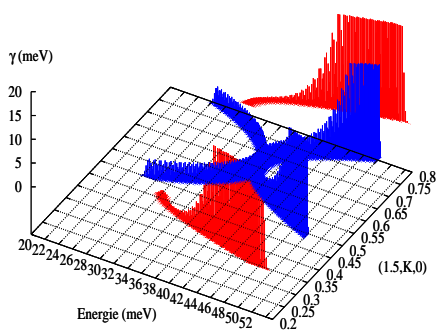


FIG. 4.13 – Différences 10K-100K des coupes en vecteur d'onde réalisées à 38meV dans différentes directions de l'espace réciproque. Les flèches sur la carte en couleur donnent les définitions des coupes en vecteur d'onde. Les lignes noires représentent le résultat de la convolution entre la section efficace totale optique (mode optique + modes de la "silent band"), Fig.4.10, et la fonction de résolution

où $D(H,K)=D_0-(|H|+|K|)$, $\gamma_{II}(\omega)$ l'amortissement dont la dépendance en énergie sera discutée ci-dessous et enfin E_{rII} l'énergie à partir de laquelle les modes dispersent. D'autre part, puisque nous n'avons aucune information sur le facteur de structure de ces modes, nous les avons supposés non modulés suivant l'axe \vec{c} . La section efficace totale du spectre optique est donc la somme des sections efficaces des équations Eq.4.6 et Eq.4.4 :

$$\frac{1}{0.0461f(\vec{q})^2} \left(\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E} \right)^\dagger = Residu_{ac} + \cos^2(Q_l z c) \chi''(\vec{q}, \omega)_{op} + \chi''(\vec{q}, \omega)_{opII} \quad (4.7)$$

Les ajustements de l'ensemble des données ont été réalisés en calculant la convolution entre cette section efficace et la fonction de résolution instrumentale pour l'ensemble des données. Les paramètres ajustés sont résumés dans le tableau ci-dessous :

	Paramètres de $\chi''(\vec{q}, \omega)_{op}$
	$\alpha_- = 120 \text{ meV} \cdot \text{\AA}, \alpha_+ = 135 \text{ meV} \cdot \text{\AA}, \gamma_- = 4 \text{ meV}$ $\gamma_+(\omega)$ en rouge sur le graphe
Paramètres de $\chi''(\vec{q}, \omega)_{opII}$	
$E_{rII} = 35 \text{ meV}, \alpha_{II} = 200 \text{ meV} \cdot \text{\AA}, D_0 = 0.17 \text{ r.l.u}$ $\gamma_{II}(\omega)$ en bleu sur le graphe	

TAB. 4.3 – Valeurs des paramètres d'ajustement de la section efficace optique, Eq.4.7. La figure représente la dépendance en énergie de l'amortissement des modes résonnants optiques, forme en X (bleu), et des modes de type II, ailettes rouges.

Nous avons tracé la dispersion de ce spectre, sans le résidu d'intensité acoustique, en fonction de l'énergie suivant la direction (1.5,K,0) sur la Fig.4.10 a) et des coupes de ce spectre dans le plan de base à 38meV et 43meV sur les Fig.4.13 a) et Fig.4.12 a). Sur ces cartes couleurs, le cercle provient des modes résonnants optiques et le carré des modes de type II. De façon étonnante, nous trouvons que l'intensité intrinsèque des modes de type II, entre 35meV et 38meV, est identique à l'intensité intrinsèque du mode résonnant optique à E_0^{op} . C'est la première fois, que l'on observe une intensité similaire au vecteur d'onde AF et à des positions incommensurables. Toutes les courbes noires des figures 4.11, 4.12 et 4.13 représentent le résultat de la convolution entre la section efficace du spectre optique, Eq.4.7, avec la fonction de résolution instrumentale.

Les paramètres contrôlant la forme en X du spectre résonnant optique sont semblables à ceux obtenus pour le spectre acoustique dans $\text{YBCO}_{6.85}$. La modélisation inclut un gap de spin à 35meV, voir Fig.4.10, et un amortissement fort pour des énergies supérieures à E_0^{op} . Sur la Fig.4.11 (lignes bleues), nous avons tracé la contribution à l'ajustement global (lignes noires) de ce spectre résonnant optique, $\chi''(\vec{q}, \omega)_{op}$. Du fait de la mauvaise

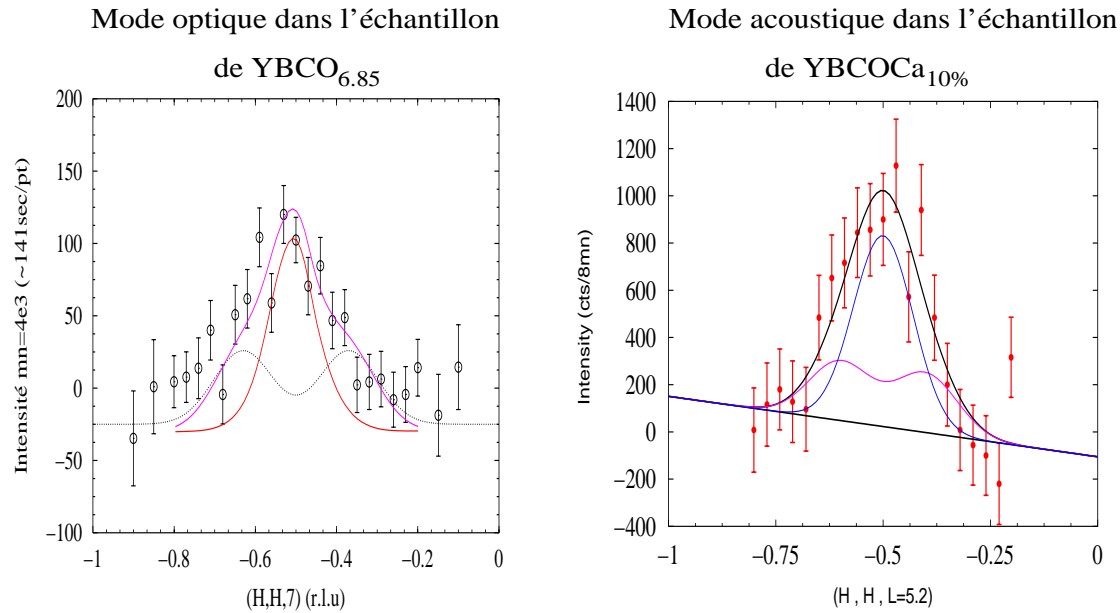


FIG. 4.14 – Sur la figure a) nous montrons le résultat de la convolution entre une forme en X identique à celle du spectre acoustique dans l'échantillon de $\text{YBCO}_{6.85}$, courbe rouge, auquel nous avons ajouté des signaux supplémentaires incommensurables. Sur la figure b), nous avons réalisé un ajustement gaussien de la coupe en vecteur d'onde du mode acoustique mesuré à 36meV en ajoutant le contribution des modes de types II, courbe violette.

résolution suivant l'axe b^* , les pics incommensurables des modes résonnants optiques, aux basses énergies, ne sont pas discernables.

Sur la figure incluse dans le Tab.4.3, on observe que le spectre des modes de type II commence à 35meV avec un amortissement à hautes énergies, ailettes rouges, qui croît fortement à partir de 40meV . Le sur-amortissement apparaît à une énergie plus grande pour les modes résonnants optiques que pour les modes de type II.

Sur l'ensemble des données de cette expérience, seule la différence suivant la direction $(H, 0.5, 0)$ de la Fig.4.13 b) est mal ajustée aux petites valeurs de vecteur d'onde. Ceci est due à un effet de focalisation avec la dispersion des modes résonnants optiques. On peut alors suspecter que la contribution de ces modes est encore moins importante à 38meV .

Une origine possible à la largeur en vecteur d'onde du mode optique et à l'élargissement en vecteur d'onde de la résonance acoustique dans le régime surdopé

A 43meV , voir Fig.4.12 b), l'intensité provient essentiellement du spectre résonnant optique (rond jaune), ce qui explique que le signal mesuré est commensurable et isotrope dans le plan de base (rappelons que pour pouvoir comparer les largeurs du signal suivant la direction transverse et suivant la direction $(1.5, K, 0)$, l'axe des abscisses sur la coupe transverse doit être multiplié par un facteur $\sqrt{2}$). Le résidu d'intensité des modes de type II (carré violet) permet de produire des "ailettes" sur les bordures de la coupe à 43meV , Fig.4.12 a). Nous interprétons ainsi la largeur en vecteur d'onde du signal à 43meV comme

étant liée à une somme de deux contributions distinctes : modes résonnants optiques + modes de type II.

Si, comme nous l'avons supposé dans notre modélisation, les modes de type II ne sont pas modulés suivant l'axe \vec{c} , des structures similaires sont présentes à la même énergie dans le canal acoustique. Sur la Fig.4.14 b), nous avons réalisé un ajustement gaussien de la coupe en vecteur d'onde du mode acoustique à 36meV en ajoutant la contribution des modes de type II, courbe violette de la Fig.4.14 b). La contribution des modes de types II a été obtenue d'après un ajustement par deux fonctions gaussiennes de la coupe suivant b^* à 38meV, Fig.4.12 b). Sans la contribution des modes de types II, nous obtenons une largeur gaussienne déconvoluée de $0.36 \pm 0.05 \text{ \AA}^{-1}$. Avec la contribution des modes de types II, nous trouvons alors une largeur gaussienne déconvoluée de 0.26 \AA^{-1} parfaitement compatible avec la largeur de la résonance mesurée dans Y123 au voisinage du dopage optimal et dans le régime sousdopé[95, 96]. La présence des modes de types II au voisinage de l'énergie de la résonance peut donc être une origine possible de son élargissement dans le régime surdopé.

Revenons maintenant à la modélisation du mode optique dans l'échantillon de $\text{YBCO}_{6.85}$, partie 3.2.3. La largeur gaussienne déconvoluée de ce mode est de $0.46 \pm 0.05 \text{ \AA}^{-1}$. Il nous était impossible d'obtenir un ajustement de l'ensemble du spectre en considérant une forme en X à cause de la largeur en vecteur d'onde trop importante du mode. Sur la Fig.4.14 a), nous montrons le résultat de la convolution entre la fonction de résolution instrumentale et une forme en X identique à celle de la résonance acoustique. Des signaux incommensurables ont été ajoutés pour reproduire la largeur en vecteur d'onde. Ces signaux correspondent à environ 30% de l'intensité des structures incommensurables acoustiques à 54meV, Fig.3.6. Nous avons déduit de notre analyse dans la partie 3.2.2, que 20% de l'intensité de ces signaux incommensurables doit apparaître dans le canal optique. Dans les barres d'erreur, les deux analyses sont cohérentes et indiquent que le mode optique à 43meV est constitué de deux contributions distinctes.

Les critiques de l'analyse

Dans ce petit paragraphe, nous mettons en évidence les difficultés de l'analyse réalisée précédemment et nous justifions la nécessité d'utiliser un produit de convolution numérique pour l'analyse.

Déformation de l'intensité intrinsèque :

Sur la Fig.4.15 b), nous avons représenté la coupe à 38meV de la section efficace optique totale, Eq.4.7, multipliée par le facteur de forme du cuivre au carré, voir Fig.2.1, $F_{Cu}(x, y)$. Celui-ci rend l'intensité du signal plus forte aux petites valeurs de vecteur d'onde. Sur la Fig.4.15 c), nous montrons la variation d'intensité relative suivant la direction diagonale indiquée par la flèche bleue sur la Fig.4.15 b) : $R=100 \times (I_{modele}F_{Cu}(x, y) - I_{modele}F_{Cu}(1.5, 0.5)) / (I_{modele}F_{Cu}(x, y) + I_{modele}F_{Cu}(1.5, 0.5))$. L'amplitude maximum de la déformation est de 10%. A cette première déformation du signal intrinsèque s'ajoute les déformations causées par la convolution avec la fonction de résolution instrumentale qui sont : i) les effets de focalisation, voir Fig.2.10, et ii) les changements de forme et de taille de l'ellipsoïde de résolution suivant le point où il est calculé. En effet, nous avons calculé

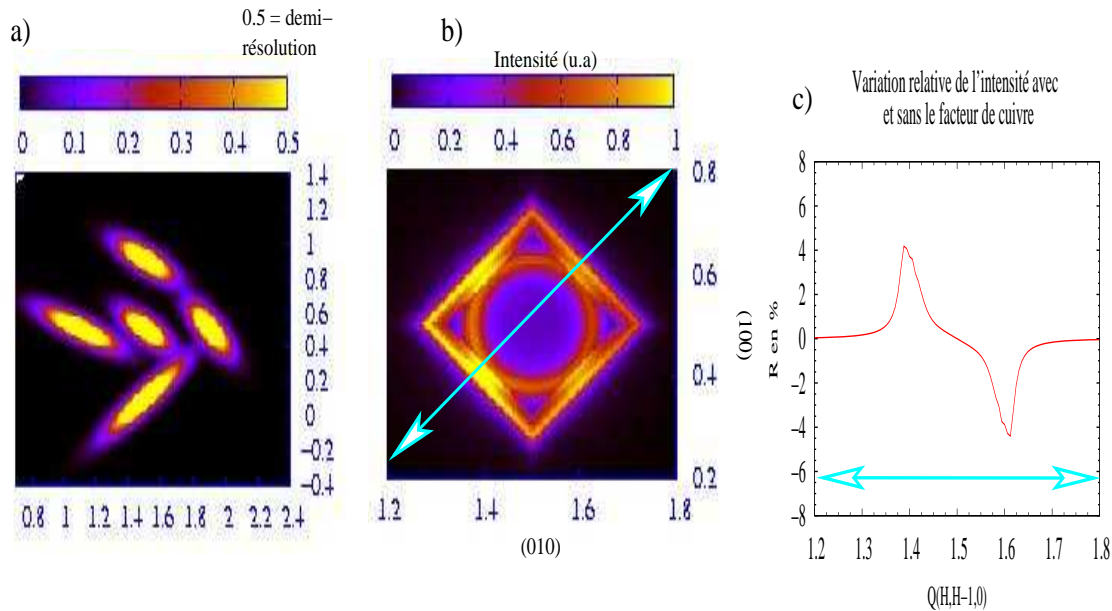


FIG. 4.15 – Sur la figure a), nous représentons l’ellipsoïde de résolution calculé en différents points du plan de base. Sur la b), nous montrons le produit de la section efficace optique totale, Eq.4.7, multipliée par le facteur de forme du cuivre au carré. Sur la figure c), nous reportons la variation d’intensité induit par cette multiplication le long de la ligne tracée sur la figure b).

et tracé cet ellipsoïde de résolution, intégré en énergie, dans le plan de base en quatre points distincts sur la Fig.4.15. Nous montrons que son volume et son orientation peuvent beaucoup changer sur des courtes distances dans l’espace. Ces changements brutaux se produisent essentiellement aux limites des conditions cinématiques, Eq.2.2. Ainsi, dans une analyse détaillée qui a pour but de retrouver la forme intrinsèque du signal à partir des données, il est important de disposer d’un outil qui permet de réaliser la convolution numérique à 4 dimensions de la fonction de résolution avec une section efficace donnée.

Unicité de notre modélisation :

Notre modélisation n’est pas unique, mais elle permet d’établir une continuité avec les mesures dans l’état sousdopé. Du fait de la quantité de données et de la statistique, nous avons supposé des formes simples et isotropes dans le plan pour modéliser les modes de types II. Des expériences sont à imaginer afin d’affiner cette modélisation.

4.1.3 Conclusion et perspective

Notre étude sur cet échantillon de $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ ($T_c^{onset} = 85.5K$) a mis en évidence :

- 1) **L’existence des résonances optique et acoustique dans le régime légèrement surdopé.** Comme pour les autres dopages, les modes sont d’origine magnétique, disparaissent à la transition supraconductrice et sont d’intensité maximum au vecteur d’onde AF. Par rapport au dopage optimum où la résonance acoustique est mesurée à 41meV et la résonance optique à 53meV, les modes apparaissent à plus basses énergies, respectivement 36meV et 43meV. Ainsi en allant dans le régime surdopé,

les modes se rapprochent en énergie. L'énergie de la résonance acoustique continue de suivre la loi $5k_B T_c$. En revanche, sur les deux mesures existantes dans le diagramme de phase, l'énergie du mode optique ne suit pas une loi constante puisqu'elle passe de $6.8k_B T_c$ au régime optimum à $5.8k_B T_c$ dans le régime légèrement surdopé. Enfin, le poids spectral total des résonances optique et acoustique, $\langle W \rangle$ (Eq.3.10), Tab.4.1, évolue en allant vers le régime surdopé : les modes sont plus intenses dans l'échantillon sousdopé mais plus larges dans l'échantillon surdopé.

- 2) **Nos résultats suggèrent l'existence une dispersion dans le canal optique.** De part et d'autre de l'énergie du mode optique à 43meV nous avons observé des signaux incommensurables qui semblent disperser vers les hautes et basses énergies. Ces signaux sont d'origine magnétique et disparaissent à la transition supraconductrice. L'ensemble du spectre optique peut être décrit par la combinaison d'une forme en X, centrée au vecteur d'onde AF et à l'énergie de la résonance optique, et de signaux supplémentaires incommensurables, modes de types II.
- 3) L'étude dans le plan de base du spectre optique à 43meV et 38meV montre que **le signal optique ne provient pas des chaînes CuO**. La section efficace optique totale peut être décrite par une dispersion isotrope circulaire associée à la résonance optique et par une dispersion isotrope carrée associée aux modes de type II.
- 4) l'existence des modes de type II fournit une interprétation simple à l'élargissement apparent de la résonance optique par rapport à la résonance acoustique. En effet, dans les deux échantillons YBCO_{6.85} et YBCOCa10%, la résonance optique apparaissait beaucoup plus large que la résonance acoustique. La largeur optique peut alors être attribuée à la somme de deux contributions : celle de la résonance optique + celle des modes de type II.

Le futur :

Nous devons maintenant améliorer la résolution en vecteur d'onde et en énergie afin de pouvoir mieux séparer les différentes contributions participant au spectre optique et ainsi préciser leurs dispersions et formes. L'existence de tels modes devraient être également vérifiée dans le composé YBCO_{6.85} par des mesures dans le plan de diffusion $\{(310);(001)\}$ Une expérience importante à réaliser dans cet échantillon est l'étude plus précise du spectre acoustique. Celle-ci permettra de confirmer l'existence d'une dispersion (nous en avons de bonnes indications) et surtout elle permettra de situer d'éventuels modes de type II par rapport à ceux du canal optique. D'après nos mesures sur le YBCO_{6.85}, on peut envisager que les modes de type II, n'étant pas modulés suivant l'axe \vec{c} , devraient être observés également dans le canal acoustique.

4.2 Le système $Y_{0.85}Ca_{0.15}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$

4.2.1 Mesure des modes acoustique et optique par DIN dans $Y_{0.85}Ca_{0.15}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ ($T_c^{onset}=75K$)

Conditions expérimentales

Les résultats présentés dans cette partie sur ce système ont été obtenus sur le spectromètre trois axes IN8. L'échantillon a été aligné dans le plan de diffusion $\{(110);(001)\}$ ce qui permet d'avoir accès à des vecteurs d'onde de la forme $Q=(H,H,L)$, où H et L sont les composantes du vecteur \vec{Q} suivant les vecteurs du réseau réciproque $\vec{a}^* = \frac{2\pi}{a}\vec{i}_{100}$, $\vec{b}^* = \frac{2\pi}{a}\vec{j}_{010}$ et $\vec{c}^* = \frac{2\pi}{c}\vec{k}_{001}$ avec $a=b=3.85\text{\AA}$ et $c=11.85\text{\AA}$. Nous avons travaillé à énergie finale fixe égale à 35meV soit ($k_f \sim 4.1\text{\AA}^{-1}$). Nous avons utilisé le monochromateur et analyseur graphite PG002 afin d'avoir le maximum de flux. Pour éliminer les contaminations des diffusions d'ordre multiple nous avons utilisé un filtre graphite sur k_f . Les conditions de focalisation sont satisfaites pour les valeurs négatives de H, voir Fig.2.14. Nous avons donc mesuré autour du point $(-0.5,-0.5,L>0)$. Enfin, l'échantillon a été fixé au bout de la canne d'un cryostat orange qui permet de descendre sa température jusqu'à 5K.

Description des résultats expérimentaux : dispersion dans le canal acoustique + mode optique incommensurable

Mode acoustique et mode optique :

La différence des coupes en énergie au vecteur d'onde AF $(-0.5,-0.5,5.2)$ entre $T=5K (< T_c)$ et $T=85K (> T_c)$ dans le canal acoustique, Fig. 4.16 b), montre l'existence de la résonance acoustique à $E_0^{ac}=34\text{meV}$ avec une largeur gaussienne déconvoluée de $\Delta E^{ac}=12\text{meV}$. Sur la Fig. 4.16 a), nous reportons les coupes brutes à 5K et 85K correspondantes. Dans le canal optique en $L=3.4$, des différences similaires, Fig. 4.16 c), montrent que la résonance optique est centrée à $E_0^{ac}=35\text{meV}$ avec une largeur gaussienne déconvoluée de $\Delta E^{ac}=12\text{meV}$. En tenant compte des différences du facteur de forme du cuivre entre $L=5.4$ et $L=3.4$, le rapport d'intensité au maximum des modes est de 2. Ainsi, les deux modes résonnants apparaissent dans cet échantillon à des positions en énergie proches, comme nous le pensions, mais avec des intensités différentes. Les suivis en température de l'intensité magnétique, Fig.4.20 b), dans le canal acoustique, au vecteur d'onde $(-0.5,-0.5,5.4)$ à $E=34\text{meV}$, et dans le canal optique, au vecteur d'onde $(-0.55,-0.75,3.4)$ à $E=37\text{meV}$, prouvent que les deux modes résonnants apparaissent bien dans la phase supraconductrice (nous justifierons par la suite le choix du vecteur d'onde incommensurable optique $(-0.55,-0.75,3.4)$). Nous nous sommes assurés de l'origine magnétique des modes acoustique et optique en réalisant des coupes suivant l'axe \vec{c} au vecteur d'onde AF pour une énergie de transfert de 34meV. La différence 5K-85K de ces coupes est reportée sur la Fig.4.18 a) et montre que l'intensité du mode diminue avec l'augmentation de l'amplitude du vecteur d'onde prouvant ainsi l'origine magnétique du signal. Cette différence peut être correctement ajustée par la somme d'une modulation acoustique et d'une modulation optique dont les intensités sont fixées par les différences des coupes en énergie des figures Fig. 4.16 b) et c). Nous montrons sur la Fig.4.18 a), le résultat d'un tel ajustement en indiquant les différentes contributions. Pour le mode optique, nous avons également

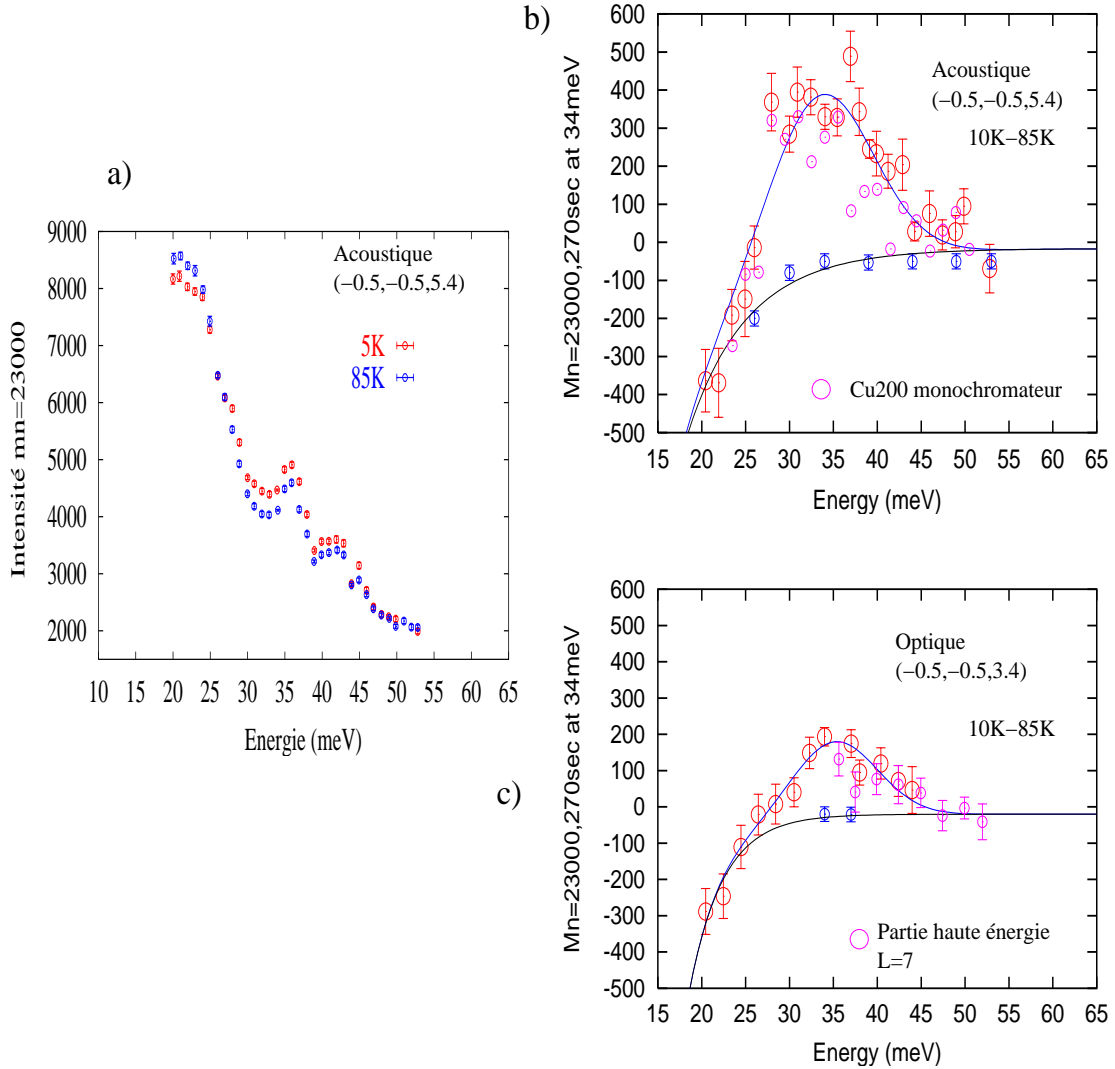


FIG. 4.16 – Sur la figure a), nous montrons les coupes brutes en énergie mesurées à 5K et 85K au vecteur d'onde AF dans le canal acoustique en $L=5.4$ et dans le canal optique en $L=3.4$. Sur la figure b) et c), nous reportons les différences des coupes en énergie au vecteur d'onde AF $(-0.5, -0.5, 5.4)$ entre $T=5K (< T_c)$ et $T=85K (> T_c)$ dans le canal acoustique et au vecteur d'onde AF $(-0.5, -0.5, 3.4)$ dans le canal optique. Les équations de conservation ne nous permettant pas de monter à très haute énergie dans le canal optique en $L=3.4$, nous avons mesuré les points à haute énergie en $L=7$. Nous avons reporté la différences 5K-85K de ces points, points violets sur la figure b), en tenant compte du rapport du facteur de forme du cuivre entre $L=3.4$ et $L=7$. Enfin, sur les figures b) et c), les ronds bleus correspondent aux points de bruit de fond obtenu par des différences 5K-85K des coupes suivant la ligne magnétique (110)

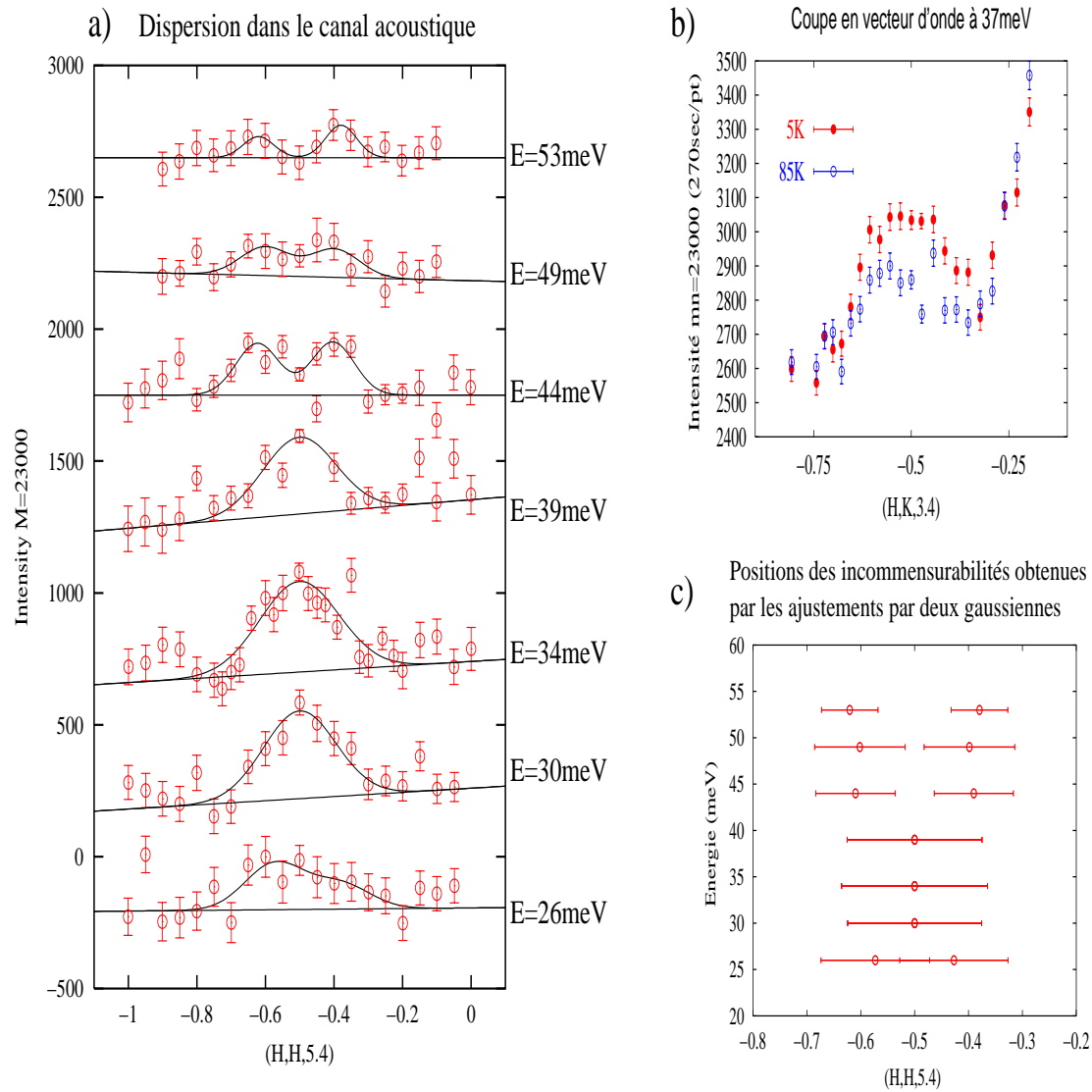


FIG. 4.17 – Sur la figure a), nous reportons les différences 5K-85K des coupes réalisées le long de la direction (110) pour différentes valeurs d'énergie indiquées à droite de la figure. Pour chaque énergie, les lignes noires représentent un ajustement par une ou deux fonctions gaussiennes centrées en $(1.5, 0.5 \pm \delta, 0)$. Les positions incommensurables déduites de cet ajustement sont reportées sur la figure c). Les barres d'erreur correspondent aux largeurs à mi-hauteur des gaussiennes. Sur la figure b), nous montrons les coupes brutes en vecteur d'onde à 5K et 85K pour une énergie de transfert de 37meV

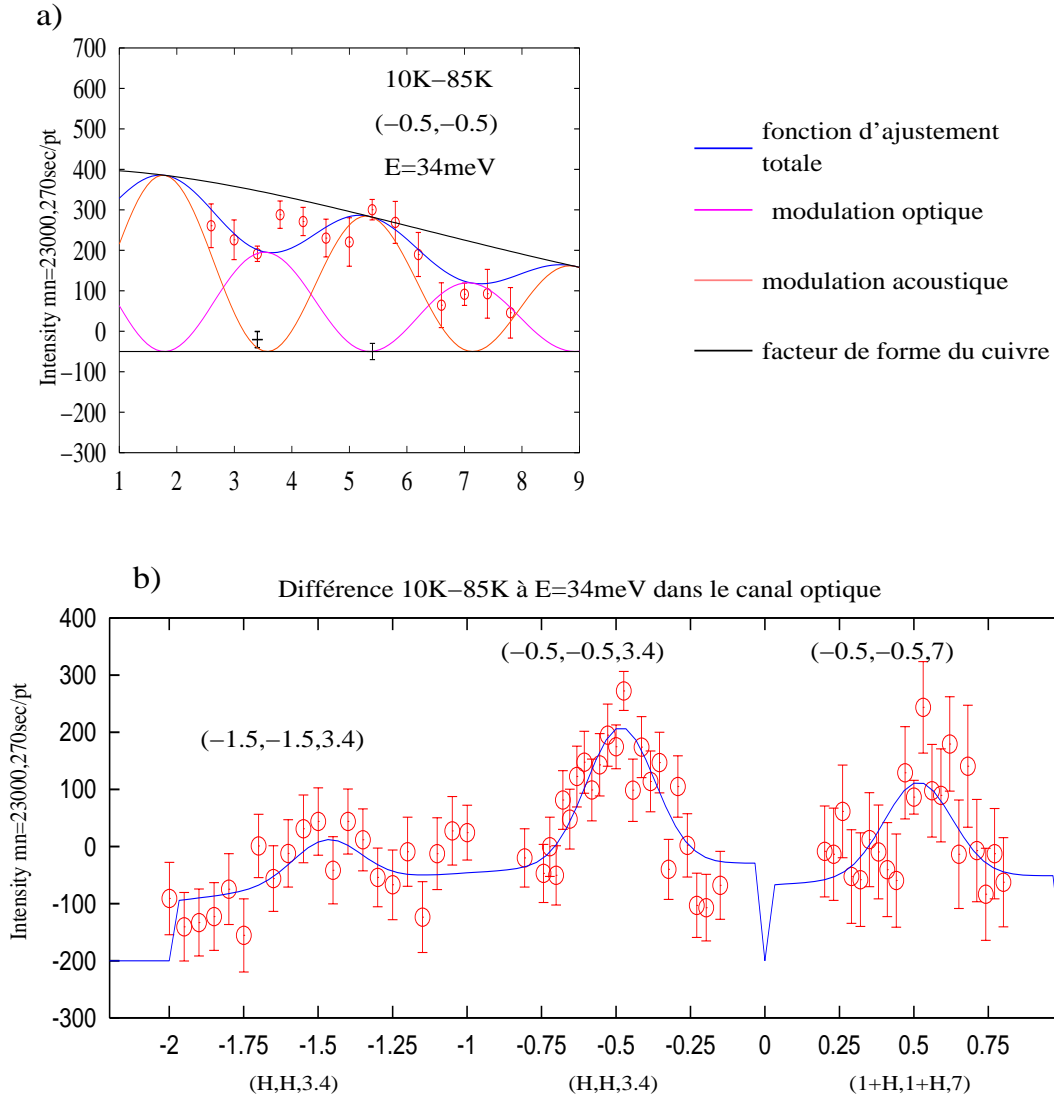


FIG. 4.18 – Sur la figure a), nous reportons les différences 10K-85K des coupes réalisées le long de la direction (001) au vecteur d'onde AF et à une énergie de 34meV. Le signal peut être interprété comme une combinaison de la modulation acoustique et optique (voir texte). Sur la figure b), nous montrons les différences 10K-85K, des coupes en vecteur d'onde autour du vecteur d'onde AF précisé en haut de chaque différence. La différence au vecteur d'onde AF $(-0.5, -0.5, 3.4)$ a été ajustée par une fonction gaussienne, ligne bleue. Les lignes bleues sur les autres différences ont été simplement obtenues en multipliant l'ajustement précédent par le facteur de forme magnétique isotrope du cuivre.

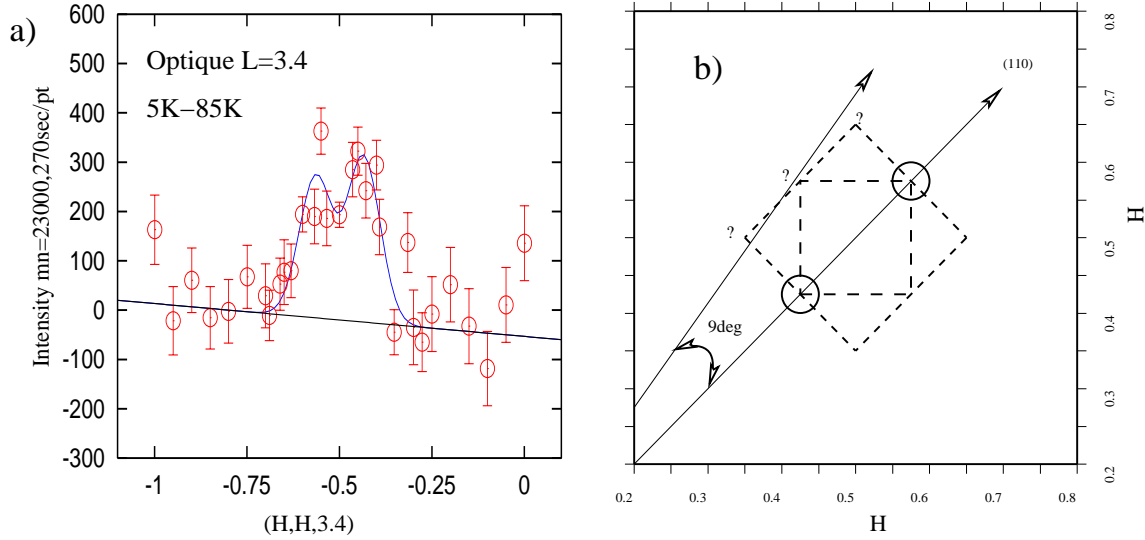


FIG. 4.19 – Sur la figure a), nous montrons les différences 5K-85K des coupes en vecteur d’onde réalisées dans le canal optique, $L=3.4$, autour du vecteur d’onde AF à 34meV. Le signal est incommensurable le long de la direction 110. Afin de connaître la distribution de l’intensité dans le plan de base, nous avons tourné l’échantillon afin de repérer d’éventuels maxima. L’angle de rotation, 9° a été choisi en supposant une forme carrée du signal dans le plan de base.

mesuré son intensité dans une autre zone de Brillouin au vecteur d’onde AF(-1.5,-1.5,0) à 37meV, Fig.4.18 b) et nous observons également une diminution du signal. Nous avons donc prouvé l’existence des modes acoustique et optique dans cet échantillon. Nous allons maintenant nous intéresser aux dispersions de ces modes.

Dispersion dans le canal acoustique :

Sur la Fig.4.17 a), nous montrons les différences des coupes suivant la direction (110) entre $T=5K (< T_c)$ et $T=85K (> T_c)$ pour différentes énergies transférées entre 26meV et 53meV. Les coupes brutes à 37meV sont montrées sur la Fig.4.17 b). Le signal est commensurable à 30, 34 et 39 meV, des incommensurabilités apparaissent nettement à haute énergie jusqu’à 53meV. Nous reportons sur la Fig.4.17 c) l’ensemble des positions incommensurables obtenues par un ajustement de deux fonctions gaussiennes centrée en $(-0.5 \pm \delta, -0.5 \pm \delta, 5.4)$ des coupes en vecteur d’onde de la Fig.4.17 a). Il est remarquable d’observer dans cet échantillon surdopé un spectre magnétique sur une gamme d’énergie aussi grande ($\sim 17\text{meV}$), équivalente à celle de l’échantillon $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$ étudié dans la partie 3.2.2 dans l’état légèrement sousdopé.

Pour ce dopage, $2\Delta_{max}$ est localisé à une énergie inférieure à 40meV, Fig.1.22, nous pouvons donc conclure que les incommensurabilités observées au delà de 40meV sont vraisemblablement localisées dans le continuum d’excitations électron-trou. En plus de s’étendre sur une grande gamme d’énergie, ce spectre s’étend largement sur la zone de Brillouin : en effet, la largeur intrinsèque déconvoluée de la résonance à 34meV est de 0.45\AA^{-1} c’est à dire quasiment deux fois plus grande que la largeur de la résonance acoustique usuelle dans Y123 de l’ordre de 0.25\AA^{-1} [95]. Ainsi, la résonance dans cet échantillon

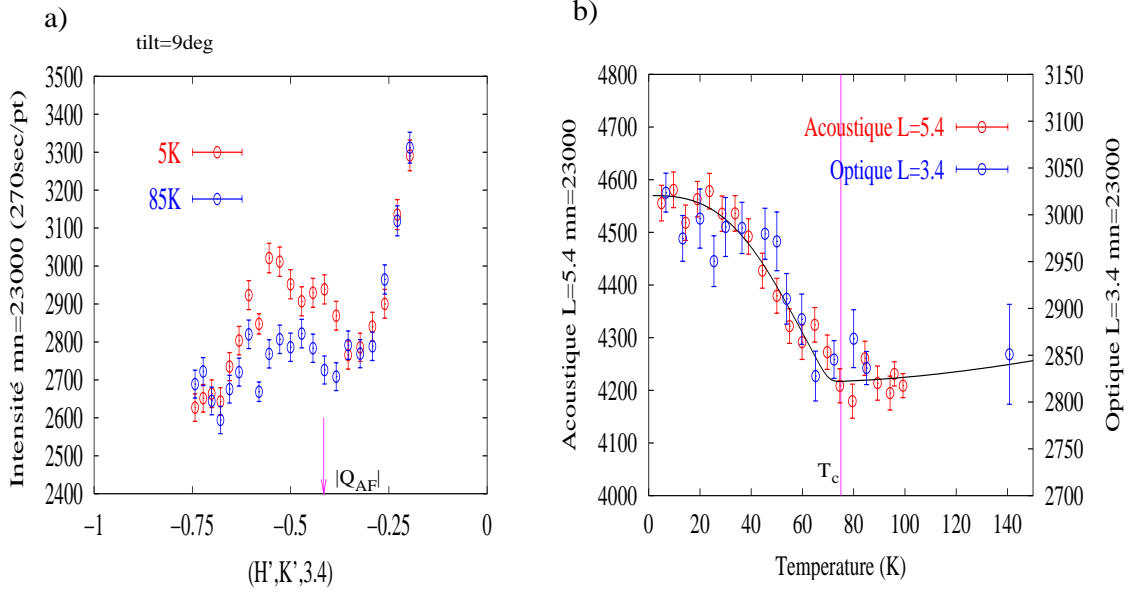


FIG. 4.20 – Sur la figure a) nous reportons les coupes en vecteur d’onde réalisées à 37meV dans le canal optique suivant la direction décalée de 9° par rapport à l’axe (110) à 37meV. En abscisse, les coordonnées H' et K' sont définies par : $H' = |Q| \cos(45 + \phi)$ et $K' = |Q| \sin(45 + \phi)$ où $\phi = 9\text{deg}$. La ligne violette correspond à la coordonnée H' à laquelle $|Q| = |Q_{AF}|$. Sur la figure b), nous montrons le suivi en température de l’intensité de la résonance acoustique au vecteur d’onde AF(-0.5,-0.5,5.4) à 34meV, en points rouges sur l’échelle de gauche, et celui du point incommensurable optique (-0.55,-0.75,3.4) à 37meV de la figure a), points bleus et échelle de droite.

surdopé est moins intense que la résonance dans le sousdopé mais beaucoup plus large. Comme les fenêtres en énergie du spectre total sont quasiment équivalentes, nous montrons que le poids spectral total dans cet échantillon surdopé n’est que sensiblement plus faible que le poids spectral total dans le régime sousdopé.

Dispersion dans le canal optique :

Nous reportons les différences 5K-85K des coupes réalisées suivant la direction (110) dans le canal optique en $L=3.4$ à 34meV, Fig.4.19 a) ou Fig.4.21 a), et à 37meV, Fig.4.21 a). Aux deux énergies, le signal n’est pas maximum au vecteur d’onde AF(-0.5,-0.5,3.4) mais sur des positions incommensurables distantes de 0.08 r.l.u du vecteur AF. Un tel comportement de la résonance n’a jamais été observé dans Y123 : il y a toujours une énergie, où le signal apparaît commensurable et d’intensité maximum. Cette énergie définit la position de la résonance. Dans le cas présent, à l’énergie du mode optique, l’intensité est maximum sur des positions incommensurables. Sur la différence des coupes à 34meV Fig.4.19 a), l’intensité au point (-0.6,-0.6,3.4) est d’environ 300cts, soit 75% de l’intensité du mode acoustique à son maximum (le facteur de forme de cuivre étant pris en compte). Ainsi, les intensités maximums des modes acoustique et optique sont quasiment similaires. Cependant, le comportement en vecteur d’onde du mode optique est pathologique. Afin de comprendre la distribution en vecteur d’onde de cette structure incommensurable dans le canal optique, nous avons réalisé des coupes suivant une direction tournée

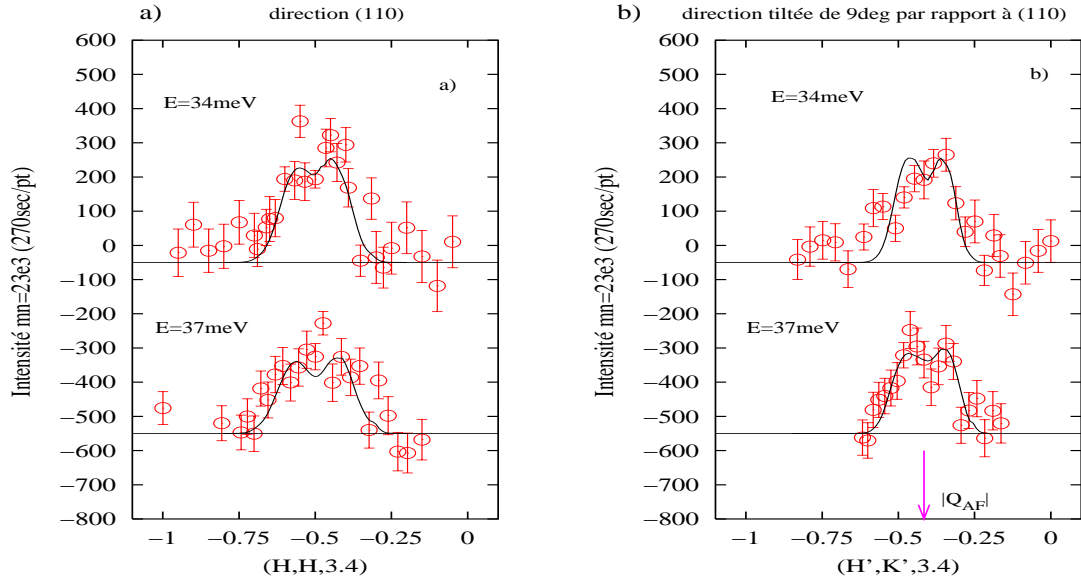


FIG. 4.21 – Sur la figure a) nous reportons les différences 5K-85K des coupes réalisées suivant la direction (110) à 34meV et 37meV dans le canal optique en $L=3.4$. Sur la figure b), nous montrons les différences similaires suivant la direction inclinée de 9° . L'axe des abscisses sur la figure b) a été défini dans la légende de la Fig.4.20. Les lignes noires correspondent au résultat PCN entre la fonction de résolution instrumentale et le modèle du spectre optique décrit dans le texte.

de 9° par rapport à l'axe (110) dans le plan de base, voir Fig.4.19 b). Ce décalage correspond à l'angle d'éventuel spots incommensurables suivant les axes a et b du crystal, calculé à partir du paramètre d'incommensurabilité à 34meV (0.08 r.l.u), en supposant une géométrie carrée du spectre dans le plan de base. Nous reportons sur la Fig.4.20 a) les coupes en vecteur d'onde, suivant cette direction inclinée, mesurées à 5K et 85K à une énergie de 37meV. La différence de ces coupes à 37meV ainsi que celles réalisées à 34meV sont montrées sur la Fig.4.21 b). Sur les deux coupes, le signal est incommensurable et d'intensité identique à celui des coupes "non-tiltées". Ainsi, l'ensemble des différences montrent clairement que le signal optique est incommensurable. Nous reportons sur la Fig.4.20 b) le suivi en température sur la position incommensurable $(-0.55, -0.75, 3.4)$, de la coupe Fig.4.20 a), qui montre que le signal disparaît à la transition supraconductrice de la même manière que celui de la résonance acoustique.

Même en combinant les mesures directes et les mesures inclinées à 9° , nous ne pouvons malheureusement pas conclure sur la structure du signal dans le plan de base. La cause vient essentiellement de la taille importante de la résolution instrumentale suivant l'axe transverse (1-10). En effet, l'échantillon étant aligné dans le plan de diffusion $\{(110);(001)\}$, la résolution suivant l'axe (1-10) est très mauvaise à cause de la divergence verticale du faisceau. Sur la Fig.4.24 b), nous représentons la taille de l'ellipsoïde de résolution dans le plan de base. Nous avons également essayé d'introduire une fente de 2cm (la fente initiale étant de 8cm) devant le détecteur afin de réduire la divergence verticale mais nous avons essentiellement perdu de l'intensité sans pouvoir résoudre mieux la structure [170].

Forme en X
dans le canal acoustique

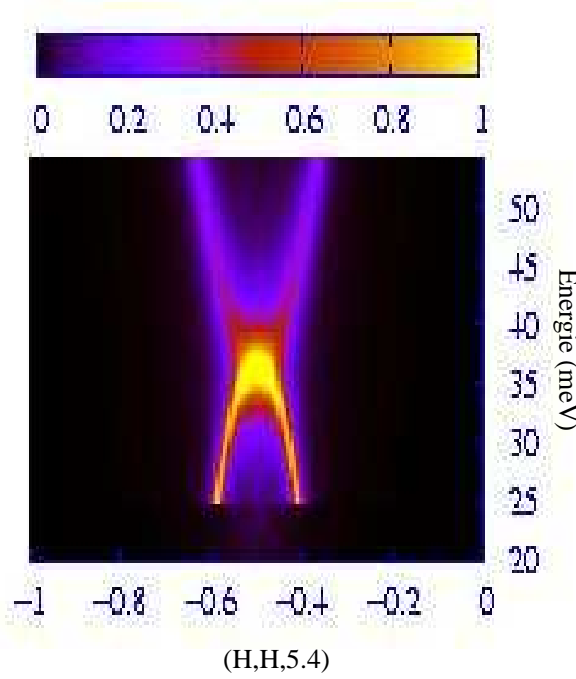


FIG. 4.22 – Carte de la forme en X qui permet de modéliser le spectre acoustique

Modélisation

Modélisation du spectre acoustique :

Nous avons modélisé le spectre acoustique en utilisant simplement une forme en X sur-amortie. Nous avons utilisé l'oscillateur harmonique amorti habituel comme fonction d'ajustement. La partie imaginaire de la susceptibilité dans le canal acoustique est :

$$\frac{1}{E_r^2} \frac{\chi''(\vec{q}, \omega)_{ac}}{\chi(q_{AF}, 0)} = \left(\frac{\gamma_- \omega}{(\omega^2 - E_r^2 + (\alpha_-(q - q_{AF}))^2 + (\gamma_- \omega)^2)} \right)_{E < E_0^{ac}} + \quad (4.8)$$

$$r \times \left(\frac{\gamma_+ \omega}{(\omega^2 - E_r^2 - (\alpha_+(q - q_{AF}))^2 + (\gamma_+ \omega)^2)} \right)_{E > E_0^{ac}} \quad (4.9)$$

où $r \sim 1$, $\chi(q_{AF}, 0) = \mu_B^2 \cdot \text{eV}^{-1}$, $\alpha_+ = \alpha_- = 125 \text{ meV} \cdot \text{\AA}$, $\gamma_- = 4 \text{ meV}$ et $\gamma_+ = 9 \text{ meV}$ sont les valeurs des paramètres du modèle obtenues après ajustement. Nous représentons sur la Fig.4.22 c) une carte couleur de la dispersion suivant la direction (110) de cette partie imaginaire.

