

Spectroscopie infrarouge de

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

3.1 Réponse optique des cuprates	51
3.1.1 Conductivité optique	52
3.1.1.1 Modèle à deux composantes : Drude + MIB	52
3.1.1.2 Modèle à une composante : Drude généralisé	54
3.1.2 Evolution de la réponse optique en fonction du dopage et de la température	55
3.1.2.1 Phase supraconductrice	55
3.1.2.2 Phase de pseudo-gap	57
3.1.2.3 Stripes	58
3.2 Spectroscopie de réflexion	59
3.2.1 Interaction lumière-matière.	59
3.2.1.1 Equations de Maxwell.....	60
3.2.1.2 Relations dans un milieu linéaire, isotrope et homogène.....	60
3.2.1.3 Propagation des ondes électromagnétiques.....	60
3.2.2 Grandeurs optiques	62
3.2.3 Phonons actifs en infrarouge	63
3.2.4 Transformation de Kramers-Krönig.....	63
3.3 Modèle de la fonction diélectrique	64
3.3.1 La fonction diélectrique.....	64
3.3.2 Modèle de Drude - Susceptibilité plasma.....	66
3.3.3 Modèle de Lorentz – Susceptibilité ionique	67
3.3.4 Fonction diélectrique complète	69
3.4 Résultats expérimentaux	69
3.4.1 Echantillons de $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$	70
3.4.1.1 Croissance cristalline	70
3.4.1.2 Caractérisations	70
3.4.2 Spectres de réflectivité	72
3.4.3 Ajustement du spectre de réflectivité.....	76
3.4.3.1 Etude suivant ab	77
3.4.3.2 Evolution suivant	82
3.4.4 Conductivité optique	86
3.4.4.1 Evolution de la conductivité des plans ab	86
3.4.4.2 Evolution de la conductivité suivant l'axe c	88
3.4.5 Phase supraconductrice	90
3.4.6 Phase de pseudo-gap	91
3.4.7 Stripes	100
3.5 Conclusion	101

3. Spectroscopie infrarouge de $La_{2-x}Sr_xCuO_4$

Dans ce travail, nous nous sommes intéressés à l'évolution en température des spectres optiques de $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ avec $x = 0,08$ et $x = 0,15$. Nous avons examiné les deux directions cristallographiques : plans *ab* conducteurs et axe *c* semi-conducteur. L'étude des deux compositions est intéressante car l'échantillon $x = 0,08$ se situe dans la région sous-dopée du diagramme de phase alors que l'échantillon $x = 0,15$ correspond à l'optimum dopé (température de transition supraconductrice maximale du système $La_{2-x}Sr_xCuO_4$). La présence de la phase du pseudo-gap devrait être observable dans l'échantillon $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$. Pour l'échantillon $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$, l'existence de cette phase est discutée et plusieurs scénarii sont proposés suivant : (i) un modèle RVB, la température d'ouverture du pseudo-gap se confondrait dans la partie sur-dopée (Cf. figure 1.18) et (ii) un scénario QCP où la phase de pseudo-gap n'existerait pas pour la composition optimale (Cf. figure 1.16).

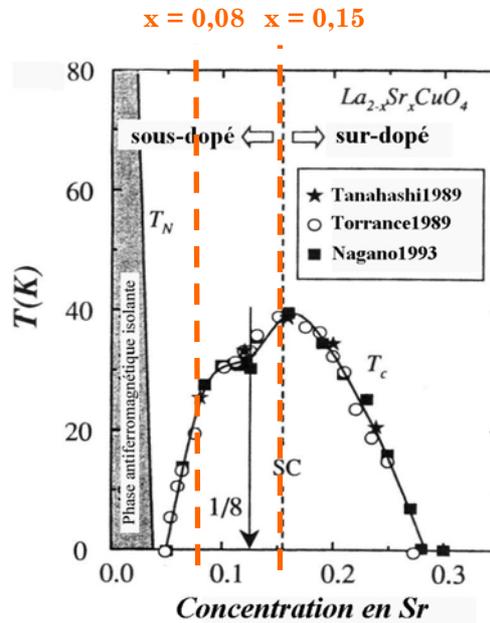


Figure 3.1 : Les deux échantillons ici étudiés sont $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$ (sous-dopé) et $La_{1,82}Sr_{0,15}CuO_4$ (optimalement dopé).

Dans le cadre de cette thèse, nous nous proposons de vérifier la présence du pseudo-gap pour ces deux échantillons à partir de mesures de spectroscopie infrarouge. Les mesures de réflectivité effectuées permettent de remonter à la fonction réponse du système, une caractéristique des propriétés microscopiques. Dans ce chapitre, après avoir présenté les réponses optiques des plans conducteurs (**ab**) et de l'axe isolant **c** des cuprates dans les différences du diagramme (T, p), nous présenterons des modèles qui décrivent les spectres optiques. Nous présenterons également quelques concepts physiques de la spectroscopie infrarouge ainsi que les différentes grandeurs optiques associées (fonction diélectrique, conductivité optique) et leur détermination (transformation de Kramers-Krönig).

3.1 Réponse optique des cuprates

3.1.1 Conductivité optique

- Plans ab

La figure 3.2 montre la réflectivité et la conductivité optique du cuprate $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO) en fonction du dopage en strontium.

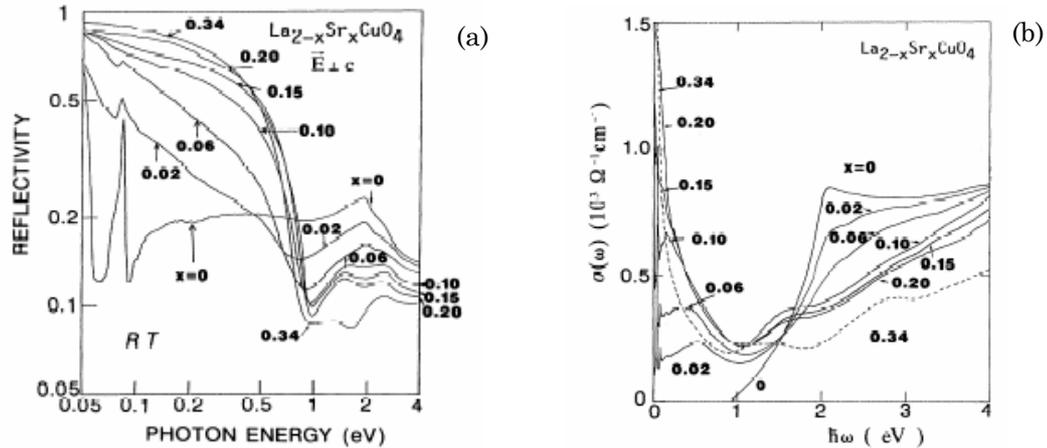


Figure 3.2 : Réflectivité (a) et conductivité optique (b) de 0 à 4 eV à 300 K. Les dopages sont indiqués sur la courbe [Uchida1991].

A dopage nul et faible dopage, la conductivité est quasi-nulle¹ jusqu'à environ 1,5 eV ($\sim 12000 \text{ cm}^{-1}$) qui correspond à l'énergie du gap du transfert de charge entre les orbitales 2p de l'oxygène et 3d du cuivre (§ 1.4). Lorsque l'on dope les cuprates, il y a transfert du poids spectral² de cette bande de transfert de charge vers un pic de conduction centré à fréquence nulle. Cela se traduit au niveau de la conductivité optique par un pic centré à fréquence nulle qui décroît en $\omega^{-\alpha}$ jusqu'à 0,5 eV (voir figure 3.3a). Ce comportement est anormal par rapport à un composé métallique simple où les quasi-particules³ libres du système forment un pic de Drude centré à fréquence nulle qui décroît en ω^{-2} . Pour expliquer ce phénomène, deux types de descriptions sont proposés : un modèle à deux composantes : Drude + MIB et un modèle à une seule composante : Drude généralisé.

¹ Sur ce graphe, la conductivité optique nulle à dopage nul peut s'expliquer par une mauvaise utilisation de la transformation de Kramers-Krönig (Cf § 3.2.4).

² Le poids spectral optique est l'aire sous la conductivité. Quand cette aire est calculée jusqu'à une fréquence donnée, elle est proportionnelle au nombre de porteurs de charge participant à la réponse du système jusqu'à cette fréquence.

³ Dans un métal, les électrons sont considérés, en première approximation, comme indépendants et les interactions électron-électron sont écrantées. Les quasi-particules ont été introduits par Landau [Landau1957] pour rendre compte des interactions électron-électron fortes en conservant le concept d'indépendance de cette « particule » en première approximation. Cette notion de quasi-particules est une base de la théorie du liquide de Fermi [Ashcroft2002].

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $La_{2-x}Sr_xCuO_4$

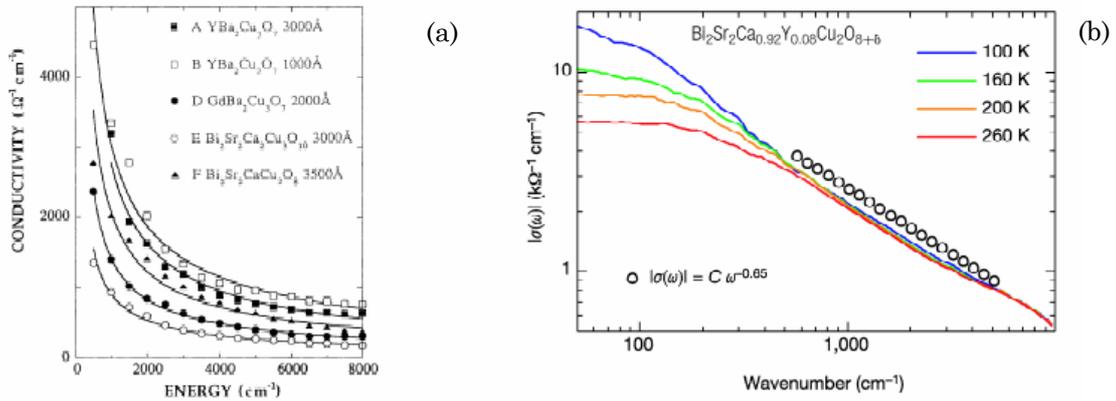


Figure 3.3 : (a) Ajustement de la conductivité optique de plusieurs cuprates. Les lignes sont des ajustements en $\omega^{-\alpha}$ avec $\alpha = 0,77$ (A) ; $0,70$ (B) ; $0,77$ (D) ; $0,76$ (E) et $0,76$ (F) [Azrak1993]. (b) Ajustement du composé $Bi_2Sr_2Ca_{0.92}Y_{0.08}Cu_2O_{8+\delta}$ [Van der Marel2003].

- Axe c

En fonction du dopage, Uchida et al. [Uchida1996] ont également observé un transfert de poids spectral mais à des énergies supérieures de 5 à 6 eV vers une bande située entre 2 et 4 eV. Pour les composés sous-dopés, la conductivité de l'axe c à basse énergie ($< 0,3$ eV) est extrêmement faible.

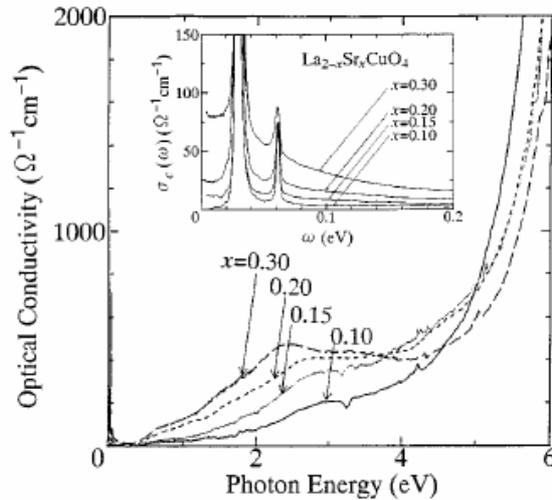


Figure 3.4 : Evolution de la conductivité optique de 0 à 6 eV à 300 K. Les dopages sont indiqués sur la courbe [Uchida1996].

3.1.1.1 Modèle à deux composants : Drude + MIB

Dans cette première approche, la conductivité optique des plans ab est décomposée en un pic de Drude (qui correspond au gaz d'électrons libres) et des bandes infrarouge moyennes (MIB). Un exemple de cette décomposition est indiqué sur la figure 3.5 pour $YBa_2Cu_3O_x$ (YBCO). Les bandes infrarouges moyennes peuvent être interprétées par une absorption d'origine polaronique : auto-piégeage de l'électron dans une perturbation du

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $La_{2-x}Sr_xCuO_4$

potentiel du réseau créé par lui-même. Cette description est à relier à un couplage électron-phonon qui se traduit par une remontée de la conductivité optique. Lobo et al. [Lobo1996] ont proposé une approche bipolaronique avec deux électrons piégés dans le même puits de potentiel.

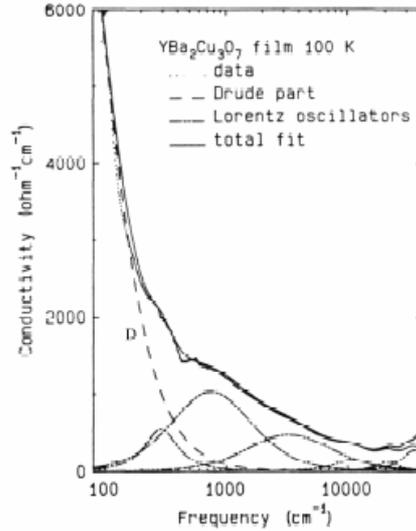


Figure 3.5 : Décomposition de la conductivité optique de YBaCuO. D est un ajustement du modèle de Drude. Les bandes MIR sont calculées à partir du modèle de Lorentz (voir § 3.3.3) [Tanner1990].

L'approche Drude + MIB est basée sur des porteurs mobiles (Drude) et des modes localisés (MIB). Le terme de Drude explique le pic en conductivité à $\omega = 0$ et la dépendance linéaire de la résistivité à haute température persistant au-delà de 1000 K⁴. Le taux de diffusion des porteurs $1/\tau$ est considéré comme indépendant de ω , mais varie linéairement avec la température. Par conséquent, la résistivité varie linéairement avec la température et sa valeur correspond à $\rho = \epsilon_V \omega_{pD}^2 \tau$ où ω_{pD} est la fréquence plasma des porteurs de charge de type Drude [Uchida1996].

3.1.1.2 Modèle à une composante : Drude généralisé

Dans ce modèle, la fonction réponse du système jusqu'à 1eV est expliquée uniquement par des porteurs de charge libre dans un modèle d'électrons fortement corrélés. A basse fréquence, la conductivité est décrite par l'équation :

$$\sigma(\omega, T) = \epsilon_V \Omega_p^2 \frac{1}{\frac{1}{\tau}(\omega, T) - i\omega \frac{m^*}{m}(\omega, T)} \quad (3.1)$$

Dans le modèle de Drude généralisé, la masse effective m^* ($m^*/m = 1 + \lambda(\omega)$, λ constante de couplage électrons/phonons) et le temps de vie effectif $\tau(\omega)$ des quasi-particules varient en fonction de la fréquence [Puchkov1996]. Le taux de diffusion ($1/\tau$) augmente

⁴ Dans un métal ordinaire, la résistivité sature à haute température : critère de saturation de Mott. L'absence de saturation est une caractéristique de nombreux métaux fortement corrélés. Ce comportement inhabituel leur vaut la dénomination de « mauvais métaux » (Cf. §1.3.1).

rapidement avec ω , d'où le fort pic centré à fréquence nulle dans les spectres de conductivité et un large $1/\tau$ pour des fréquences supérieures expliquant l'épaule que l'approche deux composantes attribue à la bande MIR. Sur la figure 3.6, est représenté l'évolution du taux de diffusion pour une composition sous-dopée de Bi-2212 [Puchkov1996]. Ce taux devient linéaire pour des fréquences supérieures à 1000 cm^{-1} , au-delà de l'intervalle de fréquence des phonons. Au dessus de 3000 cm^{-1} , l'effet des bandes de transfert de charge se fait ressentir sur la valeur de $1/\tau(\omega)$. En abaissant la température, les courbes sont décalées vers le bas et le changement de la valeur de $1/\tau$ à une fréquence donnée est en accord avec les données de résistivité. Cette linéarité a été expliquée par Varma et al. par un modèle phénoménologique de liquide de Fermi marginal. Néanmoins pour ce modèle, il faut introduire une bande infrarouge moyenne pour prendre en compte l'augmentation de la conductivité observée vers 8000 cm^{-1} (1 eV) [Varma1989].

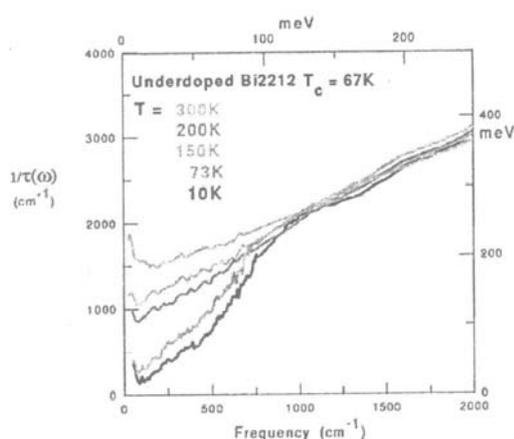


Figure 3.6 : Evolution du taux de diffusion des quasi-particules d'un échantillon de Bi-2212 sous-dopé avec un modèle de Drude généralisé [Puchkov1996].

Dans l'approche à deux composantes, la valeur de la fréquence plasma Ω_P est supérieure à ω_{pD} , introduite dans l'approche à une composante, car celle-ci ne prend en compte que les porteurs de charge libres de Drude.

3.1.2 Evolution de la réponse optique en fonction du dopage et de la température

3.1.2.1 Phase supraconductrice

Dans un supraconducteur conventionnel, en dessous de la température critique, la réflectivité vaut 100 % entre la fréquence nulle et 2Δ , l'énergie du gap supraconducteur. Dans le cas d'YBCO, la réflectivité augmente fortement en dessous de la fréquence de 500 cm^{-1} dans la phase supraconductrice. Cette augmentation est identifiée par quelques auteurs comme le gap supraconducteur [Orenstein1990] (figure 3.7). Mais cette valeur d'énergie n'évolue pas avec le dopage et dans la plupart des cuprates, il n'existe pas de relation entre température critique et le « onset » observé. D'autre part, la réflectivité devrait être égale à 1 jusqu'à 2Δ ce qui est rarement observé dans les SHTc.

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

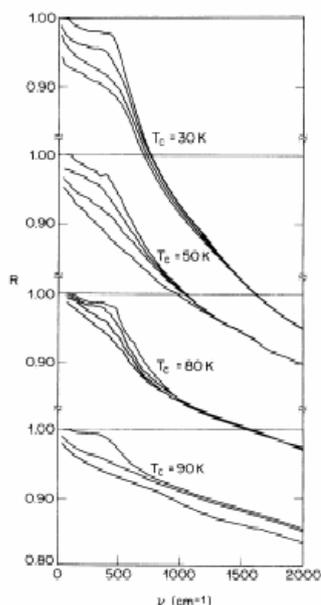


Figure 3.7 : Evolution de la réflectivité infrarouge des plans (ab) de YBaCuO. Les températures de mesures sont :
 $T_c = 30\text{K}$: 10, 100, 150 et 250K
 $T_c = 50\text{K}$: 10, 100, 150 et 250K
 $T_c = 80\text{K}$: 10, 40, 80 et 150K
 $T_c = 90\text{K}$: 20, 100 et 200K
 [Orenstein1990]

Les paires de Cooper présentes dans l'état supraconducteur peuvent se propager de façon cohérente⁵ entre les plans CuO_2 . Cela se traduit par une chute de réflectivité plasma pour des fréquences inférieures à 100 cm^{-1} sur les spectres de réflectivité suivant l'axe c [Tamasaku1992; Uchida1996]. Cette chute de réflectivité plasma est à relier à la densité superfluide (condensation des porteurs dans l'état supraconducteur) et diminue lorsque la température augmente et se rapproche de T_c comme le montre la figure 3.8. En fait, la conductivité est si faible suivant l'axe c que le courant Josephson entre les plans conducteurs est observable. Soulignons que des travaux récents de Kim et al. [Kim2005], ont montré que la dynamique des charges suivant c est intrinsèquement cohérente. Le comportement incohérent observé est expliqué par le saut des porteurs libres à travers des barrières isolantes de quelques microns situées suivant l'axe c .

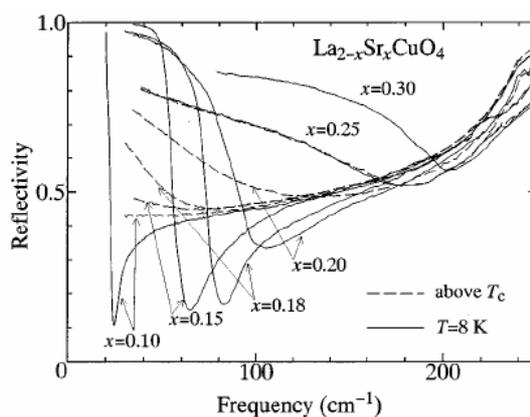


Figure 3.8 : Spectres de réflectivité suivant l'axe c de LSCO au dessus (courbes en pointillés) et en dessous (courbes en trait plein) de la température critique pour différentes concentrations en strontium. Pour $x=0,25$ et $0,3$, les deux courbes n'ont pas de chute de réflectivité plasma à basses fréquences indiquant l'absence de la supraconductivité pour les composés sur-dopés [Uchida1996].

⁵ On parle de dynamique cohérente lorsque la conductivité à basse fréquence a une valeur non nulle, c'est à dire qu'un terme de Drude est introduit. Lorsque la conductivité tend vers zéro à fréquence nulle, on parle de dynamique incohérente.

3.1.2.2 Phase de pseudo-gap

Comme nous l'avons présenté au premier chapitre, de nombreuses anomalies ont été observées dans la partie sous-dopée du diagramme de phase par différentes techniques expérimentales. Le développement du pseudo-gap autour du niveau de Fermi s'accompagne d'une perte de densité d'états. Cela se traduit par une diminution à faible énergie des spectres des excitations des états électroniques et on s'attend à une diminution du poids spectral à faible fréquence. Mais, au contraire, pour les plans **ab** on observe une augmentation du poids spectral à basse fréquence avec la diminution de la température : ce comportement est typique des porteurs libres du système. En effet dans un métal classique, les porteurs libres du système forment un pic de Drude à fréquence nulle avec une largeur de $1/\tau$. Lorsque la température T s'abaisse, le temps de relaxation des quasi-particules τ augmente, la taux de diffusion $1/\tau$ diminue et le pic de Drude devient étroit. Par conséquent la conductivité optique augmente et le poids spectral augmente.

Le problème est que la détermination expérimentale de la conductivité à très faible énergie est très délicate à cause du bruit important des mesures dans cette gamme. Le choix de l'extrapolation à basse fréquence se révèle extrêmement important pour s'assurer des résultats. Par conséquent, dans les plans conducteurs, la phase de pseudo-gap n'est pas directement identifiée dans les spectres de conductivité optique. Pour l'observer, il faut définir le taux de diffusion (modèle de Drude généralisé, équation 3.1) et la masse effective en fonction de la fréquence et de la température [Startseva1999]. On s'aperçoit alors que le taux de diffusion présente une certaine diminution jusqu'à une certaine fréquence (qui varie suivant les composés) et cela pour des températures bien au delà de T_c jusqu'à $T < T^*$. Cette diminution du taux de diffusion est causée par l'ouverture du pseudo-gap dans la densité d'états. On parle alors de signature de phase de pseudo-gap car il n'existe pas de relation directe entre le taux de diffusion et la densité d'états au niveau de Fermi.

Suivant l'axe **c**, le pseudo-gap est mis en évidence directement sur les courbes de conductivité optique. La figure 3.9 montre l'évolution de la conductivité optique à basse fréquence. On y observe une baisse de la conductivité (diminution du poids spectral) pour $\omega < 0,1$ eV pour des températures bien supérieures à la température critique T_c [Uchida1996]. Homes et al. [Homes1993] ont montré que l'amplitude de cette diminution est superposable aux variations du « Knight shift » sur un échantillon de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6,7}$ sous-dopé. L'amplitude de ce gap optique diminue en fonction du dopage et le pseudo-gap n'est plus observé dans les compositions sur-dopées. On vérifie que le pseudo-gap et le gap supraconducteur s'ouvrent à la même énergie, en accord avec les modèles de paires préformées présentées dans les modèles RVB et d'Emery et Kivelson (voir § 1.4).

