

Université de Paris-Sud
Centre d'Orsay

HABILITATION A DIRIGER LES RECHERCHES

Spécialité Sciences Physiques

présentée par

Philippe Bourges

DYNAMIQUE DE SPINS DANS LES OXYDES DE CUIVRE SUPRACONDUCTEURS A HAUTE TEMPÉRATURE CRITIQUE

Soutenue le 8 juillet 2003 devant la commission

Henri Alloul

Claude Berthier

Bernard Hennion

Hélène Raffy

Louis-Pierre Regnault

Chandra Varma

Christian Vettier

Rapporteur

Rapporteur

Rapporteur

A Florence,
A Jules et Louis,

Remerciements

Je tiens, tout d'abord, à remercier les différentes directions, Marianne Lambert, Charles-Henri de Novion et Pierre Monceau, qui se sont succédés au Laboratoire Léon Brillouin qui m'ont toujours soutenu et encouragé dans mon travail. J'ai une pensée particulière pour Jean Rossat-Mignod qui m'a associé à ces recherches sur les supraconducteurs à haute température critique.

Henry Alloul, Bernard Hennion, Hélène Raffy, Louis-Pierre Regnault ont accepté de constituer la commission de cette habilitation et Claude Berthier, Chandra Varma et Christian Vettier ont bien voulu en être les rapporteurs; je leur exprime mes sincères remerciements pour l'intérêt qu'ils ont témoigné à l'égard mon travail.

J'exprime ma gratitude à l'ensemble du groupe 3-axes au laboratoire Léon Brillouin où j'ai pu travailler dans une ambiance conviviale et stimulante. En particulier, j'adresse mes plus vifs remerciements à Bernard Hennion qui m'a toujours soutenu et donné les moyens pour développer mes projets.

Dans l'étude des fluctuations magnétiques sur les oxydes de cuivres supraconducteurs, j'ai travaillé au sein d'un groupe soudé constitué de membres du Laboratoire Léon Brillouin, du CEA-Grenoble (DRFMC), de l'université de Princeton et du Max-Planck Institute à Stuttgart. Je suis reconnaissant à l'ensemble des personnes ayant contribué à cette fructueuse collaboration. Plus particulièrement, je tiens à exprimer ma vive gratitude à Louis-Pierre Regnault et ainsi qu'à Bernhard Keimer qui ont un rôle important dans le développement de ce travail. Enfin, je remercie sincèrement Yvan Sidis qui a une part majeure dans ce mémoire. Nos discussions incessantes, depuis de nombreuses années, ont très certainement eu un impact déterminant sur la compréhension de nos résultats.

Tout au long de cette douzaine d'années, l'ensemble de mon travail s'est nourri de nombreux échanges scientifiques autant que de soutiens amicaux, ou a été rendu possible par l'aide technique que j'ai reçu. Je voudrais ainsi adresser mes remerciements à : Michel Alba, Mattéo d'Astuto, Serge Aubry, Alexander V. Balatsky, Patrick Baroni, Jean-Pierre Beauchef, Jacques Bossy, Lydie Bourgeois, Philippe Boutrouille, Markus Braden, Paul Burllet, Hélène Casalta, Gaston Collin, Janine Etrillard, Hung Fai (Tony) Fong, Pierre Gautier-Picard, Martine Hennion, Joe Hodges, Alexandre Ivanov, Remy Kahn, Francois

Maignen, Jean-Michel Mignot, Isabelle Mirebeau, Hamid Moudden, Fernande Moussa, Laurence Noirez, Flora Onufrieva, Stéphane Pailhès, Daniel Petitgrand, Gérard Pépy, Pierre Pfeuty, Lothar Pintschovius, Marguerite Quilichini, Dmitry Reznik, José Teixeira, John M. Tranquada, Clemens Ulrich.

Enfin, un grand merci à Jules dont les siestes m'ont permis de rédiger cette habilitation au cours de trois étés...

Sommaire

Remerciements	3
Glossaire	7
Préambule	9
Liste de publications	13
Introduction	25
1 Cuprates	27
1.1 Le diagramme de phase des cuprates	27
1.1.1 Comportement non-"liquide de Fermi"	28
1.1.2 Phase de pseudo-gap	29
1.1.3 "Stripes"	31
1.1.4 Gap supraconducteur	31
1.2 Quelle description théorique ?	32
1.2.1 Plan CuO_2	32
1.2.2 Corrélations électroniques: modèle- $t - J$	33
1.2.3 Approches de type "Liquide de Fermi"	34
1.2.4 Le pseudo-gap	35
1.2.5 Mécanismes de la supraconductivité à HTC	36
1.3 Pourquoi les neutrons dans les cuprates	37
2 État supraconducteur: Pic de résonance	41
2.1 Vecteur d'onde Antiferromagnétique	41
2.1.1 Dopage optimal	41
2.1.2 Sous- et Sur-dopage	44
2.1.3 Poids spectral	46
2.1.4 Relation avec la supraconductivité	48
2.2 Effet des impuretés	49
2.3 Dispersion de la résonance	51
2.4 Gap de spin	55
2.5 Effets de cohérences dans l'état supraconducteur	58

2.5.1	Excitation électron-trou à travers du gap supraconducteur	58
2.5.2	Interprétations alternatives	63
2.6	Importance pour le mécanisme ?	65
2.6.1	Impact sur le spectre à une particule	65
2.6.2	Exemple d'UPd ₂ Al ₃	67
2.6.3	Conclusion	67
3	Corrélations magnétiques dans l'état normal	69
3.1	Dépendance en vecteur d'onde	70
3.1.1	Basse énergie : $\hbar\omega < 40 - 50$ meV	70
3.1.2	Relation avec la dispersion de la résonance	73
3.1.3	Relation avec la supraconductivité	75
3.1.4	Haute énergie : $\hbar\omega > 40 - 50$ meV	76
3.2	Dépendance en énergie	79
3.2.1	Susceptibilité au vecteur d'onde AF : $(\pi/a, \pi/a)$	79
3.2.2	Susceptibilité locale	82
3.2.3	Différence avec le pic de résonance	84
3.3	Neutrons et Pseudo-gap	85
3.3.1	Comparaison RMN/neutrons	85
3.3.2	Pseudo-gap: énergie du maximum d' $Im\chi(Q_{AF}, \omega)$	87
3.3.3	Dépendance en température	87
3.4	Poids spectral	89
3.4.1	Dépendance en dopage	89
3.4.2	Valeur absolue	91
3.4.3	Comparaison avec la RMN	93
3.4.4	Poids spectral et Pseudo-gap	98
3.5	Modèles	98
3.5.1	Type "Liquide de Fermi"	99
3.5.2	Liquide antiferromagnétique	101
3.5.3	"Stripes"	103
	Conclusion	105
	Bibliographie	110

YBCO : $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$

LSCO : $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

BSCO : $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$

Tl2201 : $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+\delta}$

ARPES : Photoémission Résolue en Angle (Angle Resolved Photoemission)

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 proche d'un état AF (Nearly Antiferromagnetic Liquid)

OP-SC : Paramètre d'ordre Supraconducteur

RMN : Résonance Magnétique Nucléaire

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

SC : Supraconducteur

Préambule

Mon activité scientifique au cours de mes quinze années de recherche a principalement porté sur les supraconducteurs à haute température critique après une thèse de doctorat sur les instabilités structurales.

Tout d'abord, de 1987 à 1989, j'ai effectué à l'université de Rennes I, sous la direction de Claude Ecolivet, une thèse intitulée: "Étude par diffusion Brillouin, Raman et inélastique de neutrons de la transition structurale de l'anthracène-tétracyanobenzène (A-TCNB)". Cette thèse, soutenue à Rennes le 3 octobre 1989, caractérise la dynamique prétransitionnelle de la transition structurale d'un cristal moléculaire, l'A-TCNB. Dans ce système, la distorsion structurale est due à des effets stériques entraînant à basse température la réorientation de la molécule d'anthracène autour de la direction normale au plan de la molécule. Basée sur trois techniques expérimentales complémentaires, nous avons montré (2,7,42,44) que la dynamique de cette transition était intermédiaire entre une limite displacive, gouvernée par un phonon mou, et une limite ordre-désordre, caractérisée par un phénomène de relaxation critique. Ainsi, sous l'effet d'une pression hydrostatique modeste (inférieure à 3 kbars), la dynamique prétransitionnelle passe *continûment* d'un régime plutôt displacif au régime ordre-désordre (58).

Ensuite, je me suis ensuite orienté dès mon arrivée au Laboratoire Léon Brillouin (LLB) en novembre 1989, sous la tutelle de Bernard Hennion et dans le cadre du service national au titre de scientifique du contingent, sur l'étude du magnétisme dans les supraconducteurs à haute température critique. Tout d'abord lors d'une courte collaboration avec Peter Gehring et Gen Shirane du National Laboratory de Brookaven (BNL-USA), nous avons mis en évidence des corrélations antiferromagnétiques bidimensionnelles pour plusieurs concentrations dans la phase métallique du système $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ (YBCO) (1), avec le constat qualitatif du décalage du poids spectral magnétique vers les hautes énergies au fur et à mesure de l'augmentation du dopage.

Ce stage militaire s'est transformé en un poste permanent de chercheur au C.E.A. fin 1990 au sein du LLB. J'ai poursuivi l'étude des fluctuations magnétiques dans YBCO dans l'équipe de Jean Rossat-Mignot lors de son arrivée à la direction du LLB en 1991. Principalement avec Louis-Pierre Regnault (C.E.A.-Grenoble) et Christian Vettier (I.L.L.), nous avons pour la première fois mis en évidence l'existence du pic de résonance à 41 meV *uniquement* dans la phase supraconductrice (45), excitation autour de laquelle une large partie de ce mémoire est centrée. Dès les premières mesures, le point le plus marquant de ce phénomène a été son évolution thermique qui a permis d'associer cette excitation avec l'ordre supraconducteur non-conventionnel des cuprates. De plus, à basse

énergie, les fluctuations magnétiques disparaissent dans l'état supraconducteur en dessous d'une énergie caractéristique, appelé "gap de spin", qui croit fortement avec le dopage. Dans l'état normal, ce gap se remplit mais la forme du spectre magnétique souligne l'existence d'un pseudo-gap de spin (qui a été à tort confondu avec le gap de spin de l'état supraconducteur). Par ailleurs, ce phénomène fait partie d'une première étude systématique des corrélations magnétiques sur l'ensemble du diagramme de phase d'YBCO (45,51,52,53,54,55,56,60,61,62,68,92,93) qui a démontré que les fluctuations magnétiques à très courte portée ($\sim 5-15 \text{ \AA}$) existent pour toutes les concentrations, et surtout, qu'elles évoluent très fortement (de manière non-monotonique) en fonction du dopage.

Ce travail m'a permis de bien me familiariser avec la diffusion neutronique et avec l'utilisation de spectromètres à trois-axes. J'ai d'ailleurs pris en charge l'appareil thermique 1T au LLB (devenu par la suite 2T lors du changement du bouchon du canal en 1999). Une étape expérimentale importante a été de décrire la fonction de résolution d'un spectromètre à trois-axes lorsque l'on utilise un monochromateur (ou un analyseur) qui focalise le faisceau dans le plan horizontal ainsi que dans le plan vertical. Ce nouveau type d'installation, qui est devenu d'usage courant maintenant, permet d'augmenter considérablement le flux au niveau de l'échantillon. Cependant, la fonction de résolution de l'appareil était mal connue dans ce type configuration. Avec l'aide de Bernard Hennion, j'ai effectué un calcul permettant d'obtenir une description réaliste de la fonction de résolution dans toutes les configurations. Cela m'a permis de bien maîtriser les effets de résolution, étape nécessaire à l'analyse des données. Enfin, l'étape suivante a consisté à déterminer la valeur absolue des différentes diffusions (phonons ou magnons) mesurées sur un spectromètre à trois-axes (12,15,22,26). Cette calibration des fluctuations AF dans les cuprates a un rôle prépondérant pour l'établissement d'un mécanisme de la supraconductivité à haute température critique basé sur le magnétisme.

J'ai aussi élargi le travail sur les supraconducteurs en étudiant d'une nouvelle famille de cuprates R_2CuO_4 avec $R=Pr,Nd,Sm,Gd$ et Eu , qui deviennent typiquement supraconducteurs par une substitution par un atome tétravalent, comme le Ce^{4+} , donnant lieu à un dopage en électrons. L'étude de ce composé a pris deux directions : principalement la compréhension des phases antiferromagnétiques des composés isolants et dans une moindre mesure l'étude des instabilités de réseau (3,4,14). Tout au long de ces années avec Daniel Petitgrand, Sascha Ivanov, Hélène Casalta, S.V. Maleyev et dans le cadre des thèses de Lounis Boudarène et Mattéo d'Astuto, nous avons étudié l'ordre antiferromagnétique et les ondes de spins dans ces composés (57,70,15), en particulier dans Nd_2CuO_4 et Pr_2CuO_4 (20). En effet, Nd_2CuO_4 présente une succession de plusieurs phases antiferromagnétiques (AF) associées à la mise en ordre des spins du Cu^{2+} , mais aussi ceux du Nd^{3+} et ceci à toutes les températures en dessous de la température de Néel (50). Pour expliquer ces phases AF, nous avons introduit des interactions d'échanges anisotropes entre les plans cuivre et de la terre rare dont la symétrie est la même que l'interaction dipolaire électromagnétique (49). L'existence de ces interactions pseudo-dipolaire a été par la suite confirmée par le spectre d'onde de spins dans Pr_2CuO_4 (20) pour les interactions Cu-Cu, mais aussi entre les spins de la terre rare ainsi qu'entre les deux sous-réseaux comme l'indique le spectre des excitations magnétiques du Nd à basse température (10,23). On

observe aussi une diffusion diffuse bidimensionnelle entre les taches de Bragg AF qui souligne l'influence mutuelle des deux sous-réseaux (18). La mesure des ondes de spins sur plusieurs systèmes a permis de déterminer le couplage de super-échange magnétique à l'intérieur des plans CuO_2 , dont une valeur moyenne est $J_{//} \simeq 120$ meV (15).

Après le décès de Jean Rossat-Mignod durant l'été 1993, nous avons, en collaboration avec l'équipe grenobloise du C.E.A. (L.P. Regnault, J.Y. Henry) et E.S.R.F. (C. Vettier), repris l'étude des fluctuations magnétiques dans YBCO, et en particulier l'évolution du pic de résonance au passage dans l'état sur-dopé ($x \geq 0.94$) (6). Nous avons montré que cette excitation subsiste dans l'état supraconducteur pour ces dopages, mais que, dans le même temps, les corrélations magnétiques dans l'état normal n'étaient plus mesurables (6). Nous avons également confirmé l'existence de ce pic dans l'état sous-dopé (13). Afin de comprendre la corrélation entre supraconductivité et magnétisme dans les cuprates, nous avons entrepris, dans le cadre de la thèse d'Yvan Sidis, l'étude de l'effet de la substitution du cuivre par un atome non-magnétique, le zinc. Parmi les substitutions dans YBCO, celle par le Zn est la plus efficace pour réduire la température supraconductrice (-12 K/%). Afin de différencier l'impact du zinc sur les corrélations magnétiques, nous avons étudié l'ensemble du diagramme de phase d'YBCO avec un taux de zinc fixe de 2% par Cu. Dans l'état isolant, cette substitution par un élément non-magnétique a pour effet de réduire un peu le magnétisme par un effet de dilution classique (63). Par contre, en présence de porteurs de charge, l'effet est opposé dans la mesure où le zinc amplifie les fluctuations magnétiques, d'une part en réduisant leur énergie caractéristique et d'autre part en amplifiant leur poids spectral (64,65). Nous avons ainsi mis en évidence (9), dans l'état métallique proche du dopage optimal, des excitations antiferromagnétiques de basse énergie ($\simeq 9$ meV) qui étaient absentes dans les échantillons sans Zn. De fait, elles sont localisées à une énergie inférieure au gap de spin sans toutefois le renormaliser. La dépendance en vecteur d'onde de cette nouvelle réponse magnétique suggère que les impuretés de zinc détruisent le gap supraconducteur dans une zone d'environ 7 Å autour de chaque zinc (9). Par ailleurs, le pic de résonance a pratiquement disparu avec 2 % de Zn (9,67); cet impact important sur la résonance sera par la suite confirmé avec un taux très faible, 0.5 %, de substitution (25).

A partir de fin 1995, en collaboration avec Bernhard Keimer, Tony Fong et Dmitry Reznik de l'université de Princeton et L.P. Regnault, nous avons commencé l'étude des fluctuations de haute énergie ($\hbar\omega > 50$ meV) dans YBCO qui n'avaient pour l'instant pas été mesurées du fait du volume insuffisant des échantillons. Tout d'abord, nous nous sommes intéressés au mode magnétique optique du composé parent antiferromagnétique $\text{YBCO}_{6.2}$ dont nous avons déterminé le gap à 67 meV (11). Nous avons ainsi établi le couplage d'échange à l'intérieur du biplan CuO_2 , $J_{\perp} \simeq 0.08J_{//}$. Ensuite, nous avons poursuivi ces mesures dans l'état métallique et nous avons démontré que ce mode était toujours plus faible en amplitude que le mode acoustique de basse énergie (12,26). Avec le dopage, l'énergie du mode optique se renormalise vers les basses énergies sans qu'il présente d'anomalies notables (26). Ces mesures à haute énergie ont aussi révélé une dispersion des excitations dans l'état métallique qui présente un comportement de type paramagnons autour du vecteur d'onde antiferromagnétique (12). De plus, la calibration

en absolu montre que sous l'effet du dopage le poids spectral de la dynamique de spins est transférée des hautes énergies vers les basses énergies (12,26).

Par la suite, la richesse de la réponse magnétique observé dans YBCO nous a amenés à étendre nos observations à d'autres famille de cuprates : d'une part dans le système à base de bismuth, $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (BSCO) et d'autre part dans un système à un seul plan CuO_2 par maille élémentaire mais avec une T_c élevée, $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+\delta}$ (Tl2201). Ces systèmes n'avaient pu être étudiés avant par diffusion de neutrons du fait qu'ils sont difficiles à synthétiser sous forme de monocristaux. Tout d'abord, nous avons réussi à mesurer le pic de résonance dans un monocristal de petite taille, $\sim 70 \text{ mm}^3$, de BSCO (21). Cette mesure a permis de généraliser cette excitation à l'ensemble des cuprates, et la place au coeur des débats sur le mécanisme de la supraconductivité à haute température critique. Ensuite, toujours en collaboration avec le Max Planck Institute (H.F. He, B. Keimer) et le C.E.A.-Grenoble, nous avons assemblé plusieurs cristaux de petites tailles pour obtenir un volume suffisant (33,29). Nous avons, tout d'abord, prouvé que cette excitation subsiste dans BSCO dans un état faiblement sur-dopé(29). Ce type d'assemblage a aussi permis de mettre en évidence pour la première fois l'existence du pic de résonance dans un système mono-couche (Tl2201)(33). Ces résultats établissent que ce mode résonant est une caractéristique fondamentale des supraconducteurs à haute température critique à la condition où la température supraconductrice est suffisamment élevée.

Également, avec Yvan Sidis, nous avons poursuivi l'impact sur les excitations magnétiques de la substitution du cuivre dans YBCO par différents atomes de la couche 3d qu'ils soient non-magnétiques (zinc) ou magnétiques (nickel et cobalt) (avec deux sites de substitutions possibles). En effet, la sensibilité de l'état supraconducteur des cuprates aux impuretés n'est pas attendue dans la théorie classique de la supraconductivité. Typiquement, on observe une plus faible réduction de la température critique lorsque l'on substitue par un élément magnétique, alors que la théorie standard prédit le contraire. De manière aussi surprenante, le zinc non-magnétique amplifie les corrélations antiferromagnétiques dans l'état normal (en plus de réduction du poids spectral du pic de résonance déjà mentionné) (87,28,100). Par comparaison, le nickel ne crée pas de fluctuations magnétiques supplémentaires mesurables dans l'état normal, il renormalise cependant l'énergie de la résonance (28). On peut ainsi supposer que le Ni affecte plus directement le mécanisme de la supraconductivité alors que le Zn détruit principalement la supraconductivité par brisure de paires. La situation avec le cobalt est encore plus étonnante. En collaboration avec Joe Hodges du SPEC (CEA-Saclay), nous avons en effet étudié l'évolution du spectre magnétique mais aussi l'apparition d'un ordre antiferromagnétique induit par le cobalt. Le vecteur de propagation de cet ordre est le même que celui du composé parent non-dopé et isolant; toutefois l'évolution de l'intensité magnétique au grand vecteur d'onde décroît plus rapidement que le facteur de forme du cuivre Cu^{2+} indiquant un état peut-être plus délocalisé. Il semble que cet ordre magnétique cohabite facilement avec la supraconductivité avec une température supraconductrice qui est la même que celle du composé non-substitué. Cette tendance à l'ordre magnétique indique que les supraconducteurs à haute température critique sont systématiquement proches d'une instabilité antiferromagnétique avec des fluctuations très fortes.

Récemment, nous avons entrepris une description détaillée du pic de résonance qui représente une avancée importante dans la compréhension de la dynamique des spins dans les supraconducteurs à haute température critique. En effet, nous avons établi que le pic de résonance n'est pas seulement caractérisé par un pic localisé en énergie au vecteur d'onde AF, mais possède une relation de dispersion vers les basses énergies quand on s'écarte de ce vecteur d'onde (24). Ce résultat démontre empiriquement que le pic de résonance est un mode collectif qui relie en une excitation unique, le pic observé de longue date à Q_{AF} avec les pics incommensurables (86).

Par ailleurs, l'étude d'un système isostructural à la famille des supraconducteurs à haute température critique, Sr_2RuO_4 a permis de mettre en évidence l'existence de fluctuations magnétiques incommensurables. Ce système est en fait aussi un supraconducteur non-conventionnel avec un appariement triplet (comme l' ^4He) impliquant une symétrie orbitale impaire (de type- p, f, \dots) et avec une température critique supraconductrice au maximum de l'ordre de ~ 1.5 K. Plusieurs calculs théoriques ont prédit de fortes fluctuations ferromagnétiques comme étant la cause de cette appariement. Par diffusion inélastique de neutrons, nous avons en fait observé des fluctuations magnétiques en position incommensurable, à $\mathbf{q}_0 = (\pm 0.6\frac{\pi}{a}, \pm 0.6\frac{\pi}{a}, 0)$, qui est en accord avec des prédictions d'emboîtement dynamique de la surface de Fermi (22,85). Nos mesures relativisent ainsi le rôle supposé prédominant du ferromagnétisme pour l'appariement supraconducteur dans ce système.

Un projet portant sur l'étude des phonons dans des structures composites incommensurables a aussi été amorcé avec le séjour de Janine Etrillard (université de Rennes) au LLB. En effet, une dynamique de réseau originale est attendue dans ce type de système, qui doit être caractérisée par un mode supplémentaire de basse énergie, dit "mode de glissement", dont le comportement ressemble à un mode acoustique. Des mesures de structures (27) et de phonons (31) sur des cuprates à base de Bi, $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$, indiquent que ces systèmes pourraient être un bon candidat pour l'observation de ce nouveau mode.

Enfin, le travail portant sur les fluctuations AF dans l'état métallique des supraconducteurs à haute température critique a fait l'objet de plusieurs synthèses tout au long des années dans plusieurs livres (92,96,97,86,99) et a donné lieu à des invitations dans de nombreuses conférences et "workshops".

Liste de publications

Publications dans les revues avec un comité de lecture

1. *Spectral shift of the magnetic cross section in superconducting $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$*
Ph. Bourges, P.M. Gehring, B. Hennion, A.H. Moudden, J.M. Tranquada, G. Shirane, S. Shamoto and M. Sato, Phys. Rev. B(RC), **43**, 8690-8693 (1991).
2. *The structural phase transition in anthracene-TCNB*
J. Lefebvre, C. Ecolivet, Ph. Bourges, A. Mierzejewski and T. Luty, Phase transitions, **32**, 223-234 (1991).

3. *Inelastic-neutron-scattering study of a soft rotational mode in Nd_2CuO_4*
N.Pyka, N.L. Mitrofanov, Ph. Bourges, L. Pintschovius, W. Reichardt, A.Yu Rumiantssev and A.S. Ivanov, *Europhys. Lett.*, **18**, 711-716 (1992).
4. *Structure analysis of Gd_2CuO_4 : a new modification of the T' phase*
M. Braden, W. Paulus, A. Cousson, P. Vigoureux, G. Heger, A. Goukasov, Ph. Bourges and D. Petitgrand, *Europhys. Lett.*, **25**, 625-630 (1994).
5. *A neutron scattering investigation of magnetic structure and spin correlations in Sm_2CuO_4*
A.G. Gukasov, V.A. Polyakov, I.A. Zobkalo, D. Petitgrand, Ph. Bourges, L. Boudarène, S.N. Barilo and D.N. Zhigunov, *Solid State Comm.*, **95**, 533-536 (1995).
6. *Inelastic-neutron-scattering study of antiferromagnetic fluctuations in $YBa_2Cu_3O_{6.97}$*
Ph. Bourges, L.P. Regnault, Y. Sidis and C. Vettier, *Phys. Rev. B*, **53**, 876-885 (1996).
7. *Pretransitional dynamics of the structural phase transition in anthracene-TCNB: a comparison of Raman-scattering and inelastic-neutron-scattering experiments*
Ph. Bourges, M.H. Lemee-Cailleau, P. Launois, F. Moussa, H. Cailleau C. Ecolivet and A. Mierzejewski, *Phys. Rev. B*, **54**, 15002-15015 (1996).
8. *Incommensurate intermodulation of an organic intergrowth compound observed by neutron scattering*
R. Lefort, J. Etrillard, B. Toudic, F. Guillaume, T. Brezewski, Ph. Bourges, *Phys. Rev. Lett.*, **77**, 4027-4030 (1996).
9. *Zinc-induced modification of the dynamical magnetic susceptibility in the superconducting state of $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ as revealed by inelastic neutron scattering*
Y. Sidis, Ph. Bourges, B. Hennion, L.P. Regnault, R. Villeneuve, G. Collin and J.F. Marucco, *Phys. Rev. B*, **53**, 6811-6818 (1996).
10. *Low temperature magnetic excitations in Nd_2CuO_4 single crystals studied by neutron scattering*
H. Casalta, Ph. Bourges, D. Petitgrand and A.S. Ivanov, *Solid State Comm.*, **100**, 683-686 (1996).
11. *Direct observation of optical magnons in $YBa_2Cu_3O_{6.2}$*
D. Reznik, Ph. Bourges, H.F. Fong, L.P. Regnault, J. Bossy, C. Vettier, D.L. Milius, I.A. Aksay, and B. Keimer, *Phys. Rev. B(RC)*, **53**, 14741-14744 (1996).
12. *High-energy spin excitations in $YBa_2Cu_3O_{6.5}$*
Ph. Bourges, H.F. Fong, L.P. Regnault, J. Bossy, C. Vettier, D.L. Milius, I.A. Aksay and B. Keimer, *Phys. Rev. B(RC)*, **56**, 11439-11442 (1997).

13. *Shifting of the magnetic resonance peak to lower energy in the superconducting state of underdoped $YBa_2Cu_3O_{6.8}$*
Ph. Bourges, L.P. Regnault, Y. Sidis, J. Bossy, P. Burlet, C. Vettier, J.Y. Henry and M. Couach, Europhys. Lett. **38**, 313-318 (1997).
14. *Study of the structural phase transition in $Gd_{2-x}Ce_xCuO_4$*
P. Vigoureux, M. Braden, A. Goukasov, W. Paulus, Ph. Bourges, A. Cousson, D. Petitgrand, J.P. Lauriat, M. Meven, S.N. Barilo, D.I. Zhigunov, P. Adelman and G. Heger, Physica C, bf 273, 239-247, (1997).
15. *Superexchange coupling and spin susceptibility spectral weight in undoped monolayer cuprates*
Ph. Bourges, H. Casalta, A.S. Ivanov and D. Petitgrand, Phys. Rev. Lett., **79**, 4906-4909, (1997).
16. *Direct observation of a phason gap in an incommensurate molecular compound*
J. Ollivier, J. Etrillard, B. Toudic, C. Ecolivet, Ph. Bourges, and A.P. Levanyuk, Phys. Rev. Lett., **81**, 3667-3670, (1998).
17. *Comment on "Magnetic dynamics in underdoped $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$: direct observation of a superconducting gap"*
Ph. Bourges, and L.P. Regnault, Phys. Rev. Lett., **80**, 1793 (1998).
18. *Magnetic behavior of Nd in Nd_2CuO_4 above 1.5 K*
H. Casalta, Ph. Bourges, M. d'Astuto, D. Petitgrand, and A.S. Ivanov, Phys. Rev. B, **57**, 471-475 (1998).
19. *Linear dependence of peak width in $\chi(q, \omega)$ vs T_C for $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ superconductors*
A.S. Balatsky and Ph. Bourges, Phys. Rev. Lett., **82**, 5337-5340 (1999).
20. *Pseudodipolar interaction and antiferromagnetism in R_2CuO_4 compounds ($R=Pr, Nd, Sm$, and Eu)*
D. Petitgrand, S.V. Maleyev, Ph. Bourges and A.S. Ivanov, Phys. Rev. B, **59**, 1079-1104, (1999).
21. *Neutron scattering from magnetic excitations in $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$*
H.F. Fong, Ph. Bourges, Y. Sidis, L.P. Regnault, A.S. Ivanov, G.D. Gu, N. Koshizuka and B. Keimer, Nature **398**, 588-591 (1999).
22. *Evidence for incommensurate spin fluctuations in Sr_2RuO_4*
Y. Sidis, M. Braden, Ph. Bourges, B. Hennion., S. NishiZaki, Y. Maeno and Y. Mori, Phys. Rev. Lett., **83**, 3320-3323 (1999).
23. *High-resolution study of the supposed fourfold Nd spin-wave degeneracy of Nd_2CuO_4*
N. Pyka, M. d'Astuto, A.Metz, A.S. Ivanov, M. Loewenhaupt, H. Casalta, D. Petitgrand, and Ph. Bourges, Phys. Rev. B, **61**, 14311-14314 (2000).

24. *The spin excitation spectrum in superconducting $YBa_2Cu_3O_{6.85}$*
Ph. Bourges, Y. Sidis, H.F. Fong, L.P. Regnault, J. Bossy, A.S. Ivanov, and B. Keimer, Science, **288** 1234-1237 (2000) (cond-mat/0006086).
25. *Effect of non-magnetic impurities on the magnetic resonance peak in $YBa_2Cu_3O_7$*
H.F. Fong, Ph. Bourges, Y. Sidis, L.P. Regnault, J. Bossy, A.S. Ivanov, D.L. Milius, I.A. Aksay, and B. Keimer, Phys. Rev. Lett., **82**, 1939-1942 (1999).
26. *Spin susceptibility in underdoped $YBa_2Cu_3O_{6+x}$*
H.F. Fong, Ph. Bourges, Y. Sidis, L.P. Regnault, J. Bossy, A.S. Ivanov, D.L. Milius, I.A. Aksay, and B. Keimer, Phys. Rev. B, **61**, 14773-14786 (2000).
27. *Incommensurate composite structure of the superconductor $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$*
J. Etrillard, Ph. Bourges, and, C.T. Lin, Phys. Rev. B, **62**, 150-153 (2000).
28. *Quantum impurities and the neutron resonance peak in $YBa_2Cu_3O_7$: Ni versus Zn*
Y. Sidis, Ph. Bourges, H. F. Fong, B. Keimer, L. P. Regnault, J. Bossy, A.S. Ivanov, B. Hennion, P. Gautier-Picard, G. Collin, D. L. Millius, I. A. Aksay, Phys. Rev. Lett. **84**, 5900-5903 (2000) (cond-mat/9912214).
29. *Resonant Spin Excitation in an Overdoped High Temperature Superconductor*
H. He, Y. Sidis, Ph. Bourges, G.D. Gu, A.Ivanov, N. Koshizuka, B. Liang, C.T. Lin, L. P. Regnault, E. Schoenherr, B. Keimer, Phys. Rev. Lett., **86** 1610 (2001) cond-mat/0002013).
30. *Antiferromagnetic ordering in superconducting $YBa_2Cu_3O_{6.5}$*
Y. Sidis, C. Ulrich, Ph. Bourges, C. Bernhard, C. Niedermayer, L. P. Regnault, N.H. Andersen, and B. Keimer, Phys. Rev. Lett., **86**, 4100-4104 (2001) cond-mat/0101095).
31. *Acoustic phonons in the aperiodic layered crystal of $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$*
J. Etrillard, Ph. Bourges, H.F. He, B. Keimer B. Liang, and, C.T. Lin, Europhys. Lett., **55**, 201-207 (2001).
32. *Dynamical molecular disorder and diffuse scattering in an alkane/urea incommensurate inclusion compound*
R. Lefort, B. Toudic, J. Etrillard, F. Guillaume, Ph. Bourges, R. Currat and, T. Brezewski, Eur. Phys. J. B,**24**, 51-57 (2001).
33. *Magnetic resonant mode in the single-layer high-temperature superconductor $Tl_2Ba_2CuO_{6+\delta}$*
H.F. He, Ph. Bourges, Y. Sidis, C. Ulrich L.P. Regnault, S. Pailhès, N.S. Berzigi-
rova, N.N. Kolesnikov, and B. Keimer, Science, **295**, 1045 (2002) (cond-mat/0201252).
34. *Structural and magnetic instabilities of $La_{2-x}Sr_xCaCu_2O_6$*
C. Ulrich, S. Kondo, M. Reehuis, H. He, C. Bernhard, C. Niedermayer, F. Bourée,
Ph. Bourges, M. Ohl, H.M. Rønnow, H. Takagi, and B. Keimer, Phys. Rev. B **65**,
220507 (2002) .

35. *Antiferromagnetic ordering in a 90 K copper oxide superconductor*
J. A. Hodges, Y. Sidis, P. Bourges, I. Mirebeau, M. Hennion, and X. Chaud, Phys. Rev. B **66**, 020501 (2002) (cond-mat/0107218).
36. *Evidence for Two Distinct Energy Scales in the Raman Spectra of $YBa_2(Cu_{1-x}Ni_x)_3O_{6.95}$*
Y. Gallais, A. Sacuto, P. Bourges, Y. Sidis, A. Forget, and D. Colson, Phys. Rev. Lett. **88**, 177401 (2002) (cond-mat/0108015).
37. *Incommensurate Magnetic Ordering in $Sr_2Ru_{1-x}Ti_xO_4$*
M. Braden, O. Friedt, Y. Sidis, P. Bourges, M. Minakata, and Y. Maeno Phys. Rev. Lett. **88**, 197002 (2002).
38. *Inelastic neutron scattering study of magnetic excitations in Sr_2RuO_4*
M. Braden, Y. Sidis, Ph. Bourges, P. Pfeuty, J. Kulda, Z. Mao, and Y. Maeno, Phys. Rev. B, **66**, 064522 (2002) (cond-mat/0206304).
39. *CEF nature of the magnetic excitations in ordered $HoNi_2B_2C$*
N. Cavadini, Th. Strässle, P. Allenspach, P.C. Canfield, and Ph. Bourges, Eur. Phys. J. B, **29** 377 (2002).
40. *High-Energy Spin dynamics in $La_{1.69}Sr_{0.31}NiO_4$*
Ph. Bourges, Y. Sidis, M. Braden, K. Nakajima, and J.M. Tranquada, Phys. Rev. Lett., **90**, 147202 (2003) (cond-mat/0203187).
41. *First One-Dimensional Stress-Strain Experiments inside an Aperiodic Inclusion Compound: Evidence of Depinning Effects*
L. Bourgeois, C. Ecolivet, B. Toudic, Ph. Bourges, and T. Brezewski, Phys. Rev. Lett., **91**, 025504 (2003).

Publications de conférences avec un comité de lecture

42. *Neutron and Raman scattering of the soft mode behavior at the structural phase transition in A-TCNB*
Ph. Bourges, M.H. Lemée-Cailleau, P. Launois, F. Moussa, H. Cailleau C. Ecolivet and A. Mierzejewski, ferroelectrics, **109**, 69-74, (1990).
43. *Ferroelasticity in p-dichlorodurene*
C. Ecolivet, L. Toupet, Ph. Bourges and R. Jakubas, ferroelectrics, **109**, 75-80, (1990).
44. *Displacive - order-disorder crossover of the structural phase transition in A-TCNB under hydrostatic pressure*
Ph. Bourges, C. Ecolivet, A. Mierzejewski, Y. Delugeard and A. Girard, in *Phonons 89*, edited by S. Hunklinger, W. Ludwig and G. Weiss (World scientific, Singapore, 1990), 1147-1149.

45. *Neutron scattering study of the $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ system*
J. Rossat-Mignod, L.P. Regnault, C. Vettier, Ph. Bourges, P. Burlet, J. Bossy, J.Y. Henry and G. Lapertot : Physica C, **185-189**, 86-92 (1991).
46. *Lattice dynamical studies of HTSC materials*
L. Pintschovius, N. Pyka, W. Reichardt, A.Yu Rumiantsev, N.L. Mitrofanov, A.S. Ivanov, G. Collin and Ph. Bourges, Physica C, **185-189**, 156-159 (1991).
47. *Lattice dynamical studies of HTSC materials*
L. Pintschovius, N. Pyka, W. Reichardt, A.Yu Rumiantsev, N.L. Mitrofanov, A.S. Ivanov, G. Collin and Ph. Bourges, Physica B, **174**, 323-329, (1991).
48. *Two-dimensional antiferromagnetic excitations in Nd_2CuO_4 crystal*
Ph. Bourges, L. Boudarène, D. Petitgrand and P. Galez, Physica B, **180&181**, 447-449, (1992).
49. *Antiferromagnetic phase stability by $Nd^{3+} - Cu^{2+}$ interplanar coupling in Nd_2CuO_4*
Ph. Bourges, L. Boudarène, D. Petitgrand, Physica B, **180&181**, 128-130, (1992).
50. *Interplay of copper and neodymium magnetic moments in the magnetic structure of Nd_2CuO_4 investigated by neutron scattering*
D. Petitgrand, L. Boudarène, Ph. Bourges and P. Galez, J. Magn. Magn. Mater., **104-107**, 585-586, (1992).
51. *Spin dynamics in the high- T_C system $YBa_2Cu_3O_{6+x}$*
J. Rossat-Mignod, L.P. Regnault, C. Vettier, Ph. Bourges, P. Burlet, J. Bossy, J.Y. Henry and G. Lapertot, Physica B, **180&181**, 383-388, (1992).
52. *Inelastic neutron scattering study of the spin dynamics in $YBa_2Cu_3O_{6.92}$*
J. Rossat-Mignod, L.P. Regnault, C. Vettier, Ph. Bourges, P. Burlet, J. Bossy, J.Y. Henry and G. Lapertot, J. Magn. Magn. Mater., **116**, 336-338, (1992).
53. *Neutron scattering investigation of the spin dynamics in the high temperature superconducting system $YBa_2Cu_3O_{6+x}$*
J. Rossat-Mignod, L.P. Regnault, Ph. Bourges, C. Vettier, P. Burlet and J.Y. Henry, Physica Scripta, **T45**, 74-80, (1992).
54. *Neutron scattering study of the $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ HT_C superconductors*
C. Vettier, J. Rossat-Mignod, L.P. Regnault, Ph. Bourges, P. Burlet, J.Y. Henry and G. Lapertot, Applied Superconductivity, **1**, 293-311, (1993).
55. *Spin fluctuations in the metallic and superconducting states in the high- T_C system $YBa_2Cu_3O_{6+x}$*
J. Rossat-Mignod, L.P. Regnault, Ph. Bourges, C. Vettier, P. Burlet and J.Y. Henry, Physica B, **186&188**, 1-8, (1993).

56. *Inelastic neutron scattering study of the spin dynamics in the $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ system*
J. Rossat-Mignod, L.P. Regnault, Ph. Bourges, P. Burlet, C. Vettier, and J.Y. Henry, *Physica B*, **192**, 109-121, (1993).
57. *Two-dimensional antiferromagnetic excitations in Nd_2CuO_4*
Ph. Bourges, A.S. Ivanov, D. Petitgrand, J. Rossat-Mignod and L. Boudarène, *Physica B*, **186&188**, 925-927 (1993).
58. *Crossover of the dynamical regime of the SPT in A-TCNB under hydrostatic pressure*
Ph. Bourges, P. Rabiller, A. Mierzejewski, H. Cailleau, M.-H. Lemeé-Cailleau, C. Ecolivet and F. Moussa, *Ferroelectrics*, **159**, 19-24, (1994).
59. *Anharmonicity and electron-phonon coupling in cuprates superconductors studied by inelastic neutron scattering*
W. Reichardt, L. Pintschovius, N. Pyka, P. Schweiss, A. Erb, Ph. Bourges, G. Collin, J. Rossat-Mignod, J.Y. Henry, A.S. Ivanov, N.L. Mitrofanov and A.Yu Rumiantsev, *J. Supercond.*, **7**, 399-407, (1994).
60. *Spin dynamics in the weakly-doped metallic regime of the high- T_C superconductor $YBa_2Cu_3O_{6.5}$*
J. Rossat-Mignod, L.P. Regnault, Ph. Bourges, P. Burlet, C. Vettier and J.Y. Henry, *Physica B*, **194&196**, 2131-2132, (1994).
61. *Spin dynamics in the high- T_C system $YBa_2Cu_3O_{6+x}$: the heavily doped regime*
J. Rossat-Mignod, Ph. Bourges, F. Onufrieva, L.P. Regnault, J.Y. Henry, P. Burlet and C. Vettier, *Physica B*, **199&200**, 281-283 (1994).
62. *Spin dynamics in the normal and superconducting states of $YBa_2Cu_3O_{6+x}$*
L.P. Regnault, Ph. Bourges, P. Burlet, J.Y. Henry, J. Rossat-Mignod, Y. Sidis and C. Vettier, *Physica C*, **235-240**, 59-62, (1994).
63. *$YBa_2(Cu_{1-y}Zn_y)_3O_{6+x}$: elastic neutron scattering measurements*
Y. Sidis, Ph. Bourges, B. Hennion, R. Villeneuve, G. Collin and J.F. Marucco, *Physica C*, **235-240**, 1591-1592, (1994).
64. *Spin excitations in the antiferromagnetic phase of zinc-doped YBCO*
Ph. Bourges, Y. Sidis, B. Hennion, R. Villeneuve, G. Collin and J.F. Marucco, *Physica C*, **235-240**, 1683-1684 (1994).
65. *Unusual spin dynamics in the doped antiferromagnetic phase of $YBa_2(Cu_{0.98}Zn_{0.02})_3O_{6.39}$*
Ph. Bourges, Y. Sidis, B. Hennion, R. Villeneuve, G. Collin and J.F. Marucco, *Physica B*, **213&214**, 54-56, (1995).
66. *Neutron scattering of HTSC materials: Zn substituted versus pure YBCO, nuclear and magnetic structures, spin excitations*

- G. Collin, R. Villeneuve, Y. Sidis, Ph. Bourges, B. Hennion, F. Onufrieva, B. Gillon, F. Bourée, I. Mirebeau, P. Mendels, H. Alloul, J.F. Marucco and P. Schweiss, in "*Neutron Scattering in Material Science II*", D.A. Neuman, T.P. Russel and B.J. Wuensch Eds., Mat. Res. Soc. Sympos. Proc., **376**, 513-518, (1995).
67. *Comparison of antiferromagnetic fluctuations in zinc-free and zinc-doped YBCO in fully oxidized samples studied by inelastic neutron scattering*
Ph. Bourges, Y. Sidis, L.P. Regnault, B. Hennion, R. Villeneuve, G. Collin, C. Vettier, J.Y. Henry and J.F. Marucco, J. Phys. Chem. Solids, **56**, 1937-1938, (1995).
68. *Spin dynamics in the high- T_C superconducting system $YBa_2Cu_3O_{6+x}$*
L.P. Regnault, Ph. Bourges, P. Burlet, J.Y. Henry, J. Rossat-Mignod, Y. Sidis and C. Vettier, Physica B, **213&214**, 48-53, (1995).
69. *Spin dynamics in the metallic state of the high- T_C superconducting system $YBa_2Cu_3O_{6+x}$*
Ph. Bourges, L.P. Regnault, J.Y. Henry, C. Vettier, Y. Sidis and P. Burlet, Physica B, **215**, 30-40, (1995).
70. *Spin dynamics in Nd_2CuO_4 and Pr_2CuO_4*
A.S. Ivanov, Ph. Bourges, D. Petitgrand and J. Rossat-Mignod, Physica B, **213&214**, 60-62, (1995).
71. *Structural and dynamical aspects of the incommensurate molecular system bis(4-chlorophenyl) sulfone*
J. Ollivier, J. Etrillard, M. Sougati, B. Toudic, C. Ecolivet and Ph. Bourges, Ferroelectrics, **183**, 283-289 (1996).
72. *X-ray and neutron scattering studies of $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ compounds: oxygen insertion and spin dynamics*
P. Burlet, Ph. Bourges, J. Bossy, E. Elkaim, J.Y. Henry, J.P. Lauriat, V.P. Plakhty, L.P. Regnault, J. Schweizer, Y. Sidis, C. Vettier and F. Yakhou, Journal of Superconductivity, **9**, 357-364, (1996).
73. *Spin dynamics by inelastic neutron scattering in YBCO*
Ph. Bourges, L.P. Regnault, Y. Sidis, J. Bossy, P. Burlet, C. Vettier, J.Y. Henry and M. Couach, Journal of Low Temperature Physics, **105**, 377-382 (1996).
74. *Spin dynamics in $YBa_2(Cu_{0.98}Zn_{0.02})_3O_{6.7}$*
Ph. Bourges, Y. Sidis, B. Hennion, R. Villeneuve, J.F. Marucco and G. Collin, Czechoslovak Journal of Physics, **46**, 1155-1156 (1996).
75. *High magnetic field dependence of spin fluctuations in $YBa_2Cu_3O_7$*
Ph. Bourges, H. Casalta, L.P. Regnault, J. Bossy, P. Burlet, C. Vettier, E. Beaunon, P. Gautier-Picard and R. Tournier, Physica B, **234-236**, 830-831, (1997).