La section efficace acoustique est :

$$\frac{1}{0.0461 f(\vec{q})^2} \left(\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E} \right)^\dagger = \sin^2(Q_l z c) \chi''(\vec{q}, \omega)_{ac} \quad (4.10)$$

Sur chaque différence des Fig.4.23 a) et c), les lignes noires correspondent au résultat de la convolution entre la fonction de résolution instrumentale et de cette section efficace. En utilisant cette description simple nous reproduisons correctement les largeurs

Modèle avec une forme en X

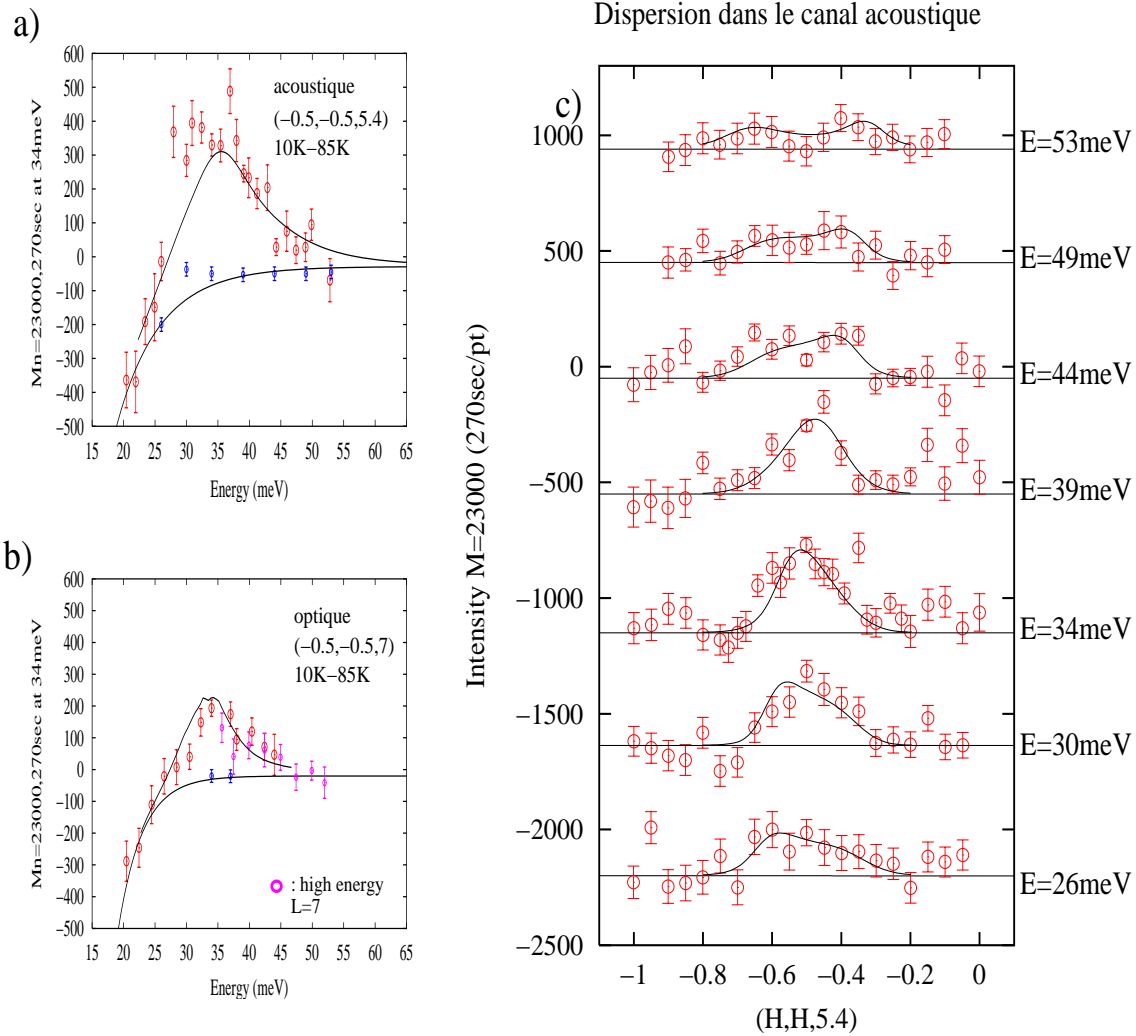


FIG. 4.23 – Les figures a) et b) correspondent aux coupes en énergie présentées dans la Fig.4.16 et la figure c) aux coupes en vecteur d'onde présentées dans la Fig.4.17. Les lignes noires sur ces figures résultent du résultat de la convolution entre la section efficace acoustique, Eq.4.10, et optique, Eq.4.12, avec la fonction de résolution instrumentale.

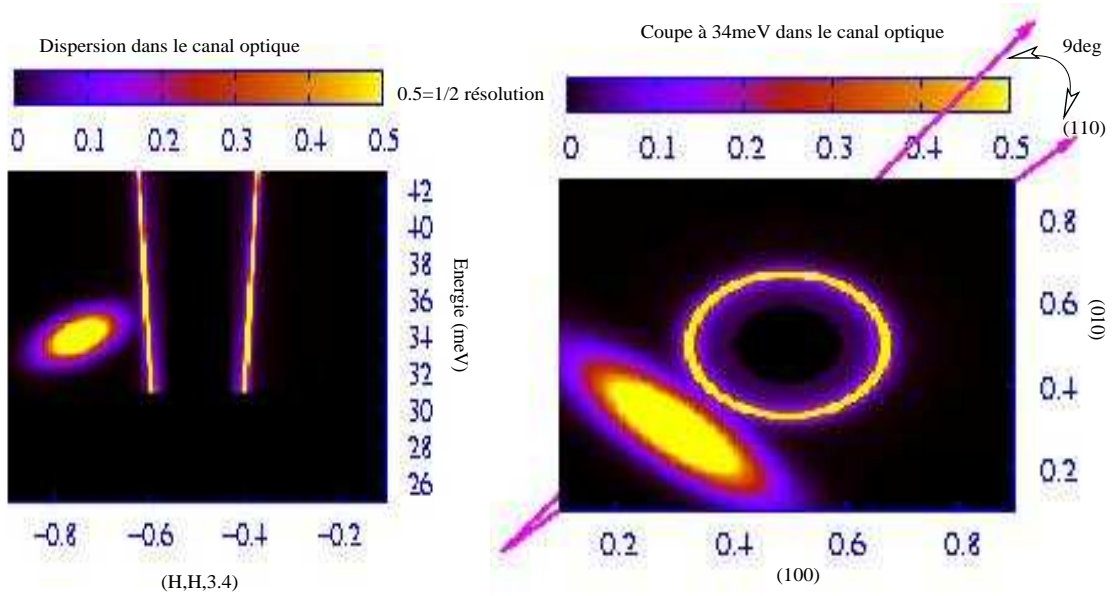


FIG. 4.24 – Sur la figure de gauche nous montrons la dispersion suivant l'axe (110) du modèle du spectre optique décrit dans le texte. Sur la figure de gauche, le cercle jaune correspond à une coupe à 34meV de ce modèle dans le plan de base. Afin de rendre compte des tailles de résolution, nous avons calculé, au point AF(-0.5,-0.5,3.4) et à 34meV, et tracé l'ellipsoïde de résolution. Les lignes violettes indiquent les deux directions de coupe directe et inclinée

des différences de la Fig.4.23 à 34 et 39 meV à cause des forts amortissements γ_- et γ_+ . En revanche, nous reproduisons moins bien les incommensurabilités à plus haute énergie car l'amortissement, γ_- , est trop important. Etant donné la statistique et la quantité de donnés, nous ne pouvons aller plus loin dans la description de ce spectre. Notamment, nous ne pouvons pas préciser l'origine des amortissements γ_- et γ_+ . Dans le chapitre précédent nous avons montré une origine possible à la largeur apparente de la résonance optique en utilisant des signaux supplémentaires dits "mode de type II". Une expérience intéressante consisterait à améliorer les conditions de résolution et d'étudier précisément le spectre magnétique autour de 34meV afin de savoir si la largeur observée de la résonance n'est pas due à la présence de deux contributions distinctes.

Modélisation du spectre optique :

Nous avons modélisé simplement le spectre optique en considérant une forme circulaire qui disperse vers les hautes énergies décrite par :

$$\chi''(\vec{q}, \omega)_{op} = \left(\frac{\gamma_{op}\omega}{(\omega^2 - E_s^2 + \alpha_{op}^2(q - q_{AF})^2 + (\gamma_{op}\omega)^2)} \right)_{E > \omega_s} \quad (4.11)$$

où $\alpha_{op}^2 = 180 \text{ meV} \cdot \text{\AA}$, $\gamma_{op} = 3 \text{ meV}$, $E_s = 25 \text{ meV}$ est l'origine de la dispersion et $\omega_{op} = 31 \text{ meV}$ le gap de spin à basses énergies. E_s est imposé arbitrairement et n'a aucun sens physique. Nous avons essayé d'autres formes géométriques continues (carré, losange) pour l'ajustement des données dans le canal optique mais sur l'ensemble des différences, toutes les formes ont fourni des résultats similaires et le cercle donne le meilleur rapport qualité/simplicité étant donné la quantité de résultats. Sur les Fig.4.24 a) et b), nous avons

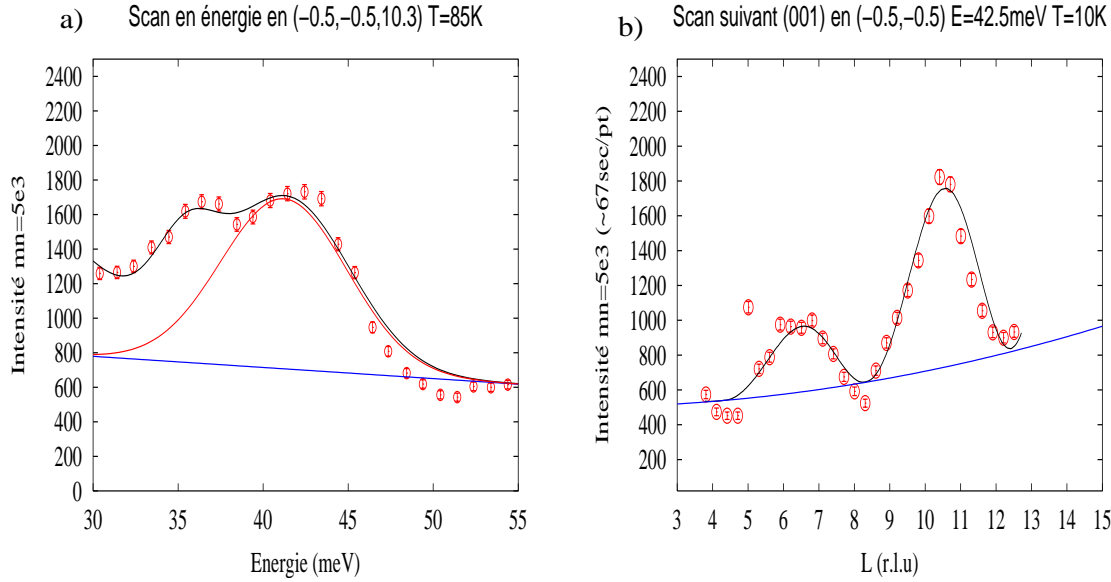


FIG. 4.25 – *Phonon optique* : nous reportons sur la figure a) le scan en énergie au vecteur d'onde $(-0.5, -0.5, 10.3)$ et sur la figure b), un scan suivant l'axe \vec{c} à 42.5meV réalisé à $T=85\text{K}$ au-dessus de T_c . Les ligne noires correspondent au résultat du produit de convolution numérique entre la section efficace du phonon et l'ellipsoïde de résolution

représenté la dispersion suivant l'axe (110) ainsi qu'une coupe à 34meV dans le plan de base, du spectre optique décrit par l'équation Eq.4.11. La section efficace dans le canal optique est donc :

$$\frac{1}{0.0461 f(\vec{q})^2} \left(\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E} \right)^\dagger = \cos^2(Q_{\parallel} z c) \chi''(\vec{q}, \omega)_{op} \quad (4.12)$$

Les lignes noires, sur les Fig.4.21 et Fig.4.23, montrent le résultat de la convolution entre la fonction de résolution instrumentale avec cette section efficace.

Mise en absolu de l'intensité magnétique :

Pour calibrer l'intensité du faisceau de neutrons, nous avons utilisé la mesure du phonon optique à 42.5meV , associé au mode de vibration des atomes d'oxygène du plan de base suivant l'axe \vec{c} , dont la section efficace a été donnée au chapitre précédent. Sur les Fig.4.25 a) et b), nous montrons le résultat de la convolution numérique entre cette section efficace et l'ellipsoïde de résolution suivant une coupe en énergie a) et une coupe suivant l'axe \vec{c} b).

Pour modéliser la section efficace magnétique, nous avons utilisé des gaussiennes en énergie et en vecteur d'onde. Pour le mode optique, comme celui-ci n'est pas commensurable, nous avons ajusté le spectre avec deux gaussiennes de part et d'autre de q_{AF} . Le résultat de la calibration donne :

Mode acoustique	
Poids spectral	$W(Q_{AF})=0.45 \mu_B^2$
Susceptibilité locale	$\chi''_{2D}=2.2 \mu_B^2 \cdot \text{eV}^{-1} \cdot \text{fu}^{-1}$
Poids spectral total	$\langle W \rangle = 0.031 \mu_B^2 \cdot \text{fu}^{-1}$
Mode optique	
Poids spectral	$W(Q_{AF})=0.18 \mu_B^2$
Susceptibilité locale	$\chi''_{2D}=2.1 \mu_B^2 \cdot \text{eV}^{-1} \cdot \text{fu}^{-1}$
Poids spectral total	$\langle W \rangle = 0.027 \mu_B^2 \cdot \text{fu}^{-1}$

TAB. 4.4 –

4.2.2 Conclusion et perspectives :

Cette première expérience dans l'échantillon $Y_{0.85}Ca_{0.15}Ba_2Cu_3O_7$ a permis de montrer :

- i L'existence de la résonance acoustique, à $E_0^{ac}=34\text{meV}$, et de la résonance optique, à $E_0^{op}=37\text{meV}$, dans le régime surdopé de Y123, $\delta = 0.2$. Les deux modes sont centrés sur des positions en énergie proche et leurs intensités au vecteur d'onde AF diffèrent d'un facteur quasiment 2.
- ii De façon surprenante, le spectre acoustique s'étend sur une grande gamme d'énergie, entre 25meV et 54meV, de même amplitude que la gamme des fluctuations magnétiques dans l'échantillon légèrement sousdopé de YBCO_{6.85}, voir Chap.3.2. Le spectre acoustique peut être modélisé par une forme en X amortie. Le poids spectral total des fluctuations acoustiques est réduit d'un facteur 2 par rapport à celui de Y123 au voisinage du dopage optimum.
- iii Encore plus surprenant, le mode optique apparaît uniquement incommensurable et son intensité sur les positions incommensurables égale à celle du mode acoustique. Nous trouvons que le poids spectral total optique est équivalent au poids spectral total acoustique.

Le futur :

Beaucoup de mystères restent à élucider sur le spectre des fluctuations magnétiques dans cet échantillon. Dans le canal acoustique, nous n'avons pas repéré de gap de spin, il serait donc intéressant de réaliser des coupes en vecteur d'onde à des énergies plus basses que 26meV. Mais surtout il reste à éclaircir le comportement des fluctuations magnétiques dans le canal optique. C'est la première fois dans YBCO qu'une résonance magnétique apparaît uniquement incommensurable. Il nous manque des coupes en vecteur d'onde à des énergies inférieures à 34meV afin de savoir où se trouve réellement le gap de spin, ω_{op} . De même à haute énergie, il serait intéressant de savoir si, comme dans le canal acoustique, le spectre optique s'étale jusqu'à 53meV. Puis enfin, il nous manque une cartographie de l'intensité à 34meV et à des énergies intermédiaires afin d'extraire correctement la distribution d'intensité du signal incommensurable dans le plan de base. Les expériences futures permettront d'en savoir davantage.

4.3 Mesures RAMAN dans le système $Y_{1-y}Ca_yBa_2Cu_3O_{7-\delta}$

Dans cette partie, nous présentons les résultats des expériences de diffusion Raman électronique réalisées dans les échantillons de $Y_{1-y}Ca_yBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ ($y \sim 0.1-0.15$). Nous montrons l'évolution du signal électronique dans les symétries B1g, A1g et B2g du dopage optimum au régime surdopé. Ces mesures ont été réalisées en collaboration avec C. Ulrich².

L'originalité des résultats présentés dans cette partie, est qu'ils ont été obtenus sur les mêmes échantillons que ceux étudiés par DIN. Un des objectifs de nos mesures est de comparer sur un même système les positions des résonances magnétiques optique et acoustique à celle de $2\Delta_{max}$. Par DIN, nous avons mis en évidence une évolution de la position et de l'intensité relative des modes résonnants magnétiques acoustique et optique avec le dopage : l'écart en énergie des modes est de 12meV avec un rapport d'intensité de 6 dans l'échantillon légèrement sousdopé de YBCO_{6.85}, alors que les modes apparaissent à la même énergie avec des intensités proches dans l'échantillon surdopé YBCO_{Ca15%}. Nous désirons relier cette évolution à celle de $2\Delta_{max}$ déduit de la mesure du signal B1g dans l'état supraconducteur. En effet, nous supposons que le pic B1g observé par diffusion Raman dans l'état supraconducteur correspond à la position de $2\Delta_{max}$ [179, 194, 185]. Le second intérêt des mesures couplées DIN/Raman est de confirmer et de poursuivre, dans le régime surdopé, la correspondance phénoménologique réalisée entre le pic de résonance magnétique et le pic électronique dans le canal A1g[184, 171].

4.3.1 Résultats Raman dans le système $Y_yCa_{1-y}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$

Nous avons mesuré la réponse Raman dans les trois canaux B1g, A1g+B2g et B2g, des échantillons R10a, R10b, R15a, R15b et R15c dans l'état normal (T=90K) et dans l'état supraconducteur (T=15K). Les caractéristiques de ces échantillons sont rassemblées dans le Tab.2.4. Pour les deux échantillons R10a et R10b, nous avons réalisé la mesure sur deux spots distincts de la surface. Nous montrons sur les Fig.4.26 et Fig.4.27, les spectres obtenus dans l'échantillon R10a sur ces deux spots. Sur les figures 4.28,4.29,4.30,4.34, nous reportons les spectres des échantillons R10b, R15a, R15b et R15c. Nous montrons le spectre dans le canal A1g obtenu par différence des spectres A1g+B2g et B2g, ainsi que les différences 15K-95K pour les symétries A1g et B1g.

Dans ce qui suit, nous discutons de l'évolution en fonction du dopage de la réponse électronique dans les trois symétries étudiées dans les échantillons R10a, R10b, R15a et R15b. L'échantillon le plus surdopé, R15c, est traité séparément.

Evolution du gap supraconducteur - réponse Raman dans le canal B1g

De la Fig.4.26 à la Fig.4.30, le graphe a) représente la réponse Raman mesurée dans le canal B1g à 15K et 95K, et le graphe e) la différence 15K-95K des spectres du graphe a). Dans ce paragraphe, nous nous référons aux spectres et différences de ces graphes. Sur l'ensemble des spectres B1g, et conformément aux données déjà existantes[182, 183, 184, 185], l'évolution de la réponse Raman à travers T_c est marquée par une modification de comportement du continuum électronique. En diminuant la température, on observe une perte

²Max-Planck-Institut Stuttgart

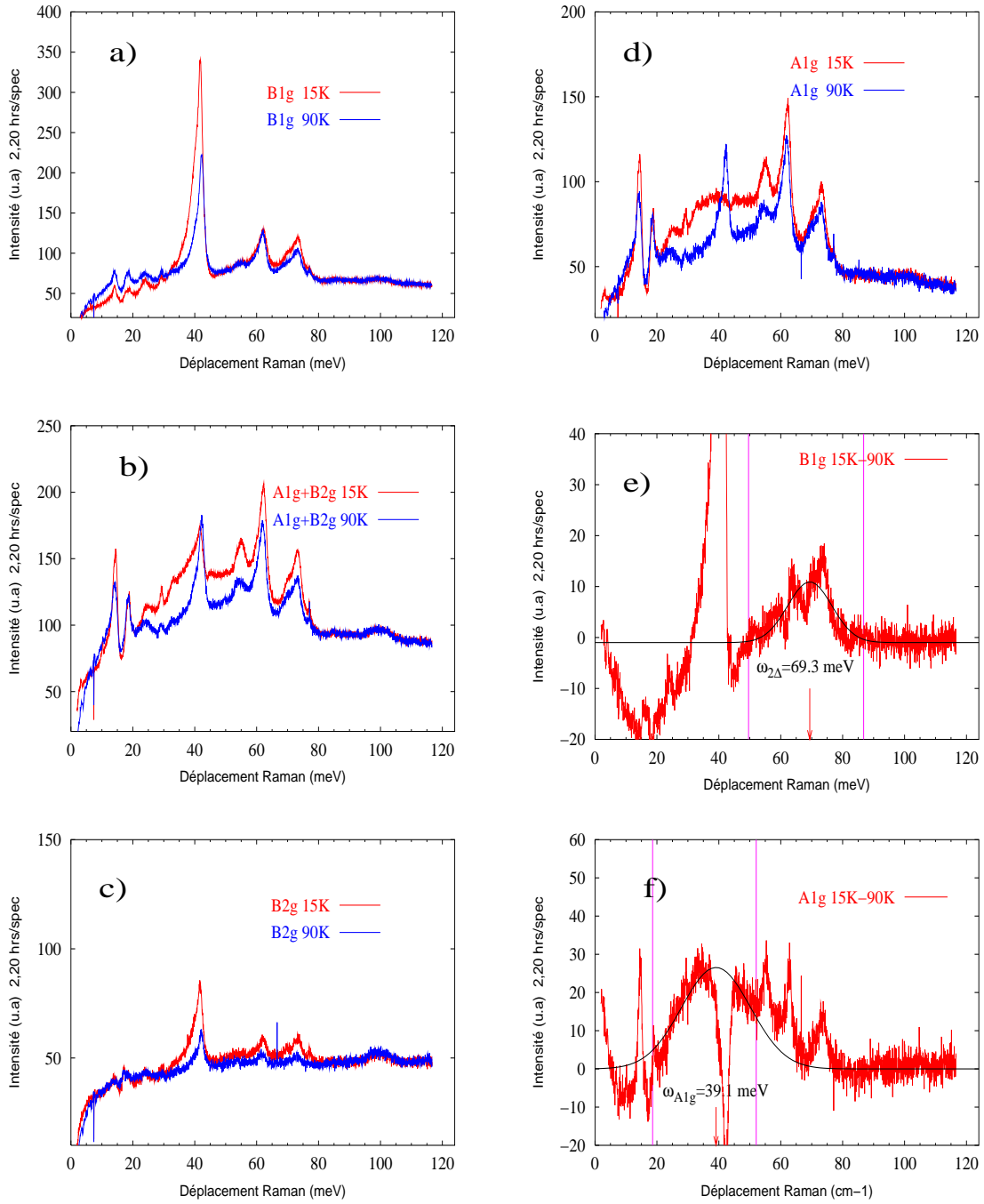


FIG. 4.26 – Echantillon R10a spot 1 : spectre Raman à 15K ($< T_c$) et 95K ($> T_c$) dans les canaux B1g, a), A1g+B2g, b), et B2g, c). Ces spectres ont été corrigés du facteur de Bose et normalisés sur la partie haute fréquence (> 80 meV). Sur la figure d), nous représentons la réponse A1g obtenue par différence des réponses A1g+B2g, b), et B2g, c) à chaque température. Enfin, sur les figures e) et f), nous reportons les différences 15K-95K des réponses dans le canal B1g, a), et le canal A1g, d). Les traits noirs correspondent à des ajustements par des fonctions gaussiennes sur des intervalles délimités par les lignes violettes.

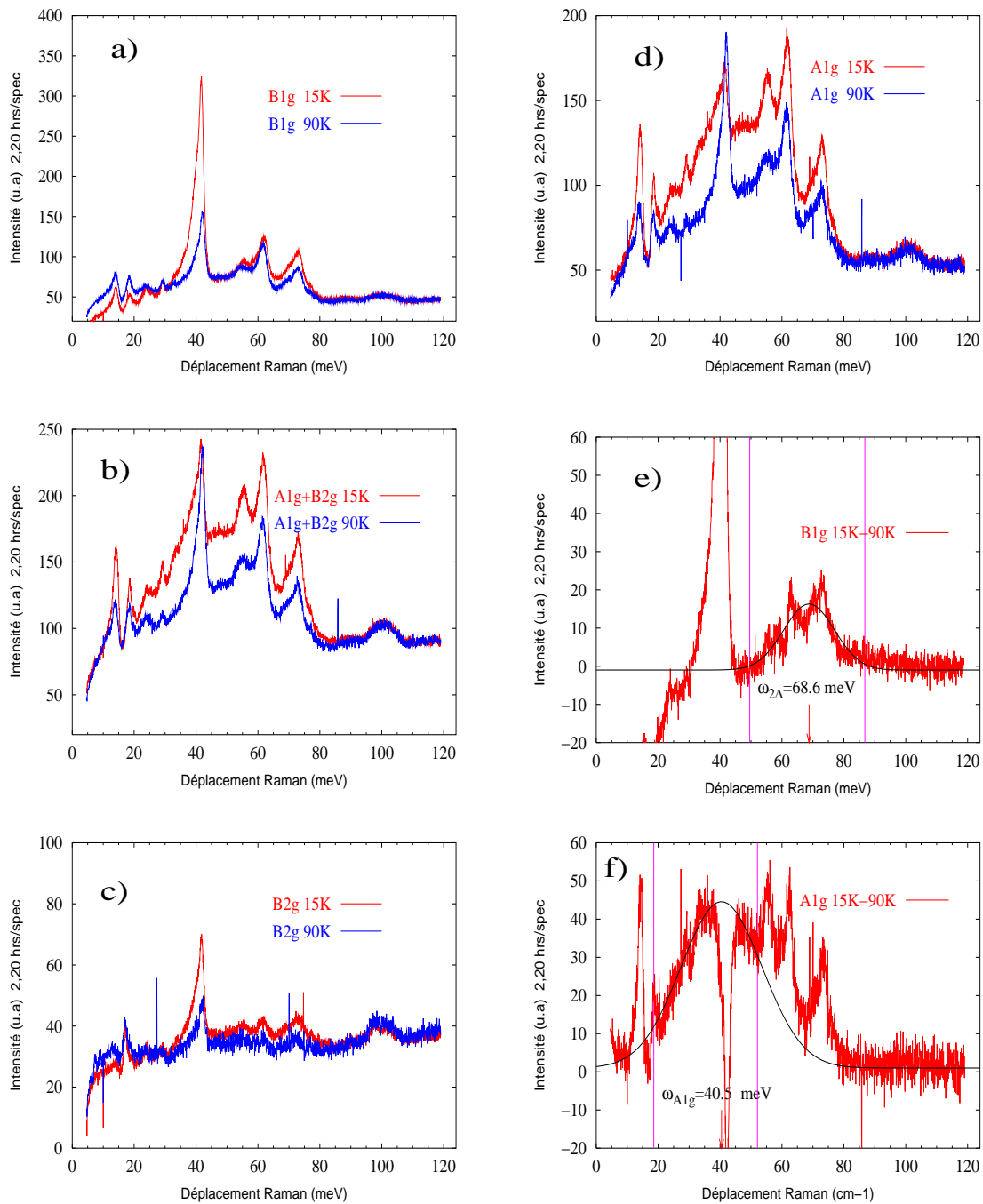


FIG. 4.27 – Echantillon R10a spot 2 : même légende que celle de la Fig.4.26

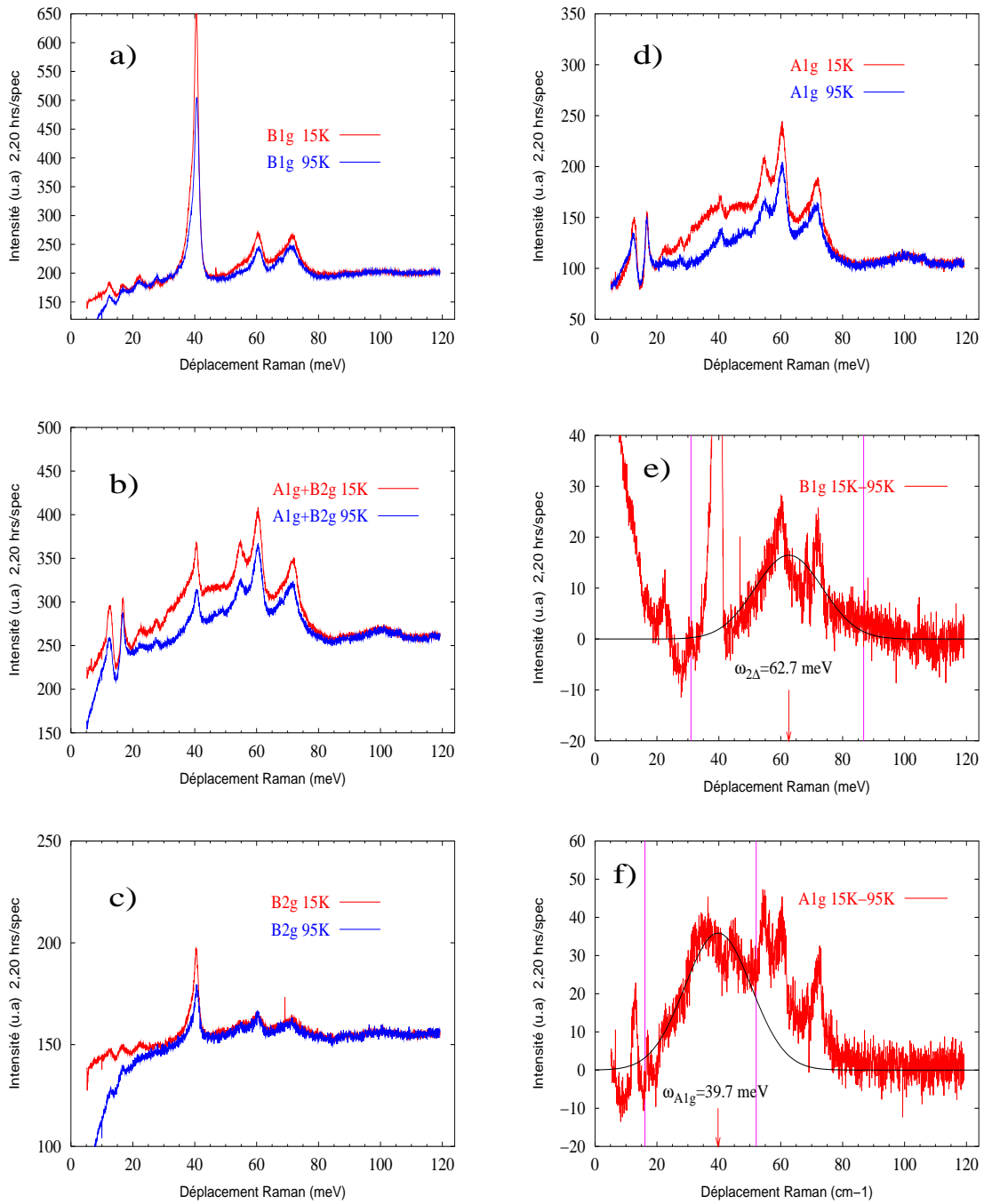


FIG. 4.28 – Echantillon R10b spot 1 : même légende que celle de la Fig.4.26

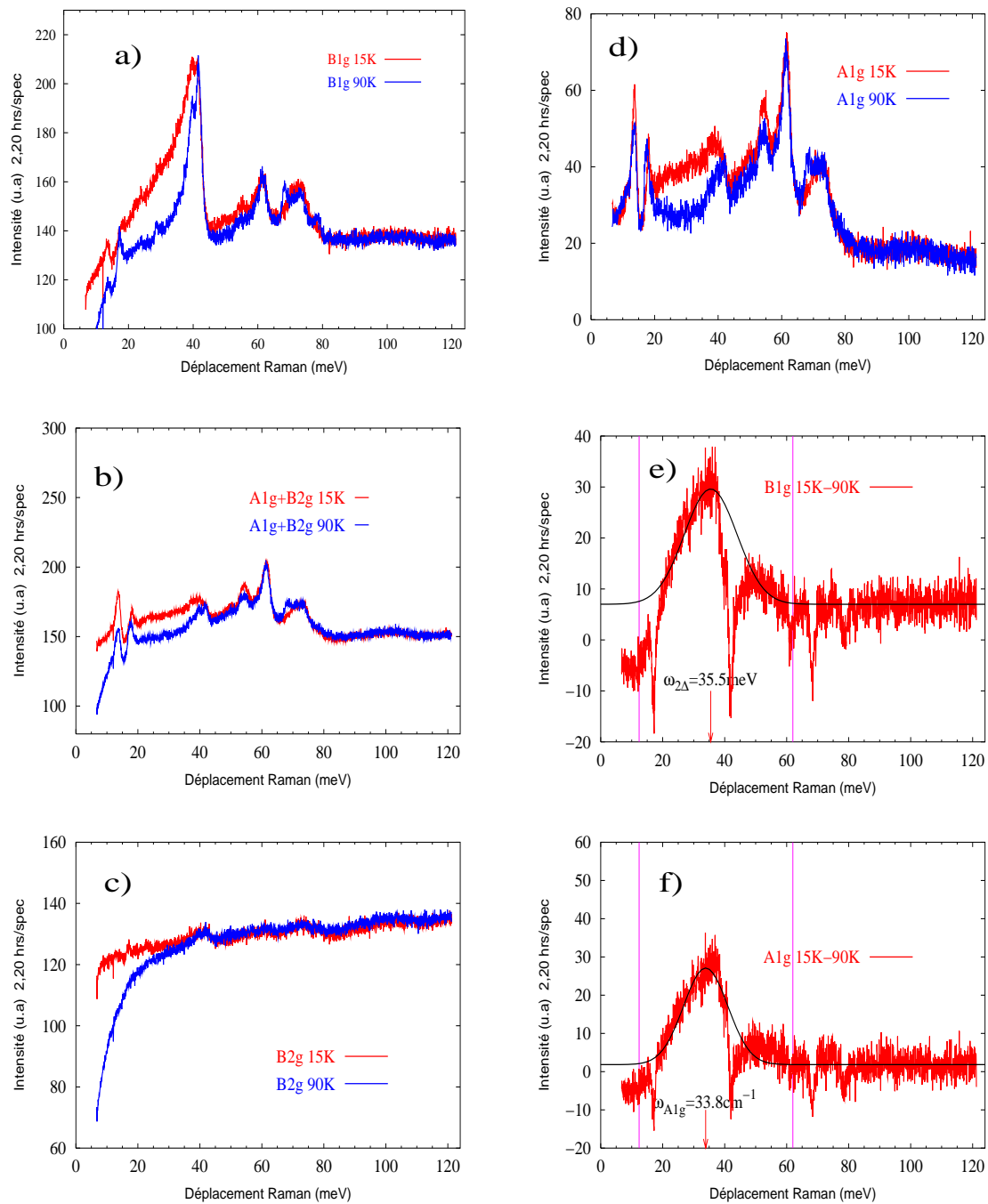


FIG. 4.29 – Echantillon R15a : même légende que celle de la Fig.4.26

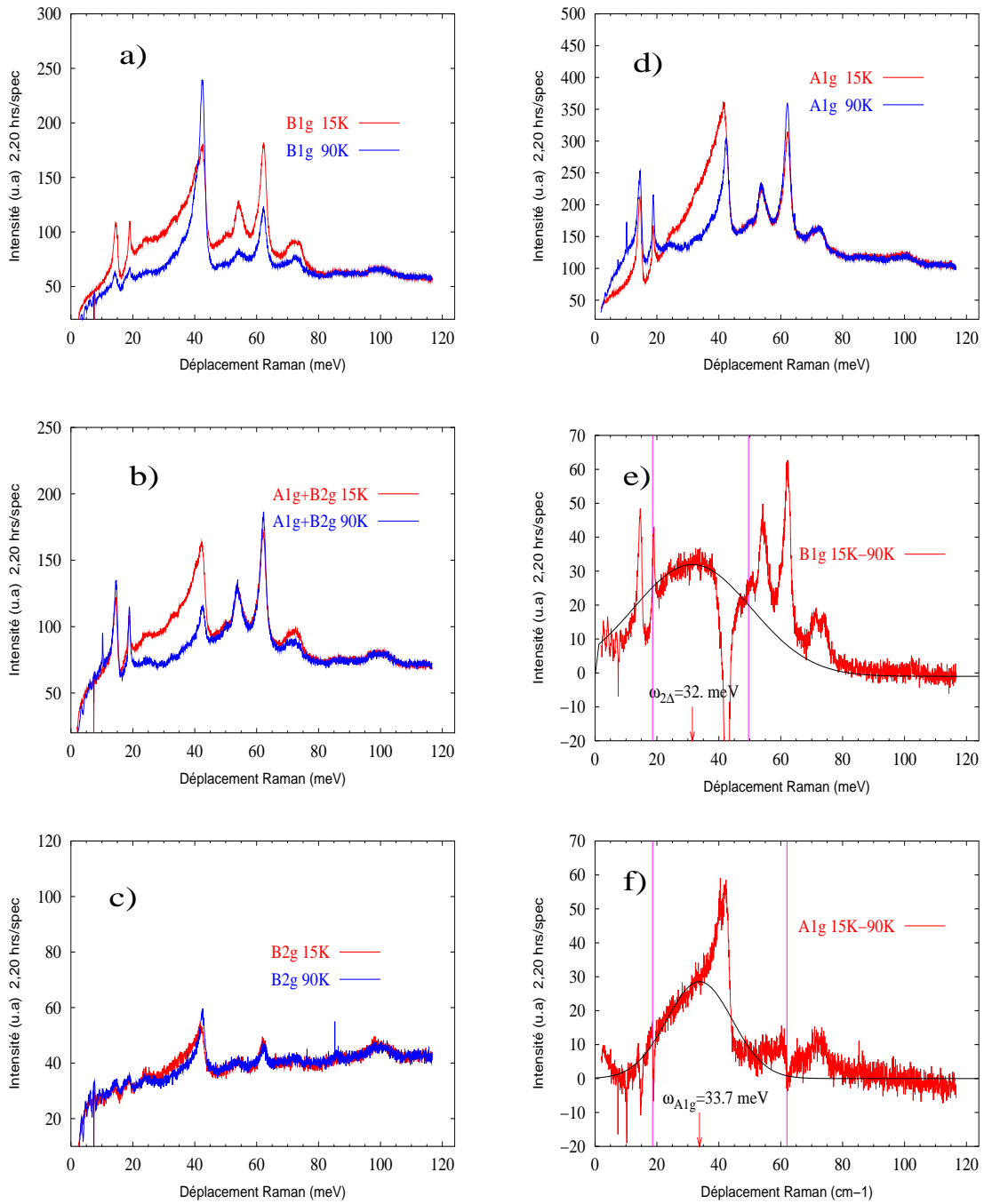


FIG. 4.30 – Echantillon R15b : même légende que celle de la Fig.4.26

de poids spectral aux basses énergies, qui est compensée par un transfert d'intensité à plus haute énergie. Ainsi, la différence des spectres 15K-95K est constituée d'un creux négatif puis d'un signal positif centré à l'énergie $\omega_{B1g} = 2\Delta_{max}$, le pic B1g. Les pics intenses qui apparaissent dans les différences, soit en positif soit en négatif, sont liés à des effets de renormalisation de phonons à travers T_c . On remarque que la renormalisation du phonon à 41meV, la plus violente, se traduit dans les différences par un pic positif dans les échantillons R10 et par un pic négatif dans les échantillons R15. Pour les échantillons R10(R10a et R10b), le pic B1g apparaît autour de 70meV avec une faible intensité, $\sim 12\%$ du bruit de fond. Pour les échantillons R15(R15a et R15b), le pic B1g est localisé à plus basse énergie et est plus intense, $\sim 25\%$ du bruit de fond. D'autres groupes[183, 185] reportent également une augmentation de l'intensité du pic B1g dans le régime surdopé. Afin d'obtenir la position du pic B1g, ω_{B1g} , nous avons réalisé un ajustement par une fonction gaussienne des différences 15K-95K, dans un intervalle d'énergie choisi arbitrairement autour de la position du maximum du pic. Les traits verticaux violets sur les figures montrent l'intervalle d'ajustement utilisé. L'ajustement de la position du pic varie naturellement en fonction de cet intervalle. En modifiant la taille de celui-ci, nous estimons avoir une incertitude sur la position de 2meV. Dans l'intervalle choisi, nous éliminons les effets de renormalisation de phonons, notamment celui à 41meV. Dans le Tab.4.6, nous résumons les résultats des ajustements de la position et de la largeur à mi-hauteur du pic B1g pour chaque échantillon. Nous reportons également la valeur moyenne et l'écart type de la position du pic B1g de l'ensemble des mesures réalisé sur les échantillons R10 et de celui réalisé sur les échantillons R15 (sauf R15c). Ces valeurs moyennes permettent de donner une bonne estimation de la valeur du gap supraconducteur des montages de calcium 10% et 15% étudiés en neutrons.

Sur la Fig.4.31 a), nous reportons les différences T-95K des spectres B1g mesurés dans l'échantillon R10b. Chaque différence a été ajustée de la même manière et nous montrons sur la Fig.4.31 c) et d), l'évolution de l'intensité et de la position du pic B1g en fonction de la température. Son intensité est constante jusqu'à 40K puis disparaît à la température supraconductrice. On observe pas de renormalisation de la position du pic B1g avec la température.

Les mesures sur des spots différents d'un échantillon montre que la position en énergie du pic B1g varie peu sur sa surface, Tab.4.6. Nous observons un écart de 0.7meV pour l'échantillon R10a et de 1.8meV pour l'échantillon R10b (ces écarts sont plus petits que l'erreur commise sur la détermination de la position du pic ~ 2 meV). Ceci montre que le dopage en calcium est uniforme à la surface du cristal, en accord avec les mesures d'EDX, partie 2.5.2.

En revanche entre les échantillons R10a et R10b, nous mesurons un écart de quasiment 5meV sur la position du B1g alors que leur T_c n'est différente que de 1K. Cette variation est encore plus impressionnante quand on compare les valeurs de la position en énergie du B1g entre les échantillons R10(=R10a+R10b) et R15(=R15a+R15b). En effet, la valeur moyennée sur l'ensemble des échantillons R10 est de $\langle \omega_{B1g} \rangle_{R10} = 66$ meV, alors que celle moyennée sur l'ensemble des échantillons R15 est de $\langle \omega_{B1g} \rangle_{R15} = 33$ meV. Ces valeurs diffèrent d'un facteur ~ 2 alors qu'il n'y a qu'un écart de 10K sur les T_c . Ce changement brutal a été également observé entre un échantillon de Y123 surdopé au calcium ayant une T_c de 83K et un échantillon de Y123 dopé au praseodyme ayant une T_c de 91K [185] : dans

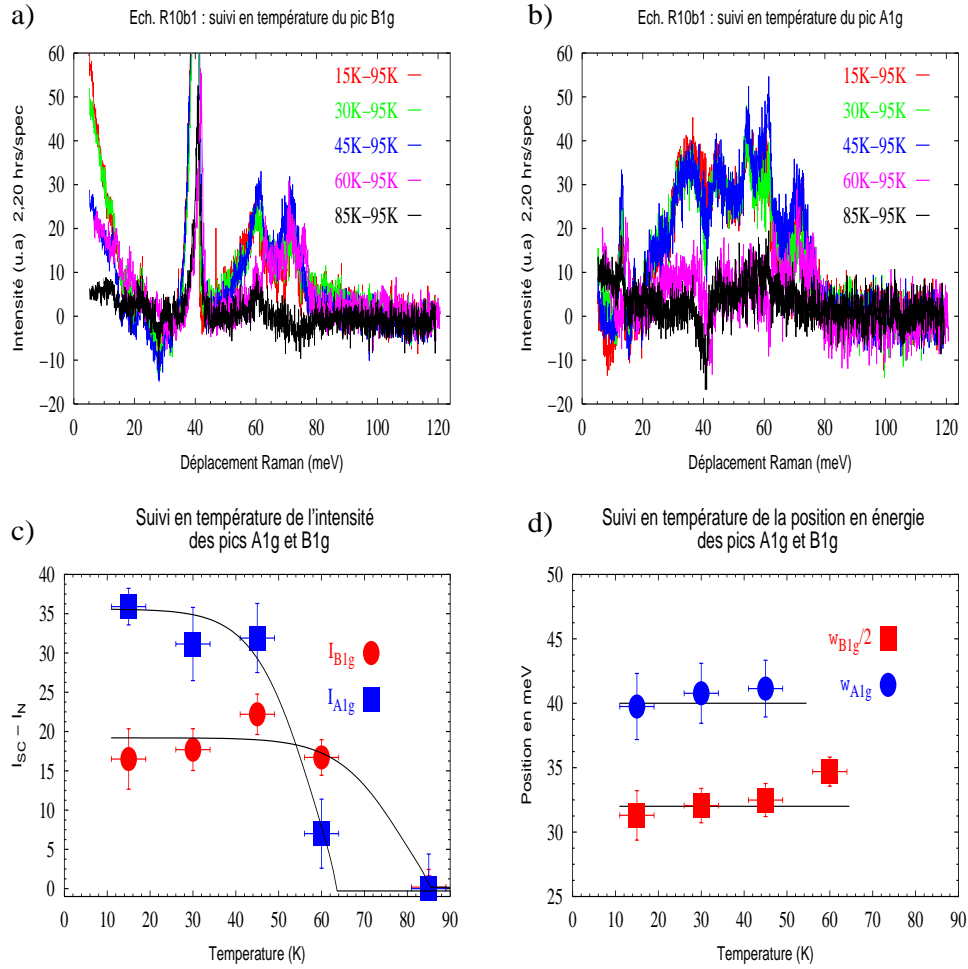


FIG. 4.31 – Sur les figures a) et b), nous montrons les différences $T-95K$ des spectres Raman dans les symétries B1g et A1g. L'évolution en fonction de la température de l'intensité et de la position des pics B1g et A1g est montrée sur les figures c) et d).

l'échantillon dopé au calcium le B1g apparaît à 38meV alors que dans l'autre échantillon, il apparaît à 71meV soit une diminution d'un facteur 1.8 de la valeur de gap pour une variation de la T_c de l'ordre de 4%. Une autre équipe[183] reporte également une évolution brutale de la position du pic B1g au voisinage du dopage optimum : entre un échantillon de $YBCO_7$ et $YBCO_{6.93}$, il apparaît une variation de 16% de la position du pic B1g alors que la T_c ne varie que de 4%. Ces changements brutaux sont également observés dans les termes d'interactions continuum électronique-phonons dans Y123 autour du dopage optimum[186].

Sur la Fig.4.32 a), nous représentons l'évolution de la position du pic B1g en fonction du dopage obtenue à partir de nos résultats et des résultats d'autres groupes[185, 183]. Les valeurs de dopage de nos échantillons sont données dans le Tab.2.4. L'ensemble des mesures semblent indiquer une évolution discontinue, en forme de marche, de la position du pic B1g autour d'un dopage de l'ordre de 0.19. Nous discuterons dans le chapitre 5.4 du sens physique que l'on peut attribuer à cette marche. Sur la Fig.4.32 b), nous reportons, en fonction du dopage, les mesures de la position des résonances magnétiques acoustique

échantillons	ω_{B1g}	γ_{B1g}	valeur moyenne et écart type
R10a1	69	17	$\langle \omega_{B1g} \rangle_{R10} = 66\text{meV}$ $\sigma_{R10} = 3\text{ meV}$
R10a2	68.5	19	
R10b1	63	25	
R10b2	64.5	22	
R15a	35.5	20	$\langle \omega_{B1g} \rangle_{R15} = 33\text{meV}$
R15b	32	45	$\sigma_{R15} = 1\text{ meV}$

TAB. 4.5 – Position en énergie et largeur à mi-hauteur du pic B1g obtenues par un ajustement par une fonction gaussienne des différences 15K-95K

et optique ainsi que la position du pic B1g mesurées dans nos échantillons de YBCOCa_y . Dans l'échantillon de $\text{Y}_{0.9}\text{Ca}_{0.1}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, nous trouvons un ordre des positions en énergie des modes compatible avec le scénario de l'exciton de spin. En effet, la position en énergie du pic B1g nous donne un ordre de grandeur de la position en énergie de la bordure du continuum électronique au vecteur d'onde AF. Les modes magnétiques résonnants sont bien localisés en dessous de cette énergie comme attendu. La situation est bien différente dans l'échantillon $\text{Y}_{0.85}\text{Ca}_{0.15}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ où on observe les modes résonnants à des positions en énergie égales à celles du pic B1g. Les signaux magnétiques observés par DIN seraient donc localisés à l'intérieur du continuum d'excitations électron-trou. Ce changement de comportement sur seulement 10K peut être lié à un changement de topologie de la surface de Fermi, un changement de symétrie du paramètre d'ordre supraconducteur ou une diminution des interactions dans le système. Nous discutons de cet aspect plus en détail au chapitre 5.

Réponse Raman dans le canal B2g

Les réponses dans le canal B2g sont reportées sur les graphes c) des figures. Sur l'ensemble des mesures, l'intensité de la réponse en symétrie B2g est beaucoup plus faible que dans les deux autres symétries. Notamment, sur les échantillons R15a et R15b, la réponse B2g est quasiment nulle. Pour les échantillons R10a et R10b, nous remarquons une faible augmentation de l'intensité entre 40meV et 80meV dans l'état supraconducteur. Nous n'avons pas réussi à extraire un comportement systématique et reproductible de la réponse Raman dans cette symétrie.

Réponse Raman dans le canal A1g - le pic de résonance Raman

Sur les figures Fig.4.26 à 4.30, le graphe d) représente la réponse Raman dans le canal A1g obtenu à 15K et 95K par différence des spectres A1g+B2g, graphe b), et B2g, graphe c), et le graphe f) représente la différence 15K-95K des spectres du graphe d). Dans ce paragraphe, nous nous référons aux spectres et différences des graphes d) et f).

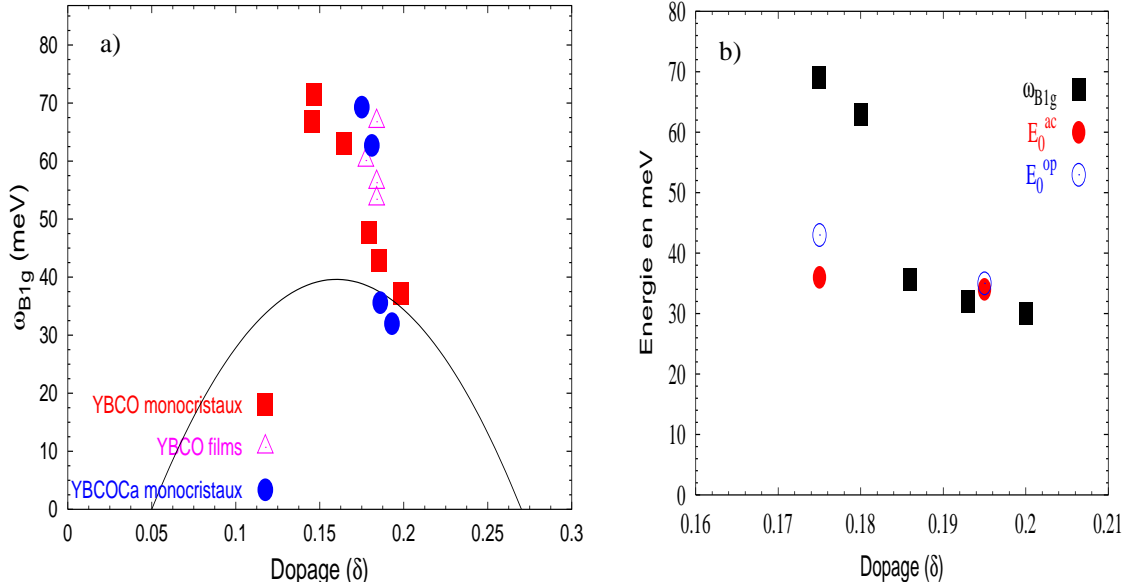


FIG. 4.32 – Sur la figure a), nous reportons les mesures de la position du pic B1g en fonction du dopage. Les points sur le système Y123 ont été extraits des références [185, 183] alors que ceux sur le système YBCOCo proviennent de nos mesures. La ligne noire sur la figure correspond à la loi $5k_B T_c$. Sur la figure b), on reporte en fonction du dopage les positions en énergie des modes magnétiques résonnants acoustique et optique ainsi que la position en énergie du pic B1g. Tous les points ont été obtenus sur les mêmes échantillons de YBCOCo.

La réponse Raman dans le canal A1g est marquée par l'apparition en dessous de T_c d'un pic dans le continuum électronique autour de la fréquence $\omega_{A1g} \sim 40\text{meV}$ au voisinage du dopage optimum des cuprates YBCO [182, 183, 184, 185], Tl-2201 [197] et Bi2212 [193]. Nous observons ce pic A1g autour de 39meV dans les échantillons R10 et autour de 34meV dans les échantillons R15. En fonction de la température, l'intensité du pic A1g apparaît dans l'état supraconducteur et nous n'observons pas de renormalisation de sa position en énergie, Fig.4.32. Comme pour le pic B1g, nous avons ajusté les différences 15K-95K par une fonction gaussienne dans un intervalle représenté en trait violet sur les figures. L'ajustement du pic A1g est un peu plus délicat à cause de la renormalisation du phonon à 41meV . Ce phonon provient du canal B1g et est visible en symétrie A1g car le système n'est pas parfaitement tétragonal, certains expérimentateurs le mesurent sur leurs spectres [183] et d'autres non [185, 171]. Nous avons donc supprimé cet effet de renormalisation pour la procédure d'ajustement. De plus, le pic A1g n'a pas une forme symétrique : l'intensité monte brutalement aux basses énergies puis on observe une longue traînée après l'énergie du maximum. Dans cette longue traînée, une partie du signal positif est lié aux renormalisations des phonons [185, 183, 186] et il n'est pas évident de distinguer le signal électronique du signal phononique. De ce fait, nous estimons avoir une erreur de 3meV sur la position du mode dans notre procédure d'ajustement. Dans le Tab.4.6, nous reportons les résultats des ajustements de la position, ω_{A1g} , et de la largeur à mi-hauteur, γ_{A1g} , du pic A1g pour chaque échantillon. Nous donnons également la valeur moyenne et l'écart type de la position du pic A1g des mesures sur les échantillons R10 et des mesures sur les échantillons R15. Ces valeurs moyennes permettent de donner une estimation de la valeur du pic A1g des montages de calcium 10% et 15% étudiés en neutrons.