Le fait que le pseudo-gap s'identifie directement sur les courbes de conductivité optique suivant l'axe **c**, et non pas dans les plans (**ab**) peut s'expliquer par la vitesse des porteurs à la surface de Fermi : v_k . Selon Ricardo Lobo [Lobo2005], la conductivité optique est pondérée par v_k qui est maximale dans les directions nodales et minimale dans les directions anti-nodales, où on observe l'effet du pseudo-gap.

En considérant que la conductivité optique suivant l'axe **c** reflète les directions anti-nodales, on observe directement l'effet du pseudo-gap par une diminution du poids spectral. Pour vérifier sa signature suivant les plans (**ab**), dans les directions nodales, il faut montrer une diminution du taux de diffusion $1/\tau$. Ce dernier diminue lorsque la densité d'états du système diminue, ce qui montre le développement du pseudo-gap.

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

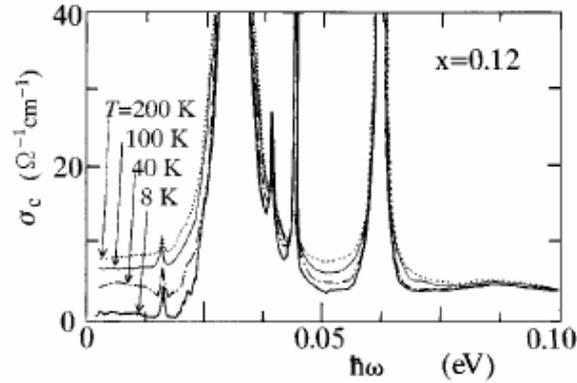


Figure 3.9 : Evolution de conductivité optique suivant l'axe c en fonction de la température dans le composé $\text{La}_{1.88}\text{Sr}_{0.12}\text{CuO}_4$. La baisse de la conductivité optique en fonction de la température est associée au pseudo-gap [Uchida1996].

3.1.2.3 Stripes

Lucarelli et al. ont étudié l'évolution de la conductivité optique en fonction de la température sur le composé $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ sur un large intervalle de dopage ($0 < x < 0,26$) [Lucarelli2003]. Ils ont obtenu dans les spectres de conductivité optique un pic à 30 cm^{-1} qu'ils ont associé à une signature d'un ordre de charge dynamique, les stripes. Toutefois, cette signature de stripes dynamiques par mesures de réflectivité demeure très controversée dans la communauté scientifique [Lucarelli_b2003; Tajima2003]. Ce pic peut être associé à une contribution (pollution) de l'axe c lors des mesures.

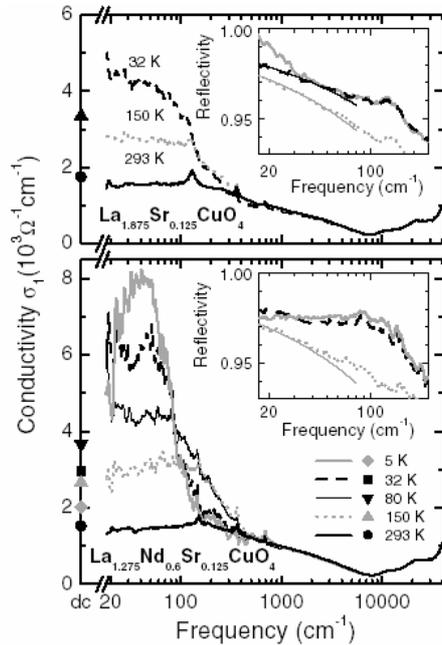


Figure 3.10 : Mesures de conductivité optique dans les composés $\text{La}_{1.875}\text{Sr}_{0.125}\text{CuO}_4$ et $\text{La}_{1.275}\text{Nd}_{0.6}\text{Sr}_{0.125}\text{CuO}_4$. La présence de stripes statiques se traduit par un pic vers 50 cm^{-1} [Dumm2002].

Les travaux de Dumm et al. [Dumm2002] sur le composé $\text{La}_{1.275}\text{Nd}_{0.6}\text{Sr}_{0.125}\text{CuO}_4$ ⁶ ont montré la présence d'un pic à 50 cm^{-1} (figure 3.10). Ce dernier n'est pas observé sur le même

⁶ C'est dans le composé dopé au néodyme $\text{La}_{1.475}\text{Nd}_{0.4}\text{Sr}_{0.125}\text{CuO}_4$ que furent découverts expérimentalement les stripes statiques [Tranquada1995].

composé non dopé au néodyme $\text{La}_{1,875}\text{Sr}_{0,125}\text{CuO}_4$. La signature de stripes par spectroscopie infrarouge dans les cuprates reste largement débattue.

3.2 Spectroscopie de réflexion

La spectroscopie de réflexion est une technique particulièrement intéressante pour l'étude expérimentale des cuprates supraconducteurs. Lorsqu'un faisceau lumineux entre en interaction avec la matière, en fonction de son énergie, il induit des excitations dont l'étude donne des renseignements sur le comportement microscopique de la matière.

La réponse d'un matériau polaire (comme le sont les cuprates) à un champ électromagnétique dans une géométrie de réflexion comporte essentiellement quatre types d'excitations, plus ou moins couplées entre elles :

1. Les phonons, ou vibrations du réseau cristallin. Les phonons actifs en infrarouge se situent entre 100 cm^{-1} et 800 cm^{-1} (infrarouge lointain et moyen).
2. Le plasmon, réponse des charges libres du conducteur. Il est caractérisé par une fréquence où la réflectivité chute brutalement : fréquence plasma Ω_p . Dans les métaux où la concentration des porteurs est élevée, $\Omega_p \sim 10^5 \text{ cm}^{-1}$ alors que dans les cuprates elle est d'un ordre de grandeur inférieure à cause d'une densité de porteurs plus faible.
3. Le gap supraconducteur. Comme nous l'avons présenté au premier chapitre, la formation de paires de Cooper entraîne la création d'une bande interdite aux électrons non appariés au bord de la surface de Fermi. Un gap supraconducteur compris entre 200 et 300 cm^{-1} a été mis en évidence par des mesures effectuées en spectroscopie tunnel et photoémission [Randeria1997; Renner1998], il devrait donc être observable dans le lointain infrarouge, à moins qu'il se situe dans des régions non observables en infrarouge⁷.
4. Les bandes d'infrarouges moyen. Il s'agit des excitations qui ne peuvent pas être reliées aux phonons, plasmon et gap supraconducteur. Comme leur nom l'indique, elles se situent dans l'infrarouge moyen et peuvent être liées au piégeage des porteurs de charge par le réseau cristallin, les polarons.

La spectroscopie infrarouge recouvre une gamme d'énergie comprise entre 1 meV (environ 10 cm^{-1}) et 3 eV ($\sim 24000 \text{ cm}^{-1}$). Elle se décompose entre le lointain infrarouge (Far infrared FIR : $10 < \omega < 400 \text{ cm}^{-1}$), le moyen infrarouge (Middle infrared MIR : $400 < \omega < 8000 \text{ cm}^{-1}$) et le proche infrarouge (Near infrared NIR : $8000 < \omega < 20000 \text{ cm}^{-1}$). Dans cette thèse, l'unité d'énergie choisie est le nombre d'onde en cm^{-1} . L'annexe A présente le spectre électromagnétique et les conversions entre les différentes unités employées en spectroscopie.

3.2.1 Interaction lumière-matière

Nous allons traiter ici de l'interaction des ondes électromagnétiques avec la matière. Après avoir introduit les équations de Maxwell et les grandeurs physiques associées aux solides, nous décrirons la propagation et la dispersion de la lumière dans un milieu. Le modèle phénoménologique utilisé dans ce travail sera ensuite présenté.

⁷ Un gap de symétrie d dans les directions nodales (k_x, k_y) dans l'espace des k , n'est pas observable en infrarouge où les mesures s'effectuent à $k = 0$.

3.2.1.1 Equations de Maxwell

L'ensemble des phénomènes électromagnétiques est gouverné par les équations de Maxwell qui s'écrivent dans leur forme locale :

$$\text{div } \vec{B} = \vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0 \quad (3.2)$$

$$\text{rot } \vec{E} = \vec{\nabla} \wedge \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (3.3)$$

$$\text{div } \vec{D} = \vec{\nabla} \cdot \vec{D} = \rho_l \quad (3.4)$$

$$\text{rot } \vec{H} = \vec{\nabla} \wedge \vec{H} = \vec{j} + \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \quad (3.5)$$

B : le champ magnétique de l'onde se propageant dans le milieu,

E : le champ électrique de l'onde se propageant dans le milieu,

D : le vecteur déplacement électrique,

H : l'excitation magnétique,

ρ_l : la densité volumique de charges libres,

\vec{j} : la densité volumique de courant dû aux charges libres.

3.2.1.2 Relations dans un milieu linéaire, isotrope et homogène

Les propriétés spécifiques d'un matériau sont données par des relations qui relient la polarisation **P** (moment dipolaire par unité de volume) et l'aimantation **M** (moment magnétique par unité de volume) du matériau aux différentes valeurs introduites dans les équations de Maxwell :

$$\vec{D} = \epsilon_v \epsilon \vec{E} = \epsilon_v (1 + \chi_e) \vec{E} = \epsilon_v \vec{E} + \vec{P} \quad (3.6)$$

$$\vec{B} = \mu_v \mu \vec{H} = \mu_v (1 + \chi_m) \vec{H} = \mu_v \vec{H} + \vec{M} \quad (3.7)$$

$$\vec{j} = \sigma \cdot \vec{E} \quad (3.8)$$

χ_e : susceptibilité électrique

χ_m : susceptibilité magnétique

$\epsilon_v = 10^{-9}/(36\pi)$ la constante diélectrique du vide

$\mu_v = 4\pi 10^{-7}$ la perméabilité du vide

N.B. : $c = 1/\sqrt{(\epsilon_v \mu_v)}$

La susceptibilité magnétique χ_m est d'environ cinq ordres de grandeurs plus faible que la susceptibilité électrique χ_e . Lorsque l'onde électromagnétique passe à travers le milieu, les propriétés magnétiques peuvent être négligées. Nous considérerons donc que $\mu = 1$.

3.2.1.3 Propagation des ondes électromagnétiques

Lorsqu'un champ électromagnétique est présent dans un milieu, il induit des dipôles électriques, des moments magnétiques, des charges polarisées et des courants. Nous ne nous intéresserons ici qu'à la réponse électrique du matériau.

Les dernières équations sont écrites dans le cadre des approximations locales et linéaires. L'approximation locale considère les longueurs d'onde supérieures à la distance interatomique et au libre parcours moyen λ des électrons libres, ainsi on considère la valeur moyenne spatiale du champ électromagnétique. L'approximation linéaire réside sur le fait

que la réponse du système est proportionnelle à la perturbation engendrée par l'onde électromagnétique, considérée comme faible.

$$\text{Soit la relation } \begin{aligned} \vec{\text{rot}}(\vec{\text{rot}}(\vec{A})) &= \vec{\text{grad}}(\text{div}\vec{A}) - \nabla^2\vec{A} \\ \vec{\nabla}\wedge(\vec{\nabla}\wedge\vec{A}) &= \vec{\nabla}(\vec{\nabla}\cdot\vec{A}) - \nabla^2\vec{A} \end{aligned} \quad (3.9)$$

appliqué avec $\vec{A}=\vec{E}$

$$\text{En utilisant l'équation (3.3), on peut écrire :} \quad \vec{\nabla}\wedge(\vec{\nabla}\wedge\vec{E}) = \vec{\nabla}\wedge\left(-\frac{\partial\mu_v\vec{H}}{\partial t}\right) \quad (3.10)$$

$$\text{or} \quad \vec{\nabla}\wedge\left(-\frac{\partial\mu_v\vec{H}}{\partial t}\right) = -\mu_v\left(\frac{\partial(\vec{\nabla}\wedge\vec{H})}{\partial t}\right) = \mu_v\left(\frac{\partial\left(\vec{j}_1 + \varepsilon_v\varepsilon\frac{\partial\vec{E}}{\partial t}\right)}{\partial t}\right) \quad (3.11)$$

en introduisant l'équation (3.8) :

$$\vec{\nabla}\wedge\left(-\frac{\partial\mu_v\vec{H}}{\partial t}\right) = -\mu_v\left(\frac{\partial\left(\sigma\vec{E} + \varepsilon_v\varepsilon\frac{\partial\vec{E}}{\partial t}\right)}{\partial t}\right) \quad (3.12)$$

$$\text{et donc :} \quad \vec{\nabla}\wedge(\vec{\nabla}\wedge\vec{E}) = -\frac{\partial(\mu_v\sigma\vec{E})}{\partial t} - \frac{\partial^2(\mu_v\varepsilon_v\varepsilon\vec{E})}{\partial t^2} \quad (3.13)$$

Dans cette équation, l'expression $\sigma\vec{E}$ traduit la dissipation. En considérant un milieu non chargé ($\rho_1 = 0$) et les équations (3.4) et (3.6), on peut écrire :

$$\vec{\nabla}\cdot\vec{D} = \vec{\nabla}\cdot(\varepsilon_v\varepsilon\vec{E}) = 0 \Rightarrow \vec{\nabla}\cdot\vec{E} = 0 \quad (3.14)$$

En reprenant l'équation (3.9) :

$$\vec{\nabla}\wedge(\vec{\nabla}\wedge\vec{E}) = \vec{\nabla}(\vec{\nabla}\cdot\vec{E}) - \nabla^2\vec{E} \quad \text{d'où :} \quad \nabla^2\vec{E} = \frac{\partial^2(\mu_v\varepsilon_v\varepsilon\vec{E})}{\partial t^2} + \frac{\partial(\mu_v\varepsilon_v\sigma\vec{E})}{\partial t} \quad (3.15)$$

En considérant le vide et en l'absence de courant et de charges, alors :

1) $j_1 = 0$ donc la conductivité est nulle (pas de dissipation) : $\sigma = 0$

2) $D = \varepsilon_v\cdot E$ et $B = \mu_v\cdot H$, donc l'équation (3.4) devient $\vec{\nabla}\cdot\vec{E} = 0$

$$3) \text{ L'équation (3.5) devient : } \vec{\nabla}\wedge\vec{B} = \mu_v\varepsilon_v\frac{\partial\vec{E}}{\partial t} \quad (3.16)$$

$$\text{En combinant (3.16) et (3.3), on obtient : } \nabla^2\vec{E} = \mu_v\varepsilon_v\frac{\partial^2\vec{E}}{\partial t^2} \quad (3.17)$$

Une solution possible de cette équation est le champ électrique \vec{E} suivant :

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $La_{2-x}Sr_xCuO_4$

$$\vec{E} = \vec{E}_0 \exp(-i(\omega t - \vec{q} \cdot \vec{r})) \quad (3.18)$$

avec \vec{q} le vecteur d'onde et ω la pulsation.

On peut écrire alors l'équation (3.15) comme :

$$\nabla^2 \vec{E} + \omega^2 \mu_V \epsilon_V \vec{E} - i\omega \mu_V \sigma \vec{E} = \nabla^2 \vec{E} + \omega^2 \mu_V \epsilon_V \left(\epsilon - i \frac{\sigma}{\epsilon_V \omega} \right) \vec{E} = 0 \quad (3.19)$$

En comparant avec l'équation (3.17), on définit la fonction diélectrique complexe par :

$$\boxed{\tilde{\epsilon}(\omega) = \epsilon'(\omega) + i\epsilon''(\omega) = 1 + i \frac{\tilde{\sigma}(\omega)}{\epsilon_V \omega}} \quad (3.20)$$

Cette fonction diélectrique complexe résume la réponse optique de toutes les charges (libres et liées) du système.

3.2.2 Grandeurs optiques

Pour caractériser le matériau, de nombreuses grandeurs sont utilisées. Le choix de la grandeur utilisée se fait en fonction des propriétés physiques du matériau. Ainsi, pour un matériau diélectrique, le choix s'orientera vers la fonction diélectrique alors que pour un conducteur, on s'intéressera d'avantage à la conductivité optique.

La fonction diélectrique $\tilde{\epsilon}(\omega) = \epsilon'(\omega) + i\epsilon''(\omega) \quad (3.21)$

La conductivité optique $\tilde{\sigma}(\omega) = \sigma'(\omega) + i\sigma''(\omega) \quad (3.22)$

en comparant avec l'équation (3.20), la partie réelle et imaginaire de la conductivité s'écrivent :

$$\begin{cases} \sigma'(\omega) = \epsilon_V \omega \epsilon''(\omega) \\ \sigma''(\omega) = \epsilon_V \omega (1 - \epsilon'(\omega)) \end{cases} \quad (3.23)$$

L'indice de réfraction $\tilde{n}(\omega) = n(\omega) + i\kappa(\omega) \quad (3.24)$

$n(\omega)$: l'indice de réfraction réel

$\kappa(\omega)$: le coefficient d'extinction

L'indice de réfraction est relié à la fonction diélectrique par la relation :

$$\tilde{n}(\omega) = \sqrt{\tilde{\epsilon}(\omega)}$$

Le coefficient d'absorption : $k = 4\pi\kappa\omega$

Le coefficient de réflexion (réflectivité) :

$$R(\omega) = \frac{I(\omega)}{I_0(\omega)} = \left| \frac{\tilde{n}(\omega) - 1}{\tilde{n}(\omega) + 1} \right|^2 = |r(\omega) \exp(-i\theta(\omega))|^2 = |r(\omega)|^2 \quad (3.25)$$

Ici $I(\omega)$ est l'intensité du rayonnement réfléchi et $I_0(\omega)$ l'intensité du rayonnement incident. $|r(\omega)|^2$ représente l'amplitude de l'onde réfléchie à la surface de l'élément et $\theta(\omega)$ est le changement de phase de l'onde réfléchie.

Il suffit de connaître l'une des grandeurs $\tilde{n}(\omega)$, $\tilde{\epsilon}(\omega)$, $\tilde{\sigma}(\omega)$ ou $r(\omega)$ pour pouvoir déterminer l'ensemble des autres grandeurs.

Pour des mesures de réflectivité, les spectres obtenus renvoient à une grandeur réelle. Or, les grandeurs optiques sont complexes. Pour remonter aux grandeurs complexes, deux méthodes sont employées : les relations de Kramers-Krönig et / ou l'ajustement du spectre de réflectivité.

3.2.3 Phonons actifs en infrarouge

La technique de spectroscopie infrarouge est basée sur la diffusion élastique de la lumière par un matériau. L'interaction élastique d'un rayonnement électromagnétique avec les phonons s'effectue selon un couplage du champ électrique avec les variations des moments dipolaires dues au mouvement relatif des atomes. Pour qu'un phonon soit actif en infrarouge, il faut que :

i) il existe un moment dipolaire. Le système doit posséder des charges électriques différentes. Un matériau monoatomique ne donne pas de réponse infrarouge au premier ordre.

ii) le moment dipolaire varie en fonction du temps. Autrement dit, les modes de vibration atomique qui entretiennent leur symétrie dans le temps ne sont pas actifs en infrarouge.

iii) au moins une composante de la variation temporelle du moment dipolaire soit parallèle au champ électrique du rayonnement incident. Seuls les modes transverses sont donc optiquement actifs en infrarouge. Certains modes longitudinaux peuvent donner une réponse dans l'infrarouge (§ 3.3.3), mais ceux ci sont toujours associés aux modes transversaux correspondants.

3.2.4 Transformation de Kramers-Krönig

Nous avons vu que la fonction complexe de la réflectivité dépend de la phase θ du coefficient de réflexion complexe $r = e^{i\theta}$. Les relations de Kramers-Krönig permettent de relier les parties réelles et imaginaires d'une fonction complexe [Kramers1927; Kronig1926].

$$r = \sqrt{R}.e^{i\theta} \quad (3.26)$$

On définit

$$f = \ln r = 1/2 \ln(R) + i\theta \quad (3.27)$$

Les parties réelles et imaginaires sont :

$$f' = 1/2 \ln(R) \quad (3.28)$$

$$f'' = \theta \quad (3.29)$$

A partir des relations de Kramers-Krönig, on en déduit que :

$$f'' = -\frac{2\omega}{\pi} \int_0^\infty \frac{f'}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega \quad (3.30)$$

Alors R et θ sont reliés par :

$$\theta(\omega) = -\frac{\omega}{\pi} \int_0^\infty \frac{\ln R}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega \quad (3.31)$$

Cette dernière relation suppose la connaissance du spectre de réflectivité dans les limites $\omega \rightarrow \infty$ et $\omega \rightarrow 0$. Ces conditions ne peuvent être satisfaites expérimentalement, il

faut donc extrapoler à basse fréquence et à haute fréquence. La transformation par Kramers-Krönig est bien adaptée pour les isolants où la courbe mesurée de réflectivité est plate à haute et basse fréquence et, par conséquent, facilement extrapolable. Au contraire, dans les milieux conducteurs, l'extrapolation est plus délicate et peut entraîner une erreur sur la détermination des grandeurs optiques, comme le montre la figure 3.11.

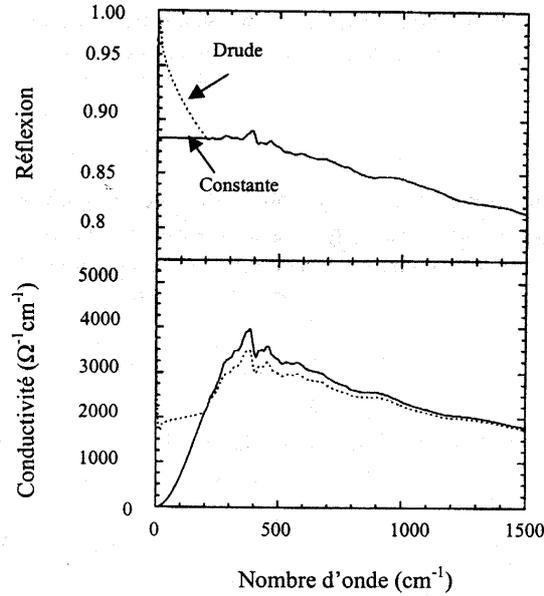


Figure 3.11 : Courbes de réflexion et conductivité optique mesurées entre 500 et 1500 cm^{-1} sur YBaCuO ($E // ab$) avec deux extrapolations différentes à basse fréquence en considérant le modèle de Drude et une constante. La conductivité optique est abaissée en considérant la constante [Lobo1996].

Après avoir déterminé la partie imaginaire associée à la réflectivité, on peut déterminer les parties réelle et imaginaire de l'indice de réfraction :

$$n = \frac{1-R}{1-2\sqrt{R}\cos(\theta)+R} \quad (3.32)$$

$$\kappa = \frac{2\sqrt{R}\sin(\theta)}{1-2\sqrt{R}\cos(\theta)+R} \quad (3.33)$$

Par suite, on détermine la fonction diélectrique du système $\epsilon(\omega)$ et la conductivité optique $\sigma(\omega)$.

3.3 Modèle de la fonction diélectrique

Dans ce paragraphe, nous allons montrer qu'il est possible de décrire phénoménologiquement la fonction diélectrique à partir de différents modèles. En ajustant les paramètres qui interviennent dans ces modèles, on ajuste le spectre de réflectivité obtenu.

3.3.1 La fonction diélectrique

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

Comme nous l'avons montré au § 3.2.1.3 la fonction diélectrique $\varepsilon(\omega)$ représente la fonction réponse du système. Dans le vide, ε_v vaut $10^{-9}/(36\pi)$. Cette valeur change en fonction des interactions présentes dans le système. La figure 3.12 représente la constante diélectrique en fonction de la fréquence dans le cas d'un matériau isolant. A $\omega = 0$, $\varepsilon(\omega = 0) = \varepsilon_0$ est la constante diélectrique statique et aux très hautes pulsations ε vaut 1, il n'y a plus d'interaction avec le rayonnement.

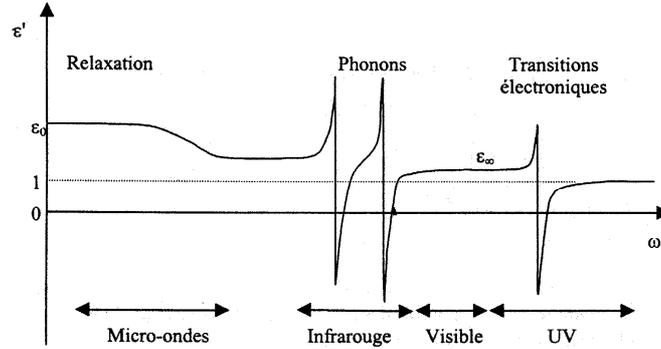


Figure 3.12 : Représentation schématique de la partie réelle de la fonction diélectrique $\varepsilon'(\omega)$ relative dans un milieu isolant.