76. *Spin excitations and phonons in $YBa_2Cu_3O_{6+x}$: a status report*
B. Keimer, I.A. Aksay, J. Bossy, Ph. Bourges, H.F. Fong, D.L. Milius, L.P. Regnault, D. Reznik and C. Vettier, *Physica B*, **234-236**, 821-829 (1997).
77. *Dispersion of crystal field excitations in Nd_2CuO_4 and Pr_2CuO_4*
A.S. Ivanov, D. Petitgrand, Ph. Bourges and P. Alekseev, *Physica B*, **234-236**, 717-719 (1997).
78. *2D magnetic behaviour of Nd in Nd_2CuO_4 below T_N*
H. Casalta, Ph. Bourges, D. Petitgrand, M. d'Astuto and A.S. Ivanov, *Physica B*, **234-236**, 803-805, (1997).
79. *Low-energy magnetic excitations in Nd_2CuO_4*
D. Petitgrand, H. Casalta, Ph. Bourges, and A.S. Ivanov, *Physica B*, **234-236**, 806-807 (1997).
80. *Bilayer spin dynamics in underdoped $YBa_2Cu_3O_{6+x}$*
B. Keimer, I.A. Aksay, J. Bossy, Ph. Bourges, H.F. Fong, D.L. Milius, L.P. Regnault, and C. Vettier, *J. Phys. Chem. Solids*, **59**, 2135-2139 (1998).
81. *Pseudodipolar interaction in non-collinear antiferromagnet and spin waves in R_2CuO_4 compounds ($R=Pr, Nd, Sm$, and Eu)*
S.V. Maleyev, D. Petitgrand, Ph. Bourges, and A.S. Ivanov, *Physica B*, **259-261**, 870-874, (1999).
82. *In-plane copper spin wave in Pr_2CuO_4*
A.S. Ivanov, Ph. Bourges, and D. Petitgrand, *Physica B*, **259-261**, 879-881, (1999).
83. *Low-energy magnetic dynamics of Nd-moments in Nd_2CuO_4*
M. d'Astuto, Ph. Bourges,, H. Casalta, A.S. Ivanov, and D. Petitgrand, *Physica B*, **259-261**, 875-876 (1999).
84. *Resonant spin excitations in $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ and $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$*
B. Keimer, Ph. Bourges, H.F. Fong, Y. Sidis, L. P. Regnault, A.S. Ivanov, D.L. Milius, I.A. AKsay, G.D. Gu, and N. Koshizuka, *J. Phys. Chem. Solids*, **60**, 1007-1011 (1999).
85. *Inelastic neutron scattering studies on Sr_2RuO_4*
Y. Sidis, M. Braden, Ph. Bourges, B. Hennion., S. NishiZaki, Y. Maeno, and Y. Mori, *Physica B*, **281&282**, 967-968 (2000).
86. *A critical examination of the spin dynamics in high- T_C cuprates*
Ph. Bourges, B. Keimer, L.P. Regnault and Y.Sidis, *Journal of Superconductivity: Incorporating Novel Magnetism*, **13**, 735-740, (2000) (cond-mat/0006085).

87. *Spin dynamics in the metallic state of $YBa_2(Cu_{0.98}Zn_{0.02})_3O_{6+x}$*
Y. Sidis, Ph. Bourges, B. Hennion, R. Villeneuve, G. Collin and J.F. Marucco,
International Journal of Modern Physics B, **12**, 3330-3334 (1998).
88. *Spin excitations in cuprates: from underdoped to overdoped*
B. Keimer, Ph. Bourges, H.F. Fong, G.D. Gu, H. He, A.S. Ivanov, N. Koshizuka, B.
Liang, C.T. Lin, L. P. Regnault, Y. Sidis and E. Schoenherr, Physica C, **341-348**,
2113-2116 (2000).
89. *High-energy spin dynamics in Pr_2CuO_4*
A.S. Ivanov, Ph. Bourges, D. Petitgrand, and H. Casalta, J. Magn. Mater.,
226-230, 485-486 (2001).
90. *Magnetic excitations in 214 -ruthenates*
M. Braden, O. Friedt, Y. Sidis, Ph. Bourges, P. Pfeuty, S. Nakasutji, Z. Mao, N.
kikagawa, M. Minakata, and Y. Maeno, Physica C, **388-389**, 489-490 (2003).

Contributions à des ouvrages collectifs

91. *Lattice dynamical studies of HTSC materials*
W. Reichardt, F. Gompf, L. Pintschovius, N. Pyka, B. Renker, Ph. Bourges, G.
Collin, A.S. Ivanov, N.L. Mitrofanov and A.Yu Rumiantsev, in *Electron-phonon
interaction in oxide superconductors*, Ed. R. Baquero, (World Scientific, Singapore,
1991), 1-7.
92. *Neutron scattering study of the high- T_C superconducting system $YBa_2Cu_3O_{6+x}$*
J. Rossat-Mignod, L.P. Regnault, Ph. Bourges, C. Vettier, P. Burlet and J.Y. Henry,
in *Selected Topics in Superconductivity* Frontiers in Solid State Sciences Vol 1., Eds.
L.C. Gupta and M.S. Multani, (World Scientific, Singapore, 1993), 265-347.
93. *Neutron scattering investigation of the spin dynamics in the high temperature su-
perconducting system $YBa_2Cu_3O_{6+x}$*
J. Rossat-Mignod, L.P. Regnault, Ph. Bourges, C. Vettier, P. Burlet and J.Y.
Henry, in *Electronic properties of High- T_c superconductors*, Springer series in Solid
State Sciences Vol 113., eds H. Kuzmany, M. Mehring and J. Fink (Springer, Berlin,
1993), 180-196.
94. *Neutron scattering study of the $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ system*
P. Burlet, L.P. Regnault, J. Rossat-Mignod, Ph. Bourges, C. Vettier, J.Y. Henry,
V.P. Plakthy and C. Marin, Proceedings of " Phase separation in Cuprate super-
conductors", Erice Sicily, Eds. K.A. Muller, G. Benedek (World Scientific, 1993).
95. *Pseudodipolar interaction and antiferromagnetism in R_2CuO_4 compounds ($R=Pr, Nd, Sm,$
and Eu)*

- S.V. Maleyev, D. Petitgrand, Ph. Bourges, and A.S. Ivanov, *Itinerant Electron Magnetism: Fluctuation effects*, Eds. D. Wagner *et al.*, (Kluwer, Amsterdam, 1998), 67-87.
96. *From magnons to the resonance peak: spin dynamics in high- T_C superconducting cuprates by inelastic neutron scattering*
Ph. Bourges, in *The gap Symmetry and Fluctuations in High Temperature Superconductors*, Eds. J. Bok, G. Deutscher, D. Pavuna and S.A. Wolf., (Vol. 371 in NATO ASI series, Physics), (Plenum Press, 1998), 349-371.
97. *Phase diagrams and spin correlations in $YBa_2Cu_3O_{6+x}$*
L.P. Regnault, Ph. Bourges, and P. Burlet, in *Neutron Scattering in Layered Copper-Oxide Superconductors*, Ed. A. Furrer, (Kluwer, Amsterdam, 1998), 85-134.
98. *Spin dynamics in high- T_C superconductors*
Ph. Bourges, Y.Sidis, H.F. Fong, B. Keimer, L.P. Regnault, J. Bossy, A.S. Ivanov, D.L. Milius, and I.A. Aksay, in *High Temperature Superconductivity*, Eds. S.E. Barnes *et al.*, (CP483 American Institute of Physics, Amsterdam, 1999), 207-212 (cond-mat/9902067).
99. *Spin dynamics in cuprates and its relation to superconductivity*
Ph. Bourges, Lecture for "Neutron Scattering in Novel Materials" (8th PSI Summer School on Neutron scattering, Zuoz, Switzerland), Ed. A. Furrer, (World Scientific, Singapore, 2000), 252-265 (cond-mat/0009373).
100. *Magnetic resonance peak and non-magnetic impurities*
Y. Sidis, Ph. Bourges, B. Keimer, L. P. Regnault, J. Bossy, A.S. Ivanov, B.Hennion, P. Gautier-Picard, G.Collin, in *Open Problems in Strongly Correlated Electron Systems*, Eds. J. Bonča *et al.*, (Kluwer Academic Publishers, Dordrecht/Boston/London, 2001), 59-68 (cond-mat/0006265).

Introduction

Quinze années après la découverte de la supraconductivité (SC) à haute température critique (HTC) dans des oxydes de cuivres [1], le mécanisme responsable de ce phénomène physique remarquable reste très discuté. Bien qu'un couplage électron-phonon [2] ne soit pas encore totalement exclu et connaît même un certain regain d'intérêt[3], il est clair que la symétrie non-conventionnelle de type d du paramètre d'ordre supraconducteur nécessite une interaction anisotrope entre les électrons. Ainsi, une interaction par les corrélations magnétiques représente une alternative plausible pour l'établissement de la supraconductivité à haute température critique[4, 5],

Dans ce mémoire, j'essaierai de mettre en perspective les résultats de diffusion inélastique de neutrons (DIN) pour répondre à cette question toujours ouverte du mécanisme de la supraconductivité à haute température critique. La diffusion inélastique de neutrons joue un rôle important dans la physique des cuprates, qui provient de l'observation de fluctuations magnétiques ayant un comportement riche et varié en fonction du dopage. En particulier, on observe dans l'état supraconducteur une excitation magnétique nouvelle, appelée pic de résonance, dont l'existence pourrait être la signature d'un mécanisme associé au magnétisme.

Dans un premier temps, une présentation succincte de la physique des supraconducteurs à haute température critique sera faite. Je décrirai un diagramme de phase générique en fonction du dopage qui, par bien des aspects, reste encore assez flou. Je présenterai ensuite différentes alternatives théoriques pour expliquer ce diagramme de phase, en indiquant les difficultés. Enfin, je soulignerai le rôle des neutrons pour la compréhension de ces composés.

Le deuxième chapitre sera consacré à ce pic de résonance, observé uniquement dans la phase supraconductrice. Tout d'abord, je présenterai son observation au vecteur d'onde antiferromagnétique dans plusieurs composés distincts et sa relation avec l'apparition de la supraconductivité. Je montrerai aussi l'extrême sensibilité des fluctuations magnétiques aux impuretés de Ni et Zn, qui par ailleurs réduisent fortement la température

supraconductrice. Je détaillerai ensuite sa dépendance en vecteur d'onde tout à fait originale. Enfin, les principaux modèles théoriques pour l'explication de cette excitation seront décrits.

Dans un dernier chapitre, je traiterai des résultats de diffusion de neutrons dans l'état normal des cuprates à HTC, et en particulier du système $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$. Tout d'abord la dépendance en vecteur d'onde des fluctuations antiferromagnétiques sera décrite dans deux régimes distincts, à basse et à haute énergie. Cette extension dans l'espace réciproque sera discutée en relation avec la température supraconductrice. Le spectre des fluctuations magnétiques sera présentée dans une seconde partie. Le poids spectral en unités absolus déterminé par les mesures de diffusion de neutrons sera ensuite discuté en relation avec un autre technique qui sonde les fluctuations magnétiques, à savoir la Résonance Magnétique Nucléaire. Enfin, je présenterai différents modèles qui tentent de rendre compte théoriquement de la susceptibilité de spins déduite de ces mesures.

Chapitre 1

Cuprates

1.1 Le diagramme de phase des cuprates

Tous les supraconducteurs à haute température critique sont des systèmes en couches contenant un ou plusieurs plans CuO_2 par maille élémentaire séparés par d'autres type de plans, appelés plans réservoirs de charges, différents d'un système à un autre. Cette construction en couches successives met en relief la nature bidimensionnelle (2D) et fortement anisotrope de ces composés. Le plan CuO_2 est ainsi la brique élémentaire qui est supposée non seulement responsable de la supraconductivité à haute température critique mais aussi des propriétés anormales de l'état métallique. Les propriétés physiques des supraconducteurs à haute température critique sont ainsi principalement contrôlées par le nombre de trous, n_h , transféré des plans réservoirs dans les plans CuO_2 . La figure 1.1 représente un diagramme de phase générique et schématique des cuprates en fonction du taux de dopage, obtenu après 15 années d'études[1, 6, 7]. A dopage nul, les cuprates sont des isolants de Mott avec un ordre antiferromagnétique (AF) à longue distance, dont le vecteur de propagation est $\mathbf{Q}_{\text{AF}} = (\frac{1}{2}, \frac{1}{2}) \equiv (\pi/a, \pi/a)$ dans le réseau carré ($a \simeq 3.85 \text{ \AA}$ est le paramètre du réseau qui correspond à la distance Cu-Cu). Cet état de Néel est détruit par un faible taux de porteurs $n_h \sim 2-3 \%$, et laisse place à un état à caractère plutôt métallique et qui devient supraconducteur à basse température lorsque l'on augmente le dopage. Cependant, des fluctuations dynamiques antiferromagnétiques autour de ce même vecteur d'onde sont observées dans une majeure partie de ce diagramme de phase par diffusion de neutrons ou par des mesures de Résonance Magnétique Nucléaire(RMN) du cuivre[8]. La transition supraconductrice décrit une courbe en cloche dont le maximum définit le dopage optimal, n_{opt} , séparant le régime sous-dopé du régime sur-dopé respectivement pour des dopages inférieurs et supérieurs au dopage optimal. Les propriétés physiques dans les différentes parties du diagramme de phase sont distinctes. L'état fortement sur-dopé se rapproche plutôt d'un métal ordinaire tandis que l'état sous-dopé présente un mélange composite de propriétés métalliques et isolantes.

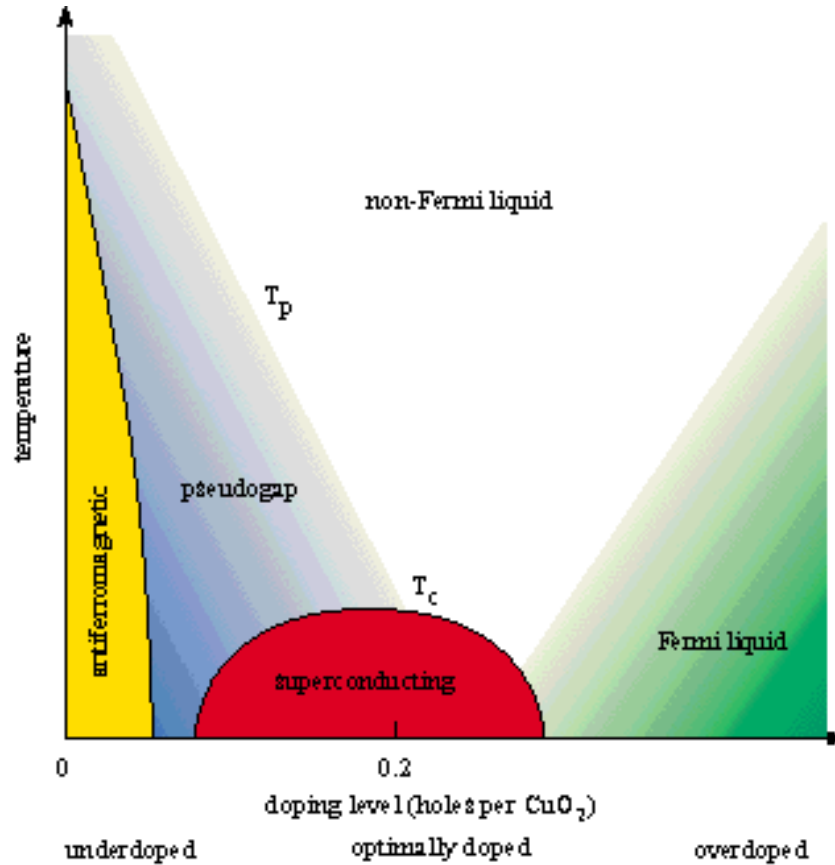


Figure 1.1: Diagramme de phase générique des supraconducteurs à haute température critique. T_p représente l'apparition de la phase de pseudo-gap ([6]).

1.1.1 Comportement non-"liquide de Fermi"

En principe, une transition métal-isolant a lieu à faible dopage avant que n'apparaisse la supraconductivité. Cependant, des propriétés de transport inhabituelles pour un métal sont observées dans une grande partie du diagramme de phase (Fig. 1.1) (et en particulier autour du dopage optimal [9]), soulignant un caractère non-"liquide de Fermi" des cuprates. Par exemple, la résistivité présente quasi systématiquement une dépendance linéaire en fonction de la température (Fig. 1.3) [10, 11]. Cet ensemble de comportements a donné lieu à une approche phénoménologique, appelé liquide de Fermi marginal [12], basé sur l'hypothèse de fluctuations tant de charges que magnétiques couplées aux quasi-particules. Ces fluctuations doivent avoir un comportement en énergie (ω/T à basse énergie, constant sinon), qui implique nécessairement la disparition du pic de quasi-particules strictement au niveau de Fermi. Plus surprenant encore est l'observation d'un comportement de type isolant à basse température lorsque la supraconductivité est détruite par un champ magnétique intense (de plusieurs dizaines Tesla) [13]. Les cuprates se présentent donc quasiment comme des isolants s'ils n'étaient pas supraconducteurs ! Ainsi, les propriétés de transports indiquent que les cuprates ne se comporte pas comme un métal

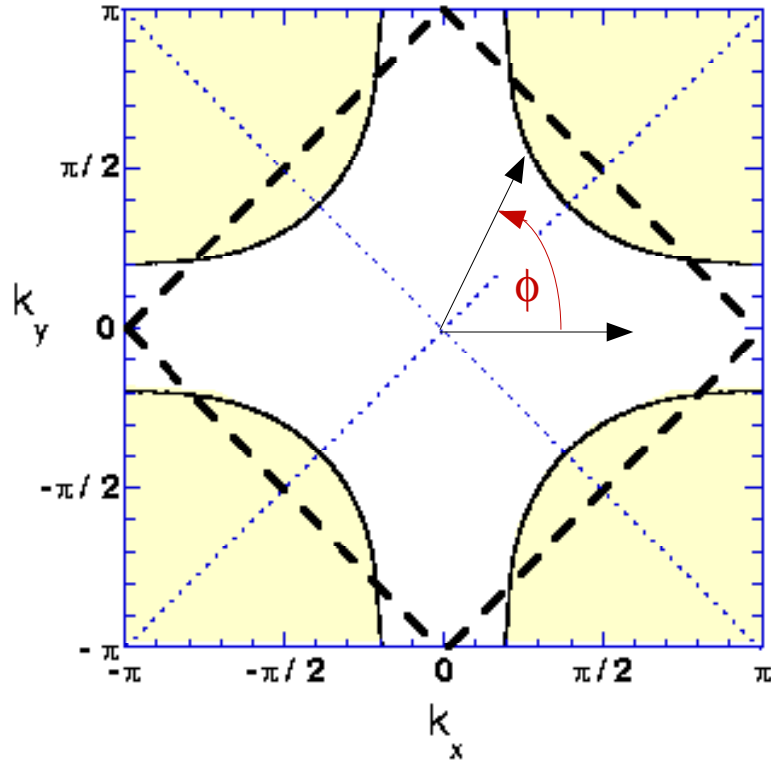


Figure 1.2: Surface de Fermi typique (traits pleins) déterminée par photoémission résolue en angle (ARPES) dans $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ [125]. Cette surface est représentée dans le plan réciproque du plan CuO_2 . Les parties grisées représentent les états occupés en trous. La ligne hachurée est obtenue par un modèle de liaisons fortes avec seulement l'interaction premiers voisins (cf Eq. 1.4) pour un dopage nul (Surface de Fermi pour un demi-remplissage).

ordinaire.

Cet écart avec la théorie du liquide de Fermi a, par la suite, été confirmé par des expériences de spectroscopie de photoémission résolue en angle (ARPES)[14, 15, 16] qui mesurent directement la réponse électronique à une particule. Ces mesures sont caractérisées par l'absence dans l'état normal de pic de quasi-particules. Ce pic est remplacé dans les cuprates par un spectre incohérent très large. Cependant, ces mesures ont tout de même permis de déterminer une surface de Fermi large séparant des états électroniques occupés en trous des états vides (comme il a été schématiquement représenté sur la Fig. 1.2). De plus, la forme globale de cette surface de Fermi évolue peu en fonction du dopage[16, 17].

1.1.2 Phase de pseudo-gap

Cependant la partie la plus étrange de ce diagramme de phase est certainement l'état, dit de *pseudo-gap*. En effet, les mesures de transport [10, 11] et thermodynamiques [18]

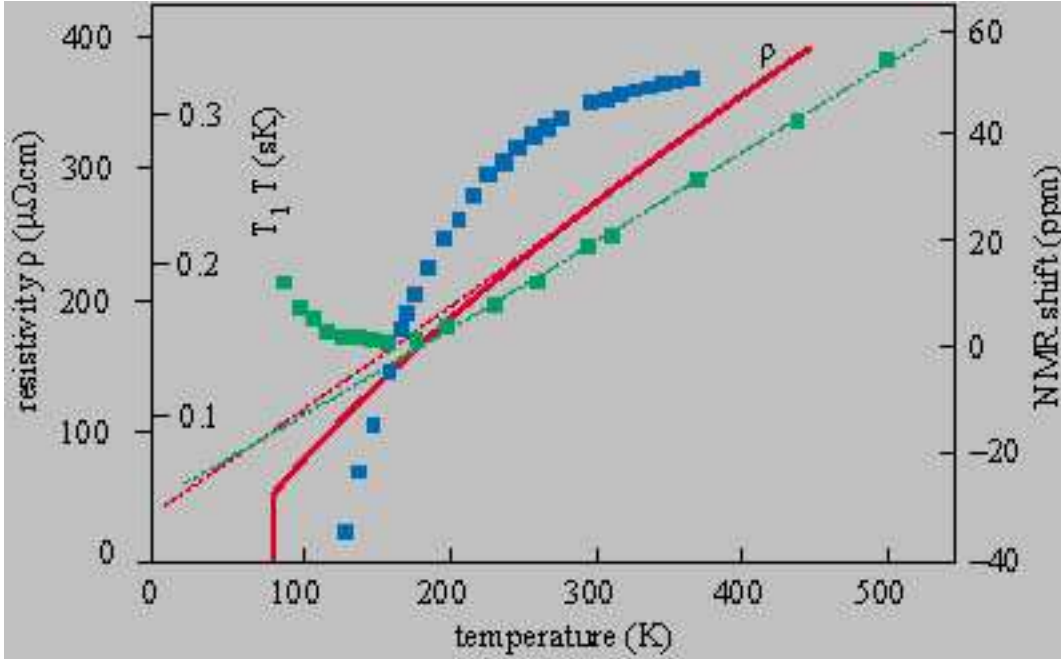


Figure 1.3: Mesures de résistivité (ligne pleine rouge) [11], de susceptibilité uniforme déterminé par le "Knight shift" RMN (carrés bleus) [23], inverse du temps de relaxation RMN spin-réseau T_1T du noyau du cuivre [24]. Ces mesures ont été obtenues dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ sous-dopé $x \sim 0.6$ ([6]).

indiquent une multitude d'anomalies (Fig. 1.3) autour d'une température, T_p sur la Fig. 1.1, plus grande que T_c . Toutes ces anomalies s'interprètent par une réduction du poids spectral des états électroniques au niveau de Fermi en réduisant la température. Elles suggèrent l'ouverture d'un pseudo-gap. De plus, les différentes spectroscopies mesurant la dynamique des porteurs de charges - expériences de photoémission [15], mesures infrarouges de conductivité optique [19], diffusion Raman [20, 21] ou expériences d'effet tunnel [22] - sont caractérisées par une disparition des états électroniques de basses énergies en dessous de cette température T_p (clairement supérieure à T_c). Cela pose la question de l'existence d'une surface de Fermi dans ces systèmes, qui ne serait pleinement définie qu'à haute température. A plus basse température, uniquement des portions réduites de la surface de Fermi sont observées, appelés "Fermi Arcs"[14].

Les propriétés magnétiques ne sont pas en reste. Il est en effet connu depuis 1989 que la susceptibilité uniforme de spins, mesuré par des mesures de Knight shift en RMN, ne se comporte pas comme une susceptibilité de Pauli mais montre systématiquement une réduction au fur et à mesure que l'on diminue la température [23] (Fig. 1.3). De même la RMN du noyau du cuivre (qui sonde les fluctuations de spins AF) [8, 24] ainsi que les mesures de DIN [25] ont mis en évidence une diminution des fluctuations de basses énergies et à $(\pi/a, \pi/a)$ dès l'état normal, comportement là aussi caractéristique d'un pseudo-gap de spin. Le produit de la température par le temps de relaxation spin-réseau sur le site du cuivre $T_1T \propto \omega/\chi''(q, \omega)$ passe par un minimum sur la Fig. 1.3.

Enfin, comme le montre la Fig. 1.3, ces différentes anomalies des propriétés physiques ne définissent pas systématiquement une même température critique mais plutôt chaque technique est sensible à l'apparition du pseudo-gap à des températures différentes. Cela semble indiquer qu'il n'y a pas de transition franche vers cette phase de pseudo-gap. Cependant, la comparaison de plusieurs propriétés physiques semble suggérer l'existence d'un point critique quantique (QCP) à un dopage légèrement supérieur au dopage optimal [26]. Dans ce cas, toutes les propriétés physiques des cuprates, où T_C serait proche du maximum, seraient nécessairement contrôlées par ce point critique. La description de la phase de pseudo-gap (et du comportement non-"liquide de Fermi") est donc un pré requis pour la compréhension du mécanisme de la supraconductivité à haute température critique. En tout état de cause, le diagramme de phase de la Fig. 1.1 suggère fortement un appariement supraconducteur non-conventionnel.

1.1.3 "Stripes"

La remise en cause du liquide de Fermi dans ces systèmes a été renforcée par l'observation d'un ordre de spins et de charges dans les cuprates de type $\text{La}_{2-x-y}\text{Nd}_y\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ où 40 % du lanthane est substitué par du Nd [27]. Ces cuprates dopés en trous comme les composés sans Nd restent isolants et ne deviennent pas supraconducteurs. Des pics statiques magnétiques incommensurables sont observés près du vecteur d'onde AF avec en plus l'apparition de pics incommensurables autour des pics de Bragg structuraux avec une discommensuration double. Ces derniers pics sont vraisemblablement l'indice de déplacements atomiques induits par un ordre de charges. La double discommensuration des "pics de charges" par rapport aux pics magnétiques provient de la périodicité double de l'antiferromagnétisme. Ces résultats ont orienté la description des cuprates vers des distributions hétérogènes de charges dans les plans CuO_2 . Des zones riches en porteurs de charges formant des lignes, appelées "stripes", séparent des zones pauvres en porteurs de charges où l'ordre antiferromagnétique serait restauré. Cet ordre n'apparaît que dans des composés qui ne sont pas supraconducteurs mais il a été proposé que cette séparation de phase électronique serait aussi présente dans les cuprates supraconducteurs où les "stripes" seraient alors dynamiques [28, 29]. L'état fondamental serait alors un isolant dopé sans formation de surface de Fermi. Cette description s'oppose donc clairement au modèle du liquide de Fermi et offre une alternative qui a provoqué beaucoup d'intérêts dans la communauté.

1.1.4 Gap supraconducteur

La supraconductivité dans les cuprates est caractérisée par un paramètre d'ordre non-conventionnel de symétrie $d_{x^2-y^2}$. Il présente une dépendance en vecteur d'onde,

$$\Delta_{\mathbf{k}} = \frac{\Delta_{max}}{2}(\cos k_x - \cos k_y) = \Delta_{max} \cos(2\phi) \quad (1.1)$$

où les vecteurs d'ondes k_x et k_y couvrent le plan réciproque du plan CuO_2 , ϕ est l'angle que fait un vecteur d'onde sur la surface de Fermi avec l'axe (0,1) (Fig. 1.2). Ce résultat

a été bien établi par recoupement des mesures de photoémission [30] et des expériences de jonctions Josephson [31]. On observe un rapport $2\Delta_{max}/kT_C \sim 7-9$ autour du dopage optimal (en accord avec la valeur déduite de la diffusion Raman mesurant les excitations électroniques [20]), beaucoup plus élevé que la valeur canonique de la théorie BCS de la supraconductivité [32] ~ 3.5 . De plus, le maximum de ce gap évolue de manière surprenante en fonction du dopage dans la mesure où il ne suit pas T_C , augmentant pour les plus faibles dopages [33]. Ce comportement souligne un désaccord important avec la théorie classique [2] de la supraconductivité. L'évolution en dopage de Δ_{max} est en fait proche du comportement du pseudo-gap (T_p dans la Fig. 1.1) : le pseudo-gap est ainsi généralement considéré comme un précurseur du gap supraconducteur. Dans ce cas, les paires supraconductrices seraient formées à partir de T_p mais ne seraient cohérentes qu'en dessous de T_C . Cependant, il faut noter que d'autres mesures des propriétés supraconductrices (Réflexion Andreev, longueur de pénétration,...) ne suivent pas cette tendance [34]. Elles pourraient indiquer un second gap de plus basse énergie, Δ_c , qui lui suivrait la dépendance en dopage de T_C avec systématiquement $2\Delta_c/kT_C \sim 5-6$. Ce second gap a été interprété comme un gap de cohérence supraconductrice [34], mais de manière alternative, il pourrait être associé à des portions différentes de la surface de Fermi.

1.2 Quelle description théorique ?

1.2.1 Plan CuO_2

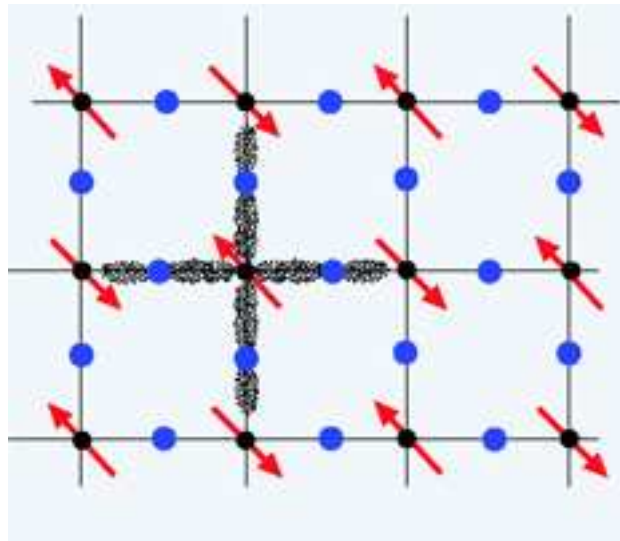


Figure 1.4: Le plan CuO_2 : les ronds noirs(rouges) représentent les atomes de cuivres (oxygènes). Les flèches indiquent les spins $\frac{1}{2}$ du Cu^{2+} .

Une question essentielle est alors comment l'état électronique des cuprates peut être traité microscopiquement. L'intention est ici uniquement de décrire succinctement cer-

taines approches théoriques en focalisant sur les aspects magnétiques. La difficulté principale de la description théorique des cuprates provient des fortes corrélations électroniques du plan CuO_2 (Fig. 1.4), qui se traduit par une proximité systématique d'une phase ordonnée antiferromagnétique à dopage nul. Les atomes de cuivres sont dans un état de valence Cu^{2+} ($3d^9$) avec un seul électron non-apparié sur la dernière couche électronique et portant un spin $S = \frac{1}{2}$.

L'état électronique du plan CuO_2 est généralement décrit par l'hamiltonien de Hubbard [35]. Il s'écrit,

$$H = U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} - t \sum_{i,j,\sigma} c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} \quad (1.2)$$

où le site i est un site quelconque avec j un site voisin de i et σ est un indice de spin. $c_{i\sigma}^\dagger$ est l'opérateur qui insère un électron dans une orbitale atomique sur le site i avec le spin σ et $c_{j\sigma}$ l'enlève du site j . Ce modèle de Hubbard à une bande est une simplification pour les cuprates : t représente une intégrale de transfert, typiquement entre les orbitales d du cuivre et p de l'oxygène. A dopage nul, dans la limite $U/t \gg 1$, l'état fondamental est un isolant de Mott avec un ordre de Néel des spins du cuivre (comme il est schématisé sur la Fig. 1.4) dont le vecteur d'onde antiferromagnétique est $(\pi/a, \pi/a)$. L'interaction de super-échange magnétique dans ce modèle est alors $J \sim 4t^2/U$. La valeur de ce super-échange magnétique de $J \sim 0.12$ eV a été déterminé à partir du spectre d'ondes de spins sur plusieurs cuprates à dopage nul [36].

Bien que cet hamiltonien soit assez largement considéré comme contenant la physique suffisante à la compréhension des cuprates, certains aspects qui pourraient s'avérer nécessaires en sont absents, comme d'autres interactions électroniques donnant lieu à des courants orbitaux [37, 38]. Également, une critique du modèle de Hubbard concerne les interactions électron-phonon et les interactions coulombiennes à longue portée qui sont négligées. Ainsi, ce modèle simple alliant la forte répulsion coulombienne sur le site du cuivre U et un modèle de liaisons fortes, n'est pas totalement accepté à ce jour pour potentiellement couvrir toute la physique des cuprates.

1.2.2 Corrélations électroniques: modèle- $t - J$

A partir de ce modèle de Hubbard, deux points de départ théoriques sont généralement considérés pour décrire l'état métallique : soit on décrit les cuprates à partir de la phase isolante antiferromagnétique à dopage nul dans lequel on injecte des porteurs de charges (limite couplage fort), soit on considère un état métallique (en principe réalisé à fort dopage) dans lequel on traite les corrélations magnétiques en perturbations (limite couplage faible). Il est généralement admis que les cuprates correspondent à une limite de couplage fort ($U/t \gg 1$) avec un rôle important des corrélations antiferromagnétiques. Malheureusement, le modèle de Hubbard n'est pas soluble à deux dimensions. Des approximations plus ou moins contrôlées doivent alors être faites qui, pour l'instant, n'ont pas abouti à un consensus clair. Par conséquent, la limite de couplage faible a été aussi très largement utilisé (par exemple [4, 39, 40]). De manière surprenante, elle permet de

rendre compte de plusieurs aspects des propriétés physiques des supraconducteurs à haute température critique. En tout état de cause, ces deux types d'approches, que nous allons maintenant détailler, ont permis de mieux cerner la physique originale des cuprates.

Dans la limite de couplage fort qui a été largement étudié, l'hamiltonien de Hubbard, Eq. 1.2, peut être ré-écrit dans le cadre du modèle- $t - J$ [35],

$$H_{t-J} = -t \sum_{i,j,\sigma} c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + J \sum_{i,j} (S_i S_j - \frac{1}{4}) \quad (1.3)$$

Le caractère 2D des cuprates rend difficile le traitement de ces modèles en couplage fort (généralement soluble à une dimension). Le traitement de ce modèle en champ moyen a donné lieu à une hypothèse de séparation spin-charge [41, 42, 43] des électrons. Dans cette approche, les excitations de spins (spinons) sont distinctes des excitations de charges (holons). Ces dernières seraient responsables des propriétés de transport alors que les spinons correspondraient au degré de liberté magnétique. L'avantage de cette séparation spin-charge est qu'elle explique naturellement pourquoi une surface de Fermi large est observée en photoémission (dont le surface vaut $1+n_h$ trous) alors que les propriétés de transports sont proportionnelles au dopage, la surface de Fermi serait celle des spinons alors que seuls les holons contribueraient aux mesures de transports. Cependant, cette séparation spin-charge paraît peu vraisemblable à deux dimensions : les corrections de champ de jauge incluant les fluctuations font disparaître cette séparation spin-charge postulée en champ moyen[42]. De plus, elle n'a pas rencontré d'autre support expérimental. Une autre technique pour traiter le modèle $t - J$, qui utilise les opérateurs de Hubbard, propose un caractère dual localisé-itinérant des fluctuations qui pourraient rendre compte du spectre magnétique observé dans les cuprates[44].

Pour dépasser cette difficulté, il a été proposé que l'état fondamental du plan CuO_2 dopé présente une ségrégation de phase ou les charges se regroupent afin de minimiser l'énergie cinétique[28, 29]. Cette idée s'est très largement popularisée dans la mesure où elle donne une image physique simple dans l'espace réel. De fait, les simulation numériques dans le cadre du modèle- $t - J$ semblent indiquer des corrélations de ce type [45]. Cependant, les faits expérimentaux considérés en faveur de ce type de modèle[29] sont globalement très limités. Il apparaît ainsi que cette approche reste largement une hypothèse théorique intéressante plutôt qu'une description réaliste des cuprates.

1.2.3 Approches de type "Liquide de Fermi"

L'autre limite de couplage faible est traitée par des approches de type "Liquide de Fermi". Il convient en premier lieu d'établir une théorie de structure de bandes électroniques qui permettent de rendre compte de la surface de Fermi et des dispersions électroniques. On considère un modèle de liaisons fortes comme précédemment mais avec des interactions à plusieurs voisins,

$$H = \sum_{i,j,\sigma} t_{ij} c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} \quad (1.4)$$

Les intégrales de transfert des premiers t et seconds voisins t' suffisent généralement pour rendre compte des mesures de photoémission, mais un affinement complet nécessite des interactions allant jusqu'au quatrième voisin [46]. Pour obtenir une surface de Fermi comme Fig. 1.2, le rapport t'/t doit être de l'ordre de ~ -0.4 . La surface de Fermi, telle que Fig. 1.2, ne présente pas de propriété d'emboîtement proprement dite mais cependant le caractère 2D des cuprates donne lieu à des singularités de la densité d'états électroniques autour du vecteur d'onde $M = (\pi/a, 0) \equiv (0, \pi/a)$ [47]. Autour de ces points, on observe des bandes électroniques qui sont plus ou moins proches du niveau de Fermi et surtout dont la dispersion est faible. Ces bandes plates permettent des effets topologiques importants [48, 40]. En particulier, ces effets pourraient expliquer la phase du pseudo-gap par une transition électronique topologique lorsque la surface de Fermi se referme en ce point M [40]. Au niveau du magnétisme, ces points sont de fait connectés par le vecteur d'onde AF, $(\pi/a, \pi/a)$ qui permet un renforcement de la susceptibilité de spins sans interactions en ce point. Ce type d'idée, où ces "hot spots" jouent un rôle prépondérant dans l'existence des corrélations AF, a aussi été proposé semi-phénoménologiquement dans le cadre du modèle de spin-fermion [39]. Cela donne également une justification microscopique à l'approche classique proche d'un liquide de Fermi AF (NAFL) [4, 49].

Dans cette limite de couplage faible, les interactions supposées faibles sont ensuite introduites dans l'approximation classique de la phase aléatoire (RPA) [50, 51]. Suivant les modèles, le rôle des interactions est tenu soit la répulsion coulombienne du cuivre, soit par un couplage spin-fermion ad hoc [39], soit par le super-échange AF $J(Q)$ [40]. Au vu des ordres de grandeur des interactions mises en jeu, cette dernière alternative est assez raisonnable. Bien que l'approximation RPA soit assez grossière, elle permet de décrire qualitativement les données neutrons et de RMN du cuivre dans une large gamme de dopage autour du dopage optimal [40, 52]. Nous verrons qu'une comparaison quantitative du poids spectral des corrélations AF montre que l'on est systématiquement proche d'instabilités magnétiques proche du vecteur d'onde AF. On déduit un facteur de Stoner à $(\pi/a, \pi/a)$ très proche de 1 où en principe l'approximation de type RPA n'est plus valide. Ce type d'approche est ainsi souvent critiqué du fait qu'il ne traite pas correctement les corrélations. La proximité systématique de cette instabilité magnétique met en relief la difficulté du traitement théorique des cuprates.

1.2.4 Le pseudo-gap

Plusieurs propositions ont été formulées pour expliquer l'existence du pseudo-gap. Le pseudo-gap est souvent associé à la trace d'un point quantique critique [4, 40, 37, 38] autour du dopage optimal. Cependant, cette ligne correspond soit à un changement qualitatif des propriétés physiques [4, 40, 53], par exemple, relié à l'apparition de fluctuations antiferromagnétiques à basse température. Dans d'autres approches, le point quantique critique est de fait généré par une brisure de symétrie d'un paramètre d'ordre caché associé à des boucles de courants [37, 38]. Ces paramètres d'ordre sont ainsi caractérisés par des moments magnétiques orbitaux dont le vecteur de propagation dépend de la symétrie ces courants : suivant le type d'approche, soit le vecteur AF [38] pour une boucle de courant

sur une plaquette CuO_2 , soit $q = 0$ [37] avec quatre boucles de courant sur une plaquette CuO_2 pour conserver la symétrie. Malheureusement, ces propositions restent très hypothétiques pour le moment et les différentes tentatives pour les vérifier ont échouées. Dans d'autres approches, la phase de pseudo-gap est interprétée par la formation de paires supraconductrices préformées dans la phase normale[28, 54] mais sans cohérence à longue distance qui aurait lieu uniquement très près de T_C . Cependant, aucune évidence de paires supraconductrices préformées n'a été détecté à ce jour[7]. Dans l'hypothèse de séparation spin-charge, les spinons s'apparient dans la phase du pseudo-gap et se recombinent en vraies paires d'électrons uniquement dans la phase supraconductrice [42]. Suivant les modèles, la phase de pseudo-gap doit soit recouvrir l'ensemble du dôme supraconducteur soit doit disparaître pour un dopage proche du dopage optimal. La position en dopage précise du point critique quantique est essentiel pour valider ces différentes approches.

1.2.5 Mécanismes de la supraconductivité à HTC

De nombreux mécanismes pour la supraconductivité à HTC ont été envisagé depuis 1987. Il est généralement considéré que de la compréhension de la phase du pseudo-gap se déduira naturellement le mécanisme de la supraconductivité à HTC. Bien sur, l'approche classique élaboré en 1957 par Bardeen, Cooper, et Schrieffer (théorie BCS) [2] d'interaction électron-phonon simple semble être insuffisante. Cependant, comme ces cuprates sont des systèmes fortement bidimensionnels (2D), les densités d'états électroniques peuvent être amplifiées soit à cause de singularités de van-Hove (divergence logarithmique) [47, 55], soit être associées à des bandes électroniques proche du niveau de Fermi et ayant peu de dispersion [48]. Le rôle de ces singularités est certainement non-négligeable dans l'ampleur de la supraconductivité à haute température critique, mais en fait ne sont vraisemblablement pas déterminantes pour expliquer son établissement, principalement à cause de la symétrie anisotrope du paramètre d'ordre supraconducteur (OP-SC) qui nécessite une interaction non-conventionnelle. L'établissement d'une symétrie- d non-conventionnelle du OP-SC a de fait favorisé les modèles basés sur les corrélations magnétiques dès l'apparition des supraconducteurs à haute température critique[56]. En effet, du fait du recouvrement des orbitales suivant les axes du plan CuO_2 , la symétrie- $d_{x^2-y^2}$ se déduit naturellement de l'interaction de super-échange[4, 5]. Les simulations numériques dans le cadre du modèle de Hubbard conduisent d'ailleurs a un appariement supraconducteur de symétrie $d_{x^2-y^2}$ [45] renforçant fortement cette hypothèse.

Cependant, il a été aussi argumenté que cette symétrie d du OP-SC pourrait aussi être obtenue avec une interaction électron-phonon mais en tenant compte des fortes interactions électroniques présents dans les cuprates[57]. Par ailleurs, des mesures récentes de photoémission ont été interprété dans le cadre d'un fort couplage électron-phonon[3]. Il semble néanmoins cette interprétation de ces dernières mesures soit un peu trop simpliste et n'élimine pas le rôle dominant des interactions électroniques (donc magnétiques) pour expliquer les anomalies de la structure de bande électroniques. On peut aussi indiquer que des hypothèses de couplage électron-phonon de type polaronique ont été généralement peu considérées. La solution pourrait en fait recouvrir ces différents ingrédients qui

maintiennent un équilibre fragile permettant l'apparition de la supraconductivité à HTC.

1.3 Pourquoi les neutrons dans les supraconducteurs à haute température critique

Parmi d'autres modèles plus exotiques pour le mécanisme de la supraconductivité, les fluctuations de spins [4, 5], demeure donc une alternative tout à fait intéressante. L'existence de fortes corrélations dynamiques antiferromagnétiques (AF) dans l'état métallique et supraconducteur de tous les cuprates soutiennent par principe ce type de mécanisme. Les mesures de Résonance Magnétique Nucléaire (RMN) sur le noyau du ^{63}Cu [8, 24] ont été les premières à prouvé l'existence de fortes fluctuations magnétiques localisées dans l'espace réciproque autour du vecteur d'onde AF, Q_{AF} défini plus haut. Les mesures de diffusion inélastique de neutrons (DIN) ont ensuite confirmé ce résultat en précisant leurs dépendances en fonction du vecteur d'onde et de l'énergie. L'observation de comportement varié de la susceptibilité de spins a d'ailleurs amené de nombreuses études par diffusion de neutrons. Les mesures de neutrons jouent, en effet, un rôle essentiel étant la seule technique expérimentale qui mesure directement la transformée de Fourier de la fonction de corrélation spin-spin sur une gamme d'énergie importante ($\hbar\omega \sim 1$ à 200 meV) et pour n'importe quel vecteur d'onde dans l'espace réciproque. Cela est dû à l'interaction dipolaire entre le spin du neutron avec n'importe quel moment magnétique présent dans l'échantillon, et en particulier le spin des électrons non appariés. La section efficace de neutrons est par définition proportionnelle à la fonction de diffusion,

$$S^{\alpha\beta}(Q, \omega) = \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} dt \exp(-i\omega t) \langle S_Q^\alpha S_{-Q}^\beta(t) \rangle \quad (1.5)$$

où S_Q^α ou S_{-Q}^β représentent une des 3 composantes cartésiennes du spin. Cette réponse magnétique est elle-même reliée à la partie imaginaire de la susceptibilité de spins $Im\chi(Q, \hbar\omega)$. En unité absolue, la susceptibilité de spins s'écrit [58, 59]

$$\chi^{\alpha\beta}(q, \omega) = -(g\mu_B)^2 \frac{i}{\hbar} \int_0^\infty dt \exp^{-i\omega t} \langle [S_i^\alpha(t), S_j^\beta] \rangle \quad (1.6)$$

pour les mêmes composantes du spin. Les mesures de diffusion inélastique de neutrons sondent donc totalement l'évolution en énergie et en vecteur d'onde ainsi que sur le poids spectral des fluctuations magnétiques. En comparaison, le temps de relaxation spin-réseau de la RMN ne mesure qu'une moyenne de $Im\chi(Q, \hbar\omega)$ dans l'espace réciproque pondéré par le tenseur hyperfin et à une fréquence de l'ordre du MHz, i.e. $\omega \rightarrow 0$. Cependant, la diffusion inélastique de neutrons présente le désavantage d'un faible rapport signal/bruit du fait que l'interaction neutron-matière est faible (\sim mbarns) : les résultats de DIN sont ainsi limités par la faible statistique des comptages ne permettant pas toujours une analyse détaillée. Ces deux techniques offrent donc une complémentarité qui doit permettre en principe une compréhension cohérente de la dynamique de spins. Par ailleurs, l'interaction

quasi-ponctuelle des neutrons avec les fluctuations de positions des noyaux atomiques permet une mesure du spectre des phonons. Les facteurs de structure de ces modes de réseau peuvent être calculés par des modèles de dynamique de réseau. Ainsi, on peut en principe étalonner l'intensité des neutrons diffusés en unités absolues, déterminant, de fait, directement le poids spectral des fluctuations magnétiques. Bien qu'étant généralement peu utilisée, cette méthode est très efficace pour une compréhension théorique détaillée [36, 60]. Elle a été assez récemment appliquée au cas des supraconducteurs à haute température critique [61, 62, 63, 64] avec pour l'instant encore peu d'impact sur la compréhension de ces systèmes. Elle sera très certainement essentielle dans un avenir proche autant pour les modèles théoriques que pour les résultats de RMN dont la comparaison avec les mesures neutrons donne lieu pour l'instant à une certaine contradiction [8]. En dernière analyse, dans l'hypothèse où l'appariement de la supraconductivité est dû au magnétisme, le potentiel d'interaction doit être proportionnel à la partie réelle de la susceptibilité de spins, $Re\chi(Q, \hbar\omega)$, calculable à partir de la partie imaginaire, $Im\chi(Q, \hbar\omega)$, par la relation de causalité de Kramers-Kronig. La détermination de l'évolution complète de $Im\chi(Q, \hbar\omega)$ en unités absolues par DIN devrait donc décider si le mécanisme de la supraconductivité à haute température critique est due aux fluctuations AF ou pas.