échantillon	ω_{A1g}	γ_{A1g}	valeur moyenne et écart type
R10a1	39.1	26	$\langle \omega_{A1g} \rangle_{R10} = 39.5 \text{ meV}$ $\sigma_{R10} = 0.65 \text{ meV}$
R10a2	40.5	31	
R10b1	39.7	27	
R10b2	38.8	19	
R15a	34.1	16	$\langle \omega_{A1g} \rangle_{R15} = 33.8 \text{ meV}$ $\sigma_{R15} = 1.3 \text{ meV}$
R15b	33.7	25	

TAB. 4.6 – Position en énergie du pic $A1g$, ω_{A1g} , et largeur à mi-hauteur, γ_{A1g} , déduis d'un ajustement par une fonction gaussienne des différences 15K-95K

Composé	plans CuO_2	T_c	ω_{A1g}	γ_{A1g}	E_0^{ac}	ΔE^{ac}	E_0^{op}	ΔE^{op}
Y-123 [184, 183]	2	90K	38.5	15	41	1	53	14
Y-123 Ca10%	2	85.5	39.5	25	36	7	43	12
Y-123 Ca15%	2	75	33.8	20	34	12	35	12
Bi-2212 [193, 194, 196]	2	90	43.4	35	43	12	??	??
Bi-2223 [196]	3	113	50-70 ^b	35	42	10	??	??
Hg-1223 [200]	3	128	62	??	??	??	??	??
Tl-2201 [197]	1	90K	43.4	47	47	<7	XX ^a	XX ^a
La-214 [198]	1	37	16	??	??	??	XX ^a	XX ^a

(a)non mesurable dans un composé à 1 seul plan CuO_2

(b)dépend de l'énergie d'excitation incidente

TAB. 4.7 – Positions et largeurs à mi-hauteur des modes résonnants magnétiques mesurés par DIN (E_0^{ac} , ΔE^{ac} pour la résonance acoustique et E_0^{op} , ΔE^{op} pour la résonance optique) et du mode électronique $A1g$ mesuré par diffusion Raman dans différentes familles de cuprates.

Les mesures sur des spots différents d'un même échantillon montrent que la valeur du pic $A1g$ varie peu sur sa surface. Nous observons un écart de 0.6meV entre les mesures de la position du pic sur les deux spots de l'échantillon R10a et de 0.9meV entre ceux de l'échantillon R10b. De plus, contrairement au pic $B1g$, la position du pic $A1g$ évolue continûment en suivant la loi $\sim 5.4 k_B T_c$. Nous observons également que l'intensité relative du pic $A1g$ par rapport à celle du pic $B1g$ évolue avec le dopage. En effet, le pic $A1g$ est 2 fois plus intense que le pic $B1g$ pour les échantillons R10 et les intensités des deux pics deviennent similaires à mesure que le dopage augmente.

Nous reprenons dans le Tab.4.7, la correspondance $A1g$ -Raman/Résonance-neutron établie par Y. Gallais que nous complétons par nos données obtenues dans les systèmes YBCO_{Ca_y} , Bi2223 et Bi2212. Nous montrons également les largeurs en énergie des modes mesurées par les deux techniques.

Sur l'ensemble des mesures présenté dans le Tab.4.7, les positions du mode $A1g$ et de la résonance magnétique acoustique sont quasiment similaires. Les petits écarts observés peuvent être attribués aux différences chimiques entre les échantillons mesurés en neutron

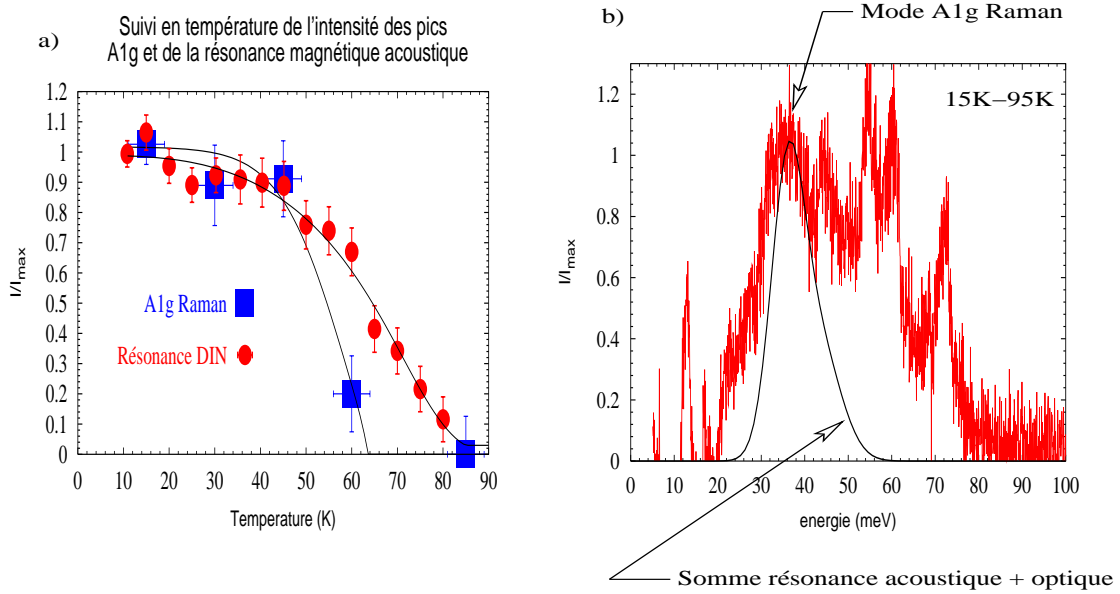


FIG. 4.33 – Mode A1g/résonances magnétiques : Sur cette figure, nous comparons les mesures de DIN réalisées sur l'échantillon de YBCOCa_{10%}, voir Chap.4.1, avec les mesures de Raman obtenues sur l'échantillon R10b1. Sur la figure a), nous montrons l'évolution en température de l'intensité de la résonance magnétique acoustique, ronds rouges, et du pic A1g, carrés bleus. Sur la figure b), nous superposons les différences $\sim 15-95K$ des spectres mesurés dans le canal A1g avec la somme des ajustements par des fonctions gaussiennes des résonances magnétiques acoustique et optique. L'intensité de cet ajustement a été normalisée sur celle du mode résonnant acoustique.

et ceux mesurés en Raman.

Notre étude couplée diffusion Raman/neutron sur des échantillons identiques permet une comparaison plus précise des positions en énergie des excitations. Notamment, nous remarquons pour le système R10 que la position du mode A1g, 39.5meV, est supérieure à celle du mode neutron, 36meV (c'est un écart qui est supérieur à notre erreur d'ajustement). Dans la mesure de diffusion électronique Raman, l'intensité est intégrée suivant l'axe \vec{c} . Dans les composés à 2 plans CuO₂, le mode Raman A1g pourrait être associé à une combinaison des excitations résonnantes magnétiques acoustique et optique. Or, en réalisant la moyenne des positions en énergie des modes acoustique et optique mesurés dans le système YBCOCa_{10%}, soit 39.5meV, nous obtenons exactement la position du mode A1g Raman. Nous proposons de relier la position du pic A1g aux positions des résonances magnétiques optique et acoustique par :

$$\omega_{A1g} = \frac{\langle W \rangle_{ac} E_0^{ac} + \langle W \rangle_{op} E_0^{op}}{\langle W \rangle_{ac} + \langle W \rangle_{op}} \quad (4.13)$$

où $\langle W \rangle_{ac}$ et $\langle W \rangle_{op}$ sont les poids spectraux des modes acoustique et optique. Sur la Fig.4.33 b), nous superposons la mesure du mode A1g dans l'échantillon R10b1 aux ajustements, par des fonctions gaussiennes, des différences 10K-95K des coupes en énergie des modes magnétiques acoustique et optique mesurés dans l'échantillon YBCOCa_{10%}, Chap.4.1. Les positions des modes coïncident mais la largeur du mode A1g ne correspond pas aux largeurs des modes magnétiques. Pour reproduire l'intensité du mode A1g à

basses énergies et à hautes énergies, nous devrions prendre en compte les dispersions des résonances magnétiques acoustique et optique. L'ensemble du spectre magnétique neutron autour du vecteur d'onde AF serait reproduit dans le canal de la charge au vecteur d'onde $q=0$. La largeur en énergie du mode Raman A1g serait liée à l'amplitude de la gamme en énergie du spectre neutron dans sa totalité.

Sur la Fig.4.33 a), nous comparons le suivi en température de l'intensité du pic A1g mesuré sur l'échantillon R10b1 et de la résonance magnétique acoustique mesurée dans l'échantillon YBCOCa_{10%}, Fig.4.3. En accord avec des résultats de diffusion Raman récents[172, 173], nous observons un écart notable des suivis en température de la résonance magnétique et du pic A1g à mesure que l'on se rapproche de T_c . L'intensité du pic A1g disparaît autour de 64K, or, à cette température, l'intensité de la résonance n'a diminué que d'un facteur 2 par rapport à l'intensité à 10K. Ceci semble confirmer le fait que le pic A1g ne reflète pas uniquement la résonance au vecteur d'onde AF mais l'ensemble de la structure magnétique incommensurable de part et d'autre de E_O^{ac} . L'étude en température des incommensurabilités magnétiques a été réalisée dans Y123 au voisinage du dopage optimum par[101]. L'intensité de la résonance apparaît dès que $T < T_c$ mais la structure incommensurable se développe, dans le plan de base, à mesure que la température baisse.

Naturellement, si les deux contributions acoustique et optique sont présentes dans le pic A1g, on peut réfléchir à une solution pour les séparer en recherchant les conditions de résonance pour le "A1g acoustique" et celles pour le "A1g optique". Pour cela, nous proposons de jouer sur l'énergie des photons incidents. Y.Gallais, dans sa thèse[171](p. 111), a mesuré la réponse A1g+B2g à différentes énergies d'excitations entre 1.9eV et 2.7eV sans voir véritablement de changement sur la position du pic A1g. Néanmoins, ces spectres semblent indiquer un élargissement du pic à haute énergie en diminuant l'énergie d'excitation. Pour une telle expérience, on peut choisir un système de YBCO pur au dopage optimum car les modes neutrons sont bien distants de 12meV l'un de l'autre. En revanche l'intensité du mode optique est 6 fois plus faible que celle du mode acoustique. Le système YBCOCa_{10%} semble mieux adapté car les modes neutrons sont suffisamment distants en énergie et leur rapport d'intensité est plus petit, égal à 3.

Réponse Raman dans l'échantillon R15c

Nous décrivons maintenant les spectres Raman mesurés dans l'échantillon le plus surdopé, $Y_{0.85}Ca_{0.15}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ ($T_c=73K$), voir Fig.2.28. Les spectres Raman sont reportés sur la Fig.4.34 et les différences T-95K du signal dans les canaux A1g et B1g sur la Fig.4.35. Nous avons répété la mesure Raman sur 3 spots de l'échantillon et nous avons trouvé des spectres et comportements identiques. Les spectres obtenus sur cet échantillon diffèrent notablement des spectres des échantillons précédents et de ceux déjà publiés[185]. Nous les présentons sans donner d'interprétation.

Dans le canal B1g, le signal ne change quasiment pas à travers la transition supraconductrice. Sur la Fig.4.35 a), nous montrons les différences T-95K des spectres dans le canal B1g. Aucune structure particulière n'est visible si ce n'est qu'un petit pic positif à 30meV dans la différence 15K-90K. Dans le canal B2g, il n'y a pas de changements de comportement à travers T_c comme pour les autres échantillons.

Le changement de comportement apparaît dans la symétrie A1g. En effet, Fig.4.34 d), la différence est formée d'un creux négatif autour de 50meV sur une largeur de 20meV,

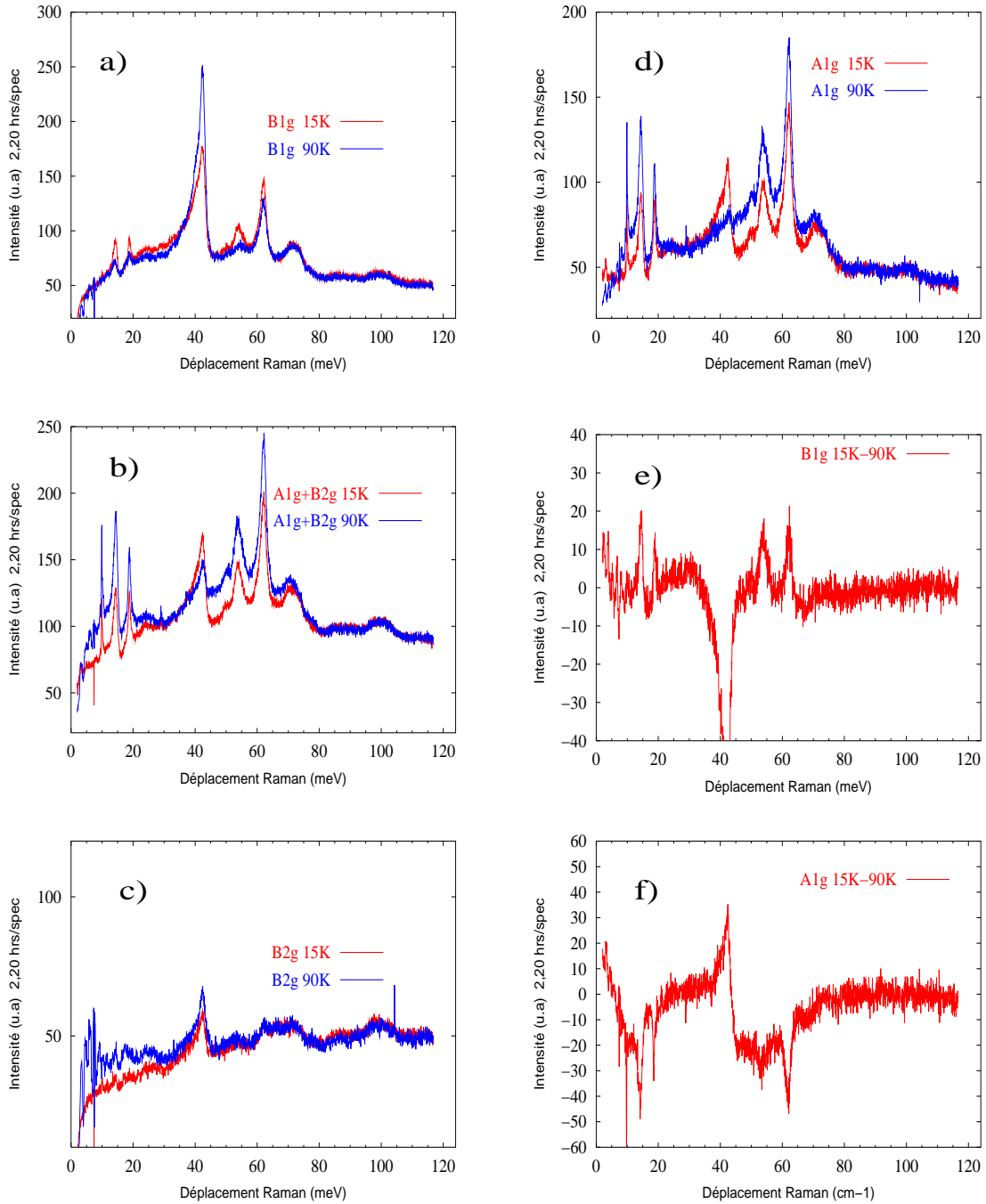


FIG. 4.34 – Echantillon R15c : spectre Raman à 15k ($< T_c$) et 95K ($> T_c$) dans les canaux B1g, a), A1g+B2g, b), et B2g, c). Ces spectres ont été corrigés du facteur de Bose et normalisés sur la partie haute fréquence ($> 80\text{meV}$). Sur la figure d), nous représentons la réponse A1g obtenue par différence des réponses A1g+B2g, b), et B2g, c) à chaque température. Enfin, sur les figures e) et f), nous reportons les différences 15K-95K des réponses dans le canal B1g, a), et le canal A1g, d).

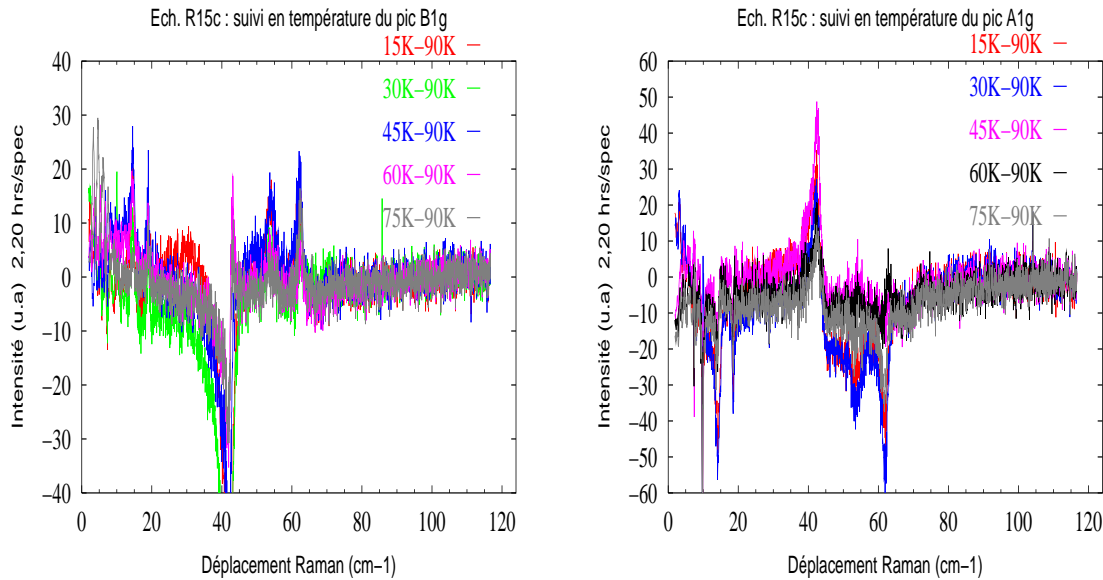


FIG. 4.35 – *Echantillon R15c : sur les figures a) et b), nous montrons les différences T-95K des spectres Raman dans les symétries B1g et A1g.*

retourne à zéro entre 40meV et 20meV puis redevient négative aux plus basses énergies. L'ensemble forme une sorte de créneau. Sur la fig.4.35 b), nous montrons les différences T-95K de la réponse Raman dans le canal A1g. On observe une légère augmentation de l'amplitude du créneau à mesure que la température décroît.

Nous n'avons pas d'interprétation pour l'évolution de la réponse Raman dans le canal A1g. Nous pouvons néanmoins dire que ces mesures mettent en évidence la disparition du pic A1g tel qu'il est observé dans nos échantillons moins surdopés.

4.3.2 Activité des phonons

Initialement, les informations sur le gap supraconducteur étaient obtenues en analysant les effets de renormalisation des modes de phonons à travers la transition supraconductrice[181, 186]. Dans cette partie, nous discutons de l'activité des phonons dans les spectres Raman à travers la transition supraconductrice. Nous nous focalisons essentiellement sur le mode de vibration des atomes d'oxygène du plan de base, apparaissant à 41meV dans la symétrie B1g. Nous commençons par donner quelques éléments théoriques puis nous discutons de l'évolution en température et en dopage de ce mode de phonon à 41meV.

Quelques éléments théoriques

Comportement général en température d'un phonon : les effets anharmoniques

Dans l'approximation harmonique, le phonon est considéré comme une excitation collective du système ayant un temps de vie infini donc correspondant à un pic Delta en énergie selon la relation d'incertitude d'Heisenberg : $\Gamma \cdot \tau \sim 1$. Les mesures de phonon par diffusion électronique Raman montrent que la largeur observée est supérieure à la résolution en énergie de l'ordre de 0.5meV. Le phonon est donc amorti par des proces-

sus dit non-harmoniques. Un des processus les plus probables, et qui suffit à reproduire les largeurs observées, est celui qui consiste en une décomposition d'un phonon optique de fréquence ω en deux phonons acoustiques de fréquence ω_1 et ω_2 [201]. L'équation de conservation d'énergie s'écrit :

$$\omega = \omega_1 + \omega_2 \quad (4.14)$$

Généralement on considère que $\omega_1 = \omega_2 = \omega/2$. Le phonon optique décomposé et les phonons acoustiques créés étant tous contrôlés par une statistique de Bose, plus la température va être élevée et plus des phonons optiques vont se décomposer et peupler les niveaux de phonons acoustiques d'énergies inférieures. L'élargissement et le déplacement du phonon optique évolue alors de façon proportionnelle au facteur de Bose des phonons acoustiques. Le traitement en perturbation de ce processus anharmonique montre effectivement que [202, 203] :

$$\omega_N(T) = \omega_0 + b \times \left[1 + \frac{2}{\exp \frac{\hbar\omega_0}{2k_B T} - 1} \right] + (\omega_R(T)) \quad (4.15)$$

$$\Gamma_N(T) = \Gamma_0 \left[1 + \frac{2}{\exp \frac{\hbar\omega_0}{2k_B T} - 1} \right] + (\Gamma_b) \quad (4.16)$$

Les termes entre parenthèses dans les équations ci-dessus sont liés à d'autres effets[199]. L'élargissement supplémentaire, Γ_b , permet de tenir compte des diffusions sur les impuretés ainsi que des interactions avec le continuum électronique dans l'état normal (nous en parlons juste ci-dessous). C'est un terme que l'on suppose constant en température. Le déplacement supplémentaire, $\omega_R(T)$, permet de rendre compte des déformations de réseau en température. C'est un terme non constant que l'on suppose varier linéairement en température : $\omega_R(T) = aT$. Rigoureusement, nous devrions écrire pour les effets de réseau, $\omega_R(T) = ad_{Cu-O}(T)^{-3/2}$, où $d_{Cu-O}(T)$ donne l'évolution du paramètre de maille avec la température. Mais ces effets étant petits, nous pouvons nous limiter au premier terme du développement limité.

Comportement général en température d'un phonon : interaction avec un continuum électronique

Sur la Fig.4.36 b1), nous montrons le phonon B1g à 41meV mesuré sur l'échantillon R15a à 10K, courbe bleue, juste au-dessus de la transition à 90K, courbe rouge et à température ambiante, courbe violette. Il apparaît des changements brutaux du profil du phonon à travers la transition supraconductrice qui ne peuvent pas s'expliquer par un simple effet de température. En effet, alors que son profil est quasiment symétrique à 90K et 300K, il devient complètement asymétrique à 10K s'élargissant de façon importante à basse énergie. Cette asymétrie est associée à l'interaction du phonon avec le continuum électronique se trouvant dessous, communément appelée "Effet Fano". Elle est parfaitement reproductible en considérant la forme Fano :

$$I(\omega) = I_c \frac{|q + \epsilon|^2}{1 + \epsilon^2} \quad (4.17)$$

avec $\epsilon = (\omega - \omega_p)/\Gamma_p$ où ω_p et Γ_p sont la position et la largeur du phonon renormalisé, q est le paramètre d'asymétrie ou paramètre Fano.

Dans l'état normal la position, $\omega_N(T)$, et la largeur, $\Gamma_N(T)$, du phonon sont données par les Eq.4.15 et Eq.4.16. L'interaction du phonon avec le continuum électronique existe déjà dans l'état normal, en effet, le profil du phonon à 90K sur la Fig.4.36 b1) n'est pas parfaitement symétrique. Dans l'état supraconducteur, l'ouverture du gap entraîne un déplacement et un élargissement supplémentaire du phonon. Les déviations de position, $\delta\omega_p = \omega_p - \omega_N$, et de largeur, $\delta\Gamma_p = \Gamma_p - \Gamma_N$, peuvent être reliées à la susceptibilité électronique Raman et à l'interaction électron-phonon[183, 199, 185]. L'étude de l'interaction entre le phonon et le continuum électronique permet alors de soustraire la contribution des phonons au spectre Raman. Nous avons pu appliquer ce procédé à l'échantillon R15b où les signaux sont intenses. Mais dans les échantillons R10, l'intensité du pic B1g est trop faible.

Renormalisation du phonon à 41meV - effet d'une interaction avec un continuum électronique

Dans ce qui suit nous considérons l'évolution en température du phonon B1g à 41meV dans les échantillons R10b, R15a et R15c. Sur les Fig.4.36 a1) a2) et a3), nous reportons les spectres du phonon de ces 3 échantillons à 15K ($T < T_c$), 90K ($T > T_c$) et 300K. Nous avons réalisé un suivi en température entre 15K et 300K de ce phonon en configuration polarisée dans les échantillons R10b et R15c, et en configuration non-polarisée dans l'échantillon R15a. Nous avons ajusté pour chaque température, le phonon par un profil Fano donné par l'Eq.4.17. L'évolution en température de la position est reportée sur les Fig.4.36 b1) b2) et b3). La ligne bleue sur ces figures correspond à l'ajustement de cette évolution dans l'état normal par la fonction $\omega_N(T)$, Eq.4.15. L'évolution en température de la largeur est reportée sur les Fig.4.36 c1) c2) et c3). La ligne bleue sur ces figures correspond à l'ajustement de cette évolution dans l'état normal par la fonction $\Gamma_N(T)$, Eq.4.16. Nous nous intéressons ci-dessous aux écarts par rapport aux lignes bleues de la largeur, $\delta\Gamma_p$, et de la position, $\delta\omega_p$.

Nos résultats sont en parfait accord avec des mesures antérieures[185, 186]. A travers la transition supraconductrice, nous observons un déplacement négatif de la position du phonon ($\delta\omega_p < 0$) pour les échantillons R10b et R15a et un déplacement légèrement positif ($\delta\omega_p > 0$) pour l'échantillon R15c. La variation de signe de $\delta\omega_p$ est associée à la position relative du pic électronique B1g (ω_{B1g}) et du phonon. Lorsque le pic B1g est localisé à une énergie supérieure de celle du phonon, comme pour l'échantillons R10b, $\delta\omega_p$ est négatif. Il devient positif dans le cas contraire comme pour l'échantillon R15a.

Pour la largeur, nous observons un affinement du phonon ($\delta\Gamma_p < 0$) lorsque $\omega_{B1g} > 62\text{meV}$ et un élargissement ($\delta\Gamma_p > 0$) lorsque $\omega_{B1g} < 62\text{meV}$. L'affinement traduit la réduction du couplage entre le continuum électronique et le phonon. De ce fait, le phonon est moins amorti et son intensité augmente comme observé sur la Fig.4.36 a1). A l'opposé, l'élargissement traduit l'augmentation de ce couplage et dans ce cas, l'intensité du phonon diminue, Fig.4.36 a3). L'amplitude des modifications à travers T_c est petite, nous obtenons un $\delta\omega_p \sim -0.4\text{meV}$ pour l'échantillon R10b et $\delta\omega_p \sim +0.2\text{meV}$ pour l'échantillon R15c. De même, l'élargissement est petit pour l'échantillon R10b, $\delta\Gamma_p \sim -0.1\text{meV}$ et plus conséquent, $\delta\Gamma_p \sim +0.7\text{meV}$, pour l'échantillon R15c. Notons que pour un échantillon de

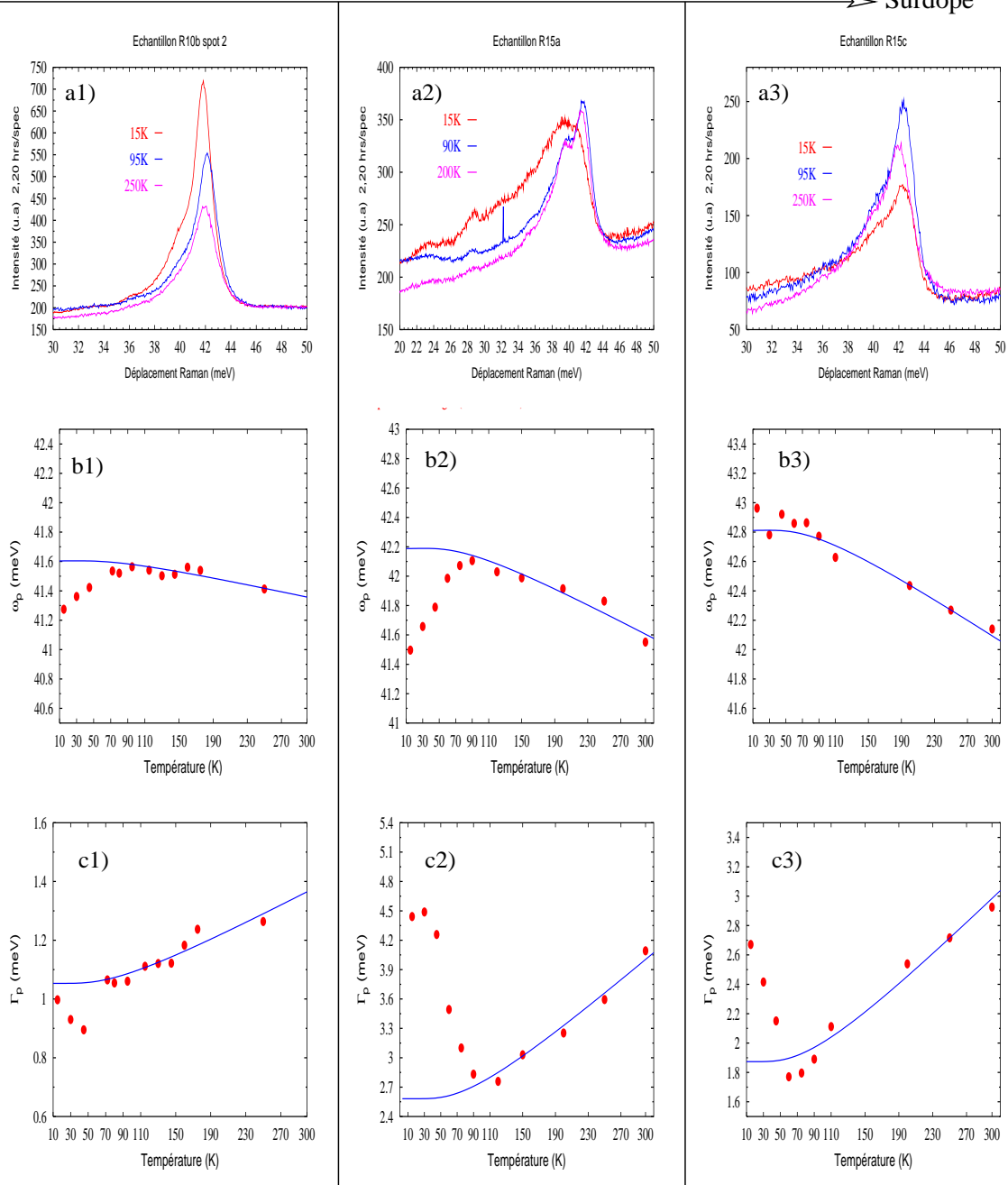


FIG. 4.36 – Sur les figures a1, a2 et a3 nous reportons les mesures du phonon B1g à 41meV pour les échantillons R10b, R15a et R15c à 15K, 90K et 300K. Les mesures ont été réalisées en lumière polarisée pour les échantillons R10b et R15c et en lumière non-polarisée pour l'échantillon R15a. Sur les autres figures, nous montrons l'évolution en température de la position et de la largeur obtenue en ajustant le phonon par un profil Fano, Eq.4.17. Sur les figures b1 b2 et b3, nous reportons l'évolution de la position, ω_p , et sur les figures c1 c2 et c3, l'évolution de la largeur, Γ_p . Les lignes bleues sur les figures b1, b2, b3, c1, c2 et c3 correspondent aux évolutions de la position et de la largeur donnée par les Eq.4.15 et Eq.4.16

YBCO sousdopé, comme le $\text{YBCO}_{6.68}$ ($T_c=59\text{K}$)[186], la renormalisation de la position du phonon est quasiment nulle comme celle observée sur notre échantillon surdopé R15c, Fig.4.34 b3). En revanche, dans l'échantillon sousdopé, le phonon s'affine à la transition supraconductrice, $\delta\Gamma_p \sim -0.25\text{meV}$, alors qu'il s'élargit dans notre échantillon surdopé, $\delta\Gamma_p \sim +0.7\text{meV}$.

Le cas de l'échantillon R15a est singulier. En effet, on observe un élargissement de sa largeur et un déplacement négatif de sa position comme pour l'échantillon R10b, mais l'amplitude des changements à travers T_c est beaucoup plus importante que celle des deux autres échantillons. En effet, son élargissement est de l'ordre de 2meV et son déplacement de l'ordre de -0.9meV . De tels changements sont observés quand la position du phonon et celle du pic B1g électronique coïncident. Dans ce cas, la bordure du continuum étant à la même énergie que celle du phonon, celui-ci a de grande probabilité de heurter les quasiparticules du continuum et de se décomposer en brisant une paire de Cooper.

Ces effets de renormalisation du phonon confirment la diminution de la position en énergie du pic B1g à mesure que le dopage augmente[185, 186]. En outre, ils nous indiquent que le pic B1g dans l'échantillon R15c, où il n'apparaît pas clairement dans la différence 15K-90K, est localisé à une énergie inférieure à celle du phonon. On confirme ainsi le changement brutal de la position en énergie du pic B1g entre l'échantillon R10b et l'échantillon R15c.

Chapitre 5

Synthèse et discussion des résultats expérimentaux

Dans la première partie de ce chapitre, partie 5.1, nous faisons une synthèse des résultats expérimentaux obtenus par DIN sur les trois systèmes étudiés : l'échantillon légèrement sousdopé $YBCO_{6.85}$ ($T_c=89K$), Chap.3, l'échantillon légèrement surdopé de $YBCO-Ca_{10\%}$ ($T_c=85K$), Chap.4.1 et l'échantillon surdopé de $YBCO-Ca_{15\%}$ ($T_c=75K$), Chap.4.2. L'objectif est de comprendre l'évolution des propriétés (gamme en énergie, largeur en vecteur d'onde et en énergie, poids spectral) des fluctuations magnétiques dans l'état supraconducteur à mesure que l'on se déplace du régime sousdopé vers le régime surdopé.

Dans la deuxième partie de ce chapitre, partie 5.2, nous nous plaçons dans le cadre des approches théoriques qui considèrent une description itinérante du magnétisme et qui utilisent une forme RPA de la susceptibilité magnétique pour décrire les mesures de DIN. Dans un premier temps, nous montrons comment nous pouvons interpréter les nouvelles informations expérimentales, obtenues dans nos mesures, à partir du calcul de la susceptibilité. Puis, nous améliorons la comparaison, entre le calcul et la mesure, en réalisant le produit de convolution entre l'ellipsoïde de résolution instrumentale et la susceptibilité calculée. Les résultats de cette convolution nous permettent de reconsidérer les formes spectrales mesurées antérieurement par DIN dans le régime sousdopé.

Nous discutons également nos résultats dans le cadre des approches théoriques qui considèrent une description localisée du magnétisme, partie 5.3. Nous nous intéressons notamment à l'aspect universel des fluctuations magnétiques dans les différentes familles de cuprates.

Enfin, dans la quatrième partie de ce chapitre, partie 5.4, nous regroupons toutes les informations obtenues dans ce manuscrit que nous reportons sur le diagramme de phase des cuprates. Nous nous posons le problème de l'existence d'un comportement critique dans le régime surdopé. Nous discutons également de la coexistence de la phase de pseudogap et de l'état supraconducteur.

5.1 Evolution de la dynamique de spin du sousdopé au surdopé

5.1.1 Evolution du spectre acoustique du régime sousdopé au régime surdopé

Forme en X du spectre des fluctuations magnétiques dans l'état supraconducteur

Nos mesures de DIN mettent en évidence l'existence de nouveaux signaux magnétiques incommensurables situés à des énergies de transfert supérieures à l'énergie de la résonance magnétique. Le spectre magnétique est à présent constitué d'une résonance centrée au vecteur d'onde AF, d'une dispersion vers les basses énergies et de ces nouveaux signaux incommensurables[101], générant une forme en X dans l'état supraconducteur. Sur la Fig.5.1, nous reportons le spectre des fluctuations magnétiques dans le canal acoustique mesuré dans Y123 :

- au voisinage du dopage optimum dans l'échantillon légèrement sousdopé $YBCO_{6.85}$ ($T_c=89K$), Chap.3.2.
- dans le régime surdopé dans l'échantillon de $YBCO-Ca_{15\%}$ ($T_c=75K$), Chap.4.2

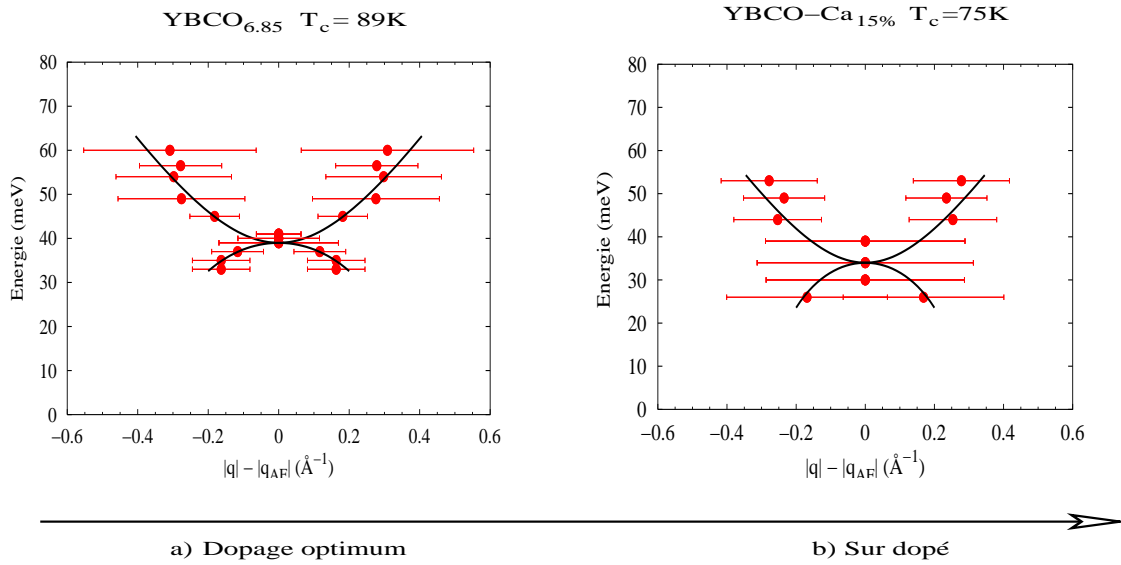


FIG. 5.1 – Sur la figure a), nous montrons les spectres des fluctuations magnétiques acoustiques mesurés dans l'état supraconducteur de l'échantillon légèrement sousdopé YBCO_{6.85} ($T_c=89\text{K}$), Chap.3, et de l'échantillon surdopé YBCOCa_{15%} ($T_c=75\text{K}$), Chap.4.2. Les positions incommensurables ont été obtenues par des ajustements par deux fonctions gaussiennes, centrées en $(-0.5 \pm \delta, -0.5 \pm \delta, 0)$, des coupes en vecteur d'onde à énergie constante. Les barres d'erreur correspondent aux largeurs à mi-hauteur.

Rappelons que les spectres acoustiques des figures a) et b) apparaissent uniquement dans l'état supraconducteur. Dans les deux parties du diagramme de phase sondées, le spectre acoustique présente beaucoup de similitudes. D'une part, il est constitué d'une dispersion vers les hautes et basses énergies se rejoignant au vecteur d'onde AF à l'énergie de la résonance. L'ensemble a une forme en X (la X-shape) et la position du point de croisement, donc de la résonance, suit la loi $\sim 5k_B T_c$. La dispersion à basse énergie est interrompue par la présence d'un gap de spin. Les signaux incommensurables vers les hautes énergies apparaissent uniquement sur une gamme d'énergie de 20meV à partir de l'énergie de la résonance. A hautes énergies, le signal s'élargit et devient de plus en plus difficile à détecter. Cette forme en X peut être paramétrisée par deux dispersions isotropes : $E_r(q) = \sqrt{E_0^2 \pm (\alpha_{\mp} q)^2}$. Les coefficients des dispersions vers le haut et vers le bas sont très proches, nous obtenons des valeurs de α_- et α_+ autour de $130\text{meV}\cdot\text{\AA}$. Dans le plan de base, nos mesures dans l'échantillon démaclé de YBa₂Cu₃O_{6.85} ($T_c=89\text{K}$), Chap.3, montrent que l'intensité magnétique devient anisotrope à mesure que l'on abaisse l'énergie transférée entre l'énergie de la résonance et le gap de spin. Le signal apparaît plus intense suivant a^* que b^* mais les dispersions sont identiques suivant les deux axes. Nous obtenons des conclusions similaires sur l'échantillon sousdopé de YBa₂Cu₃O_{6.6} ($T_c = 66\text{K}$)[134, 135]. D'autre part, l'amplitude de la gamme d'énergie dans laquelle le signal magnétique est visible est similaire dans les deux régimes et est environ égale à 30meV. Autrement dit, dans l'échantillon surdopé de YBCO-Ca_{15%} ($T_c=75\text{K}$), les fluctuations magnétiques, apparaissant dans l'état supraconducteur, s'étalent sur une gamme d'énergie presque similaire à celle des fluctuations magnétiques dans un échantillon légèrement sousdopé de YBCO_{6.85} ($T_c=89\text{K}$). Ainsi, en se déplaçant du dopage

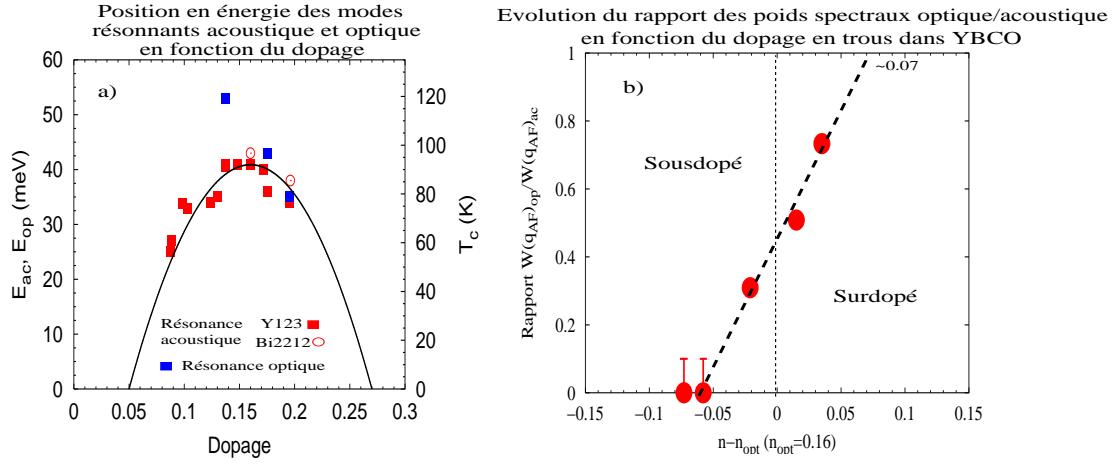


FIG. 5.2 – Sur la figure a), nous montrons l'évolution en fonction du dopage des positions en énergie des résonances acoustique, carrés rouges, et optique, carrés bleus, mesurées dans Y123[90, 107, 129, 96, 128, 115], dans Bi2212[130, 141] et dans YBCOCa_y (mesures de ce manuscrit). Le dopage des échantillons Y123 et Bi2212 est estimé à partir de la T_c par la loi empirique de Tallon[74], Eq1.1. Celui des échantillons de YBCOCa_y est donné dans le Tab.2.24. Sur la figure b), nous montrons l'évolution en fonction du dopage du rapport des poids spectraux au vecteur d'onde AF des modes optique et acoustique (voir Eq.3.8 pour la définition). Par poids spectral, nous désignons le poids des fluctuations magnétiques qui changent à travers T_c au vecteur d'onde AF.

optimum au régime surdopé, nous déplaçons le centre de la dispersion en forme de X, en suivant la loi $5k_B T_c$.

5.1.2 Résonance magnétique acoustique / Résonance magnétique optique

Dans ce manuscrit, nous avons montré l'existence d'une seconde résonance magnétique dans l'état supraconducteur de Y123. Cette nouvelle résonance a un facteur de structure en $(\cos(\pi L z_c))^2$ suivant l'axe \vec{c} , contrairement à la résonance "habituelle" qui a un facteur de structure en $(\sin(\pi L z_c))^2$ [90, 97], voir Chap.3.2.2. Par analogie aux ondes de spin dans l'état isolant, Chap.1.5.1, nous faisons dès lors la distinction entre la résonance magnétique acoustique et la résonance magnétique optique. Nous avons mesuré les deux résonances sur 3 échantillons de Y123 à des niveaux de dopage différents : YBCO_{6.85} (T_c=89K, régime sousdopé), Chap.3.2.2, YBCO-Ca_{10%} (T_c=85.5K, régime surdopé), Chap.4.1.1, et YBCO-Ca_{15%} (T_c=75.K, régime surdopé), Fig.4.2.1. Ci-dessous nous faisons la synthèse des mesures des deux modes résonnants sur les trois échantillons.

Position en énergie :

La position en énergie du mode acoustique, E_{0^{ac}}, est toujours plus basse que celle du mode optique. Sur la Fig.5.2 a), nous montrons l'évolution des positions des résonances acoustique et optique en fonction du dopage. Nous observons que l'écart en énergie entre les deux résonances est de 12meV dans l'échantillon sousdopé et diminue jusqu'à 1meV dans l'échantillon le plus surdopé. D'autre part, la position en énergie du mode acoustique

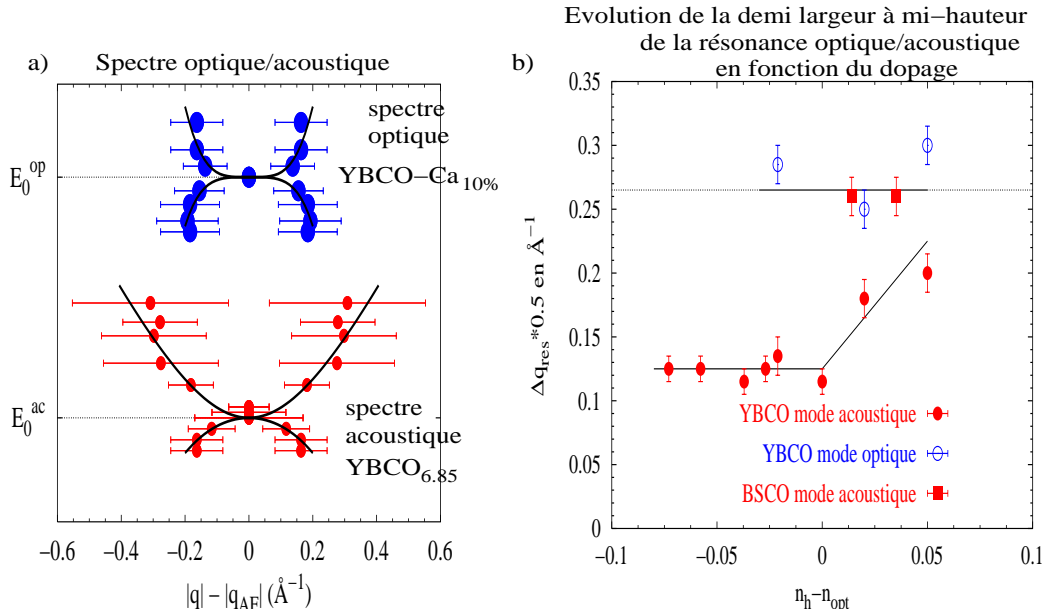


FIG. 5.3 – Sur la figure a), nous reportons le spectre acoustique mesuré dans l'échantillon $YBCO_{6.85}$, Chap.3.2, en points rouges et le spectre optique mesuré dans l'échantillon de $YBCOCa_{10\%}$ 4.1.2. Sur la figure b), nous montrons l'évolution en fonction du dopage de la demi-largeur à mi-hauteur en vecteur d'onde des modes acoustique et optique mesurée dans $Y123$ [149] et dans $Bi2212$ [130, 141]

est proportionnelle à T_c suivant la loi $E_r \simeq 5k_B T_c$. En revanche, nous n'observons pas de relation de proportionnalité entre l'énergie du mode optique et la température critique. En effet, l'énergie du mode optique semble augmenter linéairement du régime surdopé au régime sousdopé.

Intensité des modes :

Le mode optique est toujours moins intense que le mode acoustique. Sur la Fig.5.2 b), nous montrons l'évolution du rapport des poids spectraux optique et acoustique, $W(q_{AF})^{op}/W(q_{AF})^{ac}$ (voir pour définition Chap.3.2.4), en fonction du dopage obtenue à partir des Tab.3.1, 4.1 et 4.4 et de mesures antérieures[128].

Nous observons que dans le régime sousdopé le mode optique est peu intense. La statistique des résultats [128] ne permet pas de confirmer la présence ou non d'un mode optique, c'est à dire une augmentation de la réponse magnétique à $T < T_c$ dans le canal optique. Dans les barres d'erreur, nous estimons que le rapport $W(q_{AF})^{op}/W(q_{AF})^{ac}$ dans ces échantillons est compris entre 0 et 0.1.

Le mode optique devient visible dans le diagramme de phase autour du dopage $\delta \sim 0.11$. En augmentant le dopage, la différence d'intensité des deux modes résonnants acoustique et optique diminue.

Ainsi, à mesure que l'on se déplace dans le régime surdopé, les positions en énergie et les intensités des deux modes deviennent similaires.

Largeur des modes :

Dans ce paragraphe nous discutons de la largeur en vecteur d'onde (intrinsèque voir eq.2.2) des modes résonnants acoustique et optique. Pour cela, nous négligeons l'existence d'une dispersion, le spectre est alors considéré comme un pic centré au vecteur d'onde AF et à l'énergie de la résonance.

Sur la Fig.5.3 b), nous reportons l'évolution en fonction du dopage de la demi-largeur à mi-hauteur des modes résonnants optique et acoustique dans Y123[149] ainsi que du mode résonnant acoustique dans Bi2212[130, 141]. La largeur du mode optique est constante dans la partie du diagramme de phase où le mode a été mesuré. Elle est d'environ 0.27\AA^{-1} . Etrangement, nous remarquons que dans Bi2212, la largeur de la résonance acoustique est également de l'ordre de 0.27\AA^{-1} . Dans Y123, la largeur du mode acoustique est constante dans le régime sousdopé et est environ deux fois plus petite que la largeur du mode optique. En revanche, elle augmente à partir du dopage optimum et tend vers la largeur du mode optique. Il semble donc que la largeur de 0.27\AA^{-1} corresponde à une limite supérieure de l'étendue en vecteur d'onde des modes résonnants. Nous pouvons déduire de cette largeur en vecteur d'onde une longueur de corrélation : $\xi/a \sim 1/\Delta_q$. Nous trouvons alors que cette largeur limite de 0.27\AA^{-1} correspond à une longueur de corrélation petite $\xi/a \sim 1.1$ équivalente à la longueur de corrélation des fluctuations magnétiques dans l'état normal au voisinage du dopage optimum dans Y123[149]. Notons qu'un effet d'élargissement de la largeur en vecteur d'onde de la résonance dans Y123 est également observé dans les composés avec des impuretés de nickel ou de zinc[131]. Dans ce cas, l'élargissement maximum est également limité à $\sim 0.25\text{\AA}^{-1}$.

Il semble donc que les fluctuations magnétiques dans l'état supraconducteur de Y123 et Bi2212 soit systématiquement confinées dans un intervalle d'une amplitude maximale de l'ordre de $2 \times 0.25\text{\AA}^{-1}$.

Spectre acoustique/optique :

Nous avons montré dans l'échantillon de YBCOCa_{10%} que le spectre des fluctuations magnétiques dans le canal optique est également constitué de signaux incommensurables vers les hautes et basses énergies, Chap.4.1.2. En outre, l'amplitude de la gamme d'énergie sur lequel ce spectre est détectable, égale à $\sim 20\text{meV}$, est similaire à celle du spectre acoustique dans les échantillons de YBCO_{6.85} et de YBCO-Ca_{15%}. Sur la Fig.5.3, nous comparons le spectre acoustique obtenu dans l'échantillon YBCO_{6.85} au spectre optique obtenu dans l'échantillon YBCOCa_{10%}.

La forme du spectre optique n'est pas réellement un X. En effet, nous avons montré au Chap.4.1.2 qu'il n'était pas possible de décrire ce spectre optique avec une forme en X seule. Nous avons du introduire des modes supplémentaires, voir Fig.4.9, l'ensemble a une forme de type $|X|$ ou H. Par ailleurs, cette forme en H est également plus adaptée pour ajuster la branche de dispersion vers les hautes énergies des spectres acoustiques de la Fig.5.1. En effet, les signaux à hautes énergies ($E > E_{res}$) deviennent systématiquement beaucoup plus rapidement incommensurables que ceux vers les basses énergies : les premières positions incommensurables de la dispersion vers les hautes énergies correspondent quasiment aux dernières positions incommensurables de la dispersion vers les basses énergies. Nous verrons ci-dessous un autre moyen de représenter les spectres et nous fournirons une explication à cette asymétrie entre les dispersions vers les hautes et

Evolution du poids spectral en fonction du dopage

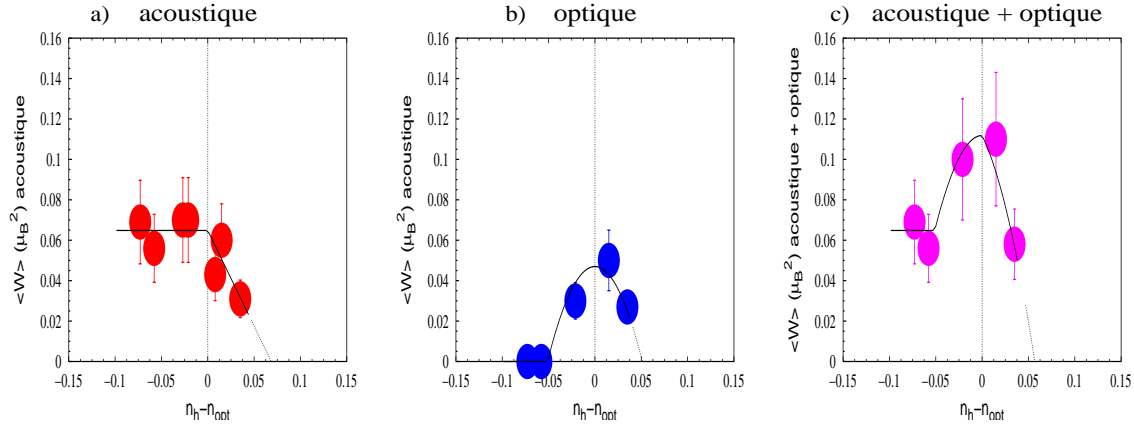


FIG. 5.4 – Evolution du poids spectral total $\langle W \rangle$ (voir pour définition Chap.3.2.4) de la résonance acoustique, a), et de la résonance optique, b), mesuré dans nos échantillons ainsi que dans ceux de Fong et al.[128]. Sur la figure c), nous montrons l'évolution de la somme du poids spectral des résonances acoustique et optique. Pour cette figure, nous avons supposé l'existence de la résonance optique dans les échantillons de Fong et al.[128] (voir texte). Le dopage est mesuré par rapport au dopage optimum pris égal à 0.16

les basses énergies.

