

INFORMATION TO USERS

This manuscript has been reproduced from the microfilm master. UMI films the text directly from the original or copy submitted. Thus, some thesis and dissertation copies are in typewriter face, while others may be from any type of computer printer.

The quality of this reproduction is dependent upon the quality of the copy submitted. Broken or indistinct print, colored or poor quality illustrations and photographs, print bleedthrough, substandard margins, and improper alignment can adversely affect reproduction.

In the unlikely event that the author did not send UMI a complete manuscript and there are missing pages, these will be noted. Also, if unauthorized copyright material had to be removed, a note will indicate the deletion.

Oversize materials (e.g., maps, drawings, charts) are reproduced by sectioning the original, beginning at the upper left-hand corner and continuing from left to right in equal sections with small overlaps. Each original is also photographed in one exposure and is included in reduced form at the back of the book.

Photographs included in the original manuscript have been reproduced xerographically in this copy. Higher quality 6" x 9" black and white photographic prints are available for any photographs or illustrations appearing in this copy for an additional charge. Contact UMI directly to order.

UMI

A Bell & Howell Information Company
300 North Zeeb Road, Ann Arbor MI 48106-1346 USA
313/761-4700 800/521-0600

**PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES DU MODÈLE DE
HUBBARD ET APPLICATIONS AU COMPOSÉ
SUPRACONDUCTEUR $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$**

par

Francis Jackson

Mémoire présenté au département de Physique en vue de
l'obtention du grade de Maître ès sciences (M. Sc.)

**FACULTÉ DES SCIENCES
UNIVERSITÉ DE SHERBROOKE**

Sherbrooke, Québec, Canada, Décembre 1996

== - 1054



National Library
of Canada

Acquisitions and
Bibliographic Services

395 Wellington Street
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

Bibliothèque nationale
du Canada

Acquisitions et
services bibliographiques

395, rue Wellington
Ottawa ON K1A 0N4
Canada

Your file Votre référence

Our file Notre référence

The author has granted a non-exclusive licence allowing the National Library of Canada to reproduce, loan, distribute or sell copies of this thesis in microform, paper or electronic formats.

The author retains ownership of the copyright in this thesis. Neither the thesis nor substantial extracts from it may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

L'auteur a accordé une licence non exclusive permettant à la Bibliothèque nationale du Canada de reproduire, prêter, distribuer ou vendre des copies de cette thèse sous la forme de microfiche/film, de reproduction sur papier ou sur format électronique.

L'auteur conserve la propriété du droit d'auteur qui protège cette thèse. Ni la thèse ni des extraits substantiels de celle-ci ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

0-612-21769-8

Canada

Sommaire

Nous traitons ici du modèle de Hubbard bidimensionnel à une bande, et jugeons de sa capacité de rendre compte des comportements magnétiques de basse énergie observés dans l'état normal des $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. Le hamiltonien est composé de termes de saut aux premiers (t) et seconds (t') voisins d'un réseau carré, auxquels s'ajoute un terme de répulsion coulombienne (U) qui agit lorsque deux électrons occupent un même site. Nous nous servons d'une approche analytique récemment développée, la théorie auto-cohérente à deux particules (ACDP). En plus de satisfaire au théorème de Mermin-Wagner, celle-ci offre le meilleur accord quantitatif avec les résultats de simulations Monte-Carlo du modèle, et ce, quels que soient le remplissage (n) de la bande et la température considérés. Nous calculons le taux de relaxation nucléaire (T_1^{-1}) et la susceptibilité de spin uniforme (χ_{sp}) de notre modèle et comparons les résultats numériques aux données expérimentales de T_1^{-1} (^{63}Cu) et χ_{sp} . Qualitativement, on peut reproduire à la fois les dépendances de T_1^{-1} et de χ_{sp} en dopage si on se sert du paramètre $t' = -.28t$ et d'un couplage intermédiaire ($U \gtrsim 6.5t$). Néanmoins, la croissance des fluctuations critiques à l'approche du régime classique renormalisé rend le comportement de T_1^{-1} en température incompatible avec les expériences sur les matériaux dopés. Pour pallier à ce problème, nous envisageons deux modifications au modèle susceptibles d'amincir son diagramme de crossover $T_x - n$: l'inclusion du désordre et la modélisation d'une cellule-unité orthorhombique. Dans le premier cas, nous montrons qu'il est possible d'éviter de façon phénoménologique le régime classique renormalisé et de donner à T_1^{-1} une dépendance en T plus conforme à l'observation. Enfin, nous simulons la présence d'un état structural orthorhombique en faisant le changement $t \rightarrow t_x \neq t_y$ dans le hamiltonien. L'effet recherché n'apparaît que si la différence entre les paramètres de saut aux premiers voisins est importante ($\frac{|t_x - t_y|}{\frac{1}{2}(t_x + t_y)} \gtrsim 40\%$), ce qui laisse croire que la cellule orthorhombique des $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ faiblement dopés ne peut être tenue responsable de l'étroitesse de leur diagramme de phases $T - x$.

Remerciements

Je dois avant tout remercier mon directeur André-Marie Tremblay pour sa gentillesse, sa patience et ses explications pertinentes qui viennent chaque fois porter un grand secours. Aussi, je tiens à saluer son sympathique associé Yuri Vilc, avec qui j'ai eu le plaisir de collaborer étroitement. Merci aussi à tous mes amis du département (en ordre de grandeur: Serge, René, Jacques, Benoit, Laurent, François, Chrystelle, ^{Dave}/_{Steve}, Stéphane,.....(autres)....., Guillaume) pour avoir été de si bonne compagnie. Enfin, il me faut transmettre mon appréciation au CRPS dans son ensemble pour son appui matériel, moral et financier.

Table des matières

Sommaire	i
Remerciements	ii
Table des matières	iii
Liste des figures et graphiques	v
Chapitre 1 Introduction	1
Chapitre 2 Le hamiltonien de Hubbard dans la modélisation des oxydes de cuivre supraconducteurs	7
2.1 Le choix d'un modèle	7
2.2 La méthode auto-cohérente à deux particules	10
Chapitre 3 Quelques notions de résonance magnétique nucléaire	19
3.1 Le taux de relaxation nucléaire	19
3.2 Le Knight Shift	25
Chapitre 4 Résultats expérimentaux de RMN/RQN sur les $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$	27
Chapitre 5 La méthode auto-cohérente à deux particules appliquée au calcul de T_1^{-1}	33
5.1 Considérations numériques	33

5.2	L'effet de la répulsion U sur T_1^{-1}	36
5.2 a)	La RPA conventionnelle	36
5.2 b)	Utilisation de la méthode ACDP	40
5.3	Dépendance de T_1^{-1} en x et comportement de Curie-Weiss	42
5.4	Utilisation du modèle $t't'U$: calculs de χ_{sp} et de T_1^{-1}	49
5.5	Lissage des mesures du taux de relaxation du ^{63}Cu dans les $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$	59
Chapitre 6 Le modèle de Hubbard pour un système orthorhombique.....		68
Chapitre 7 Conclusion.....		77
Annexe A Calcul de la densité d'états du modèle orthorhombique		80
Bibliographie		82

Liste des figures et graphiques

1	(a) Diagramme de phases $T - x$ du $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. (b) Cellule-unité du composé La_2CuO_4 .	8
2	U_{sp} en fonction de T pour plusieurs valeurs de U , avec $x = .1$ en (a), et $x = .14$ en (b).	14
3	Température de crossover en fonction du remplissage pour $U = 2.5t$ et $U = 4t$.	17
4	Facteurs de forme $F_{\parallel}(\mathbf{q})$ et $F_{\perp}(\mathbf{q})$ pour la relaxation des noyaux $^{63,65}\text{Cu}$ en RMN.	24
5	Variation en x et en T du taux de relaxation du ^{63}Cu pour le composé de lanthane.	27
6	$T_1 T$ en fonction de T pour les mêmes points expérimentaux qu'à la figure 5.	29
7	Effet du dopage sur le comportement de T_1^{-1} en température dans les matériaux $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$.	30
8	Susceptibilité de spin χ_{sp} mesurée dans la phase normale des matériaux $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ pour plusieurs valeurs de x .	31
9	L'effet de la répulsion U sur la fonction $\Psi(\epsilon)$.	35
10	T_1^{-1} en fonction de la température pour plusieurs valeurs du paramètre U . (a) Calculé en RPA conventionnelle. (b) Utilisation de la méthode ACDP.	37
11	Taux de relaxation du modèle tU avec $U = 0$ et $U = 2.5t$ en fonction de la température pour maintes valeurs du remplissage.	42
12	T_1^{-1} en fonction de x pour le modèle tU à $T = .4t$ avec plusieurs valeurs de la répulsion nue.	45
13	Les calculs présentés à la figure 11 sont étendus jusqu'à $T = t$ et on illustre $T_1 T$ vs T .	46
14	Susceptibilité uniforme du modèle $t'U$ avec $U = 2.5t$ et $t' = -.28t$.	50

15	Variation des répulsions critique U_c et effective U_{sp} en dopage et en température pour le modèle $tt'U$ ($t' = -.28t$).	53
16	T_1^{-1} vs T pour le modèle $tt'U$ avec $t' = -.28t$. En (a), $U = 2.5t$, et en (b), $U = 8t$.	55
17	Taux de relaxation en fonction de la température pour le modèle $tt'U$ avec $U = 2.5t$. Le paramètre t' varie avec la densité électronique.	57
18	L'effet du facteur de forme atomique $F_{ }(\mathbf{q})$ sur la dépendance du taux de relaxation en température pour le modèle tU ($U = 2.5t$) avec $x = .075$ et $x = .15$.	61
19	Comparaison des prédictions du modèle de Hubbard tU aux mesures de T_1^{-1} sur les matériaux $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ avec $x = 0$, $x = .075$ et $x = .15$. (a) $U = 3.5t$ et $t = 900K$. (b) $U = 4.5t$ et $t = 1700K$.	63
20	On mesure l'influence du paramètre γ sur le taux de relaxation du modèle tU .	64
21	Lissage des mêmes points expérimentaux qu'à la figure 19 en tenant compte du désordre avec $\gamma = .01$ pour $x \neq 0$. (a) Modèle tU avec $U = 4.5t$ et $t = 1700K$. (b) Modèle $tt'U$ avec $U = 6.5t$, $t' = -.28t$ et $t = 2500K$.	66
22	Arrangement des atomes Cu des plans conducteurs du composé de lanthane dans les phases tétragonale et orthorhombique.	69
23	(a) Densité d'états du modèle de Hubbard orthorhombique avec $\Delta t = .2 \langle t \rangle$ et $t' = -.16 \langle t \rangle$. (b) Surfaces de Fermi pour ce même modèle.	71
24	L'effet d'une asymétrie $t_x \neq t_y$ sur la susceptibilité statique nue à $T = .05 \langle t \rangle$ pour le remplissage $n = .8$, avec $t' = -.16 \langle t \rangle$.	72
25	Interaction critique U_c en fonction de la densité électronique pour le modèle orthorhombique $t_x t_y t' U$ avec $t' = -.16 \langle t \rangle$ et $\Delta t = .2 \langle t \rangle$.	74
26	Diagrammes de phases RPA du modèle $t_x t_y t' U$ ($U = 2 \langle t \rangle$) avec en (a), $t' = 0$, et en (b), $t' = -.16 \langle t \rangle$.	75

Chapitre 1

Introduction

C'est il y a dix ans que la théorie à N corps s'est vue imposer ce qui pourrait constituer son plus grand défi. Bednorz et Müller [1] découvraient en 1986 une nouvelle classe de matériaux dont les comportements inattendus continuent encore d'esquiver leur description microscopique complète. Les supraconducteurs à haute température de transition ont de remarquable qu'ils présentent une phase de résistivité zéro, et ce, à des températures pouvant atteindre plusieurs dizaines de degrés Kelvin. Citons en exemple le $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ dont la température critique est de 93K . Le T_c de ces matériaux étant beaucoup plus haut que tout ce qu'on avait pu observer jusqu'alors, il devint clair que la théorie des supraconducteurs conventionnels, où le couplage électron-phonon est tenu responsable de la formation des paires de Cooper, ne saurait répondre des propriétés de ces nouveaux composés.

Outre la persistance de leur phase supraconductrice, ces matériaux étonnent par les particularités de leur état normal ou métallique. Parmi celles-ci, on peut signaler l'existence de maxima incommensurables dans le facteur de structure magnétique du $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, ou encore la présence d'un gap de spin, deux phénomènes mis en évidence par des expériences de diffusion magnétique de neutrons. Au niveau structural, ces composés se rejoignent en ce qu'ils possèdent tous des plans identiques d'atomes de cuivre et d'oxygène. On parle donc d'*oxydes de cuivre* supraconducteurs. Dans ces plans, les atomes sont disposés sur un réseau carré et adoptent le motif suivant: $\text{Cu}(0, 0)$, $\text{O}(\frac{1}{2}, 0)$ et $\text{O}(0, \frac{1}{2})$. Il est légitime de croire que ces arrangements bidimensionnels doivent être déterminants quant aux caractéristiques étonnantes qu'affichent ces matériaux. Les manifestations du rôle privilégié que tiennent ces plans de cuivre et d'oxygène sont nombreuses. Par exemple, des mesures de transport effectuées sur les oxydes de cuivre dans leur phase métallique ont révélé la forte anisotropie de leur conductivité électrique; ils sont environ cent fois plus conductibles parallèlement aux plans que selon l'orientation normale à ceux-ci. De plus, au chapitre du magnétisme, la diffusion de neutrons a su exposer la nature bidimensionnelle des fluctuations de spin qu'abritent ces composés.

Chapitre 1: Introduction

Le contrôle de la stochiométrie lanthane-strontium du $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ permet de décider du nombre de porteurs évoluant dans ses plans de cuivre et d'oxygène. Le remplacement d'un atome de lanthane par un de strontium peut être modélisé par le retrait d'un électron de ces plans. Cette capacité d'agir directement sur la concentration de porteurs pourrait s'avérer salutaire dans l'élucidation des mécanismes menant à la supraconductivité dans les oxydes de cuivre. En effet, le diagramme de phases $T - x$ du $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ amène à envisager une relation entre ses propriétés magnétiques et son état supraconducteur. À basse température, ce dernier survient lorsque $x = .05$ pour disparaître à $x = .35$. Or, dans l'intervalle de stochiométrie qui sépare le composé pur La_2CuO_4 de la supraconduction, on retrouve d'abord des antiferro-aimants isolants, puis des composés qui semblent se comporter comme des verres de spin. C'est cette contiguïté des phases magnétiques et supraconductrice qui suggère une relation entre les fluctuations bidimensionnelles de spin et l'appariement des électrons. Il s'ensuit que la modélisation de ces matériaux doit inclure une forte répulsion coulombienne entre les électrons, celle-ci étant susceptible d'instituer un ordre magnétique à longue portée et de promouvoir un caractère isolant.