Dans le cas de métaux, le plasmon intervient et la fonction diélectrique devient négative à basses fréquences comme le montre la figure 3.13.

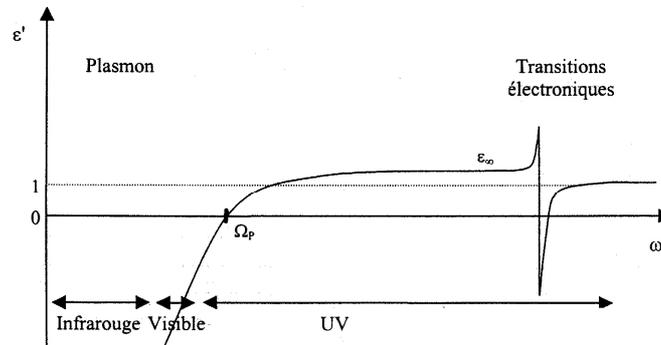


Figure 3.13 : Représentation schématique de la partie réelle de la fonction diélectrique $\varepsilon'(\omega)$ relative dans un milieu conducteur. En dessous de Ω_p , $\varepsilon'(\omega)$ est négative.

La fonction diélectrique définit la somme des susceptibilités en présence :

$$\tilde{\varepsilon}(\omega) = 1 + \chi_{\text{elec.}} + \chi_{\text{ion.}} + \chi_{\text{plas.}} + \dots \quad (3.34)$$

avec $\chi_{\text{elec.}}$: la susceptibilité électronique correspondant aux vibrations inter-atomiques. Ces vibrations interviennent dans l'ultraviolet.

$\chi_{\text{ion.}}$: la susceptibilité ionique représente les mouvements inter-atomiques.

$\chi_{\text{plas.}}$: la susceptibilité plasma (ou de Drude) rend compte des mouvements du gaz d'électrons (plasma).

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $La_{2-x}Sr_xCuO_4$

Lors d'une étude infrarouge, la susceptibilité électronique apparaît sous la forme d'une constante, et on peut exprimer la fonction diélectrique par :

$$\tilde{\epsilon}(\omega) = (1 + \chi_{\text{elec.}}) \left(1 + \frac{\chi_{\text{ion.}} + \chi_{\text{plas.}} + \dots}{1 + \chi_{\text{elec.}}} \right) \quad (3.35)$$

En appelant le terme $(1 + \chi_{\text{elec.}}) = \epsilon_{\infty}$, on peut écrire que :

$$\tilde{\epsilon}(\omega) = \epsilon_{\infty} \left(1 + \frac{\chi_{\text{ion.}} + \chi_{\text{plas.}} + \dots}{\epsilon_{\infty}} \right) \quad (3.36)$$

En fait, étudier un matériau dans le domaine de l'infrarouge revient à renormaliser notre réponse non pas par rapport au vide (ϵ_V) mais par rapport au matériau avec une constante diélectrique ($\epsilon_V \epsilon_{\infty}$).

3.3.2 Modèle de Drude – Susceptibilité Plasma

Le modèle de Drude est basé sur l'électron libre ; c'est à dire un électron sans aucune interaction ni avec le réseau cristallin, ni avec les autres électrons. Ici, nous allons considéré des électrons « presque » libres ; nous allons prendre en compte les collisions en introduisant un terme d'amortissement γ dans l'équation du mouvement. Autrement dit, l'électron a un temps de vie ($\tau = 1/\gamma$) fini.

L'équation du mouvement que décrit l'électron de masse effective m_e^* avec apparition d'un champ dépolarisant E et un amortissement γ est :

$$m_e^* \frac{d^2 x}{dt^2} + m_e^* \gamma \frac{dx}{dt} = -eE \quad (3.37)$$

En imposant une solution de la forme $\tilde{x} = \tilde{x}_0 \exp(-i(\omega t - \vec{q} \cdot \vec{r}))$, on peut écrire :

$$\tilde{x} = \frac{e\tilde{E}}{m_e^* \omega(\omega + i\gamma)} \quad (3.38)$$

Le moment dipolaire induit vaut $\tilde{\mu} = -e\tilde{x}$

Si n_e est la densité d'électron libres dans le métal, alors la polarisation vaut :

$$\tilde{P} = -n_e e \tilde{x} = \frac{-n_e e^2 \tilde{E}}{m_e^* \omega(\omega + i\gamma)} \quad (3.39)$$

De là, on en déduit la susceptibilité du gaz d'électrons (susceptibilité plasma) :

$$\chi_{\text{plas.}} = \frac{\tilde{P}}{\epsilon_V \tilde{E}} = \frac{-n_e e^2}{\epsilon_V m_e^* \omega(\omega + i\gamma)} \quad (3.40)$$

La solution de la fonction diélectrique vaut en considérant la susceptibilité ionique dans la constante ϵ_∞ :

$$\tilde{\epsilon}(\omega) = \epsilon_\infty \left(1 + \frac{\chi_{\text{plas.}}}{\epsilon_\infty} \right) = \epsilon_\infty \left(1 - \frac{n_e e^2}{\epsilon_V \epsilon_\infty m^* \omega(\omega + i\gamma)} \right) \quad (3.41)$$

$$\tilde{\epsilon}(\omega) = \epsilon_\infty \left(1 - \frac{\Omega_P^2}{\omega(\omega + i\gamma)} \right) \quad (3.42)$$

Avec Ω_P la fréquence plasma :

$$\boxed{\Omega_P^2 = \frac{n_e e^2}{\epsilon_V \epsilon_\infty m^*}} \quad (3.43)$$

Dans le cas d'un métal où les collisions seraient considérées comme négligeables ($\gamma=0$), la fréquence plasma définit la limite où l'onde électromagnétique ne se propage pas dans le matériau ($\omega < \Omega_P$; $\epsilon(\omega) < 0$; $R \approx 1$) de la zone où la réflectivité est nulle ($\omega > \Omega_P$; $\epsilon(\omega) > 0$; $R \approx 0$).

3.3.3 Modèle de Lorentz – Susceptibilité ionique

Le modèle de Lorentz décrit phénoménologiquement l'interaction des vibrations du réseau et du champ électrique de l'onde électromagnétique. En considérant le cas de deux atomes de masse réduite m^* , reliés par une constante de force K et en vibration forcée par le couplage du moment dipolaire avec le champ électrique, l'équation du mouvement est :

$$m^* \frac{d^2 x}{dt^2} + m^* \gamma \frac{dx}{dt} + Kx = -e_T E \quad (3.44)$$

e_T est la charge effective transverse. Seuls les modes de vibrations transverses à la propagation du champ électromagnétique se couplent avec le champ électrique.

Comme déjà vu dans le modèle de Drude, la solution de l'équation peut s'écrire sous la forme d'une onde harmonique et :

$$\tilde{x} = \frac{-e_T \tilde{E}}{m^*(\Omega_{TO}^2 - \omega^2 - i\gamma_{TO}\omega)} \quad (3.45)$$

La susceptibilité ionique vaut :

$$\chi_{\text{ion.}} = \frac{\tilde{P}_{\text{ion.}}}{\epsilon_V \tilde{E}} = \frac{N}{V} \frac{e_T^2}{\epsilon_V m^*(\Omega_{TO}^2 - \omega^2 - i\gamma_{TO}\omega)} \quad (3.46)$$

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $La_{2-x}Sr_xCuO_4$

La contribution ionique de la fonction diélectrique s'écrit alors :

$$\tilde{\varepsilon}(\omega) = 1 + \chi_{\text{ion.}} = 1 + \frac{N}{V} \frac{e_T^2}{\varepsilon_V m^* (\Omega_{TO}^2 - \omega^2 - i\gamma_{TO}\omega)} \quad (3.47)$$

Pour plusieurs oscillateurs :

$$\tilde{\varepsilon}(\omega) = 1 + \sum_j \frac{N_j}{V} \frac{e_{Tj}^2}{\varepsilon_V m_j^* (\Omega_{TOj}^2 - \omega^2 - i\gamma_{TOj}\omega)} \quad (3.48)$$

$$\tilde{\varepsilon}(\omega) = 1 + \sum_j \frac{\Delta\varepsilon_j \Omega_{TOj}^2}{(\Omega_{TOj}^2 - \omega^2 - i\gamma_{TOj}\omega)} \quad (3.49)$$

où la force d'oscillateur j vaut :

$$\Delta\varepsilon_j = \frac{e_{Tj}^2 N_j}{V \varepsilon_V m_j^* \Omega_{TOj}^2}$$

Dans un milieu isolant ($\chi_{\text{plas.}} = 0$) où l'on néglige les contributions de fréquences inférieures à l'infrarouge, la fonction diélectrique s'écrit alors :

$$\tilde{\varepsilon}(\omega) = \varepsilon_\infty + \sum_j \frac{\Delta\varepsilon_j \Omega_{TOj}^2}{(\Omega_{TOj}^2 - \omega^2 - i\gamma_{TOj}\omega)} \quad (3.50)$$

Il s'agit du modèle à trois paramètres de la fonction diélectrique proposé par Born et Huang [Born1954]. Sans amortissement, on vérifie que les fréquences transverses Ω_{TOj} sont les pôles de la fonction diélectrique.

Dans un système électriquement neutre, l'équation de Maxwell $\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = \vec{\nabla} \cdot (\varepsilon_V \vec{E}) = 0$ a deux solutions, $\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = \vec{q} \cdot \vec{E} = 0$, qui correspond aux ondes transverses ($\vec{E} \perp \vec{q}$); et $\varepsilon = 0$ qui correspond aux ondes longitudinales. A chacune des fréquences transverses Ω_{TOj} correspond une fréquence longitudinale Ω_{LOj} vérifiant $\varepsilon(\Omega_{LOj}) = 0$, tel que :

$$\varepsilon_\infty + \frac{\Delta\varepsilon_j \Omega_{TOj}^2}{(\Omega_{TOj}^2 - \Omega_{LOj}^2)} = 0 \quad (3.51)$$

Entre les deux fréquences Ω_{TOj} et Ω_{LOj} , la partie réelle de la fonction diélectrique est nulle (cas non amorti $\gamma = 0$): l'onde électromagnétique ne se propage pas, elle est évanescence et $R \approx 1$. La figure 3.14 représente quelques fonctions optiques obtenues à partir du modèle de Lorentz.

A partir de l'équation 3.42, on montre que la fonction diélectrique s'annule pour $\omega = \omega_P$ dans le cas d'un amortissement nul ($\gamma_P = 0$). Dans le modèle de Drude, l'interaction onde électromagnétique / électrons correspond à un oscillateur avec une fréquence optique transverse nulle et une fréquence longitudinale égale à la fréquence plasma.

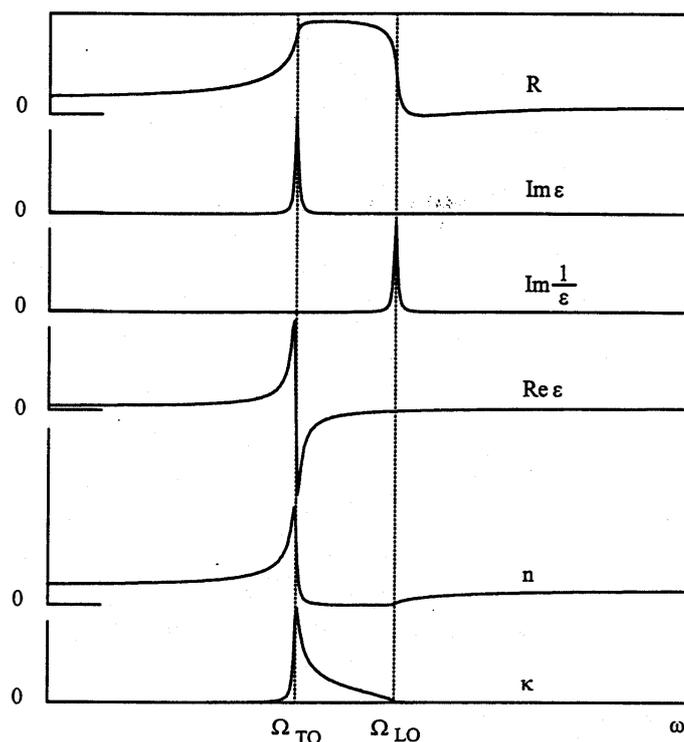


Figure 3.14 : Quelques fonctions déduites du modèle de Lorentz. Dans cet exemple, l'amortissement vaut 10% [Lobo1996].

3.3.4 Fonction diélectrique complète

Les oxydes conducteurs, dont les oxydes supraconducteurs, ne peuvent être décrits uniquement par le modèle de Drude. La fonction diélectrique complète que l'on utilise pour ajuster les données optiques est composée du terme de Drude auquel on ajoute des oscillateurs de Lorentz :

$$\tilde{\epsilon}(\omega) = \epsilon_\infty - \frac{\Omega_p^2}{\omega(\omega + i\gamma_D)} + \sum_j \frac{\Delta\epsilon_j \Omega_j^2}{(\Omega_j^2 - \omega^2 - i\gamma_j\omega)} \quad (3.52)$$

Le troisième terme n'exprime pas seulement que des phonons, voilà pourquoi les indices TO ont été supprimés. Ce terme rend compte également des contributions des bandes d'infrarouge moyen et des excitations de transfert de charge intervenant dans la région moyen infrarouge et proche infrarouge ($\omega > 0,1$ eV). La partie basse fréquence des spectres est bien ajustée par la contribution de Drude. Si la mesure se faisait de $[0; \infty]$, ϵ_∞ serait égal à 1. Puisque la mesure se fait dans un intervalle de fréquence fini, la valeur de ϵ_∞ prend en compte également les autres excitations qui interviennent en dehors de la gamme spectrale mesurée.

3.4 Résultats expérimentaux

Dans ce travail, nous nous proposons d'analyser le diagramme de phase (T, dopage) de $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ à partir de mesures de réflectivité infrarouge.

Pour cela, nous nous sommes intéressés à l'évolution en température des spectres

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $La_{2-x}Sr_xCuO_4$

optiques de deux compositions avec $x = 0,08$ et $x = 0,15$. Nous avons examiné les deux directions cristallographiques : plans **ab** conducteurs et axe **c** semi-conducteur. La comparaison de ces monocristaux est intéressante car l'échantillon $x = 0,08$ se situe dans la région sous-dopée du diagramme de phase alors que l'échantillon $x = 0,15$ correspond à l'optimum dopé (Cf. figure 3.1). La présence de la phase du pseudo-gap devrait être observable dans l'échantillon $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$. Pour l'échantillon $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$, l'existence de cette phase est discutée. La phase supraconductrice sera également abordée. Enfin, nous discuterons également de la présence de stripes dans ces composés.

Nous commencerons ce paragraphe par une présentation des échantillons étudiés. Ensuite nous montrerons les spectres de réflectivité obtenus. Après les avoir commentés, nous les ajusterons afin d'obtenir les extrapolations nécessaires à la détermination de la conductivité optique. Dans une deuxième partie, nous nous intéresserons aux phases présentes.

Les mesures de réflectivité sur les échantillons de LSCO synthétisés par la technique de fusion de zone sont difficiles et longues. Ces échantillons se présentent sous forme d'un cylindre dont l'épaisseur correspondrait aux plans **ab** ($h \sim 2\text{mm}$) et le rayon à l'axe **c** ($r \sim 3\text{mm}$).

Pour bien mesurer la réflectivité des plans **ab** et de l'axe **c**, la base des cylindres doit être strictement parallèle à l'axe **c** et perpendiculaire aux plans **ab**. Cela exige une extrême rigueur : (i) de la découpe de l'échantillon du barreau cristallisé (ii) du polissage (iii) de la pose sur le porte-échantillon et (iv) la présence d'un polariseur (qui affaiblit l'amplitude du rayonnement). Si une de ces conditions n'est pas respectée, il y a alors pollution (contribution des différents axes) lors des mesures. Dans notre cas, nous avons suivi le protocole proposé au paragraphe 2.2.1.4 pour obtenir des mesures précises.

A titre de comparaison, ce problème de pollution ne se pose pas pour les monocristaux de BSCCO. En effet, ces derniers se clivent suivant les plans **ab**. Soulignons toutefois qu'une autre difficulté apparaît pour cette famille de cuprates : la petite surface des échantillons ($\sim 2 \times 2 \text{ mm}^2$).

3.4.1 Échantillons de $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ étudiés

3.4.1.1 Croissance cristalline

Les échantillons ici étudiés sont des monocristaux élaborés par Christophe Marin et son équipe au Commissariat à l'Énergie Atomique de Grenoble [Marin1999]. Ces monocristaux ont été synthétisés à partir de la technique dite de fusion de zone flottante (travelling solvent floating zone TSFZ). Cette technique est celle expliquée plus en détails au chapitre 5 de cette thèse, pour la synthèse des monocristaux de $Bi_2Sr_2Ca_{1-x}Y_xCu_2O_{8+\delta}$.

Comme nous l'avons déjà expliqué au § 2.2.1.4, les échantillons doivent être homogènes, mono-phasés et mono-domaines. Pour ces raisons les monocristaux sont préférés aux céramiques en spectroscopie. Il faut cependant les caractériser pour confirmer leur qualité. Nos monocristaux ont été caractérisés par diffraction des rayons X, diffraction Laué, analyses MEB et EDS. Des mesures de susceptibilité et de transport ont également été effectuées.

3.4.2.2 Caractérisations

Les diagrammes RX obtenus sur les échantillons [Marin1999] ont montré que i) les cristaux étaient monophasés ; ii) la structure de $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$ était orthorhombique à

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $La_{2-x}Sr_xCuO_4$

l'ambiante avec pour paramètre de maille (a,b,c) = (5,353; 5,370; 13,208) Å et iii) que $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$ à 300 K était quadratique avec pour paramètre de maille (a = b,c) = (5,345; 13,226) Å . Ces résultats sont en accord avec le graphe 2.4 d'évolution des paramètres en fonction du taux de strontium et les travaux de Cava et al. [Cava1987].

Les analyses MEB n'ont pas montré de différence de phase et ont confirmé le caractère monophasé des monocristaux. Les analyses EDS effectuées sur les échantillons ont permis de déterminer les compositions suivantes :

$$\begin{aligned} & La_{1,940(\pm 0,007)}Sr_{0,072(\pm 0,005)}Cu_{0,98(\pm 0,01)}O_x \text{ pour } La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4. \\ \text{et} & La_{1,867(\pm 0,012)}Sr_{0,151(\pm 0,007)}Cu_{0,981(\pm 0,008)}O_x \text{ pour } La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4. \end{aligned}$$

L'incertitude est très faible et les résultats sont reproductibles sur l'ensemble de la surface ce qui confirme de nouveau la bonne homogénéité de ces monocristaux.

Des mesures de susceptibilités et de transport ont permis de déterminer les températures critiques de nos échantillons. Les monocristaux étudiés au cours de cette thèse sont bruts de synthèse et non-recuits.

Les courbes d'aimantations sont présentées sur la figure 3.15 et les courbes de résistivité sont présentées sur la figure 3.16. Les mesures de transport sont comparables avec des valeurs déjà obtenues [Nakamura1993].

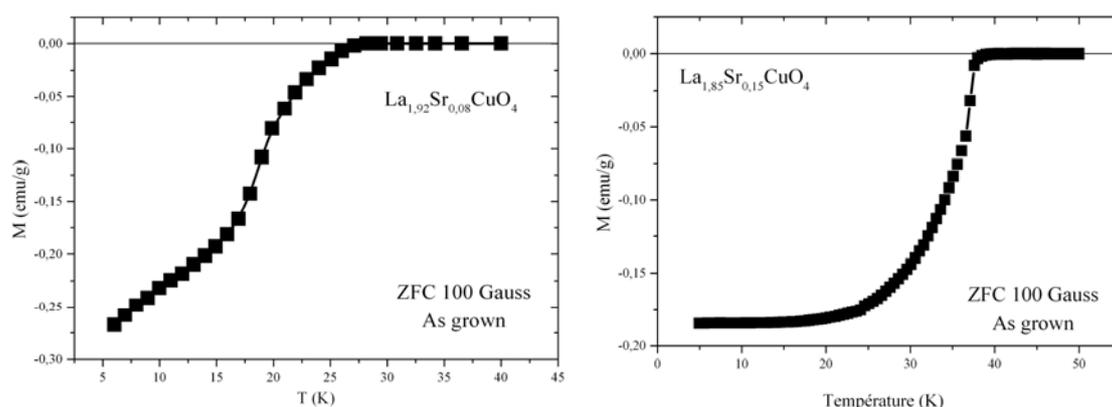


Figure 3.15 (Droite) : Mesures de susceptibilité du monocristal $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$.
(Gauche) : Mesures d'aimantation du monocristal $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$ [Marin1999].

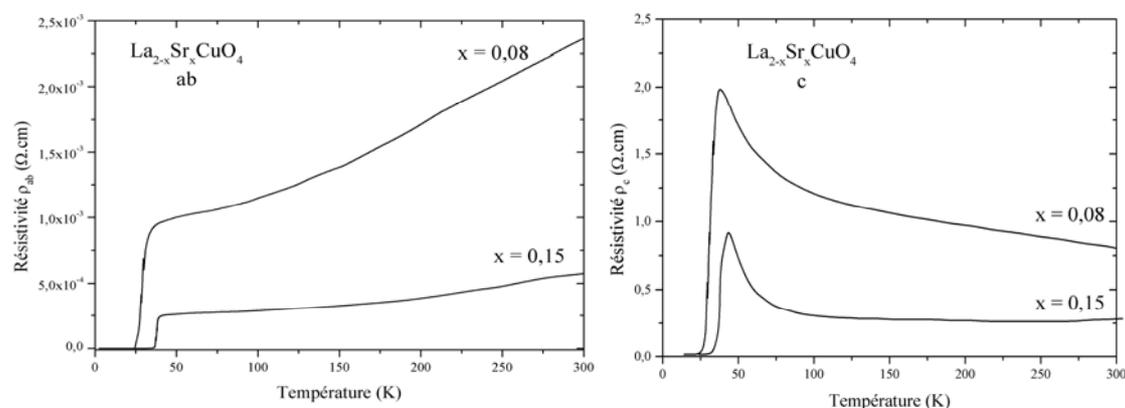


Figure 3.16 : Mesures de résistivité effectuées sur les monocristaux non-recuits parallèlement et perpendiculairement aux plans supraconducteurs [Marin1999].

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $La_{2-x}Sr_xCuO_4$

Le tableau 3.17 résume l'ensemble des températures de transition supraconductrices. Nous avons déterminé les températures critiques «onset» pour les mesures d'aimantation et les températures de demi-transition pour les mesures de résistivité.

	$T_{c\text{onset}}$ (Aimantation)	$T_{c\ 1/2\text{transition}}$ (Résistivité ρ_{ab}) / ΔT_c	$T_{c\ 1/2\text{transition}}$ (Résistivité ρ_c) / ΔT_c
$La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$	26 K	27 K / 5 K	28 K / 10 K
$La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$	36 K	38 K \pm 4 K	38 K \pm 4 K

Tableau 3.17 : Récapitulatif des températures de transition supraconductrice et des largeurs à mi-transition déduites des mesures de résistivité et d'aimantation.

Le fait que les températures critiques déterminées concordent entre mesures d'aimantation et mesures de résistivité montre que les échantillons sont homogènes. Voilà pourquoi, nous n'avons pas procédé à des recuits préalables avant l'étude physique.

3.4.2 Spectres de réflectivité

Les figures 3.18 et 3.19 présentent les mesures de réflectivité obtenues sur les échantillons $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$ et $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$. La partie supérieure des figures représente la réflectivité des plans conducteurs **ab** et la partie inférieure, la réflectivité suivant l'axe **c**.

L'échantillon $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$ a été le premier étudié, il a été directement fixé sur la canne porte-échantillon et mesuré avec une taille de faisceau de 3 mm. L'échantillon $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$ a été fixée sur un cône (Cf. § 2.2.1.4) avec une taille de faisceau de 12 mm. Il en résulte que les mesures du premier échantillon ont été plus longues que pour le second. C'est pourquoi, l'échantillon $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$ a été étudié entre $60 < \omega < 8000\text{ cm}^{-1}$ (régions FIR et MIR) et l'échantillon $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$ a été mesuré sur une plus large gamme $60 < \omega < 13000\text{ cm}^{-1}$ (régions FIR, MIR et NIR).