Poids spectral acoustique/optique

Sur la Fig.5.4 nous représentons l'évolution du poids spectral total (voir Chap.3.2.4) des résonances acoustique et optique en fonction du dopage, mesuré dans Y123 dans nos trois échantillons et dans ceux de [128]. Le poids spectral sur la Fig.5.4 est défini comme étant égal au poids des fluctuations magnétiques qui changent à travers la transition supraconductrice. Nous avons utilisé l'approximation du pic unique, détaillée au Chap.3.2.4, pour la mise en unité absolue de l'intensité des modes résonnants acoustique et optique afin d'avoir une description similaire à celle de [128]. L'ordre de grandeur de l'erreur commise sur l'estimation du poids spectral en utilisant cette description est d'environ 30%. La taille des points est représentative de l'erreur commise sur l'estimation du dopage.

L'évolution du poids spectral de la résonance acoustique peut être décomposée en une partie constante dans le régime sousdopé suivie d'une diminution linéaire à partir d'un certain dopage à mesure que le dopage augmente. Nous avons imposé la valeur de ce dopage égale à celle du dopage optimum. En extrapolant la droite, on peut déterminer que le poids spectral total acoustique vaut zéro pour un dopage de l'ordre de 0.07 par rapport à l'optimum (soit un dopage de 0.22).

Le poids spectral de la résonance optique est faible dans l'état sousdopé et par analogie au comportement du poids spectral acoustique, on peut supposer qu'il devient nul quelque part dans le régime surdopé. Le poids spectral optique passe donc nécessairement par un maximum entre le régime sousdopé et le régime surdopé. Nous justifions ainsi la forme en dôme représentée sur la Fig.5.2 b), où nous avons imposé que la position d'intensité maximum corresponde au dopage optimum. En extrapolant l'ajustement dans le régime surdopé, nous observons que le poids spectral optique devient nul à un dopage de 0.05 par rapport à l'optimum (soit un dopage de 0.21). Dans les barres d'erreurs, les poids

spectraux acoustique et optique semblent s'annuler autour d'un dopage de l'ordre de 0.21. Sur la Fig.5.4 c), nous représentons l'évolution de la somme des poids spectraux totaux de la résonance acoustique et de la résonance optique en fonction du dopage. **Nous mettons ainsi en évidence le fait que le poids spectral total des fluctuations magnétiques dans l'état supraconducteur passe par un maximum au voisinage du dopage optimum.** L'extrapolation de la décroissance du poids spectral total, dans le régime surdopé, semble indiquer la suppression des poids spectraux acoustique et optique autour d'un dopage de 0.22.

Des mesures de conductivité optique récentes, dans le système Bi2212, mettent en évidence un pic dans la self énergie optique associé à l'interaction entre les charges et un mode bosonique. Des études en température et en dopage de ce pic indiquent que le mode bosonique pourrait correspondre à la résonance magnétique neutrons[272, 273]. Or, dans le régime surdopé, ce pic disparaissant à un dopage critique de 0.23, il a été conclu que la résonance devait alors disparaître au même dopage. Cette conclusion semble être en accord avec l'évolution du poids spectral de la Fig.5.4 c).

La disparition de la résonance n'implique pas nécessairement une suppression des fluctuations magnétiques. Celles ci peuvent se manifester de manière différente. Dans l'échantillon de YBCOCa_{15%}, Chap.4.2.1, nous avons observé que le spectre optique était totalement incommensurable et de ce fait le poids spectral est réparti sur des positions autres que celle du vecteur d'onde AF.

5.2 Interprétation de nos résultats dans le cadre des approches itinérantes

De nombreuses approches itinérantes du magnétisme[225, 229, 218, 211, 220] dérivent une forme de susceptibilité magnétique ressemblant à la forme de la susceptibilité dans l'approximation RPA, Eq.2.15, pour décrire les propriétés de la physique de basses énergies du système. Dans l'état supraconducteur, à cause de l'ouverture du gap supraconducteur de symétrie $d_{x^2-y^2}$, le continuum d'excitations électron-trou présente gap autour du vecteur d'onde AF, voir Fig.2.4. En présence d'interactions, le critère de Stoner dynamique, $1 - V(\vec{q})\chi'_0(\vec{q}, \omega) = 0$ (voir Chap.2.1.2), peut être satisfait au vecteur d'onde AF pour une énergie inférieure au seuil du continuum d'excitations électron-trou, $\omega_c(q_{AF})$ (Eq.2.14). Dans ce cas, un mode collectif se forme en-dessous du continuum, centré au vecteur d'onde AF, et qui disperse vers les basses énergies à cause de la dépendance en vecteur d'onde de la bordure inférieure du continuum, Fig.2.4. L'interaction qui engendre l'apparition du mode est soit l'interaction intrasite $V(\vec{q}) = U$, soit l'interaction AF :

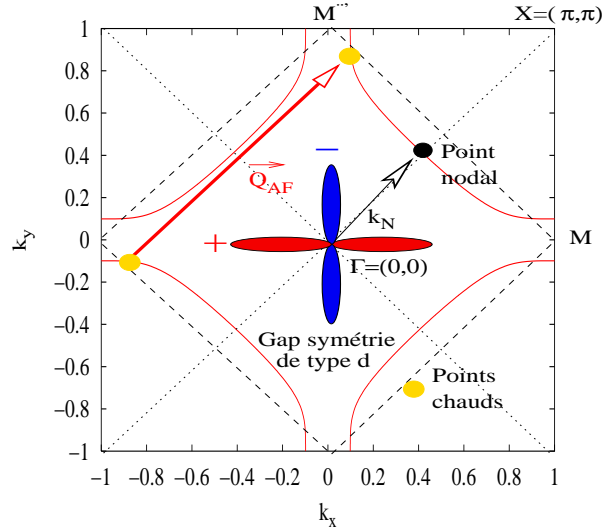
$$J(\vec{q}) = -2J_0(\cos q_x + \cos q_y) \quad (5.1)$$

où $J_0 \sim 4t^2/U$ ($U \gg t$).

Ces approches permettent de comprendre l'existence de la résonance et de sa dispersion vers les basses énergies. Naturellement toute la difficulté théorique est de justifier l'emploi d'une forme RPA de la susceptibilité dans des systèmes aussi complexes.

Dans ce manuscrit nous avons extrait de nouvelles informations sur la forme du spectre magnétique dans l'état supraconducteur du système. Nous disposons maintenant de la mesure d'une résonance optique et d'une résonance acoustique, et nous avons une descrip-

paramètres (meV)	Norman surface
(meV)	tb_3 [218]
t_0	147
t_1	-36.5
t_2	-2.375
t_3	32.45
t_4	-1.725
μ	-119.7



TAB. 5.1 – Dans la tableau, nous reportons les paramètres de la surface de Fermi, Eq.5.2, déduite des mesures de photoémission dans l'état supraconducteur de Bi2212[218, 219]. Sur la figure de droite, nous représentons cette surface de Fermi, ligne rouge. Sur la même figure nous montrons la dépendance angulaire du gap supraconducteur de symétrie $d_{x^2-y^2}$. Le vecteur d'onde AF joint les points de la surface de Fermi où la valeur du gap supraconducteur est grande et change de signe. Ces points sont nommés les points chauds de la surface de Fermi. Nous indiquons également la position des points nodaux, où le gap s'annule. Pour cette surface de Fermi, le module du vecteur nodal, k_N , vaut 0.48\AA^{-1}

tion précise du spectre acoustique au voisinage du dopage optimum, Chap.3.2.3. La prise en compte de la seconde résonance nécessite de dériver une expression de la susceptibilité RPA dans le cas d'un système à deux plans CuO_2 couplés. La levée de dégénérescence entre les plans CuO_2 peut être d'origine diverse : i) dédoublement de la surface de Fermi causé par un terme de saut interplan, t_\perp ii) couplage magnétique interplan, J_\perp et iii) appariement supraconducteur interplan. Les mesures d'ARPES dans Bi2212 ont récemment détecté le dédoublement de la surface de Fermi [253, 254, 257, 255, 259] et les mesures neutrons dans l'état isolant AF de Y123 montre l'existence d'un couplage magnétique interplan [117, 151]. En revanche il n'existe pas de support expérimental pour l'existence d'un appariement supraconducteur interplan.

Dans ce qui suit, nous montrons ce qui, dans nos mesures, peut être décrit par un calcul de la susceptibilité magnétique RPA dans le cas de deux plans couplés par un couplage magnétique. Les nouveaux résultats obtenus, permettent d'améliorer la comparaison et surtout apportent de nouvelles informations sur les paramètres microscopiques du système. Dans toutes les figures où nous montrons un calcul, nous avons utilisé les mêmes paramètres de surface de Fermi, de gap supraconducteur, d'interaction magnétique et d'amortissement.

Nous utilisons la surface de Fermi déduite des mesures de photoémission dans l'état supraconducteur de Bi2212[218, 219]. Celle-ci a été obtenue à partir de l'ajustement des mesures d'ARPES en considérant une relation de dispersion des quasiparticules :

$$\begin{aligned} \epsilon_{\vec{k}} = & -2t_0(\cos(k_x) + \cos(k_y)) - 4t_1\cos(k_x)\cos(k_y) - 2t_2(\cos(2k_x) + \cos(2k_y)) \\ & - 2t_3(\cos(2k_x)\cos(k_y) + \cos(k_x)\cos(2k_y)) - 2t_4\cos(2k_x)\cos(2k_y) \end{aligned} \quad (5.2)$$

où t_n représente le terme de saut entre les $n+1$ premiers voisins et μ le potentiel chimique. Nous reportons dans le Tab.5.1 les valeurs des paramètres obtenues par [218] exprimés avec les notations de Eq.5.2. La surface de Fermi correspondant est tracée sur la figure incluse dans le Tab.5.1, ligne rouge.

Nous choisissons une surface de Fermi mesurée dans le système Bi2212, où les mesures d'ARPES sont les plus contrôlées. Ce choix constitue une première approximation du calcul, car nous sommes essentiellement intéressés par la dynamique de spin dans le système Y123. D'autre part, nous négligeons les éventuels effets d'anisotropie de la surface de Fermi qui sont susceptibles d'être à l'origine de l'anisotropie du signal magnétique discutée dans la partie 3.1. De plus, nous ne prenons pas en compte le terme de saut interplan, t_{\perp} , à l'origine du dédoublement de la surface de Fermi autour des points antinodaux, voir Fig.1.8.

Cas d'une interaction magnétique entre les plans CuO_2

Une solution possible pour lever la dégénérescence de la résonance magnétique est d'introduire un couplage antiferromagnétique J_{\perp} entre les plans CuO_2 [221, 229, 230, 231]. Dans le Chap.1.5.1, nous avons donné les valeurs du couplage magnétique dans le plan, $J(=2J_0$ de l'équation Eq.5.1), et interplan, J_{\perp} , Tab.1.1.

Sur la Fig.5.5, nous comparons la position en énergie de la résonance mesurée dans le composé monoplan $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+\delta}$ ($T_c=90\text{K}$) à 47meV [141] et les positions en énergie des résonances acoustique et optique mesurées dans le composé biplan $\text{YBCO}_{6.85}$ ($T_c=89\text{K}$), Chap.3.2.2. La comparaison est pertinente car les deux échantillons ont la même T_c et sont tous deux légèrement soudopés. On observe alors tout simplement que la position de la résonance dans $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+\delta}$ est à mi-chemin de la position de la résonance acoustique et optique dans $\text{YBCO}_{6.85}$. L'amplitude de la levée de dégénérescence du mode résonnant est de 12meV ce qui est en accord avec la valeur de J_{\perp} mesurée dans l'état isolant, Tab.1.1. Dans l'état métallique, il est proposé de traiter l'interaction supplémentaire J_{\perp} en perturbation [221]. Le couplage interplan s'additionne alors à l'interaction dans le plan $J(q)$, Eq.5.1. Il apparaît deux susceptibilités correspondant à la réponse acoustique("ac") et optique("op") du système [221, 229, 230, 231] :

$$\begin{aligned} \chi_{RPA}(q, \omega)_{ac} &= \frac{\chi_0(q, \omega)}{1 + (J_q - J_{\perp})\chi_0(q, \omega)} \\ \chi_{RPA}(q, \omega)_{op} &= \frac{\chi_0(q, \omega)}{1 + (J_q + J_{\perp})\chi_0(q, \omega)} \end{aligned} \quad (5.3)$$

où $\chi_0(q, \omega)$ correspond à la susceptibilité transverse sans interaction définie par l'Eq.2.12. Nous supposons que le terme de saut interplan, t_{\perp} , nul. De ce fait, $\chi_0(q, \omega)$ est dégénérée. La prise en compte du t_{\perp} implique de traiter deux bandes dite "liante" et "anti-liante" [165, 232, 231, 259]. Dans ce qui suit, nous nommerons par $\chi_0(q, \omega)$ la susceptibilité sans interaction pour deux plans dégénérés qui est donc égale à deux fois la susceptibilité définie

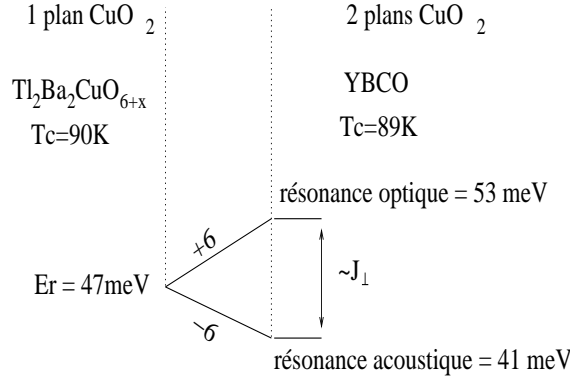


FIG. 5.5 – Levée de dégénérescence de la résonance magnétique entre un composé à 1 plan CuO_2 et un composé à 2 plans CuO_2 qui ont des T_c similaires. L'amplitude de cette séparation est de 12meV et correspond à l'ordre de grandeur du couple magnétique interplan mesuré dans le composé YBCO isolant

dans l'Eq.2.12. En présence d'interaction, nous calculons la susceptibilité RPA dans le canal acoustique et optique reliée à la susceptibilité RPA pour 1 plan CuO_2 par l'Eq.2.11 (voir aussi Fig.2.2).

Dans l'état supraconducteur, la résonance acoustique apparaît au vecteur d'onde AF sous le continuum d'excitations électron-trou quand le critère de stoner dynamique : $(1 - (4J_0 + J_\perp))\text{Re}\chi_0(q_{AF}, \omega) = 0$ est satisfait. Enfin, le mode optique apparaît au vecteur d'onde AF quand le critère de Stoner dynamique : $(1 - (4J_0 - J_\perp))\text{Re}\chi_0(q_{AF}, \omega) = 0$ est satisfait.

5.2.1 Estimation de la bordure du continuum d'excitations électron-trou à \vec{q}_{AF}

Calcul de la susceptibilité magnétique RPA en présence d'un couplage magnétique interplan

Pour la simulation numérique, nous avons utilisé la surface de Fermi dont les paramètres sont donnés dans le Tab.5.1. D'après la Fig.1.22, nous avons pris une valeur de $2\Delta_{max}$ de 80meV correspondant à un échantillon légèrement sousdopé (voir Eq.1.2). Nous avons ajusté les constantes d'interaction J_0 et J_\perp de sorte à trouver les modes résonnants acoustique et optique à la bonne position en énergie. De cette manière, nous trouvons $2J_0=138\text{meV}$ et $J_\perp=18.3\text{meV}$. La valeur du J_0 est deux fois plus petite que celle mesurée dans l'état isolant, Tab.1.1. Ceci provient essentiellement de la petite valeur du t_0 . D'autres mesures d'ARPES fournissent des t_0 plutôt de l'ordre de 400meV [257]. Nous ne connaissons pas l'origine de ces différences. Enfin, nous résumons l'ensemble des paramètres du calcul dans le Tab.5.2.

Sur la Fig.5.6 a), nous montrons le calcul de la partie réelle, courbe rouge, et de la partie imaginaire, courbe bleue, de la susceptibilité sans interaction dans l'état supraconducteur,

¹ ϵ correspond à l'amortissement infinitésimal de l'Eq.2.3. Dans l'état supraconducteur, on prend une valeur finie afin de pouvoir calculer les modes à l'extérieur du continuum où χ'' est nul.

zone Brillouin	1000×1000 atomes
$2\Delta_{max}$	80meV
$2J_0$	138meV
J_{\perp}	18.3meV
ϵ^1	0.1meV

TAB. 5.2 – Paramètres du calcul numérique

Eq.2.14. Nos résultats sont en bon accord avec les calculs similaires de [218]. Sur la Fig.5.6 a), les doubles flèches indiquent la position des critères de Stoner dynamiques au vecteur d'onde AF pour les modes acoustique et optique. Nous indiquons les positions en énergie qui satisfont ces critères à l'extérieur du continuum, où $\chi_0''(q, \omega) = 0$. Il existe d'autres pôles (il suffit de prolonger les doubles flèches) au vecteur d'onde AF mais ils engendrent des modes dans le continuum qui sont donc amortis. Le mode de plus basse énergie apparaît dans le canal acoustique car l'interaction est plus forte.

Sur la Fig.5.6 b), nous montrons le résultat du calcul de la partie imaginaire de la susceptibilité en interaction. Le pic plein rouge à basses énergies correspond au mode acoustique et le pic plein bleu au mode optique. Nous avons ajouté le calcul du mode résonnant dans le cas d'un système biplan dégénéré, soit $J_{\perp} = 0$, pic violet (l'intensité du calcul a été divisée par deux). Sur cette figure, nous avons zoomé (grossissement $\times 100$) la partie haute énergie du calcul afin de faire ressortir le continuum d'excitations électron-trou. On observe que l'intensité du mode optique est plus petite que celle du mode acoustique car sa position en énergie est plus proche de la position du continuum. Il est assez remarquable que par un choix réaliste des paramètres et une surface de Fermi générique, nous reproduisons les deux résonances avec les bonnes positions en énergie et un rapport d'intensité qualitativement correct. Cependant quantitativement, nous ne reproduisons pas le facteur 1/6 trouvé entre les deux modes, Chap.3.2.2, mais nous reviendrons sur ce point plus loin.

Nous avons également calculé une carte de la susceptibilité en interaction acoustique et optique suivant la direction (110) et en fonction de l'énergie. Sur les Fig.5.7 a) et b), nous montrons ces cartes dans les deux canaux. L'intensité de la résonance acoustique à q_{AF} est de $\sim 800\mu_B^2.eV^{-1}$ et celle de la résonance optique à q_{AF} est de $\sim 500\mu_B^2.eV^{-1}$, Fig.5.6. La ligne rouge correspond à la bordure du continuum d'excitations électron-trou, $\omega_c(\vec{q})$, déterminée au Chap.2.1.2, Eq.2.14, avec exactement les mêmes paramètres de surface de Fermi, Fig.2.4. Nous avons superposé sur ce calcul les points expérimentaux : les points correspondant à la résonance optique et aux signaux acoustiques de hautes énergies proviennent de l'expérience décrite au Chap.3.2.2 et nous avons repris les points de la dispersion basses énergies de la résonance acoustique obtenue antérieurement[101]. Le calcul produit une dispersion de la résonance acoustique pas assez forte par rapport à la dispersion réelle.

¹Pour obtenir cette carte couleur, nous avons échantillonné l'axe 110 avec des pas de 0.05Å. Pour chaque pas nous avons calculé la susceptibilité RPA entre 25meV et 90meV par pas de 0.2meV

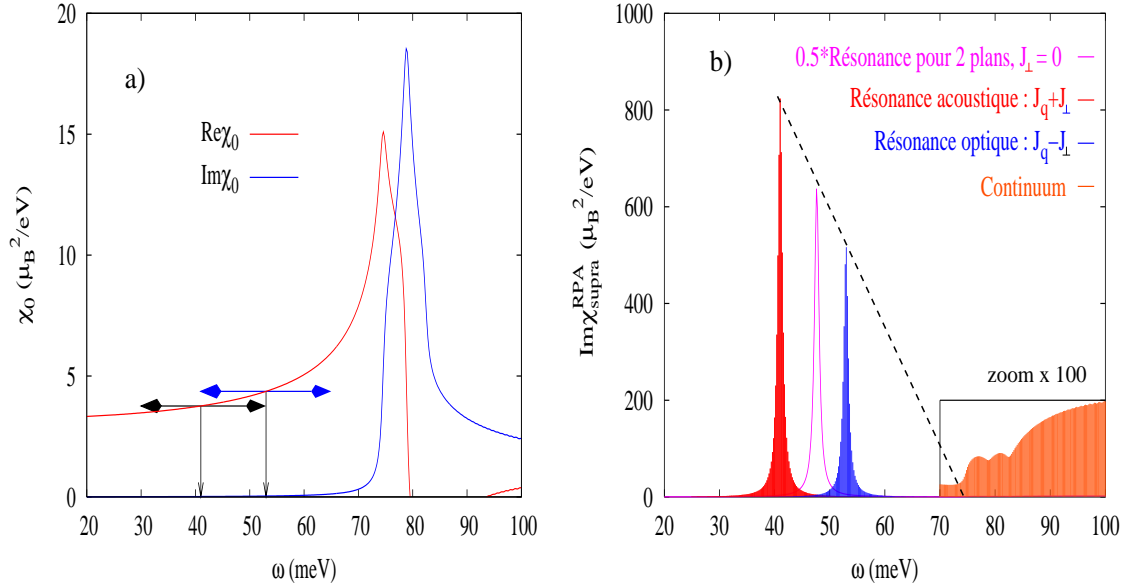


FIG. 5.6 – *Figure de gauche* : nous avons représenté en rouge la partie réelle et en bleu la partie imaginaire de la susceptibilité transverse sans interaction dans l'état supraconducteur. Les doubles flèches noires et bleues indiquent les valeurs $\frac{(g\mu_B^2)}{4J_0+J_\perp}$ et $\frac{(g\mu_B^2)}{4J_0-J_\perp}$ correspondantes à la condition de pôle au vecteur d'onde AF dans la canal acoustique et optique (Eq.5.3). *Figure de droite* : calcul numérique de la partie imaginaire de la susceptibilité RPA dans l'état supraconducteur dans le canal acoustique en noir et optique en bleu. En rouge, nous montrons le calcul pour un biplan dégénéré, $J_\perp = 0$ (l'intensité a été divisée par 2). Dans l'insert, en bas à droite, nous avons zoomé, à partir de 70meV, la bordure du continuum d'excitations électron-trou. La ligne pointillée noire montre que par une simple extrapolation linéaire (Eq.5.7), il est possible d'estimer la bordure du continuum au vecteur d'onde AF.

Détermination théorique de la bordure du continuum électron-trou

Comme on peut le voir sur la Fig.5.6 b), les modes résonnants sont des états liés au continuum d'excitation électron-trou : plus un mode est proche du continuum et plus son intensité décroît. Le poids spectral d'un mode résonnant est donné par [225] :

$$W(q_{AF})^{theo} = \frac{1}{(J_{q_{AF}} \pm J_\perp)^2} \left(\frac{\partial Re\chi_0(q_{AF}, \omega)}{\partial \omega} \right)_{\omega_{ac/op}}^{-1} \quad (5.4)$$

Les poids spectraux des modes dépendent donc du comportement divergent de la partie réelle de la susceptibilité. A proximité de l'instabilité AF, on observe deux comportements possibles en fonction du dopage[225]. Dans la partie sousdopée du diagramme de phase, où la surface de Fermi est ouverte et éloignée de la singularité de Van Hove, la divergence est de type logarithmique : $Re\chi_0(q_{AF}, \omega) \propto \log 1/(\omega_c - \omega)$, où ω_c est l'énergie de la singularité associée à la bordure du continuum d'excitations électron-trou au vecteur d'onde AF. A mesure que l'on se rapproche du régime optimum, la surface de Fermi se referme et se rapproche de la singularité de Van Hove, la divergence est une racine carrée : $Re\chi_0(q_{AF}, \omega) \propto \sqrt{1/(\omega_c - \omega)}$. Le rapport des poids spectraux des modes résonnant acoustique et optique permet alors simplement d'estimer la position du continuum électronique au vecteur d'onde AF, ω_c :

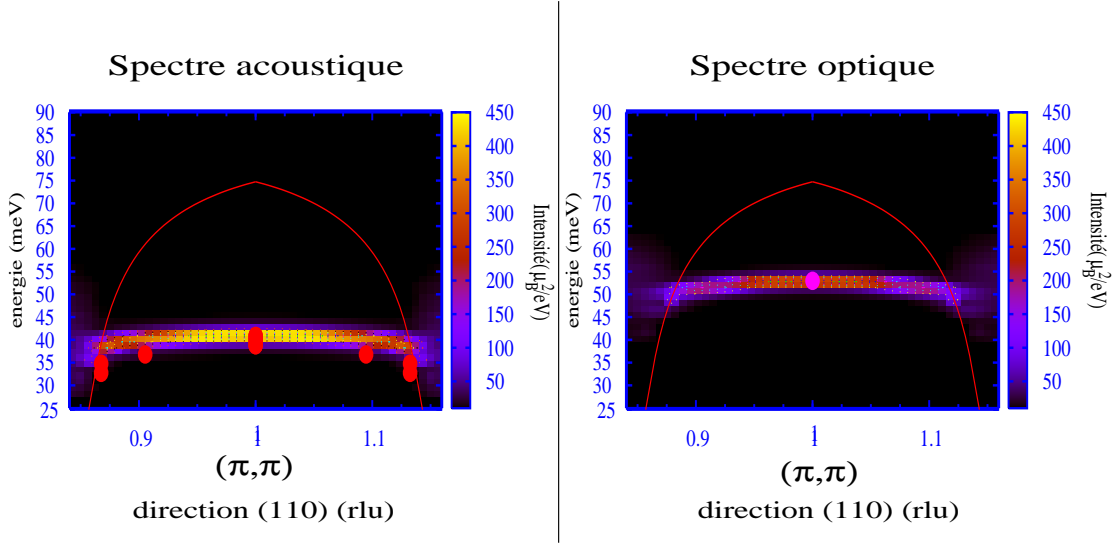


FIG. 5.7 – Sur cette figure nous montrons la carte couleur¹ de la susceptibilité RPA en fonction de l'énergie et du vecteur d'onde suivant la direction 110 dans le canal acoustique, a), et optique b). La ligne rouge sur chaque figure correspond à la bordure du continuum d'excitations électron-trou, $\omega_c(\vec{q})$, obtenue par l'Eq.2.14 suivant la direction 110. Nous superposons sur ces cartes les points expérimentaux.

$$\frac{W_{ac}}{W_{op}} = \left(\frac{J_{q_{AF}} - J_{\perp}}{J_{q_{AF}} + J_{\perp}} \right)^2 \frac{\omega_c - E_0^{ac}}{\omega_c - E_0^{op}} \quad \text{divergence logarithmique de } \text{Re}\chi_0 \quad (5.5)$$

$$\frac{W_{ac}}{W_{op}} = \left(\frac{J_{q_{AF}} - J_{\perp}}{J_{q_{AF}} + J_{\perp}} \right)^2 \left(\frac{\omega_c - E_0^{ac}}{\omega_c - E_0^{op}} \right)^{3/2} \quad \text{divergence en racine carrée de } \text{Re}\chi_0 \quad (5.6)$$

Au vecteur d'onde AF, le terme d'interaction interplan, $J_{\perp}=18.5\text{meV}$, peut être négligé par rapport à l'interaction AF dans le plan $J_{q_{AF}}=4J_0$ soit 275.5meV . En supposant un comportement logarithmique de la partie réelle et en éliminant le terme J_{\perp} , nous retrouvons la formule simplifiée [221] que nous avons utilisé dans notre publication[142] :

$$\frac{W_{ac}}{W_{op}} = \frac{\omega_c - E_0^{ac}}{\omega_c - E_0^{op}} \quad (5.7)$$

La quantité $\omega_c - E_0^{ac}$ est appelée **énergie de liaison** du mode résonnant. C'est une mesure de la distance du mode résonnant à la bordure du continuum d'excitations électron-trou, donc de la force des interactions dans le système. L'avantage de cette formule est que nous n'avons pas besoin de connaître les paramètres microscopiques des termes d'interaction. La mesure des deux modes résonnants permet directement d'estimer ω_c par une simple extrapolation linéaire. Effectivement, sur la Fig.5.6, la droite (ligne en pointillés noirs sur la figure), qui passe par le maximum des intensités des modes, croise l'axe des abscisses à la bordure du continuum d'excitations électron-trou.

Une nouvelle information apportée par les neutrons :

D'après l'Eq.5.7, la mesure sur un même échantillon des résonances acoustique et optique permet d'obtenir une estimation de la bordure du continuum au vecteur d'onde AF. Cette valeur correspond également à la valeur du gap supraconducteur au voisinage des points chauds de la surface de Fermi, Δ_{ks} . Les points chauds étant les points de la surface de Fermi connectés par le vecteur d'onde AF, points jaunes sur la figure incluse dans le Tab.5.1. Ainsi, nous avons établi une méthode pour obtenir, dans le cadre théorique décrit ci-dessus, une mesure de volume du gap supraconducteur.

Dans le Tab.5.4 nous résumons les valeurs de ω_c obtenues dans les échantillons de YBCO_{6.85}, YBCOCa_{10%} et YBCOCa_{15%}. Pour le calcul, nous utilisons le poids spectral du mode au vecteur d'onde AF définie au Chap.3.2.4, Eq.3.8. L'erreur typique que nous avons sur l'estimation du rapport des poids spectraux et sur la position en énergie des modes est de l'ordre du pourcent. L'erreur sur l'estimation de ω_c est alors de l'ordre de 2 à 5%.

Afin de tester l'approximation réalisée pour obtenir l'Eq.5.7, nous comparons dans le Tab.5.3, pour le système YBa₂Cu₃O_{6.85}, les valeurs de ω_c obtenues par l'Eq.5.5, ω_c^a , et Eq.5.6, ω_c^b , de celles obtenues par la formule de[221], Eq.5.7, ω_c . Les paramètres d'interactions utilisés sont ceux du Tab.5.2.

échantillon	poids spectral acoustique (μ_B^2)	poids spectral optique (μ_B^2)	ω_c^a (Eq.5.5) (meV)	ω_c^b (Eq.5.6) (meV)	ω_c (Eq.5.7) (meV)
YBCO _{6.85}	1.8	0.55	57	60	58
$\langle \omega_c \rangle = 58.5$ meV					

TAB. 5.3 – Estimation de ω_c à partir d'approximations différentes (voir texte)

Sur l'ensemble des estimations de ω_c , nous calculons un écart type de moins de 1meV comparable à l'erreur expérimentale qui est de l'ordre de 2meV. L'estimation de ω_c par l'Eq.5.7 est correcte à notre niveau de précision.

échantillon	poids spectral acoustique (μ_B^2)	E_0^{ac} (meV)	poids spectral optique (μ_B^2)	E_0^{op} (meV)	ω_c (Eq.5.7) (meV)
YBCO _{6.85}	1.8	41	0.55	53	57
YBCOCa _{10%}	1.2	36	0.6	43	50
YBCOCa _{15%}	0.45	34	0.3	35	37

TAB. 5.4 – Positions en énergie et poids spectraux au vecteur d'onde AF (voir définition Eq.3.8) des modes résonnants acoustique et optique dans les 3 systèmes étudiés dans ce manuscrit. Nous reportons dans la dernière colonne l'estimation de la bordure du continuum au vecteur d'onde AF d'après l'Eq.5.7

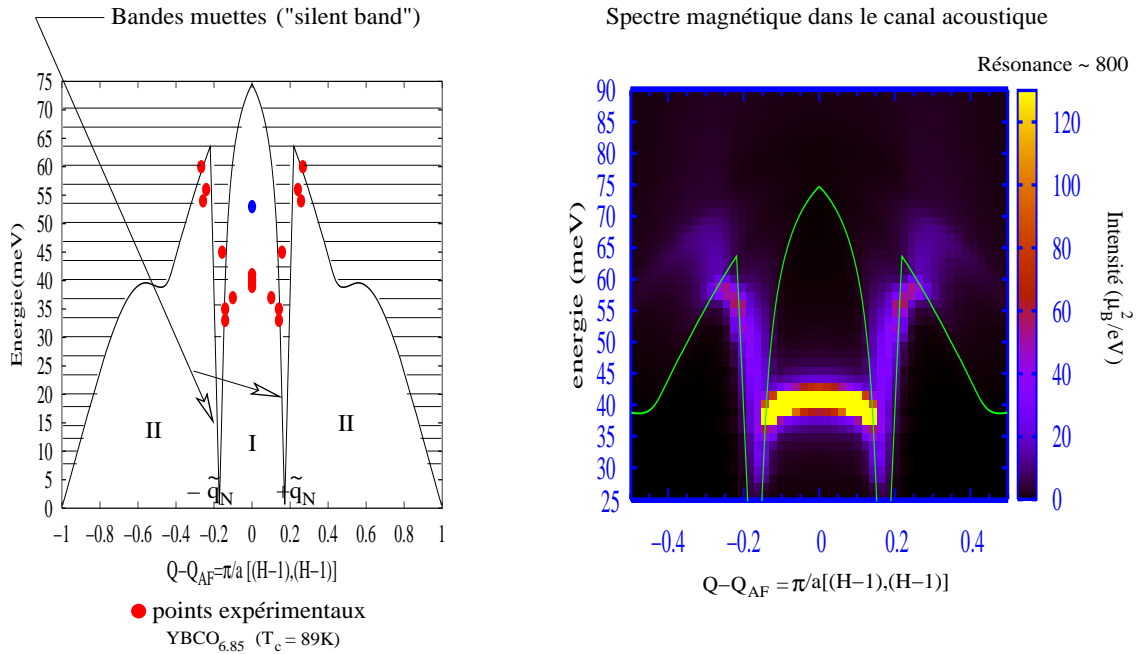


FIG. 5.8 – Sur la figure a) nous situons simplement les points expérimentaux par rapport à la bordure du continuum d’excitations électron-trou, Fig.2.4. On observe qu’une partie des points expérimentaux appartenant à la dispersion vers les basses énergies de la résonance sont localisés dans l’intervalle $[-\tilde{q}_N, +\tilde{q}_N]$ qui définit la zone I du continuum. La zone I est séparée de la zone II par la chute du continuum d’excitations électron-trou à $\pm\tilde{q}_N$. Nous nommons ”bandes muettes” la surface du continuum qui sépare les deux zones. Le reste des points expérimentaux est localisé dans la zone II du continuum. Sur la figure b), nous montrons le calcul de la susceptibilité en interaction étendu à la zone II du continuum.

5.2.2 Mise en évidence du continuum d’excitations électron-trou : ”Les bandes muettes”

Interprétation de l’anomalie à 49meV dans le spectre acoustique de YBCO_{6.85}

Rappelons que dans le Chap.3.2.2, nous avons montré l’existence de structures magnétiques incommensurables à haute énergie, $E > E_0^{ac}$, dans l’état supraconducteur du composé YBCO_{6.85} ($T_c = 89K$) au dopage optimum. Le spectre acoustique, constitué de la dispersion vers les basses énergies[101] et de ces nouvelles incommensurabilités à plus hautes énergies, forme un ”X” en accord avec les mesures de [150]. Nous avons mis en évidence une anomalie dans cette forme en ”X” au niveau de la branche supérieure. Cette anomalie consiste en une atténuation brutale de l’intensité sur une petite gamme d’énergie autour de 49meV du signal magnétique incommensurable à hautes énergies. Nous avons modélisé cette atténuation en introduisant un fort amortissement, voir Fig.3.13. Dans l’échantillon YBCO_{Ca10%} ($T_c = 85K$), partie 4.1.2, nous avons montré que le spectre optique était correctement décrit en considérant deux types de modes magnétiques : les modes résonnants associés à la résonance au vecteur d’onde AF qui ont une forme en X, et les modes de type II, incommensurables qui dispersent vers les hautes énergies et qui sont localisés loin du vecteur d’onde AF, voir Fig.4.11. Les deux types de mode sont séparés par une zone sans intensité (ligne verticale verte sur la Fig.4.11). Ci-dessous, nous allons four-

nir une interprétation possible de l'anomalie à 49meV dans le spectre magnétique de l'échantillon YBCO_{6.85} et des modes de types II dans l'échantillon YBCOCa_{10%}. Nous pouvons également comprendre l'origine du gap de spin à basse énergie.

Pour cela, nous avons reporté, sur le profil du continuum d'excitations électron-trou de la Fig.2.4, les positions incommensurables de la forme en X du spectre acoustique dans YBCO_{6.85}, Fig.5.8 a). Nous remarquons que le groupe de points de la dispersion à basses énergies ainsi que les points incommensurables à 45meV apparaissent dans la région du continuum comprise entre $[-\tilde{q}_N, +\tilde{q}_N]$ que nous nommons région I. Le vecteur \tilde{q}_N est définie par $\tilde{q}_N = |q_{AF} - 2k_N|$, où k_N correspond au vecteur qui joint les points nodaux de la surface de Fermi, voir la figure incluse dans le Tab.5.1. Un second ensemble de points à hautes énergies entre 50meV et 65meV, plus éloigné du vecteur d'onde AF, apparaît dans une région du continuum que nous nommons région II. Les régions I et II sont séparées par la chute du continuum dans une bande étroite en vecteur d'onde positionnée, à énergie nulle, aux vecteurs d'onde $q = \pm\tilde{q}_N$. On remarque que cette bande coïncide avec la disparition du signal à basses énergies et avec l'interruption de la courbe de dispersion vers les hautes énergies à 49meV. Expérimentalement, la zone étroite où chute le continuum correspond à une bande où siège un fort amortissement qui rend le signal non détectable. Nous nommons ces bandes, localisées de part et d'autre du vecteur d'onde AF : "bandes muettes" ("silent band"). **Nous pensons que les bandes muettes peuvent être à l'origine de l'interruption locale de la forme en X à 49meV et du gap de spin à basses énergies.** De plus, les points expérimentaux dans la région II étant localisés sous le continuum, nous pensons qu'ils peuvent être interprétés comme des états liés sous le continuum de façon similaire à la résonance. Pour confirmer ceci, nous avons étendu le domaine du calcul de la susceptibilité en interaction, généralement restreint à la région I du continuum, Fig.5.7, à la région II. Le résultat du calcul est montré sur la Fig.5.8 b). Nous observons bien des modes collectifs réapparaître dans la région II du continuum d'intensité environ 10 fois plus faible que l'intensité de la résonance. On observe un bon accord entre la position de ces modes et les positions des points expérimentaux dans la région II et la région I.

Les différences entre le calcul et la mesure sont : i) le rapport d'intensité entre les modes dans la région II et ceux de la région I est de 1/10 alors que dans la mesure il est de 1/6 et ii) la dispersion de la résonance vers les basses énergies est plus forte dans la mesure que dans le calcul. Nous pouvons éviter ces deux différences en modifiant la nature de l'interaction. Sur la Fig.5.9, nous comparons les cartes de la susceptibilité RPA, obtenues de façon similaire à celle de la Fig.5.8 b), dans le cas : i) sans interaction, $V(\vec{q})=0$, ii) avec une interaction AF, $V(\vec{q})=J(\vec{q})$, où $J(\vec{q})$ est donné par l'équation Eq.5.1 et enfin iii) en utilisant une interaction intrasite effective, U , constante en vecteur d'onde. Sur la carte de la susceptibilité sans interaction, les lignes correspondent à différents processus d'excitations électron-trou, Fig.5.10, suivant la direction 110 (nous reviendrons sur ces processus ci-dessous). L'intensité de ces lignes est très faible, de l'ordre de 3% de l'intensité de la résonance. On observe que l'effet du U par rapport au $J(\vec{q})$ est d'accroître la dispersion vers les basses énergies et d'augmenter le rapport entre l'intensité des modes

¹L'intensité au maximum de la résonance est de $800\mu_B^2/eV$ mais pour fournir la carte couleur, nous moyennons l'intensité entre deux points de calcul. En conséquence, on observe pas de jaune sur la carte couleur

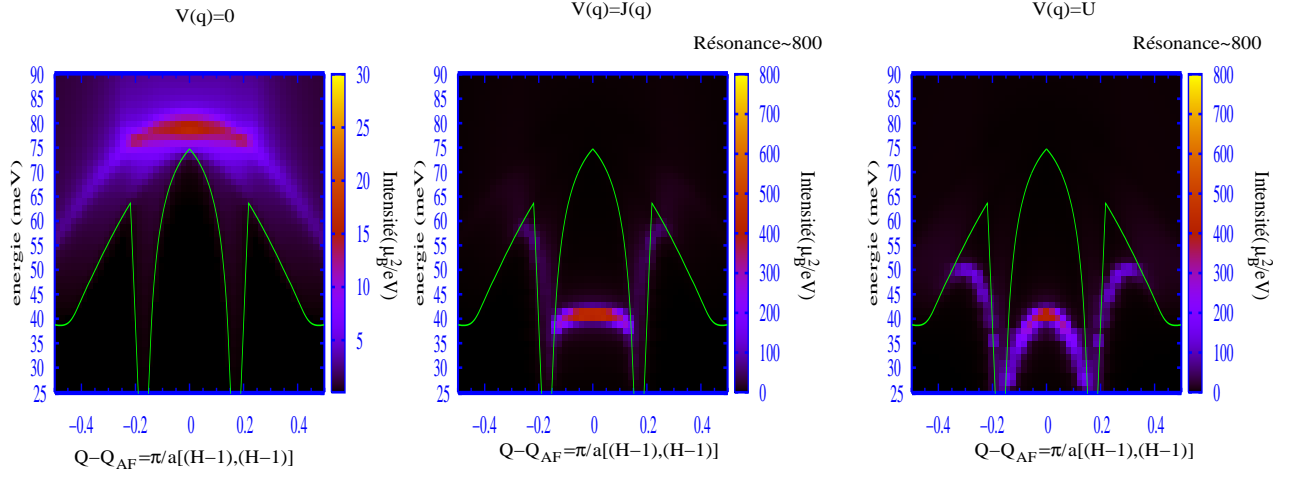


FIG. 5.9 – Les trois figures correspondent à des cartes en énergie de la susceptibilité RPA calculée sans interaction, a), avec une interaction AF ($J(\vec{q})$ voir Eq.5.1), b), et avec une interaction intrasite constante $U=4J_0$ ($=J(q_{AF})$), c). Les échelles de couleur sont les mêmes pour les figures c) et d)¹. Seule la figure a) a une échelle de couleur différente. La bordure du continuum d'excitations électron-trou, $\omega_c(\vec{q})$, obtenu par l'Eq.2.14 est représenté sur chaque figure par la ligne verte

de la région II et la résonance. Celui-ci est de 1/10 avec $J(\vec{q})$ et devient égal à 1/4 pour U . L'utilisation du U permet de résoudre les petites différences entre le calcul et la mesure mentionnées ci-dessus. Cependant, l'interaction intrasite effective U déplace la position en énergie des modes de la région II du continuum vers les basses énergies, ce qui engendre une nouvelle petite différence par rapport à la mesure. Il devrait être possible de trouver la forme de l'interaction à mi chemin entre le $J(\vec{q})$ et le U qui permet de reproduire exactement les positions et les intensités de la mesure.

Nous observons donc que le calcul de la susceptibilité RPA permet de rendre compte qualitativement de quasiment tous les détails du spectre : la présence d'un mode acoustique et optique à q_{AF} dans l'état supraconducteur, la dispersion vers les basses énergies dans la région I, le gap de spin et les modes dans la région II. Seule la partie de la dispersion comprise entre E_0^{ac} et 49meV n'est pas reproduite et nous verrons ci-dessous que ceci pose un vrai problème.

Processus à l'origine des modes collectifs dans la région I et II du continuum

L'existence de tels modes a été prédie théoriquement depuis longtemps, comme illustré dans[235]. C'est cependant la première fois qu'expérimentalement, nous obtenons des indications de leur réalité. Récemment, une étude a été réalisée sur ces modes collectifs dans la région II du continuum[236]. Elle confirme le spectre de la Fig.5.8 b) ainsi que la notion de 'bandes muettes' et fournit une interprétation des processus responsables des modes dans la région II. Sur la Fig.5.10, nous reportons la figure de la référence [236] qui montre les différents processus d'excitations électron-trou suivant la direction (110), Fig.5.10 a), ainsi que l'énergie minimale à fournir pour générer ces processus nommés fréquences cri-

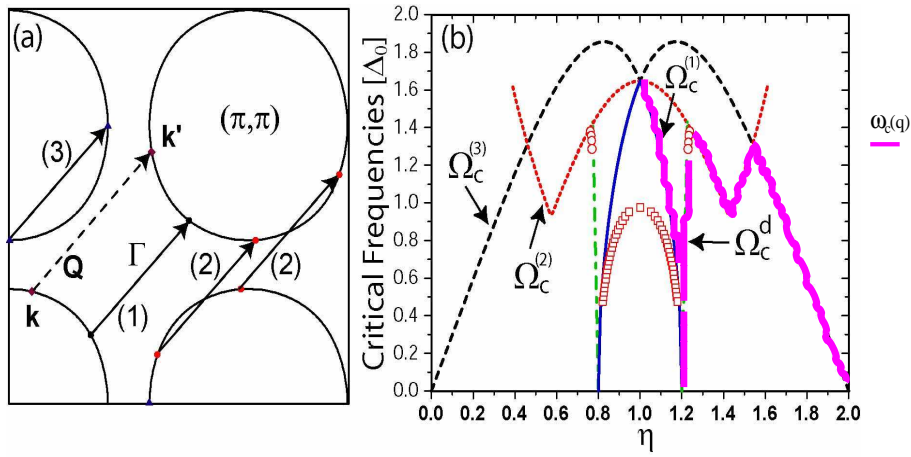


FIG. 5.10 – Figure extraite de la référence [236]. Sur la figure a), on montre les trois processus d’excitations électron-trou apparaissant suivant la direction (110) à mesure que l’on s’écarte du vecteur d’onde AF : i) flèche ”1”, processus direct, ii) flèche ”2”, processus umklapp de type q - $(0, 2\pi)$ et q - $(2\pi, 0)$ et iii) flèche ”3”, processus umklapp de type q - $(2\pi, 2\pi)$. Chaque processus ”i” implique une fréquence critique Ω_c^i de la figure b). La bordure du continuum est alors définie par $\omega_c(\vec{q}) = \text{Min}(\omega_c^i)$. Nous avons retracé en violet ω_c

tiques, Ω_c^i , Fig.5.10 b). En s’éloignant du vecteur d’onde AF suivant la direction (110), on voit apparaître trois fréquences critiques Ω_c^i ($i=1,2,3$). Sur la Fig.5.10, les numéros sur les flèches indiquent les processus d’excitations électron-trou à l’origine de chacune de ces fréquences critiques : i) Ω_c^1 provient des processus direct à l’intérieur de la surface de Fermi. Dans l’état supraconducteur, Ω_c^1 est essentiellement contrôlé par $\Delta(\vec{k})$ et il s’annule là où le gap supraconducteur s’annule, donc aux points nodaux. ii) Ω_c^2 provient de processus umklapp de type q - $(0, 2\pi)$ et q - $(2\pi, 0)$ et enfin iii) Ω_c^3 provient de processus umklapp de type q - $(2\pi, 2\pi)$. Les processus umklapp apparaissent quand les vecteurs d’ondes sont trop petits, inférieurs à $2k_N$, pour relier des points de la surface de Fermi. Ils montrent que le passage $|q| < 2k_N$ à $|q| \sim 2k_N + \epsilon_+$ est marqué par un gap, ligne Ω_c^d sur la Fig.5.10, dont la forme est indépendante de la SC et est définie par : $\Omega_c^d = v_F(q - 2k_N)$, où v_F est la vitesse de Fermi au point nodal. La bordure du continuum, ce que nous notons $\omega_c(\vec{q})$, est déterminée par le minimum de ces trois énergies critiques : $\omega_c(\vec{q}) = \text{Min}(\Omega_c^1, \Omega_c^2, \Omega_c^3)$. Sur la Fig.5.10, nous avons reconstitué en trait violet la bordure du continuum à partir des trois fréquences, Fig.5.8 a). La forme résultante est bien consistante avec notre détermination de la bordure du continuum, voir Fig.5.9 par exemple.

Changements de symétrie des structures incommensurables de part et d’autre de E_0^{ac}

L’étude [236] montre que les modes de la région I n’ont pas la même géométrie dans le plan de base que les modes de la région II. Nous montrons, sur la Fig.5.11, notre calcul de la susceptibilité RPA dans le plan de base pour différentes valeurs d’énergie transférée. Entre le gap de spin et l’énergie de la résonance, voir carte à $E=35\text{meV}$, le signal est d’intensité maximum suivant les directions a^* et b^* du cristal, en accord avec les travaux de [225] et en accord avec l’expérience[134, 118]. A l’énergie de la résonance, l’intensité est maximum au vecteur d’onde AF, et le signal reproduit la forme de la surface de Fermi.

Carte de l'intensité magnétique dans le plan de base pour différentes énergies de transfert de part et d'autre la résonance

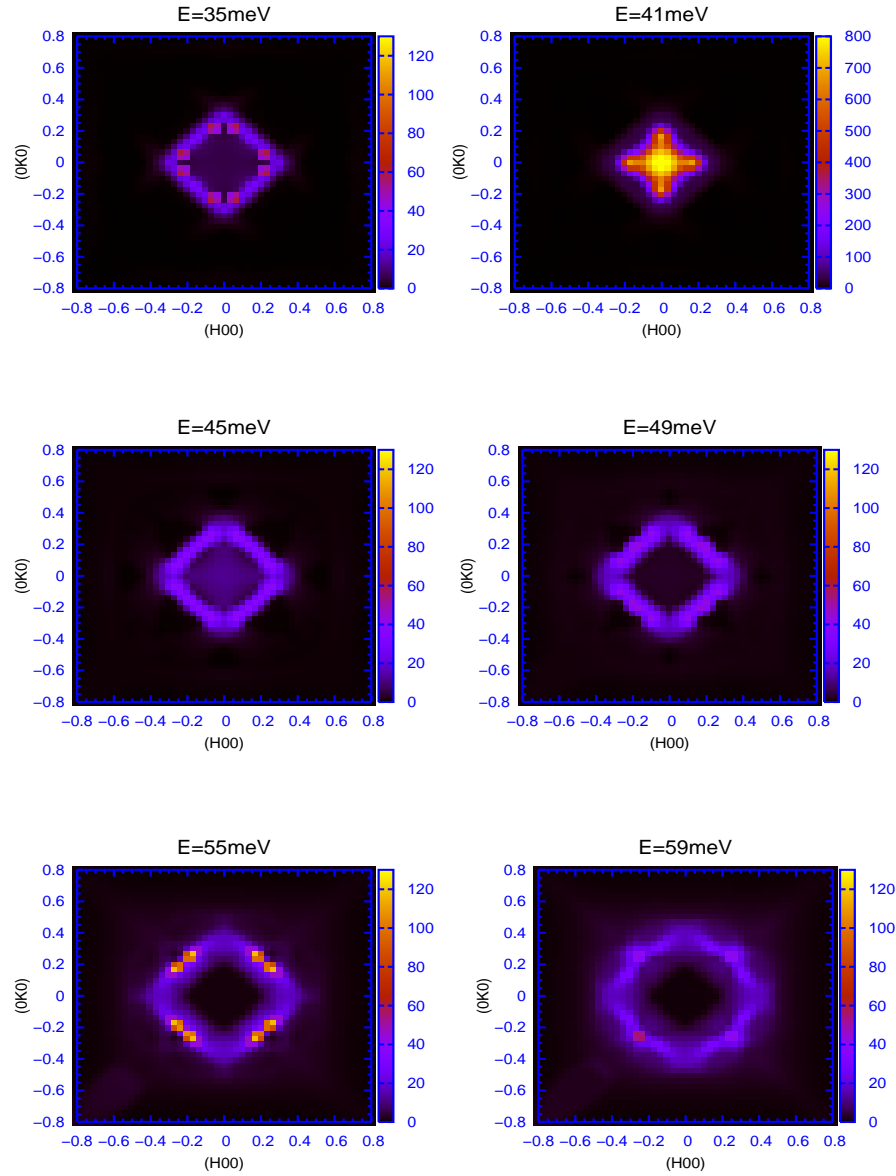


FIG. 5.11 – Carte de la susceptibilité RPA dans le plan de base pour différentes valeurs d'énergie transférée de part et d'autre de l'énergie de la résonance à 41meV. L'intensité de la résonance est d'environ $800\mu_B^2/eV$, Fig.5.6, et les cartes sont représentées entre $[0 : 130] \mu_B^2/eV$ sauf celle à 41meV. Tous les paramètres du calcul sont décrit dans la partie 5.2.1. On observe le changement de symétrie des structures incommensurables entre la carte à $E=35meV$ et $E=55meV$, en accord avec les travaux de [236]. On voit également nettement l'effet des bandes muettes qui se traduit par une réamplification du signal à 55meV par rapport au signal à 45meV et 49meV.