De toutes les démarches théoriques mises en oeuvre pour interpréter les fluctuations magnétiques dans les oxydes de cuivre, c'est le hamiltonien de Hubbard que nous avons retenu pour décrire la phase normale. C'est Anderson en 1987 [2] qui proposa l'emploi de celui-ci dans le domaine des supraconducteurs à haute température de transition. Il s'agit du modèle de magnétisme itinérant le plus commode pour traiter à la fois des effets de la structure de bande et de la répulsion entre électrons. Plusieurs versions de ce hamiltonien ont été formulées dans le seul contexte des oxydes de cuivre. Elles se distinguent par le nombre de bandes considérées, leur forme, mais aussi par la force et la portée des interactions entre particules. Nous nous restreindrons dans cet ouvrage à des expressions simples du modèle à deux dimensions où il ne sera question que d'une seule bande de type liaison forte et où les électrons ne se repousseront que s'ils occupent le même site effectif. Ce dernier incarne ici le produit de la forte hybridation des orbitales $\text{Cu}(3d)$ et $\text{O}(2p)$ des atomes constitutifs des plans conducteurs. Dans le La_2CuO_4 , chaque site est habité d'un électron en moyenne, ce qui correspond au demi-remplissage de la bande. Nous imiterons l'ajout de strontium en ajustant cette occupation moyenne.

Au regard de l'amplitude de l'énergie de répulsion U , on retrouve dans la littérature ces deux ten-

dances: les méthodes dites de couplage fort et celles de couplage faible, comme la RPA (Random Phase Approximation). Ces deux approches paraissent a priori contradictoires et incompatibles avec l'observation. En effet, la première suppose le paramètre d'interaction U beaucoup plus grand que la largeur de bande W alors que la seconde est fondée sur l'hypothèse inverse. Or, l'expérience (e.g. les spectres d'absorption de rayons X ou de photoémission) ainsi que des calculs de structure de bande situent le véritable rapport U/W au voisinage de l'unité. Une valeur intermédiaire ($U \sim W$) de l'interaction serait donc plus conforme à la réalité que les deux situations limites susmentionnées. L'analyse théorique du hamiltonien dans ce régime de couplage est compromise par l'impossibilité de définir de petit paramètre, élément essentiel à tout développement perturbatif. Par conséquent, un grand nombre des travaux réalisés jusqu'à maintenant ont pour toile de fond un de ces cas extrêmes. Chacune de ces façons d'aborder le problème possède ses mérites et ses démérites.

La limite $U \gg W$ au demi-remplissage conduit au modèle de Heisenberg antiferromagnétique, qui s'obtient de la projection du hamiltonien de Hubbard sur l'espace des sites simplement occupés. Il s'agit d'un modèle de spins localisés, avec lequel on arrive à reproduire convenablement les fluctuations antiferromagnétiques du composé pur La_2CuO_4 . Conservant cette image de moments locaux, on peut ensuite tenir compte des lacunes introduites par la présence de strontium, notamment en insérant des liens ferromagnétiques dans le réseau [3]. Plus simplement, Bulut *et al.* [4] proposèrent de simuler l'action des trous en imposant une valeur limite à la longueur de corrélation spin-spin, déstabilisant ainsi l'ordre antiferromagnétique. Si certaines de ces analyses locales du régime de couplage fort se sont avérées fructueuses pour les matériaux faiblement dopés, que nous savons isolants, il est clair que l'étude de la phase normale nécessite que l'on attribue aux électrons un comportement itinérant. Cependant, pour inclure à la fois ces effets cinétiques et les interactions fortes, il faut avoir recours au modèle $t - J$, dont le traitement est beaucoup plus complexe.

Les approches du genre RPA reposent principalement sur des développements perturbatifs du hamiltonien de Hubbard dans la gamme des couplages modérés. Se servant de l'expression de la RPA généralisée (GRPA) pour la susceptibilité statique de spin dans l'état métallique, Bulut *et al.* [5] ont obtenu un accord quantitatif avec des mesures du taux de relaxation nucléaire du ^{63}Cu dans le YBaCu_2O_7 . La renormalisation de l'interaction U par l'écrantage de Kanamori-Brueckner permet d'étendre la plage de validité de la GRPA jusqu'au régime de couplage intermédiaire. Ainsi, en

remplaçant le paramètre U par une quantité renormalisée, Chen *et al.* [6] ont réussi à atteindre une concordance avec des calculs Monte-Carlo du facteur de structure magnétique, et ce jusqu'à des valeurs appréciables de l'interaction ($U \sim \frac{W}{2}$). Toutefois, trop près du demi-remplissage, l'ampleur des fluctuations est telle que cette démarche est mise en échec. Idéalement, pour dépeindre fidèlement le magnétisme dans la phase normale de ces matériaux, il faut donc se prévaloir d'une théorie qui puisse s'appliquer sur un domaine plus large de concentrations.

Récemment, une approche au modèle de Hubbard a été formulée par Vilk *et al.* [7] [8]. Leur formalisme tient compte non seulement des corrélations à courte distance, mais aussi des fluctuations thermiques à grande longueur d'onde. Celles-ci ont pour conséquence d'éliminer tout ordre antiferromagnétique à longue portée en deux dimensions, comme le stipule le théorème de Mermin-Wagner. La répulsion intrasite s'y trouve toujours renormalisée vers une valeur inférieure à l'interaction critique U_c qui provoquerait l'instabilité magnétique. La méthode *auto-cohérente à deux particules* (ACDP) rend possible l'étude des fluctuations de spin et de charge sur l'éventail complet des remplissages de la bande. C'est elle qui reproduit le plus exactement les résultats des calculs Monte-Carlo. Elle présente un accord quantitatif avec ces simulations pour des couplages allant de faibles à intermédiaires, en plus de demeurer valable à des températures remarquablement basses. Toute cette souplesse quant au choix des paramètres la prédispose donc à des comparaisons avec l'expérience. Dans ce travail, nous allons confronter l'approche ACDP à des données de résonance magnétique nucléaire (RMN) sur les composés $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. Nous nous intéresserons principalement au taux de relaxation nucléaire T_1^{-1} , une sonde locale des fluctuations magnétiques de basse fréquence. Puis, de façon moins détaillée, nous examinerons le Knight shift, une mesure de la susceptibilité uniforme du matériau.

Les motifs qui entraînent ce choix de matériau sont nombreux. D'une part, il faut souligner la profusion de résultats expérimentaux disponibles. Bien qu'il en aille de même pour la famille des $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$, on peut se convaincre que le composé de lanthane se prête davantage à une analyse par le modèle de Hubbard bidimensionnel. Notamment, la structure cristalline des $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ est telle que ses plans de CuO_2 sont tous séparés entre eux par des couches d'atomes, lesquelles sont perçues comme de simples réservoirs "inertes" de charges. Dans les $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ cependant, il est plutôt question d'un empilement de bi-couches de CuO_2 (deux plans conducteurs superposés)

entre lesquelles s'interposent les autres couches atomiques. Il va donc de soi que les couplages interplans (c'est-à-dire les effets tridimensionnels) sont plus présents dans les $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ que dans les $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, ce qui rend notre modèle plus apte à décrire ces derniers. Signalons aussi que pour le composé de lanthane, il existe une relation linéaire simple entre la concentration x de dopant et le remplissage de la bande de conduction, ce qui n'est pas le cas pour les $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ [9], chez lesquels l'effet du dopage à l'oxygène sur le nombre de porteurs dans les plans demeure l'objet de controverses.

Décrivons brièvement l'organisation de ce mémoire. Dans le chapitre 2, nous introduirons formellement le modèle de Hubbard et discuterons de sa pertinence dans la modélisation des oxydes de cuivre. Nous ferons ensuite un survol de la théorie auto-cohérente de Vilk *et al.*, en insistant surtout sur l'expression de la susceptibilité magnétique de spin qui en découle. Enfin, nous ferons état du diagramme de phases qui émane du modèle choisi. Le chapitre suivant sera consacré à la résonance magnétique nucléaire. Nous y exposerons les deux propriétés importantes pour ce travail: le taux de relaxation nucléaire et le Knight shift. Nous dériverons en détail les formules essentielles au calcul de ces deux quantités. Ce faisant, nous devons nous pencher sur la source de la relaxation, soit le hamiltonien hyperfin qui couple le spin du noyau actif en RMN à ceux des électrons avoisinants. Ce hamiltonien nous dicte le facteur de forme atomique qu'il faudra inclure dans nos équations. Au chapitre 4, nous ferons un tour d'horizon des données expérimentales de RMN disponibles sur les matériaux $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. Des calculs du taux de relaxation pour le modèle de Hubbard 2D seront présentés au chapitre 5. Nous expliciterons en premier lieu l'algorithme à l'origine de ces résultats numériques, pour explorer ensuite les effets des divers paramètres ajustables (relation de dispersion des particules, force de la répulsion intrasite, etc.) sur le T_1^{-1} . Au passage, nous verrons de façon plus succincte ce qu'il en est dans le cas du Knight shift. Nous verrons que pour assurer la bonne dépendance de la susceptibilité uniforme en fonction du remplissage, il est nécessaire d'inclure dans notre modèle un terme de saut aux seconds voisins. Nous mettrons en évidence les avantages de la méthode de Vilk face à une approche RPA traditionnelle où on ignorerait la renormalisation de l'interaction U . Nous constaterons toutefois qu'en dépit de cette renormalisation, les fluctuations de spin à basse température sont trop importantes et compromettent l'accord qualitatif de T_1^{-1} avec l'expérience si le couplage est trop élevé. C'est pourquoi nous atténuerons celles-ci de manière phénoménologique, dans le but d'imiter simplement les manifestations du désordre dans

les composés faiblement dopés. Enfin, forts de ces apprentissages, nous tenterons de lisser certains résultats expérimentaux pour le taux de relaxation. Bien que le formalisme ACDP interdise toute transition magnétique à température finie, il permet néanmoins à la longueur de corrélation spin-spin de croître exponentiellement en deçà de la température T_x , dite de "crossover". En supposant que l'ajout de faibles effets tridimensionnels puisse entraîner une transition au voisinage de T_x , on peut construire un diagramme de phases approximatif pour un système quasi bidimensionnel. On découvre alors que l'ordre magnétique existe sur un plage de remplissage plus large que celle observée dans les $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. Il est vraisemblable qu'une modification au modèle qui amincirait cet intervalle serait bénéfique pour nos calculs du taux de relaxation, surtout à basse température. Ainsi, au chapitre 6, nous allons remettre en question la symétrie dans la relation de dispersion des électrons. Le diagramme de phases du composé de lanthane indique que sa cellule-unité peut être orthorhombique plutôt que tétragonale. Or, tous les calculs que nous aurons présentés jusqu'alors se rapportent au hamiltonien de Hubbard sur un réseau carré. Il est donc opportun de se demander quelles seraient les conséquences si on privait notre modèle de l'équivalence des directions x et y . Nous représenterons cette perte de symétrie par une différence entre les amplitudes de saut selon chaque direction. Des résultats exacts concernant la densité d'états à une particule seront présentés. Nous verrons également comment l'interaction critique U_c évolue en température et en remplissage dans cette nouvelle situation. Les conclusions de ce mémoire feront l'objet du chapitre 7.

Chapitre 2

Le hamiltonien de Hubbard dans la modélisation des oxydes de cuivre supraconducteurs

2.1 Le choix d'un modèle

Dans cette section, nous discuterons du bien-fondé de l'utilisation du modèle de Hubbard à une bande sur réseau carré dans l'étude des oxydes de cuivre. Nous dirigerons une attention particulière sur les composés $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, dont la structure cristalline et le diagramme de phases $T - x$ sont illustrés à la figure 1. Comme nous l'avons mentionné, la forte anisotropie dans les propriétés physiques des oxydes de cuivre nous incite à concevoir ceux-ci comme des empilements de plans conducteurs de CuO_2 (les plans ab). On estime [12] [13] que dans le La_2CuO_4 , l'amplitude J_{\parallel} du couplage antiferromagnétique dans le plan (super-échange entre les spins localisés sur les atomes de cuivre) surpasse l'interaction magnétique interplan J_{\perp} de cinq ordres de grandeur. (Dans la bicouche des $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$, le rapport $\frac{J_{\perp}}{J_{\parallel}} \lesssim 100$ est beaucoup plus modeste). De plus, des calculs de structure de bande et des expériences dévoilent le caractère bidimensionnel de la surface de Fermi de ces matériaux dans leur phase métallique (voir par exemple [14]). Il semble donc convenable d'analyser d'abord ces supraconducteurs au moyen de modèles de dimension 2, en présumant que les recouvrements interplans sont négligeables. (Les effets tridimensionnels deviendront importants seulement à proximité des transitions de phase).

La bande de conduction des plans CuO_2 , issue de l'hybridation des orbitales $2p_{x,y}$ des atomes d'oxygène et $3d_{x^2-y^2}$ du cuivre, est à moitié remplie pour le composé pur La_2CuO_4 . L'atome de lanthane doit perdre trois électrons pour que sa dernière couche soit complète. Le strontium, deux. C'est pourquoi le remplacement d'un La par un Sr retire un électron de la bande de conduction, composée presque exclusivement d'orbitales associées au cuivre et à l'oxygène. Si n désigne la concentration

d'électrons dans cette bande, on a la relation approximative $n = 1 - x$ ($n = 1$ signifie le demi-remplissage). Le diagramme de phases 1(a) témoigne des bouleversements qu'amène le dopage au strontium; on y voit un isolant antiferromagnétique devenir un métal supraconducteur. Le comportement magnétique des $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ à proximité du demi-remplissage évoque une compétition entre la tendance à la délocalisation et la tendance à la localisation des électrons. Cette rivalité se manifeste explicitement dans le hamiltonien de Hubbard, où il est question d'un jeu entre l'énergie cinétique des électrons et la répulsion coulombienne qui tend à les séparer. Le modèle de Hubbard, malgré sa simplicité, possède un diagramme de phases suffisamment riche pour expliquer qualitativement les comportements magnétiques des oxydes de cuivre.