Malheureusement, la technique de diffusion inélastique de neutrons nécessite l'utilisation de monocristaux de grandes tailles (de l'ordre du cm^3), qui sont difficiles à faire croître pour des systèmes complexes comme les cuprates. De ce fait, seulement deux familles de supraconducteurs à haute température critique ont été complètement étudiées par DIN pour l'instant : $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO) [65, 66] et $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ (YBCO) [67, 68, 69, 70, 63].

Les résultats de DIN dans ces deux systèmes présentent des différences, qui ont donné lieu à un débat théorique. En effet, les fluctuations magnétiques de basses énergies dans LSCO sont maximum à un vecteur d'onde $Q_\delta = (\pi(1\pm\delta), \pi) \equiv (\pi, \pi(1\pm\delta))$, incommensurable par rapport au vecteur d'onde AF. Dans YBCO, ces fluctuations de spins sont typiquement commensurables autour de (π, π) mais avec une largeur dans l'espace réciproque du même ordre de grandeur que δ dans LSCO [71]. La question est donc : lequel de ces deux systèmes correspond au comportement canonique des fluctuations de spins dans les cuprates. L'incommensurabilité est généralement considérée comme caractéristique de fortes hétérogénéités dans ces systèmes avec l'apparition de "stripes", principalement du fait que ce modèle nécessite l'existence de fluctuations de spins incommensurables. Dans des approches plus homogènes de type liquide de Fermi, l'incommensurabilité est moins fondamentale, étant juste associée aux paramètres de la structure de bandes. Dans tous les cas, cependant, la dépendance en vecteur d'onde des fluctuations de spins est importante pour interpréter les résultats de RMN. Récemment, l'observation de fluctuations incommensurables dans YBCO avec la même symétrie que LSCO [72] a conduit à la conclusion d'universalité du magnétisme dans ces deux systèmes. Cependant, les caractéristiques des fluctuations incommensurables dans YBCO ne correspondent pas à celles de LSCO [73, 74]. Cela rend peu crédible l'affirmation d'universalité de l'incommensuration qui a été déduite [72] de ces mesures. A part cette incommensurabilité, les fluctuations de spins dans ces deux systèmes ont néanmoins des points en commun (amplitude en unités

absolus, l'échelle d'énergie de $\sim 20 - 30$ meV [68], qui soulignent un comportement assez proche. L'incommensuration des fluctuations magnétiques n'est peut être pas si cruciale.

Une propriété sans doute beaucoup plus significative de ces fluctuations de spins est l'observation dans le spectre de DIN d'une nouvelle excitation magnétique uniquement dans la phase supraconductrice, qui a été appelée "pic de résonance" lors de sa première observation en 1991 dans $\text{YBCO}_{6.92}$ par J. Rossat-Mignod *et al* [75]. Cette excitation qui est très bien définie en énergie et en vecteur d'onde a été depuis confirmée dans de nombreux échantillons d' YBCO [67, 68, 69, 70, 63, 72, 73, 84, 78] et par des mesures de neutrons polarisés [76, 77]. L'apparition de ce pic dans la susceptibilité de spins n'a pas d'équivalent dans les supraconducteurs conventionnels. Elle est donc caractéristique de la supraconductivité à haute température critique et une conséquence de la symétrie de type d du paramètre d'ordre supraconducteur [78, 68]. Récemment, un troisième système à haute température critique, $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (BSCO), a pu être étudiée par DIN, et pour l' instant exclusivement dans la phase supraconductrice. Ces mesures [79, 80] confirment néanmoins l'existence de ce pic de résonance dans BSCO et installe cette excitation comme un des paramètres fondamentaux des cuprates. En dépit de nombreux efforts, cette excitation remarquable n'a pas encore été décelée dans le spectre magnétique de LSCO. On est donc en droit de se demander si LSCO est vraiment l'archétype des supraconducteurs à haute température critique comme il est généralement considéré.

Dans les supraconducteurs conventionnels, l'interaction électron-phonon a été le plus directement démontrée par les mesures d'effet tunnel dont les oscillations de la densité d'états électroniques reproduisaient la densité d'états des phonons [32]. Dans les supraconducteurs à haute température critique, on est toujours à la recherche d'une telle preuve expérimentale qui signerait l'origine du mécanisme. Cependant, une telle preuve a été récemment avancée à partir de la forme spectrale de la réponse électronique à une particule [81, 39]. Cette quantité, soit mesurée à un vecteur d'onde bien définie par des expériences de photoémission résolue en angle (ARPES) soit intégrée dans l'espace réciproque sous la forme de densité d'états électroniques dans les expériences d'effet tunnel, présente une structure en fonction de l'énergie qui semble correspondre au pic de résonance magnétique. Également, les mesures de conductivité optique ont aussi été interprétées [82, 83] en relation avec la résonance : la dérivé seconde de la conductivité optique présente une anomalie à une énergie proche de l'énergie de la résonance. Par analogie avec les supraconducteurs classiques, ces analyses placent le pic de résonance mesuré par les expériences de DIN comme une manifestation directe du mécanisme de la supraconductivité à haute température critique.

Chapitre 2

État supraconducteur: Pic de résonance

Nous allons discuter dans ce chapitre l'évolution des corrélations magnétiques dans la phase supraconductrice. Parmi les résultats expérimentaux originaux des supraconducteurs à haute température critique, l'existence du pic de résonance en dessous de T_C dans le spectre de diffusion inélastique de neutrons est certainement l'un des phénomènes marquants. Ce pic magnétique apparaît en effet *exclusivement* dans la phase supraconductrice. Depuis sa découverte en 1991[75], cette excitation magnétique collective a été largement étudiée[68, 63, 64]. Elle a suscité de nombreux développements théoriques, et ce pic est typiquement décrit comme une excitation magnétique collective qui apparaît à une énergie inférieure au seuil du continuum électron-trou du fait des interactions magnétiques. Ce continuum est lui-même défini par une excitation où deux quasi-particules sont créés au niveau de Fermi dont les vecteurs d'ondes diffèrent d'exactly $(\pi/a, \pi/a)$ et dont l'énergie minimum est proportionnelle au gap supraconducteur. Comme il a été discuté au chapitre précédent, il a été proposé que cette excitation soit très étroitement relié aux propriétés électroniques.

Je vais, tout d'abord, détailler l'apparition de cette excitation au vecteur d'onde antiferromagnétique dans plusieurs cuprates et montrer l'effet de la substitution d'impuretés sur le site du cuivre des plans CuO_2 . Puis, je vais discuter le comportement de ce mode dans l'espace réciproque, ainsi que l'ouverture d'un gap de spin à basse énergie. Enfin, je vais indiquer les principales interprétations de ce mode dans différentes perspectives, avant d'évoquer l'impact de ce mode pour le mécanisme de la supraconductivité à HTC.

2.1 Vecteur d'onde Antiferromagnétique

2.1.1 Dopage optimal

Décrivons tout d'abord cette excitation dans les échantillons proches du dopage optimal (ou faiblement sur-dopé). Pour ces échantillons, par exemple YBCO quand $x \geq 0.95$, la diffusion de neutrons ne détecte pas ou très difficilement de signal magnétique dans l'état normal[84, 78] (cet aspect sera discuté au chapitre suivant). Empiriquement, ce résultat est très utile car la mesure à $T=100$ K détermine le bruit de fond associé aux autres pro-

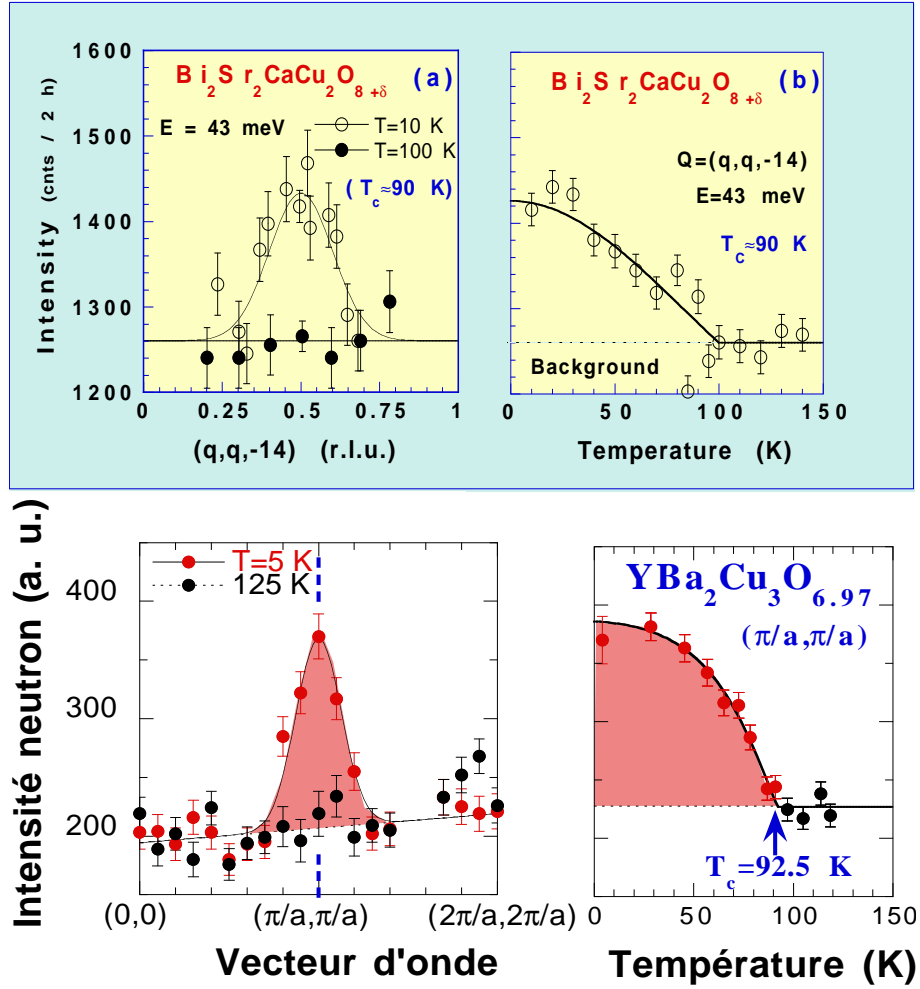


Figure 2.1: Droite) Dépendance en vecteur d'onde du pic de résonance (autour du dopage optimal) pour YBCO et BSCO. Gauche) Dépendance en fonction de la température du pic de résonance (pour $\text{YBCO}_{6.97}$ [84], pour BSCO [79]).

cessus mesurés par la DIN (phonons, processus multi-phonons, contaminations de Bragg accidentelles,...). En procédant par différence, on évalue directement les contributions induites dans l'état supraconducteur. Quand on refroidit l'échantillon en dessous de T_C , une excitation (bien définie en énergie et en vecteur d'onde) apparaît à une énergie E_r et autour du vecteur d'onde Antiferromagnétique $Q_{AF} = (\pi/a, \pi/a)$. Cela est illustré par la figure 2.1 dans deux systèmes où elle a été mesurée (YBCO et BSCO). Un balayage en fonction du vecteur d'onde fait apparaître un pic dans la phase supraconductrice autour de $q_h = 0.5$ qui est absent à $T = 100$ K[75]. Des mesures de neutrons polarisés dans YBCO ont par la suite confirmé sans aucune ambiguïté l'origine magnétique de ce pic[76, 77]. La différence en température des balayages en énergie au vecteur d'onde AF montre un pic fin (Fig. 2.2), dont la forme spectre peut être décrite, dans le meilleur des cas, par une fonction de Dirac, $\delta(\hbar\omega - E_r)$. La dénomination de résonance pour cette excitation

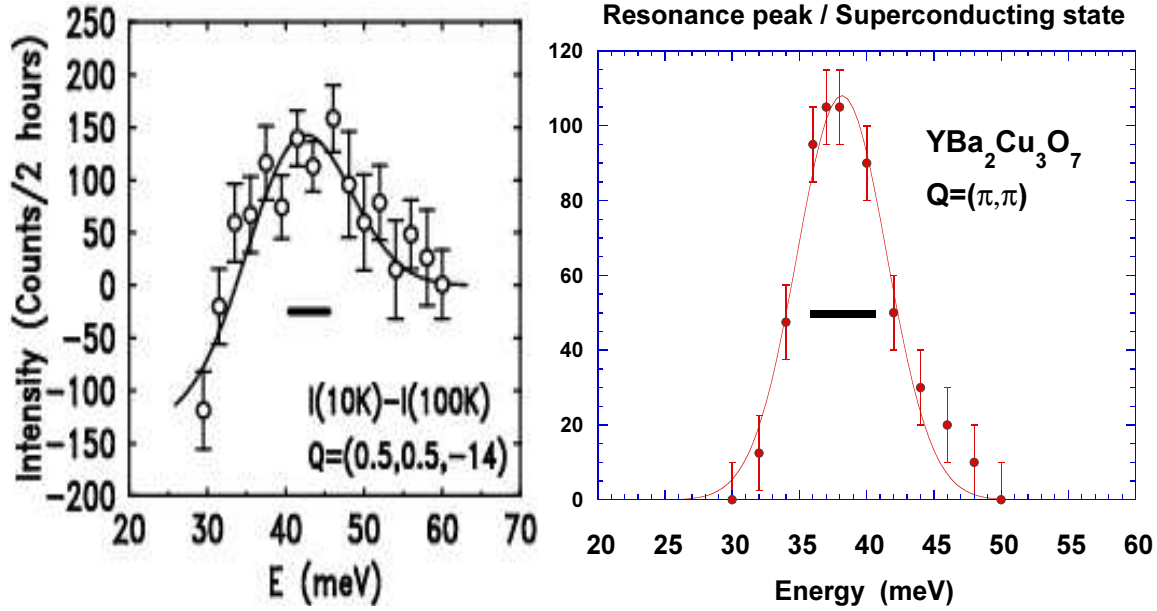


Figure 2.2: Dépendance en fonction de l'énergie du pic de résonance au vecteur d'onde antiferromagnétique dans des composés proche du dopage optimal (voir faiblement surdopé), $T_C \simeq 92$ K: Droite) pour YBCO₇ ($E=40$ meV)[68] Gauche) pour BSCO [79]). Ces courbes sont obtenues par soustraction du signal neutrons à $T \sim 5-10$ K par le signal mesuré à $T=100$ K dans les mêmes conditions. Les barres horizontales représentent la résolution en énergie du spectromètre.

provient directement du fait qu'elle est extrêmement bien définie en énergie[75].

La dépendance en température du pic de résonance est très intéressante. En effet, l'énergie de la résonance ne change presque pas lorsque l'on augmente la température dans la phase supraconductrice (au maximum de 3 % de renormalisation près de T_C [84, 78]) alors que son amplitude décroît fortement avec un comportement rappelant celui d'un paramètre d'ordre (figure 2.1). Cette évolution démontre que cette excitation est spécifique à la phase supraconductrice. l'énergie de la résonance est en fait un peu différente dans les deux systèmes: $E_r \simeq 40$ meV dans YBCO et $E_r = 43$ meV pour BSCO. Le pic présente aussi une largeur en énergie finie, ~ 10 meV, dans BSCO qui peut être associée à un désordre intrinsèque plus important dans ce système. En effet, de nombreuses expériences d'effet tunnel (STM) sur BSCO ont révélé une structure électronique microscopique fortement hétérogène[85]: des zones présentant un gap supraconducteur (avec un pic de cohérence) de quelques dizaines d'angstroems côtoyant des zones possédant une structure électronique distincte. Bien que l'on ne sache pas encore si cet effet est uniquement un effet de surface ou pas, il est intéressant d'associer cet état électronique composite avec l'élargissement du pic de résonance (cf plus bas paragraphe 2.2 a propos de l'extrême sensibilité de la résonance aux impuretés). La largeur en vecteur d'onde est aussi plus importante dans BSCO, $\Delta \simeq 0.45 \text{ \AA}^{-1}$, que dans YBCO $\Delta \simeq 0.25 \text{ \AA}^{-1}$, on peut supposer pour la même raison.

Dans ces deux systèmes, on observe suivant le vecteur d'onde perpendiculaire au plan CuO_2 , c^* , une modulation de l'intensité neutrons avec des maxima et des minima à des vecteurs d'ondes caractéristiques de la distance entre les deux plans CuO_2 , $zc = 3.3 \text{ \AA}$ à l'intérieur de chaque maille élémentaire[67, 68, 79]. Ainsi, l'intensité de la résonance suit typiquement une modulation $\sin^2(\pi zL)$ [67, 84] où L est la composante du vecteur d'onde suivant l'axe c^* . L'étude de ce facteur de structure a été abordé dans plusieurs publications.

Cela démontre néanmoins qu'il existe une corrélation antiferromagnétique non-négligeable à l'intérieur de chaque biplan. La similarité des résultats dans les deux systèmes suggère que cette excitation est générique à tous les supraconducteurs à haute température critique. Par conséquent, sa description doit être incluse dans tout modèle prétendant comprendre la physique de ces systèmes. Toutefois, cette observation a pendant longtemps été clairement établie que dans des cuprates avec deux plans CuO_2 par maille élémentaire. En dépit de plusieurs efforts, aucun pic de résonance n'a été mesuré dans LSCO. Aussi, le rôle des corrélations à l'intérieur du biplan a été envisagé pour expliquer l'origine de ce pic. Afin de répondre à ce problème, nous avons récemment entrepris ce type de mesure dans un autre cuprate $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+\delta}$ (Tl-2201), qui possède qu'un seul plan CuO_2 par maille élémentaire, mais présentant une température supraconductrice élevée, $\sim 92 \text{ K}$. Comme il n'existe pas de monocristaux de taille suffisante pour effectuer la diffusion inélastique de neutrons dans ce système (la masse type est 0.5-2 mg), nous avons dû co-alignés 300 échantillons ensemble pour obtenir un volume diffusant suffisant ($\simeq 200 \text{ mg}$). Ce travail a été réalisé par Hai Feng He au Max-Planck institute de Stuttgart. Bien que nécessitant des temps de comptages de plusieurs heures par point, les résultats [86] indiquent clairement un pic de résonance à $E_r = 47 \text{ meV}$ ayant des caractéristiques très proches de celles mesurées dans YBCO_7 installant cette excitation comme l'une des caractéristiques fondamentales des cuprates indépendamment du nombre de plans CuO_2 par maille élémentaire.

2.1.2 Sous- et Sur-dopage

Quand on diminue le dopage, cette excitation persiste[87, 88, 89, 90], mais apparaît à une énergie plus faible. Cependant, sa forme en énergie et en vecteur d'onde évolue aussi fortement. La différence fondamentale entre ces compositions sous-dopées et le dopage optimal est que l'on observe maintenant une forte diffusion magnétique dans l'état normal (cf le chapitre suivant) rendant l'analyse décrite plus haut (basé sur la différence entre la mesure DIN à basse température et celle effectuée juste au-dessus de T_C) plus délicate et incomplète. De plus, comme nous le verrons dans le paragraphe 2.3, la dépendance en vecteur d'onde de la résonance est aussi plus complexe dans ces composés sous-dopés[73].

Néanmoins, avec ce type d'analyse, un pic fin est encore typiquement obtenu au vecteur d'onde AF pour $T_C \geq 60\text{K}$. Aux énergies supérieures à E_r , la différence devient maintenant négative indiquant un changement radical du spectre dans la phase supraconductrice qui dépasse la simple apparition d'un pic supplémentaire en dessous de T_C . La dépendance en température est aussi sensiblement différente du composé proche

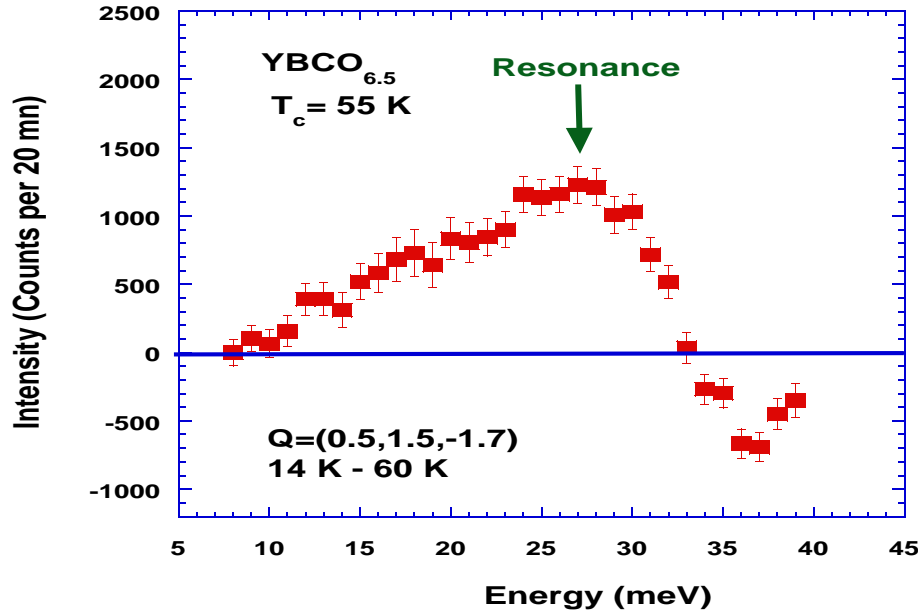


Figure 2.3: Dépendance en fonction de l'énergie du pic de résonance au vecteur d'onde antiferromagnétique \mathbf{Q}_{AF} dans des composés fortement sous-dopé, $T_C \simeq 55$ K: $\text{YBCO}_{6.5}$. Cette courbe est obtenue par soustraction du signal neutrons à $T \sim 5$ K par le signal mesuré à $T=60$ K dans les mêmes conditions. Cette différence est alternativement positive et négative indiquant la déformation du spectre magnétique dans la phase supraconductrice.

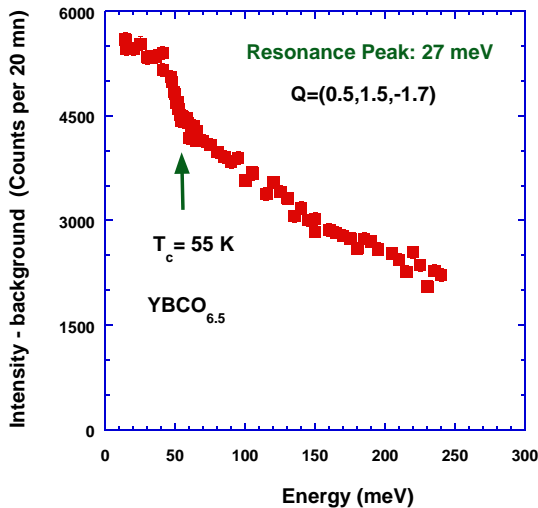


Figure 2.4: Dépendance en température de l'intensité de la résonance $\text{YBCO}_{6.5}$ à $E=27$ meV. Un bruit de fond a été soustrait à partir de plusieurs coupes en \mathbf{Q} effectuées le long de la direction (110) tous les 25 K.

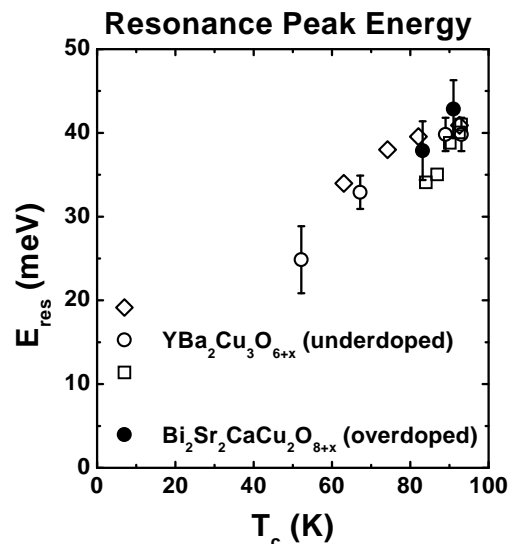


Figure 2.5: Dépendance de l'énergie de la résonance en fonction de la température supraconductrice dans YBCO et BSCO ([68, 80]).

du dopage optimal avec un changement moins brutal à T_C .

Pour des échantillons possédant une $T_C \leq 60K$ (i.e. plus fortement sous-dopé), on n'observe plus un pic fin bien défini quand on effectue la même analyse: on observe maintenant une structure large (différence positive à basse énergie $E < 32$ meV et négative pour $E > 32$ meV, Fig. 2.3). On peut néanmoins définir un maximum vers 27 meV. Les caractéristiques de la résonance sont ainsi différentes dans cet état fortement sous-dopé ($T_C \leq 60K$), indiquant peut être une origine différente ou avec des ingrédients supplémentaires. La susceptibilité de spins est néanmoins fortement déformée dans la phase supraconductrice sur une large gamme d'énergie. Le suivi en température à E_r , l'énergie de la résonance, dans la phase supraconductrice, montre que l'intensité AF apparaît dès la température ambiante (Fig. 2.4) avec un renforcement continu de l'intensité magnétique dans la phase normale avec enfin un renforcement supplémentaire à la température supraconductrice. A partir de courbes comme Fig. 2.4, il a été conclu [70] que l'on pouvait associer dans l'état sous-dopé l'apparition du pic de résonance dans la phase normale à la température de pseudo-gap. Cette conclusion nous semble erronée car basée sur une analyse arbitraire[74]. En effet, il n'y a aucun moyen de séparer dans l'état normal une contribution résonante d'une contribution non-résonante. Nous reviendrons sur ce point dans le prochain chapitre. Également, le fait que l'intensité au maximum de la résonance ne soit au mieux que $\sim 15\%$ du total de l'intensité magnétique (Fig. 2.3) lorsque T_C est de l'ordre de 50 K[62] peut expliquer pourquoi ce pic de résonance n'a pas été détecté dans LSCO où T_C^{max} est seulement 38 K.

Peu d'études de DIN ont été pour l'instant effectuées dans la phase sur-dopé, cette phase étant peu accessible dans YBCO. Nous avons néanmoins déterminé[80] cette résonance dans un échantillon de BSCO faiblement sur-dopé ($T_C = 80K \simeq T_C^{max} - 12K$). Dans cet échantillon, l'énergie de la résonance est renormalisée de 43 meV à 38 meV avec, sinon, des caractéristiques similaires au composé proche du dopage optimal, en particulier avec encore aucune signature de diffusion AF dans la phase normale.

2.1.3 Poids spectral

Finalement, il est intéressant de quantifier le poids spectral du pic de résonance. Pour ce faire, on compare l'intensité du pic de résonance à $(\pi/a, \pi/a)$ avec l'intensité de phonons dont on peut calculer le facteur de structure en unités absolues [62, 70, 63]. On définit alors,

$$I_{reso} = \frac{\int_{ZB} Im\chi^{reso}(\mathbf{Q}, \hbar\omega)d\omega d^2\mathbf{Q}}{\int_{ZB} d^2\mathbf{Q}} \quad (2.1)$$

où les sommations en vecteur d'onde sont effectuées sur une zone de Brillouin (ZB) bidimensionnelles. $V_{ZB} = \int d^2\mathbf{Q} = 4\pi^2/a^2$ ($a=3.85$ Å) normalise le pic de résonance au volume d'une zone de Brillouin 2D. Ainsi, I_{reso} s'exprime en μ_B^2 . Dans YBCO, cette quantité évolue peu en fonction du dopage autour d'une valeur de $\sim 0.05 \pm 0.02\mu_B^2$. Bien sur, dans cette analyse on a négligé la partie du spectre en dehors du vecteur d'onde AF. Comme nous le verrons plus bas, cette partie du spectre évolue aussi à travers la

transition supraconductrice en particulier dans le régime sous-dopé. Ainsi, cette quantité est plus indicative de l'ordre de grandeur qu'une valeur définitive. En tout état de cause, il faudrait pouvoir modéliser le spectre magnétique pour clairement identifier le changement de poids spectral magnétique dans la phase supraconductrice. On peut néanmoins remarquer que cette valeur de $\sim 0.05\mu_B^2$ correspond à seulement 2 % du poids spectral des ondes de spins du composé parent isolant (cf chapitre suivant). Ce faible poids spectral apparent provient du fait que le pic de résonance est une excitation localisée en énergie et en vecteur d'onde à la différence des ondes de spins qui s'étendent sur l'ensemble de la zone de Brillouin jusqu'à une énergie de ~ 250 meV.

Cependant, ce faible poids spectral est suffisant pour rendre compte de l'énergie de condensation supraconductrice. De fait, un calcul simple[91, 92], développé dans le cadre du modèle $t-J$, montre que l'on peut déduire de ce poids spectral une énergie de condensation au moins trois fois supérieure à la valeur déduite des mesures de chaleur spécifique[93]. Cette proposition est basé sur l'hypothèse que lorsque le mécanisme d'appariement supraconducteur est dû au super-échange AF alors l'énergie de condensation SC contient un terme d'énergie E_J ayant la forme suivante[91, 92]:

$$\Delta E_J = \frac{3J}{2\pi(g\mu_B)^2} \int_{ZB} d^2Q [\cos(q_x a) + \cos(q_y a)] \int d\omega \frac{[Im\chi^{NS}(q, \omega) - Im\chi^{SC}(q, \omega)]}{1 - \exp(-\hbar\omega/k_B T)} \quad (2.2)$$

où les sommations en vecteur d'onde sont encore faites sur une zone de Brillouin bidimensionnelles et normalisées à V_{ZB} . Le facteur 1/2 (absent dans le référence[91]) provient de la moyenne du facteur $\sin^2(\pi z L)$ suivant l'axe c^* . Il est important de remarquer que l'Eq. 2.2 est une subtile différence nette entre les fluctuations de l'état normal et celles de l'état supraconducteur pondérées par un facteur de forme dépendant de Q , $[\cos(q_x a) + \cos(q_y a)]$ correspondant à la transformée de Fourier de l'échange AF. Il apparaît ainsi que cette énergie d'échange dépend crucialement d'une redistribution du poids spectral en fonction du **vecteur d'onde**. En effet, l'énergie d'échange de l'Eq. 2.2 diffère de règles de sommes, $W = \int_{ZB} d^2q d\omega Im\chi(q, \omega)/(1 - \exp(-\hbar\omega/k_B T))$, seulement par le facteur de forme. Si ce terme en fonction de Q est négligé, l'Eq. 2.2 devient égale à zéro pour obéir à la règle de sommes des moments magnétiques.

Dans un papier récent, Dai *et al* [70] ont tenté de vérifier cette idée et ont conclu à un accord quantitatif entre la dérivée du poids spectral de la résonance en fonction de la température et la chaleur spécifique électronique $C_{el} \simeq dE_J/dT$. En fait, ce test n'est pas valide dans la mesure où Dai *et al* ont négligé la partie essentielle de l'Eq. 2.2, c.a.d. la dépendence en vecteur d'onde du facteur de forme. Ils ont ré-écrit Eq. 2.2 comme,

$$\Delta E_J \simeq \frac{3J}{\pi(g\mu_B)^2} \int_{ZB} d^2q d\omega \frac{Im\chi^{res}(q, \omega)}{1 - \exp(-\hbar\omega/k_B T)} \quad (2.3)$$

où $Im\chi^{res}(q, \omega)$ représente maintenant uniquement le pic de résonance à $(\pi/a, \pi/a)$. L'Eq. 2.3 est déduite en supposant que les moments magnétiques (associés à la résonance) sont totalement décorrélés dans l'état normal. Ceci est en total désaccord avec les mesures tant de neutrons que de RMN (cf chapitre suivant). D'une certaine manière, l'hypothèse de Dai

	2 plans CuO ₂		1 plan
Cuprates	YBCO	BSCO	Tl-2201
Énergie de la résonance (meV)	41	43	47
$E_r/k_B T_c$	5.1	5.4	6

Table 2.1: Énergie de la résonance pour différentes cuprates autour du dopage optimal ($T_C \sim 90 - 93\text{K}$).

et al correspond au cas le plus extrême où les fluctuations magnétiques de l'état normal sont inexistantes. Ainsi, la différence des fluctuations entre les deux états est maximale. Ainsi, pour que le mécanisme de la supraconductivité à haute température critique ait une chance de provenir des fluctuations antiferromagnétiques, cette quantité E_J de l'Eq. 2.3 doit être clairement supérieure à l'énergie de condensation supraconductrice. De fait, avec $J \sim 120$ meV et la valeur de I_{reso} de $0.05 \mu_B^2$, E_J devient dans la limite basse température $3 \times 120 \times 0.05 / (4 \pi) = 1.4$ meV ~ 17 K. Comme déjà indiqué dans [92], cette valeur est typiquement 3 fois plus grande que la valeur déduite des mesures de chaleur spécifique $U_C \simeq 6$ K[93]. On a ainsi suffisamment de poids spectral à partir de la résonance pour expliquer l'énergie de condensation de la supraconductivité. Comme il a été souligné par White et Scalapino [91], l'Eq. 2.2 est très difficile à estimer précisément mais devrait être un point essentiel pour prouver un lien quantitatif entre le mécanisme de la supraconductivité et les fluctuations AF et en particulier avec le pic de résonance.

2.1.4 Relation avec la supraconductivité

Ainsi, le pic de résonance apparaît sur une large partie du diagramme de phase où la supraconductivité existe. Ce phénomène, toujours confiné dans la phase supraconductrice, est cependant mieux définie lorsque la température supraconductrice est maximale. Comme le montre la table 2.1, le rapport de l'énergie de la résonance avec la température de transition supraconductrice est similaire dans les différentes cuprates : $E_r/k_B T_C = 5-6$. De plus, en fonction du dopage, l'énergie de la résonance (définie soit par un pic fin comme Fig. 2.2 soit par le maximum de l'anomalie comme Fig. 2.3) suit aussi quasiment linéairement la température supraconductrice : $E_r/k_B T_C = cst$ (figure 2.5). Cette relation est obtenue pour les trois systèmes, où la résonance a été mesurée[68, 63, 79, 80] pour plusieurs dopages. Cette relation est non seulement valide pour le dopage optimal mais aussi de chaque côté du diagramme de phase des supraconducteurs à haute température critique. La constante de proportionnalité semble dépendre faiblement du système (cf table 2.1). En tout état de cause, cette relation générique entre l'énergie de la résonance et la transition supraconductrice est nécessairement importante dans le contexte des supraconducteurs à haute température critique où le gap supraconducteur (déterminé par le spectre à une particule) n'est lui-même pas proportionnel à T_C . Il serait par ailleurs intéressant de relier cette excitation avec les différentes propriétés supraconductrices qui elles sont proportionnelles à T_C [34] avec des facteurs de proportionnalité très proches.

Par ailleurs, il est intéressant de comparer l'énergie de la résonance avec le gap supra-

conducteur. Dans la mesure où la symétrie du gap supraconducteur est d , la diffusion Raman offre une détermination du gap supraconducteur au dopage optimal pour l'ensemble des systèmes, où la résonance a été mesurée. En effet, les mesures de diffusion Raman dans la symétrie B_{1g} [20] sondent directement les excitations électroniques correspondant aux vecteur d'ondes $(\pm\pi, 0) \equiv (0, \pm\pi)$ où le gap de symétrie d est maximum. Ainsi, la position du maximum dans ce canal B_{1g} mesure directement $2\Delta_{max}$. De fait, autour du dopage optimal, la position de ce pic diffère peu d'un système à un autre avec $2\Delta_{max} \sim 65-70 \text{ meV} = 8-9 k_B T_c$. Cette détermination Raman est confirmée dans BSCO où le gap supraconducteur peut être par ailleurs déterminé par des mesures de photoémission résolue en angle[33]. Ainsi, dans les supraconducteurs dont la température critique maximal peut atteindre 90 K, E_r définit une énergie caractéristique à une énergie bien inférieure à deux fois le gap supraconducteur. De ce fait, l'énergie de la résonance est inférieure à l'énergie nécessaire pour briser une paire de Cooper. Par conséquent, la résonance se doit d'être un état lié excitonique comme l'analyse théorique peut le prévoir (voir paragraphe 2.5.1).

2.2 Effet des impuretés

Nous allons maintenant aborder l'effet d'impuretés magnétiques et non-magnétiques sur le pic de résonance. Une des caractéristiques surprenantes de la supraconductivité à haute température critique est sa forte réduction en présence d'impuretés se substituant dans le plan CuO_2 , en particulier d'atomes non-magnétiques ($dT_C/dy \sim -12 \text{ K}/\%$ pour $y \%$ de Cu remplacé par du Zn dans YBCO_7). Par exemple, la substitution du cuivre par du zinc ($S=0$) est trois fois plus efficace pour détruire la supraconductivité que celle par du nickel ($S=1$) dans YBCO. Cela est tout à fait contraire à la théorie BCS [94] où la supraconductivité est en premier lieu réduite par les impuretés magnétiques par un effet de brisure de paires. La compréhension de cet effet spectaculaire du Zn et du Ni apparaît donc comme un test crucial pour toute théorie de la supraconductivité des cuprates.

D'ailleurs, les propriétés magnétiques des cuprates sont aussi affectées par ces substitutions. La substitution du cuivre par du Ni magnétique ou du Zn non-magnétique engendre l'apparition de moments paramagnétiques obéissant typiquement à une loi de Curie. Cela a été mis en évidence par des mesures de RMN [95] ainsi que par des mesures de susceptibilité macroscopique [96]. La principale différence entre les deux impuretés est l'amplitude du moment effectif qui est plus forte dans le cas du Ni du fait que le Ni possède un moment propre. Cependant, l'effet le plus surprenant est celui de la substitution par le zinc qui induit des moments paramagnétiques. Cette tendance démontre l'existence de fortes corrélations magnétiques sur l'ensemble du diagramme de phase des supraconducteurs à haute température critique. Le remplacement d'un atome de cuivre Cu^{2+} ($S=1/2$) par un atome non-magnétique de zinc rompt la corrélation magnétique dynamique de site à site et fait apparaître des moments localement autour de l'impureté. Cet effet est, de fait, bien accepté et compris dans les systèmes unidimensionnels (échelles de spins, spin-Peirls) lorsque une chaîne de spins quantiques est brisée par une impureté

non-magnétique, mais il reste encore difficile à décrire dans les systèmes à deux dimensions comme les cuprates. Ces moments magnétiques locaux ont été clairement démontré dans le cas du zinc par l'apparition de raies satellites par RMN [95] indiquant un environnement magnétique hétérogène autour de l'impureté. Une différence qualitative entre le Zn et le Ni apparaît alors : en effet, ces raies satellites dans le cas du nickel n'apparaissent pas et seulement un élargissement de la raie principale est observé [97]. Ainsi, la perturbation introduite par le Ni est nécessairement plus homogène sur l'ensemble du plan CuO_2 . Cette différence pourrait être reliée au spin $S=1$ du Ni qui contraste moins avec le fond magnétique que l'absence de moment propre du Zn.

Nous avons étudié par DIN l'effet de ces deux types d'impuretés sur le pic de résonance pour un dopage légèrement sur-dopé proche du dopage optimal, YBCO_7 . Ces substitutions ont, tout d'abord, des points en commun du fait que la présence d'impuretés a pour effet d'élargir systématiquement le pic de résonance. Il est exemplaire qu'un taux aussi faible que 0.5 % de substitution de cuivre par du zinc ($T_c = 85$ K) induise un amortissement de ~ 10 meV sur la résonance [98]. La présence de Ni dans les plans CuO_2 [99] ou de cobalt dans les chaînes de YBCO [100] a aussi le même effet de fragiliser le pic de résonance par l'apparition d'un élargissement du pic. Cela, par voie de conséquence, peut également expliquer pourquoi le pic de résonance présente un amortissement mesurable dans BSCO non substitué[79]. En effet, ce système présente, du fait de sa structure atomique incommensurable, de fortes distortions qui pourraient être génératrices de défauts intrinsèques. Les mesures par effet tunnel[85] d'états électroniques hétérogènes en seraient une conséquence. Ainsi, la structure fortement perturbée de BSCO aurait un effet similaire à la substitution du cuivre dans YBCO. La comparaison récente de l'élargissement de la raie RMN de l'oxygène[101] dans différentes cuprates rejoint cette hypothèse. Cette raie de l'oxygène des plans CuO_2 indique une forte distribution du dopage dans BSCO par rapport à YBCO pur. D'ailleurs, l'évolution du temps de relaxation spin-réseau RMN dans la phase supraconductrice de BSCO est tout a fait similaire a celle engendrée par la substitution du zinc dans YBCO [102]. L'élargissement du pic de résonance observée pour différents types d'impuretés démontre l'extrême sensibilité de la résonance aux défauts. On peut ainsi comprendre pourquoi on n'observe pas de pic de résonance dans un système telle que LSCO où l'on sait que le désordre (associé au dopage par le strontium) est aussi important[101].

Cependant, l'impact de ces deux impuretés est clairement distinct en ce qui concerne l'énergie de la résonance. En effet, le nickel renormalise E_r telle que le rapport $E_r/k_B T_C$ reste inchangée alors que le zinc change très peu la position de la résonance pour une réduction de T_c équivalente[99]. Cette différence fondamentale indique que seul le Ni agit sur les paramètres responsables de la résonance, et étant donné l'étroite relation de la résonance avec la supraconductivité, on est tenté de conclure que le Ni agit directement sur les paramètres caractéristiques du mécanisme de la supraconductivité à haute température critique. A l'opposé, le zinc aurait peu d'incidence sur le mécanisme mais il est admis qu'il a un fort potentiel de brisure de paires supraconductrices (proche de la limite unitaire). Pour aller dans ce sens, on note une très forte réduction du poids spectral de la résonance (défini comme l'augmentation de susceptibilité dans la phase supraconduc-

trice) avec le zinc[103]. Ainsi, on n'observe plus de changement de la susceptibilité de spins à travers T_c pour une substitution de seulement 2% de zinc ($T_c = 69$ K) [104, 105]. Cependant, la disparition de l'effet résonant ne veut pas dire que les fluctuations antiferromagnétiques sont réduites par le zinc. Tout au contraire, on observe de fortes fluctuations antiferromagnétiques dynamiques engendrées par le zinc et qui apparaissent à des températures bien supérieures à T_c [69, 99, 103, 104, 105]. Le spectre de ces excitations est nécessairement caractéristique de l'impureté du fait qu'il diffère de celui que l'on observe en absence du zinc. Il semble donc évident que ces fluctuations AF sont à l'origine des moments magnétiques observés par RMN. Cependant, il n'existe pas encore de consensus clair à ce sujet. De son côté, la présence de Ni à faible substitution n'engendre pas de changement observable de la réponse magnétique mesurée par DIN dans la phase normale (en tout cas autour du dopage optimal), en accord avec le fait que le Ni perturbe de manière plus homogène le plan CuO_2 . La substitution de ces deux impuretés a donc un effet distinct sur le magnétisme des cuprates supraconductrices qui a potentiellement un impact sur la compréhension de ces systèmes.

2.3 Dispersion de la résonance

Nous avons pour l'instant discuté l'évolution du pic de résonance uniquement au vecteur d'onde AF, $(\pi/a, \pi/a)$. Au dopage optimal, cette excitation est de fait principalement confiné à un pic fin en énergie ayant néanmoins une largeur intrinsèque en vecteur d'onde (Fig. 2.1). Cependant, au fur et à mesure que l'on sous dope le système, la situation devient plus subtile[68, 72, 106, 63] : on observe de l'intensité magnétique à des énergies inférieures et supérieures à E_r jusqu'à des énergies de l'ordre de $150 \text{ meV} \sim J$ [62, 63, 70].