Les courbes sont tracées avec une échelle logarithmique en fréquence, sur l'ensemble de l'intervalle examiné. En insert, le comportement à basse fréquence est représenté en échelle linéaire en fonction de la température. Les phonons optiques y sont indiqués.

En dessous de $\omega < 400\text{ cm}^{-1}$, la faible intensité des mesures est expliquée par la plus faible détection du rayonnement liée à la gamme FIR (Cf. 2.2.1.4)

La réflectivité augmente lorsque la température diminue pour les deux échantillons avec une différence plus marquée pour l'échantillon $x = 0,08$ quelque soit la direction. On vérifie que l'axe **c** est semi-conducteur et que les plans **ab** sont conducteurs avec un comportement de type Drude à basse fréquence. L'allure de nos spectres de réflectivité est comparable avec ceux déjà obtenus [Kim2005; Startseva1999; Tajima2005; Takenaka2002].

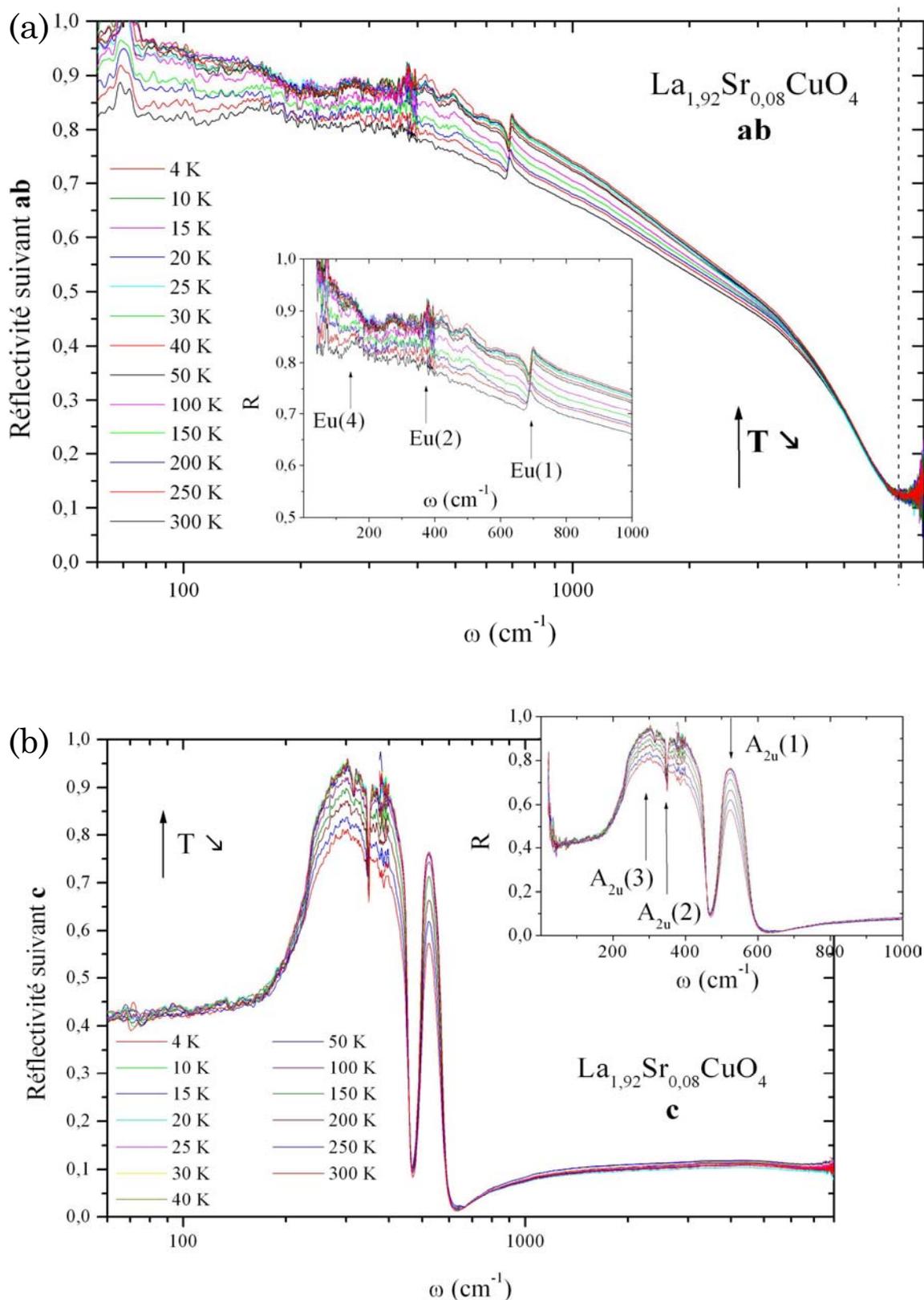


Figure 3.18 : Evolution des spectres de réflectivité de $\text{La}_{1,92}\text{Sr}_{0,08}\text{CuO}_4$ (a) suivant **ab** et (b) suivant **c**. Les phonons optiques sont indiqués par des flèches en insert. La ligne en pointillé indique la fréquence de chute de réflectivité.

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

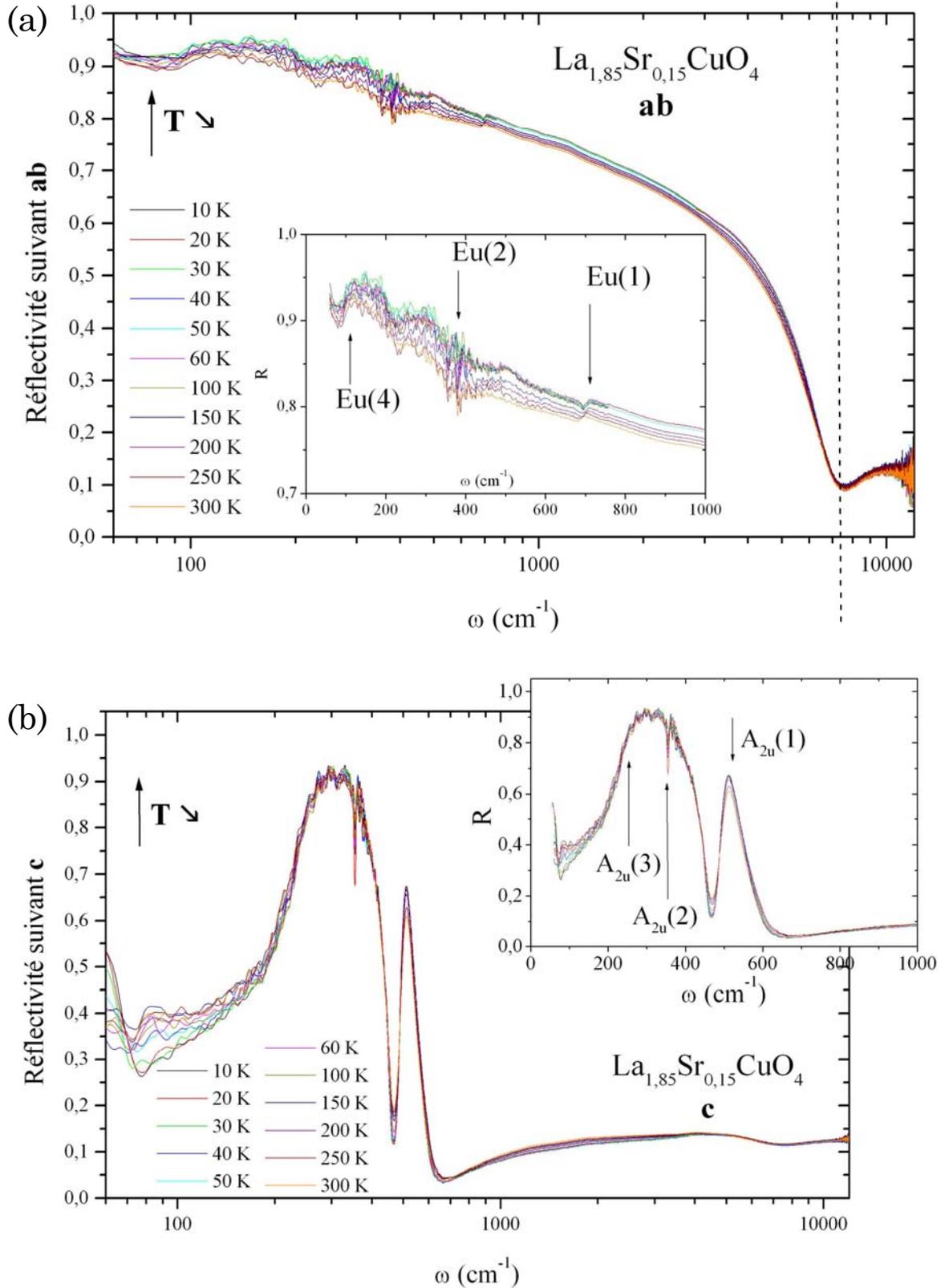


Figure 3.19 : Evolution des spectres de réflectivité de $\text{La}_{1,85}\text{Sr}_{0,15}\text{CuO}_4$ (a) suivant **ab** et (b) suivant **c**. Les phonons optiques sont indiqués par des flèches en insert. La ligne en pointillé indique la fréquence de chute de réflectivité.

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $La_{2-x}Sr_xCuO_4$

La chute de réflectivité dans les plans conducteurs atteint son minima vers 7000 cm^{-1} ($0,87\text{ eV}$) pour $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$ et vers 7500 cm^{-1} ($0,93\text{ eV}$) pour $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$. En accord avec l'augmentation du taux des porteurs, la valeur en énergie du minima de la chute est supérieure pour $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$ que $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$. Cette chute n'évolue pas en fréquence avec la température mais est plus « raide » pour $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$, échantillon plus dopé que $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$. Par conséquent, la réflectivité est plus importante pour $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$ en dessous de cette énergie.

- *Phonons optiques*

En dessous de $\omega = 1000\text{ cm}^{-1}$, la réflectivité est essentiellement marquée par la présence des phonons actifs en infrarouge. Dans le système $La_{2-x}Sr_xCuO_4$, de type K_2NiF_4 (Groupe d'espace D_{4h}^{17} ; symétrie quadratique $I4/mmm$) à température ambiante, il existe sept phonons actifs en infrarouge : 3 A_{2u} (modes actifs suivant l'axe **c**) et 4 E_u (modes actifs dans les plans conducteurs **ab**) [Weber1989]. Dans notre étude les 3 modes actifs suivant l'axe **c** sont clairement définis : $\omega_{A_{2u}3} \approx 220\text{ cm}^{-1}$; $\omega_{A_{2u}2} \approx 350\text{ cm}^{-1}$ et $\omega_{A_{2u}1} \approx 490\text{ cm}^{-1}$. Le phonon $A_{2u}(2)$ correspond à un creux inséré dans le large pic du phonon $A_{2u}(3)$. Parmi les quatre phonons actifs dans les plans **ab**, seulement trois sont observés : $\omega_{Eu4} \approx 140\text{ cm}^{-1}$; $\omega_{Eu2} \approx 360\text{ cm}^{-1}$ et $\omega_{Eu1} \approx 680\text{ cm}^{-1}$.

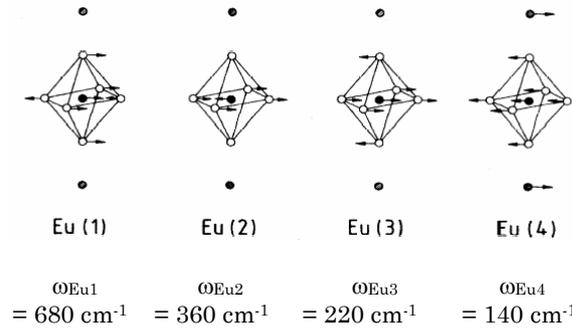


Figure 3.20 : 4 vecteurs propres E_u actifs en infrarouge dans les plans **ab** [Pintschovius1989].

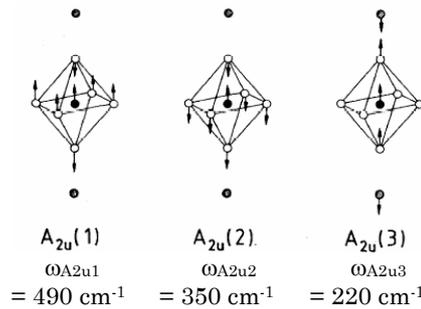


Figure 3.21 : 3 vecteurs propres A_{2u} actifs en infrarouge suivant l'axe **c** [Pintschovius1989].

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

En accord avec d'autres publications [Collins1989; Gao1993] le phonon $E_u(3)$ n'est pas observé dans nos spectres. La force de vibration de l'oscillateur correspondant est insuffisante pour que ce phonon soit observable. Les vecteurs propres représentés dans les figures 3.20 et 3.21 sont ceux de la phase quadratique. En toute rigueur, il faudrait considérer deux phonons supplémentaires suivant l'axe c pour la phase orthorhombique (Groupe d'espace D_{4h}^{18} ; Bmab) à basse température à 130 cm^{-1} et 310 cm^{-1} [Henn1997; Uchida1996]. Mais comme Henn et al. [Henn1997] l'ont montré, la force d'oscillation de ces modes est également très faible. Par conséquent nous n'avons pas pris en considération ces modes de vibration.

Les phonons optiques ont une intensité plus faible pour $\text{La}_{1,85}\text{Sr}_{0,15}\text{CuO}_4$ que ceux de $\text{La}_{1,92}\text{Sr}_{0,08}\text{CuO}_4$. Cela est clairement visible pour le phonon $E_u(1)$ à 700 cm^{-1} . Du fait de la faible détection de la région FIR ($\omega < 400 \text{ cm}^{-1}$), cette différence est moins marquée pour les deux autres phonons, cette diminution de l'intensité des phonons optiques est à relier à l'augmentation de la réflectivité.

Si les spectres de réflectivité suivant **ab** présentent une chute liée à la dynamique des charges de ces plans, la réflectivité suivant **c** est essentiellement causée par les phonons optiques.

3.4.3 Ajustement du spectre de réflectivité

L'intérêt d'ajuster le spectre de réflectivité est double. Le premier est de suivre l'évolution des paramètres des phonons en fonction de la température. Le second est de définir le spectre à basse et haute fréquence, les extrapolations nécessaires à la détermination de la conductivité optique (Cf. § 3.2.4). Dans le cadre de cette thèse, nous nous sommes plus intéressés au second aspect.

Le critère généralement utilisé pour définir le spectre des plans conducteurs à basse fréquence est la relation de Hagen-Rubens: $R = 1 - a\sqrt{\omega}$ où a est une constante. Cependant si cette relation est bien appropriée pour décrire les métaux ordinaires, elle reste beaucoup plus discutée pour des supraconducteurs tels que $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. En effet, la présence des phonons ainsi que les bandes MIR conduisent à une mauvaise approximation du spectre de réflexion à basse fréquence via cette relation [Gao1993]. Nous avons préféré au cours de cette thèse ajuster le spectre de réflexion via une fonction diélectrique telle qu'elle l'est présentée dans l'équation 3.52 (p69).

$$\tilde{\varepsilon}(\omega) = \varepsilon_\infty - \frac{\Omega_p^2}{\omega(\omega + i\gamma_D)} + \sum_j \frac{\Delta\varepsilon_j \Omega_j^2}{(\Omega_j^2 - \omega^2 - i\gamma_j\omega)} \quad (3.52)$$

Les ajustements ont été effectués sur le logiciel FOCUS (Cf. § 2.2.1.4 p46) qui permet de relier le spectre de réflexion aux différents paramètres de l'équation 3.52. Dans cette équation, le paramètre ε_∞ tient compte de toutes les transitions situées aux hautes énergies supérieures à 8000 cm^{-1} pour $\text{La}_{1,92}\text{Sr}_{0,08}\text{CuO}_4$ et 12000 cm^{-1} pour $\text{La}_{1,85}\text{Sr}_{0,15}\text{CuO}_4$ (cette différence est expliquée en introduction de ce paragraphe 3.4). Le premier terme de l'équation correspond à un oscillateur de type Drude qui traduit la réponse des porteurs libres du système : Ω_p est sa fréquence plasma avec γ_D son amortissement ($\gamma_D = 1/\tau$ où τ est le temps de relaxation de porteurs de charge). Le troisième terme correspond à une somme d'oscillateurs qui correspond aux phonons optiques, aux bandes MIR et aux excitations de transfert de charge. Ils sont caractérisés par une fréquence ω_j , de force d'oscillateur $\Delta\varepsilon_j \Omega_j^2$ avec un amortissement γ_j .

Nous allons maintenant déterminer ces différents paramètres suivant chaque direction cristallographique et pour chaque échantillon.

3.4.3.1 Etude suivant ab

- $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$ suivant ab

Dans ce cas, le meilleur ajustement a été obtenu en introduisant dans l'équation 3.52 le terme de Drude et quatre oscillateurs.

Ces derniers correspondent :

- aux trois phonons optiques visibles : $E_u(1)$; $E_u(2)$ et $E_u(3)$.
- une bande MIR.

$$\tilde{\epsilon}(\omega) = \epsilon_\infty - \frac{\Omega_D^2}{\omega(\omega + i\gamma_D)} + \sum_{j=1}^3 \frac{\Delta\epsilon_j \Omega_j^2}{(\Omega_j^2 - \omega^2 - i\gamma_j\omega)} + \frac{\Delta\epsilon_{MIR} \Omega_{MIR}^2}{(\Omega_{MIR}^2 - \omega^2 - i\gamma_{MIR}\omega)} \quad (3.53)$$

La figure 3.22 présente un exemple d'ajustements obtenus. La figure 3.23 montre l'évolution des différents paramètres de la fonction diélectrique en fonction de la température.

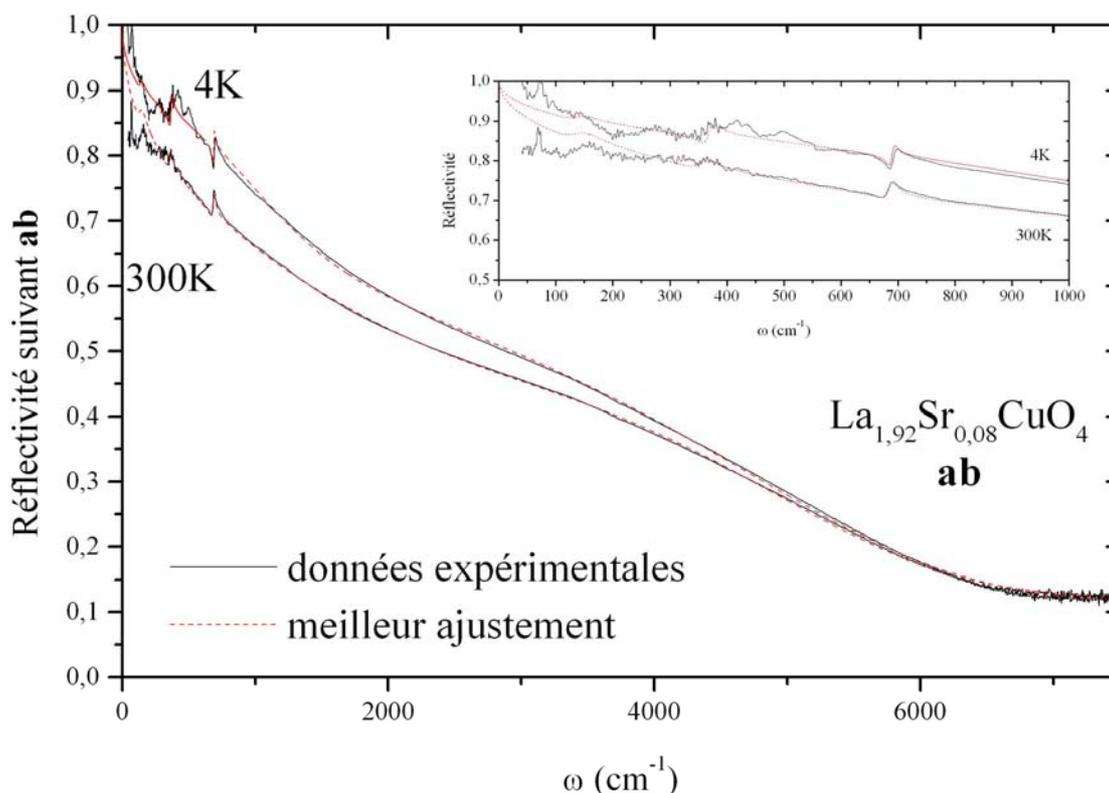


Figure 3.22 : Ajustement des courbes de réflectivité de $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$ suivant ab à partir du modèle de la fonction diélectrique proposé dans l'équation 3.53.

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

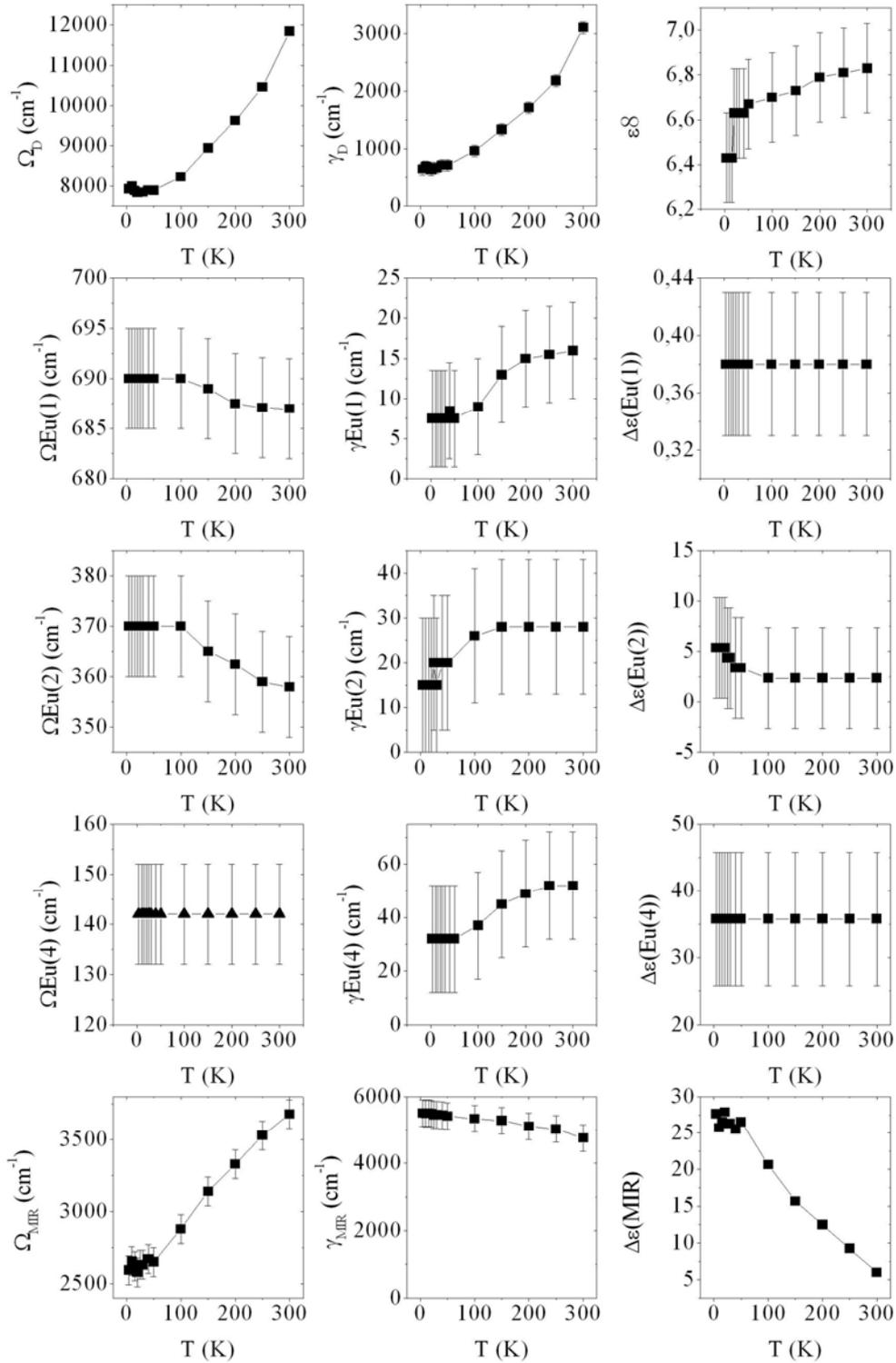


Figure 3.23 : Evolution des paramètres de la fonction diélectrique (équation 3.53) pour l'échantillon $\text{La}_{1.92}\text{Sr}_{0.08}\text{CuO}_4$ suivant les plans **ab**. L'incertitude a été déterminée manuellement.