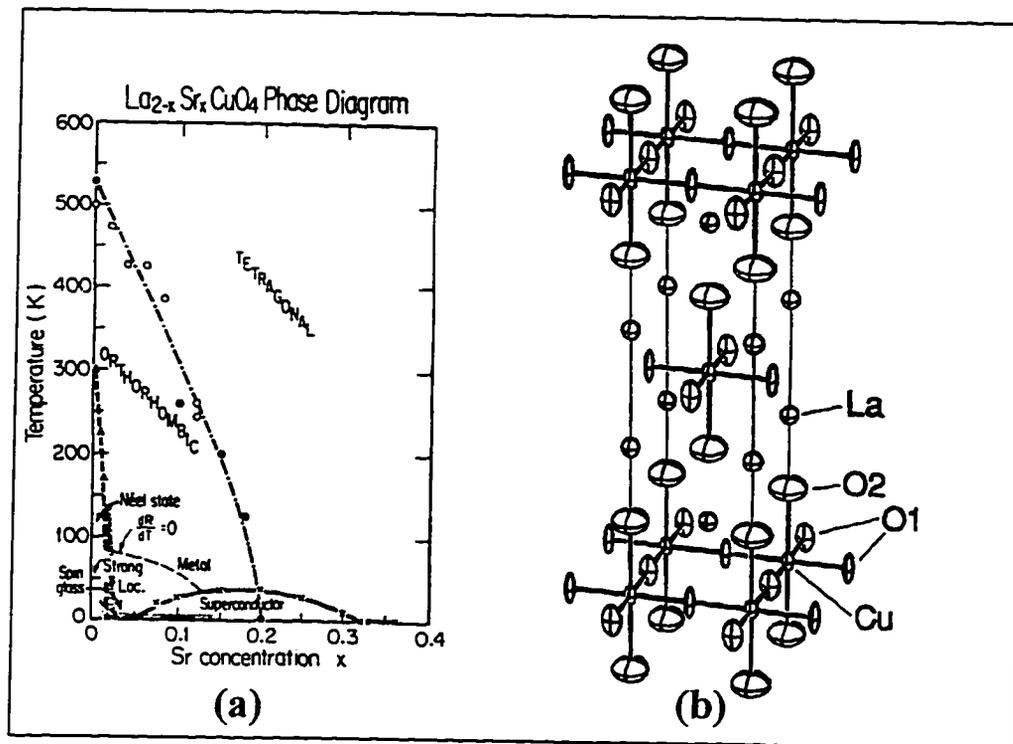


Figure 1 : (a) Le diagramme de phases $T - x$ du $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ [10] . (b) Cellule-unité du matériau non-dopé La_2CuO_4 [11] . Les axes a et b sont parallèles à la base. Le vecteur c lui est perpendiculaire.

Il est important de signaler la présence d'une transition structurale dans le diagramme de phases du composé de lanthane. Il indique en effet que pour $x < .2$, l'augmentation de la température peut entraîner le passage d'une cellule-unité orthorhombique ($a \neq b$) à tétragonale ($a = b$). Dans un

premier temps, nous ne nous préoccupons guère de cette transition et supposons un arrangement tétragonal, de sorte que nous traiterons les plans conducteurs comme des réseaux carrés, un atome de cuivre à chaque sommet. À priori, cette simplification paraît secondaire étant donné que le rapport $\frac{a}{b}$ ne s'éloigne que très peu de l'unité dans cet état orthorhombique. Par exemple, dans le cas du $\text{La}_{1.84}\text{Sr}_{0.16}\text{CuO}_4$, l'écart maximal qui a été mesuré entre les pas de réseau a et b est de .3% environ [15], à $T \approx 10\text{K}$. Néanmoins, nous examinerons au chapitre 6 certaines des conséquences qui découlent de cette orthorhombicité.

En principe, le motif composé de trois atomes par cellule-unité prescrit l'usage d'un modèle à trois bandes. Toutefois, la réduction à une bande effective est justifiée, notamment par des mesures de photoémission et d'absorption de rayons X [16]. Cette simplification nous permet d'envisager la cellule-unité des plans CuO_2 comme étant formée d'un seul "atome de cuivre effectif". Dans le contexte du modèle de Hubbard à une bande, la cinétique des électrons est alors restreinte aux sauts entre cellules-unités, ou sites.

Voici donc ce hamiltonien à une bande dont nous nous servirons dans l'étude du magnétisme d'un gaz bidimensionnel d'électrons fortement corrélés évoluant sur un réseau carré:

$$H = -t \sum_{\langle i,j \rangle, \sigma} (c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + c_{j\sigma}^\dagger c_{i\sigma}) - t' \sum_{\langle\langle i,j \rangle\rangle, \sigma} (c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + c_{j\sigma}^\dagger c_{i\sigma}) + U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} \quad (2.1)$$

où l'opérateur $c_{j\sigma}$ détruit un électron de spin σ au site j . Son adjoint $c_{j\sigma}^\dagger$ crée un électron. Les deux premières sommations, qui constituent l'énergie cinétique, portent sur les paires de premiers et seconds voisins respectivement. Les quantités t et t' sont les amplitudes de saut correspondantes. La troisième somme représente l'énergie potentielle; on y reconnaît le paramètre de répulsion intrasite U . Dans cette expression, il est clair que les interactions coulombiennes entre les électrons sont supposées écrantées, leur portée étant limitée à un seul site. La double occupation d'un site par deux électrons de spins opposés coûte une énergie U . Dans l'ensemble grand-canonique qui sera utilisé pour les calculs, le générateur d'évolution temporelle est $H - \mu N$, où $N \equiv \sum_{i,\sigma} n_{i,\sigma}$ est le nombre total de particules. Le potentiel chimique μ qui apparaît alors est tel que la surface de Fermi à $\mu = 0$ est parfaitement emboîtée par le vecteur antiferromagnétique $\mathbf{Q} = (\pi, \pi)$ si t' et U sont nuls. On retrouve dans la littérature [16] [17] [11] plusieurs estimations des paramètres de saut

et de répulsion. Pour le $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, $t = 5000K$, $t' = -0.16t$ et $U = 12.5t$ sont des valeurs typiques. (Celles-ci proviennent de Schluter *et al.* [18]).

C'est le cas particulier $t' = 0$ du hamiltonien (2.1), le modèle tU , qui a permis à Bulut *et al.* [4] de comprendre, du moins qualitativement, le comportement en température du taux de relaxation nucléaire dans les composés dopés. Il existe plusieurs raisons d'enrichir le modèle tU d'un terme de saut vers les seconds voisins. Le signe et la dépendance en dopage du coefficient de Hall sont correctement reproduits par le modèle $tt'U$. Il en va de même pour le comportement de la susceptibilité uniforme en fonction de la température et de la concentration de strontium. De plus, Bénard *et al.* [19] ont souligné l'importance du t' pour expliquer la position des maxima incommensurables dans les expériences de diffusion neutronique.

2.2 La méthode auto-cohérente à deux particules

Nous exposerons ici les grandes lignes de ce formalisme mis au point par Vilk, Chen et Tremblay [7] [8] pour le modèle de Hubbard à une bande. (On retrouve une discussion très détaillée de la méthode ACDP dans la thèse de doctorat d'Anne-Marie Daré [20]). Nous nous intéresserons spécialement à ce que cette théorie nous enseigne sur la susceptibilité de spin, une quantité du plus haut intérêt quant aux calculs se rapportant à la RMN. Il est à noter que nous utiliserons tout au long de cette section des unités telles que $k_B, \hbar \equiv 1$.

Au moyen du théorème de fluctuation-dissipation en fréquences de Matsubara, on peut établir les règles de somme suivantes pour les susceptibilités de spin χ_{sp} et de charge χ_{ch} :

$$\langle n_{\uparrow}^2 \rangle + \langle n_{\downarrow}^2 \rangle + 2 \langle n_{\uparrow} n_{\downarrow} \rangle - n^2 = \frac{T}{N} \sum_{\mathbf{q}, iq_n} \chi_{ch}(\mathbf{q}, iq_n) \quad (2.2)$$

et

$$\langle n_{\uparrow}^2 \rangle + \langle n_{\downarrow}^2 \rangle - 2 \langle n_{\uparrow} n_{\downarrow} \rangle = \frac{T}{N} \sum_{\mathbf{q}, iq_n} \chi_{sp}(\mathbf{q}, iq_n) \quad (2.3)$$

où $n = \langle n_{\uparrow} \rangle + \langle n_{\downarrow} \rangle$ est la densité de particules, $iq_n = 2\pi i n T$ sont les fréquences de Matsubara bosoniques, et \mathbf{q} sont les vecteurs d'onde d'un réseau de N sites. On a recours à ces approximations

pour les susceptibilités:

$$\chi_{ch}(\mathbf{q}, iq_n) = \frac{\chi_o(\mathbf{q}, iq_n)}{1 + \frac{U_{ch}}{2} \chi_o(\mathbf{q}, iq_n)} \text{ et } \chi_{sp}(\mathbf{q}, iq_n) = \frac{\chi_o(\mathbf{q}, iq_n)}{1 - \frac{U_{sp}}{2} \chi_o(\mathbf{q}, iq_n)} \quad (2.4)$$

où $\chi_o(\mathbf{q}, iq_n)$ est la susceptibilité d'un système exempt d'interaction ($U = 0$). Ce sont là des expressions de type RPA, à la différence que le paramètre U y est remplacé par les répulsions effectives U_{ch} et U_{sp} . Le principe de Pauli permet d'écrire $n_\sigma n_\sigma = n_\sigma$, et les règles de somme deviennent:

$$n + 2 \langle n_\uparrow n_\downarrow \rangle - n^2 = \frac{T}{N} \sum_{\mathbf{q}, iq_n} \frac{\chi_o(\mathbf{q}, iq_n)}{1 + \frac{U_{ch}}{2} \chi_o(\mathbf{q}, iq_n)} \quad (2.5)$$

et

$$n - 2 \langle n_\uparrow n_\downarrow \rangle = \frac{T}{N} \sum_{\mathbf{q}, iq_n} \frac{\chi_o(\mathbf{q}, iq_n)}{1 - \frac{U_{sp}}{2} \chi_o(\mathbf{q}, iq_n)} \quad (2.6)$$

La connaissance de la fonction de corrélation de paire locale $\langle n_\uparrow n_\downarrow \rangle$ entre deux électrons de spins opposés est donc essentielle à l'évaluation des interactions effectives U_{ch} et U_{sp} . Or, il est possible de la calculer de façon auto-cohérente en ajoutant aux équations ci-haut la relation

$$U_{sp} = g_{\uparrow\downarrow}(0)U, \text{ avec } g_{\uparrow\downarrow}(0) \equiv \frac{\langle n_\uparrow n_\downarrow \rangle}{\langle n_\uparrow \rangle \langle n_\downarrow \rangle} \quad (2.7)$$

Les égalités (2.6) et (2.7) définissent une relation d'auto-cohérence pour U_{sp} n'impliquant que des quantités à deux particules. Voilà l'essence de la méthode ACDF. En plus de reproduire l'écrantage de Kanamori-Brueckner, cette théorie exclut toute transition de phase magnétique à température finie pour le système bidimensionnel, comme l'exige le théorème de Mermin-Wagner. (Ce dernier établit qu'en raison des fluctuations thermiques de grande longueur d'onde, tout ordre à longue portée est inaccessible en deux dimensions lorsque la symétrie qui serait brisée est continue. Ici, il s'agit de la symétrie de rotation dans l'espace des spins). Le facteur $g_{\uparrow\downarrow}(0)$ tient le rôle d'une pondération de l'interaction nue U pour la probabilité de double occupation d'un site. Il en résulte une répulsion renormalisée U_{sp} qui, à température finie, est toujours en deçà de l'interaction critique U_c requise pour instaurer un ordre magnétique. Voyons cela de plus près.

Notons d'abord que la susceptibilité du système sans interaction est donnée par la fonction de Lindhard:

$$\chi_o(\mathbf{q}, iq_n) = \frac{1}{(2\pi)^2} \int_{Z.B.} d\mathbf{k} \frac{f(\epsilon(\mathbf{k} + \mathbf{q})) - f(\epsilon(\mathbf{k}))}{\epsilon(\mathbf{k}) - \epsilon(\mathbf{k} + \mathbf{q}) + iq_n} \quad (2.8)$$

où $f(\epsilon) = \frac{1}{e^{\beta(\epsilon - \mu)} + 1}$ est la distribution de Fermi-Dirac ($\beta \equiv \frac{1}{T}$) et $\epsilon(\mathbf{k})$ est la relation de dispersion issue de la diagonalisation de la partie cinétique du hamiltonien (2.1) dans l'espace réciproque. L'intégrale se fait sur la première zone de Brillouin. Si le pas du réseau est fixé à l'unité ($a \equiv 1$), on montre que

$$\begin{aligned}\epsilon(\mathbf{k}) &= -2t(\cos k_x + \cos k_y) - 2t'(\cos(k_x + k_y) + \cos(k_x - k_y)) \\ &= -2t(\cos k_x + \cos k_y) - 4t' \cos k_x \cos k_y\end{aligned}\quad (2.9)$$

Ces énergies sont comprises entre $-4t - 4t'$ et $4t - 4t'$, d'où la largeur de bande $W = 8t$. Le prolongement analytique $iq_n \rightarrow \omega + i\eta$ permet d'écrire la susceptibilité dynamique nue comme $\chi_o(\mathbf{q}, \omega) = \text{Re } \chi_o(\mathbf{q}, \omega) + i \text{Im } \chi_o(\mathbf{q}, \omega)$ avec

$$\text{Re } \chi_o(\mathbf{q}, \omega) \equiv \chi'_o(\mathbf{q}, \omega) = \frac{1}{(2\pi)^2} P \int_{Z.B.} d\mathbf{k} \frac{f(\epsilon(\mathbf{k} + \mathbf{q})) - f(\epsilon(\mathbf{k}))}{\epsilon(\mathbf{k}) - \epsilon(\mathbf{k} + \mathbf{q}) + \omega} \quad (2.10)$$

et

$$\text{Im } \chi_o(\mathbf{q}, \omega) \equiv \chi''_o(\mathbf{q}, \omega) = \frac{\pi}{(2\pi)^2} \int_{Z.B.} d\mathbf{k} [f(\epsilon(\mathbf{k})) - f(\epsilon(\mathbf{k} + \mathbf{q}))] \delta(\epsilon(\mathbf{k}) - \epsilon(\mathbf{k} + \mathbf{q}) + \omega) \quad (2.11)$$

Si les électrons interagissent, l'approximation (2.4) pour la susceptibilité magnétique mène à

$$\chi'_{sp}(\mathbf{q}, \omega) = \frac{\chi'_o(\mathbf{q}, \omega) \left[1 - \frac{U_{sp}}{2} \chi'_o(\mathbf{q}, \omega) \right] - \frac{U_{sp}}{2} [\chi''_o(\mathbf{q}, \omega)]^2}{\left[1 - \frac{U_{sp}}{2} \chi'_o(\mathbf{q}, \omega) \right]^2 + \left[\frac{U_{sp}}{2} \chi''_o(\mathbf{q}, \omega) \right]^2} \quad (2.12)$$

et

$$\chi''_{sp}(\mathbf{q}, \omega) = \frac{\chi''_o(\mathbf{q}, \omega)}{\left[1 - \frac{U_{sp}}{2} \chi'_o(\mathbf{q}, \omega) \right]^2 + \left[\frac{U_{sp}}{2} \chi''_o(\mathbf{q}, \omega) \right]^2} \quad (2.13)$$

La stabilité de la phase normale paramagnétique du gaz d'électrons est déterminée par le critère de Stoner. Celui-ci s'obtient en considérant la limite statique ($\omega \rightarrow 0$) de la partie réelle de la susceptibilité. Étant donné que $\chi''_o(\mathbf{q}, 0) = 0$, on a

$$\chi'_{sp}(\mathbf{q}, 0) = \frac{\chi'_o(\mathbf{q}, 0)}{1 - \frac{U_{sp}}{2} \chi'_o(\mathbf{q}, 0)} \quad (2.14)$$

Advenant que la valeur de la répulsion effective U_{sp} devienne suffisamment grande pour que le dénominateur de l'équation ci-dessus puisse s'annuler, le système subirait une transition magnétique.