Ici, nous nous intéressons au changement des fluctuations magnétiques dans la phase supraconductrice qui se produit principalement quand $\hbar\omega \leq E_r$. Dans un composé faiblement sous-dopé $\text{YBCO}_{6.85}$ ($T_C=85$ K), on observe un double pic quand on effectue une coupe en vecteur d'onde à une énergie inférieure à E_r (Fig. 2.6.c-d). Cette structure incommensurable disparaît totalement quand on chauffe au dessus de T_C se transformant en un simple pic très large dès $T=100$ K (Fig. 2.6.b). Une étude détaillée[73] de la dépendance en température de cette incommensurabilité montre i) qu'elle disparaît à T_C ii) qu'elle se déplace en vecteur d'onde avec la température pour $T < T_C$. Cela prouve que ces pics incommensurables ont la même évolution thermique que le pic de résonance à $(\pi/a, \pi/a)$, et donc qu'ils ont la même origine physique. D'autres coupes en vecteur d'onde à différentes énergies[73] indiquent que le vecteur d'onde où l'intensité magnétique est maximum se déplace vers $(\pi/a, \pi/a)$ quand l'énergie se rapproche de E_r . Ces différents résultats obtenus pour $\text{YBCO}_{6.85}$ ont été par la suite confirmés par l'utilisation de neutrons polarisés sur le même échantillon[107]. Ils permettent de conclure que le pic de résonance présente une dispersion dans l'espace réciproque comme résumé sur la Fig. 2.7. Des mesures antérieures[75, 68, 89] n'avaient pas détecté cette incommensurabilité pour la raison principale que ces mesures étaient effectuées suivant la direction (110) selon laquelle ces pics incommensurables sont plus difficiles à observer (insertion Fig. 2.6.a).

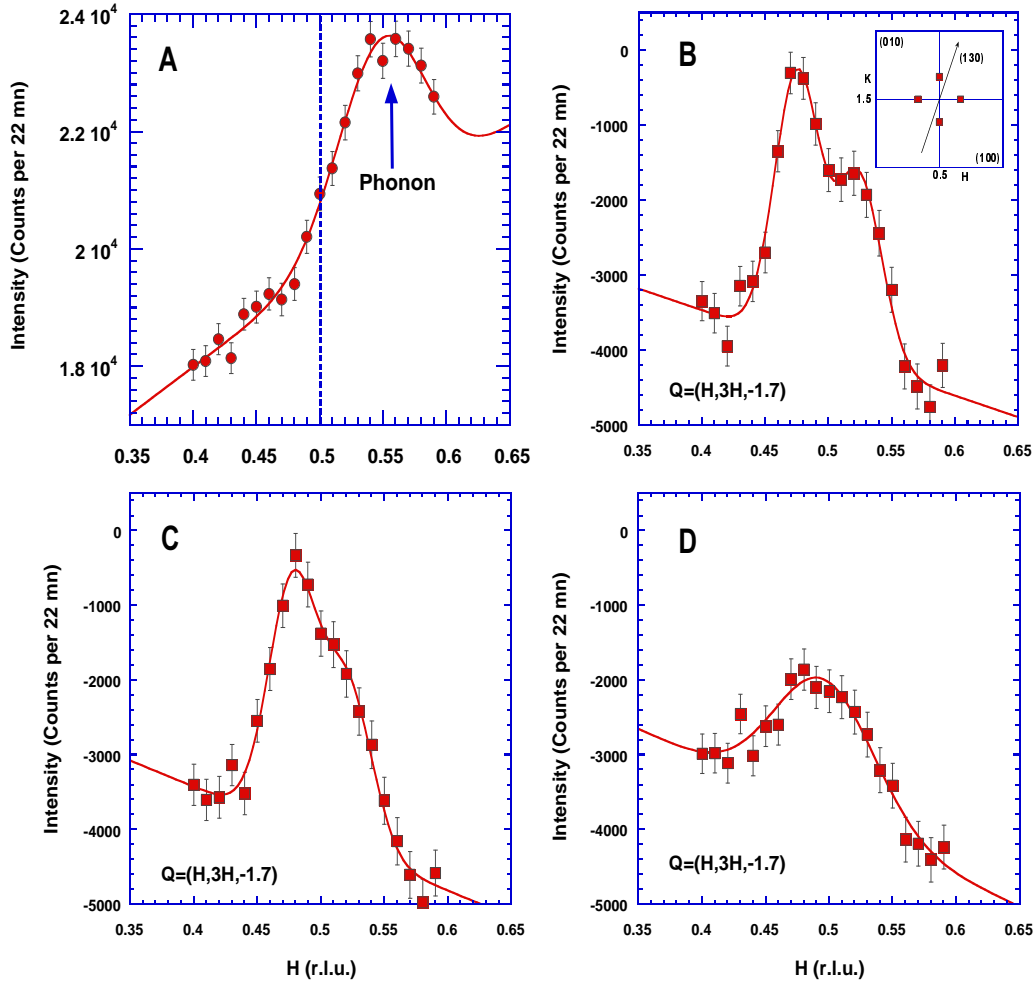


Figure 2.6: (A) Groupe de neutrons suivant une coupe dans la direction $(H,3H,0)$ à $E=35$ meV et à température ambiante. Un phonon est visible à $H = 0.57$. (B-D) Coupes à énergie constante à 3 températures différentes et où la coupe à température ambiante a été soustrait. L'insertion de (B) montre le plan réciproque du plan CuO_2 autour du vecteur d'onde AF. Les carrés représentent le maximum de l'intensité magnétique [72, 106, 74] dans l'état supraconducteur. La flèche symbolise la direction (130) des coupes effectuées lors de la mesure ([73]).

Également, la qualité des échantillons, et en particulier l'hétérogénéité en oxygène, peut expliquer des différences quantitatives entre les données obtenues sur des échantillons dans des compositions nominales proches. Néanmoins, dès les premières mesures [75, 89], un élargissement du pic magnétique avait été observé pour $E < E_r$ en accord avec la forme de la dispersion reporté sur la Fig. 2.7. Enfin, des publications précédentes de diffusion magnétique incommensurable pour $x = 0.6$ [72] ou concomitantes pour $x = 0.7$ [106], sont en excellent accord qualitatif avec une telle description bien que ces pics incommensurables n'ont pas été interprété de cette manière.

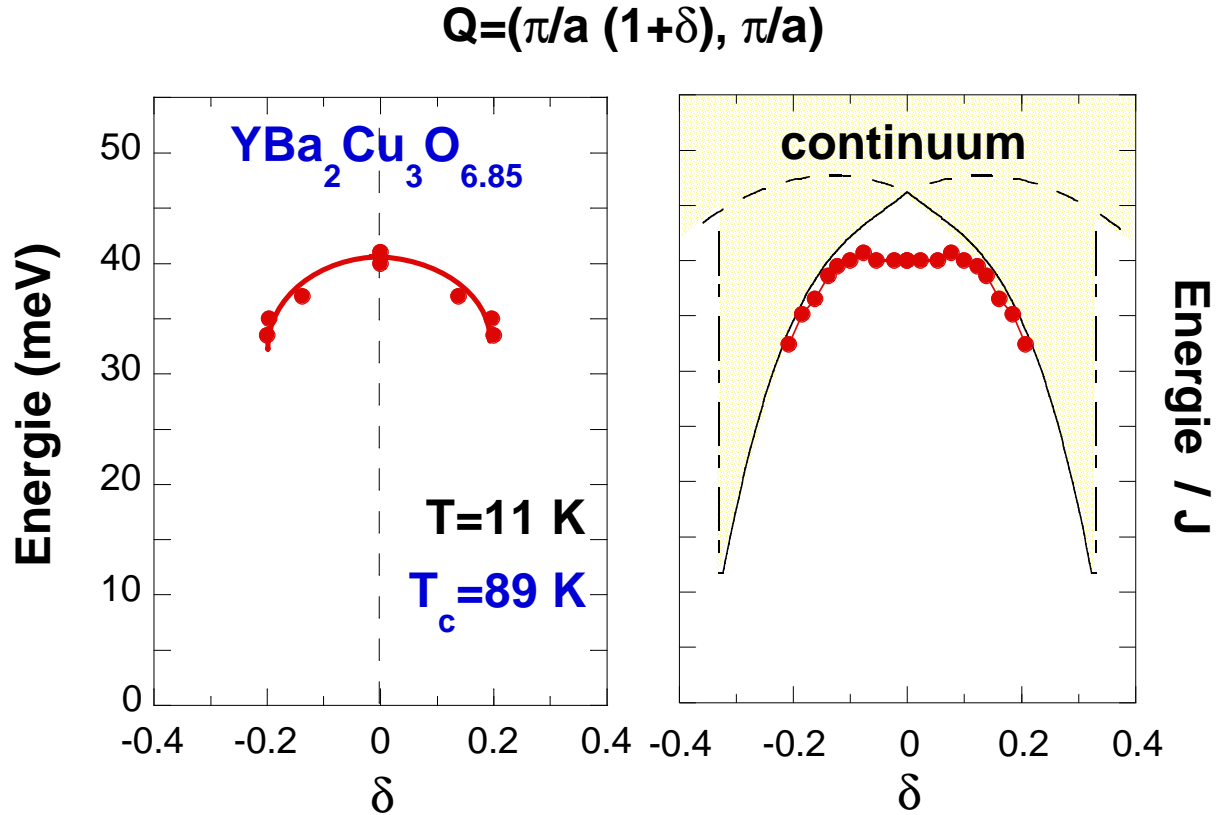


Figure 2.7: (gauche) Dispersion expérimentale de la résonance (en rouge) dans l'état supraconducteur dans YBCO_{6.85}[73]. La ligne est un affinement de l'Eq. 2.4 avec $E_r(\pi/a, \pi/a) = 41$ meV et $\alpha \simeq 125$ meV.Å. δ est l'incommensurabilité mesurée dans la direction (100). (droite) Prédiction théorique [121] : la partie en jaune correspond au continuum des excitations magnétiques élémentaires, les points rouges représente le mode collectif (voir Eq. 2.9).

L'observation de cette dispersion (Fig. 2.7) est une preuve empirique que la résonance est une excitation magnétique collective. Cependant, la forme de cette dispersion est assez surprenante pour une excitation magnétique dans la mesure où elle disperse vers les basses énergies quand on s'éloigne du vecteur d'onde caractéristique (ici $(\pi/a, \pi/a)$) à la différence d'excitations magnétiques collectives usuelles (ondes de spins,...) qui dispersent vers les hautes énergies. On peut paramétriser cette dispersion par,

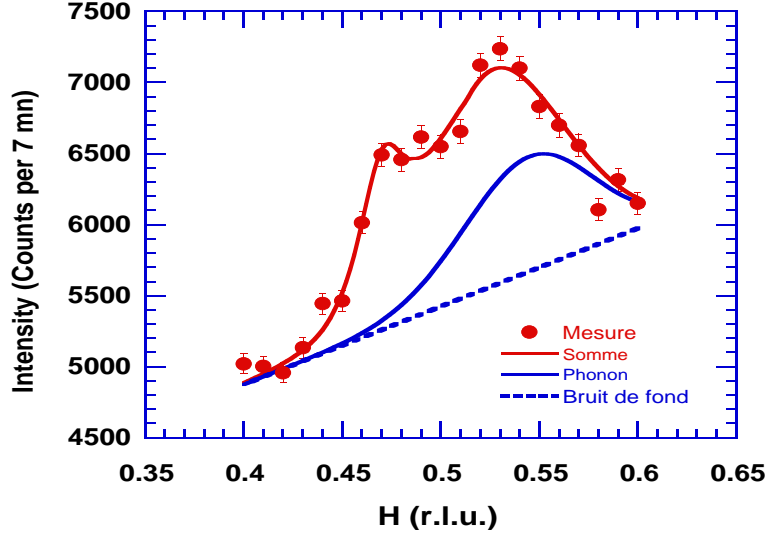


Figure 2.8: Groupe de neutrons suivant une coupe dans la direction $(3H, H, 0)$ à $E=35$ meV et à $T=5$ K. Un phonon est visible à $H = 0.57$ (comme à $T=300$ K, Fig. 2.6.a). La courbe pleine rouge est un affinement de la somme de ce phonon (déterminé à la température ambiante) avec l'Eq. 2.5, où la dispersion Eq. 2.4 est prise en compte avec $\alpha \simeq 125$ meV.Å et $E_r(\pi/a, \pi/a) = 41$ meV, convolué par la résolution du spectromètre.

$$E_r(q) = \sqrt{E_r^2(\pi/a, \pi/a) - (\alpha q)^2} \quad (2.4)$$

où q est le vecteur d'onde mesuré à partir de $(\pi/a, \pi/a)$. $E_r(\pi/a, \pi/a)$ est l'énergie de la résonance à $(\pi/a, \pi/a)$ discutée dans le premier paragraphe 2.1, α représente une relation de dispersion isotrope. La relation de dispersion, Eq. 2.4, est très certainement qu'une première approximation, en particulier les mesures [72, 106, 74] indique une augmentation de l'intensité le long des axes a^* ou b^* qui nécessite soit une dispersion plus complexe soit un facteur de structure dépendant du vecteur d'onde. Un autre aspect important correspond aux effets de résolution qui dans le cas d'une nappe de dispersion peuvent être non-triviaux et donner lieu à une distribution subtile de l'intensité neutronique en fonction du vecteur d'onde. Néanmoins, nous avons utilisé la relation simple Eq. 2.4 pour analyser nos données. On peut ainsi définir la fonction de diffusion suivante,

$$S(q, \omega) = \frac{1}{E_r(q)} \delta(\hbar\omega - E_r(q)) \quad (2.5)$$

La Fig. 2.8 montre la convolution de l'Eq. 2.5 par la résolution du spectromètre. Cela réalise un bon affinement sans ajout de largeur intrinsèque du pic. Des mesures récentes de neutrons polarisés[107] sur le même échantillon confirme cet affinement. Par conséquent, on peut conclure que toutes les fluctuations magnétiques présentes à basses énergies, $\hbar\omega \leq 43$ meV, dans la phase supraconductrice sont totalement décrites par une excitation collective dispersive dont le facteur de structure se décrit par l'Eq. 2.5 avec la dispersion Eq. 2.4. Finalement, l'existence d'une dispersion de la résonance

décrite par ces équations semble peu probable pour des compositions ~ 0.5 ($T_C \leq 60K$). En effet, l'intensité magnétique changeant à T_C ne représentant qu'une faible partie des fluctuations magnétiques, la réponse magnétique est majoritairement similaire à celle de l'état normal. Ainsi, la diffusion magnétique est principalement maximum autour du vecteur d'onde AF, et particulièrement pour les plus basses énergies. Cependant, de petits pics incommensurables ont été récemment reportés[108] dans YBCO_{6.5}, en plus de la structure commensurable majoritaire, dans une gamme d'énergie limitée (~ 15 meV) inférieure à la résonance. Un suivi en température n'ayant pas été effectué dans cette étude, il est difficile de conclure de manière définitive quant à l'origine de ces pics.

2.4 Gap de spin

A basse énergie, la susceptibilité de spin est en plus réduite par l'ouverture d'un gap dans la phase supraconductrice, appelée "gap de spin" en dessous duquel aucune fluctuation magnétique autour du vecteur d'onde AF n'est visible. Ce gap a été reporté dès les premières études de DIN dans YBCO_{6+x}[25] : il est définie comme le premier point d'inflexion E_G de la partie imaginaire de la susceptibilité de spins mesurée à \mathbf{Q}_{AF} , $Im\chi_{\mathbf{Q}_{AF}}(\mathbf{h}\omega)$ (Fig. 2.9). En dessous de cette énergie, les coupes en vecteur d'onde indiquent aucune intensité autour du vecteur d'onde AF mesurable dans l'état supraconducteur[25, 75, 68, 69], plus précisément une réduction de l'amplitude des fluctuations de plus d'un ordre de grandeur par rapport à la résonance. Cela suggère que ce gap est directement relié au gap supraconducteur. L'évolution en température de l'intensité magnétique à des énergies inférieures à E_G confirme cette hypothèse [25, 67, 69] : une intensité maximum au vecteur d'onde AF apparaît en chauffant à partir de T_C .

De plus, E_G augmente avec le dopage[67, 69] comme T_C mais avec une dépendance différente de celle de l'énergie de la résonance. On peut définir deux types de régimes de chaque coté du dopage donnant $T_C = 60$ K. D'une part, pour les échantillons sous-dopés avec $T_C \geq 60$ K ($0.6 \leq x \leq 0.94$), le gap de spin augmente rapidement avec le dopage (Fig. 2.9) avec la relation $E_G \simeq 3.4k_B T_C$. Ainsi, pour le dopage faiblement sur-dopé, YBCO₇, il peut atteindre 35 meV $\simeq E_r - 4$ meV, une énergie définie par l'apparition de la résonance à $(\pi/a, \pi/a)$ du fait de la résolution du spectromètre. A l'opposé, quand $T_C \leq 60$ K ($0.4 \leq x \leq 0.6$), E_G est beaucoup plus petit ~ 4 meV $\sim k_B T_C \ll E_r$ (Fig. 2.9). L'ensemble du comportement du gap de spin a été récemment confirmé par une autre étude systématique sur l'ensemble du diagramme de phase d'YBCO [64].

Dans ce dernier cas, des échantillons, ayant des températures de transitions supraconductrices très similaires, ont des gaps de spins différents : deux échantillons proches d'une composition nominale YBCO_{6.5}, ayant des T_C de 45 K et 51 K, présentent respectivement des gaps de spins de 2.5 meV et 5 meV. D'ailleurs, la Fig. 2.9 montre aussi que $Im\chi(\mathbf{Q}_{AF}, \mathbf{h}\omega)$ dans ces deux échantillons a une forme spectrale sensiblement différente. Ces résultats indiquent un comportement pour ces faibles dopages ($n_h \leq 10 - 12$ %) où les fluctuations de spins évoluent quantitativement fortement pour des compositions nominales proches. Cela est dû soit au rôle spécifique de l'ordre des oxygènes (une chaîne

Cu-O-Cu sur deux remplie pour $x = 0.5$), soit à une forte variation des paramètres électroniques du fait de la proximité de la transition métal-isolant. En fait, la situation est encore plus critique dans la mesure où, récemment, nous avons même observé un ordre AF commensurable coexistant avec la supraconductivité dans un échantillon avec $x = 0.5$ [99]. Cela souligne la proximité de l'instabilité antiferromagnétique, avec semble-t'il de fortes hétérogénéités spatiales de charges et des propriétés supraconductrices. Il est en effet fort possible que l'ordre magnétique observé (avec une température de Néel élevée $T_N \sim 310$ K) soit seulement associé à la présence de désordre ou d'impuretés qui du fait de la proximité de l'antiferromagnétisme génère localement un ordre AF. Le rôle des joints de grains pourrait par exemple être à l'origine de cet mise en ordre. La compréhension précise de ces comportements n'est pas très clair pour l'instant. En tout état de cause, la présence de cet ordre AF n'a pas d'impact sur la réponse magnétique dynamique dans la mesure où aucune différence notable n'a été observé sur le spectre des échantillons présentant un ordre AF ou pas. Ce dernier point fait pencher vers une hypothèse d'un milieu hétérogène.

Typiquement, E_G correspond à une marche d'escalier dont la largeur est limitée par la résolution en énergie du spectromètre (Fig. 2.9). Cependant, cette marche est quelquefois beaucoup plus large, c'est le cas pour $x = 0.83$ (Fig. 2.9), en particulier pour les dopages intermédiaires $0.6 \leq x \leq 0.9$. Cet effet pourrait, en fait, être associé à une largeur de transition supraconductrice plus large (ce qui est le cas pour cet échantillon $x = 0.83$) en relation avec un dopage moins homogène. Cependant, un pic de résonance est aussi observé dans cet échantillon [87, 68] dont l'amplitude est très similaire à celle observée ultérieurement pour des compositions proches[88, 89, 90].

Également, des effets de résolution sont aussi susceptibles de jouer un rôle dans cet élargissement. En effet, comme nous l'avons montré au paragraphe précédent, L'intensité magnétique mesurée autour de \mathbf{Q}_{AF} de la Fig. 2.9 n'est pas nécessairement la diffusion magnétique localisée uniquement à \mathbf{Q}_{AF} , mais provient de la nappe de dispersion, décrite par l'Eq. 2.4, de la résonance intégrée par la résolution en vecteur d'onde du spectromètre. L'ouverture du gap de spin provient donc en principe d'une réduction du poids spectral à des vecteurs d'ondes en dehors de $(\pi/a, \pi/a)$. Par conséquent, l'élargissement de la marche peut aussi en partie provenir d'une intégration par la résolution incomplète.

Un autre aspect intéressant du gap de spin est qu'il se comble rapidement en présence d'impuretés. En effet, la substitution contrôlée de 2% zinc sur le site du cuivre des plans (réduisant T_C de ~ 20 K) engendre une diffusion à basse énergie [104, 105, 69] à l'intérieur du gap de spin pour tous les dopages. Il semble donc, de manière plus générale, que la présence de défauts dans les cristaux entraîne le remplissage du gap de spin, sans nécessairement de changement important de la transition supraconductrice. Cela a rendu difficile l'établissement du gap de spin car plusieurs mesures anciennes tant à faibles dopages [109] qu'au dopage optimal [76] n'indiquaient au départ pas de gap. Dans ce dernier cas, il avait été même conclu à l'existence d'un continuum magnétique.

Pour la même raison, la détection d'un gap de spin de l'ordre de ~ 4 meV dans la phase supraconductrice de LSCO($x=0.15$) a attendu 1995 [110]. Les études précédentes avaient manifestement échouées soit à cause hétérogénéités de charges soit à cause de la

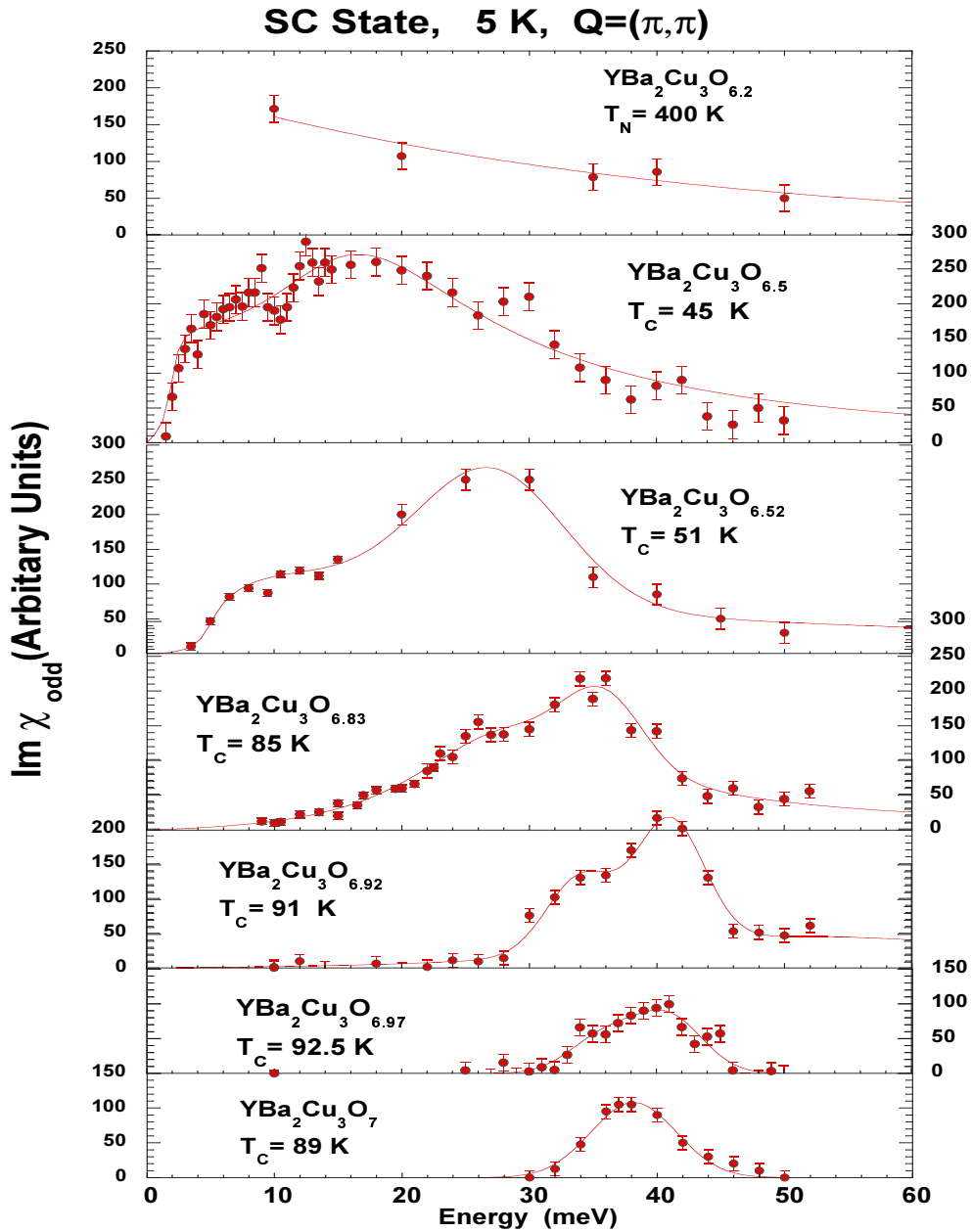


Figure 2.9: Partie imaginaire de la susceptibilité de spins à $T = 5$ K dans l'état supraconducteur pour 6 taux d'oxygène différents dans YBCO_{6+x} . La partie haute représente la diffusion correspondant aux ondes de spins dans le composé parent AF, $x \sim 0$. Ces spectres, qui montrent l'intensité mesurée autour de Q_{AF} , sont normalisés entre eux (100 dans l'échelle verticale est typiquement équivalent à $350 \mu_B^2/\text{eV}$) ([68]). Les lignes sont simplement des guides à l'oeil.

présence d'impuretés dans les échantillons. Par ailleurs, ce comportement à faible gap de LSCO autour du dopage optimal est aussi à rapprocher de celui d'YBCO_{6.5}[68]. Dans les deux cas, les températures supraconductrices sont de l'ordre ou inférieures à 50 K, et le spectre magnétique culmine à une énergie de l'ordre de 20-25 meV. Par ailleurs, l'amplitude en unités absolues de la susceptibilité locale est similaire dans ces deux systèmes lorsque elle est rapportée à un plan CuO₂ par maille élémentaire. En tout état de cause, ce comportement magnétique de LSCO autour du dopage optimal est très différent du comportement des autres cuprates autour du dopage optimal[68]. On peut ainsi se demander si ce système, qui est généralement considéré comme l'archétype des cuprates, n'est pas plutôt un cas particulier avec un comportement encore plus pathologique que les autres cuprates.

2.5 Effets de cohérences dans l'état supraconducteur

Nous avons montré expérimentalement que les corrélations de spin présentent de fortes variations spectrales et thermiques dans la phase supraconductrice des cuprates, avec un pic de résonance et un gap de spin intimement liés à la supraconductivité. Bien que ce résultat n'a pas été anticipé, il était connu avant l'avènement des supraconducteurs à haute température critique que la susceptibilité de spin devait apporter des informations essentielles sur la symétrie du paramètre d'ordre supraconducteur dans un supraconducteur non-conventionnel [111]. Cependant, il a fallu quelques années pour que la communauté considère ce résultat et qu'un consensus émerge quant à son origine. La description la plus courante est celle dérivée d'un métal supraconducteur classique où la résonance provient d'une création d'une paire électron-trou à travers le gap supraconducteur. Ce type de modèle a été élaboré par beaucoup d'auteurs [112, 113, 114, 115, 116, 117, 118, 119, 120] avec aussi des développements plus récents principalement pour expliquer les fluctuations incommensurables [121, 122, 123, 46, 39] conduisant à la prédiction d'une dispersion de la résonance[121]. Cette conclusion est essentielle car elle permet d'attribuer le pic de résonance à un mode collectif magnétique [118, 119, 121, 46]. Nous reprenons les grandes lignes de ce type d'approche, essayant de mettre en relief les paramètres nécessaires pour expliquer le pic de résonance. Nous ne détaillerons toutefois pas ici les différences entre ces publications.

2.5.1 Excitation électron-trou à travers du gap supraconducteur

Dans une approche métallique, la spectre magnétique provient de la réponse magnétique des bandes électroniques. Dans l'état normal, la susceptibilité de spin d'un métal sans interaction est décrite par la fonction de Lindhard :

$$\chi^{\circ}(q, \hbar\omega) = (g\mu_B)^2 \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \sum_k \frac{f_{q+k} - f_k}{\epsilon_{q+k} - \epsilon_k - \hbar\omega - i\epsilon} \quad (2.6)$$

où $\epsilon_k = \mathbf{v}_F \cdot (\mathbf{k} - \mathbf{k}_F)$ est la relation de dispersion de la structure électronique autour

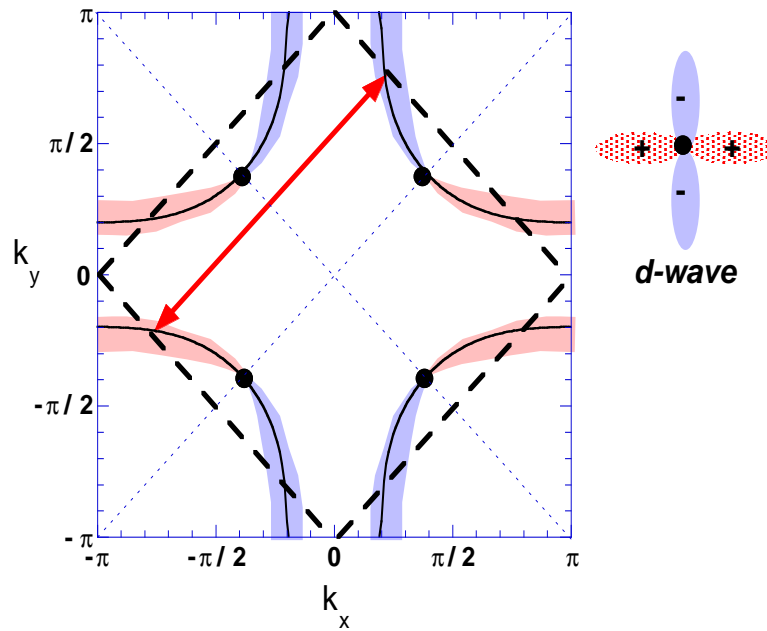


Figure 2.10: Gap supraconducteur de symétrie $d_{x^2-y^2}$ développé sur une surface de Fermi caractéristique des cuprates (cf Fig. 1.2). La flèche représente le vecteur d'onde antiferromagnétique, $(\pi/a, \pi/a)$, qui connecte deux points distincts de la surface de Fermi.

du niveau de Fermi, caractérisé par le vecteur d'onde \mathbf{k}_F et la vitesse \mathbf{v}_F et $f_k = 1/(1 + \exp(-\epsilon_k/k_B T))$ est la fonction d'occupation de Fermi. Cette susceptibilité de spin est une réponse électronique à deux particules avec généralement peu d'anomalies spectrales (à cause de la sommation dans l'espace réciproque) et qui s'étend jusqu'à une énergie de l'ordre de $\epsilon_F \sim \mathbf{k}_F \cdot \mathbf{v}_F$. Cependant, du fait de la basse dimensionalité et d'effets d'emboîtement de la surface de Fermi, Eq. 2.6 peut donner lieu à des comportements en moment et en énergie assez subtils[52] qui ne seront pas discutés ici.

Dans ce cadre de magnétisme itinérant, le pic de résonance découle directement de l'appariement supraconducteur des électrons de conduction. Dans l'état supraconducteur, on prend en compte l'appariement des spins dans un état singulet des paires de Cooper. Dans cette approche de type BCS[2] (sans préjuger du mécanisme d'appariement), χ° devient à température nulle dans un supraconducteur[32] :

$$\chi^\circ(Q, \omega) = (g\mu_B)^2 \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \sum_k \left[1 - \frac{\Delta_k \Delta_{k+Q} + \epsilon_{k+Q} \epsilon_k}{E_{k+Q} E_k} \right] \frac{1 - f_{k+Q} - f_k}{E_k + E_{k+Q} - \hbar\omega - i\epsilon} \quad (2.7)$$

où $E_k = \sqrt{\Delta_k^2 + \epsilon_k^2}$ est la relation de dispersion des quasiparticules dans l'état supracon-

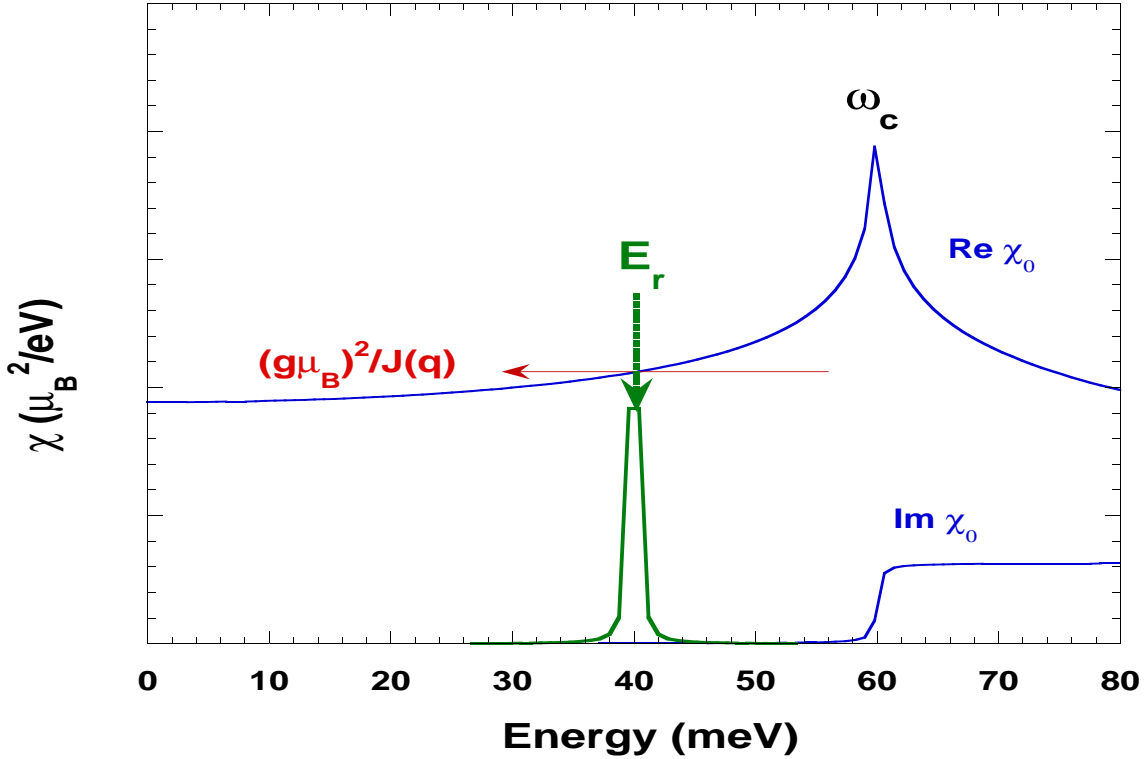


Figure 2.11: Représentation schématique de la partie réelle et de la partie imaginaire de χ_0 données par Eq. 2.7. A l'énergie où $Re\chi_0$ atteint $(g\mu_B^2)/J(Q)$, la condition de pôle (Eq. 2.9) a lieu et un pic de Dirac se développe à $E = E_r$ dans $Im\chi$.

ducteur et Δ_k est le gap supraconducteur décrit par Eq. 1.1. Le terme entre crochets est un facteur de cohérence des paires de Cooper en état singulet[32]. Il est essentiel pour la dépendance en Q de χ° en relation directe avec la symétrie de Δ_k . Intéressons nous plus particulièrement à la susceptibilité sans interaction au vecteur d'onde antiferromagnétique : du fait de la symétrie $d_{x^2-y^2}$ du gap supraconducteur, le terme $\Delta_{Q_{AF}+k}$ a toujours un signe opposé à Δ_k (voir Fig. 2.10) [113, 115, 116, 124, 114, 78, 117]. Le facteur de cohérence est alors nécessairement maximum à $(\pi/a, \pi/a)$. Il est ainsi principalement à l'origine de l'existence du pic de résonance. Dans ce sens, cette excitation dans les supraconducteurs à haute température critique provient d'effets de cohérence dans la phase supraconductrice de la même manière que, dans les supraconducteurs conventionnels avec un gap isotrope, s , le pic de Hebel-Slichter est observé par RMN sur le temps de relaxation spin-réseau [32].

Le second terme de l'Eq. 2.7 dépend de l'énergie : sa partie imaginaire de Eq. 2.7 est égale à zéro jusqu'à un seuil où la somme $(E_{q+k} + E_k)$ est minimum[120, 121] définissant le seuil du continuum électron-trou, ω_c . Cette limite inférieure du continuum retrace la dépendance en vecteur d'onde du gap supraconducteur. Pour une symétrie isotrope s du gap supraconducteur, ω_c serait constant $= 2\Delta$. Pour une symétrie d (Eq. 1.1), ω_c dépend fortement du vecteur d'onde comme il est schématisé sur la partie gauche de la

figure 2.7 par les deux lignes pointillées, représentant deux moyens de connecter différentes parties de la surface de Fermi (Fig. 2.10) sur lesquelles s'ouvrent le gap supraconducteur. Par symétrie de l'espace réciproque, ω_c correspond à la ligne de plus basse énergie, et devient maximum au vecteur d'onde antiferromagnétique, $(\pi/a, \pi/a)$. La valeur du seuil du continuum est $\hbar\omega_c = 2\Delta_{k_0}$ où Δ_{k_0} est la norme du gap supraconducteur au point de la surface de Fermi connecté par $(\pi/a, \pi/a)$ (flèche rouge Fig. 2.10).

La partie imaginaire de χ_0 à $(\pi/a, \pi/a)$ est schématisée sur la figure 2.11. Typiquement, $Im\chi_0$ présente une marche d'escalier au seuil du continuum ω_c mais en aucun cas un pic étroit en énergie. De plus, la forme en vecteur d'onde de $Im\chi_0$ n'est pas nécessairement maximum à $(\pi/a, \pi/a)$ [118]. Le pic de résonance observé par diffusion de neutrons ne peut donc pas être expliqué seulement par Eq. 2.7. Des singularités topologiques de van-Hove dans la structure de bandes bidimensionnelles [116, 114, 48] ont été avancées pour donner lieu à un pic au lieu d'une marche. Cependant, il paraît exclu que ce type de phénomène seul serait suffisant pour expliquer tout le poids spectral observé de la résonance. Également, les conditions d'emboîtements de larges parties de la surface de Fermi, qui ont été proposées [112, 115, 116], ne sont pas non plus très importantes pour la surface de Fermi observée (qui nécessite un terme second voisins t' en liaisons fortes, en tout cas pour BSCO et YBCO, voir Fig. 2.10). Cela limite le modèle d'électrons sans interactions. Cependant, la prise en compte des interactions permet de dépasser ces difficultés.

Les interactions dans les cuprates proviennent de la répulsion coulombienne sur le site du cuivre, U (cf Eq. 1.2), qui est généralement substitué par le super-échange antiferromagnétique $J(q)$ dans la limite de couplage fort. $J(q) = -J_0(\cos k_x.a + \cos k_y.a)$ se justifie par la proximité de l'antiferromagnétisme et l'observation de fortes fluctuations antiferromagnétiques dans l'état métallique. Il présente l'avantage d'avoir un effet maximum à $(\pi/a, \pi/a)$. Les interactions sont typiquement traitées dans une approximation de la phase aléatoire (RPA) qui permet d'écrire la susceptibilité en interactions[50],

$$\chi(q, \hbar\omega) = \frac{\chi^\circ(q, \hbar\omega)}{1 - J(q)\chi^\circ(q, \hbar\omega)} \quad (2.8)$$

La forme spectrale Eq. 2.8 permet d'expliquer les différents aspects de la résonance[121] avec des paramètres réalistes de la structure de bandes[46]. En particulier, elle prédit l'existence d'un **mode collectif** lorsque son dénominateur s'annule, c.a.d. pour la condition suivante,

$$1 - J(q)Re\chi^\circ(q, \hbar\omega) = 0 \quad (2.9)$$

Comme il est schématisé sur Fig. 2.11, $Re\chi^\circ(q, \hbar\omega)$ augmente avec l'énergie pour diverger logarithmiquement à ω_c du fait de la discontinuité à cette énergie de sa partie imaginaire. La condition de pôle Eq. 2.9 doit donc être nécessairement remplie à une énergie $E_r(q) < \hbar\omega_c$ où $Im\chi^\circ(q, E_r(q))$ est nulle. Ainsi, $Im\chi(q, \hbar\omega)$ s'écrit comme un pic de Dirac de la même manière que Eq. 2.5. Par conséquent, Eq. 2.8 rend compte parfaitement de l'observation de la finesse en énergie de la résonance à q_{AF} ainsi que sa dispersion. Par ailleurs, le pic de résonance dans ce modèle est la première excitation

triplet au dessus de l'état fondamental SC singulet. Nous avons effectué une mesure de DIN en fonction du champ magnétique qui montre un élargissement du pic de résonance [126], qui est compatible avec un splitting d'un état triplet par effet Zeeman. Cependant, même pour un champ magnétique élevé, $H=12$ T, le splitting attendu est trop faible pour apporter une réponse définitive.

La forme spectrale de $Im\chi(q, \hbar\omega)$ est schématisée à q_{AF} sur la figure 2.11, on observe en plus du pic de Dirac à E_r la contribution du continuum électron-trou au dessus du seuil $\hbar\omega_c$ qui n'a pas pour l'instant été clairement identifié expérimentalement. Le mode collectif, déterminé par la condition de pôle en fonction du vecteur d'onde, Eq. 2.9, est représenté par les points rouges sur la partie gauche de Fig. 2.4[121], reproduisant la forme déduite de la mesure (la partie droite de Fig. 2.4[73]). Le signe de la dispersion vers les basses énergies s'explique dans cette approche par la symétrie d du gap supraconducteur. Comme tout mode magnétique collectif[51], le mode rejoint le continuum en perdant son poids spectral. On pourrait ainsi associer le gap de spin à l'énergie où le mode collectif rejoint le continuum, en tout cas pour les dopages où $T_C > 60$ K. Le même genre de comportement de la susceptibilité est aussi obtenu dans le cadre d'un modèle de couplage spin-fermion [39].

Dans cette approche, il est évident que l'énergie de la résonance, $E_r(q_{AF})$, est par principe proportionnelle à la valeur du gap supraconducteur. Cependant, cette relation est loin d'être simple. Pour fixer les idées, il est donc intéressant de la détailler et d'estimer numériquement le lien entre l'énergie de la résonance et Δ_{max} . Cela est maintenant possible dans BSCO proche du dopage optimal où l'ensemble des paramètres est connu. En effet, la valeur du seuil du continuum peut être en fait expérimentalement déterminée par les mesures de photoémission résolue en angle. Tout d'abord, le maximum du gap supraconducteur est mesuré à $\Delta_{max} = 35$ meV [33]. Ensuite, une étude détaillée de la surface de Fermi [125] montre que les quasi-particules qui sont connectées par $(\pi/a, \pi/a)$ sont situées sur la surface de Fermi lorsque le vecteur d'onde fait un angle $\theta_0 = 6$ deg avec la direction (1,0,0). Ainsi, on a $\Delta_{k_0} \simeq 34$ meV et le seuil du continuum électron-trou vaut $\hbar\omega_c \simeq 68$ meV. L'énergie de la résonance pour cette composition a été mesuré à $E_r = 43$ meV [79], on a donc $E_r \simeq 1.25\Delta_{k_0}$ c.a.d. à une énergie nettement plus basse que $\hbar\omega_c$. Le scénario d'une susceptibilité sans interactions est donc clairement insuffisant pour expliquer l'énergie où est observée la résonance. Finalement, on trouve le rapport, $E_r/\Delta_{max} \simeq 1.2$ pour BSCO proche du dopage optimal. Également, ce type de scénario permet de comprendre pourquoi la résonance présente une largeur dans BSCO. En effet, comme déjà indiqué, des mesures récentes de microscopie par effet tunnel [85] montre une distribution en énergie de la valeur du gap supraconducteur (due à des hétérogénéités intrinsèques). Du fait de la condition de pôle (Eq. 2.9), cette distribution du gap SC peut ainsi induire une distribution de l'énergie de la résonance donnant naturellement lieu à un élargissement.

Si l'énergie de résonance reflète l'amplitude du gap supraconducteur, le facteur de proportionnalité doit évoluer en fonction du dopage dans la mesure où, comme nous l'avons vu plus haut, le gap supraconducteur et la résonance ont une dépendance opposée en dopage. Le gap supraconducteur diminue avec le dopage[33] alors que E_r suit typique-

ment T_C , $E_r/k_B T_C \simeq 5.1$ (Fig. 2.5). Cela implique que le rapport E_r/Δ_{max} diminue fortement dans le régime sous-dopé alors qu'il doit converger vers 2 dans le régime très sur-dopé. Ce comportement correspond exactement à celui déduit d'une analyse récente de la forme du spectre à une particule mesurée par effet tunnel dans BSCO [127]. Afin d'avoir une condition de pôle (Eq. 2.9) à plus basse énergie alors que $\omega_c \propto \Delta_{max}$ augmente, $J_0 Re\chi_0(q, 0)$ doit nécessairement s'approcher de l'unité quand on diminue le dopage. La proportionnalité empirique de l'énergie de la résonance avec T_C est donc assez étonnante dans ce contexte. Il pourrait indiquer que la condition $J_0 Re\chi_0(q_{AF}, 0) \rightarrow 1$ est déterminante pour l'évolution de T_C dans le régime sous-dopé. Alternativement, des effets de structure de bandes peuvent diminuer ω_c réduisant ainsi E_r [121]. Un autre aspect qui est généralement considéré comme une difficulté importante de cette approche est l'évolution en température. En effet, dans une approche classique de type BCS [2], le gap supraconducteur doit se réduire fortement en chauffant pour atteindre zéro à T_C . Aussi, l'énergie de la résonance devrait suivre la même évolution, ce qui n'est pas le cas. Cependant, dans les supraconducteurs à haute température critique, l'évolution thermique de Δ_{max} n'est pas conforme à celle attendue par BCS. De ce fait, cette difficulté du modèle doit être considérée dans le cadre plus général du mécanisme de la supraconductivité à haute température critique. D'ailleurs, des mesures de diffusion Raman du mode B_{1g} (qui mesure $2\Delta_{max}$) montre que le gap supraconducteur est très peu renormalisé en fonction de la température [128].