- $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$ suivant ab :

Nous avons utilisé la même expression que celle employée pour l'échantillon $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$ à laquelle on a ajouté un oscillateur entre 8000 et 11000 cm^{-1} pour tenir compte des transitions liées au transfert de charges. Le meilleur ajustement obtenu est représenté sur la figure 3.24 et l'évolution des paramètres en fonction de la température est donnée sur la figure 3.25.

$$\tilde{\epsilon}(\omega) = \epsilon_\infty - \frac{\Omega_D^2}{\omega(\omega + i\gamma_D)} + \sum_{j=1}^3 \frac{\Delta\epsilon_j \Omega_j^2}{(\Omega_j^2 - \omega^2 - i\gamma_j \omega)} + \frac{\Delta\epsilon_{MIR} \Omega_{MIR}^2}{(\Omega_{MIR}^2 - \omega^2 - i\gamma_{MIR} \omega)} + \frac{\Delta\epsilon_{CTJ} \Omega_{CTJ}^2}{(\Omega_{CTJ}^2 - \omega^2 - i\gamma_{CTJ} \omega)} \quad (3.54)$$

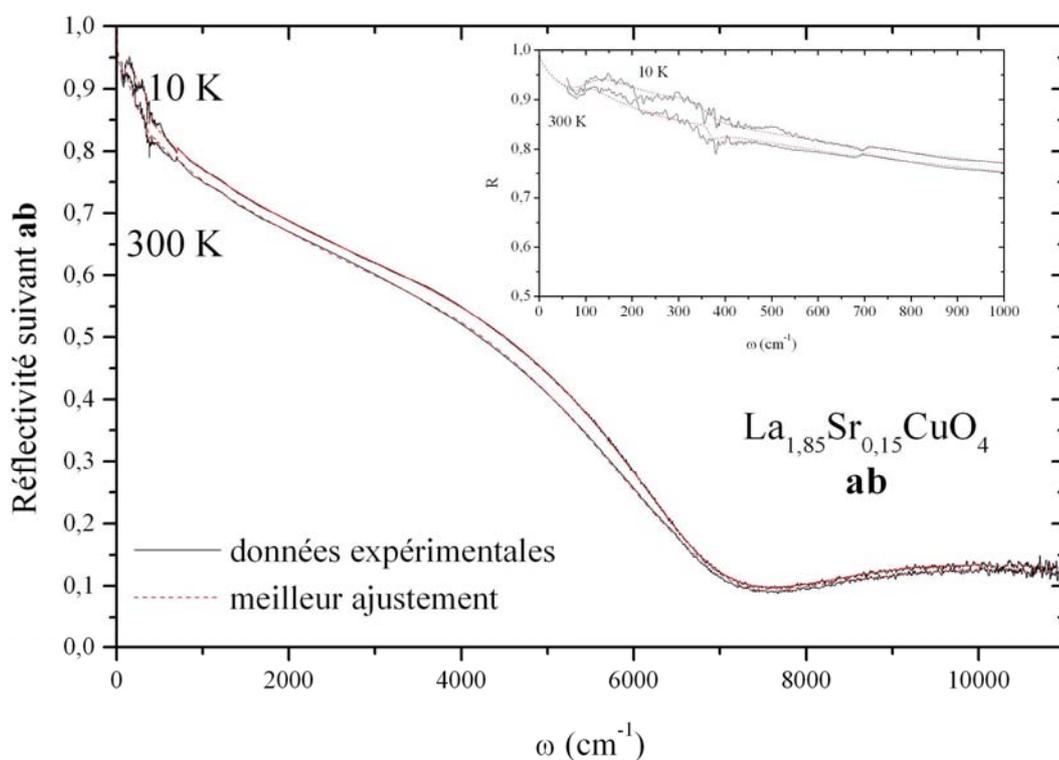


Figure 3.24 : Ajustement des courbes de réflectivité de $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$ suivant **ab** à partir du modèle de la fonction diélectrique proposé dans l'équation 3.54.

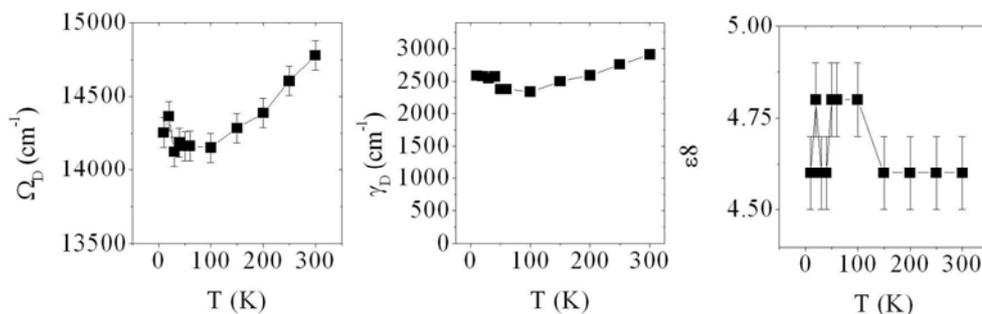


Figure 3.25(a) : Evolution des paramètres de la fonction diélectrique (Drude et ϵ_∞ de l'équation 3.54) pour l'échantillon $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$ suivant les plans **ab**. L'incertitude a été déterminée manuellement.

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

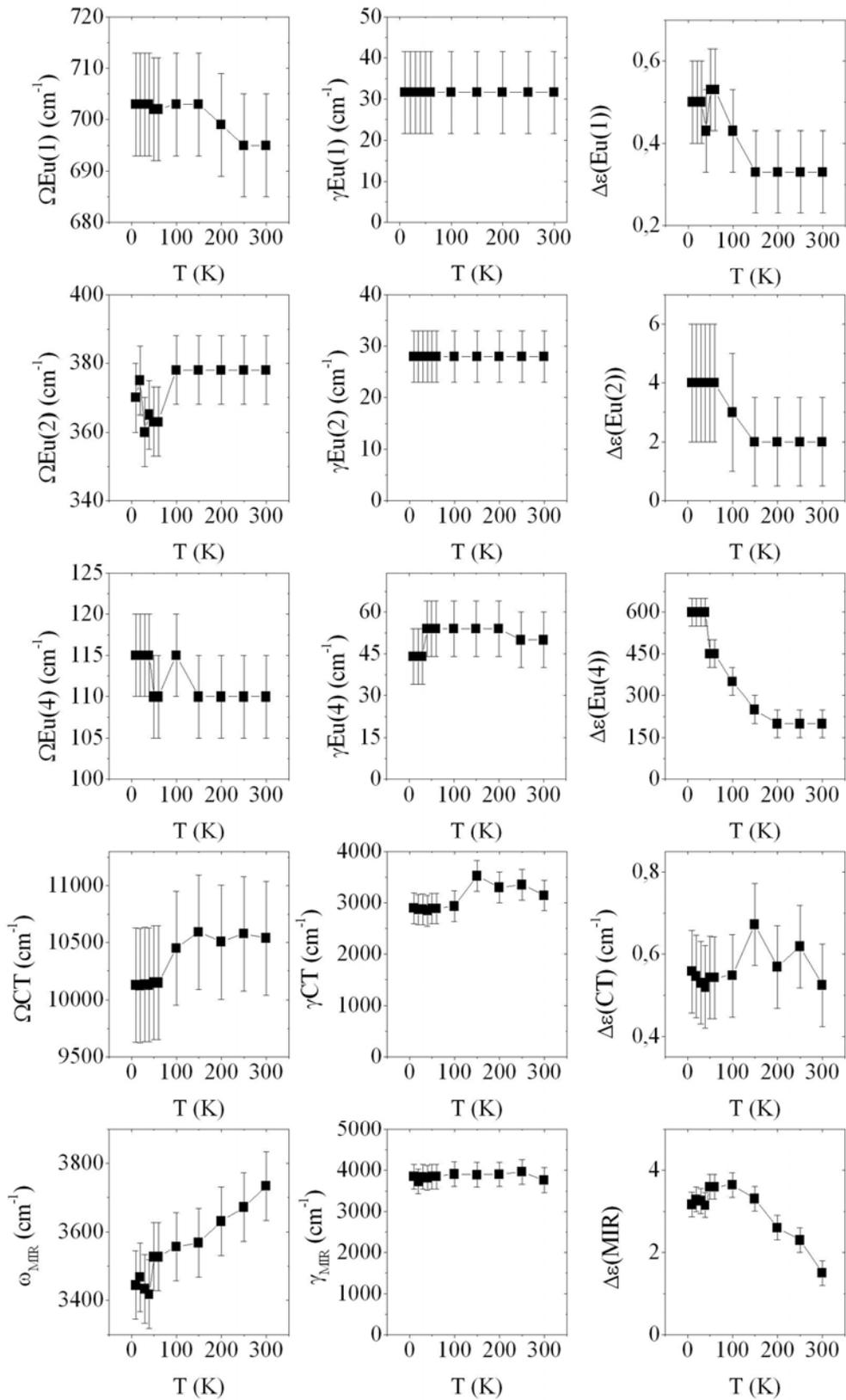


Figure 3.25(b) : Evolution des paramètres de la fonction diélectrique (équation 3.54) pour l'échantillon $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$ suivant les plans **ab**. L'incertitude a été déterminée manuellement.

- *Discussion : évolution des paramètres suivant ab*

L'intérêt de ces ajustements est de définir le spectre de réflectivité à basse et haute fréquence, en vue d'établir les extrapolations nécessaires au calcul de la conductivité optique. Dans ce qui suit, nous résumons brièvement les résultats obtenus de ces ajustements, dans la gamme de fréquence intermédiaire, sans les approfondir.

Des travaux à venir sur l'évolution de ces paramètres permettront d'apporter des informations complémentaires sur le comportement du plasmon, des phonons et de la bande MIR.

Pour étudier l'évolution des paramètres des phonons, il faut rappeler que les paramètres de maille **a** et **b** diminuent avec le dopage alors que **c** augmente (Cf. figure 2.4). De plus, il faut considérer la transition structurale quadratique – orthorhombique qui apparaît vers 350 K pour l'échantillon sous-dopé $\text{La}_{1,92}\text{Sr}_{0,08}\text{CuO}_4$ et vers 200 K pour l'optimalement dopé $\text{La}_{1,85}\text{Sr}_{0,15}\text{CuO}_4$ (Cf. figure 2.4). Pour l'échantillon $\text{La}_{1,92}\text{Sr}_{0,08}\text{CuO}_4$, nous ne pouvons pas observer de changement de paramètres lié à la transition structurale car la température de transition (350 K) est en dehors de l'intervalle ici étudié. Quant à l'échantillon, $\text{La}_{1,85}\text{Sr}_{0,15}\text{CuO}_4$, aucun changement notable des paramètres apparaît à 200 K.

Drude (ω_D ; γ_D):

L'oscillateur Drude a les valeurs de fréquence les plus élevées des oscillateurs ici introduits. La forte concentration des porteurs libres dans ces systèmes en est l'explication. Pour cette même raison, les valeurs sont plus élevées pour l'échantillon $\text{La}_{1,85}\text{Sr}_{0,15}\text{CuO}_4$ que pour $\text{La}_{1,92}\text{Sr}_{0,08}\text{CuO}_4$. Alors que la diminution de la fréquence et de l'amortissement est graduelle pour $\text{La}_{1,92}\text{Sr}_{0,08}\text{CuO}_4$, l'amortissement varie peu pour $\text{La}_{1,85}\text{Sr}_{0,15}\text{CuO}_4$. Pour les deux échantillons, on observe une valeur constante de la fréquence et de l'amortissement à basse température mais au dessus de la température critique respective.

ϵ_∞ :

La valeur de ϵ_∞ des plans **ab** diminue légèrement avec la température pour $\text{La}_{1,92}\text{Sr}_{0,08}\text{CuO}_4$ et demeure constant pour $\text{La}_{1,85}\text{Sr}_{0,15}\text{CuO}_4$. Cela semble montrer une augmentation de la réflectivité à haute fréquence (région NIR et visible) pour $\text{La}_{1,92}\text{Sr}_{0,08}\text{CuO}_4$. Cependant, il faut être méfiant dans la comparaison car ϵ_∞ de cet échantillon prend en compte les transitions entre 8000 et 11000 cm^{-1} .

Phonons optiques $E_u(1)$, $E_u(2)$, $E_u(4)$:

L'évolution en température et en dopage des phonons visibles ($E_u(1)$, $E_u(2)$ et $E_u(4)$) suivant les plans ab est écrantée par la forte contribution plasma et la large bande MIR. Puisque ces contributions sont plus importantes pour $\text{La}_{1,85}\text{Sr}_{0,15}\text{CuO}_4$ que $\text{La}_{1,92}\text{Sr}_{0,08}\text{CuO}_4$, il en résulte que l'intensité des phonons de $\text{La}_{1,85}\text{Sr}_{0,15}\text{CuO}_4$ est plus basse. Cela s'observe clairement pour $E_u(1)$ mais plus difficilement pour les deux autres à cause de l'incertitude liée à la mesure dans la région FIR (§ 2.2.1.4 p45). Les valeurs montrées dans les figures 3.23 et 3.25 pour les deux phonons $E_u(2)$ et $E_u(4)$ sont ajustées manuellement. En effet, le bruit de fond est si important dans cette gamme que le logiciel d'ajustement donne des paramètres insensés pour ces phonons de fréquence inférieure à 400 cm^{-1} . Ceci explique pourquoi l'incertitude liée aux paramètres $E_u(2)$ et $E_u(4)$ est très importante et qu'il est difficile de conclure sur les évolutions de ces phonons.

La fréquence du phonon $E_u(1)$ est augmentée par le dopage. Pour l'échantillon $\text{La}_{1,85}\text{Sr}_{0,15}\text{CuO}_4$, il apparaît que la valeur de fréquence reste constante en dessous de 200 K. Cette température pourrait être reliée à la valeur de la transition structurale comme l'a montré Gao [Gao1993] cependant cela signifierait que cette transition vaut 100 K pour $\text{La}_{1,92}\text{Sr}_{0,08}\text{CuO}_4$ ce qui est invraisemblable. Finissons en soulignant que l'intensité de $E_u(4)$

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $La_{2-x}Sr_xCuO_4$

augmente de façon importante avec la température en accord avec la chute observée de réflectivité à la même fréquence sur la figure 3.24.

MIR (ω_{MIR} ; γ_{MIR} ; S_{MIR}) :

En ce qui concerne la bande MIR, l'allure des courbes de fréquence, d'amortissement et d'intensité est indépendante du dopage : la fréquence diminue, l'amortissement est constant et l'intensité augmente avec la baisse de température. Si l'allure est comparable entre les deux échantillons, les valeurs de fréquence sont néanmoins plus élevées pour $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$. L'amortissement est du même ordre de grandeur. L'évolution de l'intensité de la bande MIR de $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$ est moins importante que $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$.

3.4.3.2 Evolution suivant c

- $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$ suivant c :

L'axe c est isolant. La contribution électronique des porteurs libres dans ce cas est suffisamment faible pour pouvoir ignorer le terme de Drude dans la fonction diélectrique.

La fonction diélectrique correspond à la somme des trois oscillateurs caractéristiques correspondant aux trois phonons optiques : $A_{2u}(1)$; $A_{2u}(2)$ et $A_{2u}(3)$.

$$\tilde{\epsilon}(\omega) = \epsilon_\infty + \sum_{j=1}^3 \frac{\Delta\epsilon_j \Omega_j^2}{(\Omega_j^2 - \omega^2 - i\gamma_j\omega)} \quad (3.55)$$

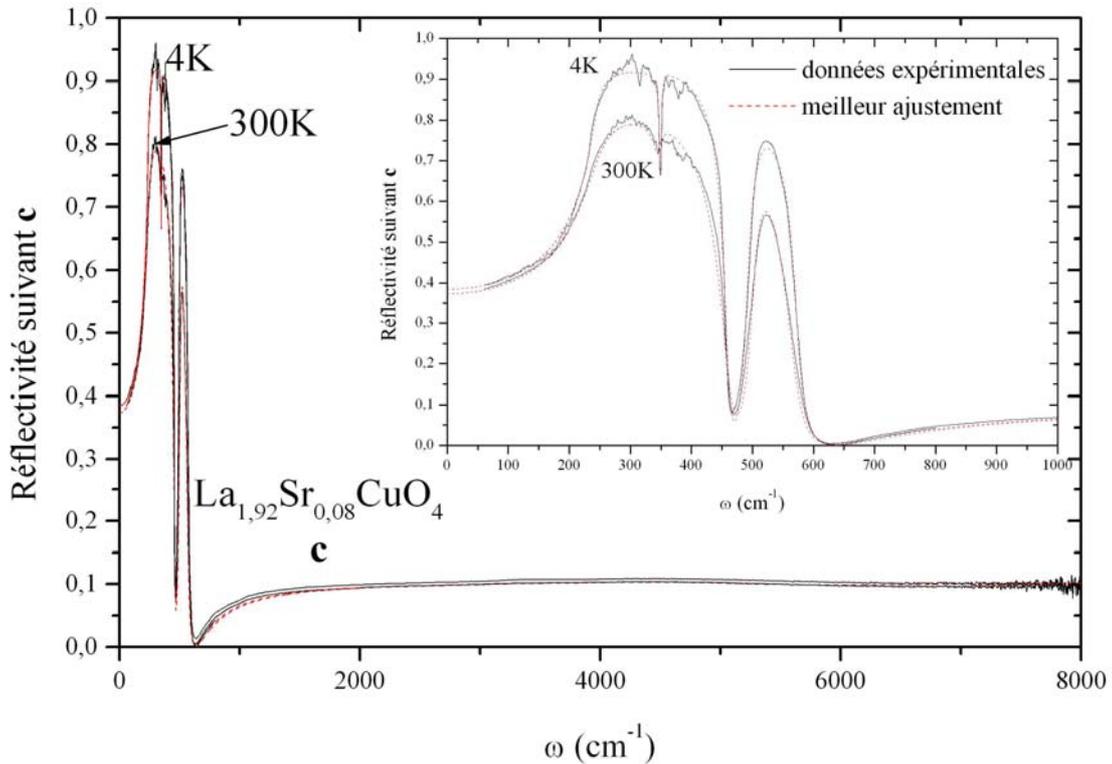


Figure 3.26 : Ajustement des courbes de réflectivité de $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$ suivant c à partir d'un modèle de la fonction diélectrique proposé dans l'équation 3.55.

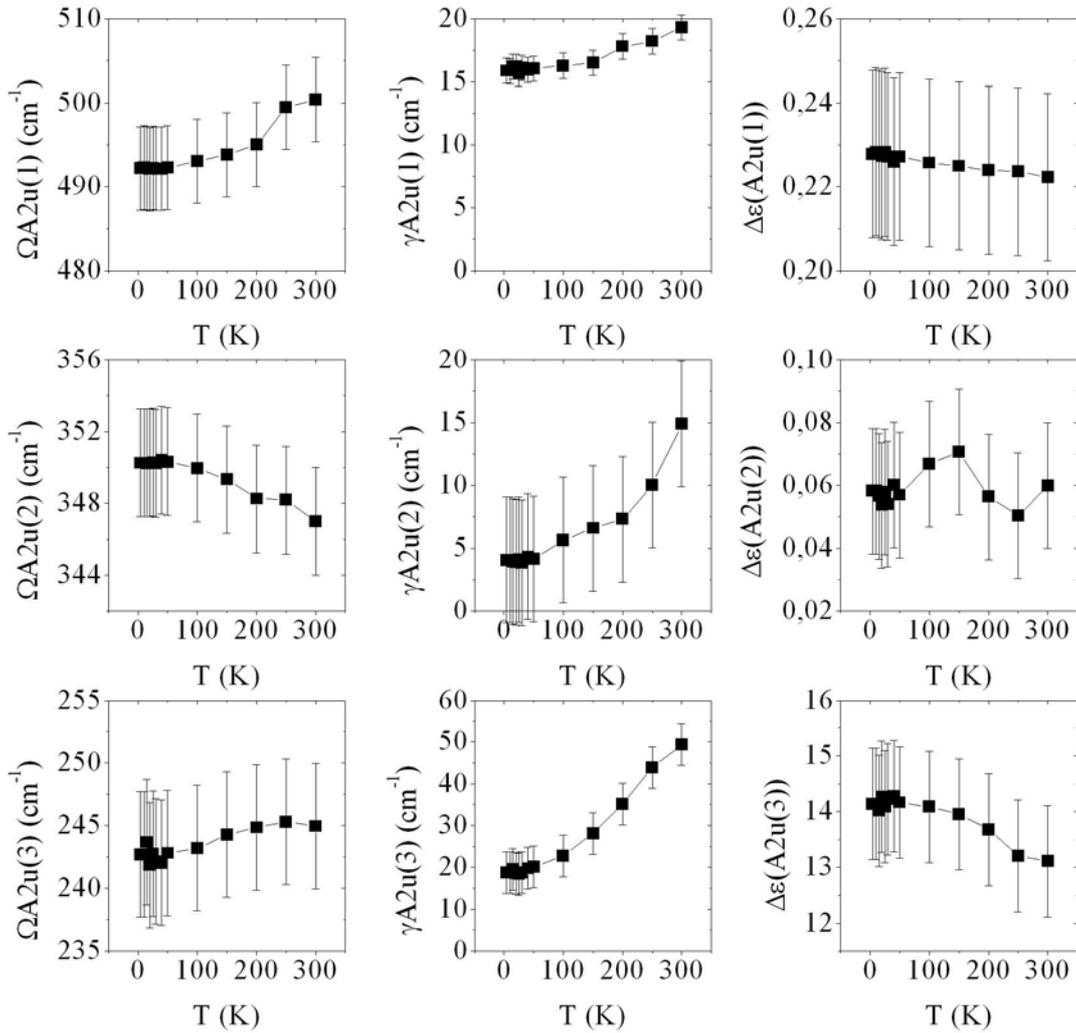


Figure 3.27 : Evolution des paramètres de la fonction diélectrique (équation 3.55) pour l'échantillon $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$ suivant l'axe c avec $\epsilon_\infty = 3,76$. L'incertitude a été déterminée manuellement.

- $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$ suivant c :

Dans ce cas, la contribution électronique des porteurs ne peut pas être ignorée. C'est ce que l'on observe à $\omega = 650 \text{ cm}^{-1}$ où la réflectivité de $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$ est quasi-nulle (figure 3.26) alors que pour $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$ elle est plus élevée (figure 3.28). Il faut donc conserver dans la fonction diélectrique le terme de Drude.

Pour les températures inférieures à la température de transition supraconductrice critique, on observe clairement un creux vers 80 cm^{-1} qui correspond à un bord plasma de Josephson (Cf. § 3.1.2.1). Pour considérer ce creux, nous avons ajouté à la fonction diélectrique un terme de Drude sans amortissement comme l'a suggéré Dordevic [Dordevic2003].

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $La_{2-x}Sr_xCuO_4$

$$T > T_c : \quad \tilde{\epsilon}(\omega) = \epsilon_\infty - \frac{\Omega_D^2}{\omega(\omega + i\gamma_D)} + \sum_{j=1}^3 \frac{\Delta\epsilon_j \Omega_j^2}{(\Omega_j^2 - \omega^2 - i\gamma_j\omega)} \quad (3.56)$$

$$T < T_c : \quad \tilde{\epsilon}(\omega) = \epsilon_\infty - \frac{\Omega_D^2}{\omega(\omega + i\gamma_D)} + \sum_{j=1}^3 \frac{\Delta\epsilon_j \Omega_j^2}{(\Omega_j^2 - \omega^2 - i\gamma_j\omega)} - \frac{\Omega_S^2}{\omega^2} \quad (3.57)$$

Sur la figure 3.28 est représentée les courbes de réflectivité avec les meilleurs ajustements obtenus sur les courbes à 10 et 300 K.

L'évolution des paramètres des équations (3.56) et (3.57) en fonction de la température est donnée sur la figure 3.29.