Il s'installerait une phase d'onde de densité de spin qui serait caractérisée par le premier vecteur d'onde pour lequel $1 - \frac{U}{2} \chi'_o(\mathbf{q}, 0) = 0$. On peut ainsi définir l'interaction critique

$$U_c \equiv \frac{2}{\chi'_o(\mathbf{q}_{\max}, 0)} \quad (2.15)$$

où \mathbf{q}_{\max} est le vecteur correspondant au maximum de $\chi'_o(\mathbf{q}, 0)$.

Il est important de réaliser que ce vecteur \mathbf{q}_{\max} , qui précise la nature d'une éventuelle transition magnétique pour une densité et une température données, est une propriété de la partie libre du hamiltonien (2.1). À température nulle, avec le modèle tU , seul le demi-remplissage peut donner lieu à une transition antiferromagnétique ($\mathbf{q}_{\max} = \mathbf{Q} = (\pi, \pi)$) et on montre que l'interaction critique U_c est nulle. Si on ajoute des trous, le maximum de $\chi'_o(\mathbf{q}, 0)$ devient incommensurable et, pour x compris dans l'intervalle $]0, 0.38]$, la phase magnétique serait une onde de densité de spin orientée le long de (π, q_y) (ou, de façon équivalente, le long de (q_x, π)). À température finie cependant, la maximum de la susceptibilité statique peut se trouver en (π, π) même si n s'éloigne de l'unité. Dans le modèle $tt'U$, il existe, même à température nulle, une plage de concentrations à l'intérieur de laquelle \mathbf{q}_{\max} est commensurable; le terme en t' promeut l'antiferromagnétisme à basse température. Un exposé exhaustif concernant les maintes phases accessibles aux modèles tU et $tt'U$, sur toute la gamme de dopage $x \in [0, 1]$, est présenté dans la thèse de doctorat de P. Bénard [21]. Quoiqu'il en soit, nous nous restreignons dans ce travail à des densités électroniques suffisamment proches du demi-remplissage pour que le maximum de $\chi'_o(\mathbf{q}, 0)$ soit, s'il n'est commensurable, toujours situé sur le bord de zone en (π, q_y) .

Or, il se trouve que, et c'est là un des points forts de la méthode ACDF, les fluctuations magnétiques de grande longueur d'onde ont pour effet de renormaliser la fonction de corrélation de paire $\langle n_{\uparrow} n_{\downarrow} \rangle$ de façon à ce que $U_{sp} < U_c$ ($\forall T \neq 0$), évitant de ce fait la transition. Cette renormalisation dépend non seulement du paramètre U , mais aussi de la température, de la densité et de la structure de bande (i.e. du rapport $\frac{t'}{t}$). (La RPA traditionnelle quant à elle prédit à tort l'émergence d'un ordre magnétique en deux dimensions dès que l'interaction nue U atteint U_c , ce qui la rend inutilisable dans la gamme des couplages intermédiaires). Soulignons au passage que tous les calculs numériques des quantités U_{sp} et $\chi'_o(\mathbf{q}, 0)$ qui seront présentés dans ce travail ont été réalisés au moyen d'un algorithme développé par Y. Vilk. La solution auto-cohérente des expressions (2.6) et (2.7) se fait sur

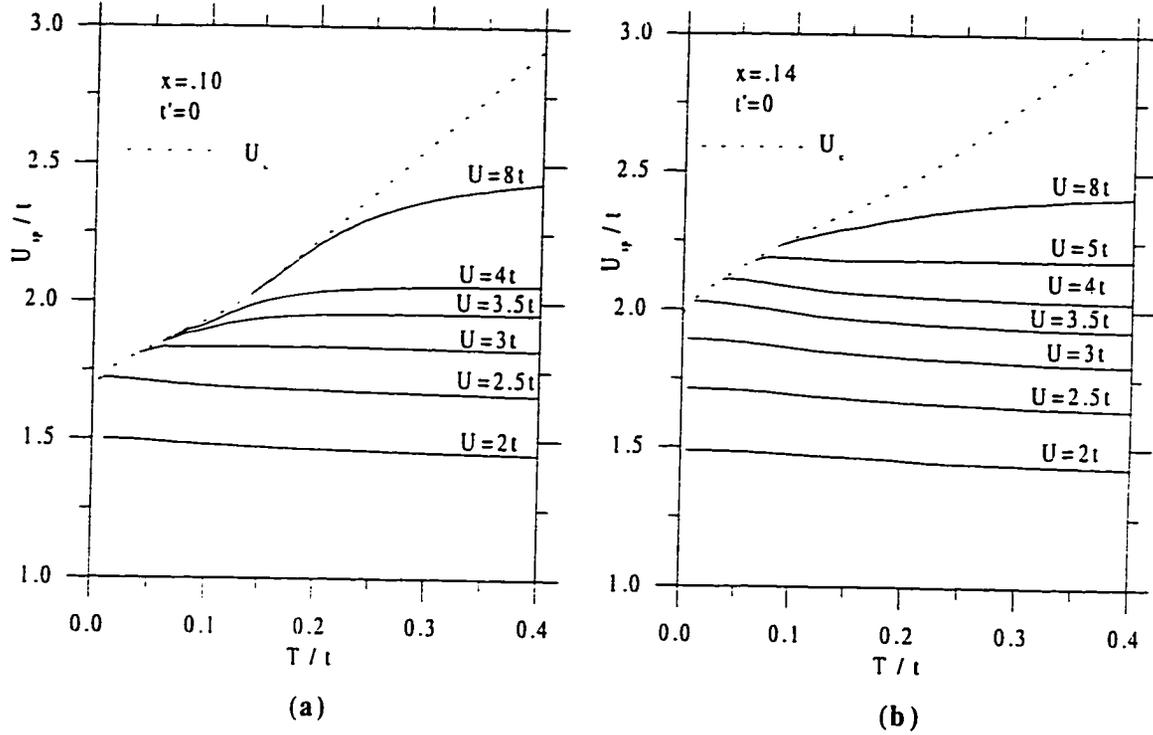


Figure 2 : Évolution de U_{sp} en température pour plusieurs valeurs de U , avec $x = .10$ en (a), et $x = .14$ en (b).

un réseau *quasi infini*. C'est-à-dire que lors de l'intégration sur les vecteurs d'onde, on discrétise la zone de Brillouin sur un réseau dont le pas est ajusté de manière à échantillonner davantage la région piquée de l'intégrand. Ainsi, on construit un réseau particulièrement fin autour du vecteur \mathbf{q}_{\max} , là où se développerait le magnétisme du point de vue de la RPA habituelle. En raison des symétries de la relation de dispersion (2.9) des particules sur le réseau carré, la susceptibilité $\chi_{sp}(\mathbf{q}, iq_n)$ est invariante sous les transformations $q_{x,y} \rightarrow -q_{x,y}$ et $(q_x, q_y) \rightarrow (q_y, q_x)$. Le domaine d'intégration sur \mathbf{q} peut donc être ramené à la zone irréductible $q_x \in [0, \pi]$ et $q_y \in [0, q_x]$.

La figure 2 illustre, dans le cas du modèle tU avec les remplissages $n = .90$ et $n = .86$, la dépendance en température de la répulsion effective U_{sp} , et ce, pour des valeurs de U allant jusqu'à la largeur de la bande. On y retrouve aussi l'interaction critique U_c . (Le passage de $\mathbf{q}_{\max} = (\pi, \pi - \delta)$ à $\mathbf{q}_{\max} = (\pi, \pi)$ se distingue par une légère inflexion dans la courbe de U_c en fonction de T . Pour $n = .90$, \mathbf{q}_{\max} devient commensurable à $T \simeq .10t$. Dans l'autre cas, c'est à $T \simeq .16t$). Si

ces exemples concrets réussissent à mettre en lumière l'inégalité $U_{sp} < U_c$, ils manifestent également l'émergence d'une très petite échelle d'énergie, soit $\delta U \equiv U_c - U_{sp}$. On observe en effet qu'en abaissant la température, si l'interaction nue est suffisamment forte, U_{sp} devient remarquablement proche de U_c , tellement que $\delta U \ll T$. Cette proximité de la transition de phase fait de la différence δU la plus petite échelle d'énergie du système. On identifie cette situation où l'instabilité magnétique paraît imminente à un régime *classique renormalisé*. (Nous appellerons parfois *quasi-transition* l'arrivée de ce régime). Il apparaît à la figure 2 que $U_c(n = .86) > U_c(n = .90)$. (Lorsque les sauts aux seconds voisins sont exclus, $\chi'_o(q_{\max}, 0)$ augmente avec n jusqu'au demi-remplissage, quelle que soit la température). De ce fait, dans le modèle tU , l'existence d'un régime classique renormalisé requiert un U plus élevé pour $n = .86$ ($U_{\min} \simeq 3.4t$) que pour $n = .90$ ($U_{\min} \simeq 2.4t$).

La condition $\delta U \ll T$ fait en sorte que la fréquence de Matsubara nulle, celle qui représente le comportement classique, domine toutes les fréquences supérieures. Conséquemment, la relation d'auto-cohérence définie par les égalités (2.6) et (2.7) conduit à une dépendance exponentielle de δU en température. Voyons ce qu'il en est dans ce régime quand le maximum de $\chi_o(q, 0)$ se trouve au vecteur antiferromagnétique $\mathbf{Q} = (\pi, \pi)$. La susceptibilité statique de spin $\chi_{sp}(q, 0)$ étant presque singulière à cet endroit, la contribution principale à la somme du membre de droite de l'équation (2.6) vient de $iq_n = 0$ et des vecteurs d'onde situés au voisinage de \mathbf{Q} . On peut remplacer $\chi_{sp}(q, 0)$ par la forme asymptotique

$$\chi_{sp}(q, 0) \simeq \frac{2}{U_{sp}\xi_o^2 [\xi^{-2} + (q - \mathbf{Q})^2]} \quad (2.16)$$

où $\xi_o^2 \equiv \frac{-1}{2\chi_o(\mathbf{Q}, 0)} \frac{\partial^2 \chi_o(\mathbf{Q}, 0)}{\partial Q_x^2}$ et ξ est la longueur de corrélation antiferromagnétique donnée par $\xi \equiv \xi_o \sqrt{\frac{U_{sp}}{\delta U}}$. Cette dernière expression laisse deviner que l'arrivée de la petite échelle d'énergie δU signifie une grande longueur de corrélation. Le développement (2.16) et une translation de (π, π) des variables d'intégration permettent de réécrire (2.6) comme

$$\tilde{\sigma}^2 = \frac{2T}{U_{sp}\xi_o^2} \int \frac{d^2q}{(2\pi)^2} \frac{\xi^2}{1 + q^2\xi^2} \quad (2.17)$$

avec

$$\tilde{\sigma}^2 \equiv n - 2 \langle n_{\uparrow} n_{\downarrow} \rangle - C \leq 1$$

L'intégration se fait maintenant là où la distribution lorentzienne prend des valeurs importantes, c'est-à-dire sur une surface centrée sur le point $(0,0)$ et dont la largeur est de l'ordre de ξ^{-1} . Le terme C comprend la contribution des fréquences de Matsubara non-nulles (les effets quantiques), ainsi que celle des vecteurs d'onde loins de \mathbf{Q} qui sont omis de l'intégrale (2.17). La solution de celle-ci conduit à ce résultat important (si on néglige la dépendance possible de ξ_o en T):

$$\xi \propto \delta U^{-1/2} \propto \exp\left(\frac{\pi \tilde{\sigma}^2 \xi_o^2 U_{sp}}{T}\right) \quad (2.18)$$

C'est la dépendance exponentielle annoncée plus haut pour δU dans le régime classique renormalisé.

Dans le cas où, à l'approche de cette quasi-transition de phase, la susceptibilité statique présente plutôt un maximum incommensurable ($\mathbf{q}_{\max} = (\pi, \pi - \delta)$), un développement analogue à (2.16) donne

$$\chi_{sp}(\mathbf{q}, 0) \simeq \left(\frac{2\xi_x \xi_y}{U_{sp} \xi_{ox} \xi_{oy}} \right) \frac{1}{1 + \xi_x^2 (q_x - q_{\max,x})^2 + \xi_y^2 (q_y - q_{\max,y})^2} \quad (2.19)$$

où $\xi_{x,y} \equiv \xi_{ox,y} \sqrt{\frac{U_{sp}}{\delta U}}$ et $\xi_{ox,y}^2 \equiv \frac{-1}{2\chi_o(\mathbf{q}_{\max}, 0)} \left(\frac{\partial^2 \chi_o(\mathbf{q}, 0)}{\partial q_{x,y}^2} \right)_{\mathbf{q}=\mathbf{q}_{\max}}$. Notons que cette expression pour $\chi_{sp}(\mathbf{q}, 0)$ n'a de sens que si le déplacement δ est suffisamment important. (Si δ est très petit ($\frac{\delta}{\pi} \ll 1$), l'approximation quadratique de la fonction $\chi_o(\mathbf{q}, 0)$ n'est pas valable, ses maxima à $(\pi, \pi \pm \delta)$ et $(\pi \pm \delta, \pi)$ étant trop rapprochés les uns des autres). On voit que la situation est quelque peu compliquée par le fait que \mathbf{q}_{\max} est un point de moins haute symétrie que le vecteur antiferromagnétique \mathbf{Q} . Nonobstant, on arrive à montrer avec les changements de variables appropriés que le comportement critique de δU , et par le fait même, des longueurs de corrélation $\xi_{x,y}$, est encore régi par une exponentielle de l'inverse de la température. Plus précisément,

$$\xi_{x,y} \propto \delta U^{-1/2} \propto \exp\left(\frac{\pi \tilde{\sigma}^2 \xi_{ox} \xi_{oy} U_{sp}}{4T}\right) \quad (2.20)$$

où le facteur 4 au dénominateur provient de la position et du nombre de maxima dans la zone de Brillouin pour le cas incommensurable.