Echantillonnage de la zone de Brillouin dans le plan de base

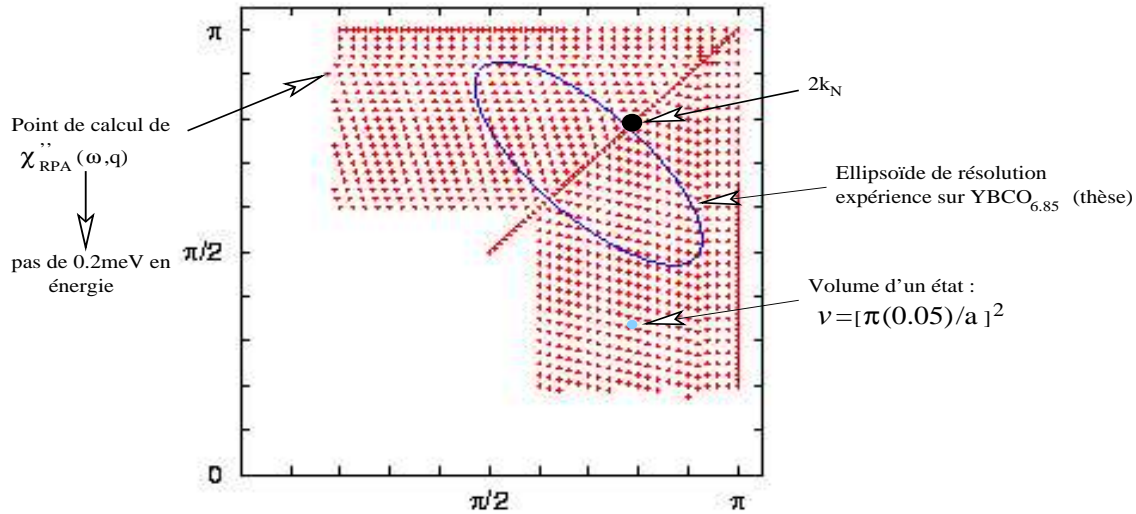


FIG. 5.12 – Sur cette figure nous montrons l'échantillonnage, croix rouge, du quart de la première zone de Brillouin (pzB). Pour chaque croix rouges nous avons calculé la susceptibilité RPA entre 25meV et 90meV par pas de 0.2meV. Le surface moyenne par point correspond à environ 6/10000 de la surface de la pzB. Sur cette grille nous superposons l'ellipsoïde de résolution de l'expérience sur l'échantillon de YBCO_{6.85}, Chap.2.3.2. Nous indiquons également la position du vecteur $q=2k_N$ par un point noir.

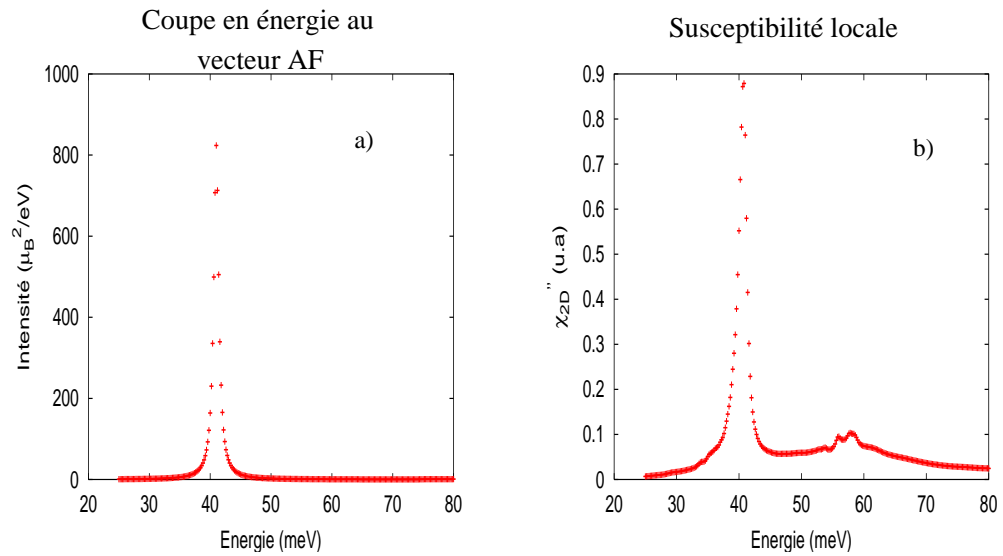
Entre E_0^{ac} et 50meV, carte couleur à 45meV et 49meV, l'intensité est distribuée quasiment uniformément sur un losange. Sur le petit intervalle en énergie où apparaissent les modes de la région II, entre 50meV et 60meV, on voit apparaître un signal supplémentaire maximum suivant la direction 110. En augmentant encore l'énergie, le signal se répartit de nouveau de façon quasi-isotrope, carte à 59meV.

Malheureusement, dans notre étude de DIN nous n'avons pas vu clairement ce changement de symétrie du signal dans le plan de base. Nous observons que l'intensité des modes de hautes énergies, à $E=54meV$, reste maximum suivant les axes a^* et b^* comme pour ceux à basses énergies[143]. Une mesure récente de DIN semble indiquée un tel changement de symétrie de part et d'autre de E_0^{ac} dans un échantillon YBa₂Cu₃O_{6.6} ($T_c = 62.7K$)[118]. Cependant, cette mesure ne nous permet pas de conclure s'il s'agit d'une propriété de la résonance dans l'état supraconducteur où d'une propriété de la phase normale.

5.2.3 Simulation des résultats expérimentaux

Ci-dessus nous avons montré que le calcul de la susceptibilité RPA permettait de comprendre une partie importante du spectre magnétique acoustique mesuré dans l'échantillon YBCO_{6.85}. Motivé par cet accord entre le calcul et l'observation, nous avons entrepris de réaliser le calcul de la susceptibilité RPA et de le convoluer avec la fonction de résolution instrumentale de l'expérience. Nous avons deux objectifs : i) rendre compte des effets de résolution sur le résultat théorique et ii) établir une comparaison quantitative entre le calcul et l'observation, ce qui, par ailleurs, permettrait de définir précisément un seuil de détection du signal magnétique par DIN.

Calcul numérique sans la convolution avec la résolution instrumentale



Calcul numérique de la susceptibilité RPA convoluée avec la résolution instrumentale

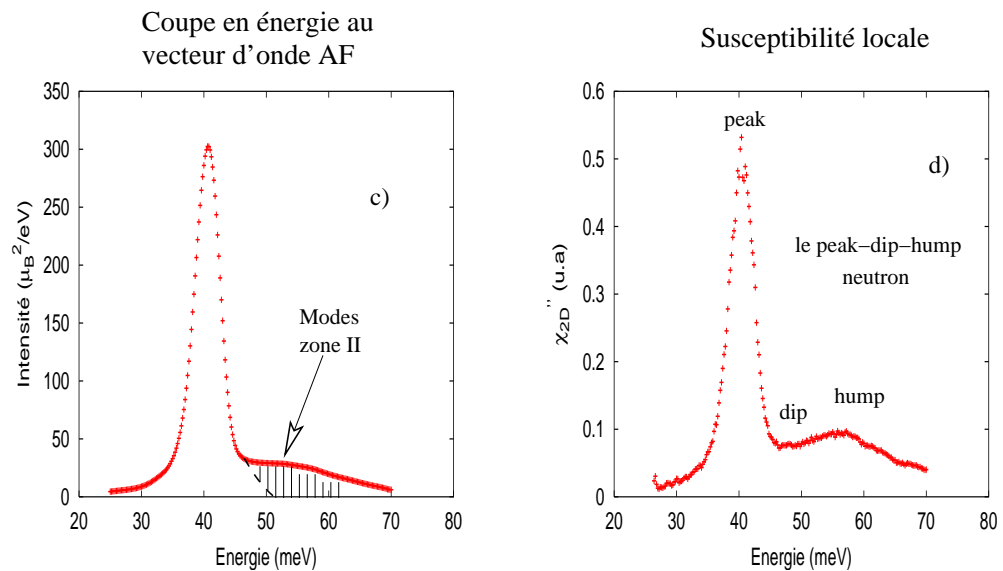


FIG. 5.13 – Sur les figure a) et b) nous reportons le calcul brut de la susceptibilité en interaction suivant une coupe en énergie au vecteur d'onde AF, a), et intégré en vecteur d'onde en fonction de l'énergie, susceptibilité locale. Les figures c) et d) ont été obtenues en réalisant le produit de convolution entre la susceptibilité en interaction et l'ellipsoïde de résolution instrumentale (voir texte). Sur la figure d), le profil de la susceptibilité locale décrit une structure pic-creux-pic. Le creux est associé à l'effet des bandes muettes.

Stratégie du calcul :

L'ellipsoïde de résolution de DIN est un objet à quatre dimensions dans l'espace (\vec{q}, ω) . Pour nos mesures, nous avons montré que nous pouvons réduire cet espace en intégrant suivant la direction \vec{c} , Chap.2.3.2. Sur la Fig.5.12, nous représentons l'ellipsoïde de résolution intégré suivant l'axe \vec{c} dans le plan CuO_2 (un quart de la première zone de Brillouin (pzB)). Le travail consiste alors à calculer la susceptibilité RPA sur un nombre de points suffisant dans le volume, (q_{2D}, ω) , de l'ellipsoïde de résolution. Les petites croix rouges sur la figure indiquent les vecteurs d'onde, \vec{q} , de l'espace réciproque¹ où nous avons réalisé le calcul de la susceptibilité RPA pour des énergies de transfert comprises entre 25meV et 90meV avec des pas de 0.2meV² (l'amortissement en énergie est de 0.1meV et la taille de la résolution en énergie est de 4meV). La petite surface autour de chaque croix rouge est de $(2\pi 0.025/a)^2 \sim 1.7 \cdot 10^{-3}$ soit 6/10000 de la surface de la première zone de Brillouin. Nous estimons avoir ainsi un échantillonnage suffisant à l'intérieur de l'ellipsoïde de résolution pour réaliser un calcul d'intégration numérique. Nous montrons également la position du vecteur d'onde $q=2k_N$, voir figure incluse dans le Tab.5.1, afin de rendre compte de la taille de la zone où apparaît la résonance et sa dispersion vers les basses énergies. Nous disposons alors d'un fichier important dans lequel nous déplaçons l'ellipsoïde de résolution³ instrumentale afin de reproduire une coupe qui doit pouvoir être alors comparée directement à la mesure. Le fichier de points n'est pas entièrement terminé, mais la zone la plus intéressante, entre $q(\pi, \pi)$ et $q = 2k_N$, est complète. Pour le calcul de convolution, nous avons utilisé le calcul d'intégration de niveau zéro : $1/N \sum_i^N f(x_i) dx_i$. Des efforts restent donc à fournir afin d'améliorer la convolution numérique.

Nous présentons ci-dessous les premiers résultats de cette convolution.

Résultats de l'intégration de la susceptibilité RPA sur l'ellipsoïde de résolution

Sur la Fig.5.13 a), nous montrons le calcul de la susceptibilité RPA suivant une coupe en énergie au vecteur d'onde AF, identique à la Fig.5.6, et sur la Fig.5.13 b) nous montrons le calcul de la susceptibilité locale obtenue, à une énergie donnée, en sommant l'intensité sur toutes les croix rouges de la Fig.5.12. Sur les Fig.5.13 c) et d), nous montrons les mêmes figures mais obtenues après la convolution avec la fonction de résolution instrumentale. Enfin, sur la Fig.5.14, nous montrons les courbes expérimentales directement comparables aux Fig.5.12 c) et d).

1) Coupe en énergie :

Entre la Fig.5.13 a) et c), on observe que la convolution numérique engendre : i) un

¹En fait, nous avons réalisé le calcul de la susceptibilité RPA seulement sur 1/8 de la pzB, donc la moitié de la surface de la Fig.5.12. Le reste est obtenu par symétrie.

²Le calcul de la susceptibilité RPA pour un vecteur d'onde donné entre 25meV et 90meV par pas de 0.2meV prend typiquement entre 40 et 60 minutes en utilisant environ 70% de la CPU de l'ordinateur "capri". Donc l'échantillonnage de la Fig.5.12 correspond à ~ 2 semaines de calcul. Une fois l'échantillonnage réalisé, nous devons gérer un fichier important car chaque croix rouge correspond à 320 lignes, et par conséquent le fichier est constitué d'environ 10^5 lignes. La difficulté est alors de promener l'ellipsoïde de résolution dans cet énorme fichier.

³L'ellipsoïde de résolution est calculé par le programme de P.Bourges en chaque point de la coupe simulée.

élargissement du pic résonnant et ii) l'apparition d'un signal à des énergies supérieures à l'énergie de la résonance. L'élargissement du pic provient essentiellement de l'intégration de l'intensité autour du vecteur d'onde AF des modes situés dans la zone I, Fig.5.8, qui définissent la branche de dispersion vers les basses énergies de la résonance. L'intensité à plus hautes énergies provient d'une part de la résonance à 41meV et d'autre part des modes localisés dans la zone II du continuum, Fig.5.8. La contribution de la résonance dans le signal à haute énergie décroît continûment à mesure que l'on s'éloigne de 41meV. La présence d'un plateau est liée à l'intégration des modes dans la région II du continuum.

Par rapport à la mesure, Fig.5.14 a), on observe un bon accord sur la forme spectrale globale. On obtient notamment un rapport d'intensité d'environ 1/7 entre le maximum de la résonance à 41meV et le signal autour de 55meV égale à celui de la mesure. En revanche, nous ne reproduisons pas correctement la largeur de la résonance à hautes et basses énergies. A basses énergies, il serait certainement possible de reproduire l'observation si la dispersion de la résonance vers les basses énergies était plus importante. Pour cela on peut envisager une interaction intrasite, U, qui permet d'obtenir un signal plus dispersif, Fig.5.9. Il est plus difficile de trouver une solution pour reproduire le signal autour de 45meV car nous ne disposons pas de dispersion vers les hautes énergies dans la région I du continuum.

2) Susceptibilité locale :

La susceptibilité locale théorique est constituée d'un pic principal à 41meV, d'un autre pic autour de 58meV, Fig.5.13 b), et d'intensité environ dix fois moins importante. La convolution avec l'ellipsoïde de résolution élargit l'ensemble de cette forme et réduit le rapport d'intensité entre les deux pics par un facteur 2. La forme spectrale de la susceptibilité locale, un pic - un creux - une bosse, rappelle la structure "peak-dip-hump" du pic de quasiparticule mesuré par ARPES autour des points antinodaux dans l'état supraconducteur de Bi2212[26, 27] ou encore, de la forme de la densité d'états mesurée par spectroscopie tunnel[166, 167, 168, 169]. L'apparition d'une structure pic-creux-bosse quand on intègre la susceptibilité magnétique en vecteur d'onde a été mis en évidence dans plusieurs calculs théoriques[227, 219].

Dans notre cas, l'origine du creux est un effet d'amortissement engendré par le continuum d'excitations électron-trou.

Par rapport à la mesure, Fig.5.14 b), on reproduit la forme globale de la susceptibilité locale, à savoir, le profil pic-creux-bosse. Dans le détail on note plusieurs petites différences. Dans la mesure, la susceptibilité locale est constituée d'un premier plateau entre le gap de spin et l'énergie de la résonance et d'un second plateau entre l'énergie de la résonance et le creux à 49meV, en accord avec [150]. On observe un manque d'intensité à basses énergies qui est certainement lié au fait que la dispersion calculée est moins forte que la dispersion observée. Une interaction de type intrasite, U, devrait permettre de ré-augmenter l'intensité à basses énergies. Nous rencontrons la même difficulté pour le signal localisé entre la position de la résonance et le creux. Malheureusement, nous n'avons aucun moyen d'augmenter l'intensité dans cet intervalle d'énergie.

La seconde différence se trouve au niveau des intensités relatives des deux pics. Le calcul donne un rapport d'environ 1/5 alors que nous mesurons un rapport de 1/2. Cette différence devrait être réduite en augmentant l'intensité des modes de la zone II du conti-

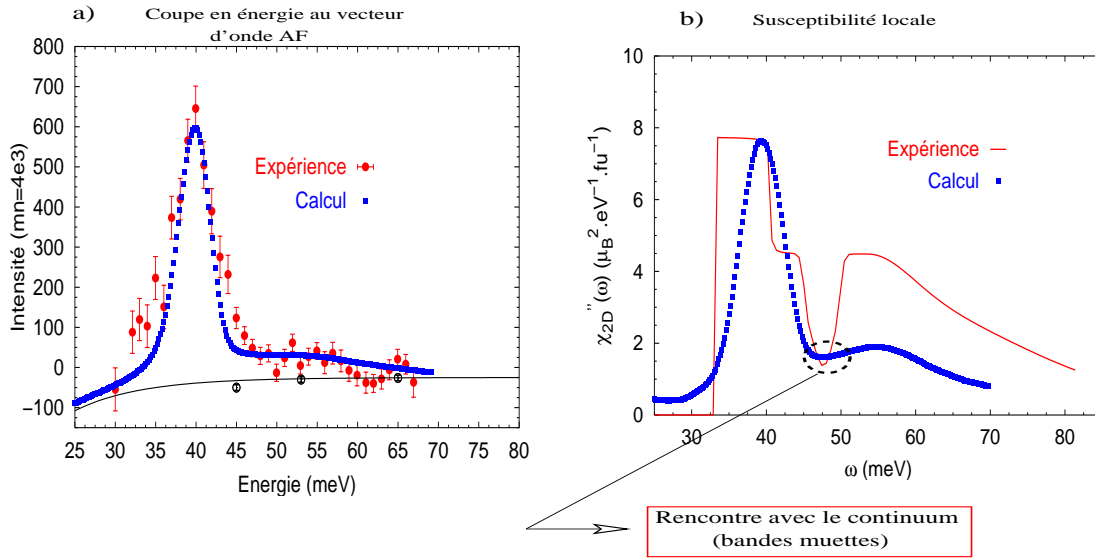


FIG. 5.14 – Sur la figure a), nous reportons la mesure de la résonance effectuée au Chap.3.2.2 sur l'échantillon de $\text{YBCO}_{6.85}$. Sur la même figure nous superposons, carrés bleus, le résultat de la simulation numérique obtenue en réalisant le produit de convolution entre la susceptibilité en interaction et l'ellipsoïde de résolution, Fig.5.13 c). Sur la figure b), nous montrons la mesure de la susceptibilité locale, Chap.3.2.4. Sur la même figure, nous superposons le calcul de la susceptibilité locale convoluée avec l'ellipsoïde de résolution puis intégrée en vecteur d'onde dans le plan de base, Fig.5.13 d). Nous interprétons la présence d'un creux dans la susceptibilité locale comme la manifestation des bandes muettes donc du continuum d'excitations électron-trou

num et donc en utilisant une interaction intrasite, U .

3) Conclusion :

Le produit de convolution entre la fonction de résolution instrumentale et la susceptibilité RPA permet de reproduire les formes principales des spectres. Nous avons montré que certaines petites différences entre la simulation numérique et la mesure devraient pouvoir être facilement ajustées en utilisant une interaction intrasite, U , Fig.5.9. Celle-ci permet d'obtenir une dispersion vers les basses énergies plus marquée, ce qui contribue à un élargissement plus important de la résonance à basses énergies comme observé expérimentalement. D'autre part, le U augmente l'intensité des modes dans le zone II du continuum. Nous devrions donc observer une structure pic-creux-bosse plus marquée et un rapport d'intensité intégré en vecteur d'onde se rapprochant de $1/2$ entre les deux pics. Cette simulation nous montre également un fait important sur la forme de la susceptibilité locale. Nous disposons maintenant d'une interprétation pour l'existence d'un creux. Ce creux a déjà été identifié dans le passé[97, 128, 114] mais son origine reste controversée. Etant donné les ressemblances importantes entre le calcul RPA et l'expérience, **nous pensons que ce creux est lié à la présence des bandes muettes et donc à l'existence d'un continuum d'excitations électron-trou**. La position en vecteur d'onde des bandes muettes permet alors d'extraire l'amplitude des vecteurs nodaux, k_N . Nous avons donc, dans la mesure de DIN, deux indications de la présence du continuum

d'excitations électron-trou : i) la différence d'intensité entre le mode acoustique et le mode optique et ii) le creux dans la susceptibilité locale⁴.

Discussion

Existence d'une forme en X dans les approches itinérantes :

Dans les approches itinérantes, la dispersion de la résonance est façonnée par la forme du continuum d'excitations électron-trou. C'est la raison pour laquelle le mode disperse vers les basses énergies. Dans l'approche de [222], la résonance, associée à un paramagnon, disperse vers les hautes énergies sans la présence du continuum. En présence du continuum, la dispersion est repliée vers les basses énergies et forme un "M".

Dans l'échantillon de YBCO_{6,85}, la partie du spectre mesuré à 45meV (voir Fig.3.12), au-dessus de l'énergie de la résonance, est problématique pour les approches itinérantes. Ce signal a été également mesuré par [150]. Les deux mesures montrent qu'il n'est pas possible de reproduire l'intensité observée à 45meV en ne considérant qu'une branche de dispersion vers les basses énergies, voir Fig.3.12. De plus, l'effet de focalisation observé sur le signal impose l'existence d'une dispersion vers les hautes énergies. On ne peut donc pas reproduire ce signal en ajoutant un simple amortissement à la résonance.

Nous avons réalisé des ajustements en considérant des formes en "M" comme proposés par [222], mais les résultats sont mauvais. Afin de pouvoir reproduire ces modes, il faudrait pouvoir satisfaire, à un vecteur d'onde donné, deux critères de Stoner dynamiques à l'extérieur du continuum. Récemment, une proposition théorique a été suggérée consistant à rajouter un terme supplémentaire au dénominateur de la susceptibilité en interaction. Mais les résultats de cette approche sont encore incertains[237].

Ainsi, un des challenges des approches itinérantes sera de trouver un moyen de reproduire cette partie du spectre magnétique, donc la dispersion vers les hautes énergies.

Intensité du mode optique :

En considérant un couplage magnétique interplan, nous ne reproduisons pas le rapport d'intensité entre la résonance optique et la résonance acoustique. Dans des approches itinérantes, l'intensité du mode étant inversement proportionnelle à sa distance au continuum, l'idée serait donc de rapprocher la position en énergie du mode optique de celle du continuum.

On peut considérer le cas d'un appariement supraconducteur interplan imaginaire isotrope[229, 165]. Le gap supraconducteur est donc la somme du gap $d_{x^2-y^2}$ dans le plan sommé à un gap isotrope : $\Delta_{\vec{k}} = \Delta_{max}(\cos k_x - \cos k_y) + i\Delta_s$, Δ_s est le paramètre d'ordre interplan qui change de signe d'un plan à l'autre. L'énergie des quasiparticules et la position de la bordure du continuum sont identiques pour les réponses optique et acoustique. L'effet de cet appariement interplan apparaît au niveau de la valeur du facteur de cohérence au vecteur d'onde AF : alors qu'il est toujours égal à deux dans le canal

⁴Il est important de noter que pour observer ce creux, la résolution en énergie ne doit pas être trop importante ($\lesssim 6\text{meV}$). Au contraire, une mauvaise résolution en vecteur d'onde permet d'augmenter la contribution des modes de la zone II et par conséquent d'augmenter l'intensité du second pic.

acoustique, celui-ci peut prendre n'importe quelle valeur entre 0 (=disparition du mode optique) et 2 dans le canal optique suivant le rapport Δ_s/Δ_{max} . On peut ainsi supprimer le mode optique en utilisant un rapport $\Delta_s/\Delta_{max}=1$. Malheureusement, aucune mesure n'indique la présence d'un gap isotrope aussi important que le gap $d_{x^2-y^2}$ dans les cuprates.

Un autre moyen est de considérer un terme de saut interplan, t_\perp [232]. Le t_\perp fait apparaître des excitations intrabandes et des excitations interbandes. La susceptibilité se décompose en une susceptibilité liante, $\chi^+(q, \omega)$, associée aux excitations intrabandes et une susceptibilité antiliante, $\chi^-(q, \omega)$, associée aux excitations interbandes. A cause du t_\perp , la bordure du continuum au vecteur d'onde AF n'est pas la même pour les deux réponses. Le continuum se rapproche plus du mode optique que du mode acoustique lorsque le t_\perp augmente. D'après les valeurs de t_\perp obtenues en ARPES[253, 254, 257, 255, 259], $t_\perp/t \sim 0.1$, nous estimons à environ de 2meV la différence entre la position en énergie de la bordure du continuum des excitations antiliante et liante. Cette différence est trop faible pour abaisser suffisamment l'intensité du mode optique.

Spectre magnétique dans l'échantillon YBCOCa_{15%} :

Dans ce chapitre, nous montrons qu'une partie importante du spectre magnétique dans l'échantillon de YBCO_{6.85} peut être interprétée en terme d'excitons de spin localisés sous le continuum d'excitations électron-trou. Dans l'échantillon de YBCOCa_{15%}, la Fig.4.32 indique clairement que la position de la résonance magnétique est quasiment identique à la position du pic B1g, associé à $2\Delta_{max}$. La partie du spectre Fig.4.17 est donc nécessairement localisée à l'intérieur du continuum. Dans une approche itinérante, ceci signifie que l'énergie de liaison du mode résonnant, $E_0^{op/ac} - \omega_c$, est nulle. Autrement dit, les interactions ne sont plus assez importantes pour générer un exciton en dehors du continuum. On retrouve alors le cas sans interaction de la Fig.5.9. Dans ce cas, le signal au vecteur d'onde AF n'est plus confiné entre les bandes muettes, et il s'étend sur un plus grand intervalle en vecteur d'onde. Ceci pourrait expliquer l'augmentation de la largeur de la résonance acoustique dans le régime surdopé, Fig.5.3. Les intensités que nous mesurons dans cet échantillon sont de l'ordre de $30\mu_B^2.eV^{-1}$ similaires aux intensités calculées sur la Fig.5.9. Ces intensités deviennent identiques à celles de l'état normal. Des calculs supplémentaires sont alors nécessaires pour connaître le spectre magnétique dans l'état normal afin de pouvoir le soustraire à celui dans l'état supraconducteur.

5.2.4 Ré-examen de certains résultats de DIN

Une nouvelle manière de regarder le spectre des fluctuations magnétiques dans l'état supraconducteur

Dans le Chap.5.1.1 nous avons montré que le spectre des fluctuations magnétiques dans l'état supraconducteur de Y123 consiste en une forme en X dont le centre se déplace du régime sousdopé au régime surdopé en suivant la loi $\sim 5k_B T_c$. Néanmoins, nous avons également souligné le fait que la branche de dispersion supérieure était mal ajustée avec une forme en X. La dispersion vers les hautes énergies s'ouvre systématiquement beaucoup plus rapidement que celle vers les basses énergies : les premières positions incommensurables à hautes énergies correspondent quasiment aux dernières positions in-

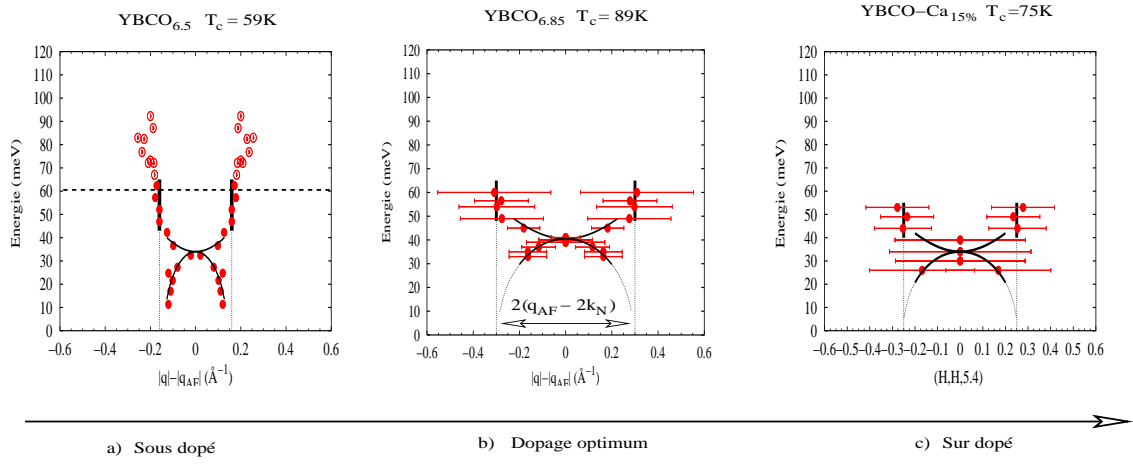


FIG. 5.15 – Spectre des fluctuations magnétiques dans le canal acoustique. Les spectres b) et c) ont été présentés sur la Fig.5.1. Le spectre a) a été mesuré dans l'état supraconducteur d'un échantillon très sousdopé de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ ($T_c = 59\text{K}$) [148] (voir texte). La ligne pointillée noire indique la partie du spectre magnétique qui change à travers la température supraconductrice, d'après [128]. Les spectres sont interprétés comme étant la somme d'une forme en X avec des bandes verticales associées aux modes de la région II du continuum, lignes pleines noires. L'extrapolation de ces lignes à l'énergie nulle définit une zone associée à l'intervalle $[-\tilde{q}_N, +\tilde{q}_N]$ de la Fig.5.8 a). L'amplitude de cet intervalle égale à $4k_N$ donne la limite supérieure de la largeur en vecteur d'onde de la résonance.

mesurables de la branche de dispersion vers les basses énergies avant le gap de spin. Expérimentalement, nous n'observons pas d'effet de focalisation (voir Fig.2.10) sur la mesure des modes dans la région II du continuum, Fig.3.6. De ce fait, la dispersion de ces modes doit être très verticale.

Sur la Fig.5.15, nous reportons, en plus des spectres de la Fig.5.1, le spectre acoustique mesuré dans l'état supraconducteur d'un échantillon très sousdopé de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ ($T_c = 59\text{K}$) [148], Fig.5.15 a). Dans cette mesure, le signal mesuré à des énergies inférieures à celle de la résonance est large en vecteur d'onde mais ne présente pas de structures incommensurables nettes. La partie basses énergies (inférieures à l'énergie de la résonance) du spectre de la Fig.5.15 a), a été obtenue en supposant que la largeur du signal peut être associée à la présence d'une structure incommensurable. Les positions incommensurables du spectre a) sont extraites de l'ajustement des coupes en vecteur d'onde dans l'état supraconducteur [148], et non de l'ajustement de la différence de coupes entre l'état supraconducteur et l'état normal, comme c'est le cas des spectres de la Fig.5.15 b) et c). A partir des résultats de [128], nous avons tracé, sur la Fig.5.15 a), une ligne pointillée noire indiquant la partie du spectre magnétique qui change à travers la transition supraconductrice.

En utilisant l'image des Fig.5.8 a) et b), nous interprétons les spectres magnétiques, apparaissant dans l'état supraconducteur, de la Fig.5.15, comme une somme d'une forme en X avec des bandes verticales associées aux modes de la région II du continuum, traits noirs sur les spectres de la Fig.5.15. Nous avons prolongé, en traits pointillés jusqu'à l'énergie nulle, les traits verticaux reliant les modes dans la région II du continuum ce qui fournit la position des vecteurs d'ondes \tilde{q}_N , Fig.5.8. On remarque que la forme en X est, pour tous les spectres, confinée dans l'intervalle $[-\tilde{q}_N, +\tilde{q}_N]$, en accord avec l'existence des bandes

muettes. La demi-amplitude de cet intervalle, égale à $|Q_{AF} - 2k_N|$ (où k_N est le vecteur nodal de la surface de Fermi), est en moyenne de l'ordre de 0.23\AA^{-1} . Cette valeur est de l'ordre de grandeur de la limite supérieure de la largeur en vecteur d'onde de la résonance dont nous avons discuté dans la partie 5.1.2. Nous proposons donc d'associer la largeur maximale en vecteur d'onde de la résonance magnétique à la valeur de $|Q_{AF} - 2k_N|$. Sur la Fig.5.15, on observe que l'amplitude de l'intervalle $[-\tilde{q}_N, +\tilde{q}_N]$ augmente, donc $2k_N$ diminue, à mesure que le dopage augmente. Ceci est parfaitement compatible avec l'évolution de la surface de Fermi du régime sousdopé au régime surdopé, Fig.1.7.

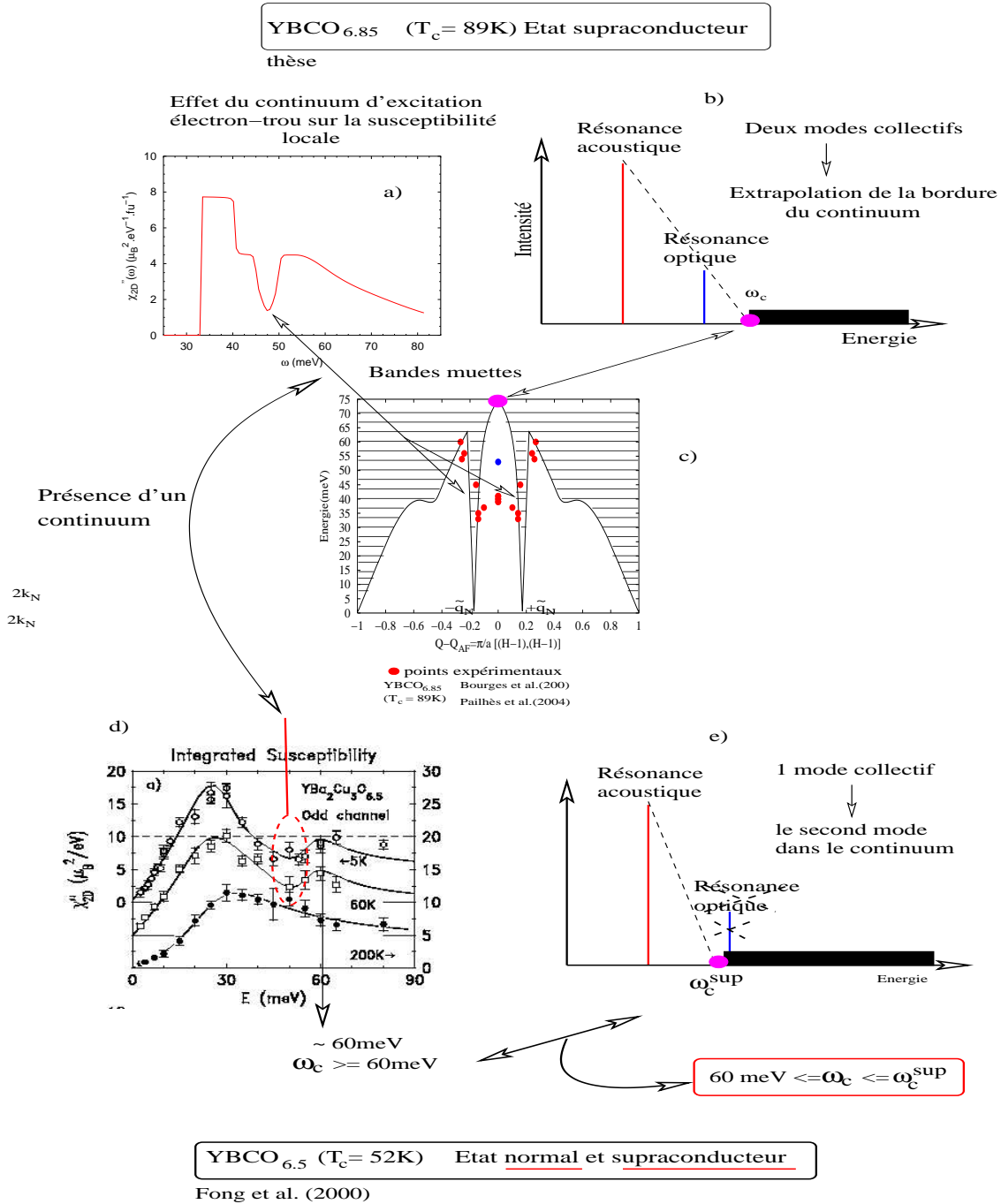
Possible manifestation des bandes muettes dans la susceptibilité magnétique locale mesurée par neutron dans le régime sousdopé

Sur la Fig.5.16 a) nous montrons la susceptibilité locale mesurée au Chap.3.2.4 dans l'état supraconducteur de l'échantillon de $\text{YBCO}_{6.85}$ ($T_c=89\text{K}$). Nous avons montré ci-dessus que le creux pouvait être interprété comme la manifestation du continuum d'excitations électron-trou, les bandes muettes, comme nous le schématisons par les flèches sur la Fig.5.16 a) et c).

Sur la Fig.5.16 d), nous montrons les mesures de susceptibilité locale réalisées dans un échantillon sousdopé de $\text{YBCO}_{6.5}$ ($T_c=52\text{K}$)[128]. Nous observons dans l'état normal et dans l'état supraconducteur un profil type pic-creux-bosse. Ce profil a été également observé dans un échantillon de $\text{YBCO}_{6.7}$ ($T_c=67\text{K}$)[128], mais aussi dans un échantillon de $\text{YBCO}_{6.6}$ ($T_c=67\text{K}$)[114]. L'origine du creux n'a jamais été clairement identifiée. Par analogie au profil de la susceptibilité locale mesurée dans l'échantillon de $\text{YBCO}_{6.85}$, nous proposons que **le creux dans la susceptibilité locale présent dans l'état normal et dans l'état supraconducteur des échantillons sousdopés reflète la manifestation d'un continuum**. A haute température, $T=200\text{K} > T^*$, le creux disparaît de la susceptibilité locale et nous observons une forme purement relaxationnelle, $\gamma\omega/(\gamma^2 + \omega^2)$, caractéristique d'un système magnétique désordonné.

Nous proposons alors d'associer la température d'apparition du creux dans la susceptibilité locale à la température d'ouverture du pseudogap. En effet, nous pensons que l'apparition du pseudogap peut être à l'origine du creux dans la susceptibilité dans l'état normal. Nous observons que la position en énergie du creux ne change pas à travers T_c , ce qui, dans notre interprétation, signifie que la position en vecteur d'onde des bandes muettes ne change pas à travers T_c . Ceci est cohérent avec le fait que le gap supraconducteur ainsi que le pseudogap affectent principalement des états au niveau de Fermi autour des points $(\pm\pi, 0)$ et $(0, \pm\pi)$ [263]. Les états autour des positions nodales, qui contrôlent la position des bandes muettes(BM), ω_{BM} , sont moins sensibles aux deux paramètres d'ordres. En revanche, les caractéristiques des deux pics de part et d'autre du creux sont directement pilotées par le gap et n'ont donc pas de raison d'être identiques à travers T_c . Expérimentalement, le changement le plus brutal apparaît sur le premier pic de la susceptibilité locale et est associé à la résonance magnétique[128].

Nous désirons maintenant connaître l'amplitude de ce continuum au vecteur d'onde AF dans l'état normal et dans l'état supraconducteur. Dans l'état supraconducteur, la difficulté vient du fait que l'intensité du mode optique est très petite, Fig.5.2. Nous avons néanmoins un moyen de borner la position du continuum au vecteur d'onde AF, ω_c . En effet, la position en énergie du continuum au vecteur d'onde AF doit être supérieure à



YBCO_{6.5} (T_c = 52K) Etat normal et supraconducteur

Fong et al. (2000)

FIG. 5.16 – Sur les figures a) b) et c), nous schématisons les différentes manifestations du continuum d'excitations électron-trou sur les mesures de DIN : i) les bandes muettes se manifestent par un creux dans la susceptibilité locale et ii) les différences entre le poids spectral de la résonance acoustique et optique reflète la position du continuum au vecteur d'onde AF. Sur les figures d) et e), nous réexaminons le spectre dans le canal acoustique dans le régime sousdopé dans l'état normal et supraconducteur, échantillon YBCO_{6.5} (T_c = 52K)[128]. Par analogie au creux de la figure a), nous supposons que le creux dans la susceptibilité locale dans l'état normal et supraconducteur est associé à l'ouverture d'un gap et donc à l'apparition de bandes muettes. Dans l'état supraconducteur, du fait que le mode optique n'est pas mesuré, nous pouvons borné la position du continuum au vecteur d'onde AF (voir texte)

la position en énergie des bandes muettes localisée aux vecteurs à la position ω_{BM} dans le susceptibilité locale. D'autre part, le fait de ne pas observer de changement à travers T_c , dans les barres d'erreur, de l'intensité magnétique dans le canal optique indique que la bordure du continuum est positionnée à une énergie inférieure ou égale à l'énergie à partir de laquelle le signal optique est mesurable. De même l'énergie minimum à partir de laquelle nous n'observons plus de changements à travers T_c du spectre optique, nous fournit une borne supérieure du continuum à q_{AF} . Nous définissons cette énergie par $\omega_{c,sup}$. Nous avons finalement :

$$\omega_{BM} \leq \omega_c(q_{AF}) \leq \omega_{c,sup} \quad (5.8)$$

Sur les mesures de DIN[128, 114], nous pouvons facilement localiser la position de ω_{BM} à $\pm 2meV$. En revanche, la statistique des mesures des fluctuations optiques n'est pas suffisante pour estimer précisément la partie du spectre optique qui change à travers T_c . En effet, sur les spectres optiques de [128] nous n'observons pas de changements à travers T_c dans les deux échantillons YBCO_{6.7} ($T_c=67K$) et YBCO_{6.5} ($T_c=52K$) même pour $\omega > \omega_{BM} \geq 60meV$. Nous en déduisons pour ces échantillons que $\omega_c \sim \omega_{BM}$.

5.3 Interprétation de nos résultats dans le cadre des approches localisées

L'observation d'une double dispersion vers les basses et les hautes énergies de la résonance peut également être interprétée dans le cadre du modèle des stripes. En effet, des mesures récentes de DIN dans le système La_{7/8}Ba_{1/8}CuO₄ (LBCO)[126] montrent un certain rapprochement de sa dynamique de spins avec le spectre des excitations magnétiques dans Y123 (en particulier dans l'état sous-dopé [148, 118]). Ces résultats posent la question de l'universalité des fluctuations de spin dans l'ensemble des cuprates et de leur rôle potentiel dans le mécanisme de la supraconductivité à haute température critique. Nous allons maintenant discuter nos résultats à la lumière de ces données récentes.

5.3.1 Interprétation de la forme en X du spectre magnétique - image des stripes

Dans cet échantillon de La_{7/8}Ba_{1/8}CuO₄, on observe un ordre de charges et de spins à basse température qui réduit fortement la supraconductivité ($T_c \leq 2$ K). L'origine de ces ordres est généralement attribuée à des lignes de charges séparant des domaines antiferromagnétiques. Deux types d'ordre de charges ont été considérés, soit les charges sont situées sur un site de cuivre ("site-centered stripe") soit sur le site de l'oxygène ("bond-centered stripe"). Cette deuxième possibilité est représentée sur la figure 5.17 et a été récemment revisitée[247, 122]. Dans ce cas, une charge annihile le spin des deux cuivres les plus proches (en fait, en moyenne 4 cuivres du fait du taux de remplissage de $\frac{1}{8}$). Les domaines magnétiques sont couplés ferromagnétiquement à travers les lignes de charges. Des pics de Bragg magnétiques sont ainsi observés à $Q_{\pm} = 0.5 \pm \frac{1}{8}$ de chaque côté du vecteur d'onde Q_{AF} . Il est intéressant de remarquer que les domaines AF sont en fait des échelles de spins à deux montants. Il est connu que le spectre de ce type d'objet magnétique présente un gap de spin d'environ ~ 0.4 J.

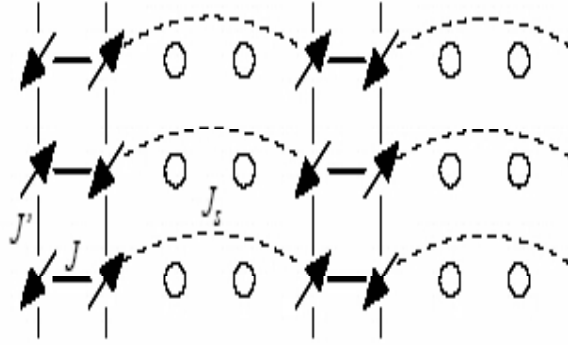


FIG. 5.17 – Représentation schématique de l'ordre de stripes où les charges sont situées entre deux sites de cuivres voisins. J est l'interaction de superéchange dominante ($J'=J$), J_s est le couplage ferromagnétique à travers les lignes de charges[247].

Dans LBCO, les fluctuations magnétiques émergent à basse énergie à partir des pics de Bragg incommensurables et dispersent pour se rejoindre au vecteur d'onde AF à une énergie de l'ordre de 55 meV[126]. Le point de croisement de ces dispersions a ainsi été associé au pic de résonance magnétique comme dans les autres cuprates où T_C atteint 90 K. Au dessus de cette énergie, les modes dispersent jusqu'à 200 meV. La dispersion ainsi obtenue présente une forme en X, proche des formes en X de la Fig.5.1. Cependant, contrairement à nos résultats, les fluctuations de spins dans LBCO sont observées dans l'état normal, la supraconductivité étant quasiment absente. Ainsi, une approche purement itinérante, pour décrire le spectre magnétique dans l'état supraconducteur, telle que nous l'avons décrite dans la partie 5.2 de ce chapitre ne peut être appliquée à LBCO. Une comparaison plus pertinente a été faite avec l'état sous-dopé[148, 118] où le spectre magnétique est aussi présent sur une large gamme d'énergie (typiquement de 10 à 120 meV). Là aussi, il faut différencier l'état normal de l'état supraconducteur : en effet, la dispersion vers les basses énergies disparaît dans Y123 au dessus de T_c [135], en accord avec le modèle d'exciton de spins. Dans l'état normal, les pics sont larges sans aucune dispersion notable[118, 135] rendant la comparaison moins évidente. Egalement, la continuité des deux modes à l'énergie de la résonance est[148] ou n'est pas[118] observée suivant l'analyse effectuée. Ainsi, il convient d'être prudent quant à une comparaison trop superficielle de la dynamique de spins dans LBCO et Y123.

Le spectre magnétique dans LBCO a été interprété[126, 246, 247, 248] dans le cadre d'une approche de magnétisme localisé correspondant au modèle de la Fig.5.17. A basse énergie, les ondes de spins se propageant perpendiculairement aux lignes de charges se développent et engendrent une dispersion contrôlée par J_s , voir Fig.5.17. L'énergie de ces modes est maximum à Q_{AF} (ici ~ 55 meV), définissant un mode ressemblant au pic de résonance comme il avait été d'ailleurs précédemment proposé[249]. Au dessus de cette énergie, on observe des excitations associées aux domaines AF dans la direction des lignes de charges. Se comportant comme des échelles de spins à double montant, ces domaines AF indépendants présentent des excitations avec un gap de spin à Q_{AF} qui peut être identifié au mode résonnant. Des calculs numériques[247, 246, 248, 250] de ces excitations sont venus étayer cette approche. On voit ainsi que ces excitations présentent une dispersion à Q_{AF} ayant en fait une forme de point selle (voir Fig.3.1

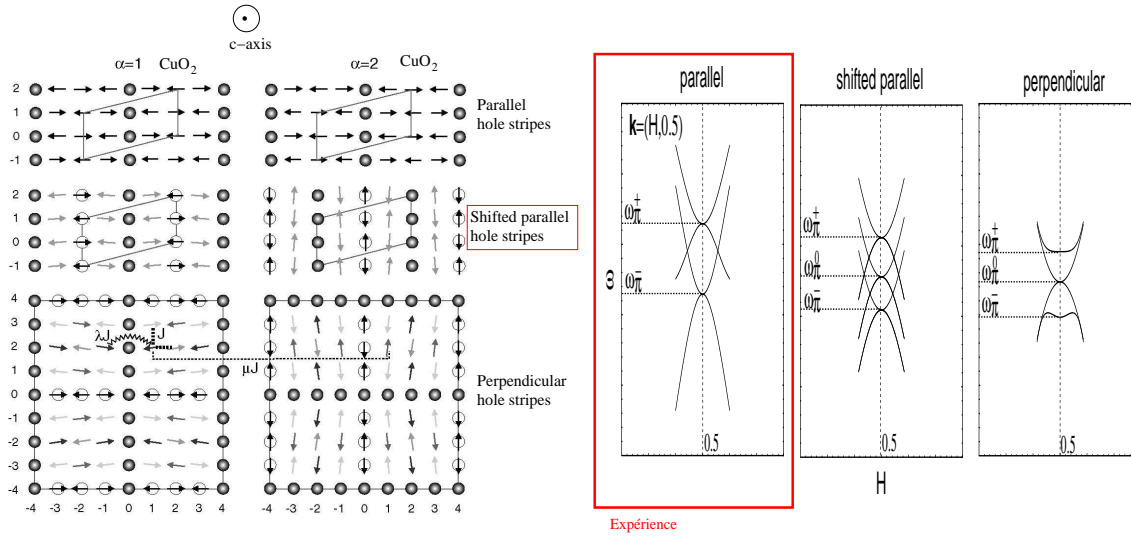


FIG. 5.18 – Sur la figure a), nous représentons les trois configurations d'ordre de stripes dans un système à deux plans CuO₂ couplés antiferromagnétiquement[246]. Dans le plan, l'ordre de stripe est de type "site centered" (les trous se placent sur les atomes de cuivres) avec 1 trou pour 8 sites de cuivre. La configuration de stripes la plus stable par rapport à d'une part, l'énergie de répulsion coulombienne entre les stripes d'un plan à l'autre et d'autre part, l'énergie d'échange AF entre plans, est la configuration où les stripes sont parallèles mais décalés d'un plan à l'autre, "shift parallel". Sur la figure b), nous reportons le spectre magnétique déterminé pour chaque configuration de la figure a). Le spectre encadré correspond au spectre expérimental, Fig.5.1, donc à la configuration parallèle des stripes, la moins stable par rapport à l'énergie de répulsion coulombienne.

c)) : les modes à basse énergie se propagent dans la direction perpendiculaire aux stripes alors qu'à haute énergie ils dispersent dans la direction des stripes. Malheureusement, les échantillons de LBCO[126] sont quadratiques et présentent deux types de domaines magnétiques à 90° empêchant l'observation de cette signature essentielle de la physique des stripes. Y123 a une structure orthorhombique et comme nous l'avons montré au chapitre 3.1, il est possible de démacler les échantillons pour différencier les domaines le long de a* de ceux le long de b*. Par conséquent, on peut tester dans Y123 le modèle proposé[126, 247, 246, 248]. Nous observons dans des échantillons d'YBCO démaclés une géométrie des fluctuations de spins fondamentalement bidimensionnelle à basse énergie[134]. Des mesures ultérieures[135] dans un échantillon d'YBCO_{6,6} démaclé montrent aussi que les modes à haute énergie apparaissent de manière équivalente le long de a* et de b*. Ce type d'approche semble donc peu adéquat pour décrire la dynamique de spins dans Y123.

5.3.2 Les stripes dans un système à deux plans CuO₂

Dans les systèmes à deux plans CuO₂, il est nécessaire de se demander comment les stripes s'arrangent d'un plan à l'autre sous l'effet de la répulsion coulombienne. Récemment, la dynamique de spins a été étudiée dans un système présentant un ordre de stripes, de type "site centered" (voir partie 5.3.1), dans deux plans CuO₂ couplés antiferromagnétiquement. Nous montrons sur la Fig.5.18 a), les trois configurations envisagées. Dans le plan, on considère un ordre de stripes avec 1 trou pour 8 sites de cuivre. Le couplage AF à travers

une ligne de stripes est une fraction λ du couplage AF des spins dans un même domaine. De même le couplage AF des spins entre plans est une fraction μ du couplage AF des spins dans un même domaine. Dans la première configuration, les stripes sont parallèles et superposés d'un plan à l'autre. Cette configuration est la plus défavorable par rapport à l'énergie de répulsion coulombienne mais aucuns liens AF n'est brisés. On minimise l'énergie de répulsion coulombienne en décalant les stripes d'un plan à l'autre, ce qui correspond à la deuxième configuration("shifted parallel"). On doit alors payer l'énergie correspondante à la brisure des liens antiferromagnétiques des spins entre plans engendré par ce décalage. Enfin, dans la dernière configuration, les stripes sont perpendiculaires d'un plan à l'autre. Dans ce cas, le gain en énergie de repulsion coulombienne est nul, en revanche, tout les liens AF des spins d'un plan à l'autre sont brisés. L'énergie d'échange magnétique entre plans étant plus petite que l'énergie de répulsion coulombienne, voir [246], la configuration la plus stable énergétiquement est la configuration dite "shifted parallel".

Sur la Fig.5.18 b), nous montrons le spectre magnétique déterminé pour les trois configurations de la figure a), [246]. Nos résultats expérimentaux, Fig.5.1, sont compatibles avec le spectre de la configuration parallèle des stripes d'un plan à l'autre. Effectivement, nous observons deux modes magnétiques avec des dispersions vers les hautes et basses énergies ayant une forme en X. Cependant, cette configuration est la plus instable par rapport à l'énergie de répulsion coulombienne. De plus, dans ces approches, les intensités des deux modes sont équivalentes alors que nos mesures montrent que l'intensité du mode optique est systématiquement plus petite que celle du mode acoustique, Fig.5.2. Enfin rappelons que dans ces approches, la supraconductivité est absente or c'est elle qui fait apparaître les modes résonnants magnétiques.

5.3.3 Universalité des fluctuations de spins dans les cuprates

Un des faits le plus remarquable est sans doute que la dispersion à basse énergie ne se développe que pour des vecteurs d'ondes proches du vecteur d'onde AF. Cet aspect est un point commun important de LBCO avec Y123 ainsi qu'avec $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ [251] : pour tous les dopages, on observe que les fluctuations magnétiques sont confinées dans une gamme réduite de vecteur d'onde autour du vecteur d'onde AF. Dans le cadre des approches itinérantes, nous avons montré que cette gamme est limitée par les bandes muettes ayant une amplitude égale à $2|q_{AF} - 2k_N|$ (où k_N est le vecteur d'onde nodal de la surface de Fermi) de part et d'autre du vecteur d'onde AF, partie 5.2.4 et Fig.5.15. Par conséquent, l'amplitude de la gamme en vecteur d'onde où sont confinées les fluctuations magnétiques serait contrôlée par la topologie de la surface de Fermi des cuprates. Ce point est particulièrement important dans la mesure où il est caractéristique de la dynamique de spins dans les cuprates.