2.5.2 Interprétations alternatives

Le pic de résonance a aussi été décrit dans le cadre d'autres approches théoriques. En premier lieu, un modèle d'électrons fortement corrélés, modèle SO(5) [129], a même été spécialement développé pour décrire ce phénomène [130]. Le but de ce modèle est ainsi d'unifier la supraconductivité et l'antiferromagnétisme à partir d'un seul paramètre d'ordre à 5 composantes, deux composantes correspondent l'amplitude et à la phase du paramètre d'ordre supraconducteur et les trois autres représentent les directions dans l'espace du spin. Les différentes phases des cuprates sont obtenues par la mise en ordre de certaines composantes au détriment des autres. Le pic de résonance est alors une excitation magnétique collective particule-particule révélée dans la phase supraconductrice, dont l'énergie correspondrait à l'énergie nécessaire pour faire basculer le système de la supraconductivité à l'antiferromagnétisme. Ainsi, E_r dans ce modèle doit être proportionnelle au dopage [130]. Expérimentalement, on observe cette tendance jusqu'au dopage optimal. Au delà, cependant, l'énergie de la résonance redécroit que cela soit dans YBCO lorsque l'on augmente le dopage de YBCO_{6.9} à YBCO₇ (Fig. 2.9) ou plus clairement dans BSCO dans l'état sur-dopé [80], du fait que E_r suit T_c en désaccord avec la prédiction. Également, la renormalisation de E_r avec la substitution en Ni (qui ne change pas le dopage) est en désaccord avec cette approche. Par ailleurs, il a été récemment discuté [131] que cette excitation, si elle existe, doit se situer à une énergie supérieure au continuum électron-trou, rendant son observation très difficile.

Dans une autre approche [132], le pic de résonance est une excitation magnétique de

type "onde de spins". Elle serait présente dès la phase normale mais serait révélée dans la phase supraconductrice du fait de la réduction de son amortissement par effet de cohérence. A priori, une telle interprétation est compatible avec l'expérience. Cependant, elle suppose que le spectre magnétique présent dans la phase normale soit précurseur du pic de résonance de la phase supraconductrice. Cette relation, qui pourrait avoir lieu dans l'état sous-dopé $x \sim 0.6 - 0.8$ dans YBCO [68, 63, 64], ne semble pas cependant être observée pour YBCO_{6.92}[68] comme nous le verrons au chapitre suivant. Aussi, le lien entre les fluctuations AF dans l'état normal et le pic de résonance n'est pas aussi direct que le suppose ce modèle. Également, l'observation d'une dispersion vers les basses énergies n'est pas attendue pour ce type d'excitation.

Enfin, l'existence d'un pic maximum au vecteur d'onde commensurable $(\pi/a, \pi/a)$ ne supporte pas une image de rubans de charges, "stripes", séparant des zones magnétiques: dans ce cas, les fluctuations magnétiques doivent avoir lieu autour d'un vecteur d'onde incommensurable caractérisant la distance moyenne entre les lignes de charges. Bien sur, l'observation de fluctuations incommensurables dans YBCO[72] a été un temps considéré comme la preuve de leurs formations. Cependant, nous avons par la suite montré que ces pics incommensurables évoluaient en fait avec la température et l'énergie[73] en désaccord avec un vecteur d'onde incommensurable unique contrôlé par le dopage. Cela rendait ce type d'interprétation en faveur des "stripes" peu vraisemblable. Plus récemment, diverses interprétations de la résonance et de sa dispersion ont été donné [133, 134] dans le cadre des "stripes".

Tout d'abord, dans l'hypothèse d'un couplage électron-phonon fort, les "stripes" peuvent être accrochées au réseau et des ondes de spins vont se développer autour du vecteur d'onde incommensurable δ mesuré à partir de $(\pi/a, \pi/a)$. Dans la limite où le couplage avec le réseau est faible, les lignes de charges sont désordonnées[133] et les fluctuations magnétiques sont alors commensurables avec une distribution en vecteur d'onde couvrant 2δ . Pour un couplage intermédiaire, le spectre magnétique présente un "crossover" entre des fluctuations incommensurables à basse énergie vers un spectre large autour du vecteur d'onde AF à plus haute énergie. Bien que cette situation pourrait décrire la dispersion de la résonance décrite sur la figure 2.7, la bordure du crossover représente en fait que la limite basse énergie d'un continuum d'excitations. Le pic de résonance étant décrit par une fonction de Dirac, il paraît peu vraisemblable qu'il corresponde au seuil d'un continuum.

Par ailleurs, il a été proposé[134] que la dispersion observée provienne du croisement de deux branches d'onde de spins dispersant à partir de vecteurs d'ondes incommensurables décalés de $+\delta$ et $-\delta$ de $(\pi/a, \pi/a)$. L'interaction entre ces deux branches à $(\pi/a, \pi/a)$ fait apparaître un pic bien défini qui serait assimilable au pic de résonance. Dans cette hypothèse, la figure 2.7 correspond à cette excitation collective autour de $(\pi/a, \pi/a)$. Ce mode serait en plus tronqué aux vecteurs d'ondes éloigné de $(\pi/a, \pi/a)$ par un facteur de structure particulier et hypothétique du fait du désordre. En fait, comme proposé par Batista *et al*[134], ce type de phénomène a plus de chance d'être observé dans des systèmes autres que les cuprates où la physique des "stripes" est considérée comme établie, comme c'est le cas des nickelates. Nous avons récemment étudié le système La_{2-x}Sr_xNiO₄ avec

$x=0.31$ [135] où nous avons nettement observé des ondes de spins. Le spectre magnétique se développe en effet sur l'ensemble de la zone de Brillouin; il présente un maximum à $(\pi/a, \pi/a)$ vers 80 meV. Ainsi, une coupe à une énergie inférieure à 80 meV montre quatre maximum correspondant aux 2 branches émanant des 2 vecteurs d'onde incommensurables symétriques de chaque côté du vecteur d'onde AF. Par conséquent, ce comportement diffère clairement de la dispersion du mode résonant des cuprates. De plus, en fonction de la température, le mode se renormalise nettement en s'élargissant à la différence des cuprates où le mode s'effondre en amplitude sans se renormaliser. Même en supposant que le mode soit moins bien défini dans les cuprates du fait que l'ordre de charges est supposé dynamique, le lien entre cette réponse magnétique de type magnon et le pic de résonance paraît difficile à réconcilier. Il serait intéressant de poursuivre ces mesures dans des cuprates où un ordre de type "stripes" est proposé[27].

Finalement, dans ces deux dernières approches, le pic de résonance et sa dispersion ne sont pas liées à l'existence d'une supraconductivité de symétrie d . Ici, la supraconductivité est uniquement considéré comme un élément favorisant l'ampleur du pic par un effet de couplage des moments magnétiques localisés avec les charges. Ainsi, l'évolution en température décrite plus haut de la résonance serait due à une réduction du temps de vie des électrons dans la phase supraconductrice.

2.6 Importance pour le mécanisme ?

2.6.1 Impact sur le spectre à une particule

Du fait de l'observation systématique du pic de résonance à la condition que la température critique supraconductrice du système soit suffisamment élevée, cette excitation peut en principe être, directement ou indirectement, responsable du mécanisme de la supraconductivité à haute température critique. Comme déjà indiqué dans l'introduction, la forme spectrale inhabituelle du pic de quasi-particules mesurée dans l'état supraconducteur par photoémission résolue en angle dans BSCO a été interprétée comme étant dû à un couplage avec une excitation collective localisée autour du vecteur d'onde AF [136], et plus précisément avec le pic de résonance[137, 81]. Cette structure mesurée en photoémission est connue sous le nom structure *peak-dip-hump* ("pic-creux-bosse"). Les fluctuations magnétiques interviennent dans les interactions électroniques à plusieurs particules, "self-energy", introduisant un amortissement supplémentaire (synonyme d'un creux dans la réponse électronique) à une énergie égale à celle de la résonance au dessus du gap supraconducteur, c.a.d. $E_{dip} \simeq E_r + \Delta_q$. Ce type de comportement rappelle d'ailleurs les mesures d'effet tunnel dans les supraconducteurs classiques où les pics de phonons apparaissent dans la densité d'état électronique au dessus du gap SC lorsque le couplage électron-phonon est suffisamment fort[32]. Par analogie, une correspondance quantitative a été trouvée entre l'énergie de la résonance et l'énergie séparant la position du pic de celle du creux [81, 39]. Récemment, la même analyse a été effectuée sur les mesures d'effet tunnel dans BSCO [127] qui indique un couplage avec un mode qui suit la même proportionnalité que E_r avec T_c .

Cependant, cette analyse a été récemment remise en cause dans BSCO[3] du fait que cette structure *peak-dip-hump* est mesurée autour du point $(\pi, 0)$ où le spectre peut être dû (au moins en partie) à d'autres phénomènes comme l'éclatement des bandes électroniques du fait de l'interaction à l'intérieur de la bicouche, ou comme la sur-structure des plans Bi-O. Ainsi, le débat s'est orienté vers les mesures de photoémission résolue en angle aux points nodaux où l'on croise le niveau de Fermi dans la direction (π, π) . Pour ce vecteur d'onde, le gap supraconducteur est nul et l'on peut mesurer directement la renormalisation de la structure de bandes électroniques en fonction de la température et du dopage. De fait, une cassure dans le spectre est observé pour ce vecteur d'onde particulier quasiment systématiquement dans tous les cuprates[3, 138]. De plus, dans BSCO, cette renormalisation électronique est fortement amplifiée dans la phase supraconductrice. L'interprétation de ce phénomène diffère fortement selon les groupes : pour certains[3], cette cassure dans la dispersion électronique est la preuve d'un couplage avec un phonon situé autour de 60-70 meV. Pour d'autres[138, 139], elle est d'origine magnétique et l'amplification du phénomène en dessous de T_C est associée au pic de résonance. Ce n'est pas dans le cadre de ce mémoire de trancher sur ce point bien que les arguments défendus pour disqualifier le magnétisme[3] (comme l'absence de pic de résonance dans LSCO) ne sont pas valides dans la mesure où les fluctuations magnétiques existent largement dans tous les cuprates. Cette question ne pourra être résolue que lorsqu'une modélisation complète du spectre magnétique sera effectuée et injectée dans la réponse électronique à une particule. En tout état de cause, la forte renormalisation du temps de vie des électrons en fonction de l'énergie est la preuve de fortes interactions électron-électron soulignant plutôt un mécanisme magnétique.

Un débat s'est d'ailleurs ouvert à ce sujet à partir du poids spectral du pic de résonance, $I_0 = \int d\omega d^3\mathbf{Q} \text{Im}\chi^{res}(\mathbf{Q}, \omega) \simeq 0.05 \mu_B^2/f.u.$, qui ne représente que 2 % du poids spectral des ondes de spins du composé parent isolant YBCO₆. Cette valeur faible pose la question de savoir si elle est suffisante pour expliquer la renormalisation de la structure de bandes électroniques ou pas [140, 141]. En fonction de la modélisation du spectre magnétique et de la densité d'état électronique, des réponses opposées ont été formulées. Pour Kee *et al* [140], I_0 est beaucoup trop faible pour expliquer ces anomalies du fait que la valeur déduite du couplage électron-électron est seulement de 14 meV. D'autres[141] ont déduit un couplage électron-électron de 700 meV à partir des mêmes données et en conclut que I_0 permet de rendre compte de la renormalisation électronique. En fait, cet énorme écart sur le terme de couplage provient principalement de la la valeur de la densité d'état électronique au niveau de Fermi qui diffère d'un facteur 10 entre ces deux estimations. Au delà de l'aspect partisan de ces conclusions, il semble que le modèle développé par Abanov *et al* [141] soit plus complet dans la mesure où il repose sur une analyse globale des résultats expérimentaux et en particulier sur les mesures de la susceptibilité de spins dans l'état normal alors que Kee *et al* [140] s'appuient sur une description peu crédible de la résonance. Comme nous l'avons discuté plus haut, tous ces auteurs [91, 92, 140, 141] s'accordent néanmoins sur le fait que I_0 est amplement suffisant pour expliquer l'énergie de condensation supraconductrice. Ainsi, les fluctuations magnétiques demeurent l'option principale pour le mécanisme de la supraconductivité à haute température critique.

2.6.2 Exemple d'UPd₂Al₃

Il est, par ailleurs, instructif de comparer avec un autre supraconducteur non-conventionnel, UPd₂Al₃, où la supraconductivité semble aussi être médiée par des fluctuations magnétiques [142, 143]. Ce système à fermions lourds est remarquable car il présente simultanément un état de Néel AF en dessous de $T_N = 14.3\text{K}$ et un état supraconducteur en dessous de $T_C \sim 2\text{K}$ avec une symétrie non-conventionnelle (avec aussi des noeuds où le gap supraconducteur change de signe). La spectroscopie à effet tunnel dans l'état SC a révélé dans ce système [142] des oscillations au dessus du gap SC. L'énergie de ces oscillations, $\sim 1.4\text{meV}$, est comparable à celle des ondes de spins qui ont été directement mesurées par DIN [144, 145] autour du vecteur d'onde de propagation de la structure AF, $Q_0 = (0, 0, \frac{1}{2})$. Par analogie avec les supraconducteurs classiques [32], ces données d'effet tunnel suggèrent fortement une origine magnétique de la SC dans ce système. Par ailleurs, une excitation magnétique apparaît dans ce système dans le spectre neutrons uniquement dans la phase supraconductrice à une énergie $\hbar\omega \simeq 0.36\text{meV}$, et à Q_0 [144, 145]. De fait, cette excitation est tout à fait similaire au pic de résonance dans les cuprates. En particulier, elle apparaît à une énergie inférieure à deux fois le gap SC et au vecteur d'onde caractéristique des corrélations magnétiques. Elle peut aussi se décrire par une approche similaire à celle décrite plus haut (section 2.5.1).

Cependant, la différence principale avec les cuprates est que dans UPd₂Al₃ la densité électronique montre un couplage avec la réponse magnétique qui préexiste dans l'état normal (les ondes de spins) et pas avec le mode "résonant" de la phase SC. Pour comprendre cette différence, il convient de rappeler que ce système possède deux sources distinctes de magnétisme : d'une part les moments locaux de l'uranium responsable de l'ordre AF et d'autre part les électrons de conduction $4d$ du Pd qui s'apparient dans l'état SC. Ces deux types de magnétisme donnent d'ailleurs deux réponses magnétiques distinctes dans l'état normal bien qu'elles soient couplées : une lorentzienne quasi-élastique est observée en plus des ondes de spins AF [145].

2.6.3 Conclusion

Dans les cuprates, cette dichotomie n'existe pas : bien qu'elle soit large en énergie et vecteur d'onde, une seule excitation est observée dans l'état normal (cf chapitre suivant). Cela se traduit d'un point de vue théorique que l'on ne sait pas dissocier le magnétisme des porteurs de charges dans les cuprates de celui associé au spin- $\frac{1}{2}$ du Cu^{2+} . C'est d'ailleurs toute la difficulté de la description théorique des supraconducteurs à HTC où l'on observe une surface de Fermi large (avec $1 + n_h$ porteurs de charges) pour un apport de seulement $n_h \sim 0.1 - 0.2$ trous de dopage. Cela se traduit pour le magnétisme des cuprates par une nature duale localisée et itinérante.

Afin de comprendre la forte déformation du spectre magnétique à travers T_C , la question importante est donc : quel est le lien entre le pic de résonance de l'état SC et les corrélations magnétiques de l'état normal ? Il a été proposé que le maximum de la susceptibilité de spins dans l'état normal soit directement l'énergie de la résonance [132].

Comme nous l'avons déjà discuté, cette hypothèse n'est pas vérifiée à tous les dopages, et en particulier ne l'est pas autour du dopage optimal. Nous verrons d'ailleurs, dans le chapitre suivant, que le maximum de la susceptibilité magnétique à $(\pi/a, \pi/a)$ dans l'état sous-dopé évolue peu en fonction du dopage autour de $\hbar\omega \sim 30$ meV alors que la résonance est clairement renormalisée vers les basses énergies pour les mêmes concentrations. Cependant, ces deux réponses magnétiques semblent fortement imbriquées : d'un point de vue expérimental, le pic de résonance se forme à partir de la réponse magnétique large de la phase normale. Concrètement, l'apparition du pic de résonance change la forme spectrale en énergie [68, 69] mais aussi en vecteur d'onde [73, 74] des fluctuations magnétiques, redistribuant complètement le poids spectral. Cela fait une différence considérable avec UPd_2Al_3 , où les deux excitations dans l'état SC - ondes de spins et pic de "résonance" - ont lieu dans des gammes d'énergies distinctes qui ne se recouvrent pas.

D'ailleurs, le fait que le pic de résonance semble littéralement remplacer le pic de corrélations magnétiques de l'état normal peut expliquer pourquoi la structure anormale du spectre de photoémission ne soit (apparemment) sensible qu'au pic de résonance. En d'autres termes, une seule anomalie étant présente pour un vecteur d'onde donné dans les spectres de photoémissions, elle ne peut être qu'associée qu'au pic de résonance ! Ce raisonnement est par trop simpliste et une comparaison avec l'ensemble du spectre magnétique doit être effectué.

Finalement, même si ces deux termes doivent être nécessairement reliés, des processus physiques distincts doivent avoir lieu pour expliquer les deux énergies caractéristiques dans chacune des phases. Un scénario possible est donné par Manske et al[146]; dans cette approche où le mécanisme de la supraconductivité est dû aux fluctuations AF, l'énergie de la résonance est distant du continuum, $2\Delta_{max}$, de l'énergie où la susceptibilité est maximum dans l'état normal, ω_{sf} : $E_r \simeq 2\Delta_{max} - \omega_{sf}$. Afin de prolonger ce type d'idée, il serait intéressant d'étudier en détail le spectre électronique du supraconducteur Sr_2RuO_4 (isomorphe des cuprates) où des fluctuations incommensurables de basses énergies ont été mesurées[60]. Il a été, en effet, proposé qu'elles puissent être responsable de la supraconductivité dans ce système. Les mesures de photoémission pointent donc vers un mécanisme de la SC à HTC d'origine magnétique où le pic de résonance joue un rôle central. Cependant, on peut aussi se demander si cette excitation ne serait pas seulement la conséquence de l'apparition de la supraconductivité induite par le magnétisme et non pas la cause du mécanisme lui-même. En d'autres termes, ce pic de résonance pourrait être la partie émergée de l'iceberg antiferromagnétique.

Chapitre 3

Corrélations magnétiques dans l'état normal

Dans n'importe quel mécanisme de la supraconductivité basé sur le magnétisme [4, 5], l'interaction est directement proportionnelle à la susceptibilité de spins mesuré dans *l'état normal*. Plus encore que dans l'état supraconducteur, la détermination du spectre magnétique mesuré par DIN au dessus de T_C est donc l'étape essentielle pour répondre à cette question majeure. Malheureusement, les corrélations AF mesurées dans l'état normal sont plus larges en vecteur d'onde et en énergie. Il est donc plus difficile de faire une analyse quantitative détaillée et beaucoup moins de publications portent sur cet aspect. Je vais donner ici une description globale de ces fluctuations AF dans l'état normal sur une large partie du diagramme de phase.

Plusieurs expériences de DIN dans les supraconducteurs à haute température critique ont toutefois nettement établi l'existence de fortes corrélations AF aussi dans la phase normale. Cette situation est clairement différente ce que l'on attendrait dans n'importe quel SC conventionnel. Typiquement, la susceptibilité de spins dans n'importe quel métal paramagnétique (comme Al, Cu,...) doit être étendue sur une large gamme en énergie jusqu'à la largeur de bande électronique, $t \sim 0.5$ eV), sans présenter de structure particulière à travers la zone de Brillouin du fait des faibles corrélations magnétiques dans les métaux usuels. Son amplitude est en fait tellement faible que ces fluctuations de spins électroniques n'ont pas été mesurées pour l'instant par DIN. L'amplitude des corrélations magnétiques, de l'ordre de plusieurs centaines de μ_B^2/eV , mesurée dans l'état métallique des cuprates, que cela soit au vecteur d'onde AF $(\pi/a, \pi/a)$, dans YBCO [68, 63] où proche de $(\pi/a, \pi/a)$ dans LSCO [66] est de fait nettement supérieure à ce qui est attendu dans des métaux sans interactions, où elle serait de l'ordre de $1/t \sim 2-4 \mu_B^2/\text{eV}$. Cela, en soit, souligne l'importance des corrélations AF pour la description des supraconducteurs à haute température critique. On peut estimer la susceptibilité de spins dans une approche de type RPA, telle que Eq. 2.8; on peut ainsi définir un facteur de Stoner, $R_q = 1/(1 - J(q)Re\chi^\circ(q, 0))$. Ce terme doit être minimum à q_{AF} , $R_{q_{AF}} = 1/(1 - J_0 Re\chi^\circ(q_{AF}, 0))$, pour rendre compte de l'observation de fortes fluctuations AF. Nous verrons qu'une estimation simple de $R_{q_{AF}}$ donne ~ 20 pour YBCO₇, qui montre

clairement de fortes corrélations électroniques. La question de la validité du modèle RPA se pose dans cas de figure. Néanmoins, ce type de calcul montre que, même autour du dopage optimal, les cuprates sont toujours proches de l'instabilité antiferromagnétique.

Dans ce chapitre, les fluctuations magnétiques déterminées dans l'état normal d'YBCO sont présentées. Ce type de mesure manque crucialement pour l'instant dans d'autres composés comme BSCO ou Tl-2201. je vais tout d'abord décrire la dépendance en vecteur d'onde de ces fluctuations magnétiques dans l'état métallique définissant deux régimes distincts : à basse énergie $\hbar\omega < 40 - 50$ meV et à haute énergie. Ensuite, je vais discuter la dépendance en énergie au vecteur d'onde AF et intégrée en vecteur d'onde définissant une susceptibilité locale. Dans une partie suivante, je vais donner une estimation du poids spectral magnétique en unités absolues en précisant toutes les difficultés qui, de fait, rendent souvent difficile son interprétation. Également, je vais utiliser cette mise en unités absolues de la susceptibilité magnétique pour calculer la contribution pour les temps de relaxation spin-réseau et spin-spin de la RMN du cuivre et comparer avec ces grandeurs mesurées. Je vais enfin comparer les spectres mesurés avec des modèles théoriques basés soit une hypothèse d'existence de surface de Fermi, soit sur l'hypothèse d'une ségrégation de charges sous forme de "stripes".

3.1 Dépendance en vecteur d'onde

3.1.1 Basse énergie : $\hbar\omega < 40 - 50$ meV

En règle générale, le dépendance des corrélations magnétiques dans l'état métallique d'YBCO est maximum au vecteur d'onde **commensurable**, $(\pi/a, \pi/a)$, à toutes les énergies. Ce comportement n'est pas vérifié dans deux cas de figures : d'une part, dans l'état sous-dopé en dessous de T_c du fait de la dispersion de la résonance comme il a été discuté dans le chapitre précédent. Par contre, dans ces échantillons, la réponse magnétique est commensurable dans l'état normal aux mêmes énergies (très clairement à partir de $\sim T_c + 10$ K)[147, 72, 73]. D'autre part, la susceptibilité de spins présente dans l'état fortement sous-dopé, YBCO_{6.5}[62], deux maxima de part et d'autre de $(\pi/a, \pi/a)$ quand l'énergie est supérieure à ~ 40 meV. Ce type de fluctuations ressemble à des ondes de spins et sera décrit dans la sous-partie suivante.

Par conséquent, si on ne se préoccupe que de la partie de basse énergie (disons en dessous de 50 meV) qui est de fait la partie la plus intéressante, les corrélations magnétiques sont caractérisées à chaque énergie dans l'état normal par un pic commensurable large en vecteur d'onde. Il est parfois considéré que ce résultat n'est que l'indice de la mauvaise qualité des échantillons mais que dans des échantillons supposés de meilleure qualité (par exemple sans impuretés,...) les excitations magnétiques devraient être incommensurables. On peut toutefois objecter que les meilleurs échantillons (dans lesquels on observe clairement des pics incommensurables à basse température) ne présentent pas de pics incommensurables dans l'état normal. Aussi, il paraît plus vraisemblable que la réponse intrinsèque magnétique d'YBCO dans l'état normal soit fondamentalement commensurable. Cela justifie une analyse avec un pic unique centré autour de q_{AF} . Concrètement, la

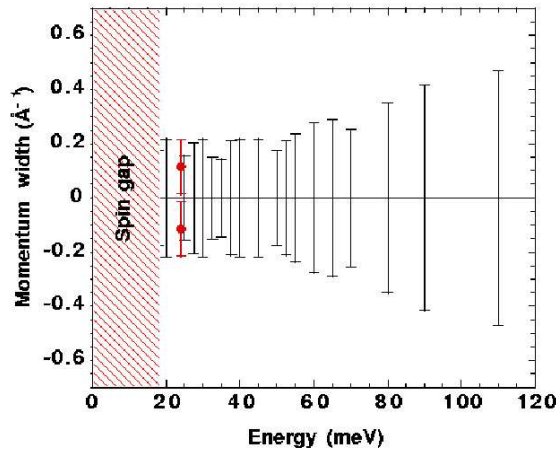


Figure 3.1: Dépendance en fonction de l'énergie de la largeur en vecteur d'onde, Δ_q , dans $\text{YBCO}_{6.7}$. Les barres d'erreurs montrent la largeur en vecteur d'onde à chaque énergie et déconvoluée de la fonction d'appareil. Les points fermés montrent la position des pics incommensurables dans la phase SC ([63]).

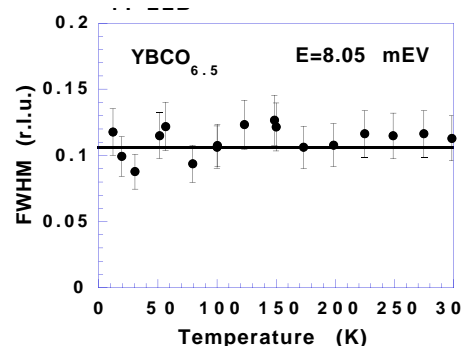


Figure 3.2: Dépendance en température de la largeur en vecteur d'onde, Δ_q , dans $\text{YBCO}_{6.5}$ à $E=8.05$ meV. ([149])

forme précise en fonction du vecteur d'onde s'avère systématiquement plus proche d'une Gaussienne que d'une Lorentzienne. Cette dernière devrait, en principe, mieux décrire la réponse d'un système paramagnétique fortement corrélé[50, 148, 49, 52]. La Gaussienne n'a pas de justification théorique. Néanmoins, la diffusion magnétique dans YBCO a été empiriquement décrit par une forme Gaussienne [67, 84, 149, 150] telle que,

$$S(Q, \omega) = \chi_q(\omega) \exp\left(-\log 2 \frac{(q - q_{AF})^2}{\Delta_q^2(\omega)}\right) \quad (3.1)$$

où $\Delta_q(\omega)$ est la demi largeur à mi hauteur (HWHM). Dans la gamme d'énergie considérée, $\Delta_q(\omega)$, qui en principe devrait être une fonction croissante de l'énergie, augmente très peu avec l'énergie [67, 150, 63]. De plus, cet élargissement avec l'énergie n'est plus mesurable dès que $x \geq 0.6$ comme l'indique la Fig. 3.1 dans $\text{YBCO}_{6.7}$ [63].

Par ailleurs, dans toutes les expériences de DIN (e.g. [149, 150, 67, 69, 63]), cette largeur en vecteur d'onde, Δ_q est très peu (voir pas du tout) dépendante de la température quelque soit le dopage. Ce résultat est particulièrement clair autour de $x \simeq 0.5$ où cette largeur est encore suffisamment faible à basse température pour pouvoir augmenter en chauffant. Cependant, aucune variation n'est visible dans les barres d'erreurs ($\sim 10\%$) jusqu'à la température ambiante[149] (Fig. 3.2). A plus fort dopage, la largeur à basse température est déjà trop importante et l'intensité AF disparaît en chauffant sans aucun signe d'élargissement [67, 63]. Ce résultat, connu depuis longtemps [149], est contraire à ce qui est attendu dans un métal corrélé [148, 49]. Pour fixer les idées, on peut déduire

x	0.4	0.45	0.5	0.5	0.5	0.6	0.6
T_C (K)	25	45	47	50	52	53	63
Gamme en énergie (meV)	3-15	3-15	4-15	2-15	4-15	6-15	24*
Δ_q^{mes} (\AA^{-1})	0.075	0.08	0.12	0.115	0.115	0.14	0.18
Δ_q^{resol} (\AA^{-1})	0.023	0.023	0.023	0.05	0.05	0.035	0.07
Δ_q (\AA^{-1})	0.07	0.075	0.115	0.11	0.1	0.14	0.17
Refs.	[151]	[151]	[67, 152]	[62, 63]	[149]	[150]	[88]

x	0.69	0.7	0.8	0.83	0.92	0.97
T_C (K)	59	67	82	85	91	92.4
Gamme en énergie (meV)	15-20	15-25	20-25	15-25	28-38	33-37
Δ_q^{mes} (\AA^{-1})	0.17	0.17	0.21	0.23	0.25	0.25
Δ_q^{resol} (\AA^{-1})	0.06	0.07	0.09	0.11	0.11	0.11
Δ_q (\AA^{-1})	0.16	0.16	0.18	0.2	0.23	0.23
Refs.	[25]	[63]	[89]	[153]	[75, 152]	[84]

Table 3.1: Largeur en vecteur d'onde (HWHM) du pic AF en fonction du taux d'oxygène dans YBCO. Ces largeurs ont été déterminé par des mesures suivant la direction (110) (voir le texte). Δ_q^{resol} représente la HWHM de la résolution Gaussienne du spectromètre. Les largeurs intrinsèques ont été obtenues par une déconvolution de la largeur instrumentale en supposant un profil Gaussien pour la forme en vecteur d'onde des corrélations magnétiques (Eq. 3.1). La gamme en énergie (de laquelle la largeur en Q est déduite) est indiquée (* correspond à la seule valeur publiée). ([71])

une longueur de corrélation de cette largeur en vecteur d'onde, telle que $\frac{\xi}{a} = 1/\Delta_q$. On obtient ainsi des longueurs très courtes, $\frac{\xi}{a} \simeq 1-2$ (pour $x \geq 0.6$), peu compatible avec une approche de type métal faiblement corrélé [4, 148, 49].

Ne variant pas du tout avec la température et étant peu dépendant de l'énergie, cette largeur en vecteur d'onde est alors nécessairement caractéristique du dopage en trous. En considérant, les résultats de basse énergies pour chaque taux d'oxygène, nous avons effectué une analyse complète de toutes les données neutrons publiées dans YBCO [87, 71]. La table 3.1 résume cette analyse. La gamme de basse d'énergie, de laquelle cette largeur est déduite, augmente évidemment avec x du fait que le poids spectral est décalé vers les hautes énergies avec le dopage. La majeure partie des données proviennent de mesures effectuées suivant la direction diagonale (110). D'autres mesures suivant la direction (310) sont en accord avec l'hypothèse que cette largeur en vecteur d'onde est principalement isotrope. L'état totalement oxydé YBCO₇ n'est pas présent dans cette table (table 3.1) dans la mesure où les fluctuations AF dans l'état normal n'ont pas été détectés dans ce régime sur-dopé [152, 78, 68]. La largeur en vecteur d'onde (après déconvolution de la fonction instrumentale) peut ensuite être représentée en fonction du taux d'oxygène (Fig. 3.3). On s'aperçoit alors qu'elle décrit en fait une évolution qui correspond à celle

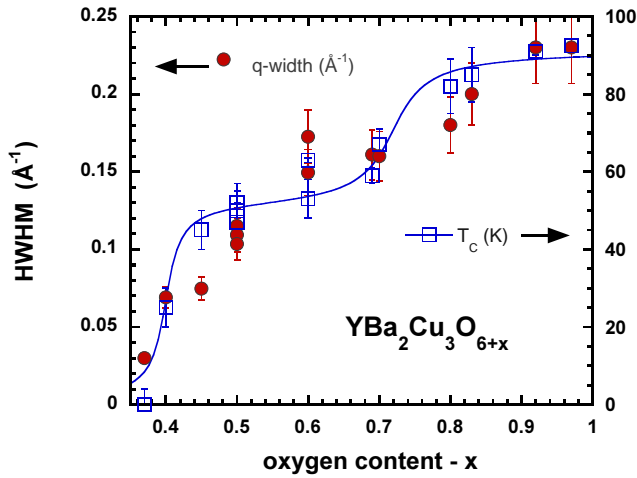


Figure 3.3: Dépendance en fonction du taux d'oxygène de la largeur en vecteur d'onde, Δ_q , dans YBCO_{6+x} ([87, 71]).

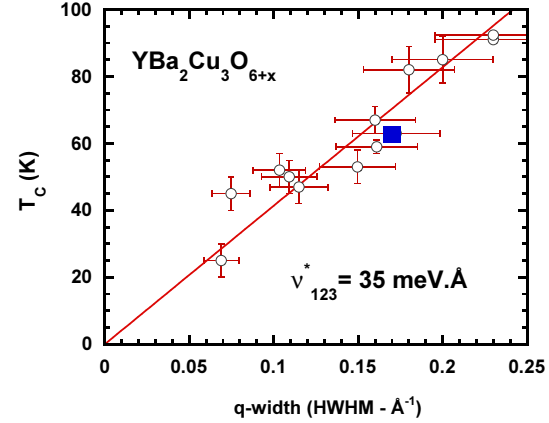


Figure 3.4: Transition supraconductrice en fonction de la largeur en vecteur d'onde du pic de la susceptibilité de spins Δ_q . Pour comparaison, le carré plein montre le vecteur incommensurable de l'état supraconducteur dans $\text{YBCO}_{6.6}$ [72] ([71]).

de la température supraconductrice (c.a.d. une évolution qui ne suit pas uniquement celle du dopage en trous). Par conséquent, Δ_q définit des objets qui sont essentiellement dépendant du niveau de dopage (voir sous-partie 3.1.3).

3.1.2 Relation avec la dispersion de la résonance

Une autre question importante est : quel est le lien entre la largeur en vecteur d'onde des fluctuations AF de l'état normal avec les pics incommensurables de l'état supraconducteur conduisant à la dispersion de la résonance ? En effet, comme il a été indiqué au chapitre précédent, la forme en vecteur d'onde de la susceptibilité de spins change complètement au passage de la transition supraconductrice. Cet effet est très clair pour les concentrations en oxygène ≥ 0.6 comme il est illustré sur la figure 3.5 dans le composé fortement dopé proche du dopage optimal, $\text{YBCO}_{6.85}$ [73].

A l'énergie de la résonance, on observe systématiquement un resserrement dans l'espace réciproque. Ainsi, dans les échantillons où l'incommensurabilité n'avait pas été résolu, $\Delta q(\omega)$ présentait tout de même un minimum à l'énergie du pic de résonance [84, 87, 89]. Cela indique que la résonance est associée à une largeur en vecteur d'onde plus étroite et donc à une distance dans l'espace réel plus grande. On peut noter que la largeur en vecteur d'onde que l'on pouvait associer au pic de résonance restait constante pour tous les dopages avec $\Delta_q^{reso} = 0.11 \pm 0.02 \text{ \AA}^{-1}$ [87] en accord avec des mesures plus récentes [89, 64, 89, 63]. En appliquant la relation simple $\xi = 1/\Delta q$, on trouve une longueur caractéristique $\xi \simeq 9 \text{ \AA}$ proche de la longueur de cohérence supraconductrice dans le plan. Cela n'est peut être pas surprenant dans la mesure où cette excitation est intimement connectée à la supraconductivité à HTC. Cependant, à la lumière de l'existence de la

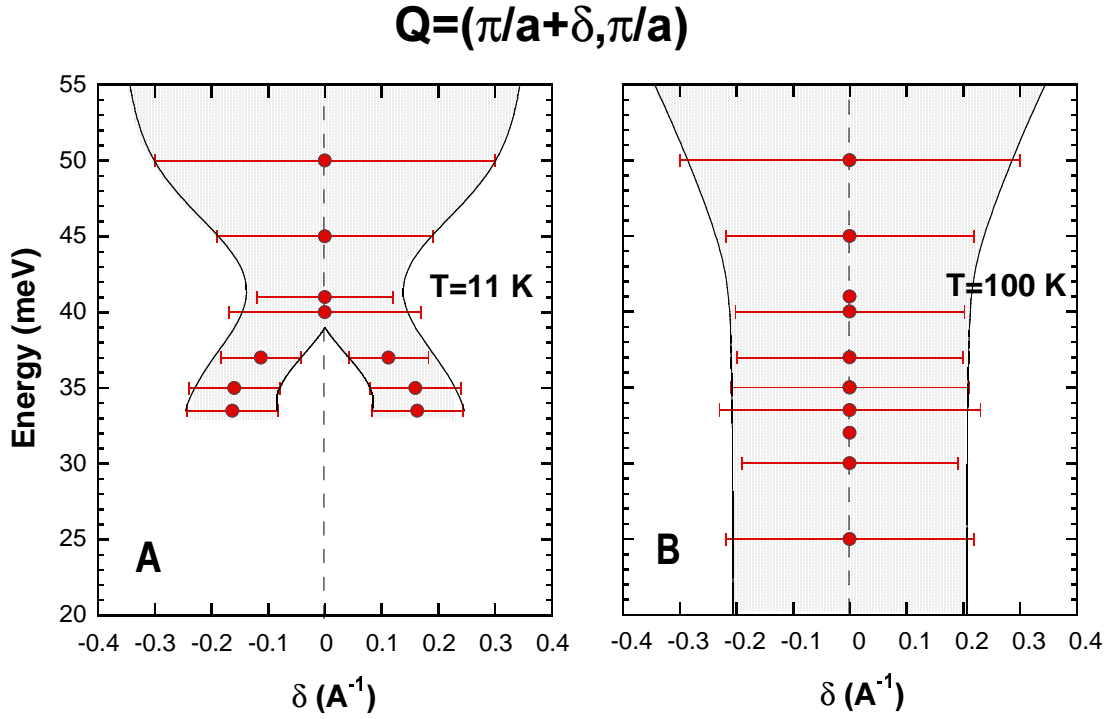


Figure 3.5: Dépendance complète en fonction du vecteur d'onde de la réponse magnétique dans $\text{YBCO}_{6.85}$ mesuré dans l'état supraconducteur à $T=11$ K (gauche) et dans l'état normal à $T=100$ K (droite). ([73]).

dispersion de la résonance[73], cette déduction numérique de ξ peut être en partie faussée par les effets d'intégration de la dispersion par la résolution du spectromètre (effets décrit au chapitre précédent dans 2.3). Au plus faible dopage ($x < 0.6$), le minimum de $\Delta_q(\omega)$ en fonction de l'énergie n'est plus visible car Δ_q , dans l'état normal, a une valeur très proche de la largeur (indépendante du dopage) de Δ_q^{reso} [87].

Un autre aspect, qui apparaît sur la figure 3.5, est que la dispersion de la résonance semble converger vers un vecteur d'onde qui pourrait correspondre à peu près à la largeur Δ_q de la phase normale [107]. Ainsi, l'excitation magnétique résonante serait confinée dans l'espace réciproque défini par la largeur en vecteur d'onde des fluctuations AF de l'état normal. Par ailleurs, le poids spectral de la résonance le long de sa dispersion décroît lorsque l'on s'éloigne de $(\pi/a, \pi/a)$ de telle manière que son intensité disparaît quasiment lorsque la dispersion atteint le vecteur d'onde correspondant à Δ_q . L'énergie du mode correspond alors au gap de spin, E_G . En fait, une loi empirique reliant ces différents paramètres peut être écrite comme suit,

$$E_G = \sqrt{E_r^2(\pi/a, \pi/a) - (\alpha\Delta_q)^2} \quad (3.2)$$

les paramètres ayant le même sens que dans l'équation 2.4. Cette relation est vérifiée

x	$E_r(\pi/a, \pi/a)$	α	Δ_q	$\sqrt{E_r^2(\pi/a, \pi/a) - (\alpha\Delta_q)^2}$	E_G	Références
0.6	34	150	0.17	22	20	[72, 64, 88]
0.85	41	125	0.23	29	30	[73]

Table 3.2: Relation entre résonance, gap de spin et Δ_q dans deux échantillons YBCO_{6+x} .

dans la table 3.2 pour deux échantillons où l'ensemble des paramètres a été déterminé. La relation empirique, Eq. 3.2, donne un autre sens au gap de spin, E_G mesuré dans la phase SC. E_G , pour les dopages suffisamment fort $x \geq 0.6$, serait alors l'énergie où l'amplitude de la résonance émergerait du continuum électron-trou. Il est clair que pour les échantillons où $T_C \leq 50$ K ($x < 0.6$) on n'obéit plus à l' Eq. 3.2; d'une part le gap de spin est beaucoup trop faible, d'autre part, α n'est plus défini.

3.1.3 Relation avec la supraconductivité

Ainsi, il existe une proportionnalité entre la largeur en vecteur d'onde et la transition supraconductrice. La Fig. 3.4 montre cette relation linéaire qui lie T_c à Δ_q pour l'ensemble des taux d'oxygène dans YBCO, c.a.d. pour tous les dopages dans le régime sous-dopé ainsi que pour le dopage optimal. La pente déduite de cette relation est égale à $\hbar v_{YBCO}^* = T_c/\Delta_q = 35$ meV.Å[71]. Le même type de proportionnalité a lieu dans le régime sous-dopé de LSCO [154] mais entre T_c et δ l'incommensurabilité des fluctuations magnétiques. En effet, dans le cas de LSCO, les fluctuations de spins de basse énergie sont maximum à un vecteur d'onde décalé de $(\pi/a, \pi/a)$ d'une quantité δ . Comme Δ_q dans YBCO, δ dans LSCO est indépendant de la température et de l'énergie (au moins jusqu'à ~ 20 -25 meV : la situation à plus haute énergie n'est pas complètement éclaircie). Également, δ est uniquement une fonction du dopage, mais, comme dans YBCO, les deux phénomènes ne sont pas complètement proportionnels dans la mesure où, à fort dopage, δ sature comme T_c [154] et non pas comme le taux de substitution en Sr. Le facteur de proportionnalité est égal à $\hbar v_{LSCO}^* = T_c/\delta = 20$ meV.Å, plus faible que dans YBCO[71]. Ainsi, il apparaît que dans les deux familles de cuprates qui ont été largement étudiés par diffusion de neutrons, on observe une relation entre la température supraconductrice et l'extension caractéristique en vecteur d'onde des fluctuations AF. Il est à noter que cette relation se maintient aussi dans le cas du système $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ [155], famille de cuprates dopée en électrons.

Le sens de cette proportionnalité reste à éclaircir à ce jour. Par construction, le facteur de proportionnalité définit une vitesse de propagation magnétique v^* qui est plus faible d'un ordre de grandeur, d'une part, de la célérité des ondes de spins du composé parent mais aussi, d'autre part, de la vitesse de Fermi [71]. Cela a été attribué à une nouvelle échelle d'énergie électronique qui pourrait être l'indice d'un système hétérogène. Ainsi, cette relation a été généralement discutée dans le contexte des stripes : en particulier elle a été prise comme une évidence de formation de lignes de charges dans toutes les cuprates [71, 7, 28]. L'idée est typiquement que la propagation des ondes de spins est plus faible perpendiculairement aux stripes que parallèlement. Dans ce contexte, le fait

que dans YBCO, la susceptibilité de spins soit commensurable, nécessite que le pic AF large observé à $T=100$ K soit la somme de deux pics incommensurables sous-jacents. Récemment, une comparaison a ainsi été tentée entre le vecteur d'onde incommensurable (vers lequel la dispersion de la résonance semble converger) de la phase SC dans YBCO avec l'incommensurabilité observée dans LSCO pour toutes les températures [64]. En fait, ce vecteur d'onde incommensurable n'évolue plus en fonction du dopage quand $x \geq 0.6$ en accord avec les mesures précédentes [72, 73] et donc n'est pas proportionnel ni au dopage ni à T_C . Ainsi, les discommensurations observées dans ces deux systèmes ont très certainement une origine distincte (bien qu'elles soient nécessairement liées quelque part).

Fondamentalement, cette relation linéaire montre clairement que l'extension en vecteur d'onde des fluctuations magnétiques contrôle dans l'état sous-dopé l'ampleur de la phase supraconductrice : des fluctuations AF trop fortes sont nuisibles pour la température SC. Ainsi, cette relation pourrait avoir une interprétation autre que celle donnée dans le contexte des stripes. Par exemple, une relation entre T_C et l'inverse de la longueur de corrélation magnétique, ξ^{-1} (qui correspond à Δ_q), a été récemment discuté dans le cadre d'un modèle spin-fermion où la supraconductivité est induite par le magnétisme[156]. Des travaux futurs théoriques sont certainement nécessaires dans cette direction.

3.1.4 Haute énergie : $\hbar\omega > 40 - 50$ meV

A haute énergie, le comportement de la susceptibilité de spins diffère du comportement basse énergie décrit jusqu'ici. D'abord, le spectre d'excitations d'YBCO présente deux branches distinctes du fait que ce système possède deux plans CuO_2 par maille élémentaire. Dans une image de magnétisme localisé, ces deux modes prolongent les deux branches d'onde de spins du composé parent AF, YBCO_6 , dans lequel on observe un mode acoustique qui tend vers zéro quand $q \rightarrow (\pi/a, \pi/a)$ et un mode optique qui présente un gap associé à l'interaction de super-échange intra-biplan, J_{\perp} . La valeur de ce gap a été mesuré à 67 meV[157, 158]. Dans une expérience de diffusion neutronique, ces deux modes sont différenciés par leurs facteurs de structure complémentaires le long de l'axe c^* normal au plan CuO_2 [157, 158, 63], le mode acoustique est proportionnelle à $\sin^2(\pi zL)$ (les paramètres ont le même sens que dans 2.1.1) du fait du couplage AF intra-biplan, et le mode optique suit $\cos^2(\pi zL)$. Dans une théorie de magnétisme itinérant de bandes électroniques, les interactions à l'intérieur du biplan lève la dégénérescence entre les deux bandes associées à chacun des plans CuO_2 , donnant lieu à une bande liante et une autre anti-liante. Les transitions entre les états électroniques de même type (liante à liante ou anti-liante à anti-liante) et entre ceux de type différent sont caractérisés par une symétrie, respectivement, paire et impaire. De fait, les excitations impaire et paire ont les mêmes facteurs de structure le long de c^* que les modes acoustique et optique, respectivement, dans le modèle d'ondes de spins dans l'état de Néel. Ainsi, ces deux types d'approches rendent compte également des données expérimentales.