Nous dénoterons par T_x la *température de crossover* qui caractérise le passage au régime classique renormalisé et au-dessous de laquelle la longueur des corrélations magnétiques croît exponentiellement. Physiquement, il faut concevoir T_x comme étant la température à laquelle la longueur de corrélation ξ devient beaucoup plus grande que la longueur d'onde thermique de de Broglie pour

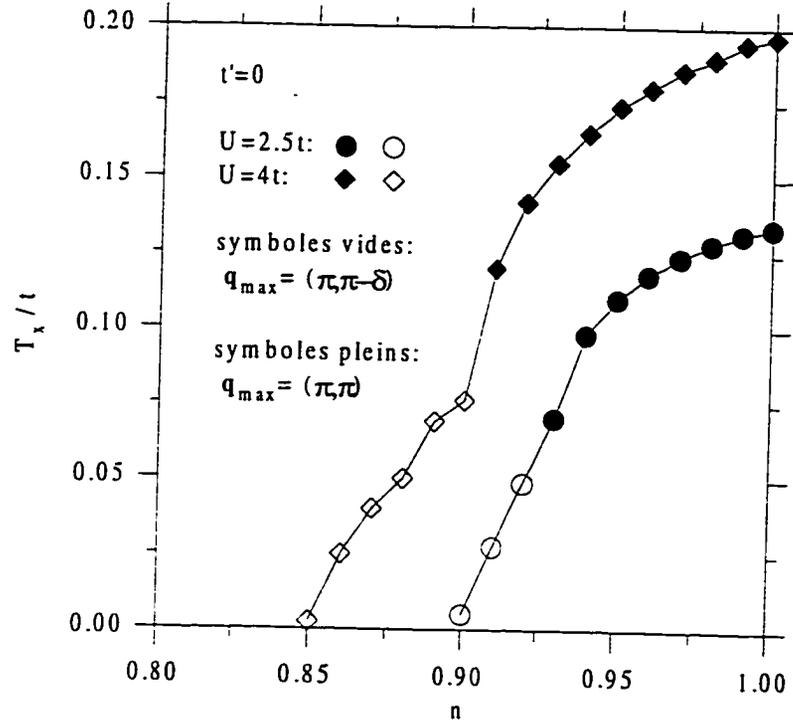


Figure 3 : Température de crossover en fonction de la densité électronique pour $U = 2.5t$ et $U = 4t$. Chaque point correspond à une augmentation $\tilde{\xi}^2$ d'environ 500. Les symboles pleins et vides indiquent si le maximum de $\chi_o(\mathbf{q}, 0)$ à T_x est commensurable ou non.

une particule. C'est-à-dire

$$\xi \gg \frac{\langle v_F \rangle}{\pi T} \quad (2.21)$$

où $\langle v_F \rangle$ est la moyenne de la vitesse de Fermi sur la surface de Fermi.

L'augmentation $\tilde{\xi}^2$ de la susceptibilité magnétique est définie par le rapport suivant:

$$\tilde{\xi}^2 \equiv \frac{\chi_{sp}(\mathbf{q}_{\max}, 0)}{\chi_o(\mathbf{q}_{\max}, 0)} = \frac{U_c}{\delta U} \quad (2.22)$$

Il est utile d'en faire appel dans l'évaluation numérique de T_x . Quand s'amorce le régime classique renormalisé, $\tilde{\xi}^2$ croît exponentiellement et sa valeur peut servir de critère afin de situer la température de crossover. La figure 3 représente T_x en fonction de la densité n pour deux valeurs de l'interaction nue. Nous avons estimé T_x en cherchant les points correspondant à $\tilde{\xi}^2 \simeq 500$. On peut supposer que l'ajout de faibles effets tridimensionnels ($t_z \ll t$) dans le modèle puisse donner lieu à une véritable

transition magnétique au voisinage de T_x (voir [20]). Ces courbes tracent alors des diagrammes de phases approximatifs pour un modèle quasi bidimensionnel. (Nous parlerons généralement de *diagrammes de phases* $T_x - x$ pour faire allusion à ces diagrammes de crossover). Chacun d'eux comporte, outre l'état normal paramagnétique, une phase antiferromagnétique et une phase d'onde de densité de spin incommensurable. Pour $U = 2.5t$, l'ordre à longue portée semble être possible jusqu'au dopage $x \simeq .11$ ($n \simeq .89$), alors que pour $U = 4t$, celui-ci persiste jusqu'à $x \simeq .15$ ($n \simeq .85$). Or, l'examen du diagramme de phases 1(a) du composé de lanthane nous révèle que, bien que l'antiferromagnétisme soit présent, il disparaît dès que $x \gtrsim .02$. Force nous est de constater que les diagrammes de la figure 3 prédisent un ordre magnétique sur des intervalles de densité trop larges. Qui plus est, l'augmentation de U élargit davantage le diagramme de phases. Ceci nous laisse déjà pressentir des difficultés à lier les expériences de RMN avec le modèle tel qu'il est, surtout quand les couplages deviennent importants.

À ce stade-ci, il est opportun d'ouvrir une parenthèse sur les oxydes de cuivre dans lesquels l'action du dopage est d'injecter, non pas des trous, mais des électrons dans les plans CuO_2 . C'est le cas notamment des matériaux $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ où la substitution d'un atome de cérium (4 électrons de valence) à un atome de néodyme (3 électrons de valence) ajoute un électron dans les plans conducteurs. Ce qui est intéressant, c'est que le diagramme de phases $T - x$ des $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ [22] comprend une phase antiferromagnétique qui s'étend du composé pur ($x = 0$) jusqu'à la concentration de dopant $x = .14$, un intervalle beaucoup plus large que chez les $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. Ainsi, pour ce qui est des comparaisons avec l'expérience, il est possible que notre modèle (en prenant $n = 1 + x$) soit plus apte à reproduire les comportements de ce type de matériaux. Dans le contexte d'une bande plus qu'à moitié remplie, les diagrammes de phases analogues à ceux de la figure 3 s'obtiennent de ces derniers par le simple changement $n \rightarrow 2 - n$. (Ceci est vrai en raison de la symétrie particule-trou inhérente au modèle tU . Dans le cas plus général avec $t' \neq 0$, les courbes de T_x en fonction de n ne sont pas symétriques autour de $n = 1$). Cependant, il existe peu de résultats de RMN se rapportant à ces composés, de sorte que nous n'étudierons que les $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$.

Chapitre 3

Quelques notions de résonance magnétique nucléaire

3.1 Le taux de relaxation nucléaire

Imaginons qu'il existe dans un cristal un ensemble de noyaux identiques de spin I dont la dégénérescence des états $|m\rangle$ est levée par un potentiel statique. Supposons que l'axe de quantification corresponde à la direction \hat{z} . On peut penser à l'effet Zeeman sur les niveaux dans un champ magnétique $H_o\hat{z}$ (RMN), ou encore à l'interaction électrostatique du moment quadripolaire du noyau ($I \geq 1$) avec une distribution de charge de symétrie axiale autour de \hat{z} (RQN). Appelons M_o l'aimantation d'équilibre d'un tel système selon son axe de quantification. Imaginons ensuite qu'une source oscillatoire extérieure vienne modifier les populations des niveaux en stimulant des transitions. Une fois cette perturbation éteinte, l'équilibre sera rétabli par le couplage des moments nucléaires à leur environnement cristallin. Nous verrons que le retour de l'aimantation longitudinale M_z vers M_o est régi par une exponentielle de temps caractéristique T_1 . Le taux de relaxation T_1^{-1} longitudinal s'exprime comme une somme des probabilités des transitions admises par le hamiltonien responsable de rétablir l'équilibre. S'il s'agit d'une interaction hyperfine entre le noyau et les spins électroniques qui l'entourent, nous verrons que T_1^{-1} se calcule à partir de fonctions de corrélation spin-spin des électrons.

Pour simplifier, considérons la relaxation d'un système de N spins nucléaires $I = \frac{1}{2}$, dont les états propres sont $|+\rangle$ et $|-\rangle$. S'il baigne dans un champ magnétique $H_o\hat{z}$, ces deux états seront séparés d'une énergie $\hbar\omega_o$, la fréquence de Larmor ω_o étant proportionnelle au champ. Désignons par N_{\pm} le nombre de noyaux dans chaque état, et la différence des populations par $n \equiv N_+ - N_-$. Il est clair que $M_z(t) \propto n(t)$. Si les probabilités par unité de temps des transitions entre les états sont

Chapitre 3: Quelques notions de résonance magnétique nucléaire

$W_{+ \rightarrow -}$ et $W_{- \rightarrow +}$, on peut écrire

$$\frac{dn}{dt} + n(W_{- \rightarrow +} + W_{+ \rightarrow -}) = N(W_{- \rightarrow +} - W_{+ \rightarrow -}) \quad (3.23)$$

Si à $t = 0$, au moment où la perturbation oscillatoire est supprimée, l'aimantation longitudinale est nulle, alors la solution de (3.23) conduit à

$$M_z(t) = M_o(1 - e^{-(W_{- \rightarrow +} + W_{+ \rightarrow -})t}) \quad (3.24)$$

où M_o est fixé par la différence des populations n_o à l'équilibre thermique, défini par $N_+^o W_{+ \rightarrow -} = N_-^o W_{- \rightarrow +}$.

$$M_o \propto n_o = N \left(\frac{W_{- \rightarrow +} - W_{+ \rightarrow -}}{W_{- \rightarrow +} + W_{+ \rightarrow -}} \right) \quad (3.25)$$

Le taux de relaxation $T_1^{-1} \equiv W_{- \rightarrow +} + W_{+ \rightarrow -}$ apparaît naturellement comme une mesure de la rapidité avec laquelle l'échantillon se réaimante.

Nous allons maintenant calculer de façon perturbative les probabilités de transitions $W_{- \rightarrow +}$ et $W_{+ \rightarrow -}$ pour un mécanisme de relaxation particulier, celui de Mila et Rice [23]. Il s'agit d'un hamiltonien hyperfin qui a été introduit pour expliquer les anisotropies observées en RMN dans le Knight shift et le taux de relaxation du cuivre pour le $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$. Bien que les noyaux ^{63}Cu et ^{65}Cu soient de spin $I = \frac{3}{2}$, nous les supposons de spin $I = \frac{1}{2}$ pour ne pas allourdir les calculs. Cette simplification est sans conséquence sur l'expression que nous obtiendrons pour T_1^{-1} . L'interaction d'un noyau de cuivre situé dans un plan de CuO_2 avec les spins électroniques avoisinants s'écrit donc comme suit:

$$H_{hf} = \sum_{\alpha} A^{\alpha\alpha} I_{n,\alpha} S_{n,\alpha} + B \sum_{\delta} \mathbf{I}_n \cdot \mathbf{S}_{n+\delta} \quad (3.26)$$

Les opérateurs de spin électronique \mathbf{S} et nucléaire \mathbf{I} sont ici en unités de \hbar . Le tenseur $A^{\alpha\alpha}$ représente le couplage hyperfin intrasite, que l'on suppose anisotrope. Si on choisit les directions \hat{x} , \hat{y} et \hat{z} de façon à ce qu'elles coïncident avec les axes principaux du cristal a, b et c respectivement, alors les amplitudes de ce couplage sont notées $A^{xx} = A^{yy} \equiv A_{ab}$ et $A^{zz} \equiv A_c$. La seconde sommation décrit une interaction hyperfine isotrope entre le noyau au site n et les spins électroniques des quatre ions Cu^{2+} les plus proches.