Il est alors intéressant de comparer avec la dynamique de spins dans un autre oxyde bidimensionnelle présentant aussi un ordre de stripes : les nickelates. Dans $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{NiO}_4$ avec $x=0.31$ [104] ou $x=\frac{1}{3}$ [139], les fluctuations de spins correspondent à des ondes de spins d'un système AF incommensurable comme il était attendu[249]. Ainsi, un cone de dispersion quasi-isotrope est observé autour de chaque position incommensurable jusqu'au maximum de la dispersion. Par conséquent, on a ici une différence fondamentale avec les cuprates, et particulièrement avec LBCO[126] présentant un ordre de charges supposé

similaire. De fait, les modèles purement magnétiques[126, 247, 246, 248] traitant de la dynamique de spins dans le cadre des stripes décrivent parfaitement ce mode dispersif avec plusieurs arches comme il est observé dans les nickelates. Par contre, ils échouent dans les cuprates sur cet aspect du fait de la gamme limitée en vecteur d'onde décrite plus haut. Il est généralement admis que la prise en compte du degré de liberté fermionique dans ces modèles devrait permettre de résoudre cette difficulté[250]. Cette différence entre nickelates et cuprates pourrait ainsi provenir de l'aspect itinérant du magnétisme dans les cuprates rendant les approches de magnétisme localisé caduques pour décrire la dynamique de spins dans les cuprates.

5.4 Discussion générale

5.4.1 Existence d'un changement de comportement dans le régime surdopé

Existence d'un comportement critique dans le diagramme de phase

Différents faits expérimentaux semblent indiquer l'existence d'un comportement critique pour un dopage critique, δ_c , dans le régime surdopé[267, 268, 269, 270]. La valeur de ce dopage est de l'ordre de 0.19.

Sur la Fig.5.19 a), nous montrons l'évolution en fonction du dopage de la température de pseudogap ou énergie de pseudogap obtenue dans le composé YBCO-Ca_{20%}. Les ronds vides correspondent aux mesures de RMN de la susceptibilité de spin locale associée au déplacement magnétique $^{89}K_s$ ("Knight Shift"). Les "+" ont été obtenus à partir de mesures de chaleur spécifique et enfin les croix proviennent des mesures de résistivité. Nous observons que toutes ces mesures indiquent que l'énergie du pseudogap diminue du régime sousdopé au régime surdopé et tend linéairement vers zéro à un dopage critique égal à $\delta_c=0.19$. Nous présentons ici uniquement les résultats obtenus sur le système Y123 mais des preuves de l'existence de ce dopage critique dans d'autres cuprates ainsi que de sa manifestation dans des mesures utilisant d'autres techniques sont répertoriées dans les références[267, 268, 269]. Sur la même figure, on voit l'évolution de l'énergie de condensation, U_0 , déduite à partir des mesures de chaleur spécifique. Celle-ci passe par un maximum au dopage critique, δ_c , similaire au dopage critique dans l'état normal indiquant l'existence d'un même point critique dans les propriétés de l'état supraconducteur et de l'état normal.

Sur la Fig.5.19 b), nous montrons une compilation des mesures de résistivité dans le système YBCO-Ca_{30%}[50, 270]. La résistivité divisée par son comportement linéaire à haute température, $p = \rho(T)/(\rho_0 + \alpha T)$, est représentée dans le diagramme dopage-température. Cette représentation met en évidence la forme en "V" attendue autour d'un point critique quantique. Dans le régime sousdopé, $\delta < \delta_c$, en dessous de T^* , l'évolution de la résistivité en fonction de la température est sous linéaire. La ligne dessinée par le pseudogap est associé à la première branche du V. Au voisinage du point critique quantique, zone jaune, la résistivité varie linéairement avec la température. Dans le régime surdopé, nous retrouvons un comportement cubique standard caractéristique d'un liquide de Fermi. Récemment, des mesures de ARPES[254, 256] suggèrent une ligne de transition dans le régime surdopé, T' , qui sépare une zone, dans le régime surdopé, ou les pics de

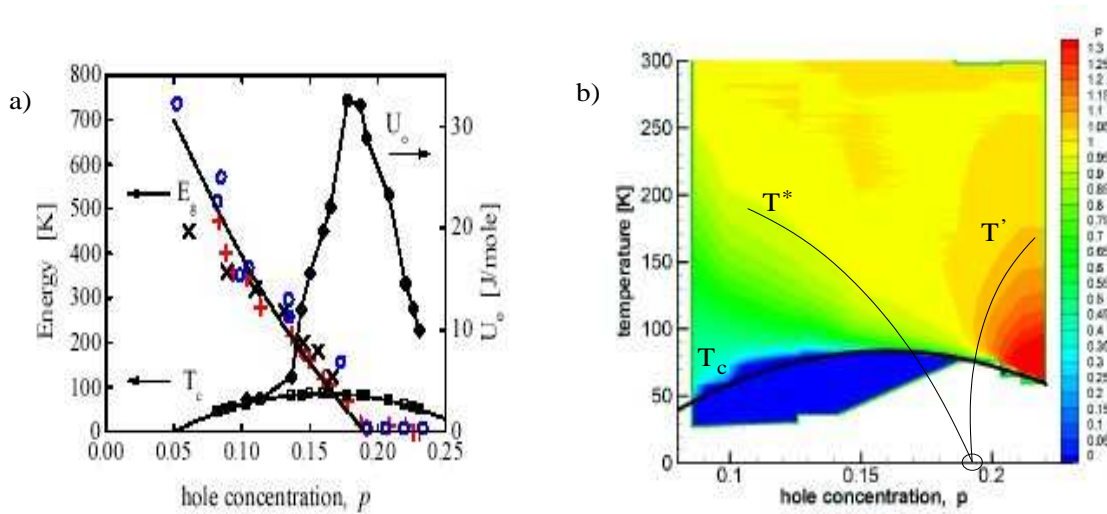


FIG. 5.19 – Sur la figure a), nous reportons la dépendance en dopage de l'énergie du pseudogap déduite des mesures de RMN(o), de chaleur spécifique (+), et de résistivité(x). Sur la même figure est montrée l'évolution de l'énergie de condensation, U_0 , déduite des mesures de chaleur spécifique (losange). Enfin les carrés vides correspondent aux valeurs de T_c qui suivent la loi Eq.1.1. Sur la figure de droite, nous montrons le diagramme de phase dopage-température de $p = \rho(T)/(\rho_0 + \alpha T)$ obtenu dans le système YBCO-Ca_{30%}. Les lignes schématisent la forme en V caractéristique de l'existence d'un point critique quantique.

quasiparticules sont mesurables d'une zone où les pics de quasiparticules sont très réduits autour des points antinodaux. Cette ligne pourrait être associée à l'autre partie du "V". Naturellement, il faudrait pouvoir supprimer la supraconductivité pour confirmer cette forme en V à basses températures autour du point critique quantique.

L'ensemble de ces mesures indique l'existence d'un point de transition dans le régime surdopé autour d'un dopage critique, $\delta_c=0.19$. Ce dopage critique est différent du dopage optimum où la T_c est la plus importante, $\delta_{opt} \sim 0.16$. Par abus de langage, ce point de transition est associé à un point critique quantique. Cependant, il n'existe pas de mesure qui montre un comportement critique des grandeurs thermodynamiques. De plus, la partie ordonnée associée à la phase de pseudogap n'est pas cohérente et nous n'observons pas de transition de phase à T^* .

Anomalie dans l'évolution en fonction du dopage de $2\Delta_{max}$ déduit des mesures de Raman électronique

Au Chap.4.3.1, nous avons discuté des fluctuations importantes de la valeur de $2\Delta_{max}$, mesurée en Raman, correspondant à des petites variations de T_c . Rappelons que pour le système YBCOCa_{10%} ($T_c=85.5K$), nous mesurons $2\Delta_{max} \sim 69meV$ alors que pour le système YBCOCa_{15%} ($T_c=75K$), $2\Delta_{max}$ apparaît autour de $34meV$, soit une variation d'un facteur 2 du gap supraconducteur pour une variation de seulement 6% de la T_c . Sur la Fig.5.20 a), nous reportons les mesures Raman de $2\Delta_{max}$ dans le système Y123 des références [183, 185] ainsi que nos mesures dans le système YBCOCa_y en fonction

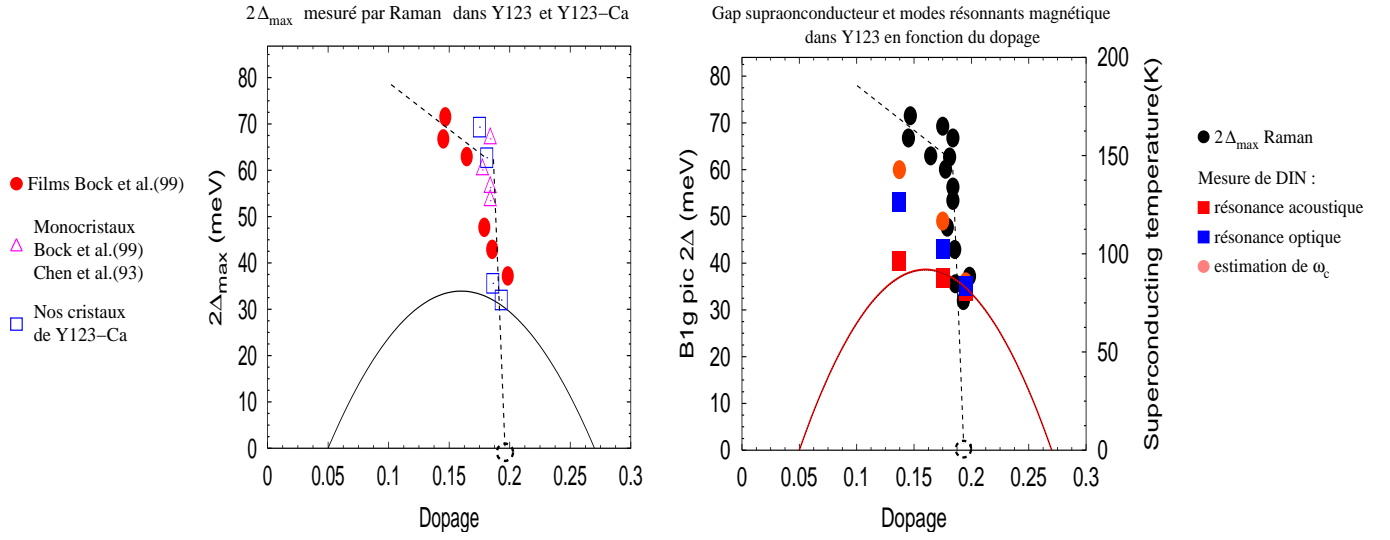


FIG. 5.20 – Sur la figure a) nous reportons l'évolution de $2\Delta_{max}$ au voisinage du dopage optimum d'après les mesures [183, 185] ainsi que les nôtres dans les systèmes Y123 et Y123-Ca. Sur la figure b), nous avons rajouté les positions en fonction du dopage des résonances magnétiques acoustique et optique ainsi que la position du continuum au vecteur d'onde AF, ω_c , d'après l'Eq.5.7.

du dopage⁵. Sur l'ensemble des points, on peut identifier une marche dans l'évolution du $2\Delta_{max}$ pour une valeur de dopage comprise entre 0.19 et 0.20, traits pointillés noirs. Dans le contexte phénoménologique dressé ci-dessus sur l'existence d'un dopage critique $\delta_c=0.19$, cette marche prend du sens. Ainsi sur les Fig.5.20 a) et b), contrairement à la ligne habituelle tracée entre tous les points $2\Delta_{max}$, nous observons **une marche dans l'évolution du pic B1g Raman** dans le régime surdopé, dont le sommet apparaît pour un dopage égal au dopage critique, δ_c , identifié par d'autres expériences [267, 268, 269].

Sur la Fig.5.20 b), nous avons rajouté les positions en fonction du dopage des résonances magnétiques acoustique et optique ainsi que la position du continuum au vecteur d'onde AF, ω_c , d'après l'Eq.5.7, obtenu dans les trois échantillons YBCO_{6.85}, YBCOCa_{10%} et YBCOCa_{15%}. En haut de la marche, dans le système YBCOCa_{10%}, chaque énergie est bien distincte et nous observons un rapport $\omega_c^{DIN}/\Delta_{max}^{Raman} \sim 1.4$ qui est petit, sur lequel nous reviendrons ci-dessous. En revanche, on observe que le bas de la marche, $\delta > \delta_c$, correspond à une sorte de point terminal, où tous les points, Raman et neutron, se regroupent. Sur le spectre magnétique acoustique mesuré par DIN, nous n'observons pas de changements brutaux entre les échantillons YBCO-Ca_{10%} et YBCOCa_{15%}, seulement un élargissement en vecteur d'onde de la forme globale du spectre à mesure que le dopage augmente. En revanche, nous avons détecté un changement important au niveau du spectre optique. En effet, dans l'échantillon YBCOCa_{15%}, le spectre optique apparaît uniquement incommensurable. Il n'y a donc pas de résonance optique au sens habituel c'est à dire une excitation centrée au vecteur d'onde AF. De plus, si la résonance dans l'échantillon de

⁵Le dopage de nos échantillons de calcium est donné dans le Tab.2.4, ceux des échantillons de Chen et Bock sont obtenus à partir de l' Eq.1.1 avec $T_c^{max} = 92.6K$

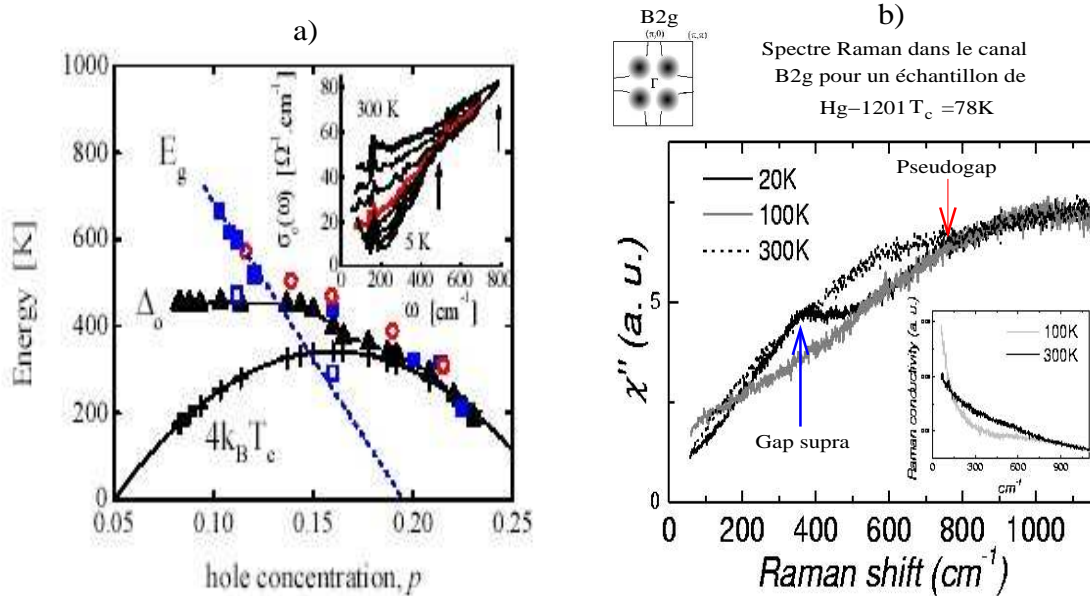


FIG. 5.21 – Sur la figure a) nous montrons l'évolution en fonction du dopage du gap supraconducteur mesuré dans les jonctions SIS[167], carré pleins bleues, déduit des mesures de chaleur spécifique[50], triangles pleins noirs, et mesuré en conductivité infrarouge[271]. Dans l'insert, nous observons une étude en température de la conductivité optique[271]. Sur la figure b), nous montrons une étude en température de la réponse Raman dans le canal B2g qui sonde les parties nodales de la surface de fermi. Les deux flèches sur l'insert de la figure a) ainsi que sur la figure b) indiquent les deux positions à partir desquelles est observée une perte de poids spectral à mesure que la température décroît

YBCO-Ca_{10%} peut être interprétée comme un exciton de spin du fait de sa distance à la position en énergie du gap supraconducteur, ce n'est plus le cas pour le signal magnétique dans l'échantillon YBCOCa_{15%}. Ainsi, la nature de la résonance pourrait être différente de part et d'autre du dopage critique.

5.4.2 Pseudogap / gap supraconducteur

La présence du pseudogap et d'un gap supraconducteur dans le régime sousdopé soulève une question importante : ces deux gaps traduisent-ils la coexistence de deux phases en compétition dans le système ou est-ce que la phase de pseudogap précède la phase supraconductrice ? Si deux phases coexistent avec deux paramètres d'ordre distincts, nous devrions avoir les moyens de les différencier soit par leur amplitude, soit par leur symétrie, soit par leur dépendance en dopage ou en température. Les mesures d'ARPES dans Bi2212[263] montrent que la phase de pseudogap affecte les points $(\pm\pi, 0)$ et $(0, \pm\pi)$ de la surface de Fermi. Ceci est souvent interprété comme une possible indication d'une symétrie $d_{x^2-y^2}$ pour le paramètre d'ordre associé à la phase de pseudogap.

Sur la Fig.5.21 a), on montre l'évolution en fonction du dopage du gap déduit des mesures de chaleur spécifique dans l'état supraconducteur du système YBCOCa_{20%}, triangles noirs. La méthode d'extraction de l'amplitude du gap supraconducteur à partir de la contribution électronique de la chaleur spécifique est décrite dans la référence[51]. Sur

la même figure est reportée l'évolution en fonction du dopage du gap mesuré dans les jonctions supraconducteur-isolant-supraconducteur (SIS)[167], carrés pleins bleus, dans le système Bi2212. Enfin, les cercles rouges correspondent aux valeurs du gap déduites des mesures de conductivité infra-rouge dans le système Y123[271]. Dans le régime sousdopé, ces techniques indiquent deux échelles d'énergie différentes dans l'état supraconducteur.

L'analyse de l'évolution de la conductivité infra-rouge dans le régime sousdopé de YBCOCa_y[271], insert de la Fig.5.19 a), met en évidence l'ouverture de deux gaps, ou plutôt de deux énergies en-dessous desquelles, à partir d'une certaine température, on observe une perte de poids spectral. Le premier, associé au pseudogap, s'ouvre vers $800\text{cm}^{-1} \sim 90\text{meV}$ dans l'état normal à haute température ($T < 200\text{K}$) alors que le second apparaît en dessous de T_c autour de $500\text{cm}^{-1} \sim 60\text{meV}$ et est donc associé au gap supraconducteur. Les positions des deux gaps sont indiquées par des flèches sur l'insert de la Fig.5.19 b).

Une évolution en température similaire est observée dans les spectres Ramans dans le régime sousdopé. Dans le régime sousdopé, le pic électronique dans le canal B1g, qui sonde les points nodaux de la surface de Fermi, associés au gap supraconducteur disparaît complètement. Seule la réponse électronique dans le canal B2g, qui sonde les points antinodaux, change à travers T_c [190, 189, 188]. Une étude de la réponse Raman dans le canal B2g[190], Fig.5.19 b), dans un échantillon de Hg1201 sousdopé ($T_c=78\text{K}$) montre l'apparition d'une perte de poids spectral dès l'état normal en dessous de 800cm^{-1} , que nous indiquons par une flèche rouge. Cet effet est associé au pseudogap. Dans l'état supraconducteur, l'ouverture du gap induit l'apparition d'un pic à 360cm^{-1} et une perte du poids spectral aux énergies plus basses, indiquée par une flèche bleue. On observe donc clairement l'effet des deux phénomènes pour des énergies différentes. De plus, on observe que la suppression du poids spectral associée au pseudogap et celle associée au gap supraconducteur coexistent dans l'état supraconducteur. Ceci va dans le sens d'une nature distincte des deux gaps.

5.4.3 Evolution du ω_c déduit des mesures de DIN dans le régime sousdopé

Les mesures énumérées ci-dessus indiquent l'existence de deux paramètres d'ordre distincts dans le régime sousdopé. Le premier, associé au pseudogap, apparaît dans l'état normal à haute température et essentiellement autour des points antinodaux de la surface de Fermi. Le second est associé à la supraconductivité, il apparaît en dessous de T_c et a une symétrie $d_{x^2-y^2}$. Il semble que dans l'état supraconducteur les phases associées à ces deux paramètres d'ordre coexistent mais ceci fait encore l'objet de débats. Supposons que cette coexistence soit effectivement réelle, quelle est l'échelle d'énergie qui contrôle la physique autour des points antinodaux dans l'état supraconducteur? en outre, quelle est l'échelle d'énergie qui contrôle l'intensité du pic de résonance magnétique?

Sur la Fig.5.22, nous reportons les mesures de gap dans l'état supraconducteur, en noir, de Bi2212 par ARPES[24] (triangle inversé noir), par jonction SIS[166, 167](triangle noir) dans Y123 par Raman[183, 185](carré noir) (ainsi que nos points) et déduit des mesures de chaleur spécifique (rond noir). Sur la même figure nous reportons les mesures

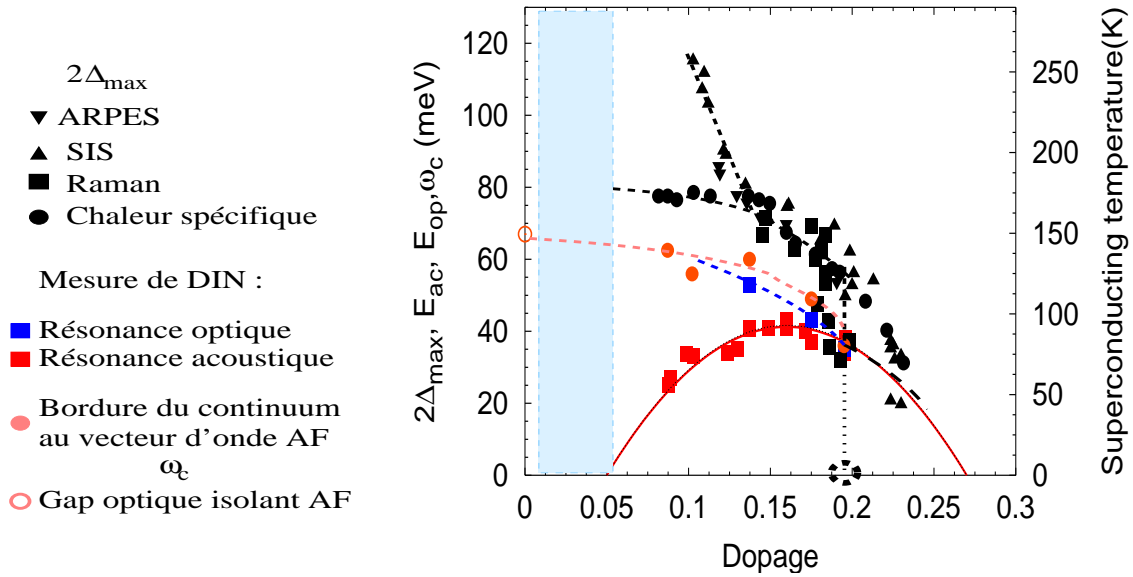


FIG. 5.22 – Sur cette figure nous montrons les mesures de gap dans l'état supraconducteur, en noir, de Bi2212 par ARPES[24] (triangle inversé noir), par jonction SIS[166, 167](triangle noir) dans Y123 par Raman[183, 185](carré noir) (ainsi que nos points) et déduit des mesures de chaleur spécifique (rond noir). Sur la même figure nous reportons les mesures de la résonance magnétique acoustique, carré rouge, et optique, carré bleu. Enfin, nous reportons les points correspondant à nos estimations de la bordure du continuum au vecteur d'onde AF, ω_c , en rond orange. Le cercle orange correspond au gap optique mesuré dans le composé YBCO₆ (voir Tab.1.1)

de la résonance magnétique acoustique, carré rouge, et optique, carré bleu. Enfin, nous reportons les points correspondant à nos estimations de la bordure du continuum au vecteur d'onde AF, ω_c , en rond orange.

Nous observons que l'évolution de ω_c est parallèle à l'évolution du gap supraconducteur déduit des mesures de chaleur spécifique dans un rapport d'environ 1.4. Ceci indique que les propriétés de la résonance magnétique sont contrôlées par l'ouverture du gap supraconducteur déduit de ces mesures.

Les deux paramètres d'ordre, affectant les mêmes zones de la surface de Fermi, permettent à des fluctuations AF d'exister. En considérant l'existence d'un continuum, nous avons montré que la signature de ce continuum consiste en un creux dans la susceptibilité locale, voir Fig.5.16.

En réunissant les résultats ci-dessus et obtenus dans ce manuscrit, nous donnons une interprétation possible du spectre des fluctuations magnétiques dans le régime sousdopé mesuré par DIN. Le ton est légèrement spéculatif, par rapport à la quantité d'informations dont on dispose, mais le but est de proposer un scénario pour d'éventuelles futures expériences qui peuvent (ou non) le valider.

Le creux dans la structure pic-creux-bosse de la susceptibilité locale, mesuré dans l'état normal(voir Fig.5.16 d), serait donc causé par le profil du continuum et par l'existence de bandes muettes. Par conséquent, les deux pics de part et d'autre du creux auraient la même origine. Dans l'état normal, les propriétés de ces pics seraient associés à l'échelle d'énergie

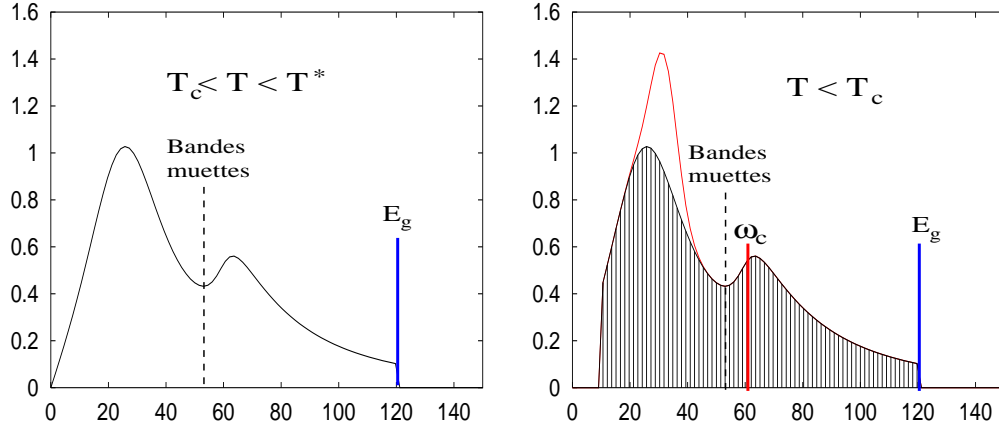


FIG. 5.23 – Schéma de la susceptibilité locale dans l'état normal et l'état supraconducteur d'un échantillon sousdopé. Nous interprétons le creux comme la manifestation d'un continuum électronique. Dans l'état normal, les fluctuations AF apparaissent en dessous d'une première échelle d'énergie correspondant à l'énergie du pseudogap. Dans l'état supraconducteur, une deuxième échelle d'énergie, associée au gap supraconducteur, apparaît à la position ω_c . Une excitation AF supplémentaire, le pic de résonance magnétique, se forme à une énergie inférieure dans l'état supraconducteur.

du pseudogap qui augmente fortement dans le régime sousdopé. Ainsi pour un échantillon de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$ ($T_c = 62.7\text{K}$), les signaux de la phase normale seraient contrôlés par un gap qui est de l'ordre de 120meV ⁶. Dans cet échantillon, les signaux magnétiques détectés récemment par DIN jusqu'à 105meV sont bien en dessous de E_g [118]. Il serait alors extrêmement intéressant de répéter l'expérience pour des énergies de transfert supérieures à 120meV afin de mettre en évidence une éventuelle coupure ("cut off") de la réponse magnétique à E_g .

Dans l'état supraconducteur, l'ouverture du gap supraconducteur engendre l'apparition de la résonance. Nous avons vu ci-dessus qu'il semblerait que les deux régimes de pseudogap et supraconducteur coexistent. La susceptibilité locale de DIN dans l'état supraconducteur serait donc constituée d'une partie du signal de l'état normal et d'une partie de signal naissant avec l'apparition de la supraconductivité. Mais les deux signaux seraient contrôlés par des échelles d'énergie différentes. Leur position relative en énergie dépendrait de la position relative en énergie des deux paramètres d'ordres. Dans l'échantillon $\text{YBCO}_{6.5}$ ($T_c=52\text{K}$)[128], le pic de résonance est observé à plus basse énergie que le pic dans l'état normal, correspondant à la partie du diagramme de phase où $E_g > 2\Delta_{max}$. La situation est inversée dans un échantillon de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.92}$ [99], correspondant à la partie du diagramme de phase où $E_g < 2\Delta_{max}$. Cette interprétation confirme le scénario 2 de la Fig.1.18. Sur la Fig.5.23, nous schématisons notre interprétation du spectre magnétique dans le canal acoustique. Pour $T^* > T > T_c$, l'énergie du pseudogap constitue l'échelle d'énergie du système, les fluctuations AF apparaissent pour des énergies inférieures. Dans l'état supraconducteur, une deuxième échelle d'énergie, associée au gap supraconducteur, apparaît à la position ω_c qui engendre le pic de résonance magnétique. Celui-ci se forme alors en supplément du signal de la phase normale, contrôlé par E_g . Les positions relatives

⁶Valeur obtenue en extrapolant la ligne qui passe par les triangles noirs de la Fig.5.22

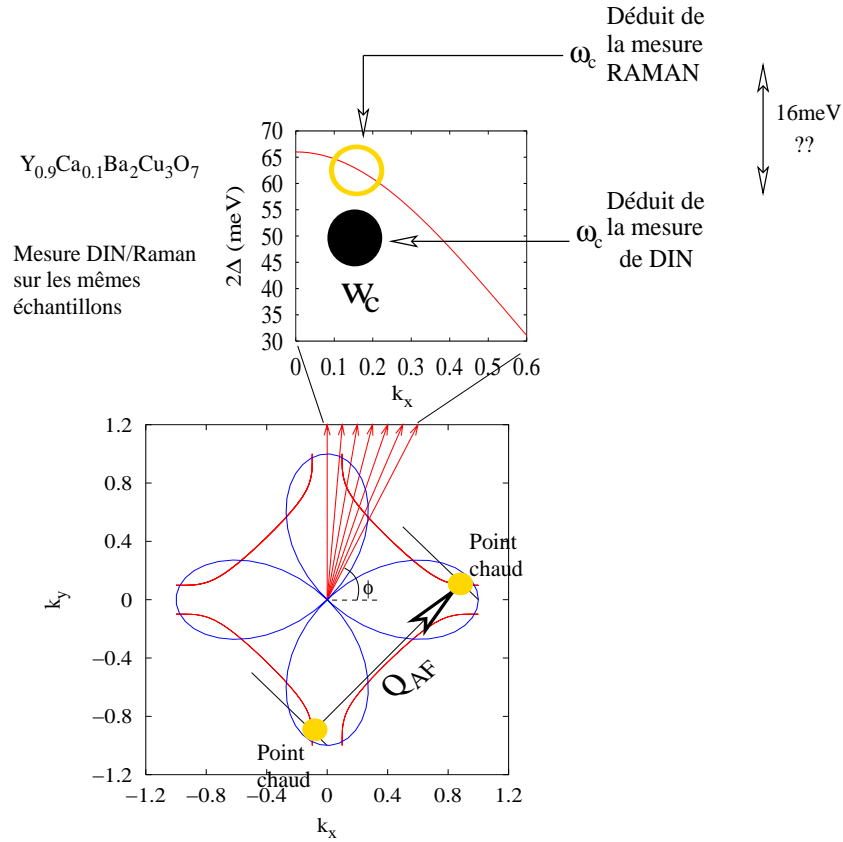


FIG. 5.24 – Sur la figure du bas, nous avons tracé la surface de Fermi $tb3$ de Norman (courbe rouge), Tab.5.1, la dépendance angulaire du gap supraconducteur (courbe bleue) et nous avons positionné les points chauds de la surface de Fermi connectés par le vecteur d'onde AF, points jaunes. Sur la figure du haut, nous représentons l'évolution de la valeur de deux fois le gap supraconducteur en fonction de déplacements angulaires, angle ϕ , projeté sur l'axe 100 (composante k_x), courbe rouge. Le point noir et le cercle jaune correspondent aux estimations de ω_c respectivement par DIN et Raman. $2\Delta_{max}$ a été déterminé par nos mesures de diffusion Raman. Le ω_c déduit du Raman s'obtient alors en prenant la valeur de 2Δ sur les points chauds de la surface de Fermi. La taille des points est représentative de l'erreur commise sur leurs positions en vecteur d'onde et en énergie.

de ω_c et de E_g varie en fonction du dopage de façon différente. Nous schématisons sur cette figure, la situation d'un échantillon sousdopé où $\omega_c < E_g$. Ainsi la physique autour des points antinodaux dans le régime sousdopé est complexe car tout se passe comme si deux phénomènes distincts affectaient en même temps les mêmes portions de la surface de Fermi.

Maximum du gap supraconducteur et ω_c

A la lumière des résultats précédents qui mettent en évidence une marche dans l'évolution en fonction du dopage de la position en énergie du pic B1g, et qui semblent indiquer la coexistence de deux phases distinctes dans le régime sousdopé, nous nous reposons la question du sens physique donné au pic B1g.

Nous avons montré ci-dessus que l'évolution de la bordure du continuum au vecteur

d'onde AF, $\omega_c \sim 2\Delta_{k_s}$, suit l'évolution de deux fois le maximum du gap supraconducteur, $2\Delta_{max}$, Fig.5.22, déduit des mesures de chaleur spécifique. Nous observons néanmoins que le rapport $2\Delta_{max}/\omega_c$ est de l'ordre de 1.4 alors qu'il est estimé être de l'ordre de 1.8 d'après les mesures d'ARPES.

Pour cela nous considérons les résultats obtenus dans le système $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ car d'une part son dopage est inférieur à δ_c ("haut de la marche"), Fig.5.20, et d'autre part c'est le système où les mesures Raman et de DIN sont les plus complètes, Chap.4.1.1. Les valeurs trouvées sont $\omega_c=2\Delta_{k_s}=50.2\pm 4$ meV, déduit des mesures de DIN, et $2\Delta_{max}=66$ meV, obtenu à partir des mesures Raman. Il est alors difficile de concilier ces deux valeurs. Nous schématisons le problème sur la Fig.5.24. Sur cette figure, nous avons tracé la surface de Fermi tb_3 de Norman, Tab.5.1, la dépendance angulaire du gap supraconducteur, Eq.1.2, et nous avons positionné les points chauds de la surface de Fermi connectés par le vecteur d'onde AF. Sur la figure du haut, nous représentons l'évolution de la valeur de deux fois le gap supraconducteur en fonction d'un déplacement angulaire, angle ϕ , projeté sur l'axe 100 (composante k_x). Nous avons considéré comme valeur de $2\Delta_{max}$ celle que nous avons mesurée par diffusion Raman, soit $2\Delta_{max}=66$ meV. En parcourant la courbe $\Delta(\phi)$ jusqu'aux points chauds de la surface de Fermi, nous pouvons donner une estimation de ω_c . Nous entourons en jaune la position du ω_c déduit de la mesure par diffusion Raman. Ainsi, nous montrons sur cette figure l'estimation de la valeur de ω_c soit par la mesure de DIN, point noir, soit par la mesure Raman, cercle jaune, sur le même système. La taille du point et du cercle est représentative de l'erreur commise sur leurs positions en vecteur d'onde et en énergie. On observe alors un écart notable, ~ 16 meV, des deux estimations de ω_c . Cette différence est en-dehors des barres d'erreur des méthodes d'estimation de ω_c par DIN et Raman, elle semble indiquer une incompatibilité entre les deux mesures.

Ceci est compatible avec l'existence de deux échelles d'énergies distinctes dans l'état supraconducteur. On peut supposer des origines différentes du gap supraconducteur électronique mesuré dans le régime sousdopé et au voisinage du dopage optimum en Raman, SIS et ARPES et du continuum de spin mesuré en neutron.

On peut également supposer que l'estimation Raman du $2\Delta_{max}$ à partir du maximum du pic B1g est erronée. En calculant la réponse Raman dans un système biplan, on montre que la position du maximum du pic B1g peut être très sensible à la position relative de la singularité de Van Hove entre la bande liante et antiliante[208]. L'intensité du pic B1g se décompose en trois contributions : une provient de l'ouverture du gap supraconducteur, et les deux autres des pics de Van Hove de chaque bande. Suivant la distance de la surface de Fermi aux points antinodaux, l'intensité du pic associé à la singularité de Van Hove peut être plus importante que l'intensité engendrée par l'ouverture du gap supraconducteur. Dans un tel cas, on pourrait surestimer la valeur de $2\Delta_0$. On peut estimer la position du pic B1g suivant l'expression : $\omega_{B1g} \sim \sqrt{((2\Delta_{max})^2 + \epsilon_{VHS}^2)}$. En supposant $2\Delta_{max} \sim 55$ meV, compatible avec le ω_c déduit de la mesure de DIN, la position de la singularité de Van Hove serait de l'ordre de 36meV soit environ 5cm^{-1} . C'est une énergie difficile d'accès par diffusion électronique Raman à cause du pic de diffusion élastique. On ne pourrait donc pas la détecter dans l'état normal pour une raison technique. Un tel effet est favorisé par le dédoublement de la surface de Fermi. En effet, celui-ci permet à la bande antiliante de se rapprocher de la singularité de Van Hove et la position du pic B1g

serait essentiellement reliée au pic de la singularité de Van Hove de la bande antiliante comme le montre la Fig.7 de [208].

5.4.4 Conclusion

En interprétant ces résultats dans le cadre d'une approche itinérante, où la résonance magnétique et la dispersion vers les basses énergies apparaissent comme des modes collectifs localisés en dessous d'un continuum d'excitations électron-trou, nous mettons en valeur les points suivants[142, 143] :

- 1) **La manifestation du continuum d'excitations électron-trou** : celui-ci, dans le cas d'un gap de symétrie $d_{x^2-y^2}$, forme deux bandes étroites en vecteur d'onde, de part et d'autre du vecteur antiferromagnétique, qui chutent à zéro aux vecteurs d'ondes $\vec{q} = \pm 2\vec{k}_N$, où \vec{k}_N correspond au vecteur nodal de la surface de Fermi. La dispersion vers les basses énergies ainsi qu'une partie de la dispersion vers les hautes énergies sont contenues entre ces bandes étroites. A l'intérieur de celles-ci le signal est sur-amorti ce qui explique l'interruption soudaine de la dispersion à hautes énergies autour de 49meV et le gap de spin à basses énergies. De ce fait, nous qualifions ces bandes de "bandes muettes". Le reste de la dispersion à hautes énergies est situé à l'extérieur des bandes muettes.
- 2) **Une estimation de la bordure du continuum d'excitations électron-trou au vecteur d'onde antiferromagnétique** : le rapport des poids spectraux entre la résonance magnétique optique et acoustique est directement proportionnel au rapport de leur distance en énergie au continuum d'excitation électron-trou. Cette estimation est intéressante en ce qu'elle fournit une valeur de l'amplitude du gap supraconducteur sur le volume total de l'échantillon.
- 3) **Une interprétation possible des signaux magnétiques observés à hautes énergies au-dessus de 49meV** : en réalisant le calcul de la susceptibilité RPA à l'extérieur des bandes muettes, nous avons montré que des modes collectifs confinés dans un petit espace en vecteur d'onde réapparaissent sous le continuum d'excitations électron-trou. Ainsi, le calcul RPA permet de reproduire l'ensemble du spectre sauf la partie de la dispersion vers les hautes énergies comprise entre les bandes muettes. Intégrée en vecteur d'onde dans le plan de base, la susceptibilité RPA locale a une forme pic-creux-pic où le creux est causé par la présence des bandes muettes.
- 4) **Un moyen d'identifier un continuum d'excitations élémentaires dans les mesures de DIN** : la structure pic-creux-pic de la susceptibilité magnétique intégrée en vecteur d'onde dans le plan de base a été observée antérieurement dans l'état normal et dans l'état supraconducteur d'échantillons de YBCO à différents niveaux de dopage. Dans le régime sousdopé, cette structure disparaît à des températures supérieures à la température de pseudogap. Nous proposons alors d'interpréter le creux comme la manifestation d'un continuum d'excitations élémentaires dans le système.

Conclusion générale

Cette thèse présente une étude par diffusion inélastique des neutrons, de la dynamique de spin dans l'état supraconducteur du composé $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, au voisinage du dopage optimum et pour la première fois dans le régime surdopé [142, 143, 134, 132].

Dans l'état supraconducteur du composé $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, il est bien établi que le spectre des fluctuations magnétiques est dominé par un pic de résonance magnétique présentant une dispersion incurvée vers le bas. Notre étude, au voisinage du dopage optimum, met en évidence l'existence de nouvelles excitations magnétiques résonnantes situées à des énergies légèrement supérieures à celle du pic de résonance magnétique. Ces excitations incommensurables semblent traduire l'existence d'une seconde dispersion incurvée vers les hautes énergies. L'ensemble des modes dispersifs décrit autour du pic de résonance, au vecteur d'onde antiferromagnétique, une forme en "X" dans l'espace des phases.

A basses énergies les modes résonnants disparaissent en dessous d'un gap de spin. Au même vecteur d'onde pour lequel le gap de spin est observé, nous avons identifié dans la dispersion à hautes énergies une zone d'atténuation étroite en vecteur d'onde et en énergie du signal magnétique. Ce phénomène se manifeste également dans la susceptibilité locale par une structure de type "pic-creux-pic". L'ensemble de ces anomalies dans les dispersions des excitations résonnantes a été interprété comme la présence de "bandes muettes" quasiment indépendantes de l'énergie. Ces bandes pourraient correspondre à la manifestation du continuum de Stoner : dans le cas d'un gap supraconducteur de symétrie d , le continuum présente un gap au vecteur d'onde antiferromagnétique puis chute brutalement à zéro en approchant les vecteurs d'ondes joignant deux points de la surface de Fermi où le gap supraconducteur est nul. Les excitations magnétiques résonnantes peuvent être interprétées comme des excitons de spin, c'est à dire des excitations magnétiques collectives, induites par les fortes interactions magnétiques, en dehors du continuum de Stoner. Ces modes collectifs magnétiques se développent donc de part et d'autre des bandes muettes. A la lumière de ces résultats obtenus au voisinage du dopage optimum, nous pouvons ébaucher une interprétation de certaines propriétés du spectre des excitations magnétiques dans le régime sous-dopé. En particulier, la présence d'une structure de type pic-creux-pic dans la susceptibilité locale. Cette anomalie, étant présente non seulement dans l'état supraconducteur mais également dans l'état normal, pourrait également résulter de l'ouverture du pseudo-gap.

Notre étude révèle également l'existence d'une nouvelle excitation magnétique au vecteur d'onde antiferromagnétique. Par analogie avec les ondes de spins dans l'état antiferromagnétique, le pic de résonance magnétique et cette nouvelle excitation sont associées respectivement à la résonance magnétique acoustique et à la résonance magnétique optique. Le composé $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ étant constitué de deux plans CuO_2 dans la maille élémentaire, le dédoublement des excitations résonnantes traduit une levée de dégénérescence des excitations magnétiques purement planaires en présence d'une interaction antiferromagnétique entre plans. Nous avons établi que le mode résonnant optique, qui apparaît à plus haute énergie, est moins intense et plus large en vecteur d'onde et en énergie que le mode résonnant acoustique. Il conserve cependant les propriétés caractéristiques du mode acoustique, à savoir une dispersion en forme de X qui disparaît à la transition supraconductrice. Une estimation de la position de la bordure du continuum de Stoner, dans la phase supra-

conductrice peut être obtenue par la mesure du gap supraconducteur par spectroscopie Raman électronique. De cette manière, il nous a été possible de confirmer que les deux résonances acoustique et optique sont compatibles avec une description en terme d'excitons de spin sous le continuum de Stoner. Dans ce scénario, le poids spectral des excitations résonnantes est inversement proportionnel à l'écart entre leurs positions en énergie et la position en énergie du continuum de Stoner. Ainsi le rapport des poids spectraux des résonances magnétiques optique et acoustique, nous permet d'estimer la position du seuil du continuum au vecteur d'onde antiferromagnétique. La position de ce seuil est d'autant plus importante qu'elle est proportionnelle au gap supraconducteur, Δ , dont elle pourrait à terme fournir la mesure sur le volume total de l'échantillon.

Dans le régime surdopé, les deux pics de résonance magnétique persistent dans l'état supraconducteur. Notre étude Neutron/Raman montre que les positions en énergie des excitations magnétiques résonnantes et 2Δ se rapprochent à mesure que l'on augmente le dopage. Il est important de souligner que l'énergie du mode résonnant acoustique demeure dans un rapport constant avec la température critique supraconductrice, contrairement à l'énergie de la résonance optique et à l'énergie du gap supraconducteur. La réduction de la distance entre les excitations résonnantes et le continuum s'accompagne d'un amortissement progressif des modes résonnants ainsi que d'une diminution de leur poids spectral total. Une telle évolution avec le dopage peut être interprétée comme une réduction graduelle de l'énergie de liaison des modes excitoniques, accompagnant la diminution de température critique et du gap supraconducteur.

Le cas le plus intéressant est sans nul doute celui de notre échantillon le plus surdopé, pour lequel les excitations résonnantes, le seuil du continuum et 2Δ convergent vers une seule et même énergie égale à cinq fois T_c . Dans ce cas extrême, les excitations acoustiques conservent leur dispersion en X et s'étendent sur une large gamme d'énergie autour de 2Δ . Il devient dès lors évident qu'une partie des fluctuations magnétiques mesurées doit correspondre à des structures dans le continuum de Stoner (il ne s'agit donc plus d'états liés mais bien d'états résonnants avec le continuum). Nous remarquons également un changement important du comportement du spectre magnétique dans le canal optique. Au sens strict, nous n'observons plus de résonance optique mais uniquement des signaux incommensurables de part et d'autre du vecteur d'onde antiferromagnétique.

Alors que nos échantillons faiblement sousdopés et surdopés présentent des spectres d'excitations magnétiques qualitativement similaires et semblent suivre une évolution continue avec le dopage en trous, l'échantillon le plus surdopé indique une évolution nette de la dynamique de spins pour une faible variation de dopage en trous. Ceci pourrait indiquer une discontinuité dans l'évolution des fluctuations magnétiques résonnantes dans le régime surdopé. Cette interprétation est confortée par l'observation d'une variation brutale de la valeur du gap supraconducteur autour d'un dopage critique, δ_c . Le changement de comportement que nous mettons en relief dans les propriétés de spin et de charge du système, s'ajoute à toute une phénoménologie qui indique l'existence d'un comportement critique quantique dans le régime surdopé au dopage δ_c .

Des expériences futures sont à réaliser de part et d'autre de ce point critique dans le régime surdopé. Dans le régime sousdopé, il serait intéressant de suivre l'évolution en température de la structure pic-creux-pic afin de confirmer si celle-ci est bien engendrée

par l'ouverture du pseudogap. Dans le régime surdopé, il serait utile de pouvoir disposer d'un échantillon plus éloigné du dopage critique afin de cerner les caractéristiques propres de ce régime. En outre, si nous mesurons effectivement les structures dans le continuum, il serait alors utile de suivre ces structures magnétiques dans l'état normal ce qui permettra peut être d'avoir la première description nette de l'état normal dans le régime surdopé.