Ainsi, un même facteur de structure a été largement observé à basse énergie (en dessous de ~ 45 meV) dans toutes les études par DIN [67, 159, 69, 68, 63] tant dans la phase SC que la dans la phase normale. De fait, il correspond à celui des ondes de spins acoustiques

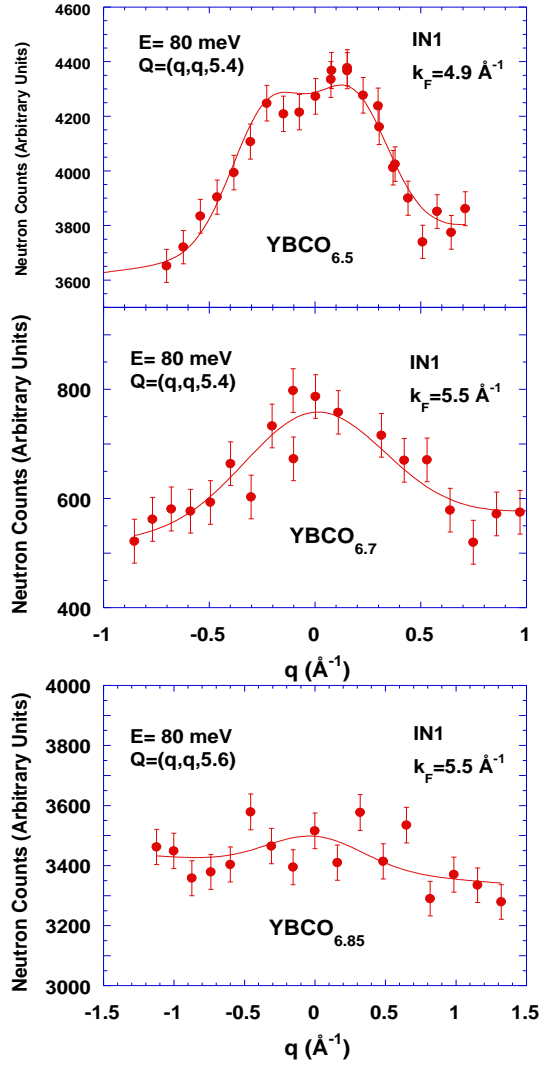


Figure 3.6: Coupe en vecteur d'onde le long de (110) à énergie constante, $\hbar\omega = 80$ meV, à $T = 5$ K dans trois échantillons YBCO_{6+x} : $x=0.5, 0.7$ et 0.85 , dans l'état sous-dopé.

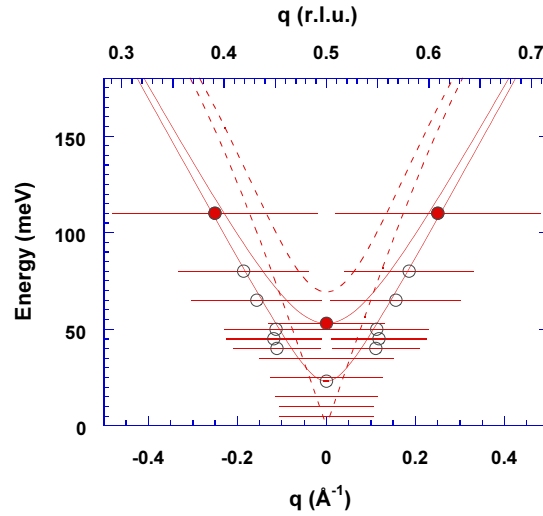


Figure 3.7: Dispersion des excitations magnétiques à haute énergie à $T=5$ K dans $\text{YBCO}_{6.5}$. Les fluctuations acoustiques - "impaires" - (cercles ouverts) et optiques - "paires" - (cercles fermés). Le cercle ouvert de plus basse énergie représente le maximum de la susceptibilité de spins à $(\pi/a, \pi/a)$ comme cela sera discuté dans la partie suivante. Les barres horizontales correspondent à la pleine largeur à mi-hauteur après déconvolution par la résolution du spectromètre. Les lignes pleines montrent un affinement parabolique tel que $\omega^2 = \omega_0^2 + c^2q^2$. Les lignes hachurées représentent les courbes de dispersions de magnons du composé parent AF YBCO_6 . ([62, 68])

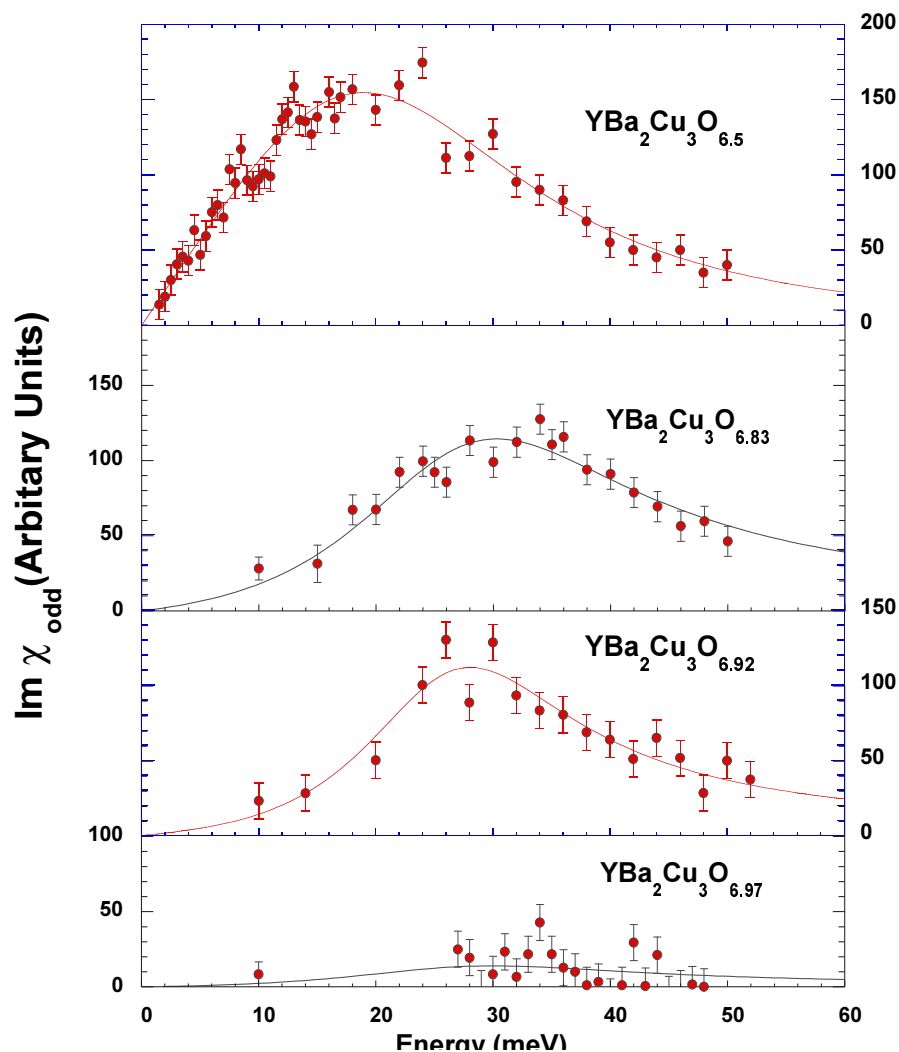


Figure 3.8: Partie imaginaire de la susceptibilité de spins à $T=100$ K dans l'état normal pour 4 taux d'oxygène différents dans YBCO_{6+x} : $x=0.5, 0.83, 0.92$ et 0.97 avec $T_C=45, 85, 91$ et 92.5 K for respectivement). Ces spectres, qui montrent l'intensité mesurée autour de \mathbf{Q}_{AF} , sont normalisés entre eux (100 dans l'échelle verticale est typiquement équivalent à $350 \mu_B^2/\text{eV}$). Ils sont aussi directement comparable avec ceux observés dans l'état SC (Fig. 3.8). Les lignes représentent l'affinement par une Lorentzienne amortie (Eq. 3.3) ([68]).

du composé YBCO₆. Au delà de cette énergie, le second mode, analogue aux ondes de spins optiques, apparaît. Plus précisément, un gap réminescent du gap optique est réduit à 53 meV pour $x \simeq 0.5$ [62], et à 35 meV pour $x \simeq 0.7$ [63]. Mais dans ce dernier cas, le gap est fortement amorti et l'on observe encore le facteur de structure caractéristique du mode acoustique à des énergies supérieures à ce gap : typiquement, l'amplitude du mode acoustique est 5 fois plus grand que celui du mode optique [68]. De plus, les excitations optiques montrent une évolution thermique inattendue [62, 63] dans la mesure où elles sont fortement réduites en chauffant de 5 K à 200 K sans changement notable à T_C .

Parallèlement à l'existence du mode optique, les fluctuations AF dans le canal "acoustique" présente à haute énergie un comportement qui diffère nettement de son comportement à basse énergie. Typiquement, on observe un pic très large (Fig. 3.6) dont la largeur en vecteur d'onde augmente maintenant nettement avec l'énergie : par exemple, la Fig. 3.1 montre l'évolution jusqu'à 140 meV dans YBCO_{6.7} de la largeur en vecteur d'onde. On voit clairement que, au dessus de $\simeq 50$ meV, Δ_q augmente linéairement avec l'énergie. Le pic magnétique se perd dans le bruit de fond à haute énergie. Dans les échantillons plus fortement sous-dopés, autour de YBCO_{6.5} [62], le même scan à 80 meV (Fig. 3.6) présente deux maxima de part et d'autre de $(\pi/a, \pi/a)$. Ces doubles pics apparaissent dès que l'énergie est supérieure à ~ 40 meV dans cet état faiblement dopé. De plus, comme l'indique la Fig. 3.7, la position en vecteur d'onde de ces pics n'est pas constante avec l'énergie, mais évolue comme une dispersion. Ainsi, ce type de fluctuations ressemble à des quasi-magnons rappelant des ondes de spins de l'état de Néel du composé parent non-dopé, YBCO₆. Utilisant un formalisme d'onde de spins classique pour un modèle de Heisenberg, on peut décrire le spectre que l'on mesure ici dans un état métallique par simple amollissement de la célérité des ondes de spins par rapport au composé pur (Fig. 3.7). Par un simple affinement par une loi parabolique, on déduit une vitesse de spin $c_s \simeq 420$ meV.Å, à peu près 2/3 de la valeur de la vitesse des ondes de spins dans l'état AF isolant[62]. Cet amollissement peu aussi expliquer la réduction du gap optique à 53 meV avec le dopage en définissant un échange effectif AF réduit de cette même quantité par rapport au super-échange de l'état isolant : $J_{eff} \approx 0.65 J^{isolant}$ [68]. Cependant, ces excitations diffèrent des magnons conventionnels, dans la mesure où elles présentent une largeur en vecteur d'onde intrinsèque qui est, en fait du même ordre de grandeur que Δ_q observée à basse énergie. En termes de magnons, cela suggère que les ondes de spins se propagent dans des domaines de taille finie de l'ordre de $1/\Delta_q \simeq 9$ Å. A plus fort dopage, la largeur intrinsèque augmente : ces excitations propagatives sont suramorties et le double pic disparaît (Fig. 3.6).

3.2 Dépendance en énergie

3.2.1 Susceptibilité au vecteur d'onde AF : $(\pi/a, \pi/a)$

Après la dépendance en vecteur d'onde, la forme spectrale de la susceptibilité de spins dans l'état normal au vecteur d'onde AF est l'ingrédient pour définir les fluctuations magnétiques. La partie imaginaire de la susceptibilité de spins à $(\pi/a, \pi/a)$, $Im\chi((\pi/a, \pi/a), \hbar\omega)$,

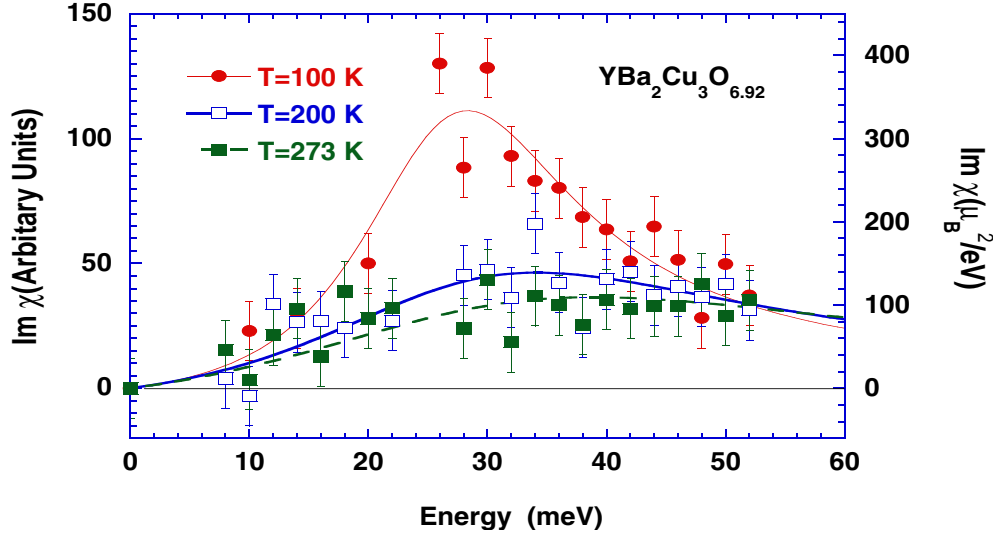


Figure 3.9: Évolution en température de la partie imaginaire de la susceptibilité de spins dans l'état normal pour $\text{YBCO}_{6.92}$ (voir aussi la légende de Fig. 3.8).

a été déduite dans YBCO de mesures de DIN pour plusieurs dopages [68, 69, 63, 64]. Elle est représentée à $T=100$ K sur la Fig. 3.8 pour 4 taux d'oxygène dans YBCO correspondant à 4 taux de dopages dans la Fig. 1.1 : pour mémoire, $x=0.92$ est supposé être très proche du dopage optimal, $x=0.5$ et $x=0.83$ sont sous-dopés et $x=0.97$ est légèrement sur-dopé. Comme dans l'état SC, le spectre magnétique évolue fortement avec le dopage. On observe aussi globalement un déplacement du spectre vers les hautes énergies et une très forte réduction du poids spectral en augmentant le dopage. On peut définir trois comportements distincts: fortement sous-dopé ($x \leq 0.6$), sous-dopé et dopage optimal ($0.6 \leq x \leq 0.94$), et sur-dopé ($x \geq 0.94$).

En effet, à part pour $x=0.97$, $\text{Im } \chi(\mathbf{Q}_{\text{AF}}, \hbar\omega)$ montre un maximum large autour d'une énergie, $\sim 25\text{-}30$ meV. Cette forme spectrale rappelle celle des paramagnons dans les systèmes métalliques où de fortes interactions électroniques ont pour effet d'augmenter, à basse énergie, la susceptibilité sans interactions [50]. De fait, pour rendre compte de la susceptibilité de spins dans l'état normal (Fig. 3.8), on peut utiliser une Lorentzienne amortie comme,

$$\text{Im } \chi(q, \omega) = \frac{\chi_q}{2} \omega \Gamma \left[\frac{1}{(\omega - \omega_0)^2 + \Gamma^2} + \frac{1}{(\omega + \omega_0)^2 + \Gamma^2} \right] \quad (3.3)$$

où ω_0 est l'énergie caractéristique correspondant au pôle de la susceptibilité de spins et Γ son amortissement. Un affinement à $T=100$ K de la susceptibilité de spins par l'Eq. 3.3 donne $\omega_0 \simeq 26$ meV, $\Gamma \simeq 10$ meV et $\chi_q = 250 \mu_B^2/\text{eV}$ pour $x=0.92$ (fig. 3.8). De plus, en augmentant la température, comme par exemple le montre la Fig. 3.9 dans le cas d' $\text{YBCO}_{6.92}$, i) la position du pic évolue peu, ii) l'amortissement augmente fortement : $\Gamma \simeq 22$ meV à $T=200$ K et $\Gamma \simeq 30$ meV à $T=273$ K. De ce fait, l'amplitude du pic décroît aussi considérablement alors que le préfacteur χ_q est seulement réduit de 30%

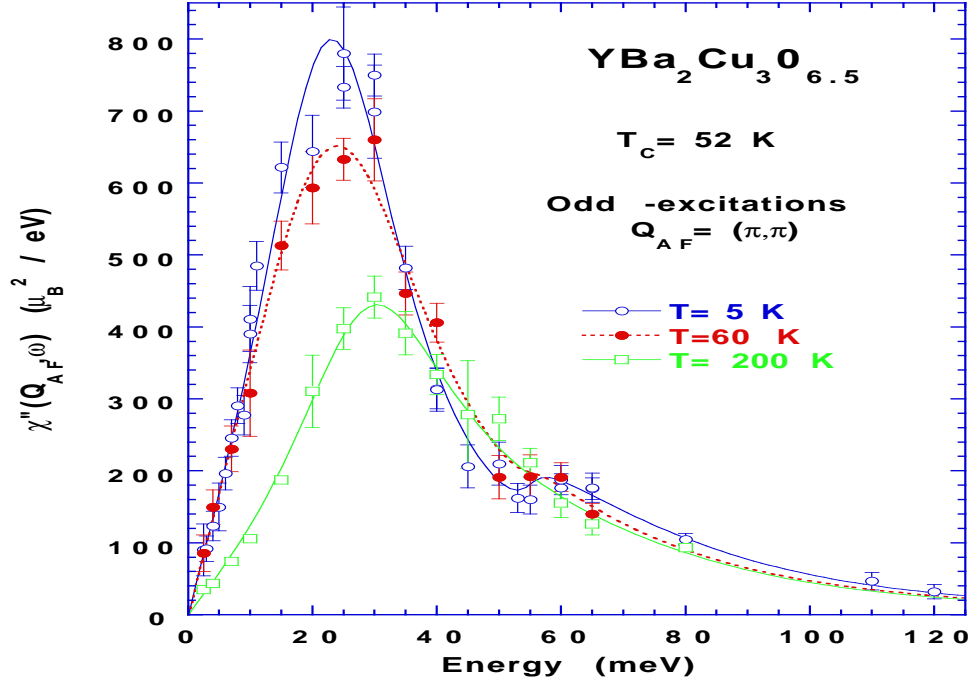


Figure 3.10: Partie imaginaire de la susceptibilité de spins au vecteur d'onde AF dans $\text{YBCO}_{6.5}$ ($T_C=52$ K) pour 3 températures. L'échelle verticale est en unités absolues. Les lignes représentent l'affinement par une Lorentzienne amortie (Eq. 3.3) ([63]).

entre 100 K et 273 K. Il est utile de souligner que le terme ω_0 est important pour obtenir un affinement de bonne qualité à $T=100$ K. Cependant, lorsque le mode devient suramorti à haute température, ce terme n'est plus nécessaire. Pour $x \geq 0.6$, les excitations AF à 100 K sont caractérisées par un fort amortissement, $\Gamma \simeq 10$ meV quasi indépendamment du dopage. Dans l'état sur-dopé $x = 0.97$, le signal magnétique est fortement réduit par rapport à $x = 0.92$ et l'on peut uniquement supposer que la gamme d'énergie où l'on peut observé des fluctuations AF reste la même que précédemment

Pour les dopages plus faibles, $x \sim 0.5$, la position du pic est renormalisée vers 25 meV et l'amortissement augmente. Cependant, l'Eq. 3.3 donne un affinement de mauvaise qualité, principalement du fait que le signal décroît plus rapidement à haute énergie. Cette forme peut alors être remplacée par une autre forme Lorentzienne (équivalente à un oscillateur harmonique amorti),

$$\text{Im}\chi(q, \omega) = \frac{\chi_q}{2} \omega_0 \Gamma \left[\frac{1}{(\omega - \omega_0)^2 + \Gamma^2} - \frac{1}{(\omega + \omega_0)^2 + \Gamma^2} \right] \quad (3.4)$$

Cette forme Lorentzienne correspond à celle mesurée pour le cas de magnétisme localisé en présence d'un ordre à courte distance, par exemple dans des systèmes unidimensionnels de spins entiers connus pour présenter un gap de Haldane [160], avec la différence que l'on observe ici un fort amortissement. L'affinement de $\text{YBCO}_{6.5}$ de la Fig. 3.8 avec l'Eq. 3.4 donne $\omega_0 \simeq 17$ meV, $\Gamma \simeq 19$ meV et $\chi_q = 500 \mu_B^2/\text{eV}$ à $T=100$ K. En chauffant, on observe

maintenant un déplacement du pic vers les hautes énergies [69] comme le montre la Fig. 3.10. Il est clair que pour les dopages importants les deux formes Lorentziennes Eq. 3.3 et Eq. 3.4 peuvent décrire l'une et l'autre les données expérimentales, particulièrement du fait des difficultés expérimentales pour extraire le signal magnétique[68]. Nous avons choisi l'Eq. 3.3 dans la mesure où l'on peut affiner les spectres en fonction de la température avec toujours la même énergie caractéristique, ω_0 .

Pour tous les dopages dans l'état sous-dopé ou pour le dopage optimal, χ_q est donc bien supérieur à $100 \mu_B^2/eV$. Cela correspond à une susceptibilité antiferromagnétique au minimum 20 fois plus grande que la susceptibilité uniforme à $q = 0$. On a donc un facteur de Stoner $(1 - J(q)Re\chi^\circ(q, 0)) \leq 0.05$, c.a.d. proche d'une instabilité magnétique. Également, on peut remarquer que la mesure dans YBCO₇. dans l'état normal est compatible avec une forme spectrale proche de celle mesurée pour YBCO_{6.92} à haute température, $T > 200$ K, avec un préfacteur simplement réduit. On peut ainsi comprendre pourquoi les neutrons n'arrivent pas à déterminer les fluctuations dans l'état normal dans l'état surdopé.

3.2.2 Susceptibilité locale

Afin de décrire l'évolution spectrale de la susceptibilité, il est intéressant de considérer la susceptibilité locale obtenue en effectuant une intégration bidimensionnelle en vecteur d'onde dans le plan de base : on définit ainsi,

$$Im\chi_{loc}(\omega) = \frac{\int_{ZB} d\mathbf{q}_x d\mathbf{q}_y Im\chi(\mathbf{q}_x, \mathbf{q}_y, \omega)}{\int_{ZB} d\mathbf{q}_x d\mathbf{q}_y} \quad (3.5)$$

Cette intégration en vecteur d'onde présente deux avantages majeures : d'une part, elle permet de comparer le poids spectral aux différentes énergies indépendamment de leur évolution en vecteur d'onde, et d'autre part, on peut surtout comparer le spectre dans l'état métallique directement avec le spectre des ondes de spins dans l'état AF non-dopé. En effet, la susceptibilité des magnons intégrée à deux dimensions est une constante dans le régime hydrodynamique où les ondes de spins dispersent linéairement avec le vecteur d'onde. Ce régime a lieu jusqu'à une énergie de $\sim J$, c.a.d. ~ 120 meV dans les cuprates[36]. $Im\chi_{loc}(\omega)$, calculé par maille élémentaire d'YBCO, i.e. par biplan CuO₂, est représentée sur la Fig. 3.11 en unités absolues pour l'échantillon $x = 0.5$ dont la réponse à $(\pi/a, \pi/a)$ a été décrite sur la Fig. 3.10. On voit clairement que l'effet de l'intégration en vecteur d'onde est d'augmenter la réponse à haute énergie du fait de l'élargissement du pic magnétique dans l'espace réciproque (Fig. 3.7). De plus, on observe sur la susceptibilité locale un minimum autour de 50 meV qui ne dépend pas du dopage sur l'ensemble de l'état sous-dopé [62, 70, 63]. En comparant la réponse magnétique à $(\pi/a, \pi/a)$ et la réponse locale, il apparaît que le second maximum d' $Im\chi_{loc}(\omega)$ est principalement lié à l'élargissement en vecteur d'onde au dessus de ~ 50 meV. On observe ainsi deux régimes distincts de la susceptibilité magnétique : au dessus de ~ 50 meV, on a un comportement proche de celui de magnons suramortis où seul $Im\chi_{loc}(\omega)$ a un maximum large, et au dessous de ~ 50 meV, les deux susceptibilités ont un maximum

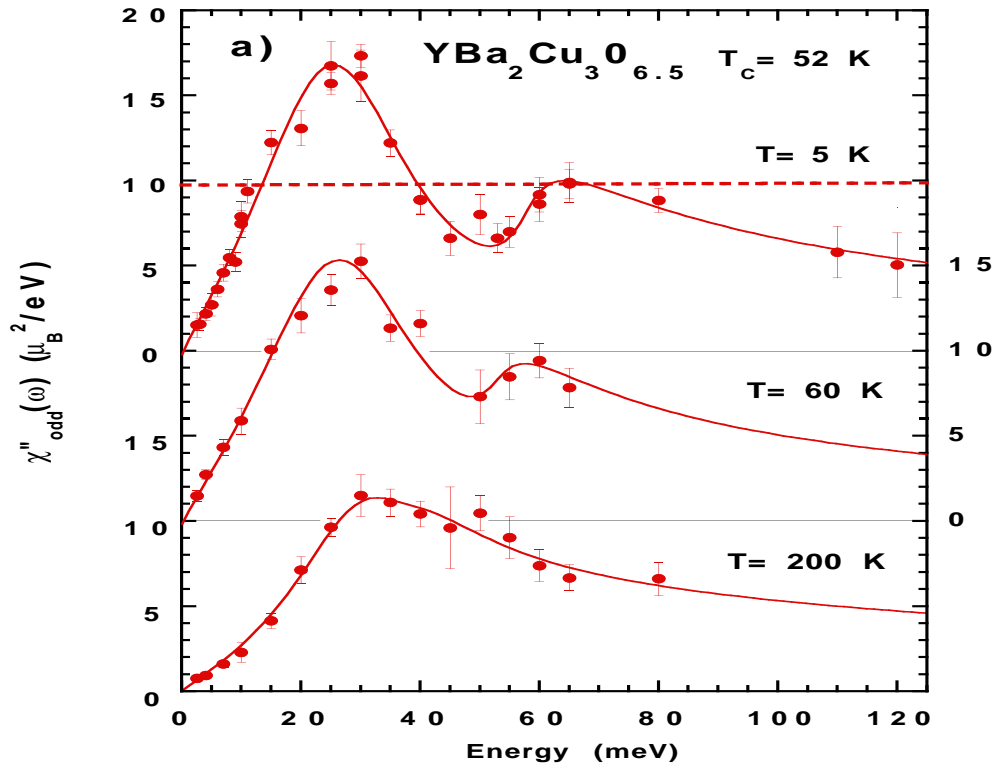


Figure 3.11: Évolution en température de la susceptibilité de spins locale dans $\text{YBCO}_{6.5}$ obtenue par intégration de la réponse de la Fig. 3.10. La ligne hachurée indique la susceptibilité locale des ondes de spins de l'état isolant calculée en intégrant l'Eq. 3.7. ([62, 63]).

du fait que la largeur en vecteur d'onde change très peu sur toute la gamme d'énergie. Ce dernier type de réponse est tout à fait inhabituel et ne se décrit pas par des modèles standards (cf partie 3.5). L'existence du minimum n'a pas reçu d'explication claire. Il n'est pas évident que l'apparition du mode optique autour de la même énergie [62, 70, 63]) soit la cause de ce changement de régime. D'autres explications sont basées sur la forme de raie de la réponse électronique à une particule, "peak-dip-hump", qui est elle-même due aux fortes corrélations[39].

Également, la susceptibilité locale permet de comparer les fluctuations magnétiques dans LSCO et dans YBCO : il apparaît ainsi que la réponse de LSCO avec un dopage de 14% en Sr (proche du dopage optimal) est assez proche de la réponse fortement sous-dopée YBCO_{6.5} [68]. Cette comparaison porte non seulement sur la forme spectrale mais aussi sur l'amplitude absolue par plan CuO₂ des corrélations magnétiques. Ce résultat montre que la réponse magnétique du composé LSCO considéré au dopage optimal (16% en Sr) diffère nettement de la réponse magnétique observée dans YBCO au dopage optimal. Cela met en doute soit le caractère universel de la valeur du dopage dans les cuprates soit, plus vraisemblablement, le comportement généralement supposé canonique du système LSCO parmi les cuprates.

3.2.3 Différence avec le pic de résonance

Comme nous l'avons déjà mentionné, la susceptibilité de spins évolue fortement à travers la transition supraconductrice. Dans l'état sous-dopé, l'excitation résonante semble se superposer au mode déjà présent dans l'état normal. Ainsi, $Im\chi$ a souvent été décrit par deux contributions distinctes [68, 69]. Cependant, cette distinction est sans doute abusive du fait de l'existence de la dispersion de la résonance (cf Fig. 3.5 et la discussion associée). En fait, il semble que la partie du mode résonant la plus éloignée de $(\pi/a, \pi/a)$ est moins dépendante en augmentant la température que la réponse localisée à $(\pi/a, \pi/a)$. Ainsi, dès les premières études[75], la différence de la mesure de DIN à $(\pi/a, \pi/a)$ entre les deux phases a indiqué un pic fin principalement à E_r . Cependant, non seulement un pic semble émerger de la réponse magnétique de l'état normal, mais la forme spectrale change à travers T_c comme le montre, par exemple, la figure 2.3.

Dans la mesure où la position du maximum dans l'état normal n'est pas facilement différentiable du pic de résonance de l'état SC (en tout cas pour une large gamme de dopage i.e. $x \leq 0.8$ [89, 62]), il a été proposé[132] que l'excitation de l'état normal soit un précurseur du pic de résonance. De fait, une différence notable entre le mode résonant et la réponse magnétique de l'état normal est l'observation d'un fort amortissement au dessus de T_c qui n'existe pas dans la phase SC. Cependant, la forme de la différence en énergie de l'intensité entre la basse température et T_c (comme Fig. 2.3) rend peu vraisemblable cette approche : on attendrait dans ce cas une différence symétrique de part et d'autre de l'énergie de la résonance, $E_r(\pi/a, \pi/a)$, si seul l'amortissement du mode changeait. Un autre argument important contre ce modèle est que la position du maximum de l'état normal et l'énergie de la résonance sont clairement distinctes pour les dopages plus importants $x \geq 0.8$ comme on peut le noter pour $x = 0.92$ en comparant

Fig. 2.9 où $E_r = 41$ meV et Fig. 3.8 où le maximum est $\simeq 30$ meV.

L'interprétation que le mode résonant apparaît dès l'état normal, a été par ailleurs relayée par Dai *et al* [70] qui ont associé l'apparition de la résonance à la température T^* d'apparition du pseudo-gap. De notre point de vue[74], cette attribution n'est pas correcte car elle est basée sur une analyse de données arbitraire [70]. En effet, il n'existe aucune anomalie dans l'état normal sur l'évolution thermique de l'intensité neutrons à l'énergie de la résonance [88, 89, 63] comme le montre, par exemple, la Fig. 2.3. De T_C à la température ambiante, l'intensité magnétique décroît continuellement en chauffant. Cependant, il est clair que l'évolution à travers T_C est moins brutale dans l'état sous-dopé. Dans ce cas, voir Fig. 2.3, l'anomalie à T_C ressemble plus à un crossover qu'à une transition nette. Ce comportement peut en fait se comprendre par l'existence connue de plus fortes fluctuations supraconductrices bidimensionnelles dans l'état sous-dopé qui atténuent la transition. En conclusion, le lien, en principe nécessaire, entre l'état magnétique de l'état normal et le mode résonant de l'état SC, est moins trivial qu'il ne semble. De fait, l'image où le maximum de $Im\chi$ dans l'état normal est un précurseur de la résonance, est trop simpliste.

3.3 Neutrons et Pseudo-gap

Comme on ne voit pas de changement à T^* sur l'évolution thermique de la résonance, on peut se demander quelle est l'impact de l'ouverture du pseudo-gap sur le spectre de diffusion de neutrons. Remarquons tout d'abord que les effets principaux du pseudo-gap sont autour de $q=0$, sur les mesures de transport et thermodynamiques ainsi que sur la susceptibilité uniforme. En dehors de la DIN, l'effet autour de $q = (\pi/a, \pi/a)$ n'est sondable qu'avec la RMN du noyau du cuivre [8, 24].

3.3.1 Comparaison RMN/neutrons

De fait, l'existence d'un pseudo-gap autour du vecteur d'onde $(\pi/a, \pi/a)$ provient principalement des mesures de RMN du cuivre (Fig. 1.3). Dans l'état sous-dopé[8, 24], elles indiquent que $1/({}^{63}T_1T)$ passe par un maximum à une température T^* qui est systématiquement inférieure à T_p (Fig. 1.1) mesurée sur la susceptibilité uniforme [23]. Cela semble indiquer deux régimes distincts dans le régime du pseudo-gap [4] : T_p signalerait l'apparition des fluctuations AF et T^* correspondrait à un renforcement du régime du pseudo-gap. Cependant, pour être complet, d'autres auteurs [6] affirment qu'il n'y pas de raison de considérer deux régimes distincts si l'on choisit d'autres définitions pour ces températures critiques. D'un point de vue plus empirique, il semble néanmoins que l'effet de l'ouverture du pseudo-gap sur les propriétés magnétiques des cuprates a lieu à une température inférieure autour de $(\pi/a, \pi/a)$ qu'autour de $q = 0$.

Le fait que $1/({}^{63}T_1T) \propto Im\chi(Q_{AF}, \omega)/\omega$ avec $\omega \rightarrow 0$ diminue à basse température ($T < T^*$) indique clairement que les fluctuations de basses énergies sont réduites. Comme dans le même temps, $Re\chi(Q_{AF})$, mesurée par $1/{}^{63}T_{2G}$, augmente sensiblement, un gap

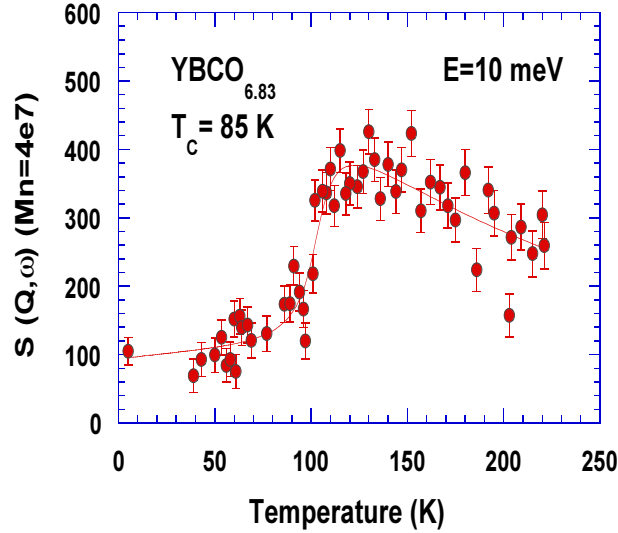


Figure 3.12: Dépendance en température de l'intensité neutrons à basse énergie (10 meV) dans $\text{YBCO}_{6.83}$. un bruit de fond a été soustrait à partir d'une série de balayages en vecteur d'onde à différentes température ([68]).

doit s'ouvrir dans le spectre magnétique à $(\pi/a, \pi/a)$ dans l'état normal en dessous de T^* . Il s'agit nécessairement d'un pseudo-gap dans la mesure où la diminution de $1/(^{63}\text{T}_1T)$ se fait graduellement en refroidissant. La question est alors quelle est la gamme d'énergie de ce pseudo-gap ? Les premières mesures de diffusion de neutrons dans l'état métallique d'YBCO ont montré un comportement $\text{Im}\chi(Q_{AF}, \omega)$ totalement compatible avec l'ouverture d'un pseudo-gap de spin pour $\hbar\omega \leq 16$ meV pour $x = 0.69$ [25] : pour $T > T^*$, $\text{Im}\chi(Q_{AF}, \omega)$ est linéaire en énergie alors que pour $T < T^*$, $\text{Im}\chi(Q_{AF}, \omega)$ est sous-linéaire en énergie démontrant la réduction de fluctuations AF de basses énergies. En effectuant un suivi en température à une énergie inférieure au pseudo-gap, on voit que $\text{Im}\chi(Q_{AF}, \omega)$ passe par un maximum à une température compatible avec T^* .

Ce type de comportement a été par la suite confirmé pour d'autres concentrations en oxygènes quand $0.6 < x \leq 0.92$ [152, 68, 69]. La Fig. 3.12 montre par exemple la dépendance thermique de la diffusion magnétique à $(\pi/a, \pi/a)$ et à $\hbar\omega = 10$ meV pour $x = 0.83$. Dans l'état SC, une intensité résiduelle subsiste pour cet échantillon. En chauffant, les fluctuations AF augmentent dans l'état normal en passant par un maximum à une température $T^* \sim 120$ K plus grande que T_c . Ce comportement est proche de celui mesuré par la RMN du cuivre dans l'état sous-dopé[8, 24] bien qu'il soit difficile de déterminer avec précision une température T^* de ces mesures du fait des limites statistiques et des problèmes de soustraction du bruit de fond. Il semble néanmoins que la température T^* ainsi déterminée en neutrons pourrait être légèrement inférieure à celle déduite de la RMN [69]. A plus faible dopage ($x < 0.6$), ce type de comportement n'est plus observé en diffusion de neutrons : $\text{Im}\chi(Q_{AF}, \omega)$ pour $\omega < \text{pseudo-gap}$ est maximum en fonction de la température à T_c . Cela serait en accord avec certaines mesures de RMN du cuivre [161] mais la situation en RMN est aussi rendue difficile par l'élargissement de la raie de

résonance du cuivre du plan CuO_2 avec un chevauchement partiel avec celle du cuivre des chaînes. On ne doit pas conclure de ce résultat que le pseudo-gap disparaît aux plus faibles dopages. Il semble plutôt que la définition du pseudo-gap par le maximum de $1/({}^{63}\text{T}_1T) \propto \text{Im}\chi(Q_{AF}, \omega)/\omega$ à Q_{AF} ne soit pas très représentative du pseudo-gap.

3.3.2 Pseudo-gap: énergie du maximum d' $\text{Im}\chi(Q_{AF}, \omega)$

Nous avons discuté l'impact du pseudo-gap sur le spectre magnétique à $(\pi/a, \pi/a)$ sans préciser de valeurs numériques. En fait, la difficulté pour établir la valeur du pseudo-gap de spins à $(\pi/a, \pi/a)$ provient de l'existence du gap de spin dans l'état SC (cf partie 2.4 du chapitre précédent) dans la même gamme d'énergie. En effet, il a été implicitement supposé dès les premières mesures DIN [25] que le gap de spin E_G de l'état SC devenait le pseudo-gap de spins de l'état normal. Cependant, il est clair que le gap de spin de l'état SC présente une évolution en dopage qui ne peut être en aucun cas celle du pseudo-gap des cuprates de la Fig. 1.1. E_G augmente clairement avec le dopage [67] et ne peut donc pas correspondre au pseudo-gap. Comme ces deux gaps ont lieu dans la même gamme d'énergie, la forme de spectre dans l'état SC peut présenter une forme assez compliquée. Cette amalgame a donné lieu à une certaine confusion. On peut résoudre ce problème en définissant autrement le pseudo-gap à $(\pi/a, \pi/a)$ par le paramètre ω_0 de l'Eq. 3.3 [68, 69] qui, rappelons-le, décrit correctement la forme spectrale de la susceptibilité de spins de l'état normal (Fig. 3.8). Ce type de définition de gap est tout à fait classique dans des systèmes à magnétisme localisé désordonné [160] où le gap correspond au minimum de la relation de dispersion de quasi-magnons. Nous avons montré que tel était le cas dans $\text{YBCO}_{6.5}$ [62] où le maximum de la susceptibilité de spins à $(\pi/a, \pi/a)$ peut être assimilé au minimum de la dispersion des excitations (Fig. 3.7). Ainsi définit, le pseudo-gap de spin ω_0 est sensiblement constant en fonction du dopage pour $x > 0.6$ de la même manière que T^* [69]. Néanmoins, il diminue notablement pour les concentrations autour de $x < 0.6$ [69]. Bien que ce comportement soit encore différent du pseudo-gap à $q = 0$, il s'en rapproche plus et il dévie, comme il se doit, notablement de celui du gap de spin de la phase SC.

Ces deux types de régimes du pseudo-gap en fonction du dopage ($x \geq 0.6$ et $x < 0.6$) recouvrent en fait les deux types de comportement du spectre dans l'état normal en fonction de l'énergie (Fig. 3.8) ainsi que dans l'état SC. En effet, ces deux gammes de dopage correspondent à des comportements distincts dans l'état SC (cf chapitre précédent): on observe soit un grand gap de spin avec un pic de résonance fin soit un petit gap de spin avec seulement une déformation de la forme spectrale. Cela semble confirmer un changement brutal de la susceptibilité de spins autour de $x \sim 0.6$ qui n'a pas reçu beaucoup d'attention pour l'instant.

3.3.3 Dépendance en température

Comme nous l'avons discuté plus haut, l'amortissement déduit de l'affinement par Eq. 3.3 est assez important, typiquement $\Gamma \sim \omega_0/2$. Ainsi, des excitations magnétiques sont

observables dans l'état normal à des énergies nettement inférieures à ω_0 jusqu'à l'énergie nulle. Cela fait une différence notable avec l'état SC où l'amortissement tend vers zéro à température nulle sans toutefois donner lieu à une variation brusque à T_C . On peut spéculer que l'évolution thermique tant observée en dessous du pseudo-gap en DIN que par le $1/(^{63}T_1T)$ en RMN provient de la dépendance en température des différents paramètres de l'équation Eq. 3.3. En particulier, l'amortissement semble augmenter linéairement avec la température telle que, $\Gamma \propto \Gamma_0 + \alpha T$ alors que ω_0 change très peu. Ainsi, au dessus de la température où $\Gamma = \omega_0$, la Lorentzienne (Eq. 3.3) est suramortie et $Im\chi(Q_{AF}, \omega < \omega_0)$ devient linéaire en énergie. Cette température définit ainsi T^* . On peut décrire la dépendance thermique de l'intensité magnétique (comme celle reportée Fig. 3.12) par un jeu des différents paramètres de l'Eq. 3.3.

Cette situation peut être illustrée sur la Fig. 3.9 pour la composition proche du dopage optimal. Comme nous l'avons discuté plus haut (paragraphe 3.2.1), la susceptibilité de spins présente un maximum bien définie à 100 K avec $\omega_0 = 26$ meV, et $\Gamma = 10$ meV. Pour ce taux d'oxygène, les mesures de RMN à $q=0$ et aussi à $q=(\pi/a, \pi/a)$ montrent clairement un pseudo-gap de spin à 100 K qui a disparu au dessus de ~ 150 -200 K. A $T=200$ K et à $T=273$ K, ce pic de la Fig. 3.9 est très fortement atténué; on peut rendre compte de cet effet en augmentant seulement fortement l'amortissement, $\Gamma \geq 25$ meV pour ω_0 toujours à 26 meV et un préfacteur χ_q qui évolue peu. La phase du pseudo-gap est ainsi caractérisée par un pic dans la susceptibilité de spins non amortie qui deviendrait suramortie à haute température au dessus de T^* . On peut ainsi expliquer le spectre mesuré dans l'état normal pour $x = 0.97$ (Fig. 3.8) où aucune structure claire n'est observée. Pour cette concentration en oxygène, les mesures de RMN à $q=0$ et à $q=(\pi/a, \pi/a)$ ne montrent quasiment plus de pseudo-gap de spin. Par contre, χ_q resterait important pour donner lieu à des corrélations AF fortes et mesurées par RMN (cf partie 3.4.3). Une manière d'exprimer ce résultat est en considérant la susceptibilité locale; $Im\chi_{loc}$ présente un maximum uniquement dans la phase de pseudo-gap. Ce type d'argument a d'ailleurs été utilisé par Dai *et al* [70] dans leur définition de T^* mais sans être formulé de cette façon.

Comme nous l'avons vu plus haut pour les plus faibles dopages, $x < 0.6$, l'amortissement est plus important pour ω_0 plus faible : cette condition de mode suramorti est atteinte dès T_c [69] et on ne peut plus définir T^* . Ainsi, le comportement pseudo-gap de spins mesuré par DIN (ou par RMN du cuivre) diffère de celui qui est généralement associé au pseudo-gap (Fig. 1.1). Autour de $(\pi/a, \pi/a)$, T^* serait alors simplement la température où cette excitation devient suramortie sans lien direct avec T_p la température de l'apparition du pseudo-gap autour de $q = 0$. Également, ω_0 diminue aux faibles dopages alors que la valeur du pseudo-gap autour de $q = 0$ a priori augmente [14]. On voit donc que la relation entre les mesures sondant les fluctuations autour de $(\pi/a, \pi/a)$ et les autres reste encore floue à ce jour.

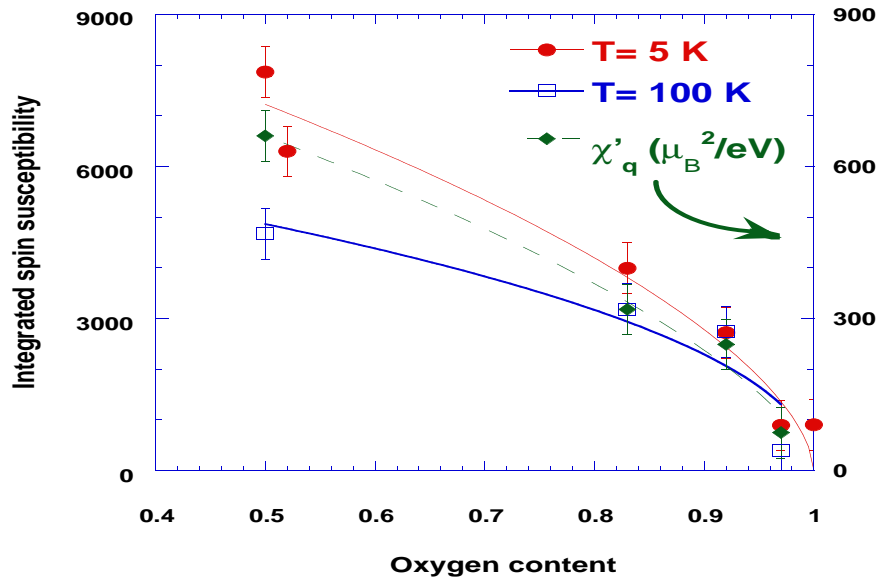


Figure 3.13: Dépendance en dopage du poids des fluctuations AF : les carrés pleins sont définis par I_{AF} à partir de l'Eq. 3.6 dans l'état normal à $T=100$ K (bleu) et dans l'état SC à $T=5$ K (rouge). Les diamants fermés représentent χ'_{AF} et proviennent de l'affinement de $Im\chi(q_{AF}, \omega)$ de la Fig. 3.8 par l'Eq. 3.3. La normalisation en absolue montre que 1000 dans l'échelle verticale de gauche est équivalent à $2 \mu_B^2$.