Chapitre 3: Quelques notions de résonance magnétique nucléaire

Soit $H_o = H_n + H_e$ le hamiltonien du système non-perturbé par ces couplages entre le noyau et les électrons. H_e désigne l'énergie de l'ensemble des électrons dans le cristal, tandis que $H_n = -\hbar\omega_o I_{n,z}$ est l'énergie du noyau dans le champ magnétique statique. En spécifiant par m l'état du spin nucléaire et par ν celui des électrons, la probabilité de la transition correspondant à $|m, \nu\rangle \rightarrow |m', \nu'\rangle$ est obtenue comme suit par la théorie des perturbations au premier ordre:

$$W(m, \nu \rightarrow m', \nu') = \frac{1}{t} \frac{1}{\hbar^2} \int_0^t \int_0^t dt' dt'' \langle m, \nu | H_{hf}(t') | m', \nu' \rangle \langle m', \nu' | H_{hf}(t'') | m, \nu \rangle \quad (3.27)$$

où

$$H_{hf}(t) \equiv e^{iH_o t/\hbar} H_{hf} e^{-iH_o t/\hbar} \quad (3.28)$$

En écrivant les composantes transverses des moments cinétiques I et S en fonction des opérateurs I_{\pm} et S_{\pm} , le hamiltonien de Mila et Rice prend la forme suivante:

$$H_{hf} = \frac{A_{ab}}{2} (I_{n,+} S_{n,-} + I_{n,-} S_{n,+}) + A_c I_{n,z} S_{n,z} + B \sum_{\delta} \left[\frac{1}{2} (I_{n,+} S_{n+\delta,-} + I_{n,-} S_{n+\delta,+}) + I_{n,z} S_{n+\delta,z} \right] \quad (3.29)$$

Il est commode d'introduire les transformées de Fourier des opérateurs de spin pour les électrons. Ainsi la composante α du spin total au site n est donnée par:

$$S_{n,\alpha} = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{q}} S_{\alpha}(\mathbf{q}) e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_n} \quad (3.30)$$

La somme porte sur la première zone de Brillouin de notre réseau carré qui compte N sites. Les deux éléments de matrice qui entrent dans le calcul de $W(m = -\frac{1}{2}, \nu \rightarrow m' = \frac{1}{2}, \nu')$ sont alors donnés par

$$\begin{aligned} \left\langle -\frac{1}{2}, \nu \left| H_{hf}(t') \right| \frac{1}{2}, \nu' \right\rangle &= \frac{1}{2} e^{i\omega_o t'} \langle \nu | \left(A_{ab} S_{n,+}(t') + B \sum_{\delta} S_{n+\delta,+}(t') \right) | \nu' \rangle \quad (3.31) \\ &= \frac{1}{2\sqrt{N}} e^{i\omega_o t'} \sum_{\mathbf{q}} e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_n} \langle \nu | S_{+}(\mathbf{q}, t') | \nu' \rangle (A_{ab} + 4B\gamma(\mathbf{q})) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \left\langle \frac{1}{2}, \nu' \left| H_{hf}(t'') \right| -\frac{1}{2}, \nu \right\rangle &= \frac{1}{2} e^{-i\omega_o t''} \langle \nu' | \left(A_{ab} S_{n,-}(t'') + B \sum_{\delta} S_{n+\delta,-}(t'') \right) | \nu \rangle \quad (3.32) \\ &= \frac{1}{2\sqrt{N}} e^{-i\omega_o t''} \sum_{\mathbf{q}'} e^{i\mathbf{q}' \cdot \mathbf{r}_n} \langle \nu' | S_{-}(\mathbf{q}', t'') | \nu \rangle (A_{ab} + 4B\gamma(\mathbf{q}')) \end{aligned}$$

où $\gamma(\mathbf{q}) \equiv \frac{1}{2} (\cos q_x + \cos q_y)$, le pas du réseau étant fixé à l'unité. Pour connaître la probabilité totale

$W_{- \rightarrow +}$ que le noyau passe de l'état $|-\rangle$ à l'état $|+\rangle$, il faut moyenner $W(m = -\frac{1}{2}, \nu \rightarrow m' = \frac{1}{2}, \nu')$ sur les degrés de liberté électroniques. C'est-à-dire qu'il faut multiplier par la probabilité que l'état initial des électrons soit $|\nu\rangle$, puis faire la somme sur ν et ν' . On prend ensuite la limite $t \rightarrow \infty$. À cause de la relation de complétude des états électroniques, la somme sur ν' donne simplement l'identité. Puisque notre système est invariant par translation, les sommations sur \mathbf{q} et \mathbf{q}' se réduisent à une seule somme sur \mathbf{q} , avec $\mathbf{q}' = -\mathbf{q}$. On obtient

$$W_{- \rightarrow +} = \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{A_c^2}{4Nt\hbar^2} \sum_{\mathbf{q}} F_{\parallel}(\mathbf{q}) \int_0^t \int_0^t dt' dt'' e^{i\omega_o(t'-t'')} \langle S_+(\mathbf{q}, t') S_-(-\mathbf{q}, t'') \rangle \quad (3.33)$$

Les crochets $\langle \dots \rangle$ désignent la moyenne thermique, définie par $\langle O \rangle \equiv \text{Tr} [e^{-\beta H_c} O] / \text{Tr} [e^{-\beta H_c}]$, où $\beta \equiv \frac{1}{k_B T}$. Le facteur de forme atomique pour un champ statique parallèle à l'axe c est donné par

$$F_{\parallel}(\mathbf{q}) = (a_{ab} + 4b\gamma(\mathbf{q}))^2, \text{ où } a_{ab} \equiv \frac{A_{ab}}{|A_c|} \text{ et } b \equiv \frac{B}{|A_c|}. \quad (3.34)$$

L'intégrand de l'expression (3.33) étant fonction de $t' - t''$, un simple changement de variables conduit à

$$W_{- \rightarrow +} = \frac{A_c^2}{4N\hbar^2} \sum_{\mathbf{q}} F_{\parallel}(\mathbf{q}) \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{i\omega_o t} \langle S_+(\mathbf{q}, t) S_-(-\mathbf{q}) \rangle \quad (3.35)$$

De la même façon, on montre que la probabilité pour la transition inverse est

$$W_{+ \rightarrow -} = \frac{A_c^2}{4N\hbar^2} \sum_{\mathbf{q}} F_{\parallel}(\mathbf{q}) \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-i\omega_o t} \langle S_-(\mathbf{q}, t) S_+(-\mathbf{q}) \rangle \quad (3.36)$$

On voit donc que le taux de relaxation longitudinal s'évalue au moyen des composantes de Fourier de fonctions de corrélations spin-spin à la fréquence de résonance magnétique ω_o . Comme il y a invariance sous les transformations $S_x \rightarrow -S_x$ et $S_y \rightarrow -S_y$, les termes en $\langle S_{x,y}(\mathbf{q}, t) S_{y,x}(-\mathbf{q}) \rangle$ ne contribuent pas au taux de relaxation. Celui-ci s'écrit alors

$$T_1^{-1} = W_{- \rightarrow +} + W_{+ \rightarrow -} = \frac{A_c^2}{2N\hbar^2} \sum_{\mathbf{q}} F_{\parallel}(\mathbf{q}) \int_{-\infty}^{\infty} dt \cos \omega_o t \{ \langle S_x(\mathbf{q}, t) S_x(-\mathbf{q}) \rangle + \langle S_y(\mathbf{q}, t) S_y(-\mathbf{q}) \rangle \} \quad (3.37)$$

Or, le théorème de fluctuation-dissipation nous enseigne que

$$\int_{-\infty}^{\infty} dt e^{i\omega t} \langle S_{\alpha}(\mathbf{q}, t) S_{\alpha}(-\mathbf{q}) \rangle = \frac{2\hbar}{1 - e^{-\beta\hbar\omega}} \frac{1}{(g\mu_B)^2} \chi''_{\alpha\alpha}(\mathbf{q}, \omega) \quad (3.38)$$

où $\chi''_{\alpha\alpha}(\mathbf{q},\omega)$ est la partie imaginaire de la susceptibilité magnétique de spin, définie par la fonction de réponse retardée suivante:

$$\chi_{\alpha\beta}(\mathbf{q},\omega) \equiv \frac{i}{\hbar}(g\mu_B)^2 \int_0^{\infty} dt e^{i\omega t} \langle [S_{\alpha}(\mathbf{q},t), S_{\beta}(-\mathbf{q})] \rangle \quad (3.39)$$

qui obeit à la propriété

$$\chi_{\alpha\beta}(\mathbf{q},\omega) = \chi_{\alpha\beta}(-\mathbf{q},-\omega)^* \quad (3.40)$$

L'utilisation conjointe des égalités (3.38) et (3.40) nous permet de montrer que

$$T_1^{-1} = \frac{A_c^2}{2N\hbar(g\mu_B)^2} \left\{ \frac{1}{1-e^{-\beta\hbar\omega_o}} - \frac{1}{1-e^{+\beta\hbar\omega_o}} \right\} \sum_{\mathbf{q}} F_{\parallel}(\mathbf{q}) \{ \chi''_{xx}(\mathbf{q},\omega_o) + \chi''_{yy}(\mathbf{q},\omega_o) \} \quad (3.41)$$

Dans la plupart des situations expérimentales, il est approprié de prendre la limite $\beta\hbar\omega_o \ll 1$. Par exemple, des mesures de résonance quadrupolaire nucléaire (RQN) sur les matériaux $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ [24] situent la fréquence ω_o autour de 30 MHz ($\approx 1\text{mK}$)¹. Le taux de relaxation T_1^{-1} constitue par conséquent une sonde des fluctuations de spin de très basse énergie. Soulignons qu'en vertu de l'invariance sous rotation de notre modèle dans la phase paramagnétique, nous pouvons prendre $\chi''_{xx}(\mathbf{q},\omega_o) = \chi''_{yy}(\mathbf{q},\omega_o) = \frac{1}{2}\chi''_{+-}(\mathbf{q},\omega_o)$. On obtient finalement

$$T_1^{-1} = \frac{A_c^2 k_B T}{\hbar^2 (g\mu_B)^2 N} \sum_{\mathbf{q}} F_{\parallel}(\mathbf{q}) \lim_{\omega \rightarrow 0} \frac{\chi''_{+-}(\mathbf{q},\omega)}{\omega} \quad (3.42)$$

Il s'agit là de l'expression de la formule de Moriya [25] relative au mécanisme de relaxation qu'ont suggéré Mila et Rice pour les noyaux $^{63,65}\text{Cu}$ dans les plans conducteurs des oxydes de cuivre. C'est elle que nous utiliserons au chapitre 5 pour tenter de lisser des résultats expérimentaux de RQN sur le composé de lanthane. Nous l'avons développée ici dans le cas particulier où l'axe de quantification des moments nucléaires coïncide avec la direction c du cristal. Ceci est conforme à ces expériences de résonance quadrupolaire, la direction principale du gradient du champ électrique associé à la distribution de charges autour des noyaux de cuivre étant parallèle à l'axe c [26]. Si on suppose plutôt que cet axe de quantification est parallèle aux plans de CuO_2 (par exemple en RMN avec un champ statique $\mathbf{H}_o \perp c$), on trouve un résultat qui ne diffère de (3.42) que par le facteur de forme

¹ Il faut souligner qu'en RMN, la présence du champ statique \mathbf{H}_o introduit aussi une fréquence de Larmor ω_e pour les électrons, laquelle est typiquement 1000 fois supérieure à celle des moments nucléaires. Cette fréquence intervient dans le calcul de la susceptibilité de spin. Dans la fonction delta de l'expression (5.51) par exemple, il faudrait ajouter une énergie $\hbar\omega_e$ au $\Delta\varepsilon$ issu du transfert de quantité de mouvement. Cependant, comme les mesures qui nous intéressent sont faites en RQN (sans champ statique), nous n'avons pas à nous préoccuper de cette question.

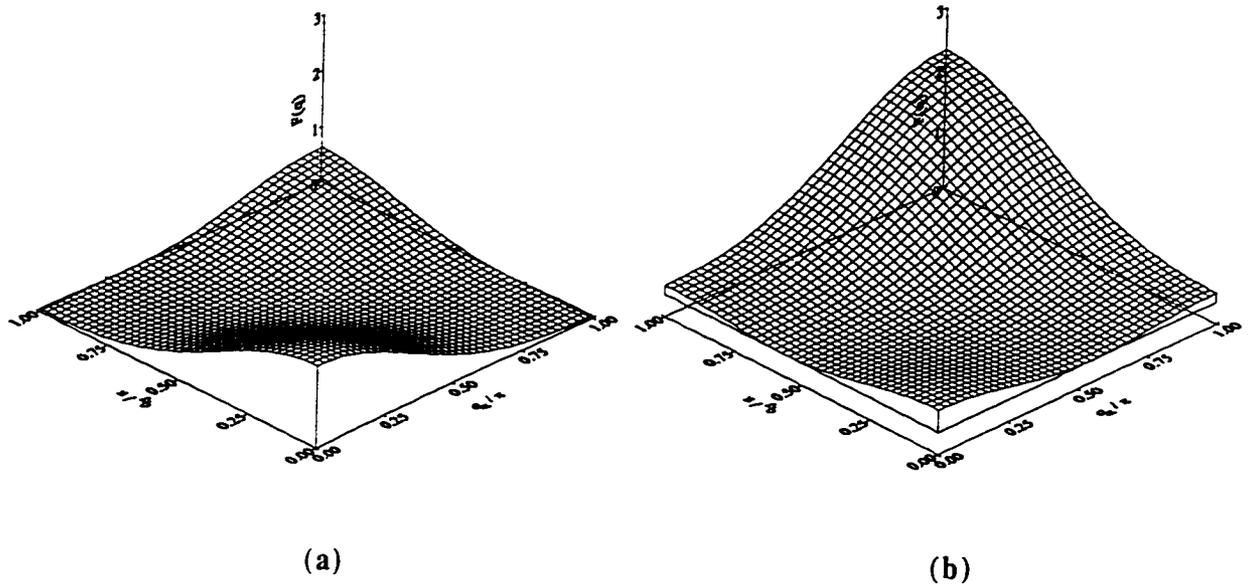


Figure 4 : Facteurs de forme $F_{\parallel}(\mathbf{q})$ et $F_{\perp}(\mathbf{q})$ pour la relaxation des noyaux $^{63,65}\text{Cu}$ en RMN. En (a), le champ statique parallèle à c , alors qu'en (b), $\mathbf{H}_0 \perp c$.

atomique. Celui-ci devient (voir [4] pour une liste des facteurs de forme associés à la relaxation de divers noyaux dans les $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$)

$$F_{\perp}(\mathbf{q}) = \frac{1}{2}(1 - 4b\gamma_{\mathbf{q}})^2 + \frac{1}{2}(a_{ab} + 4b\gamma_{\mathbf{q}})^2 \quad (3.43)$$

C'est cette différence entre $F_{\parallel}(\mathbf{q})$ et $F_{\perp}(\mathbf{q})$ qui engendre l'anisotropie des taux de relaxation parallèle et perpendiculaire à la direction normale aux plans.

La figure 4 illustre ces facteurs de forme calculés à partir des valeurs des paramètres hyperfins établies pour le $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.63}$ [27]: $a_{ab} = .21$ et $b = .25$. (Nous verrons plus loin que ces quantités sont également valables dans le cas des $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, quel que soit le dopage). Il en ressort que dans le calcul de T_1^{-1} , $F_{\perp}(\mathbf{q})$ favorise plus que $F_{\parallel}(\mathbf{q})$ la contribution des fluctuations de spin situées à proximité du vecteur d'onde antiferromagnétique. Pour un système caractérisé par de fortes corrélations au voisinage de $\mathbf{Q} = (\pi, \pi)$, on s'attend donc à ce que $(T_1^{-1})_{\perp} > (T_1^{-1})_{\parallel}$. C'est en effet ce qu'ont observé Imai *et al.* [28] avec des expériences de RMN sur le composé de lanthane ($x = .15$); ils ont mesuré le rapport $(T_1^{-1})_{\perp}/(T_1^{-1})_{\parallel} = 2.6$. Il est clair que la connaissance des paramètres du hamiltonien de Mila et Rice est cruciale si on cherche à reproduire quantitativement

les résultats expérimentaux. La section suivante est consacrée au Knight shift, un outil de taille quant à l'évaluation de ces constantes hyperfines.