Index

- continuum d'excitations électron-trou, 41
 - bordure, 57, 207, 235
 - gap supraconducteur, **14**, 40, 42, 44, 86, **177**, 232, 234
- couplage magnétique
 - interplan, 27, 206
 - intraplan, 18, 204
- focalisation
 - conditions de, 114, 165
 - effets de, 67, 155, 161, 162, 222, 224
- résolution instrumentale, **67**
 - convolution-modélisation, 123, 152, 172, 217
 - ellipsoïde de résolution, 67, 147, 162, 171, 219
- résonance magnétique, **33**, **38**, 59, 107, 136, 186
 - acoustique, **114**, 140, 165, 200
 - optique, **114**, 140, **147**, 165, 200
 - poids spectral, 59, **130**, 132, 145, 175, **203**
- spectre magnétique (*état normal*), 29
- spectre magnétique (*état supra.*), 36
 - acoustique(*forme en X*), 117, 169, 198, 202
 - dimensionnalité, 106
 - optique(*forme en X*), 149, 170, 202
- surface de Fermi, 21, 57
 - ARPES, 21
 - points nodaux-antinodaux-chauds, 22
 - relation de dispersion, 22, 205
- susceptibilité électronique Raman, 86, 177
- susceptibilité magnétique, 50, 54
 - couplage faible, 17
 - couplage fort, 18
 - critère de Stoner(mode collectif), 59, 207
 - locale, 27, **130**, 220
 - partie imaginaire acoustique, 27, 55, 123, 172
 - partie imaginaire optique, 27, 55, 127, 153, 174
 - sans-avec(RPA) interaction, 56, 59, 206
- vecteur d'onde
 - antiferromagnétique, 22, **26**, 33, 58
 - nodal, **22**, 58, 213

Bibliographie

- [1] J. G. Bednorz et K. A. Muller, Z. Phys. B, **64**, 189 (1986)
- [2] Bardeen, Cooper, Schrieffer, Phys. Rev., **108**, 1175 (1957)
- [3] D. J. Scalapino *et al.*, Phys. Rev. B **34**, 7716 (1986)
- [4] M. T. Béal-Monod *et al.*, Phys. Rev. B **34**, 7716 (1986)
- [5] P. W. Anderson et W. F. Brinkman, Phys. Rev. Lett. **30**, 1108 (1979)
- [6] N. F. Mott, Can. J. Phys., **34**, 1356 (1956)
- [7] J. Hubbard, Proc. R. Soc. London, Ser. A **277**, 237 (1964) et le **281**, 401 (1964)
- [8] A. P. Kampf, Physics Reports **249**, 219 (1994)
- [9] P. W. Anderson, Phys. Rev. **110**, 350 (1950)
- [10] J. Zaanen *et al.*, Phys. Rev. Lett. **55**, 418 (1985)
- [11] J. Zaanen *et al.*, Science **286**, 251 (1999)
- [12] M. Iamada *et al.*, Rev. Mod. Phys. **70**, 1039 (1998)
- [13] W. Kohn et J. M. Luttinger, Phys. Rev. Lett. **15**, 524 (1965)
- [14] A. J. Leggett *et al.*, Rev. Mod. Phys. **47**, 331 (1975)
- [15] V. J. Emery *et al.*, Phys. Rev. Lett. **58**, 2794 (1987)
- [16] C. Varma *et al.*, Phys. Rev. Lett. **83**, 3538 (1999)
- [17] S. Chakravarty *et al.*, Phys. Rev. B **63**, 094503 (2001)
- [18] F. C. Zhang et T. M. Rice, Phys. Rev. B **37**, 3759 (1988)
- [19] P. W. Anderson, Science **235**, 1196 (1987)
- [20] G. Kotliar et J. Liu, Phys. Rev. B **38**, 5142 (1988)
- [21] N. B. Brookes *et al.*, Phys. Rev. Lett. **87**, 237003 (2001)
- [22] L. H. Tjeng *et al.*, Phys. Rev. Lett. **117**, 189 (2001)
- [23] E. Dagotto *et al.*, Rev. Mod. Phys. **66**, 763 (1994)
- [24] J. Mesot *et al.*, Phys. Rev. Lett. **83**, 840 (1999)
- [25] J. Mesot *et al.*, Phys. Rev. B **63**, 224516 (2001)
- [26] A. Damascelli, Rev. Mod. Phys. **75**, 473 (2003)
- [27] J. C. Campuzano *et al.*, Cond-mat/0209476 (2002)
- [28] J. C. Campuzano *et al.*, Phys. Rev. Lett. **83**, 3709 (1999)
- [29] A. Fedorov *et al.*, Phys. Rev. Lett. **82**, 2179 (1999)
- [30] H. Aubin *et al.*, Phys. Rev. Lett. **78**, 2624 (1997)
- [31] C. C. Tsuei *et al.*, Phys. Rev. Lett. **73**, 593 (1994)
- [32] C. E. Gough *et al.*, Nature **326**, 855 (1987).
- [33] D. Esteve *et al.*, Europhys. Lett. **3**, 1237 (1987)
- [34] S. E. Barrett *et al.*, Phys. Rev. B **41**, 6283 (1990)
- [35] T. M. Riseman *et al.*, Phys. Rev. B **52**, 10569 (1995)
- [36] Y. Ando *et al.*, Phys. Rev. Lett. **88**, 167005 (1995)
- [37] X. Chaud *et al.*, Phys. C, **235**, 433 (1994)

- [38] H.-Y. Khee *et al.*, Phys. Rev. Lett. **88**, 257002 (2002)
- [39] E. Demler *et al.*, Nature **396**, 733 (1998).
- [40] Ar. Abanov *et al.*, Phys. Rev. Lett. **89**,177002 (2002)
- [41] Ar. Abanov *et al.*, Phys. Rev. Lett. **83**,1652 (1999)
- [42] J. Hwang *et al.*, Nature **427**, 714 (2004).
- [43] Y. Kubo *et al.*, Phys. Rev. Lett. **43**,10 (1991)
- [44] T. Ito *et al.*, Phys. Rev. Lett. **70**,25 (1993)
- [45] C. Proust *et al.*, Phys. Rev. Lett. **89**,147003 (2002)
- [46] T. Yoshida Phys. Rev. B **63**,220501 (2001)
- [47] J. Bobrof, Habilitation à diriger des recherches, Université Paris sud (2004)
- [48] J. W. Loram *et al.*, Phys. Rev. Lett. **71**, 1740 (1993)
- [49] J. W. Loram *et al.*, Physica C. **282**, 1405 (1997)
- [50] J. W. Loram *et al.*, J. Phys. Chem. Solids. **59**, 2091 (1998)
- [51] J. W. Loram *et al.*, J. Superconductivity **7**, 243 (1994)
- [52] D.S Marshall *et al.*, Phys. Rev. Lett. **76**, 4841 (1996)
- [53] M. R. Norman *et al.*, Nature **392**, 157 (1998)
- [54] E. Manousakis, Rev. Mod. Phys. **63**, 1 (1991)
- [55] Jun-ichi Igarashi *et al.*, Phys. Rev. B **46**, 10763 (1992)
- [56] H. Alloul *et al.*, Phys. Rev. Lett. **63**,1700 (1989)
- [57] M. Takigawa *et al.*, Phys. Rev. B **43**, 247 (1991)
- [58] C. Berthier *et al.*, J. Phys. I **6**, 2205 (1996)
- [59] M. Braden *et al.*, Phys. Rev. B **66**, 064522 (2002)
- [60] T. Ishiguro *et al.*, Organics superconductors, Springer-Verlag, Heidelberg (1998)
- [61] R. H. Heffner et M. R. Norman, Cond. Matt. Phys. **17**, 361 (1996)
- [62] Yoichi Yanase *et al.*, Physics Report **387**, 1-149 (2003)
- [63] T. Timusk et B. W. Statt, Rep. Prog. Phys. **62**, 61-122 (1999)
- [64] S. W. Lovesey, "Theory of Neutron Scattering from Condensed Matter", (Oxford Science Publication, 1984)
- [65] P. Schweiss *et al.*, Phys. Rev. B **49**, 1387 (1994)
- [66] M.J Cooper et R.Nathans, Acta Cryst., **A29**, 160-169 (1967)
- [67] B.Dorner,Acta Cryst., **A28**, 319 (1972)
- [68] M. Popovici, Acta Cryst., **A31**, 507 (1975)
- [69] B.Hennion et P.Bourges, communication privée
- [70] J. Aroun and J. Kulda, <http://omega.ujf.cas.cz/restrax/>
- [71] D.A. Tennant and D. F. McMorrow, <http://xray.physics.ox.ac.uk/rescal/rescal.htm>
- [72] E. M. McCarron III *et al.*, J. Solid State Chemist. **78**, 192 (1989) ; E. M. McCarron III *et al.*, J. Solid State Chemist. **83**, 188 (1989)

- [73] H. Casalta *et al.*, Physica C **204**, 331 (1993)
- [74] J. L. Tallon *et al.*, Phys. Rev. B **51**, 12911 (1995)
- [75] T. Honma *et al.*, cond-mat/0309597 (2004)
- [76] J. D. Jorgensen *et al.*, Phys. Rev. B **41**, 1863
- [77] C. Bernhard *et al.*, Phys. Rev. B **54**, 10201 (1996)
- [78] S. I. Schlachter *et al.*, Physica C **328**, 1 (1999)
- [79] V. P. S. Awana *et al.*, Phys. Rev. B **49**, 6353 (1994)
- [80] X. S. Wu *et al.*, Physica C **309**, 25 (1998)
- [81] C. Legros-Glédél *et al.*, Physica C **175**, 279 (1991)
- [82] G. Böttgert *et al.*, J. Phys. Condens. Matter **8**, 8889 (1996)
- [83] A. Manthiram *et al.*, J. Solid State Chemist. **73**, 278 (1988)
- [84] C. Greaves *et al.*, Supercond. Sci. Techn. **2**, 5 (1989)
- [85] B. Fisher *et al.*, Phys. Rev. B **47**, 6054 (1993)
- [86] K. Widder *et al.*, Physica C **267**, 254 (1996)
- [87] M. Merz *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 5192 (1998)
- [88] B. Liang *et al.*, Supercond. Sci. Technol. **17**, 731 (2004)
- [89] C. T. Lin, B. Liang et H. C. Chen, J. Cryst. Growth **237**, 778 (2002)
- [90] J. Rossat-Mignod *et al.*, Physica C **185-189**, 86 (1991).
- [91] J. Rossat-Mignod *et al.*, Physica B **163**, 4 (1990) et Physica B **169**, 58 (1991)
- [92] J. Rossat-Mignod *et al.*, Selected Topics in Superconductivity , Frontiers in Solid State Sciences Vol 1., edited by L. C. Gupta et M. S. Multini (World Scientific, Singapore, 1993)
- [93] Ph. Bourges *et al.*, Phys. Rev. B **43**, 8690 (1991)
- [94] Ph. Bourges *et al.*, Europhysics Lett. **38**, 313 (2000).
- [95] P. Bourges, *et al.*, Physica B **215**, 30 (1995).
- [96] Ph. Bourges *et al.*, Phys. Rev. B **53**, 876 (1996)
- [97] Ph. Bourges *et al.*, Phys. Rev. B **56**, 11439 (1997)
- [98] Ph. Bourges *et al.*, The gap Symmetry and Fluctuations in High Temperature Superconductors, Plenum Press **349** (1998)
- [99] P. Bourges, *The gap symmetry and fluctuations in high- T_c superconductors*, Plenum Press, New York (1998). cond-mat/9901333
- [100] P. Bourges, *et al.*, cond-mat/9902262(1999), HTS99 Proceedings Miami, High Temperature Superconductivity , edited by S.E. Barnes
- [101] Ph. Bourges *et al.*, Science **288**, 1234 (2000).
- [102] P. Bourges, *et al.*, J. Superconductivity Incorporating Novel Magnetism **13**, 735 (2000).
- [103] Ph. Bourges *et al.*, Europhysics Lett. **38**, 313 (2000).
- [104] P. Bourges *et al.*, Phys. Rev. Lett. **90**, 147202 (2003)

- [105] P. Bourges, Habilitation à diriger les recherches, Université de Paris-Sud, Centre Orsay (2003)
- [106] Ph. Bourges *et al.* submitted to LT23 Proceedings (cond-mat/0211227)
- [107] H. A. Mook *et al.*, Phys. Rev. Lett. **70**, 3490 (1993)
- [108] H. A. Mook *et al.*, Nature **395**, 580 (1998).
- [109] H. A. Mook *et al.*, Nature **404**, 729 (2000).
- [110] P. Dai *et al.*, Science **284**, 1344 (1999)
- [111] P. Dai *et al.*, Phys. Rev. Lett. **77**, 5425 (1996)
- [112] P. Dai *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 1738 (1998)
- [113] P. Dai *et al.*, Nature **395**, 580 (1998).
- [114] P. Dai *et al.*, Science **284**, 1344 (1999)
- [115] P. Dai *et al.*, Phys. Rev. B **63**, 054525 (2001).
- [116] S. M. Hayden *et al.*, Phys. Rev. Lett. **96**, 1344 (1996)
- [117] S. M. Hayden *et al.*, Phys. Rev. B. **54**, 6905 (1996)
- [118] S. M. Hayden *et al.*, Nature **429**, 531 (2004).
- [119] M. Arai *et al.*, Phys. Rev. Lett. **83**, 608 (1999)
- [120] J. M. Tranquada *et al.*, Phys. Rev. B. **40**, 4503 (1989)
- [121] J. M. Tranquada *et al.*, Phys. Rev. B **46**, 5561 (1992)
- [122] J. M. Tranquada *et al.*, Phys. Rev. B **69**, 174507 (2004)
- [123] J. M. Tranquada *et al.*, Nature **375**, 561 (1995)
- [124] J. M. Tranquada *et al.*, Phys. Rev. Lett. **73**, 1003 (1994)
- [125] J. M. Tranquada *et al.*, Phys. Rev. B **46**, 5561 (1992)
- [126] J. M. Tranquada *et al.*, Nature **429**, 534 (2004).
- [127] H. F. Fong *et al.*, Phys. Rev. B **53**, 876 (1996)
- [128] H. F. Fong *et al.*, Phys. Rev. B **61**, 14773 (2000)
- [129] H. F. Fong *et al.*, Phys. Rev. Lett **75**, 316 (1995)
- [130] H.F. Fong *et al.*, Nature **398**, 588 (1999)
- [131] Y. Sidis *et al.*, Phys. Rev. Lett. **84**, 5900 (2000)
- [132] Y. Sidis *et al.*, Phys. Stat. Sol. B **241**, 1204 (2004)
- [133] Y. Sidis *et al.*, Phys. Rev. Lett. **83**, 5900 (1999)
- [134] V. Hinkov *et al.*, Nature **430**, 650 (2004).
- [135] V. Hinkov, Thèse de doctorat du Max-Planck-Institut für Festkörperforschung, Stuttgart (en cours)
- [136] L. P. Regnault *et al.*, Physica C **235**, 59 (1995)
- [137] H. M. Ronnow *et al.*, Annual report of ILL highlight magnetism (2000)
- [138] S. Shamoto *et al.*, Phys. Rev. B. **48**, 13817 (1993)
- [139] A. T. Boothroyd *et al.*, Phys. Rev. B **67**, 100407 (2003)

- [140] H.F. He, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **86**, 1610 (2001).
- [141] H.F. He *et al.*, Science **295**, 1045 (2002).
- [142] S. Pailhès *et al.*, Phys. Rev. Lett. **91**, 237002 (2003)
- [143] S. Pailhès *et al.*, Phys. Rev. Lett. **93**, 167001 (2004)
- [144] G. Aeppli *et al.*, Science **278**, 1432 (1997)
- [145] T. E. Mason *et al.*, Phys. Rev. Lett. **77**, 1604 (1996)
- [146] S. Wakimoto *et al.*, Phys. Rev. B **61**, 3699 (2002)
- [147] C. Stock *et al.*, Phys. Rev. B **69**, 014502 (2004)
- [148] C. Stock *et al.*, cond-mat/0408071 (2004)
- [149] A. V. Balatsky *et al.*, Phys. Rev. Lett. **82**, 5337 (1999)
- [150] D. Reznik *et al.*, Phys. Rev. Lett. **93**, 207003 (2004)
- [151] D. Reznik *et al.*, Phys. Rev. B **53**, 14741 (1996)
- [152] S. Bayracki *et al.*, unpublished.
- [153] Ch. Niedermayer *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 3843 (1998)
- [154] D. L. Feng *et al.*, Phys. Rev. Lett. **86**, 24 (2001) et D. L. Feng *et al.*, Phys. Rev. B **65**, 220501
- [155] A. Kaminski, Phys. Rev. Lett. **90**, 20 (2003)
- [156] T. K. Kim *et al.*, Phys. Rev. Lett. **91**, 167002 (2003)
- [157] A. A. Kordyuk *et al.*, Phys. Rev. B **67**, 064504 (2003)
- [158] M. Eschrig et M. Norman, Phys. Rev. B **67**, 144503 (2001)
- [159] O. K. Andersen *et al.*, J. Phys. Chem. Solids **56**, 1573 (1995)
- [160] A. J. Millis, Phys. Rev. B **54**, 16172 (1996)
- [161] T. Li Phys. Rev. B **64**, 012503 (2001)
- [162] T. Li et ZZ Gan Phys. Rev. B **60**, 3092 (1999)
- [163] T. Liu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **27**, 4130 (1995)
- [164] N. Bulut et D. J. Scalapino, Phys. Rev. B **53**, 5149 (1999)
- [165] M. U. Ubbens et P. A. Lee, Phys. Rev. B **50**, 438 (1994)
- [166] J. F. Zasadzinski, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **87**, 067005 (2001).
- [167] N. Miyakawa *et al.*, Phys. Rev. Lett. **83**, 1018 (1999).
- [168] N. Miyakawa *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 157 (1998).
- [169] T. Cren *et al.*, cond-mat/0006044 (2000)
- [170] B. Fauquet, rapport de stage de DEA Physique des Solides et Milieux denses (2004)
- [171] Y. Gallais, Thèse de doctorat de l'Université Paris 6, Ecole Supérieure de Physique et de Chimie Industrielle (ESPCI) (2003)
- [172] M. Le Tacon, Thèse de doctorat de l'Université Paris XI, Ecole Supérieure de Physique et de Chimie Industrielle (ESPCI) (en cours)
- [173] M. Le Tacon, communication privée.

- [174] A. Sacuto, Habilitation à diriger des recherches de l'université de Pierre et Marie Curie (Paris VI) (2000)
- [175] C. Ulrich, Thèse de doctorat du Max Planck-Institut (MPI) für Festkörperforschung, stuttgart (1997)
- [176] *Light Scattering in Solids VI*, Springer-Verlag (1983) édité par M. Cardona et G. Güntherodt
- [177] *Spectroscopy of High- T_c superconductors*, Taylor et Francis (2003) édité par N. M. Plakida
- [178] P.W. Anderson, Phys. Rev. **79**, 110 (1958) et Phys. Rev. **112**, 1900 (1958)
- [179] T.P Deveraux et D. Einzel, Phys. Rev. B **51**, 16336 (1995).
- [180] D. J. Singh, *et al.*, Phys. Rev. B **48**, 3571 (1993).
- [181] B. Friedl, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **65**, 915 (1990).
- [182] R. Hackl, *et al.*, Phys. Rev. B **38**, 7133 (1988).
- [183] X. K. Chen, *et al.*, Phys. Rev. B **48**, 10530 (1993).
- [184] Y. Gallais, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **88**, 177401 (2002).
- [185] A. Bock, Ann. Phys. **8**, 441 (1999)
- [186] E. Altendorf, *et al.*, Phys. Rev. B **47**, 8140 (1993).
- [187] T. Masui, *et al.*, cond-mat/0308130 (2003)
- [188] X. K. Chen, *et al.*, Phys. Rev. B **56**, R513 (1997).
- [189] M. Opel, *et al.*, Phys. Rev. B **61**, 9752 (2000).
- [190] Y. Gallais, *et al.*, Cond-mat/0403753 (2004).
- [191] Y. Gallais, *et al.*, Cond-mat/0108015 (2004).
- [192] M. F. Limonov, *et al.*, Phys. Rev. B **61**, 12412 (2000).
- [193] O. V. Misochko, *et al.*, Phys. Rev. B **59**, 11183 (1999).
- [194] R. Hackl, *The gap symmetry and fluctuations in high- T_c superconductors*, Plenum Press, New York (1998)
- [195] T. P. Deveraux, Phys. Rev. Lett. **72**, 396 (1994).
- [196] M. Limonov, *et al.*, Phys. Rev. B **66**, 054509 (2002).
- [197] L. V. Gasparov, *et al.*, Phys. Rev. B **55**, 1223 (1997).
- [198] X. K. Chen, *et al.*, Physica C **295**, 80 (1998).
- [199] V. G. Hadjiev, *et al.*, Phys. Rev. B **58**, 1043 (1998).
- [200] A. Sacuto, *et al.*, Phys. Rev. B **58**, 11721 (1998).
- [201] P. G. Klemens Phys. Review **148**, 845 (1966)
- [202] M. Cardonna et T.Ruf, Solid State Com. **117**, 201 (2001)
- [203] F. Widulle *et al.*, Solid State Com. **118**, 1 (2001).
- [204] R. Zeyher et G. Zwirgagl, Solid State Com. **66**, 617 (1988).
- [205] R. Zeyher et A. Greco, cond-mat/02101101 (2002)
- [206] D. Pines, Physica C **282**, 273 (1997)

- [207] S. Chakravarty *et al.*, Phys. Rev. B **63**, 0945503 (2001).
- [208] T. P. Deveraux *et al.*, Phys. Rev. B **54**, 12523 (1996).
- [209] T. K. Kim, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **91**, 167002 (2003).
- [210] A. Kaminski, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **90**,
- [211] G. Stemmann, thèse de l'université Joseph Fourier, Grenoble I (1994)
- [212] S. Charfi-Kaddour, thèse de l'université d'Orsay (1990)
- [213] J. Labbe et J. Bok, Euro. Phys. Lett. **3**, 1225 (1987)
- [214] M. Lavagna et G. Stemman, Phys. Rev. B **49**, 4235 (1994)
- [215] P. Benard *et al.*, Phys. Rev. B **47**, 589 (1993)
- [216] T. Hocquet *et al.*, J. de Physique **5**, 517 (1995).
- [217] D. Morr et D. Pines, Phys. Rev. Lett. **81**, 1086 (1998)
- [218] M.R Norman Phys. Rev. B **63**, 092509 (2001)
- [219] M. R. Norman Phys. Rev. B **61**, 14751 (2000)
- [220] A.J. Millis, H. Monien, D. Pines, Phys. Rev. B **42**, 167 (1990)
- [221] A. J. Millis, Phys. Rev. B **54**, 16172 (1996)
- [222] A. V. Chubukov, The Physics of Conventional and Unconventional Superconductors edited by K.H. Bennemann and J.B. Ketterson (Springer-Verlag)
- [223] F. Onufrieva and J. Rossat-Mignot, Phys. Rev. B **52**, 7572 (1995)
- [224] F. Onufrieva *et al.*, Phys. Rev. Lett. **82**, 2370 (1999)
- [225] F. Onufrieva and P. Pfeuty, Phys. Rev. B **65**, 054515 (2002)
- [226] F. Onufrieva, Physica B **215**, 41 (1995)
- [227] J. Brinckmann et A. Lee Phys. Rev. B **65**, 0145502 (2002)
- [228] F. Onufrieva, P. Pfeuty et M. Kissevelev, J. Phys. Chem. Solids **59**, 1853 (1998)
- [229] T. Li Phys. Rev. B **64**, 012503 (2001)
- [230] T. Li et ZZ Gan Phys. Rev. B **60**, 3092 (1999)
- [231] T. Liu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **27**, 4130 (1995)
- [232] N. Bulut et D. J. Scalapino, Phys. Rev. B **53**, 5149 (1999)
- [233] A. Auerbach *et al.*, Phys. Rev. B **43**, 7800 (1991)
- [234] G. Baskaran *et al.*, Sol. State Communication **63**, 973 (1987)
- [235] D. van der Marel, Phys. Rev. B **51**, 1147 (1995)
- [236] I. Eremin *et al.*, Cond-mat/0409599 (2004)
- [237] I. Eremin *et al.*, Phys. Rev. B **69**, 094517 (2004)
- [238] J. Hubbard et K. P. Jain, J. Phys. C (Proc. Phys. Soc.) **1**, 1650 (1968)
- [239] C. J. Halboth et W. Metzner, Phys. Rev. Lett. **21**, 5162 (2000)
- [240] V. Hankevych *et al.*, Phys. Rev. B **66**, 094516 (2002)
- [241] I. Eremin et D. Manske, Cond-mat/0407487 (2004)
- [242] Khee-Kyun Voo, Phys. Rev. B **68**, 012505 (2003)

- [243] J. M. Rendell et J. P. Carbotte, Phys. Rev. B **53**, 5889 (1996)
- [244] E. W. Carlson, The Physics of Conventional and Unconventional Superconductors, edited by K. H. Bennemann et J. B. Ketterson (Springer - Verlag)
- [245] S. A. Kivelson *et al.*, How to detect fluctuating stripes in the high temperature superconductors. Rev. Mod. Phys. **75**, 1201 (2003)
- [246] F. Krüger et S. Scheidl, Phys. Rev. B **70**, 064421 (2004)
- [247] M. Vojta et T. Ulbricht, Phys. Rev. Lett. **93**, 127002 (2004)
- [248] G. S. Uhrig *et al.*, Cond-mat/0402659 (2004)
- [249] C. D. Batista *et al.*, Phys. Rev. B **64**, 172508 (2001)
- [250] G. Seibold et J. Lorenzana, Cond-mat/0406589 (2004)
- [251] N. B. Christensen, Phys. Rev. Lett. **93**, 147002 (2004)
- [252] A. P. Schneider *et al.*, Cond-mat/0405607 (2004)
- [253] D. L. Feng *et al.*, Phys. Rev. Lett. **86**, 24 (2001) et D. L. Feng *et al.*, Phys. Rev. B **65**, 220501
- [254] A. Kaminski, Phys. Rev. Lett. **90**, 20 (2003)
- [255] T. K. Kim *et al.*, Phys. Rev. Lett. **91**, 167002 (2003)
- [256] T. K. Kim *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 4245 (1998)
- [257] A. A. Kordyuk *et al.*, Phys. Rev. B **67**, 064504 (2003)
- [258] A. A. Kordyuk *et al.*, Phys. Rev. B **66**, 0614502 (2002)
- [259] M. Eschrig et M. Norman, Phys. Rev. B **67**, 144503 (2001)
- [260] A. Ino *et al.*, Phys. Rev. B **65**, 014502 (2002)
- [261] D. H. Lu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **86**, 19 (2001)
- [262] M. C. Schabel *et al.*, Phys. Rev. B **57**, 06090 (1998)
- [263] M. R. Norman *et al.*, Nature **392**, 157 (1998)
- [264] O. K. Andersen *et al.*, J. Phys. Chem. Solids **56**, 1573 (1995)
- [265] O. K. Andersen *et al.*, Phys. Rev. B **49**, 4145 (1994)
- [266] Anisimov *et al.*, J. Phys. Cond. Matter **9**, 7359 (1997)
- [267] J. L. Tallon *et al.*, Phys. Stat. Sol. **215**, 531 (1999)
- [268] J. L. Tallon, Advances in Superconductivity XII (Springer Verlag, Yokyo)
- [269] J. L. Tallon *et al.*, cond-mat/0005063 (2000)
- [270] J. L. Tallon *et al.*, cond-mat/0211048 (2002)
- [271] C. Bernhard *et al.*, Phys. Rev. B **59**, R6631 (1999)
- [272] J. Hwang *et al.*, Nature **427**, 714 (2004)
- [273] J. P. Carbotte *et al.*, Nature **401**, 354 (1999)

Two Resonant Magnetic Modes in an Overdoped High T_c Superconductor

S. Pailhès,¹ Y. Sidis,¹ P. Bourges,^{1,*} C. Ulrich,² V. Hinkov,² L. P. Regnault,³ A. Ivanov,⁴ B. Liang,² C. T. Lin,² C. Bernhard,² and B. Keimer²

¹Laboratoire Léon Brillouin, CEA-CNRS, CE-Saclay, 91191 Gif sur Yvette, France

²Max-Planck-Institut für Festkörperforschung, 70569 Stuttgart, Germany

³CEA Grenoble, DRFMC, 38054 Grenoble Cedex 9, France

⁴Institut Laue Langevin, 156X, 38042 Grenoble Cedex 9, France

(Received 24 June 2003; published 3 December 2003)

A detailed inelastic neutron scattering study of the overdoped high temperature copper oxide superconductor $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_7$ reveals two-distinct magnetic resonant modes in the superconducting state. The modes differ in their symmetry with respect to exchange between adjacent copper oxide layers. Counterparts of the mode with odd symmetry, but not the one with even symmetry, had been observed before at lower doping levels. The observation of the even mode resolves a long-standing puzzle, and the spectral weight ratio of both modes yields an estimate of the onset of particle-hole spin-flip excitations.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.91.237002

PACS numbers: 74.25.Ha, 25.40.Fq, 61.12-q, 74.72.Bk

In various high T_c superconductors with crystal structures comprised of CuO_2 monolayer units ($Tl_2Ba_2CuO_{6+\delta}$ [1]) and bilayer units [$YBa_2Cu_3O_7$ (YBCO) [2–7] and $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ (BSCO) [8]], the magnetic excitation spectrum in the superconducting state is dominated by a resonant mode. For a given compound, the excitation vanishes at T_c without any marked change of the excitation energy E_r . A comparison of different compounds has uncovered the scaling relation $E_r \sim 5k_B T_c$ [9]. Signatures of a strong interaction of the mode with charged quasi-particles [10] have been observed in various spectroscopic data including angle-resolved photoemission spectroscopy [11] and tunneling [12].

The resonant mode occurs around the planar wave vector $Q_{AF} = (\pi/a, \pi/a)$ characteristic of antiferromagnetic (AF) fluctuations in both monolayer and bilayer systems. (a stands for the Cu-Cu distance in the CuO_2 planes.) Because of the interlayer exchange coupling, bilayer systems are additionally expected to exhibit non-degenerate magnetic excitations with odd (o) and even (e) symmetry with respect to exchange of the layers. While this has been confirmed in insulating YBCO [13] by the observation of acoustic and optical spin waves (whose symmetry is o and e , respectively), one of the most puzzling features of the resonant mode in superconducting bilayer systems is that it appears exclusively in the odd channel. On general grounds, both odd and even parts of the spin susceptibility are required as input for theories of a superconducting pairing mechanism based on magnetism. Differences in the spin dynamics in o and e channels can even lead to interlayer and intralayer pairing states of different symmetry [14]. Despite various attempts in underdoped and optimally doped samples, the even resonant mode has thus far not been observed,

presumably due to a much weaker intensity. Here we report, for the first time, the observation of odd and even modes in a superconducting YBCO sample in which the CuO_2 planes are overdoped through partial substitution of Ca^{2+} for Y^{3+} .

$Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_{6+x}$ single crystals were prepared by a top-seeded solution growth method described previously [15]. About 60 single crystals with a total volume of 350 mm^3 were coaligned with a total mosaicity of 1.4°

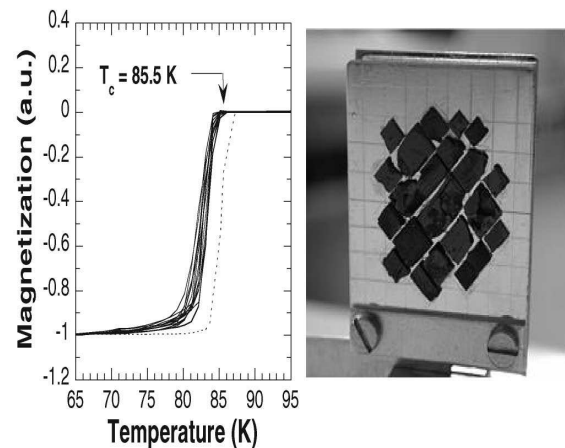


FIG. 1. (left) Susceptibility of 15 individual $Y_{0.9}Ca_{0.1}Ba_2Cu_3O_7$ crystals (full curves). For comparison, the dashed line represents the susceptibility curve taken for one crystal after heat treatment to reduce the oxygen content. Its higher T_c demonstrates that the samples used in the neutron experiments are slightly overdoped. (right) Photograph of the array of cooriented overdoped single crystals. Sixty crystals are glued onto Al plates, only one of which is shown for clarity.

as shown in Fig. 1 (left panel). Prior to alignment, the Ca content and superconducting transition temperature were determined by energy dispersive x-ray (EDX) analysis and magnetometry, respectively, for each crystal individually. The EDX measurements revealed an excellent homogeneity of the Ca content both parallel and perpendicular to the CuO_2 layers, and the superconducting transitions measured by magnetometry were sharp [full width < 4 K, Fig. 1 (right panel)]. To achieve the overdoped state, the samples were annealed in flowing oxygen at 500°C for 150 h yielding $x \approx 1$. The total crystal mosaic has an onset T_c of 85.5 ± 0.6 K and calcium content of $10\% \pm 1\%$ (mean \pm standard deviation).

The measurements were taken at the 2 T triple axis spectrometer at the Laboratoire Léon Brillouin (Saclay, France), and at the IN8 triple axis spectrometer at the Institut Laue Langevin (Grenoble, France). On 2 T, a focusing pyrolytic graphite (PG) (002) monochromator and analyzer were used, with a PG filter inserted into the beam in order to eliminate higher order contamination. The IN8 beam optics includes a vertically and a horizontally focusing Si (111) crystal as monochromator, and a PG (002) analyzer. No filter was required on IN8 because the Si (222) Bragg reflection is forbidden. The crystal was oriented such that momentum transfers Q of the form $Q = (H, H, L)$ were accessible. We use a notation in which Q is indexed in units of the tetragonal reciprocal lattice vectors $2\pi/a = 1.64 \text{ \AA}^{-1}$ and $2\pi/c = 0.54 \text{ \AA}^{-1}$.

As discussed previously [6,16,17], the cross section for magnetic neutron scattering from bilayer cuprates reads

$$\frac{\partial^2 \sigma(Q, \omega)}{\partial \Omega \partial \omega} \propto F^2(Q) \{ \sin^2(\pi z L) \text{Im}[\chi_o(Q, \omega)] + \cos^2(\pi z L) \text{Im}[\chi_e(Q, \omega)] \}, \quad (1)$$

where $\text{Im}[\chi_{o,e}(Q, \omega)]$ is the imaginary part of the dynamical magnetic susceptibility in the odd and even channels, respectively, $z c = 3.3 \text{ \AA}$ is the distance between CuO_2 planes within a bilayer unit, and $F(Q)$ is the magnetic form factor of Cu^{2+} . In order to determine the energy of the magnetic resonant mode, we first followed previous work [6] and performed constant- Q scans at $Q = (0.5, 0.5, 5.2)$ where the structure factor for odd excitations is maximum. As previously found in YBCO_7 [4,5], antiferromagnetic spin correlations are not observable above the background level in the normal state, so that the normal-state intensity can serve as a reference level. Figure 2(a) shows that the intensity increases in the superconducting state and that the difference between scans taken in the superconducting and normal states exhibits the same prominent peak that heralds the resonant mode in other copper oxides. (Note that the reference level is negative and increases with increasing energy for a given temperature difference, because the background is predominantly determined by multiphonon scattering events.) The peak energy, 36 meV, is lower than the

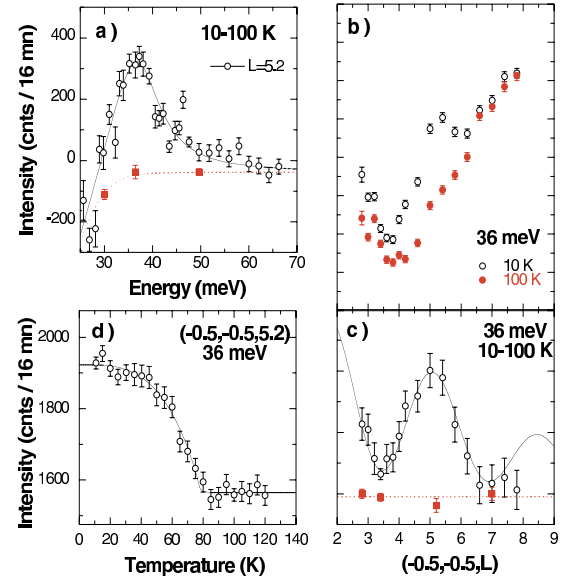


FIG. 2 (color online). (a) Difference of the neutron intensities measured at $T = 10$ K ($< T_c$) and $T = 100$ K ($> T_c$) in the odd channel at $Q = (0.5, 0.5, 5.2)$ versus excitation energy E . (b) Constant-energy scans at $E_r^o = 36$ meV along the L direction perpendicular to the CuO_2 planes at 10 and 100 K. (c) Difference between the two scans shown in (b). The full symbols in (a) and (c) are determined by the difference of constant-energy scans along the (H, H, L_0) direction for different L_0 values. Dotted lines connecting these full symbols then correspond to the reference level of magnetic scattering. (d) Temperature dependence of the neutron intensity at the resonance energy $E = E_r^o$ and $Q = Q_{\text{AF}}$.

mode energy in optimally doped YBCO, but consistent with observations in slightly overdoped BSCO [9] and with the scaling relation $E_r \sim 5k_B T_c$. Constant-energy scans at 36 meV along $(0.5, 0.5, L)$ [Figs. 2(b) and 2(c)] exhibit a sinusoidal intensity modulation that confirms the previously observed odd symmetry of the resonant mode [Eq. (1)]. In-plane constant-energy scans along $(H, H, 5.2)$ (not shown) exhibit a peak with an intrinsic full width at half maximum of $\Delta Q = 0.36 \pm 0.05 \text{ \AA}^{-1}$, somewhat larger than $\Delta Q = 0.25 \pm 0.05 \text{ \AA}^{-1}$ determined for the resonant mode in YBCO_7 . The temperature dependence of the peak intensity [Fig. 2(d)] shows that the mode vanishes in the normal state, similarly to the optimally doped systems.

While these observations are largely consistent with previous work [2–7], some new aspects of the data of Fig. 2(a) are noteworthy. First, in contrast to the resolution-limited energy profile in pure YBCO, the resonant peak in the overdoped material exhibits a broader, asymmetric line shape with a tail above E_r [Fig. 2(a)]. Second, the sinusoidal intensity modulation along L is not complete as some intensity remains at $L = 3.6$ and 7.2 [Fig. 2(c)]. Similar L scans for $\text{YBCO}_{6,97}$ show the full

modulation [5]. In order to check for a possible admixture of a second mode with even symmetry, we performed constant- Q scans at $Q = (0.5, 0.5, 7)$ where the structure factor for even excitations [Eq. (1)] is near its maximum. The difference of the intensities below and above T_c [closed symbols in Fig. 3(a)] reveals a new mode around an energy of 43 meV, clearly different from the mode energy in the odd channel [open symbols in Fig. 3(a)]. Such an even excitation has not been observed in previous inelastic neutron scattering studies of YBCO and BSCO, most likely because its intensity is smaller at lower doping levels and hence indistinguishable from the background. Further, the overdoped regime could be particularly suited to detect such an even mode because electronic transport between closely spaced CuO_2 layers becomes coherent, as demonstrated by recent experiments showing well-defined bonding and antibonding bands [18].

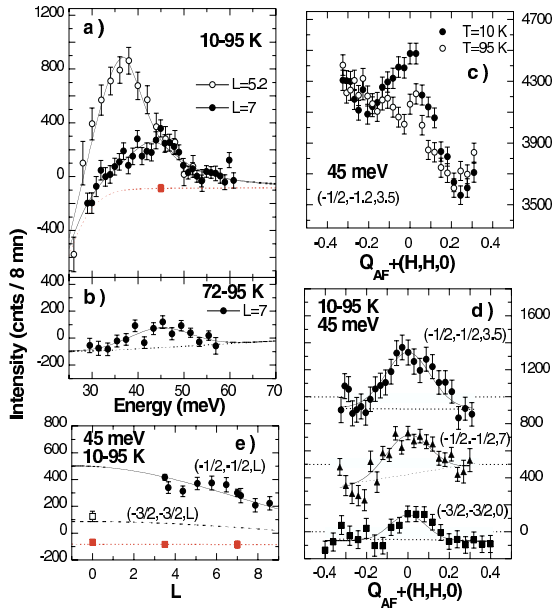


FIG. 3 (color online). (a),(b) Constant- Q scans, (c),(d) constant-energy scans evidencing a second magnetic mode in the even channel around $E_r^e \sim 43$ meV. Panel (c) shows raw neutron scans at two different temperatures, whereas (a), (b), and (d) display the differences of the neutron intensities at $T = 10$ K ($< T_c$) and $T = 100$ K ($> T_c$). The two upper scans in (d) were shifted by 300 counts from the lower one for clarity, and the dotted line represents the background level. (e) Difference between constant-energy scans at $E = 45$ meV obtained at $T = 10$ K and $T = 95$ K along the L direction (open circles). The open square shows the magnetic intensity measured by constant-energy scans at $E = 45$ meV along $Q = (H, H, 0)$ for H around $3/2$. The full symbols, connected by the lower dotted line, correspond to the measured reference level of the magnetic scattering determined by constant-energy scans at $E = 45$ meV along $Q = (H, H, L_0)$ for different L_0 values.

In-plane constant-energy scans performed at maxima of the even structure factor in different Brillouin zones [Figs. 3(c) and 3(d)] show that the intensity is peaked at Q_{AF} . The intensity decreases with increasing total wave vector Q , following the anisotropic magnetic form factor of Cu^{2+} [19] [Fig. 3(e)]. This excludes phonons (whose intensity generally increases with increasing Q) and demonstrates the magnetic origin of the second mode. However, the observed L dependence at $E = 45$ meV [Fig. 3(e)] differs from the \cos^2 dependence expected for the even mode [Eq. (1)]. As shown by Fig. 3(a), the deviation from the expected \cos^2 dependence is probably related to a combined effect of the anomalous line shapes of both modes and their relative spectral weights.

The temperature dependences of the odd and even modes are closely similar (Fig. 4). Moreover, Fig. 3(b) demonstrates that the even mode remains peaked at 43 meV up to 72 K ($= T_c - 13$ K). The peak amplitude of the even mode thus vanishes at T_c without renormalization of the mode energy, as it does for the odd mode. The findings underline the common origin of both modes. The in-plane Q width of the even mode, measured along the (110) direction, is $0.45 \pm 0.05 \text{ \AA}^{-1}$, somewhat larger than that of the odd mode [Fig. 3(d)]. The energy profiles of both modes are identical within the experimental error. Calibration of the magnetic intensity to that of an optical phonon [6] and integrating over the asymmetric profiles in energy yields spectral weights of $W_o(Q_{AF}) = \int d\omega \text{Im}\chi(Q_{AF}, \omega) = 0.8\mu_B^2$ per formula unit (f.u.) and $W_e(Q_{AF}) = 0.36\mu_B^2/\text{f.u.}$ for odd and even modes, respectively. Averaged over the entire Brillouin zone, this corresponds to $\langle W_o(Q) \rangle = 0.042\mu_B^2/\text{f.u.}$ and $\langle W_e(Q) \rangle = 0.036\mu_B^2/\text{f.u.}$ These values should be compared with $W_o(Q_{AF}) = 1.6\mu_B^2/\text{f.u.}$ and $\langle W_o(Q) \rangle = 0.043\mu_B^2/\text{f.u.}$ for the odd mode in YBCO₇ [6]. The total magnetic spectral weight observed by neutron scattering is thus preserved in the overdoped regime, but it is spread out over a wider range of energy and momentum.

Two distinct magnetic modes of odd and even symmetry are thus observed by spin-flip neutron scattering in the superconducting state of overdoped YBCO, as predicted by mean-field theories of d -wave superconductors in the presence of antiferromagnetic interactions [16,17,20]. The observation that the difference between the mode energies, $E_r^e - E_r^o \simeq 7$ meV, is of the order of $J_{\perp} \sim 10$ meV, the interlayer superexchange coupling determined experimentally in insulating YBCO [13], is also consistent with these models. Under the assumption that both modes are bound states in the superconducting energy gap, their spectral weights are predicted to be approximately proportional to their binding energies, $\omega_c - E_r^{o,e}$ [17], so that

$$\frac{W_o(Q_{AF})}{W_e(Q_{AF})} = \frac{\omega_c - E_r^o}{\omega_c - E_r^e}. \quad (2)$$

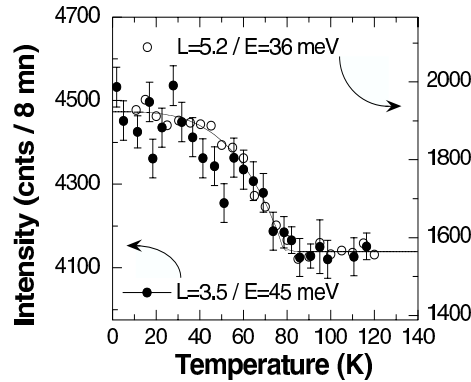


FIG. 4. Temperature dependence of the neutron intensity at $Q_{AF} = (0.5, 0.5, L)$ at the even mode energy $E_{\nu}^e = 45$ meV and $L = 3.5$ (full circles and left scale). The temperature dependence of the odd mode (open circles and right scale) of Fig. 2(d) has been superposed without the error bars for clarity.

This yields an estimate of $\omega_c = 49$ meV for the threshold of the continuum of particle-hole spin-flip excitations at the wave vector Q_{AF} . The large spectral weight difference thus implies a small binding energy of the even resonant mode. In the limit of small binding energy, one further expects that the normal-state spectral weight below ω_c is only partially redistributed into the bound state below T_c , with the remainder accumulating above the particle-hole threshold. This could provide an explanation for the asymmetric line shape of the mode. A larger distance of the resonant mode to ω_c would also explain why this asymmetry is not observed at optimum doping.

In any case, both the existence of two distinct odd and even excitations and their relative spectral weights put new constraints on the various models to account for the magnetic dynamics in the superconducting cuprates.

Notably, our experiments provide an estimate of the locus of the particle-hole spin-flip excitations in the high T_c cuprates, a direct measure of the bulk superconducting energy gap Δ_k .

*To whom correspondence should be addressed.

Electronic address: bourges@bali.saclay.cea.fr

- [1] H.F. He *et al.*, Science **295**, 1045 (2002).
- [2] J. Rossat-Mignod *et al.*, Physica (Amsterdam) **185C-189C**, 86 (1991).
- [3] H. A. Mook *et al.*, Phys. Rev. Lett. **70**, 3490 (1993).
- [4] H.F. Fong *et al.*, Phys. Rev. Lett. **75**, 316 (1995).
- [5] P. Bourges, L. P. Regnault, Y. Sidis, and C. Vettier, Phys. Rev. B **53**, 876 (1996).
- [6] H.F. Fong *et al.*, Phys. Rev. B **61**, 14773 (2000).
- [7] P. Dai *et al.*, Phys. Rev. B **63**, 054525 (2001).
- [8] H.F. Fong *et al.*, Nature (London) **398**, 588 (1999).
- [9] H.F. He *et al.*, Phys. Rev. Lett. **86**, 1610 (2001).
- [10] Ar Abanov *et al.*, Phys. Rev. Lett. **89**, 177002 (2002), and references therein.
- [11] M. Eschrig and M. R. Norman, Phys. Rev. B **67**, 144503 (2003), and references therein.
- [12] J.F. Zasadzinski *et al.*, Phys. Rev. Lett. **87**, 067005 (2001), and references therein.
- [13] D. Reznik *et al.*, Phys. Rev. B **53**, R14741 (1996).
- [14] T. Li, Phys. Rev. B **64**, 012503 (2001).
- [15] C.T. Lin, B. Liang, and H.C. Chen, J. Cryst. Growth **237-239**, 778 (2002).
- [16] D. Z. Liu, Y. Zha, and K. Levin, Phys. Rev. Lett. **75**, 4130 (1995).
- [17] A.J. Millis and H. Monien, Phys. Rev. B **54**, 16172 (1996).
- [18] D.L. Feng *et al.*, Phys. Rev. Lett. **86**, 5550 (2001); Y.D. Chuang *et al.*, Phys. Rev. Lett. **87**, 117002 (2001); A. Kaminski *et al.*, Phys. Rev. Lett. **90**, 207003 (2003).
- [19] S. Shamoto *et al.*, Phys. Rev. B **48**, 13817 (1993).
- [20] F. Onufrieva and P. Pfeuty, Phys. Rev. B **65**, 054515 (2002).

Resonant Magnetic Excitations at High Energy in Superconducting $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$

S. Pailhès,¹ Y. Sidis,¹ P. Bourges,^{1,*} V. Hinkov,² A. Ivanov,³ C. Ulrich,² L. P. Regnault,⁴ and B. Keimer²

¹Laboratoire Léon Brillouin, CEA-CNRS, CE-Saclay, 91191 Gif sur Yvette, France

²Max-Planck-Institut für Festkörperforschung, 70569 Stuttgart, Germany

³Institut Laue Langevin, 156X, 38042 Grenoble cedex 9, France

⁴CEA Grenoble, DRFMC, 38054 Grenoble cedex 9, France

(Received 24 March 2004; revised manuscript received 23 July 2004; published 14 October 2004)

A detailed inelastic neutron scattering study of the high temperature superconductor $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$ provides evidence of new resonant magnetic features, in addition to the well-known resonant mode at 41 meV: (i) a commensurate magnetic resonance peak at 53 meV with an even symmetry under exchange of two adjacent CuO_2 layers, and (ii) high-energy incommensurate resonant spin excitations whose spectral weight is around 54 meV. The locus and the spectral weight of these modes provides unrevealed insight about the momentum shape of the electron-hole spin-flip continuum of d -wave superconductors.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.93.167001

PACS numbers: 74.25.Ha, 74.72.Bk, 78.70.Nx

The spin excitation spectrum of the copper oxide superconductors is modified markedly upon entering the superconducting (SC) state. In materials with transition temperatures T_c exceeding about 50 K, a “resonant mode” emerges below T_c around the wave vector $Q_{AF} \equiv (\pi/a, \pi/a)$ characteristic of antiferromagnetism (AF) in the undoped parent compounds [1]. Materials in which the mode has been observed include cuprates with one $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+\delta}$ [2] and two ($\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ [3–5], $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (BSCO) [6]) CuO_2 planes per unit cell. The results of angle resolved photoemission spectroscopy (ARPES) [7], optical conductivity [8], and tunneling [9] experiments on $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ have been interpreted as evidence of strong interactions of charged quasiparticles with this magnetic mode. The mode therefore plays a prominent role in current theories of high temperature superconductivity [10,11]. Most models proposed to explain the resonant mode are based on strong electronic correlations [10–23]. In an itinerant-magnetism picture, the mode is assigned to an excitonic bound state in the superconductivity-induced gap in the spectrum of electron-hole spin-flip excitations [10–17]. In local-moment models, the mode is viewed as a magnon-like excitation characteristic of a magnetically ordered phase competing with the superconducting state [18–23].

Early experiments on the resonant [3] mode were focused on the wave vector Q_{AF} , where its spectral weight is maximum. Recent advances in neutron scattering instrumentation have made it possible to resolve weaker features of the spin excitations, which further constrain the theoretical description of the mode and its interaction with charged quasiparticles. First, incommensurate excitation branches both below and above 41 meV [24,25] were found to merge at Q_{AF} , forming continuous dispersion relations with an X shape. In addition, a second, disconnected mode was recently observed in slightly overdoped $\text{Y}_{0.9}\text{Ca}_{0.1}\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ ($T_c = 85$ K) [26]. Two magnetic modes with odd and even symmetry with re-

spect to exchange of two adjacent CuO_2 layers are expected on general grounds in a bilayer material such as $(\text{Y, Ca})\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$. In slightly underdoped $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$, only the odd mode has thus far been observed at an energy of 41 meV. A survey of the high-energy spectrum has now revealed a weak, even counterpart at 53 meV. While the even mode was expected to be present on general grounds, the survey has also uncovered an unexpected incommensurate excitation branch separated from both of these modes by a “silent band,” where spin excitations are not observed. The presence of silent bands in the spectrum of collective spin excitations as well as the intensity ratio of both modes can be understood by considering the momentum shape of the Stoner continuum of spin-flip excitations in a d -wave superconductor.

The experiment was performed on the same sample ($x = 0.85$, $T_c = 89$ K) used in Ref. [24], and the measurements were taken at the recently upgraded IN8 triple axis spectrometer at the Institute Laue Langevin (Grenoble, France). The IN8 beam optics include vertically and horizontally focusing monochromator and analyzer, corresponding of arrays of Cu (200) crystals and pyrolytic graphite (PG002) crystals, respectively. The measurements were performed with a fixed final neutron energy of 35 meV. A filter was inserted into the scattered beam in order to eliminate higher order contamination. The crystal was oriented such that momentum transfers Q of the form $Q = (H, H, L)$ were accessible. We use a notation in which Q is indexed in units of the tetragonal reciprocal lattice vectors $2\pi/a = 1.64 \text{ \AA}^{-1}$ and $2\pi/c = 0.54 \text{ \AA}^{-1}$. As discussed in Ref. [26], excitations of even (e) and odd (o) symmetry can be identified by virtue of their magnetic structure factors along the c direction, $[f^2(Q)\cos^2(\pi zL)]$ and $[f^2(Q)\sin^2(\pi zL)]$, respectively. $zc = 3.3 \text{ \AA}$ is the distance between CuO_2 planes within a bilayer unit, and $f(Q)$ is the magnetic form factor of Cu^{2+} .

Figure 1(a) shows the difference between constant- Q scans measured at 12 K ($<T_c$) and 95 K ($>T_c$) and at the

wave vector $(-0.5, -0.5, 5.2)$ [27]. The enhancement of the scattering intensity at $E_r^o = 41$ meV below T_c heralds the well-known resonance peak in the odd channel. Constant-energy scans at 39 meV indicate that the resonant excitation is centered at Q_{AF} [Fig. 2(a)] and display the expected $[f^2(Q)\sin^2(\pi zL)]$ modulation along c^* [Fig. 1(b)]. Since the dispersion of the odd mode has been well documented, it was not studied in detail, but constant-energy and constant- Q profiles with excitation energies around E_r^o (Figs. 1 and 2) are in good agreement with the dispersion relations [28] described in Refs. [24,25]. In particular, the asymmetric line shape of the constant-energy cut at 45 meV [Fig. 1(a)] can be reproduced by assuming an upward dispersion similar to that reported for $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.95}$ [25]. The asymmetry is due to a standard resolution focusing effect.

In addition to the odd resonance, we discovered a second resonant magnetic excitation at higher energy. At $Q_{AF} = (-0.5, -0.5, 7)$, where the structure factor for even excitations is maximum, an enhancement of the response in the superconducting state occurs at $E_r^e = 53$ meV [Fig. 1(c)]. At this energy, the signal is peaked at the AF wave vector [Fig. 2(c)]. Since its amplitude decreases with increasing Q following the magnetic form factor, it can be identified as magnetic [Fig. 1(d)]. Furthermore, its $[f^2(Q)\cos^2(\pi zL)]$ modulation along c^*

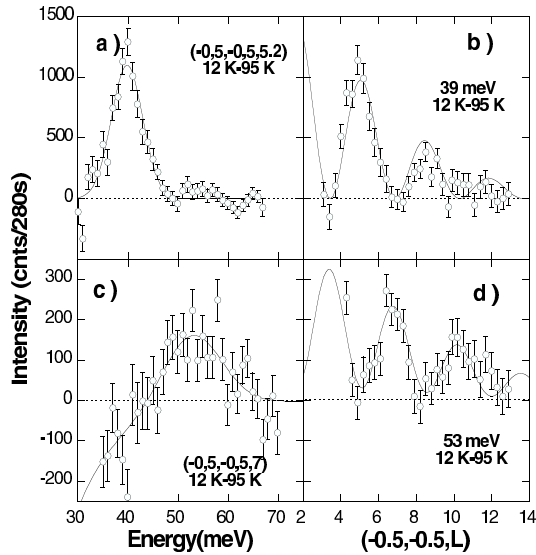


FIG. 1. Differences between energy scans measured at 12 K ($<T_c$) and 95 K ($>T_c$): (a) in the odd channel at $(-0.5, -0.5, 5.2)$, (c) in the even channel at $(-0.5, -0.5, 7)$. Differences between 10 K and 95 K of constant-energy scan along the (001) direction: (b) at 39 meV, (d) at 53 meV. The lines in (b) follow the sine-square modulation and in (d) the cosine-square modulation (see text) convolved by the spectrometer resolution function.

demonstrates that it has an even symmetry [Fig. 1(d)]. Finally, the signal decreases precipitously at T_c , as observed for the magnetic resonance in the odd channel [Fig. 3(a)].

Even and odd resonance peaks also exhibit significant differences. First, the enhancement of the magnetic response in the superconducting state is 6 times weaker at E_r^e than at E_r^o . This explains why the even mode could not be observed in prior experiments with weaker neutron flux. Second, both the constant-energy and the constant- Q profiles of the even spin excitation are broader than those of the odd mode. Gaussian fits of constant-energy scans provide an intrinsic full-width-at-half-maximum (FWHM) of $\Delta Q = 0.41 \pm 0.05 \text{ \AA}^{-1}$ at 53 meV in the even channel [Fig. 2(c)] whereas $\Delta Q = 0.25 \pm 0.05 \text{ \AA}^{-1}$ at 39 meV in the odd channel [Fig. 2(a)]. In energy, the even resonance peak displays an intrinsic FWHM of 11 meV, in contrast to the resolution-limited odd mode. We performed a series of constant-energy scans in the even channel at energies above and below E_r^e , but could not resolve a dispersion analogous to that of the odd mode. We note, however, that the energy and wave vector resolutions at 53 meV are significantly broader than at 41 meV. Further study is required to ascertain whether the comparatively large energy and Q -widths of the even profiles are due to an intrinsic damping of the mode or due to an unresolved dispersion relation. Leaving these

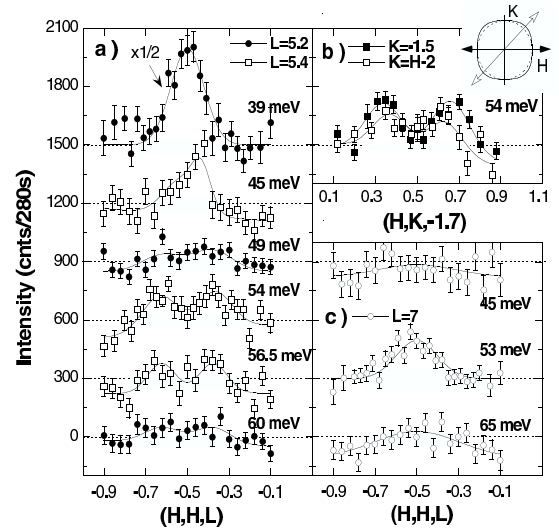


FIG. 2. Differences between 12 K ($<T_c$) and 95 K ($>T_c$) of constant-energy scans measured along the (110) direction around $(-0.5, -0.5, L)$: (a) $L = 5.2$ or 5.4 (odd channel) and (c) $L = 7$ (even channel). (b) Constant-energy scans at $E = 54$ meV along the 100 direction and along the 110 direction (see inset) obtained with different experimental conditions (see text). For the sake of clarity, scans are shifted by 300 counts with decreasing energy from bottom to top.

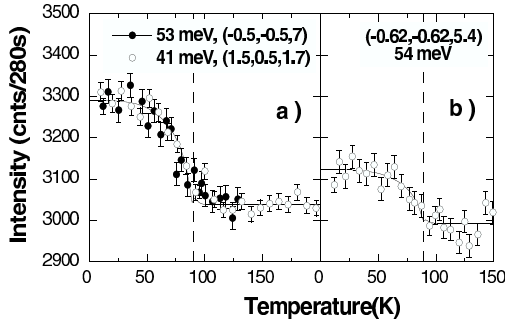


FIG. 3. (full circles) (a) Temperature dependence of the neutron intensity at $Q_{AF} = (0.5, 0.5, 7)$ at the even mode energy $E_e = 53$ meV. The intensity has been scaled at 12 K and 125 K to that of the odd mode at 41 meV (open circles), measured under different experimental conditions [24]. (b) Temperature dependence of the neutron intensity at the odd wave vector $(-0.62, -0.62, 5.4)$ and at $E = 54$ meV.

details aside, it is interesting to note that the energies of even and odd resonance peaks deviate by ± 6 meV from 47 meV, the resonance peak energy of the monolayer system $Tl_2Ba_2CuO_{6+\delta}$ [2] at optimal doping. This splitting can be understood as a consequence of the interlayer AF exchange coupling within a bilayer unit, which is known to be of similar magnitude ($J_{\perp} \sim 10$ meV) [29].