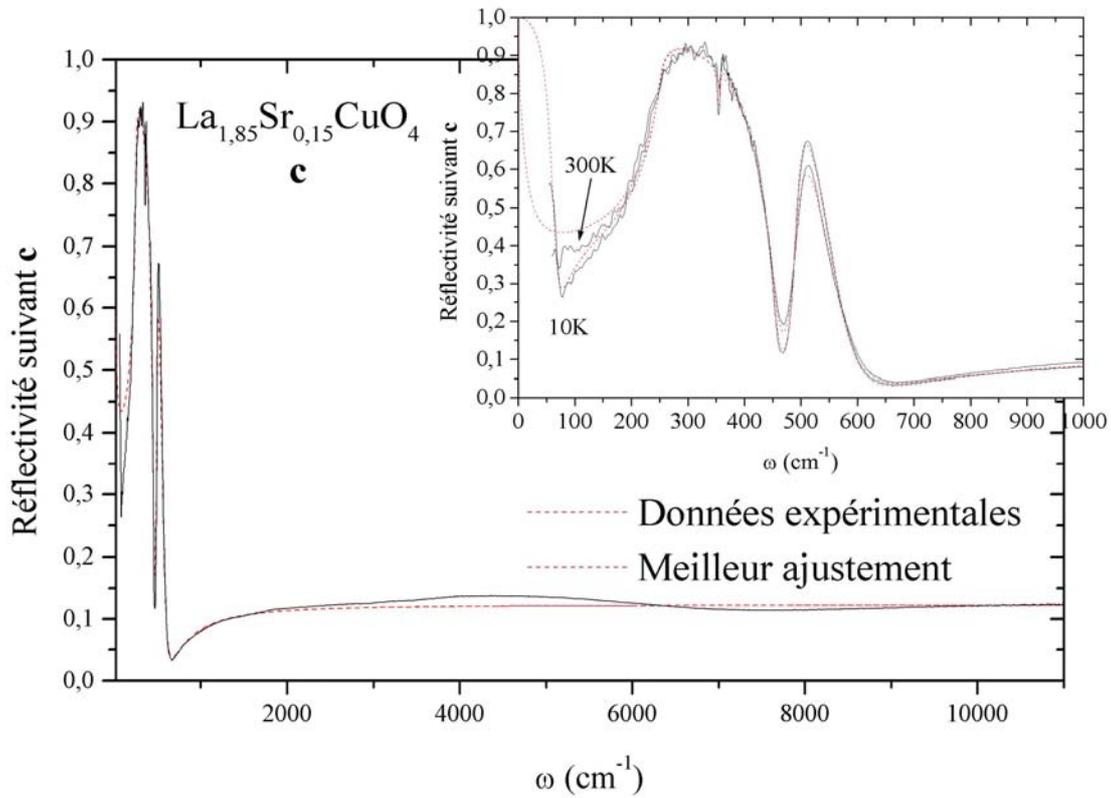


Figure 3.28 : Ajustement des courbes de réflectivité de $La_{1.85}Sr_{0.15}CuO_4$ suivant c à partir du modèle de la fonction diélectrique proposée dans les équations 3.56 et 3.57.

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $La_{2-x}Sr_xCuO_4$

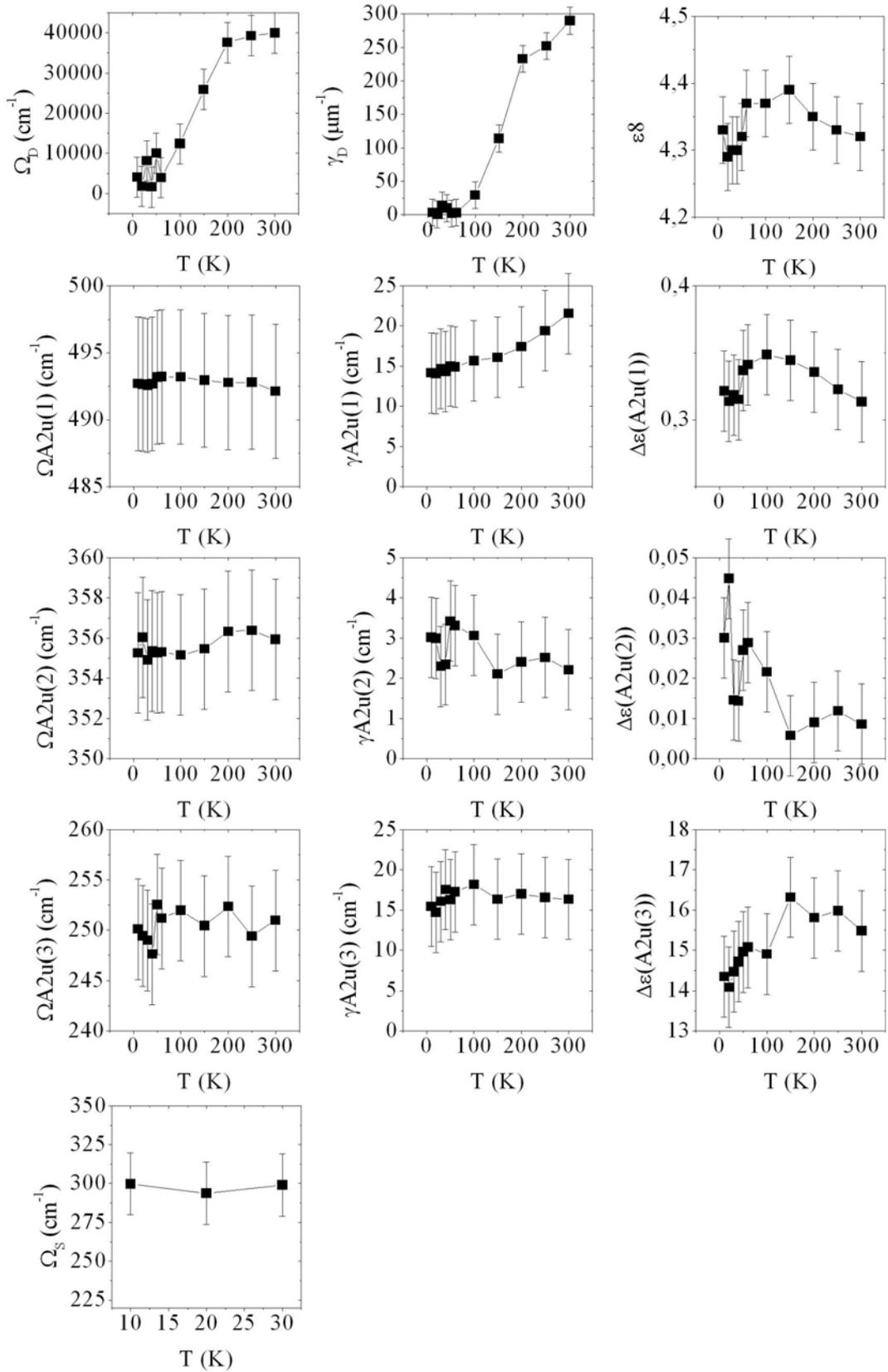


Figure 3.29 : Evolution des paramètres de la fonction diélectrique (équations 3.56 et 3.57) pour l'échantillon $La_{1.85}Sr_{0.15}CuO_4$ suivant l'axe c . L'incertitude a été déterminée manuellement.

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

- *Discussion : évolution des paramètres suivant c*

Drude :

Pour mieux ajuster le spectre de réflectivité de $\text{La}_{1,85}\text{Sr}_{0,15}\text{CuO}_4$, nous avons conservé le terme de Drude. Cela peut s'expliquer par la plus forte concentration des porteurs de charge libres dans cet échantillon. Uchida et al. [Uchida1996] ont souligné qu'une trop faible concentration de porteurs ne permettait pas de suivre l'évolution de la réflectivité en fonction de la température. Le terme de Drude a une fréquence relativement très élevée. Elle se situe dans le MIR pour les basses températures et dans le domaine visible/ultraviolet pour les températures proches de l'ambiante. Le terme d'amortissement associé est également très élevé et diminue également avec la température, en suivant la même allure que la fréquence du terme de Drude. Le fort amortissement observé aux hautes températures, au-delà de 100 K, peut s'expliquer par un temps de vie (temps de relaxation) plus faible des porteurs de charge causée par les plus fortes vibrations du réseau dans cet intervalle de température.

Phonons optiques :

A propos des trois phonons visibles ($A_{2u}(1)$; $A_{2u}(2)$ et $A_{2u}(3)$), on observe, de façon générale une augmentation de la fréquence des phonons avec le dopage. L'évolution en température de la fréquence, de l'amortissement et de l'intensité des phonons ici obtenue est en accord avec les travaux déjà publiés sur des échantillons sous-dopé et dopé optimum [Henn1997]. Entre les phonons $A_{2u}(2)$ et $A_{2u}(3)$ de $\text{La}_{1,92}\text{Sr}_{0,08}\text{CuO}_4$ et $\text{La}_{1,85}\text{Sr}_{0,15}\text{CuO}_4$, il n'existe pas de fortes différences. L'évolution en température est plus marquée pour l'échantillon $\text{La}_{1,92}\text{Sr}_{0,08}\text{CuO}_4$ que pour $\text{La}_{1,85}\text{Sr}_{0,15}\text{CuO}_4$ particulièrement sur les paramètres fréquence et amortissement. L'explication peut se trouver à travers le terme plasma introduit dans $\text{La}_{1,85}\text{Sr}_{0,15}\text{CuO}_4$ et qui écrante les phonons optiques.

Effet Josephson :

Nous avons pu observer un bord de plasma Josephson dans la phase supraconductrice ($T < T_c$) pour l'échantillon optimalement dopé. La fréquence ici obtenue est indépendante de la température. L'incertitude sur cette fréquence est toujours expliquée par la faiblesse du détecteur dans cette région.

3.4.4. Conductivité optique

Le calcul de la conductivité optique à partir des relations de Kramers-Krönig exige la connaissance du spectre à basse et haute fréquence (§ 3.2.4). Les spectres ajustés dans le chapitre précédent nous ont permis de définir les valeurs de la réflectivité à basse fréquence entre 0 et 60 cm^{-1} et à haute fréquence jusqu'à 50000 cm^{-1} . Ces spectres sont ensuite combinés aux spectres expérimentaux pour obtenir un spectre complet de réflectivité entre 0 et 50000 cm^{-1} . C'est sur cet intervalle qu'est calculée la transformation de Kramers-Krönig. Cette dernière permet de déterminer la partie réelle et imaginaire de la fonction diélectrique. La conductivité optique en est déduite à partir des équations (3.23).

Nous nous intéressons, dans ce paragraphe, à l'évolution de la partie réelle de la conductivité.

3.4.4.1 Evolution de la conductivité des plans ab

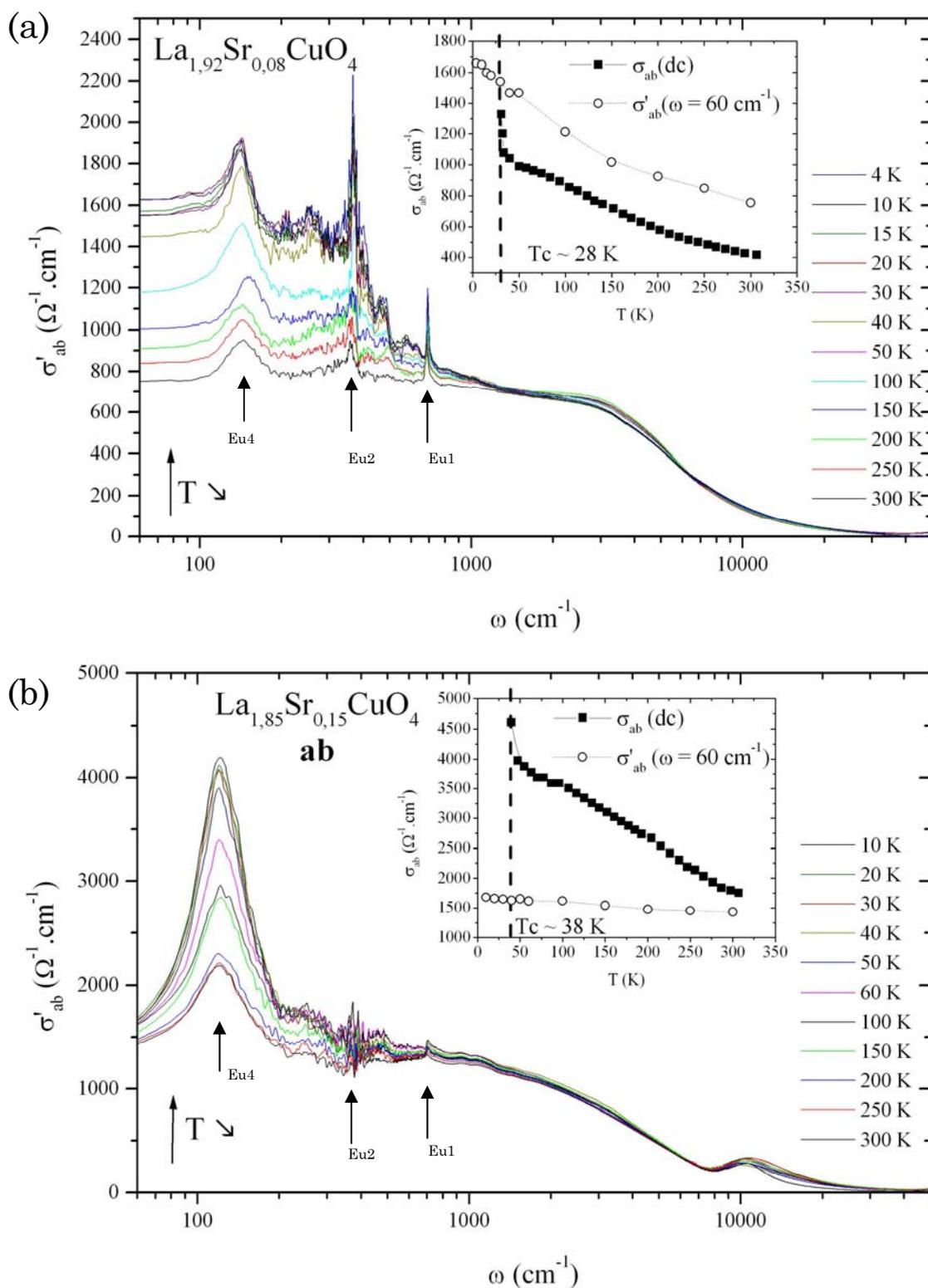


Figure 3.30 : Evolution de la partie réelle de la conductivité optique de $\text{La}_{1.92}\text{Sr}_{0.08}\text{CuO}_4$ (a) et de $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$ (b) suivant **ab** en fonction de la température. En insert est représenté la conductivité déduite des mesures de résistivité (σ_{dc}) et celle obtenue à $\omega = 60 \text{ cm}^{-1}$ (σ'_{ab}) en fonction de la température.

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

La figure 3.30 montre l'évolution de la conductivité optique dans les plans **ab** pour les deux échantillons étudiés. Les allures de ces courbes sont comparables avec celles déjà obtenues dans la littérature sur ce type d'échantillon [Takenaka2002]. Soulignons, néanmoins, que nous avons choisi de ne pas retirer la contribution des phonons optiques contrairement aux résultats présentés régulièrement dans la littérature [Gao1993; Startseva1999; Tajima2005].

En diminuant la température la conductivité augmente à basse fréquence jusqu'à environ 2000 cm^{-1} . L'évolution de la conductivité avec la température est plus marquée pour l'échantillon $\text{La}_{1,92}\text{Sr}_{0,08}\text{CuO}_4$ que $\text{La}_{1,85}\text{Sr}_{0,15}\text{CuO}_4$, dans le même sens que l'évolution des courbes de réflectivité.

Aux très basses fréquences, la détermination de la conductivité est très délicate [Takenaka2002]. Comme nous l'avons expliqué au paragraphe 3.2.4 (p90), l'extrapolation est difficile pour les plans conducteurs. De plus notre appareillage ne nous permet pas de mesurer en dessous de $\omega < 60 \text{ cm}^{-1}$. Nous avons représenté en insert des figures, la conductivité statique déduite des mesures de transport. Pour l'échantillon sous-dopé, au regard de l'insert de la figure 3.30, il semblerait que la conductivité diminue entre 0 et 60 cm^{-1} . Au contraire, pour l'échantillon optimalement dopé $\text{La}_{1,85}\text{Sr}_{0,15}\text{CuO}_4$, il y aurait une augmentation très nette de la conductivité dans cette zone de fréquence, en accord avec les résultats parus récemment de Tajima et al. [Tajima2005] où leurs mesures ont été effectuées entre 8 et 40 cm^{-1} .

La conductivité de l'échantillon $\text{La}_{1,85}\text{Sr}_{0,15}\text{CuO}_4$ est supérieure à celle de $\text{La}_{1,92}\text{Sr}_{0,08}\text{CuO}_4$. Le taux de dopage étant plus important, les porteurs y sont plus nombreux. Aux basses fréquences, la conductivité de $\text{La}_{1,85}\text{Sr}_{0,15}\text{CuO}_4$ est supérieure à celle de $\text{La}_{1,92}\text{Sr}_{0,08}\text{CuO}_4$, on vérifie bien le transfert de poids spectral des hautes énergies (transfert de charge) vers les basses énergies en fonction du dopage.

Remarquons que pour l'échantillon $\text{La}_{1,92}\text{Sr}_{0,08}\text{CuO}_4$, la conductivité à très basse fréquence ($\omega < 100 \text{ cm}^{-1}$) tend vers zéro lorsque la température augmente. Ce résultat a déjà été observé par Takenaka et al. [Takenaka2002] et a été interprété comme un crossover entre une dynamique cohérente à basse température vers une dynamique incohérente.

Sur les deux graphes, on observe clairement la contribution des phonons optiques visibles: $E_u(1) \sim 700 \text{ cm}^{-1}$; $E_u(2) \sim 360 \text{ cm}^{-1}$ et $E_u(4) \sim 130 \text{ cm}^{-1}$. Pour l'échantillon $\text{La}_{1,85}\text{Sr}_{0,15}\text{CuO}_4$, l'intensité de $E_u(2)$ est relativement très importante. Comme cela a été expliqué dans le paragraphe précédent, la valeur de cette intensité a été attribuée et non pas déterminée par le logiciel d'ajustement. Ici, il apparaît clairement que cette valeur a été surestimée. Néanmoins on confirme que l'intensité et l'amortissement (qui se traduit ici par la largeur à mi-hauteur) des phonons optiques $E_u(2)$ et $E_u(4)$ sont diminués par le dopage. La plus forte contribution de la bande plasma et de la bande MIR dans l'échantillon optimalement dopé en est l'explication.

3.4.4.2 Evolution de la conductivité suivant l'axe c

Comme cela a été présenté dans le paragraphe 3.1.1, au fur et à mesure de l'augmentation du dopage en strontium dans le composé $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ et suivant l'axe **c**, il y a également transfert de poids spectral mais celui-ci s'effectue à des énergies plus élevées (de $\sim 45000 \text{ cm}^{-1}$ vers $\sim 16000 \text{ cm}^{-1}$) que le transfert dans les plans **ab** (de $\sim 16000 \text{ cm}^{-1}$ à $< 4000 \text{ cm}^{-1}$). Par conséquent la conductivité optique à basse fréquence n'est principalement expliquée que par les phonons optiques. C'est ce que nous vérifions sur les figures 3.28 (a) et (b).

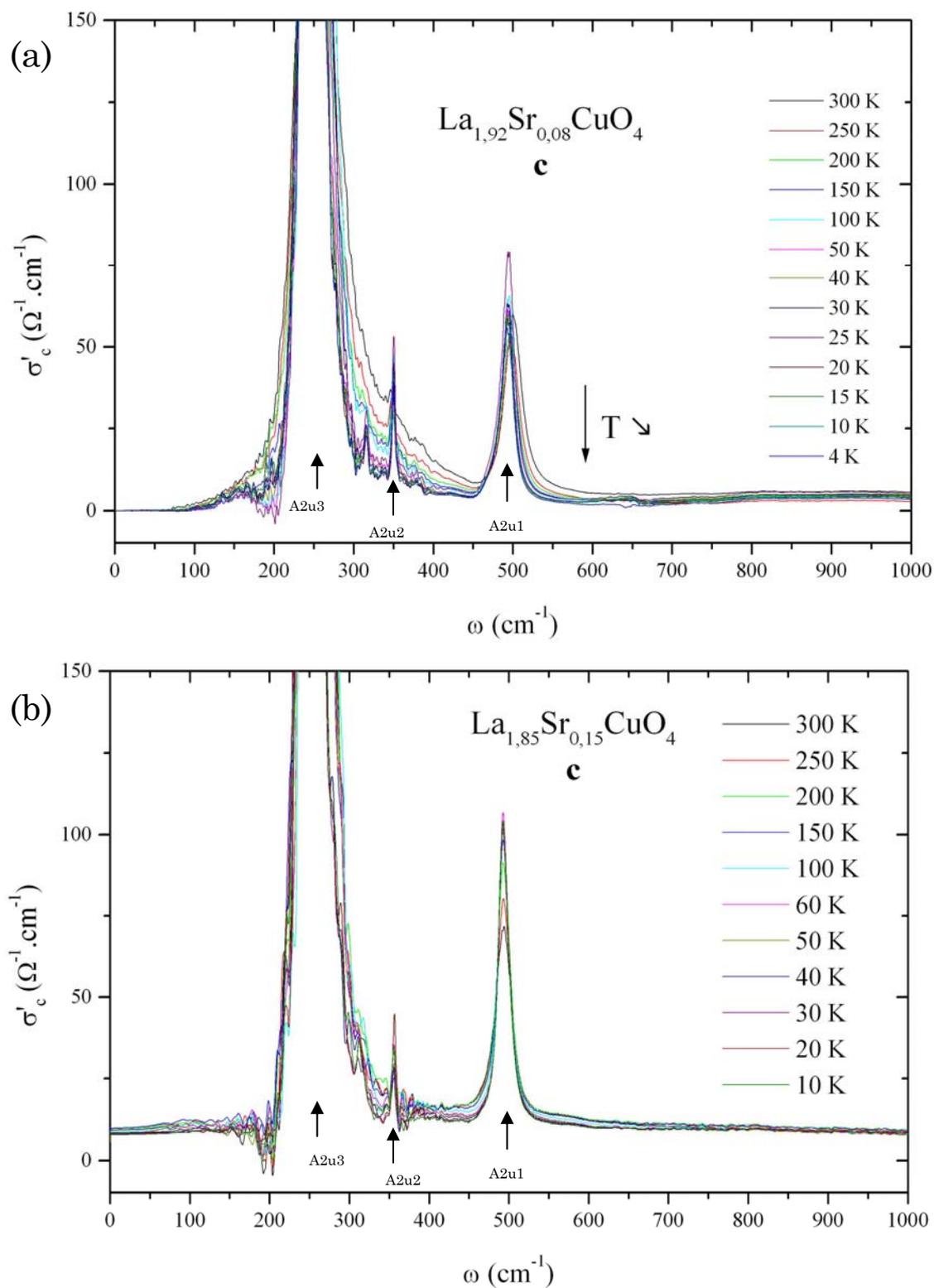


Figure 3.31 : Evolution de la partie réelle de la conductivité optique de $La_{1.92}Sr_{0.08}CuO_4$ (a) et $La_{1.85}Sr_{0.15}CuO_4$ (b) suivant c en fonction de la température.

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

La conductivité de l'axe c obtenue pour $\text{La}_{1,85}\text{Sr}_{0,15}\text{CuO}_4$ (figure 3.31(b)) évolue peu avec la température. Ce résultat est en accord avec le spectre de réflectivité mesuré mais également avec la faible évolution de la résistivité ρ_c observée sur la figure 3.16.

Quant à l'échantillon $\text{La}_{1,92}\text{Sr}_{0,08}\text{CuO}_4$, la conductivité diminue graduellement pour $\omega < 700 \text{ cm}^{-1}$. Ce résultat est également en accord avec le comportement semi-conducteur observé sur la courbe de résistivité correspondante (Figure 3.16). Cette diminution de la conductivité à des températures bien supérieures à la température critique de l'échantillon ($T_c = 28 \text{ K}$) est une signature de la phase de pseudo-gap comme cela l'est expliqué au paragraphe 3.1.2.2. On observe également que les courbes de conductivité des températures inférieures à T_c sont superposées. Si la condensation des porteurs dans la phase supraconductrice en est l'explication, le modèle de paires préformées (§ 1.4.2.2) semble être étroitement lié à la nature de la phase pseudo-gap.