3.2 Le Knight Shift

En RMN, pour un champ statique $H_o\hat{z}$ donné, la résonance d'un spin nucléaire est observée à une fréquence légèrement différente dans un métal que dans un environnement diamagnétique. Cet effet s'appelle le Knight shift. On peut en tirer profit dans l'étude des électrons de conduction d'un métal. Prenons pour exemple la phase métallique des oxydes de cuivre. Nous avons vu à la section précédente que les spins électroniques produisaient un champ hyperfin sur les noyaux $^{63,65}\text{Cu}$. La polarisation de ces électrons par le champ externe se manifeste par un déplacement de la fréquence de résonance nucléaire par rapport à la valeur qu'elle prendrait dans un solide diamagnétique. Considérons un noyau de cuivre de spin I et de rapport gyromagnétique γ_I couplé aux électrons via le hamiltonien de Mila et Rice, et ce, en présence d'un champ statique appliqué selon l'axe cristallin c . L'énergie de son interaction avec le champ magnétique local peut s'écrire

$$H = [-\gamma_I \hbar H_o + (A_c + 4B) \langle S_z \rangle] I_z \quad (3.44)$$

Le premier terme représente le couplage au champ $H_o\hat{z}$, et le second, l'interaction hyperfine moyenne avec les électrons de conduction. Or, la valeur moyenne $\langle S_z \rangle$ du spin électronique associé à un site est reliée à la susceptibilité de Pauli χ_p . En effet, si M_z est l'aimantation issue de la polarisation des électrons de conduction, on a

$$M_z = g\mu_B N \langle S_z \rangle = \chi_p H_o \quad (3.45)$$

L'expression (3.44) pour l'énergie devient alors

$$H = \left[-\gamma_I \hbar + (A_c + 4B) \frac{\chi_p}{g\mu_B N} \right] H_o I_z = -\gamma_I \hbar H_o \left[1 - \frac{(A_c + 4B) \chi_p}{g\mu_B \gamma_I \hbar N} \right] I_z \quad (3.46)$$

On en conclut que la résonance, plutôt que d'avoir lieu à la fréquence $\omega_o \equiv \gamma_I H_o$, est déplacée d'une quantité $\Delta\omega = -\omega_o \frac{(A_c + 4B) \chi_p}{g\mu_B \gamma_I \hbar N}$.

La susceptibilité de Pauli décrit la réponse d'un ensemble de spins électroniques à un champ statique et uniforme. Si $\chi_{sp}(\mathbf{q}, \omega)$ désigne la susceptibilité dynamique de spin par site pour notre système,

il se trouve que $\frac{\chi_r}{N} = \lim_{q \rightarrow 0} \lim_{\omega \rightarrow 0} \chi_{sp}(q, \omega) \equiv \chi_{sp}$. La contribution des spins au Knight shift est alors donnée par

$$K_{\parallel} \equiv -\frac{\Delta\omega}{\omega_0} = \frac{(A_c + 4B)}{g\mu_B\gamma_I\hbar} \chi_{sp} \quad (3.47)$$

Dans le cas où le champ appliqué est perpendiculaire à la direction c , on obtient plutôt

$$K_{\perp} = \frac{(A_{ab} + 4B)}{g\mu_B\gamma_I\hbar} \chi_{sp} \quad (3.48)$$

Le Knight shift apparaît donc comme une sonde de la susceptibilité de spin statique et uniforme. Les égalités (3.47) et (3.48) mettent clairement en évidence son rôle dans la détermination des paramètres hyperfins A_c , A_{ab} et B .

Chapitre 4

Résultats expérimentaux de RMN/RQN sur les $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

Nous exposons ici certaines des propriétés qu'exhibent dans leur état normal les matériaux $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ lorsque sondés en RMN/RQN. Nous nous intéressons essentiellement aux dépendances en température et en dopage du taux de relaxation T_1^{-1} du cuivre et de la susceptibilité de spin uniforme.

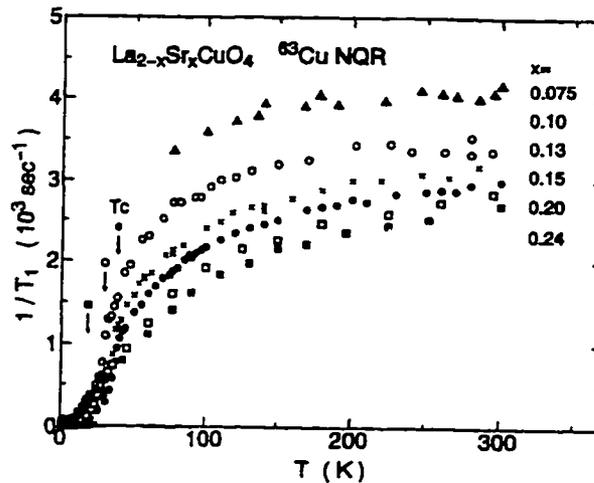


Figure 5 : Variation en x et en T du taux de relaxation du ^{63}Cu mesuré en RQN dans le composé de lanthane. D'après Ohsugi *et al.* [26].

La figure 5 illustre l'évolution en T du taux de relaxation mesuré en RQN sur des composés dont la concentration de strontium est distribuée de part et d'autre du dopage optimal $x = .15$, auquel est associé le plus haut T_c ($T_c = 38\text{K}$) pour la transition supraconductrice. On remarque d'abord que T_1^{-1} s'accroît lorsqu'on réduit la teneur en strontium de l'échantillon. Ohsugi *et al.* [26] attribuent ce comportement à la présence de fluctuations antiferromagnétiques de spin, lesquelles s'amplifient à l'approche du demi-remplissage. Celles-ci ont été mises en évidence par les expériences de diffusion

inélastique de neutrons (voir par exemple [29] et [30]) qui mesurent directement le facteur de structure magnétique $S(\mathbf{q}, \omega) = \frac{2\chi''_{np}(\mathbf{q}, \omega)}{1 - e^{-\beta\hbar\omega}}$. Il faut souligner qu'à basse fréquence et pour $T \lesssim 100K$, les pics de diffusion observés chez les composés avec $x > .05$ se situent en bord de zone le long de (q_x, π) et (π, q_y) ; ils correspondent à des fluctuations incommensurables. À plus haute température cependant, ou pour des dopages plus faibles, les maxima d'intensité deviennent commensurables. Une autre justification de l'existence de fluctuations antiferromagnétiques dans la phase normale des oxydes de cuivre se dégage des résultats de RMN/RQN relatifs aux $YBa_2Cu_3O_{6+x}$. Hammel *et al.* [31] ont mesuré les taux de relaxation des noyaux ^{63}Cu et ^{17}O des plans de CuO_2 . Ils ont alors constaté que la variation en température de T_1^{-1} de l'oxygène était très différente de celle du cuivre, ce qui était surprenant, vu la forte liaison covalente qui unit les deux ions. Cet écart a été interprété [23] [32] [4] au moyen d'arguments géométriques. On peut montrer que le facteur de forme atomique impliqué dans le calcul de T_1^{-1} pour l'oxygène est $F(\mathbf{q}) = 4 \cos^2 \frac{q_x}{2}$. (Il suffit de considérer l'interaction hyperfine entre le noyau ^{17}O et les spins électroniques localisés sur les deux ions de cuivre les plus proches). Puisque $F(\mathbf{q})$ s'annule à (π, π) , la contribution antiferromagnétique des fluctuations de spin est exclue, d'où la différence avec le taux de relaxation du ^{63}Cu qui est très sensible à ces dernières. Il apparaît aussi à la figure 5 que la dépendance en T de T_1^{-1} s'affaiblit à mesure que la température augmente. Près de T_c dans la phase normale, T_1^{-1} varie plutôt rapidement en T , alors qu'à haute température, les courbes deviennent presque horizontales.

À la figure 6, les mêmes points expérimentaux sont représentés sur un graphique de T_1T en fonction de T . Ce qu'il faut retenir de cette illustration, c'est que la quantité $(T_1T)^{-1}$ obéit à la loi de Curie-Weiss

$$(T_1T)^{-1} = \frac{cte}{T + \theta} \quad (4.49)$$

Cette égalité empirique est valable pour tous les échantillons au-dessus de $T = \theta$. La température θ est obtenue par extrapolation (les droites en figure 6 croisent l'abscisse à $T = -\theta$) et on constate que celle-ci est d'autant plus basse que x est petit. La dépendance de θ est linéaire en x et on estime que $\theta = 0$ à $x = .05$. Ohsugi *et al.* font remarquer qu'il semble y avoir une relation entre θ et T_c . En diminuant la concentration de strontium à partir de $x = .15$, ces deux températures se rapprochent, puis se confondent lorsque $x = .05$ (c'est la valeur du dopage à laquelle la supraconductivité disparaît ($T_c = 0$)).

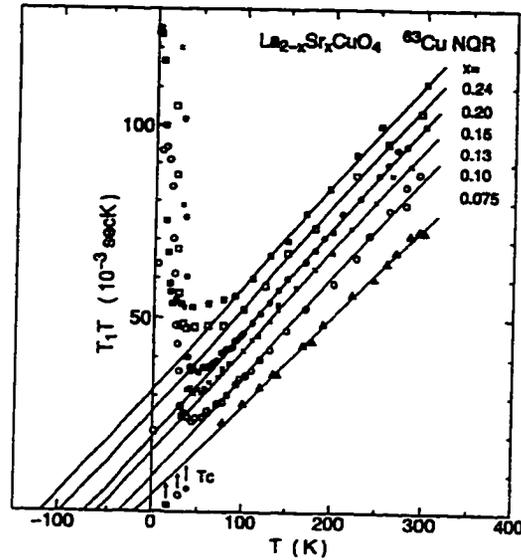


Figure 6 : T_1T en fonction de T pour les mêmes points expérimentaux qu'à la figure précédente.

Les résultats de RQN d'Imai *et al.* [33] qui font l'objet de la figure 7 sont importants puisque d'une part, ils couvrent un large éventail de températures, et d'autre part, ils incluent des matériaux faiblement et nullement dopés. On y présente notamment la dépendance en T de T_1^{-1} du composé pur La_2CuO_4 et du $\text{La}_{1.98}\text{Sr}_{0.02}\text{CuO}_4$, deux antiferroaimants dont les températures de Néel sont $T_N = 325\text{K}$ et $T_N = 38\text{K}$ respectivement. De plus, on retrouve le composé avec $x = .04$ dont la phase à T très petit est un verre de spin. La caractéristique la plus frappante dans ce graphique, c'est que tous les T_1^{-1} se regroupent à haute température; à partir de $T \simeq 700\text{K}$, le taux de relaxation ne dépend presque plus de la concentration de strontium, pas plus que de T d'ailleurs. Or, dans le contexte du modèle de Heisenberg 2D, des arguments de scaling [34] et des calculs numériques [35] [36] ont su rendre compte du fait que le T_1^{-1} du La_2CuO_4 devient constant ($T_1^{-1} \simeq 2600\text{s}^{-1}$) pour T grand. Imai *et al.* concluent de leurs expériences que les propriétés fondamentales des spins des orbitales $3d$ du cuivre demeurent inchangées par le dopage à haute température. C'est ce qui les amène à préconiser l'usage de ce modèle de moments localisés comme point de départ dans la description de ces matériaux. (Dans le langage du modèle de Hubbard, cela nous inciterait à considérer $U \gg t$).

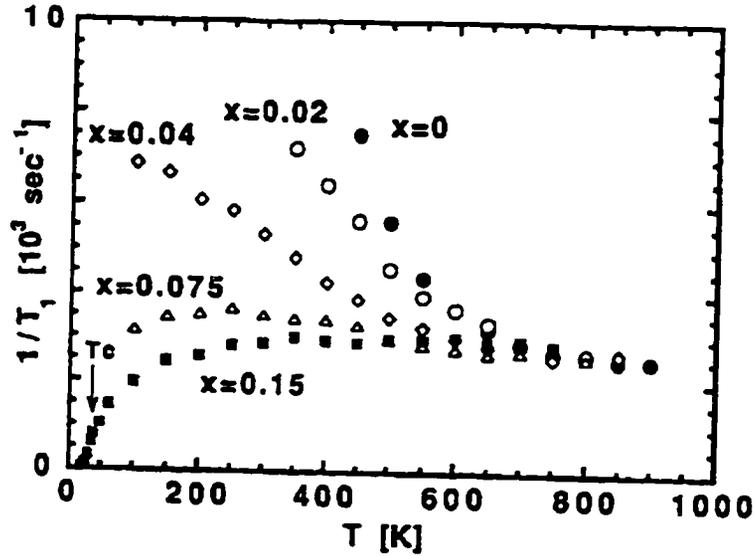


Figure 7 : Effet du dopage sur le comportement de T_1^{-1} en température dans les $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. (Observé par résonance quadrupolaire des noyaux ^{63}Cu). D'après Imai *et al.* [33].

On suggère [33] une interprétation physique intéressante des résultats de la figure 7 en se basant sur le jeu entre la longueur de corrélation antiferromagnétique ξ et la distance moyenne d entre les trous introduits par le dopage. L' image simple qu'Imai *et al.* proposent, c'est que tant et aussi longtemps que la probabilité de présence d'un trou à l'intérieur d'un rayon ξ n'est pas grande, alors la dynamique des spins ne change pas de façon drastique. Cependant, il est connu [37] [10] que ξ s'agrandit lorsque T et x diminuent. Si ξ devient comparable à d , alors les trous ont pour effet de réprimer fortement les fluctuations antiferromagnétiques de basse énergie. Prenons par exemple le cas $x = .075$. À haute température ($T \gtrsim 700\text{K}$), ce composé se comporte comme le La_2CuO_4 étant donné la courte portée des corrélations. En abaissant la température dans l'intervalle $300\text{K} \lesssim T \lesssim 700\text{K}$, T_1^{-1} croît, mais plus lentement que pour le matériau non-dopé; ξ s'approche de d . Puis, autour de $T \simeq 300\text{K}$, le taux de relaxation se met à chuter. Or, pour $x = .075$, la distance moyenne entre les trous est $\frac{d}{a} \simeq 3.7$ et on estime [37] qu'à 300K , $\frac{\xi}{a} \simeq 3$. À plus fort dopage ($x = .15$), l'effet est plus marqué: T_1^{-1} reste presque indépendant de la température jusqu'à $T \simeq 350\text{K}$, pour ensuite tomber de façon monotone à T petit. Encore une fois, les mêmes expériences de neutrons indiquent que $\frac{\xi}{a} \simeq \frac{d}{a}$ à 300K . Ces données pour $x = .075$ et $x = .15$ nous enseignent que la croissance des

corrélations antiferromagnétiques tend à être freinée par la présence de trous lorsque $\xi \simeq d$.