3.4 Poids spectral

3.4.1 Dépendance en dopage

Que cela soit dans l'état normal (Fig. 3.8) ou dans l'état SC (Fig. 2.9), il est clair que l'amplitude des fluctuations AF décroît fortement avec le dopage [68]. Autour du dopage correspondant à $YBCO_7$, les corrélations AF semblent s'évanouir d'une manière qui, de fait, rappelle celle du pseudo-gap [26]. En effet, on observe une décroissance violente de l'amplitude de la susceptibilité AF juste au dessus du dopage optimal où $Im\chi(\mathbf{Q}_{AF}, \hbar\omega)$ est au moins 4 fois plus faible pour $x=0.97$ que pour $x=0.92$ alors que le dopage change peu dans cet interval de dopage et que les températures SC sont très similaires.

Il convient de quantifier cette tendance. Cependant, la détermination en absolu du poids spectral des fluctuations magnétiques n'est pas une chose aisée dans ce type de mesure. En effet, pour ce faire, on a besoin de connaître avec précision le comportement de $Im\chi(\mathbf{Q}, \hbar\omega)$ à toutes les énergies et à n'importe quel vecteur d'onde. A cause du bruit de fond inhérent aux mesures de neutrons, la détermination précise du poids des corrélations magnétiques est quasiment impossible, en particulier dans les cuprates où 1) le spectre s'étend sur une très large gamme d'énergie qui nécessite plusieurs types de spectromètres et où 2) les fluctuations magnétiques sont larges dans l'espace réciproque. On peut néanmoins quantifier cette évolution en focalisant sur le vecteur d'onde AF en

considérant deux quantités. Tout d'abord, on peut effectuer une intégration partielle de la susceptibilité de spins sur la partie "utile" du spectre. Ainsi, on considère le coefficient suivant

$$I_{AF} = \int_0^{50\text{meV}} \text{Im}\chi(\mathbf{Q}_{AF}, \hbar\omega) d\omega \quad (3.6)$$

qui permet une intégration numérique en énergie de la susceptibilité de spins à $(\pi/a, \pi/a)$ sur une gamme d'énergie où l'évolution de $\text{Im}\chi(\mathbf{Q}_{AF}, \hbar\omega)$ est la plus intéressante, c'est à dire entre 0 et 50 meV. Par ailleurs, dans l'état normal, on peut utiliser l'affinement par l'Eq. 3.3 de $\text{Im}\chi(q_{AF}, \omega)$ de la Fig. 3.8 pour déterminer le coefficient $\chi'_{AF} = \chi_q(\pi/a, \pi/a)$. Par conséquent, ce terme donne la partie réelle de la susceptibilité à énergie nulle par prolongement du spectre à haute énergie.

Ces deux quantités sont représentées sur la Fig. 3.13 en fonction de la concentration en oxygène. A première vue, la Fig. 3.13 suggère que les fluctuations AF ne sont pas importantes pour le mécanisme à HTC car le poids spectral des fluctuations AF tend à disparaître pour des échantillons où T_C est quasiment aussi élevée que la T_C maximum du système. Mais en fait, si l'on suppose la même largeur en vecteur d'onde pour YBCO_{6.97} que pour YBCO_{6.92}, la limite haute de l'amplitude absolue de la susceptibilité de spins sur la Fig. 3.8 pour YBCO_{6.97} vaut $\sim 80 \mu_B^2/eV$ à (π, π) i.e. encore ~ 20 fois plus grande que la susceptibilité uniforme, déterminée par des mesures macroscopiques ou déduite du Knight shift en RMN [23, 148]. Par conséquent, la Fig. 3.13 ne permet pas d'affirmer que les interactions électroniques ne peuvent pas être responsables de la SC à haute température critique : les fluctuations AF sont encore suffisamment large pour donner lieu à une T_C élevée. On pourrait d'ailleurs argumenter que la supraconductivité induite par des fluctuations AF est maximale lorsque le poids spectral est réduit en deçà d'un certain seuil, où lorsque ces fluctuations sont faiblement corrélées dans l'espace. La proportionnalité de T_c avec Δ_q dans l'état sous-dopé milite dans cette dernière direction. Les fluctuations AF auraient alors deux effets antinomiques : d'une part elle seraient responsables de l'appariement SC et d'autre part, par un mécanisme de brisure de paires, elles réduiraient T_c .

Finalement, cette évolution du poids spectral (Fig. 3.13) souligne le rôle dominant du pic de résonance en fonction du dopage. En augmentant le dopage, le poids spectral de l'état normal décroît continuellement (devenant trop distribué en énergie pour être mesuré par DIN dans l'état sur-dopé YBCO₇ [152, 78, 68]). Dans le même temps, le mode résonant à $(\pi/a, \pi/a)$ devient la seule excitation mesurable dans l'état SC [68]. D'ailleurs, le poids spectral de cette excitation à $(\pi/a, \pi/a)$ évolue très peu en fonction du dopage [63, 70] autour d'une valeur de $\sim 2 \pm 0.5 \mu_B^2$ (valeur uniquement intégrée en énergie, cf chapitre précédent). Ainsi, l'évolution du poids spectral des fluctuations AF est différent de celui de la résonance. Au fur et à mesure que le dopage augmente, le pic de résonance devient la majeure partie du spectre magnétique (mesurable par DIN). Typiquement, le pic de résonance est clairement identifiable même quand les fluctuations de l'état normal ne le sont plus. De fait, cette excitation est le mieux définie autour du dopage optimal, indication supplémentaire de son lien avec la supraconductivité.

3.4.2 Valeur absolue

Il faut aussi rappeler que la Fig. 3.13 ne représente pas une règle de sommes. En effet, c'est une intégration uniquement en énergie et sur un gamme limitée entre 0 et 50 meV. On néglige ainsi d'une part des éventuelles contributions à haute énergie et d'autres part la dépendance en vecteur d'onde. Cette dernière a en fait un comportement en fonction du dopage opposé à l'intensité à $(\pi/a, \pi/a)$ comme le montre l'évolution de la largeur en vecteur d'onde (Fig. 3.3) en tout cas à basse énergie ($\hbar\omega < 50$ meV). Aussi, la Fig. 3.13 ne représente que l'évolution en dopage de la partie visible de "l'iceberg" AF.

Il est donc très difficile d'évaluer le poids spectral total des fluctuations AF en absolu d'autant plus que des contributions larges, difficiles à mesurer, vont énormément contribuer au poids spectral. Ainsi, la détermination que l'on peut effectuer à partir des susceptibilités à $(\pi/a, \pi/a)$ ou locales (voir Figs. 2.9, 3.8, 3.9, 3.10 ou 3.11), ne peut que sous-estimer le poids spectral réel. On peut néanmoins comparer ce poids spectral effectif avec celui des ondes de spins du composé AF parent que l'on peut d'une part calculer par un modèle classique Heisenberg pour un spin- $\frac{1}{2}$ et d'autre part vérifier par des mesures de DIN dans YBCO₆.

Discutons tout d'abord le poids spectral des ondes de spins du composé parent YBCO₆. La susceptibilité des magnons dans un modèle Heisenberg $S=\frac{1}{2}$ s'écrit dans la limite des vecteur d'ondes proches de Q_{AF} ($q \rightarrow 0$) [162, 36, 158]

$$Im\chi(\mathbf{Q}, \omega) = \pi S Z_\chi Z_c (g\mu_B)^2 2 \sin(\pi z q_l)^2 \frac{\sqrt{2}}{qa} \delta[\omega - cq] \quad (3.7)$$

où $c = 2S\sqrt{2}Z_c J a$ est la célérité des ondes de spins, $J \simeq 120$ meV[36] le super-échange AF et $Z_c \simeq 1.18$ et $Z_\chi \simeq 0.52$ représentent les corrections quantique de l'état fondamental AF[162] pour, respectivement, la célérité des ondes de spins et la susceptibilité. Ces paramètres sont en principe déterminés par des développements d'ordre supérieur des ondes de spins ainsi que par des simulations numériques[162]. L'application de cette formule (Eq. 3.7) aux mesures d'ondes de spins de basse énergie montre qu'en fait Z_χ est réduit de 30 % par rapport à sa valeur théorique $Z_\chi^{meas} \sim 0.7 \times Z_\chi$ [36, 158]. Cette réduction de $Im\chi(\mathbf{Q}, \omega)$ systématique de ~ 30 % dans plusieurs cuprates peut se comprendre par un effet de covalence[36]. Le terme $\sin(\pi z L)^2$ dans Eq. 3.7 provient de l'existence du biplan CuO₂ dans YBCO : $z = 0.28$ est la distance relative des 2 plans CuO₂ suivant l'axe c d'empilement des plans, L est la composante du vecteur suivant c^* (cf partie 2.1.1). Le terme, représenté par Eq. 3.7, décrit le mode où les spins oscillent en phase, mode acoustique. Le mode optique, apparaissant au dessus d'un gap $E_{opt} = 67$ meV, a un facteur de structure complémentaire en \cos^2 [157, 158]. En appliquant la règle de sommes due à la conservation du nombre de spins pour le modèle de Heisenberg [162], on obtient le poids spectral total à basse température dans les mêmes unités que la susceptibilité définit par Eq. 1.6 (c.a.d. pour une seule composante cartésienne du tenseur de la susceptibilité de spins):

$$\int d^3Q d\omega Im\chi(Q, \omega) \simeq 2Z_\chi \frac{\pi}{3} S(S+1)(g\mu_B)^2 \quad (3.8)$$

cuprates	$\int d^3Q d\omega \text{Im}\chi(Q, \omega) (\mu_B^2)$ $\pm 30 \%$	$\int d\omega \text{Im}\chi(Q, \omega) (\mu_B^2)$ $\pm 30 \%$
YBCO _{6.5}	0.8	25
YBCO _{6.7}	0.6	15
YBCO _{6.7} résonance seule	0.056	2.1
YBCO _{6.92}	0.4	10
YBCO _{6.92} résonance seule	0.065	2.4
YBCO ₇	0.043	1.6
0.5 % Zn - YBCO ₇	0.058	2.2
BSCO	0.23	1.9

Table 3.3: Poids spectral des fluctuations magnétiques dans différentes cuprates (principalement YBCO). La colonne centrale montre l'intégration complète en énergie et vecteur d'onde. La colonne de gauche montre une intégration partielle uniquement en énergie au vecteur d'onde AF. Les paramètres pour le pic de résonance correspondent à ceux des références [63, 79, 98]. Les chiffres sont donnés par maille élémentaire (c.a.d. pour 2 cuivres).

Cette formule contient non seulement le spectre des ondes de spins intégré en énergie et en vecteur ($\propto S$) mais aussi le moment magnétique ordonné ($\propto S^2$). Pour l'état AF avec $S=\frac{1}{2}$, on obtient $\int d^3Q d\omega \text{Im}\chi(Q, \omega) \simeq 3.2\mu_B^2$ [98]. Si, en plus, on prend en compte la réduction liée à la covalence, on obtient $\int d^3Q d\omega \text{Im}\chi(Q, \omega) \simeq 2.2\mu_B^2$. Ainsi, comme souligné dans le chapitre précédent, le poids spectral de la résonance de $\sim 0.05\mu_B^2$ ne représente que 1.5 % à 2.5 % du poids total du magnétisme de l'état AF ordonné (moment ordonné + magnon acoustique + magnon optique).

Le plus intéressant est maintenant d'estimer ce chiffre pour les différents dopages. N'ayant pas de modèle pour appliquer une règle de sommes, on a procédé en extrapolant à haute énergie en prolongeant les spectres mesurés suivant les affinements montrés sur les figures comme 2.9, 3.8, 3.9, 3.10 ou 3.11. Également, nous avons extrapolé les comportements en vecteur d'onde à partir des mesures à plus basses énergies (Figs. 3.1 ou 3.5): nous avons considéré une largeur en vecteur d'onde **isotrope** avec une faible augmentation en fonction de l'énergie (comme Fig. 3.1). Dans la phase supraconductrice, nous n'avons pas tenu compte des détails de la dépendance en vecteur d'onde telle que dispersion de la résonance où comme la possibilité d'un facteur de structure particulier. Il est clair qu'il est en principe nécessaire de le faire mais la connaissance détaillée de ces aspects est trop incomplète pour l'instant pour l'effectuer correctement. De toute façon, la précision sur la valeur absolue du poids spectral des fluctuations est encore trop

imparfaite pour que cette approximation ne soit un problème.

Un argument, qui va dans ce sens, est le fait que pour une composition donnée on trouve que le poids spectral des fluctuations magnétiques est conservé en fonction de la température. En effet, en vertu de la conservation des moments magnétiques, la quantité suivante doit être indépendante de la température,

$$\int d^3Q d\omega \{1 + n(\omega, T)\} Im\chi(Q, \omega) = 2\frac{\pi}{3} S_{eff}(S_{eff} + 1)(g\mu_B)^2 \quad (3.9)$$

où $\{1 + n(\omega, T)\} = 1/(1 - \exp(-\hbar\omega/k_B T))$ est le facteur de population thermique. S_{eff} est un moment effectif pour un cuivre par maille élémentaire défini pour chaque dopage. De fait, cette règle de sommes est respectée. On voit donc que la proposition du calcul de l'énergie de condensation (Eq. 2.2)[91, 92] est basé sur une déformation en vecteur d'onde du spectre sinon aucun effet n'est attendu comme nous l'avons déjà discuté au chapitre précédent.

Un autre problème important réside dans l'existence du biplan par maille élémentaire donnant lieu à un mode optique supplémentaire (parité paire). Comme nous l'avons discuté plus haut, ce mode a un comportement en énergie différent du mode acoustique (parité impaire). Quand nous considérons le mode acoustique, nous lui attribuons un facteur de structure tel que $\sin(\pi z q_l)^2$ qui implicitement implique un facteur de structure tel que $\cos(\pi z q_l)^2$ pour le mode optique. De ce fait, on suppose que le mode optique conserve le même poids spectral que le mode acoustique pour tous les dopages. Cette hypothèse est difficile à vérifier pour le moment dans la mesure où le spectre optique est encore moins bien connu (apparaissant à plus haute énergie) que le spectre acoustique. Il semble, cependant, que le poids spectral optique soit plus faible que le poids spectral acoustique.

La table 3.3 montre ainsi deux types d'intégration des fluctuations magnétiques. Tout d'abord, à gauche une intégration en fonction de l'énergie du spectre magnétique pour le vecteur d'onde AF. Cette quantité doit être comparée à la figure 3.13 où le même type d'intégration est effectué entre 0 et 50 meV. Pour YBCO₇, on voit que les deux quantités coïncident mais pour la partie sous-dopé, la figure 3.13 sous-estime une partie importante du spectre magnétique. Par ailleurs, il est aussi reporté sur la table 3.3 le poids spectral magnétique total qui est mesuré par la diffusion inélastique de neutrons. Ce chiffre est inférieur au poids spectral magnétique du composé parent. Cela signifie qu'une partie significative du spectre magnétique est tellement dilué dans l'espace réciproque ou en énergie qu'il n'est pas (en tout cas, pour l'instant) mesurable avec les neutrons. Dans l'état sous-dopé, on voit aussi que le poids spectral du pic de résonance à $(\pi/a, \pi/a)$ ne représente qu'une très faible partie du poids spectral total.

3.4.3 Comparaison avec la RMN

Cette évolution avec le dopage des fluctuations AF (Fig.3.13) est très surprenante en comparaison avec les données de RMN sur le noyau du cuivre [8, 24, 148, 4]. En effet, tant les mesures de temps de relaxation spin-réseau ${}^{63}T_1$ que celle de temps de relaxation

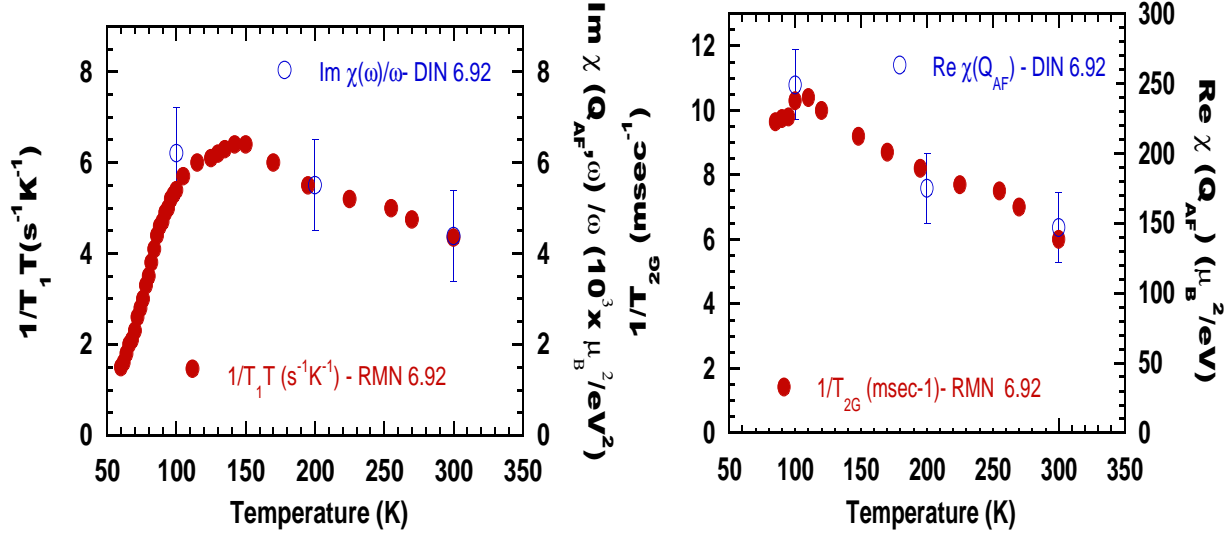


Figure 3.14: Comparaison de l'évolution en fonction de la température (dans l'état normal) de $\frac{1}{63T_1T}$ (à gauche) et de $\frac{1}{63T_{2G}}$ (à droite) mesurées par RMN avec ces mêmes grandeurs calculées à partir des mesures de DIN pour un même échantillon YBCO_{6.92}. Les données neutrons sont présentées sur la Fig. 3.9. Les données RMN sont tirées de [8, 166] pour un champ magnétique appliqué dans le plan CuO₂.

spin-spin ${}^{63}T_{2G}$ n'évoluent presque pas à $T=100$ K entre YBCO_{6.92} et YBCO₇ [8]. De fait, ces mesures de RMN ont été largement interprétées comme preuve de l'existence de fortes corrélations AF [8, 24, 148, 4] dans les cuprates. Du fait de sa situation dans la maille élémentaires des cuprates, le site du cuivre sonde en effet plutôt les fluctuations magnétiques autour du vecteur d'onde $(\pi/a, \pi/a)$, c.a.d. les même fluctuations que celles présentes dans les mesures de neutrons. Ainsi, le résultat de DIN semble contredire la conclusion largement acceptée des expériences de RMN dans les cuprates.

Afin de comprendre ce dilemme, il est nécessaire d'être capable de comparer en absolu la susceptibilité de spins dans les deux types de mesures. La détermination du poids spectral des fluctuations AF par DIN permet cette comparaison entre ces deux techniques. Généralement, l'analyse de la RMN se fait via un modèle théorique de la susceptibilité de spins [148, 4]. Ici, nous allons procéder différemment : en considérant la forme heuristique en énergie et en vecteur d'onde de $Im\chi(\mathbf{Q}, \hbar\omega)$ mesurée directement par DIN, nous allons estimer les temps de relaxations caractéristiques de la RMN.

Précisons donc, tout d'abord, à quoi correspond les temps de relaxations mesurées par RMN dans les cuprates[163]. Nous suivons ici l'approche standard qui considère que la RMN ne sonde dans les cuprates que des fluctuations de spins [8, 24, 148, 4, 164]. Le temps de relaxation spin-réseau du noyau du cuivre ${}^{63}T_1$ est reliée à $Im\chi(\mathbf{Q}, \hbar\omega)$ par

$$\frac{1}{63T_1T} = \lim_{\omega \rightarrow 0} \frac{k_B}{2\hbar^2} \sum_{\mathbf{Q}} |\gamma_i \hbar A(\mathbf{Q})|^2 \frac{Im\chi(\mathbf{Q}, \omega) / \mu_B^2}{\omega} \quad (3.10)$$

De son côté, le temps de relaxation d'écho de spin, toujours sur le noyau du cuivre ${}^{63}T_{2G}$

s'écrit en fonction de la partie réelle de la susceptibilité de spins

$$\frac{1}{{}^{63}T_{2G}^2} = \frac{0.69}{128\hbar^2} \sum_{\mathbf{Q}} \left[|\gamma_i \hbar A(\mathbf{Q})|^4 (Re\chi(Q)/\mu_B^2)^2 - (|\gamma_i \hbar A(\mathbf{Q})|^2 Re\chi(Q)/\mu_B^2)^2 \right] \quad (3.11)$$

Le paramètre $\gamma_i \hbar A(\mathbf{Q})$ représente un facteur de forme atomique et a une dépendance en vecteur d'onde qui correspond à la symétrie du site du noyau étudié. Il peut être exprimé en eV [164]. On voit dans les Eqs. 3.10 et 3.11 que la RMN mesure des quantités distinctes de la mesure de DIN. En particulier, la RMN est une sonde locale qui effectue une moyenne dans l'espace réciproque de la susceptibilité de spins pondérée par un facteur de forme qui dépend du site de chaque noyau considéré [4, 8, 24, 148, 164]. Pour le site du cuivre et pour un champ magnétique appliqué dans le plan CuO_2 , ce facteur de forme est donné par,

$$A(\mathbf{Q}) = [A + 2B(\cos q_x a + \cos q_y a)]^2 \quad (3.12)$$

A et B sont les champs hyperfins transférés, $B=3.82 \times 10^{-7}$ eV pour une large gamme de dopage et de cuprates[164], $A = 0.84B$ pour le calcul du temps de relaxation spin-réseau (considéré ici) et $A = -4B$ pour le calcul du temps de relaxation spin-spin, $1/T_{2G}$. Nous considérons ensuite la susceptibilité de spins déduite des mesures DIN typique de l'état normal ($T=100$ K) dans un cas de sous-dopage. A partir des affinements de la Fig. 3.8 avec l' Eq. 3.3 et avec la dépendance en Q de forme Gaussienne (Eq. 3.1), on peut écrire,

$$Im\chi(Q, \omega) = \frac{\chi_q}{2} \exp\left(-\log 2 \frac{(Q - Q_{AF})^2}{\Delta_q^2}\right) \left(\frac{15 \omega}{(\omega - 30)^2 + 15^2} + \frac{15 \omega}{(\omega + 30)^2 + 15^2} \right) \quad (3.13)$$

La susceptibilité 3.13 est exprimée en μ_B^2/eV , χ_q correspond à la susceptibilité AF, on prend une valeur typique de $200 \mu_B^2/eV$. La largeur en Q (HWHM) dans le plan de base quadratique, $\Delta_q \sim 0.13 \text{ \AA}^{-1}$, est équivalente à une longueur de corrélation courte, $\xi/a \sim 2$ ($\xi = 1/\Delta_q$). Ces paramètres sont choisis pour correspondre à la situation typiquement mesurée pour $\text{YBCO}_{6.7}$ [63]. Il est aussi important de noter que ces paramètres sont typiques à $T=100$ K sur une large gamme de dopage dans l'état sous-dopé. Le calcul de $\frac{1}{{}^{63}T_{2G}}$ nécessite la partie réelle de la susceptibilité qui est alors donnée par,

$$Re\chi(Q, \omega = 0) = \chi_q \exp\left(-\log 2 \frac{(Q - Q_{AF})^2}{\Delta_q^2}\right) \quad \text{en } \mu_B^2/eV \quad (3.14)$$

En plus de la dépendance en Q dans le plan de base donnée par 3.14, on doit aussi prendre en compte le facteur $\sin(\pi z q_l)^2$ (discuté plus haut) pour effectuer la sommation suivant l'axe c^* dans Eqs. 3.10 et 3.11. Comme les facteurs de formes sont indépendants de c^* , on obtient $\int \sin(\pi z q_l)^2 dq_l / \int dq_l = 0.5$.

A partir de la distribution Gaussienne de la susceptibilité magnétique mesurée par DIN, on peut calculer les intégrations (Eqs. 3.10 et 3.11). Dans la limite $\xi/a \gg 1$, on peut simplifier ces deux intégrations par,

	Neutrons : YBCO _{6.7} [63]	RMN : YBCO _{6.63} [24]	RMN : YBCO _{6.92} [8]
$\frac{1}{^{63}T_1T}$ (sec ⁻¹ K ⁻¹)	4	5	7
$\frac{1}{^{63}T_2G}$ (sec ⁻¹)	17000	18000	11000

Table 3.4: Calcul des temps de relaxation RMN du Cu à partir de la susceptibilité donnée par Eq. 3.13 avec $\xi/a=2$ déduite des mesures de diffusion inélastique de neutrons donnée. Les deux colonnes de gauche donnent les mesures RMN pour deux compositions distinctes.

$$\frac{1}{^{63}T_2G} \simeq 677\chi_q\Delta_q \quad \text{et} \quad \frac{1}{^{63}T_1T} \simeq 0.08\Delta_q^2 \lim_{\omega \rightarrow 0} \frac{Im\chi(Q, \omega)/\mu_B^2}{\omega} \quad (3.15)$$

Ces résultats (Eq. 3.15) sont similaires à ceux obtenus dans une hypothèse Lorentzienne pour la susceptibilité de spins[164]. La table 3.4 compare le calcul des temps de relaxation RMN du cuivre donnée par Eq. 3.15 avec les mesures dans YBCO_{6.63}[24] ou YBCO_{6.92}[8]. Un bon accord avec la mesure du $\frac{1}{^{63}T_1T}$ est obtenu alors que $\frac{1}{^{63}T_2G}$ est surestimé. C'est particulièrement clair pour les dopages les plus importants où le calcul est quasiment double de la mesure. Une hypothèse pour comprendre cet écart est dans la forme en Q du signal magnétique qui, sans doute, est différent d'une forme Gaussienne dans la mesure où les deux grandeurs RMN sont différemment proportionnelles à Δ_q . Également, cette forme en principe doit être différente pour $Re\chi(\mathbf{Q}_{AF}, \omega = 0)$ que pour $\left. \frac{Im\chi(\mathbf{Q}, \omega)}{\omega} \right|_{\omega \rightarrow 0}$ contrairement à ce que nous avons supposé ici. $1/T_2G$ nécessiterait une largeur en q plus faible (c.a.d. des longueurs de corrélations plus grandes). Une autre difficulté de cette modélisation est son incapacité pour rendre compte du temps de relation RMN sur le site de l'oxygène [8]. Il semble ainsi, pour l'instant, assez délicat de pouvoir totalement comparer quantitativement les données neutrons et RMN.

Il est néanmoins intéressant de comparer la dépendance thermique de la DIN avec celles des grandeurs RMN. En conséquence du paragraphe précédent, il est préférable de comparer les évolutions thermiques de $1/T_2G$ avec χ_q et $\frac{1}{^{63}T_1T}$ avec $\lim_{\omega \rightarrow 0} \frac{Im\chi(Q, \omega)/\mu_B^2}{\omega} = \chi_q\Gamma/(\omega_0^2 + \Gamma^2)$ qui doivent être proportionnelle (Eq. 3.15). Nous avons effectué ces comparaisons sur la figure 3.14 pour un échantillon d'YBCO_{6.92} mesuré par les deux techniques. On trouve un très bon accord entre les deux séries de mesures en fonction de la température avec cependant un facteur de proportionnalité qui n'est pas correct. Concrètement, il faudrait $\xi/a = 3.2$ pour rendre du $1/T_2G$ et $\xi/a = 1.8$ pour $\frac{1}{^{63}T_1T}$ dans l'hypothèse du modèle Gaussien. La mesure DIN pour cette échantillon donne $\xi/a = 1.12$ (table 3.1). Enfin, cette comparaison (Fig. 3.14) montre aussi que l'on peut expliquer la dépendance thermique des temps de relaxation RMN sans supposer de variation thermique des longueurs de corrélations AF. Cette hypothèse, qui rappelons-le est incompatible avec les résultats de DIN, est très largement admise comme une nécessité pour l'analyse des données RMN sur le noyau du Cu[148, 164]. La déformation du spectre magnétique

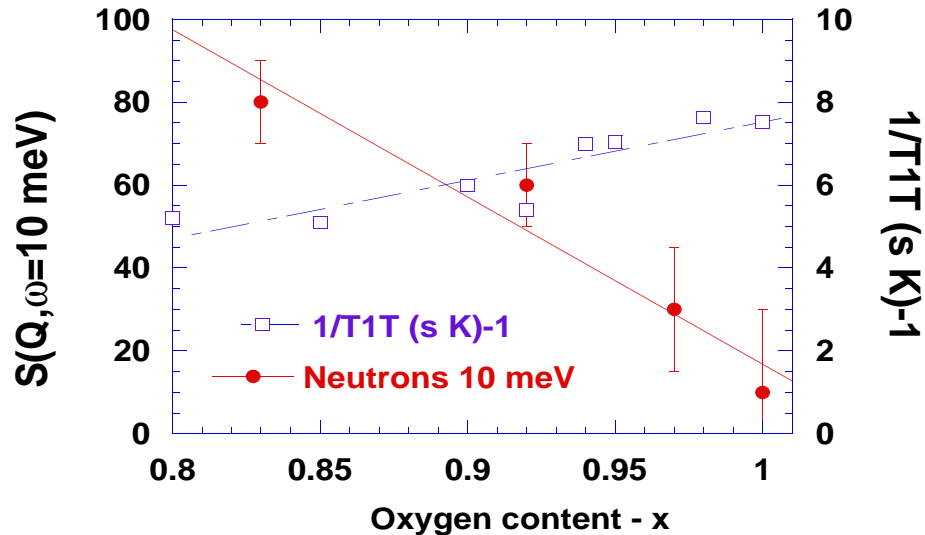


Figure 3.15: Comparaison de l'évolution de $\frac{1}{63T_1T}$ mesuré par RMN et $Im\chi(\mathbf{Q}_{AF}, \hbar\omega = 10\text{meV})$ mesurée par DIN en fonction du taux d'oxygène (et donc du dopage). Dans les deux cas, la température est dans l'état normal, $T=100$ K. Les données RMN sont tirées de [8, 166].

en énergie est clairement suffisante pour comprendre $1/T_2G$ et $\frac{1}{63T_1T}$ en fonction de la température.

Pour conclure, on voit que dans l'état sous-dopé l'ordre de grandeur de la susceptibilité neutrons correspond tout à fait avec celle mesurée par RMN sur le site du Cu avec en particulier une bonne adéquation des évolutions thermiques. Cette conclusion est relativement contraire à ce qui généralement présentée[4, 165] où la susceptibilité déduite de la RMN est trop faible pour rendre compte des résultats de DIN. Cet écart est typiquement dû à la forme en Q et aux les longueurs de corrélations AF utilisées pour l'analyse de la RMN qui sont trop grandes (cf plus bas paragraphe 3.5.2). Cependant, dans le détail, l'accord est plus délicat et nécessiterait une modélisation plus précise de $\chi(\mathbf{Q}, \omega)$. Ce type de comparaison RMN/INS a aussi été effectué pour la relaxation spin-réseau dans le système LSCO[167] avec globalement un bon accord tant en température qu'en absolu. Ce dernier point souligne le rôle majeur de la dépendance en vecteur d'onde des fluctuations magnétiques dans ce type de calcul. En effet, les fluctuations magnétiques de LSCO sont incommensurables avec des longueurs de corrélations importantes ($\xi \sim 30$ Å) à la grande différence d'YBCO.

Un autre problème avec les mesures de la RMN est l'évolution vers l'état sur-dopé YBCO₇. En effet, si on examine l'évolution de $\frac{1}{63T_1T}$ en comparaison avec la mesure de la partie imaginaire de neutrons à Q_{AF} et à $\hbar\omega = 10$ meV (Fig. 3.15), on voit que ces deux grandeurs ont un comportement distinct: selon la RMN les corrélations AF sont similaires sur cette gamme de dopage alors que la DIN indique une forte diminution. Il faut noter que $\frac{1}{63T_2G}$ ne décroît pas fortement non plus : il passe de 10000 sec^{-1} pour YBCO_{6.92} à 9000 sec^{-1} pour YBCO₇[8, 166]. Suivant l'analyse donnée plus haut, ces diverses quan-

tités devraient être proportionnelles les unes aux autres : en effet, sur cette gamme de dopage, on n'observe pas de changement de la largeur en vecteur d'onde des fluctuations AF par DIN qui serait dans l'Eq. 3.10 l'autre paramètre susceptible d'expliquer l'écart de comportement. Ce résultat souligne peut être que la RMN est sensible à une autre source de magnétisme comme des fluctuations de moments orbitaux[168] (trop large pour être facilement détectée par DIN). Une autre possibilité est que la susceptibilité de spins a une dépendance différente dans l'état sur-dopé (soit en énergie soit en vecteur d'onde). Par exemple, si le maximum de $Im\chi(\mathbf{Q}_{AF}, \hbar\omega)$ est décalé vers ~ 20 meV, une telle diffusion magnétique peut (au moins partiellement) être occultée par le bruit de fond nucléaire du spectre de DIN. Par ailleurs, comme nous l'avons développé plus haut, la forte augmentation de l'amortissement pour les températures supérieures à la phase de pseudo-gap peut expliquer pourquoi les fluctuations AF deviennent très difficiles à mesurer à haute température ou à fort dopage. L'évolution de l'intensité neutrons à 10 meV donnée par la figure 3.15 pourrait traduire cet effet. Finalement, des mesures de DIN plus précises sont nécessaires dans l'état normal d'YBCO₇ si l'on souhaite résoudre cette difficulté.

3.4.4 Poids spectral et Pseudo-gap

Globalement, le lien empirique le plus net entre le pseudo-gap et le spectre de neutrons est finalement certainement le lien entre l'apparition en fonction de la température ou du dopage des fluctuations AF mesurables et du pseudo-gap. On observe clairement des fluctuations AF fortes par DIN uniquement dans la phase dite de pseudo-gap de la Fig. 1.1. La dépendance en fonction du dopage du poids spectral des fluctuations AF mesurables (Fig. 3.13) est aussi très similaire à celui de T^* de la Fig. 1.1. Au dessus de T^* , le spectre magnétique est suramorti limitant l'observation des corrélations magnétiques par DIN. Ainsi, la phase de pseudo-gap semble être caractérisée par de fortes corrélations antiferromagnétiques en accord qualitatif avec l'approche proche du liquide AF[4]. En d'autres termes, l'ouverture du pseudo-gap favorise l'amplitude des fluctuations AF. En allant plus loin, l'évolution de la Fig. 1.1 semble indiquer que le poids des fluctuations plonge vers zéro à un certain dopage. Cette hypothèse a été suggérée comme la trace d'un point critique quantique à un dopage légèrement supérieur au dopage optimal[26].

3.5 Modèles

Dans n'importe quel mécanisme supraconducteur basé sur le magnétisme[4, 5], l'interaction effective est directement proportionnel à la susceptibilité de spin dans l'état normal. Par conséquent, la description théorique du spectre neutrons comme ceux rapportés sur les figures 3.8, 3.9 ou 3.10 est essentielle. Des formes théoriques pour $\chi(q, \omega)$ dans l'état normal ont été proposé pour les cuprates dans deux approches alternatives : d'une part, une approche métallique de type "liquide de Fermi" et, d'autre part, une approche de magnétisme localisé en présence de lignes de charges dynamiques, "stripes". Ces deux approches permettent d'expliquer plusieurs aspects du spectre magnétique. L'approche

métallique semble la plus intéressante dans la mesure où elle peut expliquer la dépendance en vecteur d'onde des fluctuations magnétiques. Nous allons discuter ces deux types de modèles en montrant aussi leurs limites car finalement aucun des deux ne décrit pleinement les données neutrons. En particulier, aucune approche théorique n'explique clairement le fait que la susceptibilité locale présente un maximum en fonction de l'énergie (Fig. 3.11) dans la phase de pseudo-gap.

3.5.1 Type "Liquide de Fermi"

Le premier type de modèle traite la réponse magnétique des charges itinérantes dans une approche homogène. Comme nous l'avons déjà indiqué dans le chapitre 2, on doit tout d'abord calculer la susceptibilité de spin sans interactions [51, 50], $\chi^\circ(q, \hbar\omega)$ dans l'Eq. 2.6, à partir de la structure de bandes électroniques. L'ensemble des mesures de photoémission permet maintenant une paramétrisation réaliste des dispersion électroniques qui conduit à un calcul détaillé de la susceptibilité de spins [46, 52]. Nous voulons ici juste illustrer cette fonction dans le cadre d'un modèle de liaisons fortes avec des interactions premiers voisins t et seconds voisins t' (Eq. 1.4) avec un choix de paramètres typiques des cuprates proche du dopage optimal (c.a.d. en accord avec la surface de Fermi ouverte, Fig. 1.2, mesurée dans BSCO [125]).

La topologie de la surface de Fermi a été largement discutée dans les cuprates [52, 169]. Par exemple, une transition électronique topologique a été proposée en fonction du dopage [121, 52]. Dans ce cas de figure, on passe continûment d'une surface de Fermi ouverte (comme Fig. 1.2) dans l'état sous-dopé à une surface de Fermi fermée dans l'état sur-dopé : les points de part et d'autres du vecteur d'onde $(\pi, 0)$ se rejoignent pour un dopage proche du dopage optimal. Il est intéressant de remarquer que ce type de changement de topologie peut expliquer les différentes anomalies de l'état normal [121]. D'autres auteurs [4, 169] font jouer un rôle essentiel aux points de la surface de Fermi (également proche de $(\pi, 0)$) connectés par le vecteur d'onde AF (flèche rouge dans Fig. 2.10), appelées *hot points*. L'hypothèse est ici que les corrélations antiferromagnétiques sont tellement fortes qu'elles dénaturent les quasi-particules. On voit donc que cette topologie de surface de Fermi en présence de corrélations magnétiques donne lieu à une richesse de comportement qui permet de rendre compte des propriétés physiques des cuprates.

L'intention est ici nullement de décrire en détail la réponse magnétique de ces approches mais d'indiquer les différents ingrédients nécessaires à son calcul et à la comparaison avec les mesures de DIN. La Fig. 3.16 montre la partie réelle de la susceptibilité de la fonction de Lindhard $Re\chi^\circ(q, \hbar\omega = 0)$ calculée le long de la direction (110). On voit, tout d'abord, que $Re\chi^\circ(q, \hbar\omega = 0)$ présente une structure en vecteur d'onde sans particulièrement de maximum à $(\pi/a, \pi/a)$. En second lieu, on voit que le maximum de la susceptibilité de Lindhard culmine à $\sim 3.5\mu_B^2/eV$, c'est à dire de plusieurs dizaines de fois plus faibles que la valeur déterminée en diffusion de neutrons et par RMN déduite plus haut. Ainsi, comme nous l'avons discuté dans le chapitre sur le pic de résonance, cette fonction de Lindhard ne suffit pas pour rendre compte des corrélations AF mises en

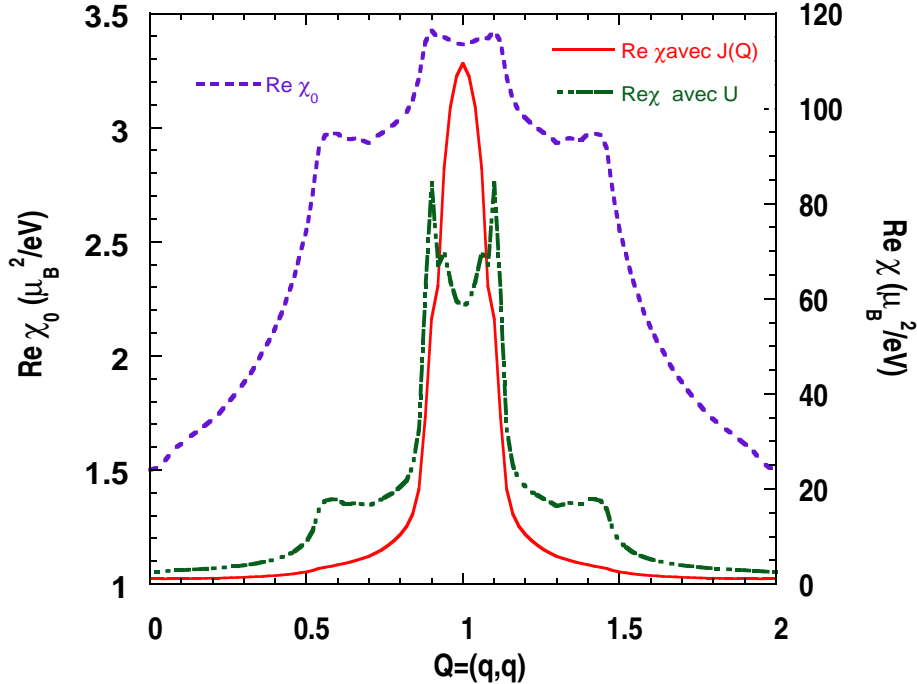


Figure 3.16: Dépendance en vecteur d'onde dans la direction (110) de la partie réelle de trois susceptibilités de spins différentes : la susceptibilité de Lindhard à énergie nulle, $Re\chi_0(q, 0)$, (Eq. 2.6) avec $t = 400$ meV $t' = 0.4t$ et $\mu = -0.7 t$ meV, susceptibilités avec interactions calculées à partir de $Re\chi_0(q, 0)$ et avec $U = 270$ meV ou $J(q_x, q_y) = -J_0(\cos q_x a + \cos q_y a)$ avec $J_0 = 140$ meV. Le calcul est fait en absence de supraconductivité. $q(\text{r.l.u.})=1$ correspond à $(\pi/a, \pi/a)$.

évidence expérimentalement.

Afin de pouvoir décrire l'amplitude et la forme des corrélations magnétiques, il faut donc dans ce type d'approche, tenir compte des interactions comme dans Eq. 2.8 [51, 50]. La susceptibilité de spin est alors amplifiée en présence des interactions, principalement dans une gamme de basse énergie. Ce type de calcul de la susceptibilité de spin renormalisée à été calculée dans l'état normal à partir de la structure de bandes et des interactions [52, 169]. Il est clair que l'impact des interactions est essentiel car on doit atteindre le facteur de "Stoner" obtenu expérimentalement à $(\pi/a, \pi/a)$. Ici, on a choisi deux types d'interactions (Fig. 3.16) soit une répulsion coulombienne renormalisée U avec $1 - URe\chi_0 = 0.943$, soit un échange AF (comme c'est le cas dans un modèle $t - J$) avec $1 - J_0Re\chi_0 = 0.969$, on a choisit $U = 270$ meV et $J_0 = 140$ meV.

Discutons maintenant la forme en fonction du vecteur d'onde de ces différentes susceptibilités de la Fig. 3.16. Commençons par $Re\chi_0(Q)$ qui présente assez peu de structure dans l'état normal. Suivant la direction (110) deux types de maxima sont observés : le maximum le plus important de $Re\chi_0(Q)$ à Q_{nod} , $\equiv 0.9(\pi/a, \pi/a)$ ici, relie deux quasiparticules localisées aux points nodaux (Fig. 1.2), le second maximum provient d'une instabilité connectant des points de la surface de Fermi autour de $(\pi, 0)$ (ces deux instabil-

ités sont d'ailleurs plus nettes suivant les directions (100) ou (010) à partir de $(\pi/a, \pi/a)$. Suivant le dopage et le détail de la structure de bandes et du type d'interactions, ces différentes instabilités peuvent être renforcées ou réduites[53, 52]. Avec une interaction constante en Q comme la répulsion coulombienne, le maximum au vecteur d'onde incommensurable près de $(\pi/a, \pi/a)$ est renforcé et pourrait donner lieu à des fluctuations incommensurables suivant (110). En fait, les instabilités suivant les directions (100) ou (010) toujours à partir de $(\pi/a, \pi/a)$ doivent être plus importantes pour expliquer les mesures de DIN dans LSCO[65, 66, 154]. Par contre l'interaction d'échange AF déplace le maximum de la susceptibilité vers Q_{AF} . Dans ce dernier cas, la largeur en vecteur d'onde de $Re\chi(Q)$ est contrôlée par le vecteur d'onde où apparaît le maximum de $Re\chi_0(Q)$, $\Delta_Q \propto (Q_{AF} - Q_{nod})$. On peut ainsi comprendre le fait que la largeur en vecteur d'onde ne présente d'élargissement notable en fonction de la température mesurée par DIN (Fig. 3.2) dans la mesure où elle correspond à un vecteur d'onde défini par la topologie de la surface de Fermi. Cela fait une très nette différence avec un modèle itinérant AF standard (voir paragraphe suivant) où la largeur en Q doit évoluer fortement en température. On peut aussi qualitativement expliquer l'évolution en fonction du dopage de cette largeur en Q (Fig. 3.3). En effet en fonction du dopage, la distance $(Q_{AF} - Q_{nod})$ augmente avec le volume de la surface de Fermi.

Par ailleurs, en fonction de l'énergie, $Im\chi_0$ peut présenter une structure du fait de la structure bidimensionnelle des cuprates. Comme il a été discuté par de nombreux auteurs (voir par exemple [170, 52]), un maximum doit avoir lieu à une énergie correspondante aux singularités topologiques de van Hove. Cette énergie dépend du dopage et de la topologie ouverte ou fermée de la surface de Fermi. Cependant, cette structure particulière est généralement gommée lorsqu'on prend en compte les interactions. Le problème se ramène alors [52, 169] à la dépendance en fréquence d'un liquide antiferromagnétique de type Lorentzien décrit dans le prochain paragraphe.