Surprisingly, the survey of the magnetic spectrum in the energy range 50–60 meV has uncovered another set of excitations [Fig. 2(a)] distinct from the commensurate even mode. Constant-energy scans show clear symmetric incommensurate magnetic excitations at $Q_{IC} = (-0.5 \pm \delta, -0.5 \pm \delta, L)$ with $\delta = 0.12$ r.l.u., both in the odd channel at $L = 5.2, 5.4$ [Fig. 2(a)]. The temperature dependence of the incommensurate (IC) peak intensity at $Q_{IC} = (-0.62, -0.62, 5.4)$ and 54 meV displays a marked decrease when the temperature is raised above T_c [Fig. 3(b)], as previously reported for both odd and even resonance peaks [Fig. 3(a)]. In addition, the IC peak intensity decreases along c^* following $f^2(Q)$ (not shown), as expected for a magnetic signal. A detailed analysis shows that these incommensurate excitations exhibit predominantly an odd symmetry. The intensity of the IC spin fluctuations passes through a maximum around 54 meV, where it reaches about 1/7 of the odd resonance intensity [Fig. 2(a)]. In the energy range from ~ 50 meV to ~ 60 meV, the position of the IC peaks, $\delta \approx 0.12$ r.l.u., is energy independent within the error and the IC peaks are symmetric on both sides of Q_{AF} , in contrast to the resolution focusing effect observed at 45 meV [Fig. 2(a)]. Interestingly, the IC intensity drops around 49 meV separating both behaviors.

Additional measurements (with a PG002 monochromator) have been performed at 54 meV in the $(H, K, -1.7)$ plane to access to the magnetic in-plane spatial geometry

[Fig. 2(b)]: the wave vector, where the IC peaks occur, is anisotropic, being slightly larger along the diagonal direction (the isotropic behavior is shown by a dashed circle in the Fig. 2(b) inset). However, a noticeable larger intensity along the principal direction (100 or 010) is observed rather than along the diagonal direction (110). This contrasts with the recent measurements in deeply underdoped $YBCO_{6.6}$ [30] or in non-superconducting $La_{1.875}Ba_{0.125}CuO_4$ [31] where the opposite trend was reported at high energy.

Figure 4(a) provides a synopsis of all spin excitation branches revealed in this study. The figure suggests that the high-energy IC excitation branch is a continuation of the upper dispersion branch emanating from the odd resonance at 41 meV. However, the data of Fig. 2 demonstrate that the intensity along this branch is dramatically reduced around 49 meV and $\delta \sim 0.1 - 0.11$. This “dark region” is marked by the hatched area in Fig. 4(a). It had been noticed before that the lower excitation branch emanating from 41 meV also fades out rapidly as it approaches $\delta \sim 0.1$ [24]. Interestingly, therefore, the spin fluctuation intensity is very weak in a narrow “silent band” around $\delta \sim 0.1 - 0.11$ over the entire energy range [Fig. 4(a)].

We will argue now that the presence of “silent bands,” the upper cutoff of the IC spin excitations, and the intensity ratio of odd and even modes can be understood by considering the shape of the electron-hole spin-flip continuum of a d -wave superconductor. To illustrate this

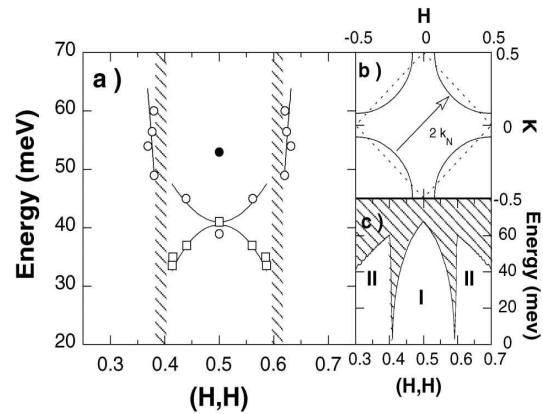


FIG. 4. (a) Energy distribution of the resonant spin excitations along the (110) direction: open (full) circles stand for excitation with odd (even) symmetry (from Fig. 2). The downward dispersion observed in [24] is reproduced, assuming it is isotropic (open squares). The vertical hatched areas indicate the locus of the silent band described in the text. (b) Typical Fermi surface measured by ARPES in BSCO [12,32]. (c) Electron-hole spin-flip continuum along the (110) direction of a d -wave superconductor with a maximum superconducting gap of 35 meV. The continuum goes to zero energy for $2k_N = (0.5 \pm \delta, 0.5 \pm \delta)$ with $\delta \approx 0.11$ r.l.u. joining the nodal points at the Fermi surface [arrow in (b)].

point, Fig. 4(c) displays the SC d -wave continuum along the (110) direction for the Fermi surface shown in Fig. 4(b). Realistic calculations show that collective modes within the continuum or the continuum itself are likely too weak to be directly observed by inelastic neutron scattering experiments. Therefore, only collective modes located below the e - h continuum can actually be detected. The continuum threshold exhibits a steep minimum in the vicinity of the wave vector $2k_N$ corresponding to scattering between nodes of the d -wave gap function [Fig. 4(b)]. This provides a natural explanation for the silent bands of Fig. 4(a).

In the same picture, the high-energy IC excitations can be understood as collective modes in zone II of the gap in the electron-hole spin-flip continuum, whereas the odd and even excitation branches emanating from Q_{AF} are collective states in zone I. The upper cutoff of the IC excitation branch can then be identified with the energy threshold, $\hbar\omega_c$, of the continuum in zone II. An upper cutoff of 60 meV is well reproduced by assuming a maximum superconducting gap of 35 meV [Fig. 4(c)], consistent with the gap values extracted from ARPES and Raman scattering measurements around optimum doping. As discussed in Refs. [15,26], an independent estimate of the continuum threshold in zone I can be obtained through the intensity ratio of the odd and even modes at Q_{AF} . In theories according to which the resonant spin excitations correspond to collective $S = 1$ modes pulled below the continuum by antiferromagnetic interactions, the spectral weights of the resonant modes are approximately proportional to their binding energies, $\hbar\omega_c - E_r^e$ and $\hbar\omega_c - E_r^o$. Depending whether energy-integrated intensities or peak intensities are compared, the spectral weight ratio is either 3 or 6, yielding $\hbar\omega_c = 66$ meV and 55 meV, respectively. Figure 4(c) shows that the estimate $\hbar\omega_c$ obtained in this way is in good agreement with that from the high-energy IC excitations discussed above.

In conclusion, our inelastic neutron scattering experiment in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$ has uncovered a commensurate magnetic resonance peak of even symmetry at 53 meV; its intensity is 6 times weaker than the well-known odd mode at 41 meV. Further, we have found high-energy spin excitations with a weakly energy-dependent incommensurability, separated by a silent band from the 41 meV mode. The silent band and other features of the spin excitation spectrum can be understood as fingerprints of the interaction of collective spin excitations with electron-hole excitations. They can thus be regarded as counterparts of the self-energy effects of charged quasiparticles revealed in various spectroscopies [7–11]. A quantitative description of the excitation spectrum of Fig. 4(a) is a challenge for both itinerant and local-moment theories of magnetic excitations in the cuprates.

This work was supported in part by the Deutsche Forschungsgemeinschaft, Grant No. KE923/1-2 in the

consortium FOR538.

*To whom correspondence should be addressed; E-mail: bourges@bali.saclay.cea.fr

- [1] For a recent review: Y. Sidis *et al.*, Phys. Status Solidi B **241**, 1204, (2004).
- [2] H. F. He *et al.*, Science **295**, 1045 (2002).
- [3] J. Rossat-Mignod *et al.*, Physica C (Amsterdam) **185-189**, 86 (1991); H. A. Mook *et al.*, Phys. Rev. Lett. **70**, 3490 (1993); H. F. Fong *et al.*, Phys. Rev. B **54**, 6708 (1996).
- [4] H. F. Fong *et al.*, Phys. Rev. B **61**, 14773 (2000).
- [5] P. Dai *et al.*, Phys. Rev. B **63**, 054525 (2001).
- [6] H. F. Fong *et al.*, Nature (London) **398**, 588 (1999).
- [7] A. Kaminski *et al.*, Phys. Rev. Lett. **86**, 1070 (2001); P. Johnson *et al.*, Phys. Rev. Lett. **87**, 177007 (2001); S. V. Borisenko *et al.*, Phys. Rev. Lett. **90**, 207001 (2003).
- [8] J. P. Carbotte *et al.*, Nature (London) **401**, 304 (1999); J. Hwang, T. Timusk, G. D. Gu, Nature (London) **427**, 714 (2004).
- [9] J. F. Zasadzinski *et al.*, Phys. Rev. Lett. **87**, 067005 (2001), and references therein.
- [10] A. Abanov *et al.*, Phys. Rev. Lett. **89**, 177002 (2002).
- [11] M. Eschrig and M. R. Norman, Phys. Rev. Lett. **89**, 277005 (2002).
- [12] M. R. Norman Phys. Rev. B **63**, R092509 (2001).
- [13] D. van der Marel, Phys. Rev. B **51**, 1147 (1995).
- [14] D. Z. Liu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **75**, 4130 (1995).
- [15] A. J. Millis and H. Monien, Phys. Rev. B **54**, 16172 (1996).
- [16] F. Onufrieva and P. Pfeuty, Phys. Rev. B **65**, 054515 (2002).
- [17] I. Eremin *et al.*, Phys. Rev. B **69**, 094517 (2004).
- [18] D. K. Morr and D. Pines, Phys. Rev. Lett. **81**, 1086 (1998).
- [19] E. Demler and S. C. Zhang, Phys. Rev. Lett. **75**, 4126 (1995).
- [20] S. Sachdev *et al.*, Science **286**, 2479 (1999).
- [21] N. Hasselmann *et al.*, Phys. Rev. Lett. **82**, 2135 (1999).
- [22] C. D. Batista *et al.*, Phys. Rev. B **65**, 180402 (2002).
- [23] F. Krüger and S. Scheidl, Phys. Rev. B **67**, 134512 (2003); **70**, 064421 (2004).
- [24] P. Bourges *et al.*, Science **288**, 1234 (2000).
- [25] D. Reznik *et al.*, Phys. Rev. Lett. **93** (2004) (to be published).
- [26] S. Pailhès *et al.*, Phys. Rev. Lett. **91**, 237002 (2003).
- [27] As previously reported [24], magnetic excitations, broad in both momentum and energy, are observed in the normal state in that sample. Following the standard technique, we perform a difference of the neutron intensity between ~ 12 K and ~ 100 K in order to identify the resonant magnetic excitations.
- [28] The downward (–) and upward (+) dispersions can be modeled by the relation: $E_{\pm} = \sqrt{(E_r^o)^2 \pm (\alpha_{\pm}q)^2}$ with $E_r = 40.5$ meV, $\alpha_{-} \approx 125$ meV.Å, and $\alpha_{+} \approx 110$ meV.Å.
- [29] D. Reznik *et al.*, Phys. Rev. B **53**, R14741 (1996).
- [30] S. M. Hayden *et al.*, Nature (London) **429**, 531 (2004).
- [31] J. M. Tranquada *et al.*, Nature (London) **429**, 534 (2004).
- [32] A. A. Kordyuk *et al.*, Phys. Rev. B **67**, R064504 (2003).

energetic, finding an inferred afterglow energy of $E_{AG} \approx 1.7 \times 10^{49}$ erg. The circumburst particle density, $n \approx 0.6 \text{ cm}^{-3}$, is not atypical of that inferred¹⁷ for other GRBs. The blastwave is expected to become²¹ non-relativistic on a timescale $t_{NR} \approx 34(E_{AG,50}/n_0)^{1/3}$ d, where we adopt the notation $q \equiv 10^x q_x$. The observational signatures²² of this transition, a steeper decay of the spectral peak frequency ($\nu_m \propto t^{-1.5} \rightarrow t^{-3}$) and an increase in the spectral peak flux ($F_{\nu_m} \propto t^0 \rightarrow t^{3/5}$) are consistent with the data (Fig. 1).

Here we use E_{AG} to denote the kinetic energy remaining in the blast wave after the prompt γ -ray energy release. In turn, the γ -ray emission arises from ultra-relativistic (bulk Lorentz factor $\Gamma \gtrsim 100$) ejecta within the blastwave. Thus, a more complete picture of the explosion energy is visualized through a two-dimensional plot of $E_{\text{prompt}} - E_{\text{peak}}$ relation²³ with respect to cosmological ('classical') bursts; and (4) are outliers in the luminosity–spectral lag relation⁹. This discussion motivates the question: How are these two events related to cosmological GRBs?

The two nearest events, GRBs 031203 and 980425, are clearly sub-energetic outliers in Fig. 2. Furthermore, we note several additional similarities: GRBs 031203 and 980425 (1) show no evidence for jets³; (2) possess simple γ -ray light curves^{1,7}, (3) violate⁷ the $E_{\text{prompt}} - E_{\text{peak}}$ relation²³ with respect to cosmological ('classical') bursts; and (4) are outliers in the luminosity–spectral lag relation⁹. This discussion motivates the question: How are these two events related to cosmological GRBs?

It has been suggested (see, for example, ref. 24) that all GRB explosions have the same energetics and explosion geometry. In this framework, sub-energetic bursts are simply events viewed away from the jet axis. Such bursts should have a soft E_{peak} and also exhibit a rise in the inferred E_{AG} as shocked ejecta eventually come into our line of sight. For GRB 031203, $E_{\text{peak}} > 190 \text{ keV}$ (ref. 7), comparable to cosmological GRBs for which we have observational evidence favouring an on-axis viewing angle. Moreover, we see no evidence for an increase in E_{AG} during the timescale of the radio observation (~ 150 d). Similarly, there is no evidence that E_{AG} is increasing for GRB 980425, despite dedicated radio monitoring²⁵ of the source since 1998. With no indication of their being off-axis explosions, we at present conclude that GRBs 031203 and 980425 are intrinsically sub-energetic events.

Astronomers have had to wait six years to discover a sub-energetic event similar to GRB 980425, despite a large population of such events (as implied by their proximity). The bulk of the population has escaped our attention owing to their faint γ -ray and afterglow emission, which challenge our current detection limits. The Swift satellite mission, with its higher γ -ray sensitivity (compared to current missions) and improved localization capability (enabling rapid identification of afterglow counterparts), is expected to revolutionize our understanding of cosmic explosions. □

Received 25 March; accepted 15 June 2004; doi:10.1038/nature02757.

1. Pain, E. *et al.* BEPOSAX observations of GRB 980425: Detection of the prompt event and monitoring of the error box. *Astrophys. J.* **536**, 778–787 (2000).
2. Galama, T. J. *et al.* An unusual supernova in the error box of the gamma-ray burst of 25 April 1998. *Nature* **395**, 670–672 (1998).
3. Kulkarni, S. R. *et al.* Radio emission from the unusual supernova 1998bw and its association with the gamma-ray burst of 25 April 1998. *Nature* **395**, 663–669 (1998).
4. Li, Z. & Chevalier, R. A. Radio supernova SN 1998BW and its relation to GRB 980425. *Astrophys. J.* **526**, 716–726 (1999).
5. Gotz, D., Merghetti, S., Beck, M., Borkowski, J. & Mowlavi, N. GRB 031203: a long GRB detected with INTEGRAL. *GRB Circ. Netw.* **2459** (2003).
6. Prochaska, J. X. *et al.* The host galaxy of GRB 031203: Implications of its low metallicity, low redshift, and starburst nature. *Astrophys. J.* (submitted).
7. Sazonov, S. Y., Lutoninoy, A. A. & Sunyaev, R. A. An apparently normal gamma-ray burst with an unusually low luminosity. *Nature* doi:10.1038/nature02748 (this issue).
8. Bloom, J. S. *et al.* Expected characteristics of the subclass of supernova gamma-ray bursts. *Astrophys. J.* **506**, L105–L108 (1998).
9. Norris, J. P. Implications of the lag–luminosity relationship for unified gamma-ray burst paradigms. *Astrophys. J.* **579**, 386–403 (2002).
10. Santos-Lleo, M., Calderon, P. & Gotz, D. GRB 031203 XMM-Newton observation. *GRB Circ. Netw.* **2464** (2003).
11. Watson, D. *et al.* A very low luminosity X-ray flash: XMM-Newton observations of GRB 031203. *Astrophys. J. Lett.* **605**, L101–L104 (2004).
12. Rodriguez-Pascual, P., Santos-Lleo, M., Gonzalez-Riestra, R., Scharlet, N. & Altieri, B. XMM-Newton observation of GRB031203. *GRB Circ. Netw.* **2474** (2003).

13. Gal-Yam, A. The near infra-red light curve of SN 2003bw, associated with GRB 031203. *Astrophys. J.* **609**, L59–L62 (2004).
14. Vanderspeks, R. *et al.* Here observations of the gamma-ray burst GRB030329: Evidence for an underlying soft x-ray component. Preprint astro-ph/0401311 at (<http://xxx.lanl.gov>) (2004).
15. Berger, E., Kulkarni, S. R. & Frail, D. A. A standard kinetic energy reservoir in gamma-ray burst afterglows. *Astrophys. J.* **590**, 379–385 (2003).
16. Frail, D. A., Kulkarni, S. R., Berger, E. & Wieringa, M. H. A complete catalog of radio afterglows: The first five years. *Astron. J.* **125**, 2299–2306 (2003).
17. Panaitescu, A. & Kumar, P. Properties of relativistic jets in gamma-ray burst afterglows. *Astrophys. J.* **571**, 779–789 (2002).
18. Sari, R., Piran, T. & Narayan, R. Spectra and light curves of gamma-ray burst afterglows. *Astrophys. J.* **497**, L17–L20 (1998).
19. Granot, J. & Sari, R. The shape of spectral breaks in gamma-ray burst afterglows. *Astrophys. J.* **586**, 820–829 (2002).
20. Frail, D. A. *et al.* Beaming in gamma-ray bursts: Evidence for a standard energy reservoir. *Astrophys. J.* **562**, L55–L58 (2001).
21. Waxman, E. The nature of GRB980425 and the search for off-axis GRB signatures in nearby type Ib/c supernovae emission. *Astrophys. J.* **602**, 886–891 (2004).
22. Frail, D. A., Waxman, E. & Kulkarni, S. R. A 450 day light curve of the radio afterglow of GRB 970508: Fireball calorimetry. *Astrophys. J.* **537**, 191–204 (2000).
23. Amati, L. *et al.* Intrinsic spectra and energetics of BeppoSAX gamma-ray bursts with known redshifts. *Nature* **426**, 81–89 (2002).
24. Nakamura, T., Mazzali, P. A., Nomoto, K. & Iwamoto, K. Light curve and spectral models for the hypernova SN 1998BW associated with GRB 980425. *Astrophys. J.* **550**, 991–999 (2001).
25. Soderberg, A. M., Frail, D. A. & Wieringa, M. A. Severe constraints on off-axis GRB jets in type Ib/c supernovae from late-time radio observations. *Astrophys. J.* **607**, L13–L16 (2004).
26. Bloom, J. S., Frail, D. A. & Kulkarni, S. R. Gamma-ray burst energetics and the gamma-ray burst Hubble diagram: Promises and limitations. *Astrophys. J.* **594**, 674–683 (2003).
27. Berger, E. *et al.* A common origin for cosmic explosions inferred from calorimetry of GRB030329. *Nature* **426**, 154–157 (2003).
28. Soderberg, A. M. *et al.* A redshift determination for XRF 020903: First spectroscopic observations of an X-ray flash. *Astrophys. J.* **606**, 994–999 (2004).
29. Berger, E., Kulkarni, S. R., Frail, D. A. & Soderberg, A. M. A radio survey of type Ib and Ic supernovae: Searching for engine-driven supernovae. *Astrophys. J.* **599**, 408–418 (2003).

Acknowledgements GRB research at Caltech is supported in part by NSF and NASA. We are indebted to S. Barthelmy and the GCN. The VLA is operated by the National Radio Astronomy Observatory, a facility of the National Science Foundation operated under cooperative agreement by Associated Universities, Inc. A.M.S. is supported by a NSF graduate research fellowship. A.G. acknowledges support by NASA through a Hubble fellowship grant.

Competing interests statement The authors declare that they have no competing financial interests.

Correspondence and requests for materials should be addressed to A.M.S. (ams@astro.caltech.edu).

Two-dimensional geometry of spin excitations in the high-transition-temperature superconductor $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$

V. Hinkov¹, S. Pailhès², P. Bourges², Y. Sidis², A. Ivanov³, A. Kulakov¹, C. T. Lin¹, D. P. Chen¹, C. Bernhard¹ & B. Keimer¹

¹Max-Planck-Institut für Festkörperforschung, 70569 Stuttgart, Germany
²Laboratoire Léon Brillouin, CEA-CNRS, CE-Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, France
³Institut Laue-Langevin, 156X, 38042 Grenoble cedex 9, France

The fundamental building block of the copper oxide superconductors is a Cu_4O_4 square plaquette. The plaquettes in most of these materials are slightly distorted to form a rectangular lattice, for which an influential theory predicts that high-transition-temperature (high- T_c) superconductivity is nucleated in ‘stripes’ aligned along one of the axes^{1–3}. This theory received strong support from experiments that indicated a one-dimensional character for the magnetic excitations in the high- T_c material $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$ (ref. 4). Here we report neutron scattering data on ‘untwinned’ $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ crystals, in which the orientation of the rectangular lattice is maintained throughout the entire

volume. Contrary to the earlier claim⁴, we demonstrate that the geometry of the magnetic fluctuations is two-dimensional. Rigid stripe arrays therefore appear to be ruled out over a wide range of doping levels in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ but the data may be consistent with liquid-crystalline stripe order⁵. The debate about stripes has therefore been reopened.

Inelastic neutron scattering data can pinpoint the theoretically predicted stripe phases by virtue of their characteristic quasi-one-dimensional spin excitations⁶. Spin excitations incommensurate with the crystal lattice have indeed been observed by neutron scattering in several families of layered copper oxides^{4,7–12}. However, almost all neutron experiments thus far reported have been carried out on fully ‘twinned’ crystals with equal proportions of micrometre-scale twin domains in which the rectangular Cu_4O_4 plaquettes are rotated by 90° with respect to one another^{7–11}. Because the scattering pattern from such crystals consists of equal contributions from both twin domains, even perfectly one-dimensional spin fluctuations generate a fourfold symmetric pattern, so that they cannot be discriminated from microscopically two-dimensional fluctuations. The results of two neutron scattering experiments on partially detwinned $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ crystals^{4,12} have been interpreted as evidence of a one-dimensional character of the magnetic fluctuations^{4,12–14}. However, owing to significant contributions from the minority domain, the full geometry of the excitation spectrum has remained unclear.

Using neutron scattering from a mosaic of fully untwinned, nearly optimally doped $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$ crystals (see Methods) we have resolved this issue. We find that the locus of maximum spin fluctuation spectral weight approximately forms a circle in momentum space, so that the basic character of the spin excitations is two-dimensional. However, the damping and amplitude along the circle are modulated in a one-dimensional fashion. The strength of this modulation depends strongly on the excitation energy. Data from underdoped, untwinned $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$ crystals exhibit similar features.

Scans through the (200) and (020) Bragg reflections of the $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$ array reveal a bulk population ratio between majority

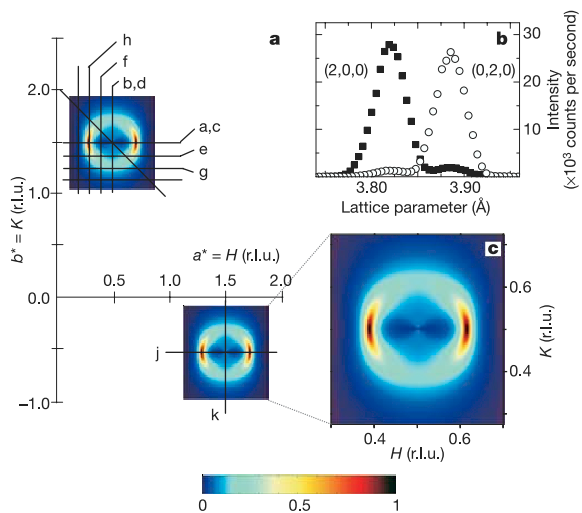


Figure 1 Layout of the reciprocal lattice and magnetic spectral weight of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$. **a**, In-plane projection of the $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$ reciprocal lattice indicating the trajectories of the constant-energy scans shown in Fig. 2. The representation is not true to scale. **b**, Longitudinal elastic scans through the (2, 0, 0) and (0, 2, 0) crystallographic Bragg reflections, demonstrating a twin domain population ratio of $\sim 95:5$. **c**, Intrinsic magnetic spectral weight at 35 meV extracted from the analysis presented in the Supplementary Information.

and minority twin domains of about 95:5 (Fig. 1b and Methods). This is one order of magnitude larger than in previous experiments^{4,12}. The contribution of the minority domain to the magnetic scattering pattern is thus negligible in our experiments.

Figures 2 and 3 show magnetic neutron scattering data from this crystal array. The overall features of the neutron cross-section are in good agreement with prior work on twinned crystals^{7,9–11}. Owing to antiferromagnetic (AF) correlations between spins in the CuO_2 plane, the spectral weight of low-energy spin excitations in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ is centred around the in-plane wave vector $\mathbf{Q}_{\text{AF}} = (0.5, 1.5)$. As a consequence of antiferromagnetic interactions within a bilayer unit, the magnetic intensity is modulated as a function of the c -axis wave vector transfer, L , such that the maximum intensity is observed at odd multiples of $L = 1.7$. The characteristic L -dependence of the intensity implies that the signal originates from the CuO_2 planes. As observed before, the magnetic excitations are strongly enhanced below the superconducting transition temperature. For excitation energies below the ‘spin gap’, $\hbar\omega_g = 30$ meV, the magnetic spectral weight is below the detection limit. The lowest-energy excitations observed above $\hbar\omega_g$ are incommensurate (Fig. 2). The incommensurate excitation branches disperse towards \mathbf{Q}_{AF} with increasing excitation energy (Fig. 3), and they merge at $\hbar\omega_0 = 41$ meV, giving rise to the ‘resonance peak’.

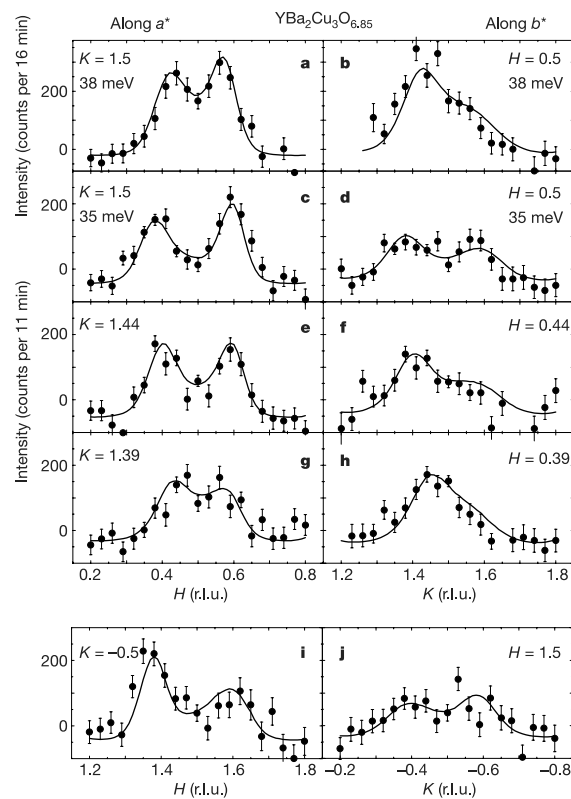


Figure 2 Constant-energy scans along the trajectories indicated in Fig. 1a. The excitation energies are $\hbar\omega = 38$ meV (**a, b**) and 35 meV (**c–j**). The wave vector $\mathbf{Q} = (H, K, 1.7)$ is given in reciprocal lattice units, r.l.u. (see Methods). We show subtractions of the intensities at $T = 10\text{K} (< T_c)$ and $T = 100\text{K} (> T_c)$. The lines result from a convolution of a model cross-section with the instrumental resolution function (see Methods). The data in panels **c, d** and **i, j** were taken in two different Brillouin zones with exchanged resolution conditions. The observed anisotropy between a^* and b^* is thus not due to resolution effects. The error bars represent the square root of the number of detector counts.

The new aspect of this work is the determination of the in-plane geometry of the spin excitations. Figure 2c–j shows representative scans from a comprehensive map of the spin fluctuation spectral weight at $\hbar\omega = 35$ meV. More limited data sets were also taken at $\hbar\omega = 31, 33$ and 37 (not shown), and 38 meV (Fig. 2a, b). To extract the magnetic spectral weight from the experimentally determined scattering profiles, we have numerically convoluted an anisotropic damped harmonic oscillator cross-section with the spectrometer resolution function (see Supplementary Information). The computed profiles, shown as solid lines in Figs 2 and 3, provide excellent descriptions of the experimental data. The intrinsic magnetic spectral weight at 35 meV extracted from this analysis is depicted in Fig. 1c.

We emphasize two salient features of the magnetic spectrum of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$. The most important observation is that well-defined incommensurate peaks are present in scans along both a^* and b^* (Fig. 2a–d). This demonstrates the intrinsic two-dimensional nature of the spin excitations. The displacements from the commensurate wave vector \mathbf{Q}_{AF} along a^* and b^* are identical within an experimental error of 15% at all energies covered by our experiment. The locus of maximum magnetic intensity approximately forms a circle around \mathbf{Q}_{AF} , following an isotropic dispersion relation $\omega_{\mathbf{Q}} = \omega_0 - c(\mathbf{Q} - \mathbf{Q}_{\text{AF}})^2$ with parameters $\hbar\omega_0 = 41 \pm 1$ meV and $\hbar c = (180 \pm 30) \text{ meV}\text{\AA}^2$ for all energies.

Second, both the amplitude and the width of the incommensurate peaks exhibit pronounced in-plane anisotropies (Fig. 1c), which are strongly energy-dependent. At $\hbar\omega = 35$ meV, for instance, the scans along a^* (Fig. 2c) are resolution-limited, but those along b^* (Fig. 2d) are much broader. However, the $|\mathbf{Q}|$ -integrated spectral weights along a^* and b^* differ by at most 40%. At $\hbar\omega = 38$ meV, the width anisotropy is significantly smaller than at 35 meV (Fig. 2a, b), and the $|\mathbf{Q}|$ -integrated intensities along a^* and b^* are identical to within 15%.

To check the generality of our findings, we have repeated our experiment on an array of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$ crystals ($T_c = 61$ K) with a 94:6 detwinning ratio. Representative data are shown in Fig. 4. In accord with prior work on twinned crystals^{7,9,12}, the resonance peak is observed at a lower energy, $\hbar\omega_0 = 37.5$ meV, than at optimum

doping. The salient features of the incommensurate excitations below $\hbar\omega_0$ are, however, quite similar. Specifically, incommensurate peaks are observed along both a^* and b^* at all energies monitored in our experiment, so that the geometry of the excitation spectrum is two-dimensional. The amplitude and width anisotropy is comparable to that at optimum doping, and it exhibits the same increase with decreasing energy. Even at 28 meV, that is, 10 meV below the resonance peak, the $|\mathbf{Q}|$ -integrated spectral weights along a^* and b^* differ by at most 50%. The only significant difference is that the dispersion relation is somewhat steeper along b^* than along a^* , whereas it is isotropic at optimum doping.

An anisotropy of the magnetic signal along a^* and b^* was first pointed out by Mook *et al.*⁴ for a $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$ crystal with a detwinning ratio of 2:1. From a limited data set at a single energy, they deduced a 100% intensity difference between the two directions and interpreted their data as evidence of a one-dimensional spin fluctuation geometry. Using an analysis of a large set of data between $\hbar\omega_g$ and $\hbar\omega_0$, we have now, however, demonstrated that the low-energy spin excitations of both underdoped and optimally doped $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ have a two-dimensional geometry. Which models can describe the observed one-dimensional amplitude and width anisotropy?

Theories based on a one-dimensional, rigid array of stripes predict a 100% intensity anisotropy and cannot account for the two-dimensional scattering pattern^{13,14}. The map of the magnetic intensity at 35 meV does, however, bear a resemblance to the scattering pattern generated by a nematic liquid crystal close to a nematic-to-smectic critical point. In this scenario, the structural anisotropy between the a and b axes may act as an aligning field for the nematic director⁶. A preferential alignment of charge stripes along b would enhance the magnetic spectral weight along a . However, detailed theoretical work is required to ascertain whether the observed scattering pattern is indeed a unique signature of a quantum fluid of fluctuating stripes. A theoretical description in this framework should also account for the observed energy dependence of the anisotropy. An alternative approach would be to consider a two-dimensional arrangement of charged domain walls¹⁵.

In the absence of experimental information about the in-plane

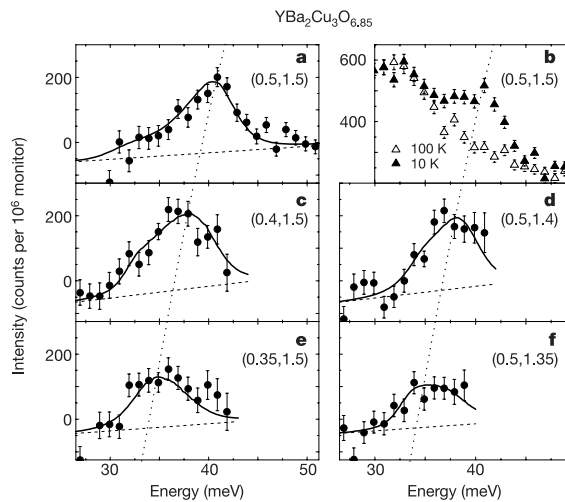


Figure 3 Constant- \mathbf{Q} scans demonstrating the dispersion of the magnetic mode along a^* (a, c, e) and b^* (b, d, f). Panel b shows raw data above and below T_c . The remaining panels show subtractions of the intensities at $T = 10$ K ($< T_c$) and $T = 100$ K ($> T_c$). The solid lines result from a numerical convolution of a model cross-section with the instrumental resolution function (see Methods). The dashed lines show the slightly energy-dependent background due to the thermal population of phonon excitations. The error bars represent the square root of the number of detector counts.

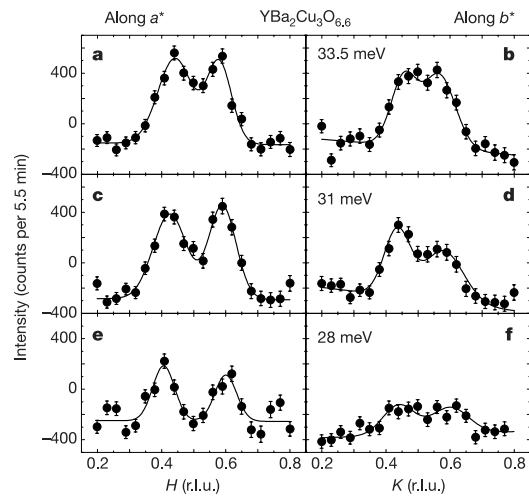


Figure 4 Constant-energy scans for $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$. They were performed along a^* at $\mathbf{Q} = (H, -1.5, 1.7)$ (a, c, e) and along b^* at $\mathbf{Q} = (1.5, K, 1.7)$ (b, d, f), at different energies $\hbar\omega$. The plots show subtractions of the intensities at $T = 5$ K and $T = 250$ K. The lines are double Gaussians fitted to the data. The resolution conditions were identical for measurements along a^* and b^* , so that the scans are directly comparable. The error bars represent the square root of the number of detector counts.

anisotropy, prior Fermi-liquid-based theoretical scenarios for the spin dynamics of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ had only considered the influence of the CuO_2 layers, ignoring a possible influence of the b -axis-oriented CuO chains^{16,17}. On the basis of the observed c -axis modulation of the intensity, we can rule out a direct contribution from the CuO chains to the observed magnetic signal. However, an indirect influence of the CuO chains on the spin dynamics in the layers cannot be excluded. The plane-derived Fermi surfaces are predicted to exhibit a small in-plane anisotropy owing to the hybridization between orbitals centred on chains and layers and the different in-plane Cu–O bond lengths along a and b ¹⁸. Further, nuclear quadrupole resonance experiments¹⁹ show that charge-density waves in the CuO chains may induce a charge modulation in the CuO_2 layers, and X-ray scattering experiments²⁰ indicate a polarization of Cu orbitals in the CuO_2 layers that is due to oxygen ordering in the chain layers. The impact of these factors on the spin dynamics will have to be assessed in quantitative calculations. Other factors, such as proximity to a ‘Pomeranchuk’ instability of the Fermi surface^{21–23}, may also contribute to the anisotropy of the spin dynamics. The observed in-plane anisotropy of the superconducting energy gap imposes further constraints on the theory^{24,25}.

In conclusion, our data put stringent, quantitative constraints on stripe theories of high- T_c superconductivity. They rule out a large class of theories according to which high- T_c superconductivity coexists with a rigid array of stripes, over a wide range of hole concentrations encompassing the 60 and 90 K superconducting phases of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$. If interpreted as evidence of the theoretically predicted liquid-crystalline stripe phases, they quantify the orientational stripe fluctuations. □

Methods

Sample preparation

High-quality, single-phase $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ crystals were synthesized by the solution growth method and cut into rectangular shapes. For the nearly optimally doped sample, 82 crystals with a total mass of ~1.3 g were annealed at 520 °C in O_2 , resulting in an oxygen content of $x \approx 0.85$. The crystals were individually detwinned by subjecting them to a uniaxial mechanical stress of $\sim 5 \times 10^7 \text{ N m}^{-2}$ along the (100) axis at 520 °C in flowing oxygen for at least 4 h (refs 26, 27). The resulting specimens show superconducting transition temperatures, T_c , of 90 K with ΔT_c between 1 and 3 K. They were then co-aligned on two Al plates into which a dense grid of holes had been drilled. By using thin Al wire to fix the crystals to the grid, it proved possible largely to avoid organic glue, and hence substantially to reduce the background signal due to incoherent neutron scattering from hydrogen. The full array shows a mosaicity of $< 1.2^\circ$ and is almost entirely untwinned (Fig. 1b). The underdoped sample consists of 120 crystals with a total mass of ~2 g. After annealing at 590 °C in air and detwining at 400 °C in Ar, these specimens show a T_c of 61 K with ΔT_c between 1 and 2 K. They were co-aligned on two Al plates and fixed by Al screws, thus completely avoiding organic glue. The mosaicity is $\sim 1.2^\circ$ and the domain population ratio 94:6.

Neutron scattering

The wave vector $\mathbf{Q} = (H, K, L)$ is quoted in units of the reciprocal lattice vectors a^* , b^* and c^* , where $a = 2\pi/a^* = 3.82 \text{ \AA}$, $b = 2\pi/b^* = 3.88 \text{ \AA}$, and $c = 2\pi/c^* = 11.7 \text{ \AA}$. Because of the slightly different lengths of the lattice parameters a and b in the CuO_2 planes, the (200) and (020) crystallographic Bragg reflections occur at different wave vector transfers \mathbf{Q} . Because neutron scattering is a bulk probe, scans through these reflections directly reveal the bulk population ratio of the two twin domains, as shown in Fig. 1b.

The data for nearly optimally doped $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8.85}$ were collected on the 2T triple-axis spectrometer at the Laboratoire Léon Brillouin (LLB), Saclay, France. Because of kinematical restrictions, the scans were carried out in the second Brillouin zone (Fig. 1a). A specially designed holder was used, which enabled us to access the $P_+ = \{(1, 0, 0); (0, 3, 3, 4)\}$ scattering plane as well as the complementary $P_- = \{(0, -1, 0); (3, 0, 3, 4)\}$ plane during the experiment without opening the cooling chamber. This change between P_+ and P_- is equivalent to a rotation of the resolution ellipsoid by 90° with respect to a^* and b^* and allows a quick check for resolution effects. No collimators were used, in order to maximize the neutron flux. Graphite filters extinguished higher-order contamination of the neutron beam. The data for underdoped $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$ were collected on the IN8 spectrometer at the Institut Laue-Langevin, Grenoble, France. The same holder was employed and the spectrometer was configured in the same way. The final wave vector was fixed to either 2.662 \AA^{-1} (Figs 2, 3c–f, 4) or 3.85 \AA^{-1} (Fig. 3a, b).

Data analysis

Because the magnetic excitations are overdamped at high temperatures, the spin fluctuation contribution to the neutron cross-section is most clearly apparent in temperature subtractions. For $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$ we show subtractions between the intensities

at $T = 10$ and 100 K. For $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$, which exhibits a significant magnetic signal in the normal state above $T_c = 61 \text{ K}$, we show subtractions between $T = 5$ and 250 K. The simplest model consistent with our data consists of an anisotropic damped harmonic oscillator with an isotropic dispersion law, isotropic distribution of the $|Q|$ -integrated intensity, and anisotropic damping parameter in the a^*b^* plane (see Supplementary Information). The computed profiles shown in Figs 2 and 3 are numerical convolutions of this model with the spectrometer resolution function. The numerical resolution convolution was performed with the program Rescal-5 based on the Popovici method²⁸ (see online description under <http://www.ill.fr/tas/matlab/doc/rescal5/rescal.htm>) as well as with in-house programs at LLB.

Received 18 March; accepted 22 June 2004; doi:10.1038/nature02774.

1. Zaanen, J. & Gunnarson, O. Charged magnetic domain lines and the magnetism of high- T_c oxides. *Phys. Rev. B* **40**, 7391–7394 (1989).
2. Emery, V. J. & Kivelson, S. A. Frustrated electronic phase separation and high-temperature superconductors. *Physica C* **209**, 597–621 (1993).
3. Tranquada, J. M., Sternlieb, B. J., Axe, J. D., Nakamura, Y. & Uchida, S. Evidence for stripe correlations of spins and holes in copper oxide superconductors. *Nature* **375**, 561–563 (1995).
4. Mook, H. A., Dai, P., Dogan, F. & Hunt, R. D. One-dimensional nature of the magnetic fluctuations in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$. *Nature* **404**, 729–731 (2000).
5. Kivelson, S. A., Fradkin, E. & Emery, V. J. Electronic liquid-crystal phases of a doped Mott insulator. *Nature* **393**, 550–553 (1998).
6. Kivelson, S. A. *et al.* How to detect fluctuating stripes in the high-temperature superconductors. *Rev. Mod. Phys.* **75**, 1201–1241 (2003).
7. Mook, H. A. *et al.* Spin fluctuations in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$. *Nature* **395**, 580–582 (1998).
8. Yamada, K. *et al.* Doping dependence of the spatially modulated dynamical spin correlations and the superconducting transition temperature in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. *Phys. Rev. B* **57**, 6165–6172 (1998).
9. Arai, M. *et al.* Incommensurate spin dynamics of underdoped superconductor $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.7}$. *Phys. Rev. Lett.* **83**, 608–611 (1999).
10. Bourges, P. *et al.* The spin excitation spectrum in superconducting $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$. *Science* **288**, 1234–1237 (2000).
11. Reznik, D. *et al.* Dispersion of magnetic excitations in superconducting optimally doped $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$. Preprint at (<http://xxxarxiv.org/pdf/cond-mat/0307591>) (2003).
12. Stodt, C. *et al.* Dynamic stripes and resonance in the superconducting and normal phases of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$ ortho-II superconductor. *Phys. Rev. B* **69**, 014502 (2004).
13. Batista, C. D., Ortiz, G. & Balatsky, A. V. Unified description of the resonance peak and incommensuration in high- T_c superconductors. *Phys. Rev. B* **64**, 172508 (2001).
14. Krtiger, F. & Scheidl, S. Spin dynamics of stripes. *Phys. Rev. B* **67**, 134512 (2003).
15. Fine, B. V. Hypothesis of two-dimensional stripe arrangement and its implications for the superconductivity in high- T_c cuprates. Preprint at (<http://xxxarxiv.org/pdf/cond-mat/0308428>) (2003).
16. Brückmann, J. & Lee, P. A. Renormalized mean-field theory of neutron scattering in cuprate superconductors. *Phys. Rev. B* **65**, 014502 (2001).
17. Onufrieva, E. & Pleuty, P. Spin dynamics of a two-dimensional metal in a superconducting state: Application to the high- T_c cuprates. *Phys. Rev. B* **65**, 054515 (2002).
18. Andersen, O. K., Liechtenstein, A. L., Jepsen, O. & Paulsen, E. LDA energy bands, low-energy Hamiltonians, t' , t'' , $t_{\text{hop}}(k)$ and $J_{\text{eff}}(k)$. *J. Phys. Chem. Solids* **56**, 1573–1591 (1995).
19. Grévin, B., Berthier, Y. & Collon, G. In-plane charge modulation below T_c and charge density-wave correlations in the chain layer in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$. *Phys. Rev. Lett.* **85**, 1310–1313 (2000).
20. Feng, D. L. *et al.* Zooming-in on the charge ordering in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$. Preprint at (<http://xxxarxiv.org/pdf/cond-mat/0402488>) (2004).
21. Yamase, H. & Kohno, H. Possible quasi-one-dimensional Fermi surface in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. *J. Phys. Soc. Jpn* **69**, 332–335 (2000).
22. Halboth, C. J. & Metzner, W. D-wave superconductivity and Pomeranchuk instability in the two-dimensional Hubbard model. *Phys. Rev. Lett.* **85**, 5162–5165 (2000).
23. Oganesyan, V., Kivelson, S. A. & Fradkin, E. Quantum theory of a nematic Fermi liquid. *Phys. Rev. B* **64**, 195109 (2001).
24. Limonov, M. B., Rykov, A. I., Tajima, S. & Yamanaka, A. Superconductivity-induced effects on phononic and electronic Raman scattering in twin-free $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$ single crystals. *Phys. Rev. B* **61**, 12412–12419 (2000).
25. Lu, D. H. *et al.* Superconducting gap and strong in-plane anisotropy in untwinned $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$. *Phys. Rev. Lett.* **86**, 4370–4373 (2001).
26. Lin, C. T., Zhou, W. & Liang, W. Y. Growth of large and untwinned single crystals of YBCO. *Physica C* **195**, 291–300 (1992).
27. Voronkova, V. I. & Wolf, T. Thermomechanical detwining of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ single crystals under reduced oxygen partial pressure. *Physica C* **218**, 175–180 (1993).
28. Popovici, M. On the resolution of slow-neutron spectrometers. IV. The triple-axis spectrometer resolution function, spatial effects included. *Acta Crystallogr. A* **31**, 507–513 (1975).

Supplementary Information accompanies the paper on www.nature.com/nature.

Acknowledgements We thank B. Hennion, S. Kivelson, D. Manske, W. Metzner and H. Yamase for discussions, S. Lacher, H. Wendel, B. Baum and M. Bakr for crystal preparation, M. Ohl and W. Plenfer for the design and manufacturing of the sample holder, H. Bender, C. Busch and H. Klamm for technical support, and P. Baroni for technical support at the 2T spectrometer. We acknowledge support from the German Federal Ministry of Culture and Research (BMBF) and from the Deutsche Forschungsgemeinschaft.

Competing interests statement The authors declare that they have no competing financial interests.

Correspondence and requests for materials should be addressed to B.K. (b.keimer@fkfmpg.de).

Supplementary Material

Analysis of Inelastic Neutron Scattering Data of Detwinned YBa₂Cu₃O_{6.85} Within an Anisotropic, Damped Harmonic Oscillator Model

In order to extract the magnetic spectral weight from the experimentally determined scattering profiles, we have numerically convoluted an anisotropic damped harmonic oscillator cross section

$$I(Q, \omega) = I_Q^0 \frac{\omega \gamma_Q}{(\omega^2 - \omega_Q^2)^2 + (\omega \gamma_Q)^2} \quad (1)$$

with the spectrometer resolution function. An *isotropic* dispersion

$$\omega_Q = \omega_0 - c(Q - Q_{AF})^2 \quad \text{with parameters } \hbar\omega_0 = 41 \pm 1 \text{ meV and } \hbar c = (180 \pm 30) \text{ meV}\text{\AA}^2$$

accounts for the locus of incommensurate peaks in momentum space for all energies, in agreement with previous reports for similar doping levels^{1,2}. The observed anisotropy of the amplitude and width can be parameterised as $I_Q^0 = I_0 + \Delta I(\omega)(1 - \cos(2\varphi_Q))/2$ and $\gamma_Q = \gamma_0 + \Delta\gamma(\omega)(1 - \cos(2\varphi_Q))/2$, respectively, where

$\varphi_Q = \arctan[(K - K_{AF})/(H - H_{AF})]$ is the azimuthal angle in the CuO₂ layer.

The constant-energy cuts along a^* ($\varphi_Q = 0$) are resolution limited within the error, so that we can only establish an upper bound of 3 meV on the damping parameter γ_0 . In contrast, the profiles along b^* are significantly broader than the experimental resolution for 35 meV but become sharper with increasing energy (Fig. 2b,d, main text). In the simplest model that agrees with all of our data, the $|Q|$ -integrated intensity is independent of φ_Q , i.e. $\Delta I = 0$ for all energies. The solid lines in Figs. 2 and 3 are results of a numerical convolution of this model with the spectrometer resolution function. The good agreement of the computed profiles with the data confirms the

intrinsic nature of the observed anisotropy. Fig. 1c provides a full representation of the intrinsic magnetic spectral weight at 35 meV resulting from this analysis. The energy evolution of the damping parameter γ along a^* and b^* is shown in Fig. S1. The confidence intervals for γ were established by systematically fitting the data using model cross sections with different anisotropy parameters $\Delta\gamma$ and ΔI . This procedure also yields a lower bound on ΔI of $\Delta I \geq -0.4$ at 35 meV and $\Delta I \geq -0.15$ at 38 meV.

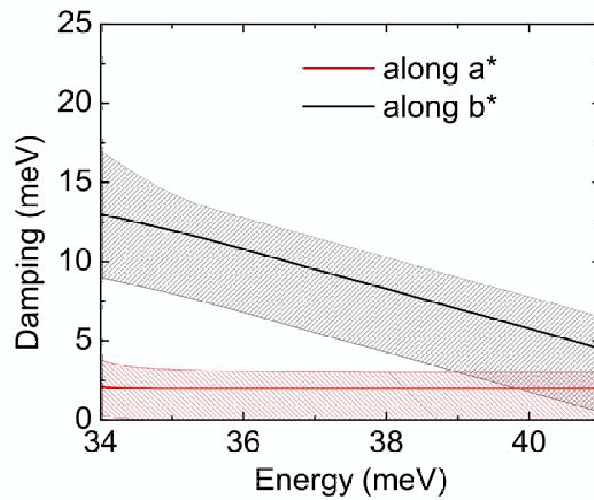


Figure S1 Energy dependence of the damping parameter along a^* and b^* . The shaded area indicates the corresponding confidence intervals.

1. Bourges, P. et al. The spin excitation spectrum in superconducting $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.85}$. *Science* 288, 1234-1237 (2000).
2. Reznik, D. et al. Dispersion of magnetic excitations in superconducting optimally doped $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.95}$. <http://xxx.arxiv.org/pdf/cond-mat/0307591>.

Dynamique de spin dans le composé surdopé $Y_{1-x}Ca_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$: une étude par diffusion inélastique des neutrons

Depuis la découverte des oxydes de cuivre supraconducteurs à haute température critique, leur spectre des excitations magnétiques a fait l'objet d'une intense étude à la recherche de preuve d'un appariement supraconducteur non-conventionnel impliquant des fluctuations antiferromagnétiques. A cet effet, la technique de diffusion inélastiques de neutrons a très largement été utilisée pour de nombreux systèmes. Ce travail de thèse se concentre autour de l'étude de la dynamique de spin dans le système $Y_{1-x}Ca_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ du dopage optimal au régime dit surdopé, dans lequel les fluctuations magnétiques de la phase normales deviennent évanescences. A l'opposé, la dynamique de spin dans l'état supraconducteur est constitué de modes de spin triplet, acoustique et optique, avec une dispersion en forme de X autour du vecteur d'onde antiferromagnétique. Ces modes peuvent être interprétés comme des excitons de spin, induit par les interactions en dessous d'un continuum de Stoner, dont la localisation est à présent accessible. Des changements marqués des excitations magnétiques résonnantes et du gap supraconducteur, mesurés par diffusion Raman électronique, sont observés dans le régime surdopé, suggérant un comportement critique quantique à faible surdopage.

Spin dynamics in an overdoped compound $Y_{1-x}Ca_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$: an inelastic neutron scattering study

Since the discovery of high temperature superconductivity in layered copper oxides, their spin dynamics has been extensively studied, searching for fingerprints of unconventional superconducting pairing involving antiferromagnetic spin fluctuations. In particular, the inelastic neutron scattering technique has been used to probe spin fluctuations in many systems. This thesis focuses on the spin dynamics in $Y_{1-x}Ca_xBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ system from the optimal to the overdoped regimes where normal state spin fluctuations are evanescent. In contrast the spin excitation spectrum, in the superconducting state, still exhibits acoustic and optic resonant spin triplet modes, with an X-shape dispersion around the antiferromagnetic wave vector. These modes can be interpreted as triplet excitons pushed by the antiferromagnetic interaction below a gapped Stoner continuum, whose location becomes experimentally accessible. Marked changes of the resonant spin excitations and the superconducting gap, measured by electronic Raman scattering, are observed in the overdoped regime, pointing towards quantum critical behavior at weak overdoping.

Mots clés :

- Oxyde de cuivre supraconducteur
- supraconductivité haute température critique
- Antiferromagnétisme
- dopage optimum - surdopé
- Fluctuations/correlations magnétiques
- Diffusion inélastique de neutrons
- Diffusion Raman électronique
- Susceptibilité magnétique