3.4.5 Phase supraconductrice

Au paragraphe 3.1.2.1., nous avons montré que la gap supraconducteur n'était pas clairement identifiable sur les spectres de réflectivité suivant les plans ab . Nous le vérifions également dans nos courbes où aucun « onset » évident de réflectivité ne peut être observé.

La phase supraconductrice peut néanmoins être observée suivant l'axe c par une chute de réflectivité de plasma Josephson (§ 3.1.2.1) comme le montre la figure suivante :

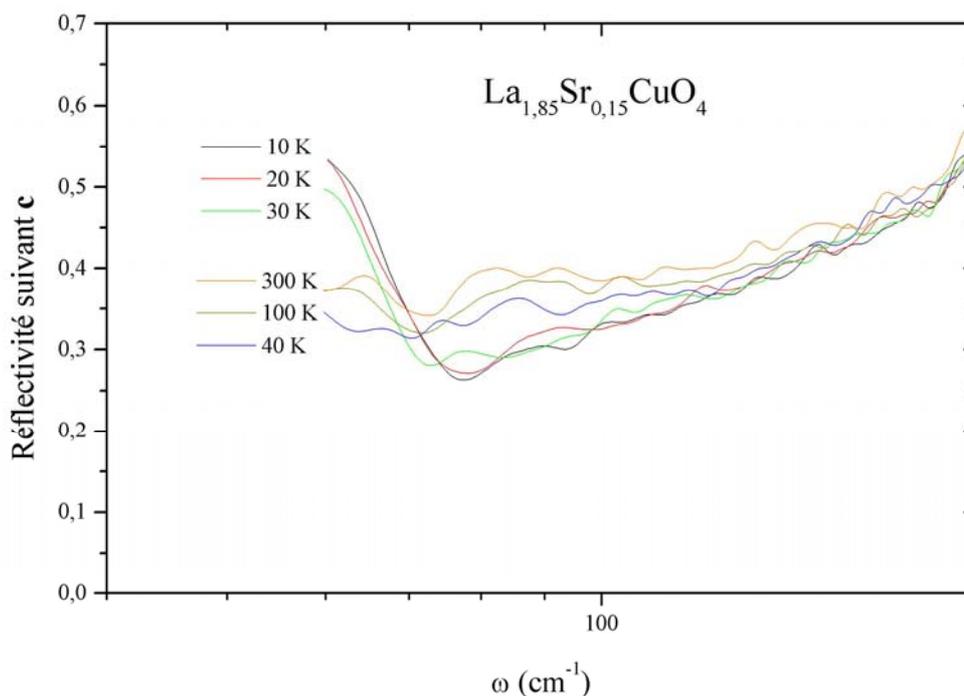


Figure 3.32 : Réflectivité à basse fréquence de $\text{La}_{1,85}\text{Sr}_{0,15}\text{CuO}_4$. Un bord de plasma Josephson est observé vers 80 cm^{-1} pour les températures inférieures à $T_c = 38 \text{ K}$.

La fréquence plasma Josephson de cet échantillon est comprise entre 70 et 80 cm^{-1} . Elle est légèrement inférieure à celle présentée dans la figure 3.8 selon des données d'Uchida et al. [Uchida1996]. Cette différence, comme sa valeur indépendante de la température est à relier à l'incertitude de la mesure sur cette gamme. Comme nous l'avons régulièrement signalé, la qualité du signal dans le FIR est inférieure à celle du MIR et est encore diminuée en présence du polariseur et du cryostat. Si on observe bien la présence de

cette chute de réflectivité Josephson dans la phase supraconductrice, on ne peut conclure sur son évolution en fonction de la température.

Les résultats récents de Kim et al. [Kim2005] sur des échantillons $La_{1,93}Sr_{0,07}CuO_4$ et $La_{1,91}Sr_{0,09}CuO_4$ montrent que le bord plasma de ces échantillons est situé vers 20 cm^{-1} , en dehors de l'intervalle de mesure. Voilà pourquoi, nous n'observons pas ce bord de plasma Josephson pour l'échantillon $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$.

3.4.6 Phase de pseudo-gap

La courbe de conductivité de $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$ suivant l'axe **c** (figure 3.31a), montre une décroissance de la conductivité lorsque la température diminue, à basse fréquence. Nous pouvons attribuer ce résultat comme une signature de la phase de pseudo-gap, en accord avec la littérature [Startseva1999; Uchida1996]. La comparaison des deux courbes de conductivité, suivant l'axe **c**, semblerait montrer que l'échantillon $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$ ne possède pas de phase de pseudo-gap car la conductivité évolue très peu avec la température.

Il est intéressant de confirmer la présence de ce pseudo-gap suivant les plans (**ab**). Comme cela est expliqué au § 3.1.2.2, la signature de la phase de pseudo-gap se lit de façon indirecte. Il faut décrire le système par un modèle à une seule composante (Drude généralisé § 3.1.1.2) où les termes taux de diffusion et masse effective dépendent de la fréquence. L'évolution en température et en fréquence du taux de diffusion et de la masse effective est définie suivant les équations suivantes déduites de l'équation (3.1) :

$$\frac{1}{\tau}(\omega, T) = \varepsilon_v \Omega_p^2 \operatorname{Re} \left(\frac{1}{\sigma(\omega, T)} \right) \quad (3.58)$$

$$\frac{m^*}{m}(\omega, T) = \varepsilon_v \Omega_p^2 \frac{1}{\omega} \operatorname{Im} \left(\frac{1}{\sigma(\omega, T)} \right) \quad (3.59)$$

Ces équations font apparaître le terme Ω_p , la fréquence plasma des porteurs de charge. Le système $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ est un « mauvais métal » où les porteurs de charge libres de type Drude interagissent avec les autres excitations : transition MIR, phonons et transfert de charge. Par conséquent, il faut être particulièrement vigilant pour la définition de cette fréquence plasma Ω_p qui ne doit considérer que les porteurs qui sont associés au modèle de Drude généralisé : la fréquence plasma déduite de l'ajustement (modèle de Lorentz, deux composantes) correspond uniquement aux porteurs libres. Ces derniers ne concordent pas avec l'approche de Drude généralisé où les porteurs sont fortement couplés.

Pour déterminer cette fréquence plasma, nous nous sommes intéressés à deux méthodes : pic de la fonction de perte et déduction à partir du poids spectral.

Sur les spectres de réflectivité obtenus (figures 3.18(a) et 3.19(a)), une chute de réflectivité plasma est clairement visible vers 7000 cm^{-1} (0,87 eV). Celle-ci ne varie pas (ou très peu) avec la température et est légèrement supérieure pour l'échantillon le plus dopé $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$. L'étude de cette fréquence est plus visible en déterminant la fonction de perte : $\operatorname{Im}(1/\varepsilon(\omega))$. La transformation de Kramers-Krönig permet de déterminer la partie réelle et imaginaire de la fonction diélectrique. Dans le modèle de Drude, cette fonction de perte est maximale à la fréquence plasma $\tilde{\Omega}_p = \Omega_p / \sqrt{\varepsilon_\infty}$.

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $La_{2-x}Sr_xCuO_4$

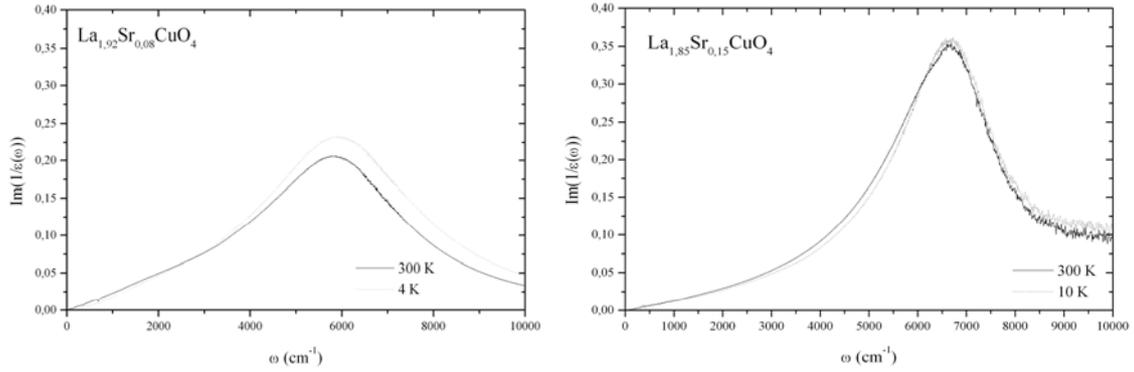


Figure 3.33 : Fonction de perte calculée à partir des transformations de Kramers-Krönig sur les données de réflectivité pour les échantillons $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$ et $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$ pour les températures extrêmes étudiées.

En accord, avec des résultats déjà parus [Gao1993], en diminuant la température, on n'observe pas d'augmentation de la fréquence bord de plasma $\tilde{\Omega}_p$ mais une légère augmentation de l'intensité. Par contre, en fonction du taux des porteurs, on observe bien une augmentation de $\tilde{\Omega}_p(La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4) \sim 5800 \text{ cm}^{-1}$ vers $\tilde{\Omega}_p(La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4) \sim 6700 \text{ cm}^{-1}$. En fait, cette valeur de $\tilde{\Omega}_p$ prend en compte les excitations de haute énergie résumées dans le terme ϵ_∞ et qui élèvent la fonction diélectrique. Le bord de plasma que l'on observe est à relier à la fréquence plasma par $\tilde{\Omega}_p = \Omega_p / \sqrt{\epsilon_\infty}$. Le tableau 3.34 présente les fréquences plasmas déduites de ce calcul et les fréquences du terme de Drude introduits lors des ajustements des spectres de réflectivité.

$La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$				
	$\tilde{\Omega}_p \text{ (cm}^{-1}\text{)}$	ϵ_∞	$\Omega_p \text{ (cm}^{-1}\text{)}$	$\Omega_D \text{ (cm}^{-1}\text{)}$
T = 4 K	5900 ± 200	$6,43 \pm 0,2$	14960 ± 750	7930 ± 200
T = 300 K	5830 ± 200	$6,83 \pm 0,2$	15250 ± 750	11800 ± 200

$La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$				
	$\tilde{\Omega}_p \text{ (cm}^{-1}\text{)}$	ϵ_∞	$\Omega_p \text{ (cm}^{-1}\text{)}$	$\Omega_D \text{ (cm}^{-1}\text{)}$
T = 10 K	6680 ± 200	$4,60 \pm 0,1$	14330 ± 600	14255 ± 100
T = 300 K	6650 ± 200	$4,60 \pm 0,1$	14260 ± 600	14780 ± 100

Tableau 3.34 : Valeurs de fréquence plasma calculées à partir du pic de la fonction de perte. Est également représenté la fréquence plasma de Drude Ω_D déterminé avec l'ajustement des spectres de réflectivité (figures 3.23 et 3.25).

De façon générale, les valeurs calculées de fréquence Ω_p sont plus importantes que celles déterminées par l'ajustement Ω_D . Ceci s'explique par le fait que la valeur de fréquence de plasma Ω_p déterminée à partir de la fonction perte prend en compte d'autres contributions comme la bande MIR. Cette dernière s'observe particulièrement dans la fonction perte (figure 3.33) où elle modifie la largeur à mi-hauteur de la fonction. L'augmentation de cette largeur à mi-hauteur suit l'augmentation de l'intensité de la bande MIR (figures 3.23 et 3.25).

Il semblerait que cette fréquence plasma soit indépendante de la température. Il faut être toutefois prudent à cause de l'incertitude assez élevée sur la détermination de Ω_p .

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $La_{2-x}Sr_xCuO_4$

A cause de cette importante incertitude, le calcul ici effectué de Ω_P est très quantitatif. La fréquence plasma utilisée dans les équations (3.58) et (3.59) ne sera pas déterminée à partir de la fonction perte.

L'autre technique utilisée pour déterminer la fréquence plasma est basée sur le calcul du poids spectral et des règles de somme. Le poids spectral correspond à un nombre effectif de porteurs. Il se calcule en déterminant l'intégrale :

$$W(\omega_1; \omega_2; T) = \int_{\omega_1}^{\omega_2} \sigma'(\omega) d\omega \quad (3.60)$$

En calculant l'intégrale de $[0; \omega_c]$, la valeur de $W(0; \omega_c; T)$ est proportionnelle au nombre de porteurs de charge participant à la réponse du système jusqu'à la fréquence de coupure ω_c à la température T .

D'autre part, les relations de Kramers-Krönig permettent de déterminer des règles de somme [Kramers1927; Kronig1926]. Celles-ci peuvent s'appliquer à la fonction diélectrique $\varepsilon(\omega)$ et à la conductivité $\sigma(\omega)$, en considérant à hautes fréquences que le système correspond à un gaz de charges libres selon le modèle de Drude. La fréquence plasma Ω_P est fonction de la densité totale des charges. Autrement dit, quand $\omega \rightarrow \infty$, l'équation (3.42) s'écrit :

$$\tilde{\varepsilon}(\omega) = 1 - \frac{\Omega_P^2}{\omega(\omega + i\gamma)} \quad (3.61)$$

où

$$\Omega_P^2 = \frac{N_{\text{eff}} \cdot e^2}{\varepsilon_V m^*} \quad (3.62)$$

Dans ce cas N_{eff} correspond à la densité totale des charges. Une règle de somme obtenue à partir des relations de Kramers-Kronig est :

$$\int_0^{\infty} \omega \cdot \varepsilon''(\omega) d\omega = \frac{\pi}{2} \Omega_P^2 \quad (3.63)$$

en utilisant la relation entre conductivité et fonction diélectrique : $\sigma'(\omega) = \varepsilon_V \cdot \varepsilon''(\omega) \cdot \omega$, on peut écrire :

$$\frac{1}{\varepsilon_V} \int_0^{\infty} \sigma'(\omega) d\omega = \frac{\pi}{2} \frac{N_{\text{eff}} \cdot e^2}{\varepsilon_V m^*} \quad (3.64)$$

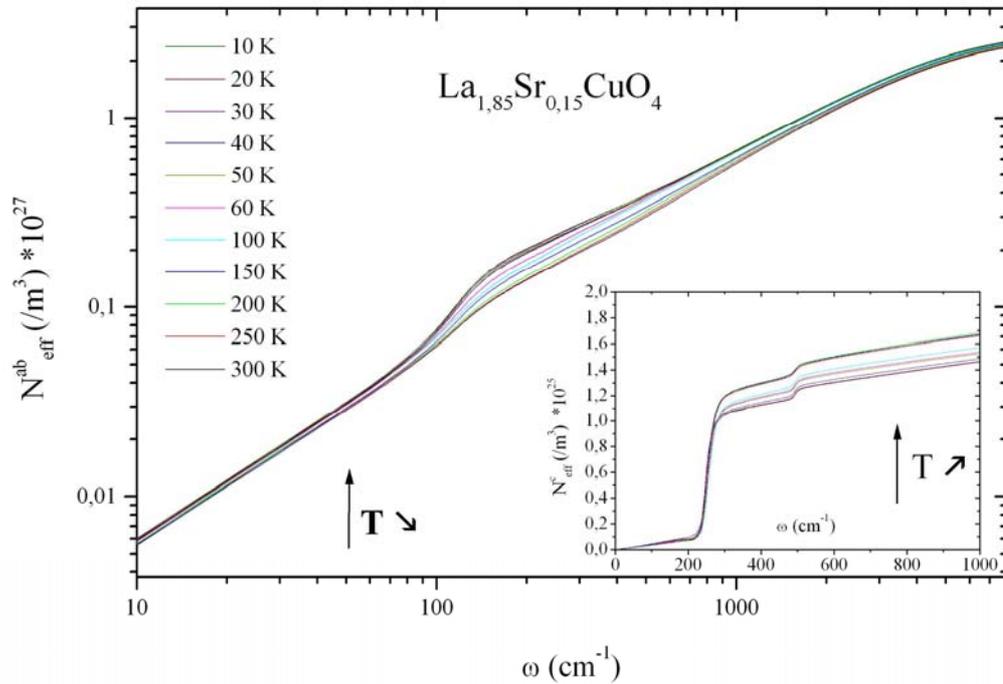
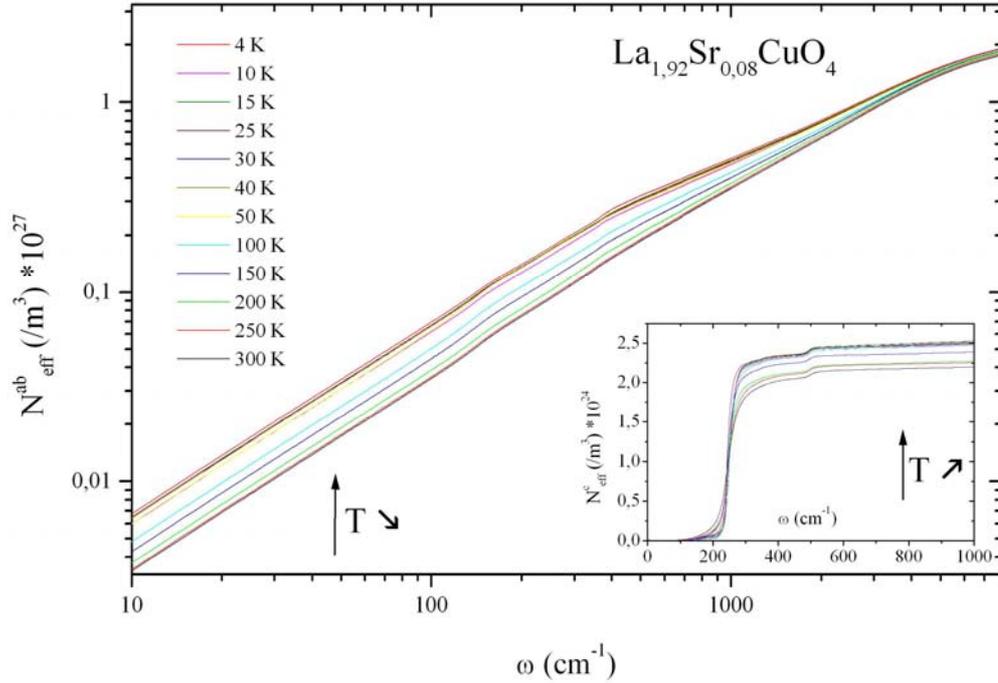
En calculant le poids spectral, jusqu'à la fréquence de coupure ω_c , on en déduit que la densité des porteurs de charge à ω_c vaut :

$$N_{\text{eff}} = \frac{2 \cdot m^*}{\pi \cdot e^2} \int_0^{\omega_c} \sigma'(\omega) d\omega \quad (3.65)$$

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $La_{2-x}Sr_xCuO_4$

On peut déduire la fréquence plasma de l'ensemble des porteurs de charge présents à ω_c en utilisant l'équation (3.62).

Les figures suivantes représentent l'évolution de la densité des porteurs (poids spectral) dans les plans **ab** pour les deux échantillons ici en fonction de la température :



Figures 3.35 et 3.36 : Evolution du nombre de la densité des porteurs de charge dans les plans ab en fonction de la température pour $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$ (3.35) et $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$ (3.36). En insert est représenté la densité suivant l'axe c.

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $La_{2-x}Sr_xCuO_4$

La densité de porteurs évolue de façon plus marquée en fonction de la température pour $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$. La « bosse » observée vers 200 cm^{-1} pour l'échantillon $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$ s'explique par la surestimation de l'intensité du phonon optique $E_u(2)$ lors des ajustements.

Nous avons vérifié pour l'échantillon $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$ que les transitions liées aux transferts de charge s'effectuent dans l'intervalle d'énergie de 1 à 1,5 eV (8000 à 12000 cm^{-1}) (figure 3.24) en accord avec des résultats déjà obtenus et présentés sur la figure 3.2. La fréquence plasma va donc être déterminée en prenant comme fréquence de coupure 8000 cm^{-1} pour s'assurer que les contributions liées aux transferts de charge ne sont pas prises en compte dans notre calcul.

La figure 3.37 présente l'évolution de la fréquence plasma déduite du calcul de la densité de porteurs à 8000 cm^{-1} en fonction de la température.

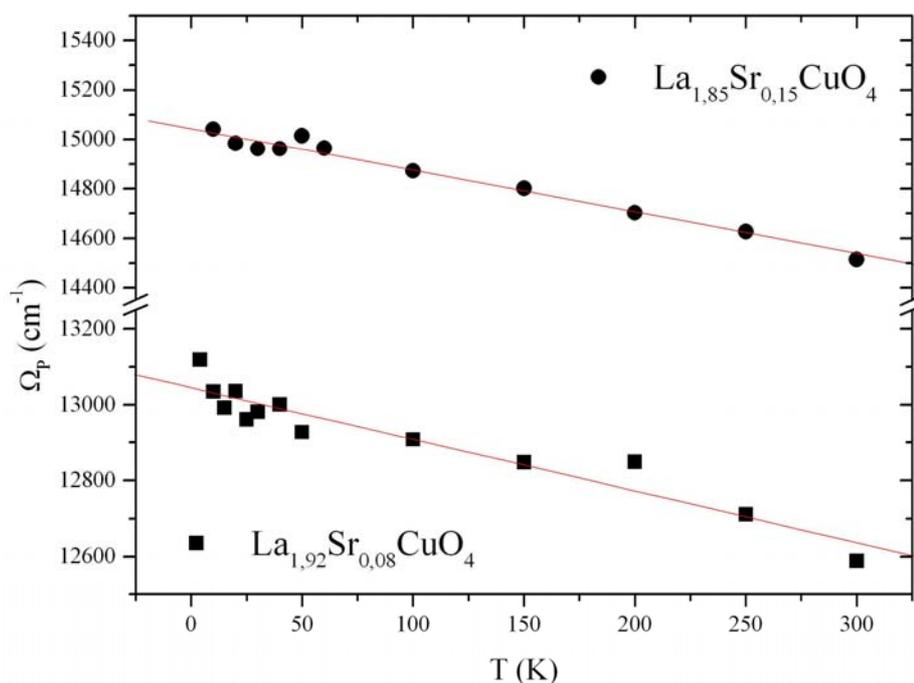


Figure 3.37 : Evolution de la fréquence plasma déterminée à partir de la densité des porteurs (Figures 3.35 et 3.36) pour $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$ et $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$ en fonction de la température.

La variation de la densité des porteurs (et donc de la fréquence plasma) est linéaire en fonction de la température. Plus la température diminue, plus les valeurs sont importantes en accord avec l'augmentation du poids spectral. L'échantillon $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$, plus dopé avec une concentration de porteurs plus importante montre évidemment des plus fortes valeurs de fréquence plasma.

Si on devait comparer cette fréquence plasma avec les fréquences de Drude obtenues par les ajustements de réflectivité, on s'aperçoit que les valeurs ici obtenues sont plus grandes, un taux de porteurs plus important en est l'explication. D'autre part, l'évolution en température est assez différente car aucune dépendance linéaire de Ω_D en fonction de la température n'a été obtenue au cours des ajustements.

Maintenant que la valeur de la fréquence Ω_P est déterminée, nous allons pouvoir déterminer l'évolution du taux de diffusion et de la masse effective des porteurs suivant les équations (3.58) et (3.59).

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

Dans le modèle à une composante, on ne considère qu'un seul type de porteurs pour traduire l'évolution à faible fréquence (Drude dans le modèle à deux composantes) et l'épaulement à plus haute fréquence (Bande MIR dans le modèle à deux composantes). Par conséquent, pour le calcul de $1/\tau$ et m^*/m nous avons retiré de la fonction diélectrique toutes les contributions autres que celles liées à Drude et à la bande MIR : c'est à dire les phonons optiques visibles et les transitions liées aux transferts de charge.

La figure 3.38 montre un exemple des courbes partie réelle σ' et imaginaire σ'' de la conductivité obtenues à partir des ajustements présentés dans le paragraphe précédent.