Ainsi, ce type de modèle est globalement en accord avec les mesures neutrons obtenues dans l'état sur-dopé YBCO₇ tant dans l'état normal que dans l'état supraconducteur. Il faut juste considérer un facteur d'augmentation de Stoner à $(\pi/a, \pi/a)$ d'au moins de l'ordre d'une dizaine. La principale limite de ce type de modèle est dans l'état sous-dopé (dopage optimal inclut) où la susceptibilité de spins est très forte avec un pic en énergie bien définie tant dans l'état SC que dans l'état normal. Nous allons maintenant discuter plus précisément cet aspect en comparant avec un modèle métallique standard en présence de corrélations antiferromagnétiques comme il a été proposé par plusieurs auteurs[148, 49, 169].

3.5.2 Liquide antiferromagnétique

Dans ce type d'approche, on effectue un développement limité de la susceptibilité de spins avec interactions, $\chi(\mathbf{Q}, \omega)$ dans Eq. 2.8, à basse énergie et aux petits vecteurs d'onde autour du point où les fluctuations sont maximales, ici Q_{AF} . Ce traitement est tout à fait classique[51] dans les systèmes métalliques avec fortes interactions. Il est par exemple tout à fait adapté à l'oxyde de ruthénium Sr₂RuO₄ autour du vecteur d'onde

incommensurable où l'on observe un emboîtement, *nesting*, de la surface de Fermi[60, 171]. Dans les cuprates, cela à été discuté par Pines *et al* [4, 148, 164] donnant lieu au modèle de liquide presque AF, *nearly antiferromagnetic Fermi liquid (NAFL)*, où la susceptibilité s'écrit,

$$\chi_{NAFL}(\mathbf{q}, \omega) = \frac{\chi_{AF}}{1 + (q\xi)^2 - (\omega/\Delta)^2 - i(\omega/\omega_{sf})} \quad (3.16)$$

où $\mathbf{Q} = \mathbf{Q}_{AF} + \mathbf{q}$, ξ est la longueur de corrélation AF, χ_{AF} la susceptibilité de spin alternée, ω_{sf} l'amortissement de spins et Δ le pseudo-gap de spin[164]. Dans l'approche habituel, le paramètre $(\omega/\Delta)^2$ est négligé [4, 148], seul le terme linéaire en énergie est considéré. Ce terme a été phénoménologiquement introduit pour ouvrir un gap dans le spectre magnétique pour tenir compte du pseudo-gap de spin, il permet un meilleur affinement des données. Étant un développement limité, cette formule est en principe valide uniquement à basse énergie et autour du vecteur d'onde AF. De fait, $Im\chi(\mathbf{Q}_{AF}, \omega)$ donné par l'Eq. 3.16 avec $q = 0$ correspond à l'Eq. 3.3 que nous avons utilisé pour affiner nos spectres dans l'état normal (Figs. 3.8, 3.9 ou 3.10). Cela décrit parfaitement les spectres de DIN, cf paragraphe 3.2.1. Cette forme, Eq. 3.16, a été largement appliquée pour analyser les données RMN[4, 148, 164]. Cela a conduit à un ensemble de paramètres d'affinement qui implique une dépendance thermique de la longueur de corrélation AF, $\xi(T)$, en total désaccord avec les résultats neutrons (cf Fig. 3.2). Afin de résoudre cette difficulté, ces auteurs[164, 165] ont alors supposé que les fluctuations étaient incommensurables comme dans LSCO, là encore une hypothèse qui n'est pas vérifiée par les données neutrons. En fait, le principal problème de la formule 3.16 est le couplage dans son dénominateur de la dépendance en q avec celle en énergie. On a donc un spectre de type ondes de spins amorties présentant un gap et une dispersion parabolique avec $c = \Delta\xi$. Afin d'illustrer ce problème, nous avons effectué une intégration bidimensionnelle en q de Eq. 3.16 : on obtient alors une susceptibilité locale[164] qui s'écrit,

$$\chi_{NAFL}^{2D}(\omega) = \int_{ZB} \chi_{NAFL}(\mathbf{q}, \omega) d^2q \simeq \frac{\chi_{AF}}{4(\xi/a)^2} \left[\frac{1}{2} + \frac{1}{\pi} \arctg \left[\omega_{sf} \frac{\omega^2 - \Delta^2}{\omega \Delta^2} \right] \right] \quad (3.17)$$

Ce résultat peut être comparée aux susceptibilités locales déduites des mesures de DIN (comme Fig. 3.11). Cette équation est cependant une approximation à haute énergie à cause de l'Eq. 3.16 où la dispersion parabolique est elle-même une approximation valide seulement aux vecteurs d'ondes suffisamment proches de q_{AF} . Au bord de zone, le spectre magnétique doit passer par un maximum où la susceptibilité locale va diverger. Dans les cuprates, ce régime a lieu uniquement à très haute énergie au moins $\hbar\omega > 150$ meV[61, 62]. Par conséquent, l'Eq. 3.16 peut être appliquée seulement en dessous de ~ 100 meV où la susceptibilité locale donnée par l'Eq. 3.17 est utilisable. Une analyse simple de l'Eq. 3.17 montre que cette fonction ne présente pas de maximum à énergie finie (le second terme entre crochets passe de $-1/2$ à $\omega = 0$ à $-1/2$ à l'infini), mais converge vers $\frac{\chi_{AF}}{4(\xi/a)^2}$ aux grandes énergies. Pour YBCO_{6,5}, cette susceptibilité locale saturerait vers $\sim 15 \mu_B^2$ avec $\xi/a = 3$ en bon accord avec l'ordre de grandeur déduit de la mesure (Fig. 3.11). Cependant,

l'Eq. 3.17 est une marche d'escalier où le paramètre Δ définit le point d'inflexion et ω_{sf} représente l'amortissement ou la largeur de la marche d'escalier. Cette situation provient du caractère bidimensionnel du spectre; d'ailleurs, lorsque on intègre les ondes de spins de l'état AF isolant, tel que Eq. 3.7, on obtient une constante $S(g\mu_B)^2 Z_\chi \sin(\pi z q_l)^2 / J$ [36]. Cette quantité est montrée en unités absolues sur la figure 3.11 en comparaison du spectre pour YBCO_{6.5}. On obtiendrait le même type de résultat à partir de l'Eq. 3.17 dans la limite où le gap et l'amortissement seraient tous les deux nuls.

L'absence de maximum de l'Eq. 3.17 rend problématique la description théorique de la susceptibilité de spins par le modèle du liquide antiferromagnétique. Comme nous l'avons suggéré, le problème provient du couplage entre les degrés de liberté d'énergie et de vecteur d'onde. Ainsi, cette dispersion des excitations magnétiques doit être occultée par un facteur de structure magnétique (multiplicatif à Eq. 3.16) pour rendre compte de la forme spectrale de la susceptibilité magnétique locale. Ce facteur de structure doit avoir une forme tel que Eq. 3.1 qui, comme nous l'avons déjà suggéré, doit être due à la topologie de la surface de Fermi. Une autre hypothèse pour résoudre ce dilemme pourrait être que l'état normal serait aussi caractérisé par un mode collectif équivalent au pic de résonance de la phase supraconductrice. Ce mode, qui serait bien sûr beaucoup plus amorti que le pic de résonance, ne serait défini que dans la phase de pseudo-gap dans le cas de figure où la susceptibilité locale présente un maximum. L'idée que le pic de résonance subsiste dans l'état normal[70] pourrait rejoindre ce type d'interprétation bien que cela trop simpliste comme nous l'avons discuté longuement plus haut (paragraphe 3.2.3). Finalement, remarquons que la susceptibilité de spin dans les modèles plus sophistiqués de liquide de Fermi[52, 169] se ramène à cette expression, Eq. 3.16. Ils sont ainsi confrontés à cette même difficulté.

3.5.3 "Stripes"

Dans le deuxième type d'approche une ségrégation de phase a lieu séparant des domaines AF de lignes de charges, effectuant un déphasage de π entre les différents domaines magnétiques. Dans l'image développée pour les cuprates, ces stripes sont dynamiques sans ordre de charges ou de spins. On a cependant des fluctuations magnétiques autour d'un vecteur d'onde associé à la périodicité des lignes de charges. Les fluctuations magnétiques se développent donc nécessairement autour d'un vecteur d'onde fondamentalement incommensurable, Q_δ décalé de δ à partir de Q_{AF} . Q_δ dépend que du dopage et donc reste le même à toutes les températures. De plus, en fonction de l'énergie, elles se développent en principe symétriquement de part et d'autres de Q_δ . C'est d'ailleurs ce que l'on mesure dans les oxydes de Nickel où la présence de lignes de charges ordonnées est largement acceptée. Dans ce cas, on observe une dynamique de spin très similaire à des ondes de spins comme dans un système magnétique classique incommensurable[135].

Ce type d'approche semble mieux décrire les fluctuations magnétiques de LSCO qui sont incommensurables à toutes les températures. Dans YBCO, les corrélations magnétiques sont franchement commensurables (en particulier dans l'état normal) et donc difficile à expliquer avec ce type de modèle. Néanmoins, il est assez largement supposé[159]

que le pic large observé dans YBCO puisse correspondre à la somme de quatre pics incommensurables décalés de Q_{AF} . Dans l'état supraconducteur, ces pics deviendraient plus fins et l'incommensurabilité serait mesurable comme nous l'avons décrit au chapitre précédent. Nous avons donc testé cette hypothèse en considérant un modèle de quatre Gaussiennes localisées à $Q_\delta = (\pi/a(1 \pm \delta), \pi/a) \equiv (\pi/a, \pi/a(1 \pm \delta))$. A la condition où chacun des pics ait une largeur suffisamment importante, il est clair que cette somme donne un pic large commensurable dont la largeur totale dépend principalement de la discommensuration. Il est ainsi difficile d'expliquer comment une même incommensurabilité dans l'état supraconducteur à 24 meV dans YBCO_{6,6}[72] et à 35 meV dans YBCO_{6,85}[73] donnerait une largeur distincte dans l'état normal[73, 71].

Par ailleurs, la susceptibilité de spins dans l'image des stripes fluctuatives est typiquement décrite par un modèle d'ondes de spins qui a, de fait, la même forme analytique que l'Eq. 3.16[159, 133] mais avec $\mathbf{Q} = \mathbf{Q}_\delta + \mathbf{q}$ (les paramètres ont bien sur un sens différent). A la lumière des résultats que nous avons obtenu dans La_{2-x}Sr_xNiO₄[135], on peut estimer à quelle énergie, les branches d'ondes de spins devraient se refermer à $(\pi/a, \pi/a)$ dans YBCO. Le croisement se situe dans les nickelates à 80 meV quand $x = 0.31$ alors qu'il été attendu à 107 meV dans l'hypothèse où le spectre aurait été celui du composé parent La₂NiO₄[135] décalé de $\pm\delta$. L'application de ce résultat pour YBCO donnerait un croisement vers 80 meV avec $\delta = 0.1a^*$ (correspondant à $0.6 \leq x \leq 0.9$ [64]) et dans l'hypothèse où la célérité des ondes de spins serait celle d'YBCO₆, $c=650$ meV.Å[172]. On peut, en plus, tenir compte de la renormalisation de c observée dans les composés dopés[62], on obtient alors une énergie caractéristique de ~ 55 meV. Dans les deux cas, ces énergies sont supérieures à la gamme d'énergie où le spectre présente un comportement intéressant dans YBCO.

Également, ce modèle contient la même difficulté que les approches de liquides de Fermi antiferromagnétiques en ce qui concerne la susceptibilité locale qui ne doit pas non plus présenter de maximum en contradiction avec les données neutrons dans la phase dite du pseudo-gap (cela est d'ailleurs aussi vraie pour LSCO). En conclusion, on voit nettement que le modèle de stripes présente dans le détail de nombreuses difficultés pour décrire correctement les spectres magnétiques mesurés par DIN dans YBCO.

Conclusion

Ces mesures de diffusion inélastique de neutrons montrent l'existence de fortes fluctuations magnétiques maximales autour du vecteur d'onde antiferromagnétique, $(\pi/a, \pi/a)$ dans les supraconducteurs à haute température critique. Tant dans l'état supraconducteur que dans l'état normal, ces corrélations magnétiques dynamiques ont un comportement riche et varié en fonction du dopage et de la température.

L'état supraconducteur est en particulier caractérisé par une excitation collective magnétique dont l'énergie est proportionnelle à la température critique supraconductrice. L'évolution de l'intensité de cette résonance est tout à fait remarquable car elle décroît en chauffant, en suivant un comportement type d'un paramètre d'ordre alors que son énergie ne se renormalise quasiment pas avec la température. Plusieurs faits expérimentaux ont été interprétés en relation avec cette excitation, lui en donnant un rôle prédominant. Ce mode "résonant" est de plus fortement diminué par les impuretés qui réduisent la température supraconductrice. Cette évolution suggère que cette excitation est directement responsable de l'appariement supraconducteur comme il a été récemment discuté.

Bien que l'évolution détaillée des fluctuations AF dans l'état normal soit cruciale pour déterminer si le mécanisme de la supraconductivité haute température critique est dû au magnétisme ou non[4], cette partie du spectre a souvent été négligée dans la littérature. L'état normal est caractérisé par un pic à $(\pi/a, \pi/a)$ large en vecteur d'onde et en énergie dont le lien avec le pic de résonance de l'état supraconducteur reste à éclaircir. On observe une redistribution importante du spectre à travers T_C , tant en fonction de l'énergie que du vecteur d'onde. Par comparaison avec la résonance, le maximum du pic de l'état normal ne présente pas de dépendance en dopage, étant localisé vers ~ 30 meV pour tous les dopages. On peut associer l'énergie du maximum de l'état normal au pseudo-gap présentant diverses propriétés physiques des cuprates. Pour le dopage optimal, le pic de l'état normal devient suramorti en chauffant. On peut spéculer que le même type de réponse suramortie a lieu en augmentant le dopage dans l'état surdopé, YBCO₇, où les fluctuations AF ne sont pas mesurées par DIN (probablement du fait de leurs faibles amplitudes).

Cette phénoménologie est clairement établie dans le système YBCO, BSCO et Tl2201 dans l'état supraconducteur mais seulement dans YBCO dans l'état normal. Malheureusement, cette phénoménologie des cuprates où le maximum de la température critique atteint ~ 90 K diffère de celle déduite dans le système LSCO. Cet aspect a assurément nuit à une compréhension détaillée des fluctuations de spins dans les cuprates dans la mesure où le système LSCO a été un des premiers à être élaboré et où la réponse DIN est aussi très riche. Dans LSCO, les fluctuations de spins de basse énergie, $\hbar\omega \sim 15\text{-}20$ meV, sont fondamentalement incommensurables à toutes températures sans présenter de pic de résonance évident dans l'état supraconducteur. Par conséquent, bien qu'une explication basée sur l'emboîtement de la surface de Fermi reste en principe toujours valide, l'interprétation des fluctuations magnétiques s'est fortement tournée vers les modèles de stripes où cette discommensuration signe l'existence d'une ségrégation de phases électronique périodique. Ensuite, ce type de phénoménologie a été recherché en vain dans les autres cuprates (en particulier YBCO). En fait, le maximum de la température supraconductrice ne dépasse pas à 38 K dans LSCO; par conséquent, il semble plus réaliste de supposer que les résultats DIN de ce système ne sont pas seulement caractéristiques de la supraconductivité à haute température critique mais aussi de sa forte réduction. Finalement, nous avons souligné que plusieurs aspects de la dynamique de spins dans ces deux familles de cuprates présentent de fortes similitudes (gap de spin, poids spectral, gamme d'énergie) qui tendent à montrer que le dopage optimal (maximum T_C) de LSCO pourrait correspondre à un état sous-dopé. En d'autres termes, les propriétés physiques de LSCO, et en particulier la dynamique de spins, seraient moins exemplaires qu'il est généralement admis.

En principe, les résultats de DIN pourraient permettre de raffiner les théories magnétiques basées sur l'analyse des mesures RMN qui a été généralement entreprise dans le cadre d'un modèle théorique assez simpliste. Il est utile de répéter que dans l'hypothèse d'un mécanisme basé sur le magnétisme, la partie réelle de la susceptibilité de spins apparaît directement dans l'interaction pour la supraconductivité. La diffusion inélastique de neutrons est la seule technique qui permet de déduire cette quantité sans *a priori*. La comparaison entre les données de la diffusion neutrons et de RMN montre un bon accord si l'on remet en cause le modèle classique de magnétisme itinérant[148, 49]. En particulier, il faut décorrélérer l'amplitude à $(\pi/a, \pi/a)$ des corrélations magnétiques et leurs longueurs de corrélations (largeur en vecteur d'onde). Ces dernières n'ont pas d'évolution thermique et peuvent se comprendre par la topologie particulière de la surface de Fermi. Dans le cadre de ces fluctuations antiferromagnétiques, on peut décrire la forme en dôme de la température supraconductrice en fonction du dopage : dans l'état sous-dopé T_C est contrôlée par la largeur en vecteur d'onde alors que dans l'état sur-dopé, l'amplitude des corrélations à $(\pi/, \pi/)$ pourrait être la cause de la réduction de T_C .

Perspectives

A la suite de ces travaux, les perspectives sont nombreuses. A court terme, plusieurs questions subsistent dans le cadre des supraconducteurs à haute température critique. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ avec $0 \leq x \leq 1$ (YBCO) est de loin le système le plus largement étudié par

diffusion inélastique de neutrons du fait que l'on peut obtenir de gros monocristaux, une condition *sine qua non* pour réussir ces expériences. Les autres systèmes, que nous avons étudié, ne permettent malheureusement pas une analyse détaillée des corrélations magnétiques, en particulier dans l'état normal. Les composés à base de Bi ou de Tl nécessitent des assemblages de monocristaux qui pour l'instant sont synonymes de bruit de fond trop important. Par ailleurs, les résultats dans $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO) (l'autre cuprate abondamment étudié par diffusion inélastique de neutrons) diffèrent significativement avec ceux d'YBCO. Cela, semble-t-il, indique que LSCO correspond à une phénoménologie différente (la valeur réduite à 38 K de T_C^{max} dans ce système en témoigne). YBCO reste donc l'archétype où les fluctuations magnétiques sont le mieux connues. Malheureusement, plusieurs limites apparaissent dans ce système, principalement du fait que l'on ne contrôle pas précisément le nombre exact de porteurs de charges par plan CuO_2 , qui n'est pas simplement proportionnel à la concentration en oxygène. Ainsi, différentes parties du diagramme de phase des cuprates ont été moins étudiées par diffusion de neutrons : tout d'abord, la phase dite sur-dopée où la transition supraconductrice diminue quand on augmente la concentration de porteurs; Ensuite, la transition métal-isolant à faible dopage. On peut en fait dépasser ces difficultés en substituant l'yttrium (Y^{3+}) par le calcium (Ca^{2+}) dans YBCO, qui réalise un dopage en trous des plans CuO_2 qui s'additionne au dopage induit par l'oxygène. La thèse de Stephane Pailhes vise à répondre à ces questions.

Ainsi $\text{Y}_{1-y}\text{Ca}_y\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ permet de couvrir le régime sur-dopé, un taux de calcium $y = 0.2$ permet en effet de réduire T_c de 93 K à ≈ 50 K. Cette phase est généralement considérée comme la plus proche d'un métal ordinaire. On s'attend donc à de faibles corrélations magnétiques. L'existence ou non de la résonance dans ce régime fortement sur-dopé sera un résultat important pour clarifier le rôle des corrélations magnétiques dans la mécanique de la supraconductivité. Cette étude peut être menée conjointement avec des mesures dans le système à base de Bi que l'on peut aussi sur-doper.

$\text{Y}_{1-y}\text{Ca}_y\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ permet aussi un contrôle précis du nombre de porteurs de charge à faible dopage. Ceci devrait permettre de quantifier l'effet d'une faible quantité de trous sur les propriétés magnétiques et physiques du système. La perte de l'ordre antiferromagnétique de Néel et la transition métal-isolant sont en effet partiellement masquées dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ par une transition structurale liée à la mise en ordre des oxygènes dans les chaînes. Le dopage au calcium garde constant le taux d'oxygène, et le système reste quadratique. Ceci devrait permettre une étude fine de la séquence ordre antiferromagnétique, phase intermédiaire de type verre de spins et transition isolant-métal, en comparant aux résultats obtenus par des mesures de relaxation de muons qui indiquent des fluctuations de très basse énergie.

De manière générale, les caractéristiques des corrélations magnétiques dans l'état normal sont moins bien connues, en particulier pour le dopage optimal, *i.e.* YBCO_7 . Typiquement, les fluctuations sont étendues en vecteur d'onde et en énergie et sont ainsi difficiles à extraire du bruit de fond. Un effort doit être consenti dans ce sens dans les composés à base de Bi. On peut aussi espérer que des mesures de neutrons polarisés systématiques pourront aider pour séparer le magnétisme des phonons. Par ailleurs, la mise en unités absolues (μ_B^2/eV) des corrélations magnétiques doit aussi être systématisée pour

quantifier le rôle des corrélations magnétiques pour le mécanisme de la supraconductivité.

Un autre domaine important à prospecter est l'observation d'ordre magnétique exotique, soit associé à des moments orbitaux, soit relié à un ordre de charges de type "stripes", ou encore un ordre plus classique (par exemple de type onde de densité de spins) dû à la proximité d'instabilités magnétiques. Plusieurs propositions dans les cuprates ont été faites dans ce sens pour expliquer les propriétés anormales des cuprates, et en particulier la phase du pseudo-gap. Malheureusement, les différentes tentatives d'observation d'ordre dû à des boucles de courants induisant un moment magnétique orbital a échoué pour l'instant. La mise en évidence de faibles moments magnétiques est souvent difficile. C'est particulièrement le cas lorsque l'ordre magnétique ne brise pas la symétrie de translation du cristal, d'autant plus que le signal magnétique peut ne pas être corrélé à longue distance ou tri-dimensionnellement.

Cependant, l'intérêt de ce type d'étude est renforcé par des mesures récentes qui ont mis en évidence une phase magnétique coexistant avec la supraconductivité dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.5}$. En fait, cette observation souligne l'étroite relation de l'antiferromagnétisme et de la supraconductivité dans les cuprates. Ce problème reste encore assez inexploré, principalement à cause du contrôle de la qualité des échantillons. Il est souvent difficile de démêler les propriétés intrinsèques des effets induits par des impuretés. Une manière d'éclaircir ce débat est d'induire ces effets par substitution contrôlée du cuivre par un atome magnétique comme le cobalt. De fait, il est ainsi possible d'induire un ordre antiferromagnétique dans un supraconducteur avec une température critique de 90 K.

On peut aussi obtenir une réponse magnétique statique en appliquant un champ magnétique. C'est le cas du système LSCO mais avec une réponse à un vecteur d'onde incommensurable. Néanmoins, la question du particularisme de LSCO en ce qui concerne cette propriété se pose encore. De fait, la stabilisation des pics magnétiques incommensurables dans LSCO soit par substitution du La par le Nd, soit en fonction du dopage, a été interprétée par un ordre de charges "stripes" sous-jacent. Le système présenterait une séparation de phase entre des domaines antiferromagnétiques par des lignes de charges. La nature de cette phase reste encore assez mystérieuse dans la mesure où les pics associés à l'ordre de charges via des déplacements atomiques restent toujours très difficiles à mesurer. Cependant, ce type d'approche connaissant une popularité croissante, il serait utile d'en préciser les caractéristiques. Également, il est important de savoir si ce type d'approche peut s'appliquer ou non à l'ensemble des cuprates. Nos mesures dans YBCO conduisent à une réponse négative bien qu'une partie non-négligeable de la communauté préfère suivre cette voie. Cet ordre de "stripes" dépasse le cadre des cuprates : il est notamment plus clairement observé dans les nickelates. Il est ainsi intéressant d'étudier la dynamique de spins dans ces oxydes de nickel isostructuraux aux oxydes de cuivre pour mettre en évidence les différences et les points communs avec les cuprates.

Enfin, nos mesures dans les supraconducteurs à haute température critique mettent en relief la richesse de la réponse magnétique des supraconducteurs non-conventionnels. Ainsi, étant la seule technique capable de mesurer la susceptibilité magnétique sur l'ensemble de l'espace réciproque et sur une large gamme d'énergie, la diffusion inélastique de neutrons apporte des informations essentielles sur la symétrie du paramètre d'ordre supraconduc-

teur, et par conséquent, sur le mécanisme responsable de l'établissement de la supraconductivité. Nous envisageons donc d'étudier d'autres supraconducteurs non-conventionnels, par exemple le système Sr_2RuO_4 qui présente un état triplet avec une symétrie orbitale de type p . Nous avons mis en évidence des fluctuations magnétiques incommensurables dans l'état normal de ce système. Il serait maintenant essentiel de déterminer un éventuel changement dans la phase supraconductrice. D'autres systèmes seraient susceptibles de présenter des réponses magnétiques nouvelles comme les supraconducteurs unidimensionnels. Ces études n'ont pour l'instant pas été effectuées du fait de la taille limitée des monocristaux.

Bibliographie

- [1] J.G. Bednorz, and K. A. Müller, Z. Phys B, **64** 189 (1986).
- [2] J. Bardeen, L.N. Cooper, and J.R. Schrieffer, Phys. Rev., **B 108** , 1175 (1957).
- [3] A. Lanzara *et al.*, Nature, **412**, 510 (2001).
- [4] D. Pines, in [47], p 111; Z. Phys. B, **103**, 129 (1997).
- [5] See e.g. D. Scalapino, Phys. Rep. **250** 329 (1995).
- [6] B. Batlogg and C.M. Varma, Physics World, Feb. 2000, p 33.
- [7] J. Orenstein and A.J. Millis, Science, **288**, 468 (2000).
- [8] C. Berthier, M.H. Julien, M. Horvatic, and Y. Berthier, Journal de Physique I (France), **6**, 2205 (1997).
- [9] T. Valla, *et al.*, Science, **285**, 2110 (1999).
- [10] T. Ito *et al.*, Phys. Rev. Lett., **70**, 3995 (1993).
- [11] V.V. Moschalkov *et al.*, in [4], p 91.
- [12] C.M. Varma *et al.*, Phys. Rev. Lett., **63**, 1996 (1989).
- [13] G.S. Boebinger *et al.*, Phys. Rev. Lett., **77**, 2065 (1996).
- [14] M.R. Norman *et al.*, Nature, **392**, 157 (1998).
- [15] H. Ding *et al.*, Nature, **382**, 51 (1996).
- [16] J.-C. Campuzano *et al.*, in [4], p 229.
- [17] H. Ding *et al.*, Phys. Rev. Lett., **78**, 2628 (1997).
- [18] J.W. Loram *et al.*, Physica C, **282-287**, 1405 (1997).
- [19] C.C. Homes *et al.*, Phys. Rev. Lett., **71**, 1645 (1993).

- [20] R. Hackl, in [4], p 249.
- [21] R. Nemeschek *et al.*, Phys. Rev. Lett., **78**, 4837 (1997).
- [22] Ch. Renner *et al.*, Phys. Rev. Lett., **80**, 149 (1998).
- [23] H. Alloul *et al.*, Phys. Rev. Lett., **63**, 1700 (1989).
- [24] M. Takigawa *et al.*, Phys. Rev B., **43**, 247 (1991).
- [25] J. Rossat-Mignod *et al.*, Physica B, **163**,(1990),4; Physica B, **169**, 58, (1991).
- [26] J.L. Tallon *et al.*, Phys. Stat. Sol., **215**, 531, (1999) (cond-mat/9911157); preprint, (cond-mat/0005063).
- [27] J.M. Tranquada *et al.*, Nature, **375**, 561 (1995); in [69], p 225.
- [28] J. Zaanen, Science, **286**, 251 (1999).
V.J. Emery, *et al.*, Phys. Rev B, **56**, 7120 (1997).
- [29] E.W. Carlson, V.J. Emery, S. Kivelson, and D. Orgad, (cond-mat/0206217).
- [30] Z.X. Shen *et al.*, Phys. Rev. Lett., **70**, 1553 (1993).
- [31] C.C. Tsuei *et al.*, Phys. Rev. Lett., **73**, 593 (1994).
- [32] J.R. Schrieffer, *Theory of Superconductivity*, (Frontiers in Physics (20), Addison Wesley), (1988).
- [33] J. Mesot *et al.*, Phys. Rev. Lett., **83**, 840 (1999).
- [34] G. Deutscher, Nature **397**, 410 (1999).
- [35] A. Auerbach, *Interacting Electrons and Quantum Magnetism*, (Springer-Verlag, New York, 1994).
- [36] P. Bourges, *et al.*, Phys. Rev. Lett., **79** 4906 (1997) (cond-mat/9608060).
- [37] C. Varma, Phys. Rev. Lett., **83**, 3538 (1999).
- [38] S. Chakravarty, R.B. Laughlin, D.K. Morr, and C. Nayak, Phys. Rev B., **63** 094503 (2001) (cond-mat/0005443).
- [39] Ar. Abanov, A.V. Chubukov, Phys. Rev. Lett., **83** , 1652 (1999).
- [40] F. Onufrieva *et al.*, Phys. Rev. Lett., **82**, 2370 (1999); **82**, 3136 (1999);
- [41] P.W. Anderson, Science, **235**, 1196 (1987).

- [42] N. Nagaosa, P.A. Lee, Phys. Rev. Lett., **64**, 2450 (1990); N. Nagaosa, J. phys. Chem. Solids, **53**, 1493 (1992); W.G. Wen, and P.A. Lee, Phys. Rev. Lett., **76**, 503 (1996).
- [43] T. Tanamoto, K. Kuboki, H. Fukuyama, J. phys. Soc. Jpn., **60**, 3072 (1991).
- [44] F. Onufrieva, and J. Rossat-Mignot, Phys. Rev. B, **52**, 7572 (1995).
- [45] D. J. Scalapino, and S.R. White, Foundations of Physics, **31** 27 (2001), cond-mat/0007515).
- [46] M.R. Norman, Phys. Rev. B, **61**, 14751 (2000) (cond-mat/9912203).
- [47] J. Bouvier, et J. bok in *The gap Symmetry and Fluctuations in High Temperature Superconductors* Edited by J. Bok, *et al.*, (Plenum Press, 1998) 37.
- [48] A.A. Abrikosov, preprint (cond-mat/9912394); Phys. Rev. B, **64**, 104521 (2002).
- [49] T. Moriya, Y. Takahashi, and K. Ueda, J. Phys. Soc. Jpn. **59** 2905 (1990); Physica C, **185-189** 114 (1991).
- [50] R.M. White, Quantum Theory of Magnetism, *in* springer series to Solid-state Science, **32**, Springer Verlag Berlin (1983).
- [51] T. Moriya, *in Spin Fluctuations in Itinerant Electron Magnetism*, (Springer-Verlag, New York, 1985)] springer series to Solid-state Science, **32**, Springer Verlag Berlin (1983).
- [52] F. Onufrieva, and P. Pfeuty, Phys. Rev. B, **61**, 799 (2000).
- [53] N. Furukawa, T.M. Rice, and M. Salmhofer, Phys. Rev. Lett., **81**, 3195 (1998). (see also, C. Honerkamp *et al.*, cond-mat/9912358).
- [54] Q. Chen, I. Kosztin, B. Jankó, and K. Levin, preprint (cond-mat/9805032); B. Janko, J. Maly, and K. Levin, Phys. Rev B., **56**, R11407 (1997).
- [55] J. Friedel, J. Phys.: Condens. Matter, **1** 7757 (1989).
- [56] D. J. Scalapino, J.E. Loh, and J.E. Hirsch, Phys. Rev B., **34**, 8190 (1986).
- [57] R. Zeyher and M.L. Kulić, Phys. Rev B., **53**, 2850 (1996).
- [58] S.W. Lovesey, *Theory of Neutron Scattering from Condensed Matter*, Vol 1 & 2, (Clarendon, Oxford, 1984).
- [59] Y.A. Izyumov, and N.A. Chernoplekov, *Neutron spectroscopy*, (Kluwer Academic Publishers, Amsterdam, 1992).
- [60] Y. Sidis, *et al*, Phys. Rev. Lett., **83**, 3320-3323 (1999) (cond-mat/9904348).

- [61] S.M. Hayden *et al.*, Phys. Rev. Lett. **76**, 1344 (1996).
- [62] P. Bourges, *et al.*, Phys. Rev. B, **56**, (1997) R11439 (cond-mat/9604073).
- [63] H.F. Fong *et al.*, Phys. Rev B., **61**, 14773 (2000) (cond-mat/9910041).
- [64] P. Dai *et al.*, Phys. Rev B., **63**, 054525 (2001) (cond-mat/0011019).
- [65] M.A. Kastner, R.J. Birgeneau, G. Shirane, and Y. Endoh, Rev. Mod. Phys. **70**, 897 (1998)
- [66] G. Aeppli, *et al.*, Science **278**, 1432 (1997).
- [67] J. Rossat-Mignod, *et al.* : in *Selected Topics in Superconductivity* Frontiers in Solid State Sciences Vol 1., eds L.C. Gupta and M.S. Multani (World Scientific 1993), 265
- [68] P. Bourges, in [4], p 349 (cond-mat/9901333).
- [69] L.P. Regnault, *et al.*, in *Neutron Scattering in Layered Copper-Oxide Superconductors*, Edited by A. Furrer, 85 (Kluwer, Amsterdam, 1998).
- [70] P. Dai *et al.*, Science **284**, 1344 (1999).
- [71] A.V. Balatsky and P. Bourges, Phys. Rev. Lett., **82**, 5337 (1999).
- [72] H.A. Mook *et al.*, Nature, **395**, 580 (1998).
- [73] P. Bourges *et al.*, Science, **288**, 1234 (2000).
- [74] Ph. Bourges, B. Keimer, L.P. Regnault and Y. Sidis, J. Of Superconductivity: Incorporating Novel Magnetism, **13**, 735,(2000) (cond-mat/0006085).
- [75] J. Rossat-Mignod *et al.*, Physica C, **185-189**, 86 (1991).
- [76] H.A. Mook, *et al.*, Phys. Rev. Lett., **70**, 3490 (1993).
- [77] H.F. Fong, *et al.*, Phys. Rev. B. **54**, 6708 (1996).
- [78] H. F. Fong, *et al.*, Phys. Rev. Lett., **75**, 316 (1995).
- [79] H.F. Fong *et al.*, Nature **398**, 588 (1999).
- [80] H.F. He *et al.*, Phys. Rev. Lett., **86** 1610 (2001) (cond-mat/0002013).
- [81] J.C. Campuzano *et al.*, Phys. Rev. Lett., **83** , 3709 (1999).
- [82] J.P. Carbotte, *et al.*, Nature, **401** , 304 (1999).
- [83] D. Munzar *et al.*, Physica C, **312**, 121 (1999).

- [84] P. Bourges, L.P. Regnault, Y. Sidis, and C. Vettier, *Phys. Rev. B*, **53**, 876, (1996).
- [85] Voir e.g. K.M. Lang *et al.*, *Nature*, **415**, 412 (2002).
- [86] H.F. He, P. Bourges, Y. Sidis, C. Ulrich L.P. Regnault, S. Pailhès, N.S. Berzigiarova, N.N. Kolesnikov, and B. Keimer, *Science*, **295**, 1045 (2002) (cond-mat/0201252).
- [87] P. Bourges, *et al.*, *Physica B*, **215**, 30, (1995).
- [88] P. Dai, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 5425, (1996).
- [89] P. Bourges, *et al.*, *Europhysics Lett.* **38**, 313 (1997).
- [90] H.F. Fong, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 713 (1997).
- [91] D. Scalapino and S.R. White, *Phys. Rev. B.*, **58** 8222, (1998).
- [92] E. Demler and S.C. Zhang, *Nature*, **396** 733 (1998).
- [93] J.W. Loram, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1740 (1993); *Physica C*, **282-287** 1405 (1997).
- [94] A. Abrikosov, *Fundamental of the Theory of Metals* (North-Holland, Amsterdam, 1989)
- [95] V. A. Mahajan *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 3100 (1994).
- [96] P. Mendels *et al.*, *Europhysics Lett.* **46**, 678 (1999).
- [97] J. Bobroff *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 2117 (1997).
- [98] H.F. Fong *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1939 (1999).
- [99] Y. Sidis, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **86** 4100 (2001) (cond-mat/0101095)
- [100] J.A. Hodges, Y. Sidis, P. Bourges, *et al.*, *Phys. Rev. B* **66**, 020501 (2002) (cond-mat/0107218).
- [101] J. Bobroff *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **89** 157002 (2002) (cond-mat/0203225).
- [102] Y. Kitaoka *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn* **63**, 2052 (1994).
- [103] Y. Sidis, *et al.*, in *Open Problems in Strongly Correlated Electron Systems*, Eds. J. Bonča *et al.*, (Kluwer Academic Publishers, Dordrecht/Boston/London, 2001), 59 (cond-mat/0006265).
- [104] Y. Sidis, Thèse de l'université d'Orsay, Paris XI, (1995).
- [105] Y. Sidis, *et al.*, *Phys. Rev. B*, **53**, 6811 (1996).

- [106] M. Arai, T. Nishijima, Y. Endoh, T. Egami, S. Tajima, K. Tomimoto, Y. Shiohara, M. Takahashi, A. Garret, and S.M. Bennington, *Phys. Rev. Lett.* **83** 608 (1999).
- [107] C. Ulrich, H. Ronnøy, L.P. Regnault, P. Bourges, Y. Sidis, M. Ohl, and B. Keimer, manuscript en préparation.
- [108] H. Mook, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 097004 (2002).
- [109] J.M. Tranquada, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **64**, 800, (1990).
- [110] K. Yamada, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1626, (1995).
- [111] R. Joynt, and T.M. Rice, *Phys. Rev. B*, **38**, 2345, (1988).
- [112] S.V. Maleyev, *J. Phys. I. France*, **2**, 181 (1992); S. Charfi-Kaddour *et al.*, *J. Phys. I. France*, **2**, 1853 (1992).
- [113] Y. Ohashi, and H. Shiba, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **62**, 2783 (1993); P. Monthoux, and D.J. Scalapino, *Phys. Rev. Lett.*, **72**, 1874 (1994).
- [114] F. Onufrieva, *Physica C*, **251**, 348, (1995).
- [115] J. P. Lu, *Phys. Rev. Lett.*, **68**, 125 (1992); N. Bulut, and D.J. Scalapino, *Phys. Rev. B*, **53**, 5149 (1996).
- [116] M. Lavagna, and G. Stemann, *Phys. Rev. B*, **49**, 4235 (1994); G. Blumberg, B. P. Stojkovic, and M.V. Klein, *Phys. Rev. B*, **52**, R15741 (1995).
- [117] D.Z. Liu, Y. Zha, and K. Levin, *Phys. Rev. Lett.*, **75**, 4130 (1995).
- [118] I.I. Mazin, and V. M. Yakovenko, *Phys. Rev. Lett.*, **75**, 4134 (1995).
- [119] A.J. Millis, and H. Monien, *Phys. Rev. B*, **54**, 16172, (1996).
- [120] L. Yin, S. Chakravarty and P.W. Anderson, *Phys. Rev. Lett.*, **78**, 3559 (1997).
- [121] F. Onufrieva and P. Pfeuty, *Phys. Rev. B* **65** 054515 (2002) (cond-mat/9903097).
- [122] J. Brinckmann and P. Lee, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 2915 (1999).
- [123] K.-K. Voo and W.C. Wu, preprint (cond-mat/9911321).
- [124] F. Onufrieva, and J. Rossat-Mignod, *Phys. Rev. B*, **52**, 7572 (1995). F. Onufrieva, *Physica B*, **215**, 41, (1995).
- [125] H. Ding *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **78**, 2628 (1997).
- [126] Ph. Bourges, H. Casalta, L.P. Regnault, J. Bossy, P. Burlet, C. Vettier, E. Beaugnon, P. Gautier-Picard and R. Tournier, *Physica B*, **234-236**, 830-831, (1997).

- [127] J.F. Zasadzinski, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **87**, 067005 (2001) (cond-mat/0102475).
- [128] Y. Gallais, A. Sacuto, P. Bourges, Y. Sidis, A. Forget, and D. Colson, Phys. Rev. Lett. **88**, 177401 (2002) (cond-mat/0108015).
- [129] S.C. Zhang, Science, **275**, 1089, (1997).
- [130] E. Demler, and S.C. Zhang, Phys. Rev. Lett., **75**, 4126 (1995).
- [131] O. Tchernyshyov, M. R. Norman, and A.V. Chubukov, Phys. Rev. B, **63**, 144507 (2002) (cond-mat/0009072).
- [132] D.J. Morr, and D. Pines, Phys. Rev. Lett., **81**, 1086 (1998).
- [133] N. Hasselmann *et al.*, Phys. Rev. Lett., **82**, 2135 (1999).
- [134] C.D. Batista, G. Ortiz, and A.V. Balatsky, Phys. Rev. B., **64**, 172508 (2001) (cond-mat/0008345).
- [135] P. Bourges, Y. Sidis, M. Braden, K. Nakajima, and J.M. Tranquada preprint (cond-mat/0203187).
- [136] Z.X. Shen and J.R. Schrieffer, Phys. Rev. Lett., **78**, 1771 (1997).
- [137] M.R. Norman and H. Ding, Phys. Rev., **B 57**, R11089 (1998).
- [138] P. Johnson *et al.*, Phys. Rev. Lett., **87**, 177007 (2001).
- [139] M. Eschrig and M. Norman, Phys. Rev. Lett., **85**, 3261 (2000).
- [140] H.-Y. Kee, S.A. Kivelson and G. Aeppli, Phys. Rev. Lett., **88**, 257002 (2002)
- [141] Ar. Abanov, A.V. Chubukov, M. Eschrig, M. Norman, and J. Schmalian Phys. Rev. Lett., **89**, 177002 (2002) (cond-mat/0112126).
- [142] M. Jourdan *et al.*, Nature **398**, 47 (1999).
- [143] N.K. Sato, *et al.*, Nature **410**, 340 (2001).
- [144] N. Metoki *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 5417 (1998).
- [145] N. Bernhoeft *et al.*, Phys. Rev. Lett. **81**, 4244 (1998).
- [146] D. Manske, I. Eremin, and K.H. Bennemann, *Phys. Rev. B* **63**, 054517 (2001) (cond-mat/0007083).
- [147] P. Dai, H.A. Mook, and F. Dogan, Phys. Rev. Lett. **80**, 1738, (1998) (cond-mat/9707112).

- [148] A.J. Millis, H. Monien, and D. Pines, *Phys. Rev.*, **B 42**, 67 (1990).
- [149] P. Bourges, P.M. Gehring, B. Hennion, A.H. Moudden, J.M. Tranquada, G. Shirane, S. Shimoto and M. Sato : *Phys. Rev. B*, **43**, 8690, (1991).
- [150] J.M. Tranquada, P.M. Gehring, G. Shirane, S. Shimoto and M. Sato, *Phys. Rev. B*, **46**, 5561 (1992).
- [151] H. Chou, J.M. Tranquada, G. Shirane, S. Shimoto and M. Sato, *Phys. Rev. B*, **43**, 5554 (1991).
- [152] L.P. Regnault, P. Bourges, P. Burlet, J.Y. Henry, J. Rossat-Mignod, Y. Sidis, and C. Vettier, *Physica C*, **235-240**, 59, (1994); *Physica B*, **213&214**, 48, (1995).
- [153] J. Rossat-Mignod, P. Bourges, F. Onufrieva, L.P. Regnault, P. Burlet, C. Vettier, and J.Y. Henry, *Physica B*, **199&200**, 281, (1994).
- [154] K. Yamada *et al.*, *Phys. Rev.* **B 57**, 6165, (1998).
- [155] K. Yamada, communication privée.
- [156] Ar. Abanov, A.V. Chubukov, and J. Schmalian, *Phys. Rev. B*, **63**, 0510 (2001) (cond-mat/0005163); (cond-mat/0010403).
- [157] D. Reznik, P. Bourges, H.F. Fong, L.P. Regnault, J. Bossy, C. Vettier, D.L. Milius, I.A. Aksay, and B. Keimer, *Phys. Rev. B* **53**, R14741 (1996).
- [158] S.M. Hayden, G. Aeppli, T.G. Perring, H.A. Mook, and F. Dogan, *Phys. Rev. B* **54**, R6905 (1996).
- [159] J.M. Tranquada *et al.*, *Physica C*, **282-287**, 166 (1997) (cond-mat/9702117).
- [160] L.P. Regnault, I. Zaliznyak, J.P. Renard, and C. Vettier, *Phys. Rev. B* **50**, 9174 (1994).
- [161] A. Goto, H. Yasuoka, and Y. Ueda, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **65**, 3043, (1996); P. Carreta, preprint; T. Auler *et al.*, *Physica C*. **235-240** 1677 (1994).
- [162] E. Manousakis, *Rev. Mod. Phys.* **63**, 1 (1991).
- [163] Je tiens à remercier Claude Berthier pour son aide précieuse qu'il m'a apporté pour le calcul en absolu des mesures RMN.
- [164] V. Barzykin, and D. Pines, *Phys. Rev.*, **B 52**, 13585 (1995).
- [165] D.K. Morr, J. Schmalian, and D. Pines, preprint, (cond-mat/0002164).
- [166] J.A. Gillet, Thèse de l'université de Joseph Fourier, Grenoble I, (1994).

- [167] R.E. Walstedt, B.S. Shastry, and S-W. Cheong, Phys. Rev. Lett., **72** 3610 (1994).
- [168] See e.g. C. Varma, Phys. Rev. Lett., **77** 3431 (1996).
- [169] Ar. Abanov, A.V. Chubukov, Phys. Rev. B, **61**, 9241 (2000).
- [170] A.A. Abrikosov, preprint submitted to Phys. Rev. B, (2000).
- [171] M. Braden, Y. Sidis, P. Bourges, P. Pfeuty, J. Kulda, Z. Mao, and Y. Maeno, Phys. Rev. B, (2002) (cond-mat/0206304).
- [172] S. Shamoto, M. Sato, J.M. Tranquada, B. Sternlieb, and G. Shirane, Phys. Rev. B, **48**, 13817 (1993).