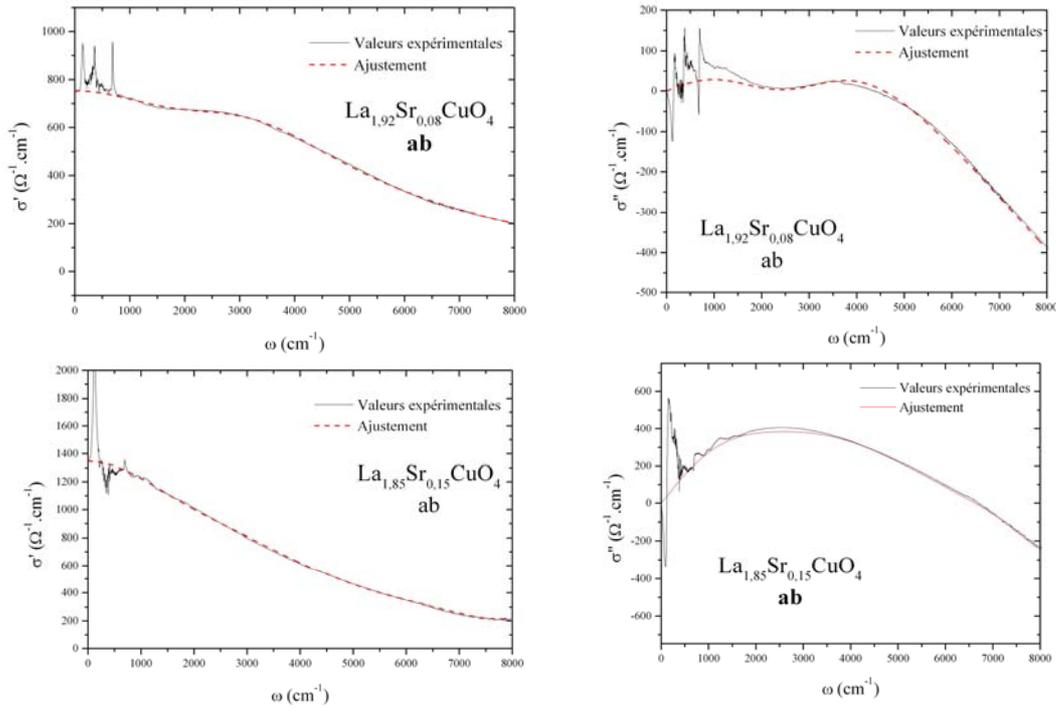


Figure 3.38 : Ajustements de $\text{La}_{1.92}\text{Sr}_{0.08}\text{CuO}_4$ (partie supérieure) et $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$ (partie inférieure) de la partie réelle σ' (gauche) et de la partie imaginaire σ'' (droite) à $T = 300$ K. La contribution des phonons et des transferts de charges ont été ici retiré.

Une fois l'ensemble des courbes déterminées, nous avons calculé le taux de diffusion et la masse effective à faible fréquence. Les résultats obtenus pour l'échantillon $\text{La}_{1.92}\text{Sr}_{0.08}\text{CuO}_4$ sont présentés dans la figure 3.39 et ceux pour $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$ dans la figure 3.40.

La différence entre les deux échantillons est flagrante : en fonction de la température pour l'échantillon optimalement dopé, le taux de diffusion et de la masse effective à basse fréquence évoluent peu.

Quant à l'échantillon sous-dopé, il présente un changement notable du comportement de ces deux valeurs en dessous de la fréquence $\omega \approx 1500 \text{ cm}^{-1}$ pour le taux de diffusion et $\omega \approx 1800 \text{ cm}^{-1}$ pour la masse effective. La température à partir de laquelle cette diminution apparaît sert de définition à la température du pseudo-gap T^* . Au regard du graphe 3.39, on s'attend à une température de pseudo-gap T^* légèrement supérieure à l'ambiante vers 350 à 400 K. Néanmoins, il faudrait des données supérieures à 300 K pour conclure sur la valeur de T^* . Au fur et à mesure que la température diminue, la décroissance augmente graduellement et n'est plus (ou peu) modifiée dès que $T < T_c$.

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $La_{2-x}Sr_xCuO_4$

Startseva et al. [Startseva1999] ont étudié deux échantillons proches de l'optimum : $La_{1,87}Sr_{0,13}CuO_4$ et $La_{1,84}Sr_{0,14}CuO_4$. Puisque les résultats montrent un comportement de pseudo-gap avec une température T^* supérieure à 400 K pour les deux échantillons, les auteurs en déduisent que la température T^* ne se confond pas avec la température critique T_c au dopage optimal. Ce résultat est en désaccord avec le notre. Soulignons que ces auteurs, contrairement aux résultats ici présentés, n'ont pas retiré la contribution des phonons optiques des plans ab qui apparaît en dessous de 1000 cm^{-1} et ont montré eux-mêmes qu'une contribution des phonons optiques de l'axe c était observable. Tajima et al. [Tajima2005] ont vérifié également que les pics présents entre 500 et 700 cm^{-1} sont expliqués par les phonons de l'axe c.

Un résultat intéressant est que le taux de diffusion et la masse effective n'évoluent plus pour les températures situées dans la zone supraconductrice. Ce résultat semblerait montrer qu'il existe une relation entre la phase supraconductrice et le pseudo-gap : soit la phase supraconductrice stoppe l'évolution de la décroissance, soit la décroissance tend vers la phase supraconductrice.

En extrapolant le taux de diffusion à fréquence zéro, on obtient respectivement pour $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$ $1/\tau_0 \approx 2500\text{ cm}^{-1}$ et $1/\tau_0 \approx 1500\text{ cm}^{-1}$ pour $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$. Ces valeurs concordent avec celles obtenues par Startseva [Startseva1999].

Si on considère la fréquence ω_{ab} , la fréquence à partir de laquelle on observe la suppression du taux de diffusion qui vaut 1500 cm^{-1} pour $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$, on remarque qu'elle est deux fois plus grande que $\omega_c \sim 750\text{ cm}^{-1}$, fréquence en dessous de laquelle on voit une évolution de la conductivité suivant l'axe c (figure 3.31a).

Nous avons également représenté l'évolution de la masse effective pour les deux échantillons étudiés. Comme Puchkov et al. [Puchkov1996] l'ont montré sur des composés $YBaCuO$ et $BSCCO$ et en accord avec les résultats de Startseva, il y a une augmentation graduelle de la masse effective dans la phase de pseudo-gap en fonction de la température. Pour l'échantillon $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$, les variations de la masse effective sont faibles en fonction de la température et de la fréquence. Selon Gao et al. [Gao1993], l'évolution de la masse effective (m^* proportionnel à m aux hautes fréquences) est en accord avec un scénario de liquide de Fermi marginal ou NFL proposé par Varma et al. [Varma1989]. D'après eux, le comportement de m^*/m et de $1/\tau$ en fonction de ω est à relier à une interaction de Coulomb entre les porteurs et un large spectre d'autres excitations. A faible fréquence, les porteurs formeraient un nuage d'excitations de faible énergie qui serait responsable de l'augmentation de la masse effective. Ce nuage ne pourrait pas suivre le mouvement rapide des porteurs à plus hautes énergies. Ce résultat met en évidence un couplage entre les porteurs et d'autres excitations du système.

Gao et al. se sont également intéressés à l'évolution du taux de diffusion en fonction de la température sur un film mince. Selon ces auteurs, l'échantillon étudié est optimalement dopé. Cependant ils observent une décroissance du taux de diffusion à basse fréquence. Leur température critique obtenue proche de 30 K et leur résultat contraire au notre semblerait montrer qu'ils ont surestimé le dopage de leur échantillon, et que celui serait en fait sous-dopé.

Nous observons dans notre étude un comportement particulier de la masse effective et du taux de diffusion dans l'échantillon sous-dopé que nous attribuons à la phase de pseudo-gap. Comment relier notre résultat à la phase de pseudo-gap ? Selon le modèle RVB (§ 1.4.2.1), il y a supraconductivité lorsqu'il y a, à la fois, condensation de spinons et holons. La température T^* correspondrait à la température de condensation de spinons, le pseudo-gap serait une phase de gap de spin et T^* viendrait se confondre avec T_c dans la partie sur-dopée. Par conséquent l'échantillon optimalement dopé, présenterait une phase de pseudo-gap, ce que nous n'observons pas : ce scénario ne semble pas correspondre à notre résultat.

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

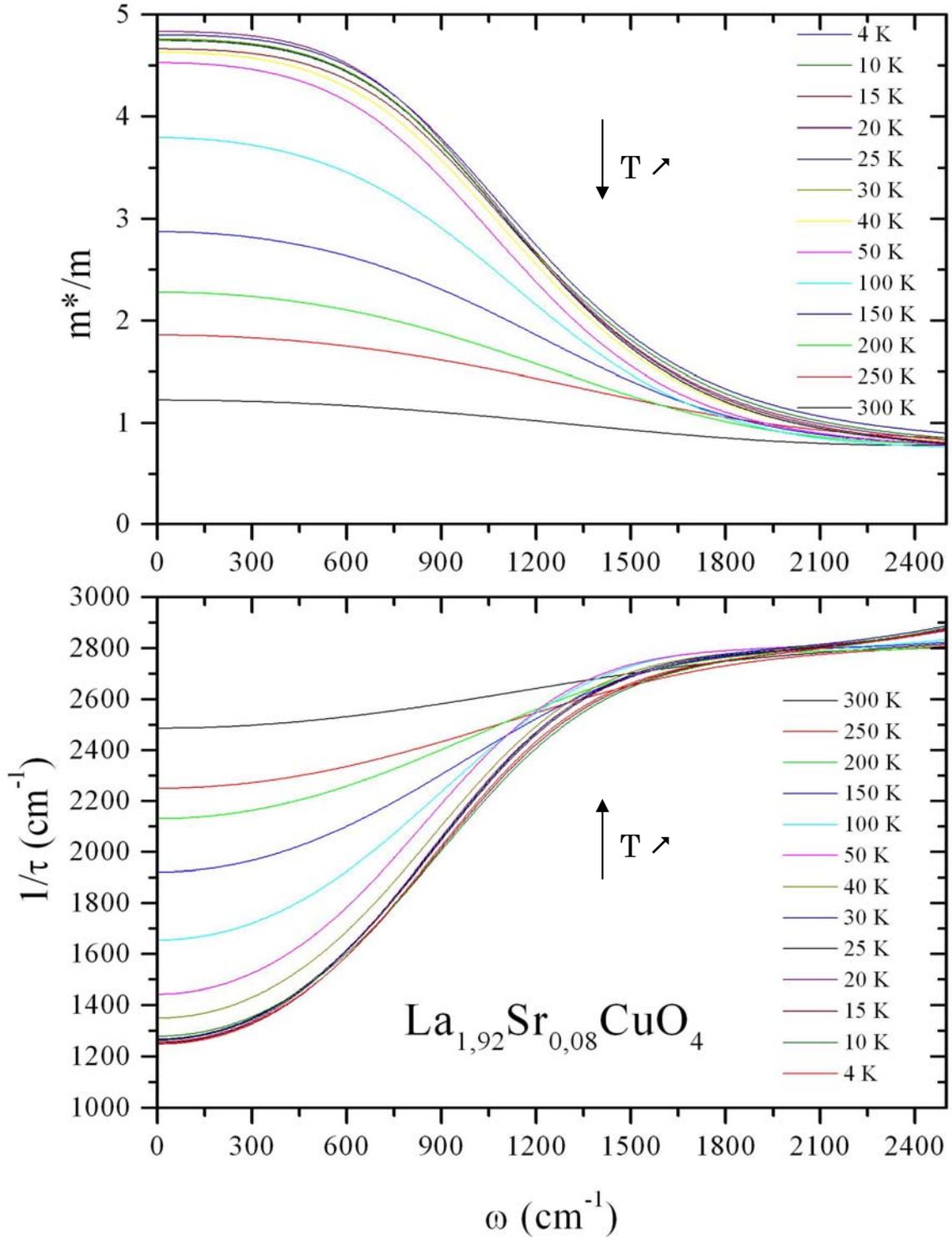


Figure 3.39 : (Haut) Evolution de la masse effective déterminée en utilisant l'équation (3.59). (Bas) Evolution du taux de diffusion en fonction de la fréquence déterminé par l'équation (3.58). L'échantillon $\text{La}_{1,92}\text{Sr}_{0,08}\text{CuO}_4$ est sous-dopé.

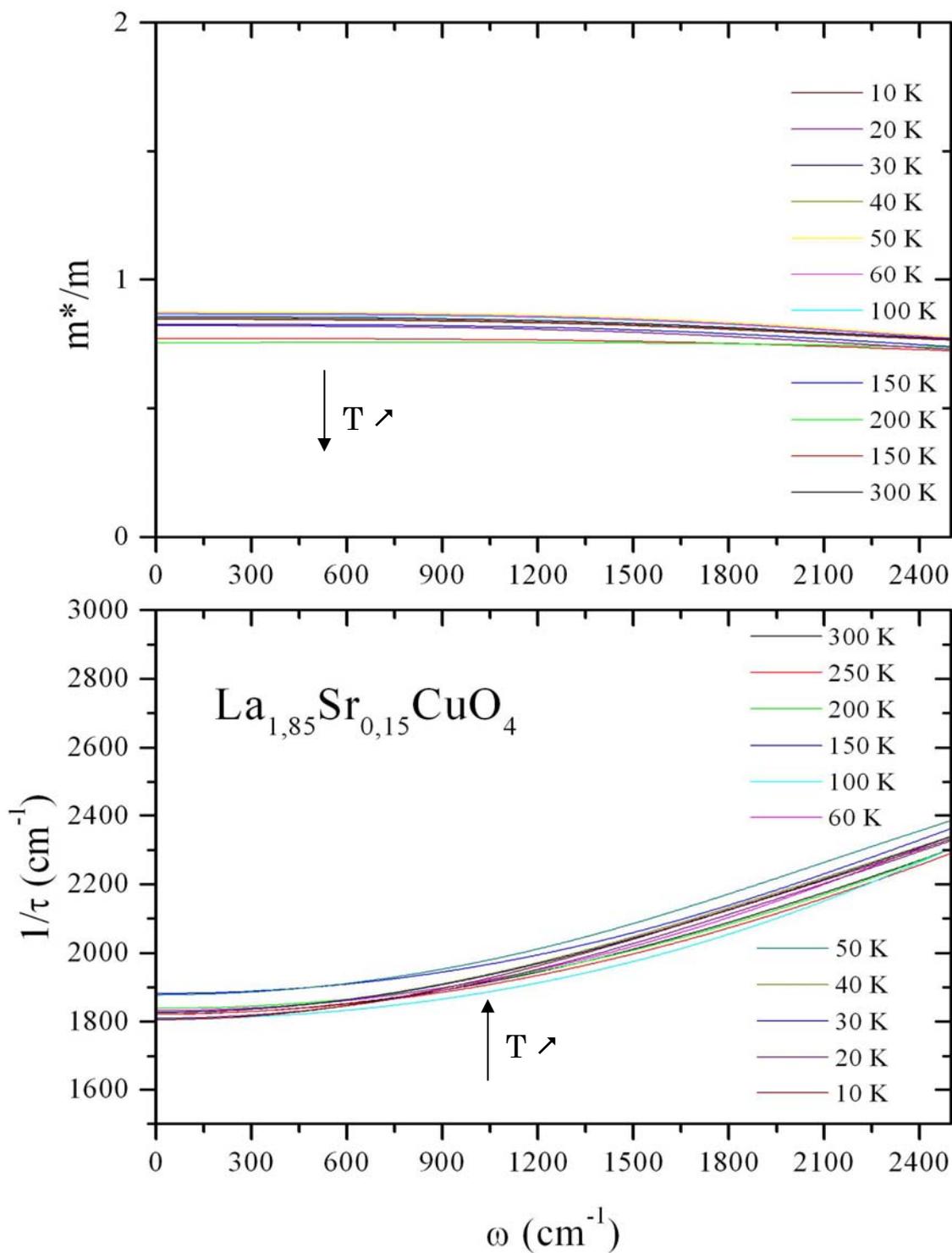


Figure 3.40 : (Haut) Evolution de la masse effective déterminée en utilisant l'équation (3.59). (Bas) Evolution du taux de diffusion en fonction de la fréquence déterminé par l'équation (3.58). L'échantillon $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$ correspond au dopage optimal.

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $La_{2-x}Sr_xCuO_4$

Soulignons toutefois que certains travaux montrent que la phase de pseudo-gap s'étend dans la région sur-dopée dans des échantillons à base de lanthane [Häfliger2004].

Emery et Kivelson ont proposé dans la lignée de la théorie BCS que la phase de pseudo-gap correspondrait à un état d'appariement des paires supraconductrices mais sans cohérence de phase. Cette dernière est obtenue à T_c et on obtient alors la phase supraconductrice. Selon ces auteurs, on ne peut distinguer cette phase sans cohérence que dans les sous-dopés où la concentration des porteurs est faible. Dans un supraconducteur conventionnel, comme dans les composés sur-dopés pour les SHTc, où la concentration des porteurs est plus importante les fluctuations de phase se font moins ressentir. Ce scénario est en accord avec notre résultat. L'appariement des paires supraconductrices commencerait à T^* , augmenterait au fur et à mesure de la diminution de la température jusqu'à T_c où il y aurait cohérence de phase. Les porteurs qui s'apparient entraîneraient une augmentation du temps de relaxation τ et donc une diminution du taux de diffusion $1/\tau$. De même, l'appariement entraînerait une augmentation de la masse effective des porteurs. Dans l'échantillon $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$ où la concentration des porteurs est plus importante, de telles fluctuations de phase sont plus difficiles à discerner et aucune manifestation n'est observée.

Nous n'observons pas de phase de pseudo-gap pour $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$. La ligne T^* où s'ouvre la phase de pseudo-gap aurait la valeur nulle au point critique quantique pour la composition $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$ en accord avec un modèle QCP (§ 1.4.1.1 Cf. Fig. 1.16).

3.4.7 Stripes

Selon Dumm et al. [Dumm2002], le pic observé en conductivité vers 50 cm^{-1} dans le composé $La_{1,275}Nd_{0,6}Sr_{0,125}CuO_4$ est associé à un ordre statique de stripes. Historiquement, c'est dans un composé LSCO dopé strontium néodyme que fut mis en évidence un ordre statique de stripes [Tranquada1995].

Les travaux de Lucarelli et al. sur $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ ($0 < x < 0,26$) ont montré un pic vers 30 cm^{-1} interprété comme une signature de mise en ordre de charges [Lucarelli2003]. Soulignons que ce résultat est discutable et peut être expliqué par une contribution de l'axe **c** dans les mesures des plans **ab** [Tajima2003].

Quoiqu'il en soit, notre appareillage ne nous permet pas de mesurer en dessous de 40 cm^{-1} . De plus, la détection du rayonnement FIR ($60 < \omega < 400\text{ cm}^{-1}$) est faible et est d'avantage réduite par la présence du polariseur et des fenêtres du cryostat. Par conséquent, nos mesures sont fortement bruitées sur cet intervalle et nous ne pouvons pas observer de pics dans cette gamme de fréquence. Il nous est donc difficile d'associer des pics de très faible fréquence comme une signature de stripes dans cette étude.

Soulignons que des travaux effectués au laboratoire sur le composé $La_2NiO_{4,11}$ montrent des anomalies associées sur le spectre de conductivité optique à une signature de stripes statiques [Poirot-Reveau2002]. Dans ces travaux, les stripes sont assimilés à un concept de multipolarons. Les deux anomalies observées sont attribuées : (i) un changement de régime de polarons mobiles à polarons piégés (à 106 K) par abaissement de la température et (ii) un ordre combiné de charge et de spins mis en évidence, par ailleurs par d'autres méthodes expérimentales.

3.5 Conclusion

Nous avons mesuré les spectres de réflectivité entre 60 et 12000 cm^{-1} de deux échantillons $La_{2-x}Sr_xCuO_4$: un sous-dopé de composition $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$ et l'optimalement dopé de composition $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$ suivant les plans **ab** et l'axe **c** pour des températures allant de 4 K à 300 K. La température de transition supraconductrice vaut respectivement 28 K pour l'échantillon sous-dopé et 38 K pour le dopé optimum. Les mesures de réflectivité mettent en évidence clairement la forte anisotropie électronique avec des plans conducteurs **ab** montrant une chute de réflectivité plasma situé vers 7000 cm^{-1} et un comportement semi-conducteur de l'axe **c**. De façon générale, on observe une augmentation de la réflectivité en diminuant la température. L'ajustement des spectres par un modèle de Lorentz montre que la réflectivité suivant **ab** est composée d'un terme de Drude, d'une bande MIR et de trois phonons optiques visibles. La réflectivité mesurée suivant l'axe **c** est essentiellement composée de trois phonons optiques. Le spectre de réflectivité de l'échantillon $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$ suivant l'axe **c** montre une chute de réflectivité plasma Josephson, signature de l'état supraconducteur qui disparaît au dessus de la température critique.

Nous avons déterminé la conductivité optique de ces échantillons en température à partir des spectres de réflectivité et des transformations de Kramers-Krönig. Les extrapolations à basses et hautes fréquences ont été déduites des ajustements précédentes. La conductivité de l'échantillon $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$ est plus importante que celle de $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$ en accord avec un nombre plus important de porteurs dans l'échantillon optimalement dopé. La conductivité déterminée suivant l'axe **c** à basse fréquence est essentiellement gouvernée par les phonons optiques. Un premier résultat remarquable est que la conductivité de $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$ augmente lorsque la température augmente. Ce comportement est anormal par rapport à un modèle de Drude classique où on s'attend à une augmentation de la conductivité avec la baisse de la température. En accord avec la littérature, on attribue ce comportement atypique à la phase de pseudo-gap.

Pour mettre en évidence cette phase suivant les plans conducteurs, nous avons « confronté » cette vision à deux composantes (Drude + MIB) à la vision une composante (Drude généralisé). Dans cette dernière, on suppose qu'il n'existe qu'un seul type de porteurs avec un temps de relaxation et une masse effective qui évoluent en fréquence. On a clairement mis en évidence, à basse fréquence, une évolution en température de la masse effective et du taux de diffusion pour l'échantillon sous-dopé ; évolution que l'on n'observe pas pour l'échantillon optimalement dopé.

L'ensemble de nos résultats confirmerait donc la présence d'un pseudo-gap pour l'échantillon $La_{1,92}Sr_{0,08}CuO_4$ que nous n'observons pas pour l'échantillon $La_{1,85}Sr_{0,15}CuO_4$. Autrement dit, la température T^* qui délimite cette phase de la phase de non-liquide de Fermi ne se confondrait pas dans la partie sur-dopée à la température de transition supraconductrice, mais juste avant l'optimum en accord avec un scénario de point critique quantique.

Néanmoins pour confirmer notre hypothèse, d'autres études doivent être menées. Dans un premier temps, une étude qualitative des données de taux de diffusion et masse effective des échantillons doit être entreprise afin d'obtenir des renseignements supplémentaires sur les phases en présence (dans un liquide de Fermi, $1/\tau$ est proportionnel à $(\hbar\omega)^2 + (\pi k_B T)^2$ [Puchkov1996 ; Pines1966]). De plus, une étude plus approfondie des données présentées dans les figures 3.25 et 3.26 donnera des informations sur la nature des porteurs (mobiles, fixes) et des autres types d'excitations (type phonons et polarons).

III. SPECTROSCOPIE INFRAROUGE DE $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

Ensuite, il faudrait étudier le magnétisme de ces composés. Dans ce travail, nous nous sommes intéressés à la dynamique des charges et il serait intéressant de comparer ces résultats à la dynamique des spins.

La phase de pseudo-gap est à relier à une diminution des excitations électroniques de basse énergie. Une étude du spectre d'énergie par spectroscopie à effet tunnel et photo émission en angle pourrait donner des informations complémentaires.

Au niveau des échantillons, pour étudier une gamme plus large du diagramme de phase, il serait intéressant d'étudier des échantillons sur-dopés. L'étude de la dynamique des charges se révélerait particulièrement très intéressante sur l'échantillon $\text{La}_{1,875}\text{Sr}_{0,125}\text{CuO}_4$ où il est attendu des stripes dynamiques. Dans cette continuité, des échantillons $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ dopés au néodyme et au zinc permettraient de conclure quant à la présence de stripes statiques où les « impuretés » piégeraient les stripes dynamiques. Enfin, une étude d'autres cuprates sous-dopés permettrait de conclure sur l'universalité de la phase de pseudo-gap.

Après avoir examiné le diagramme de phase température – taux des porteurs (T, p) à partir de mesures de spectroscopie infrarouge sur des composés $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, nous nous proposons d'étudier une autre famille de cuprates : $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_{1-x}\text{Y}_x\text{Cu}_2\text{O}_{8+\delta}$ pour comparer leurs comportements.

Pour cela, dans un premier temps, nous allons synthétiser des céramiques. Nous nous efforcerons d'élaborer des poudres homogènes en vue de faire croître des monocristaux. Des caractérisations chimiques mais également physiques permettront d'analyser les composés.