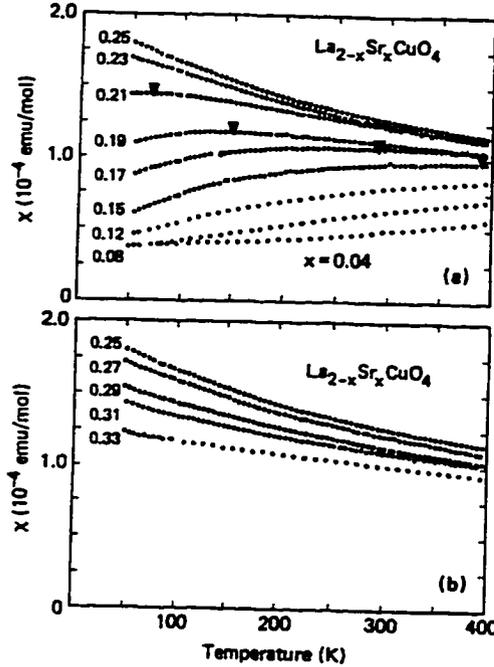


Figure 8 : Susceptibilité de spin χ_{sp} mesurée dans la phase normale des composés $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ pour plusieurs valeurs de x . Les triangles pleins indiquent les températures où χ_{sp} présente un maximum. D'après Torrance *et al.* [15].

Examinons finalement la susceptibilité magnétique uniforme χ_{sp} qui, nous l'avons vu au chapitre précédent, est reliée par des constantes hyperfines à la contribution des spins au Knight shift observé en RMN. La figure 8 fait état de son évolution en x et en T . En fonction de la concentration de strontium, χ_{sp} augmente (8(a)) si $.04 \leq x \leq .25$, atteint un maximum à $x = .25$, puis décroît à plus grand dopage (8(b)). On remarque également que pour $.15 \leq x \leq .21$, χ_{sp} présente un maximum, lequel se déplace vers les basses températures. Il est possible de comprendre qualitativement ces propriétés à l'aide du simple modèle tt' , sans faire appel au couplage électron-électron. En effet, comme $\chi_{sp} \equiv \chi_{sp}(q = 0, \omega = 0)$, la susceptibilité uniforme est peu sensible aux fluctuations magnétiques, qui se manifestent davantage autour de $\mathbf{Q} = (\pi, \pi)$. (Dans le cadre de la théorie ACDP, la répulsion U ajouterait un dénominateur $1 - \frac{U_{sp}}{2}\chi_o(q = 0, \omega = 0)$. Or celui-ci varie lentement

en T et en x et ne s'approche pas trop de 0, même dans le régime classique renormalisé, l'interaction critique U_c étant déterminée par $\chi_o(q_{\max}, \omega = 0)$. Pour le système sans interaction, on montre aisément que

$$\chi_{sp} = \frac{1}{T} \int d\epsilon N(\epsilon) f(\epsilon) [1 - f(\epsilon)] \quad (4.50)$$

où $N(\epsilon)$ est la densité d'états du hamiltonien tt' ; elle possède une singularité de Van Hove à $\epsilon_{V.H.} = 4t'$ (nous le verrons au chapitre suivant). La distribution $f(\epsilon) [1 - f(\epsilon)]$ est centrée sur le potentiel chimique μ et sa largeur augmente avec T . Cette expression permet d'expliquer simplement les données de χ_{sp} en se basant surtout sur la position de μ par rapport à la singularité de Van Hove. (Consulter la thèse de P. Bénard [21] pour des résultats numériques avec $U = 0$). Ainsi, pour obtenir un maximum à $x = .25$, on doit poser $t' \simeq -.28t$ (dans ce cas, $\mu \simeq 4t'$). La partie cinétique (tt') de notre modèle est donc suffisante pour interpréter qualitativement la variation de χ_{sp} en dopage et en température. Là où les interactions ($U \neq 0$) peuvent intervenir, c'est dans l'ajustement de la valeur absolue de la susceptibilité uniforme.

Chapitre 5

La méthode auto-cohérente à deux particules appliquée au calcul de T_1^{-1}

5.1 Considérations numériques

Dans cette section, nous allons montrer comment on peut transformer la formule de Moriya (3.42) en vue de la rendre plus commode pour les calculs numériques se rapportant au modèle de Hubbard 2D avec sauts vers les seconds voisins. Nous choisissons ici des unités telles que $\hbar, k_B, t, a \equiv 1$. En utilisant la forme RPA (2.13) pour la partie imaginaire de la susceptibilité magnétique, ainsi que l'expression (2.11) du système exempt d'interaction, le taux de relaxation des noyaux de cuivre s'écrit

$$T_1^{-1} = \frac{\pi T A_c^2}{(2\pi)^4} \int_{Z.B.} d\mathbf{k} \int_{Z.B.} d\mathbf{q} \frac{F(\mathbf{q})}{[1 - \frac{U_{sp}}{2} \chi'_s(\mathbf{q}, 0)]^2} \lim_{\omega \rightarrow 0} \frac{f(\epsilon(\mathbf{k})) - f(\epsilon(\mathbf{k}) + \omega)}{\omega} \delta(\epsilon(\mathbf{k}) - \epsilon(\mathbf{k} + \mathbf{q}) + \omega) \quad (5.51)$$

(Le choix du facteur de forme $F(\mathbf{q})$ se fait entre $F_{\parallel}(\mathbf{q})$ et $F_{\perp}(\mathbf{q})$ (équations (3.34) et (3.43)), selon l'axe de quantification des moments nucléaires). On introduit ensuite une intégrale sur les énergies de la bande et, en vertu de l'égalité $\lim_{\omega \rightarrow 0} \frac{f(\epsilon(\mathbf{k})) - f(\epsilon(\mathbf{k}) + \omega)}{\omega} = \beta f(\epsilon(\mathbf{k})) [1 - f(\epsilon(\mathbf{k}))]$, on trouve

$$T_1^{-1} = \frac{\pi A_c^2}{(2\pi)^4} \int_{-4-4t'}^{4-4t'} d\epsilon f(\epsilon) [1 - f(\epsilon)] \int_{Z.B.} d\mathbf{k} \delta(\epsilon - \epsilon(\mathbf{k})) \int_{Z.B.} d\mathbf{p} \delta(\epsilon - \epsilon(\mathbf{p})) \Gamma(\mathbf{p} - \mathbf{k}) \quad (5.52)$$

où nous avons défini, pour alléger l'écriture, $\Gamma(\mathbf{q}) = \Gamma(q_x, q_y) \equiv \frac{F(\mathbf{q})}{[1 - \frac{U_{sp}}{2} \chi'_s(\mathbf{q}, 0)]^2}$.

Pour un système où les électrons n'interagissent pas ($U = 0$) et où la relaxation des noyaux est régie par un hamiltonien hyperfin local et isotrope ($H_{hf} = A \mathbf{I}_n \cdot \mathbf{S}_n \Rightarrow F(\mathbf{q}) = 1$), l'équation (5.52) est réduite à

$$T_1^{-1} = \pi A^2 \int_{-4-4t'}^{4-4t'} d\epsilon f(\epsilon) [1 - f(\epsilon)] N^2(\epsilon) \quad (5.53)$$

où $N(\epsilon)$ est la densité d'états à une particule. Elle est donnée par [19]

$$N(\epsilon) = \frac{1}{(2\pi)^2} \int_{Z.B.} d\mathbf{k} \delta(\epsilon - \epsilon_{\mathbf{k}}) = \frac{1}{2\pi^2 \sqrt{1-t'\epsilon}} \mathbf{K} \left[\sqrt{\frac{16 - (\epsilon + 4t')^2}{16(1-t'\epsilon)}} \right] \quad (5.54)$$

\mathbf{K} étant l'intégrale elliptique complète de première espèce. Le carré de $N(\epsilon)$ est illustré en trait plein à la figure 9. Il faut noter la présence d'une singularité de Van Hove logarithmique dans la densité d'états à $\epsilon_{V.H.} = 4t'$. À basse température, on a $f(\epsilon) [1 - f(\epsilon)] \simeq T\delta(\epsilon - \mu)$, de sorte que le taux de relaxation devient simplement

$$T_1^{-1} = \pi A^2 T N^2(\mu) \quad (5.55)$$

On montre aisément que dans ces conditions ($U = 0$ et $T/t \ll 1$), le Knight shift K est égal, à une constante près, à la densité d'états au niveau de Fermi $N(\mu)$. On trouve alors que $T_1 T K^2 = cte$. C'est la relation de Korringa pour un gaz d'électrons libres, où T_1^{-1} varie linéairement avec la température (hormis la faible dépendance en T du potentiel chimique).

Dans le cas plus général, il est utile d'exploiter les symétries de $\Gamma(q_x, q_y)$ afin de réduire le domaine des intégrales sur \mathbf{k} et \mathbf{p} dans (5.52). Ce faisant, on diminue considérablement le temps de calcul requis pour mener l'intégration à terme. Explicitement, on transforme (5.52) comme suit:

$$T_1^{-1} = \frac{4\pi A_c^2}{(2\pi)^4} \int_{-4-4t'}^{4-4t'} d\epsilon f(\epsilon) [1 - f(\epsilon)] \int_{Z.B.R.} d\mathbf{k} \delta(\epsilon - \epsilon(\mathbf{k})) \int_{Z.B.R.} d\mathbf{p} \delta(\epsilon - \epsilon(\mathbf{p})) \\ \times \{ \Gamma(p_x - k_x, p_y - k_y) + \Gamma(p_x + k_x, p_y - k_y) + \Gamma(p_x - k_x, p_y + k_y) + \Gamma(p_x + k_x, p_y + k_y) \} \quad (5.56)$$

où Z.B.R. (**Z**one de **B**rillouin **R**éduite) désigne le premier quadrant de la zone de Brillouin du réseau carré. On peut intégrer sur k_x et p_x au moyen des deux fonctions delta et de l'identité suivante:

$$\delta(\epsilon - \epsilon(\mathbf{k})) = \frac{\delta(k_x - k_x^*)}{\sqrt{(2 + 4t' \cos k_y)^2 - (2 \cos k_y + \epsilon)^2}} \equiv \frac{\delta(k_x - k_x^*)}{\Phi(k_y)} \quad (5.57)$$

avec $k_x^* \equiv \arccos\left(\frac{2 \cos k_y + \epsilon}{-2 - 4t' \cos k_y}\right)$. Soulignons que l'équation (5.57) n'est valable que si k_y est tel que $\cos k_y \in \left[\frac{-1-\epsilon/2}{1+2t'}, \frac{1-\epsilon/2}{1-2t'}\right]$. (Autrement, il n'existe pas de k_x qui puisse annuler l'argument de la fonction delta). Notons aussi que nous ne nous intéresserons qu'à des cas où $|t'| < 1/2$. On obtient

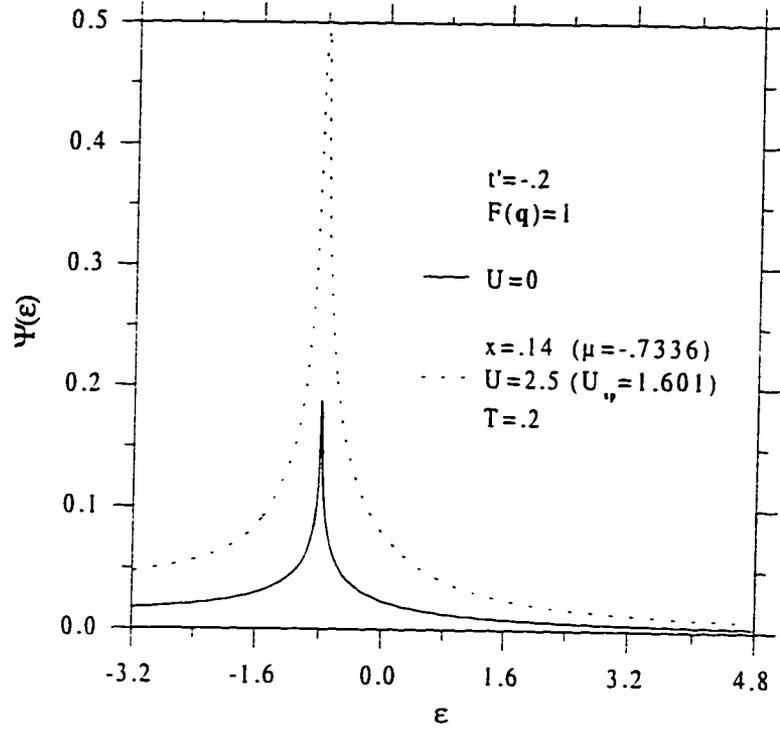


Figure 9 : L'effet de la répulsion U sur la fonction $\Psi(\epsilon)$ qui, pondérée par la distribution $f(\epsilon) [1 - f(\epsilon)]$, est intégrée sur la bande d'énergie. Noter qu'à $U = 0$, cette fonction n'est autre que le carré de la densité d'états $N(\epsilon)$.

finalement

$$T_1^{-1} = \pi A_c^2 \int_{-4-4t'}^{4-4t'} d\epsilon f(\epsilon) [1 - f(\epsilon)] \Psi(\epsilon) \quad (5.58)$$

avec

$$\Psi(\epsilon) \equiv \frac{4}{(2\pi)^4} \int_{D(\epsilon)} \frac{dk_y}{\Phi(k_y)} \int_{D(\epsilon)} \frac{dp_y}{\Phi(p_y)} \quad (5.59)$$

$\times [\Gamma(p_x^* - k_x^*, p_y - k_y) + \Gamma(p_x^* + k_x^*, p_y - k_y) + \Gamma(p_x^* - k_x^*, p_y + k_y) + \Gamma(p_x^* + k_x^*, p_y + k_y)]$
où p_x^* est analogue à k_x^* défini plus haut, et où $D(\epsilon)$ est le domaine

$$D(\epsilon) = \begin{cases} \left[0, \arccos\left(\frac{-1-\epsilon/2}{1+2t'}\right) \right] & \text{si } \epsilon \leq 4t' \\ \left[\arccos\left(\frac{1-\epsilon/2}{1-2t'}\right), \pi \right] & \text{si } \epsilon \geq 4t' \end{cases} \quad (5.60)$$

L'évaluation numérique du taux de relaxation en rendue assez simple par l'expression (5.58), en

prenant soin toutefois d'éviter la singularité à $\epsilon_{V.H.} = 4t'$. Il est préférable d'avoir recours à un programme séparé pour calculer $\chi'_o(q,0)$ à un nombre fini de vecteurs d'onde. On crée ainsi une matrice qui, avec une sous-routine d'interpolation permettant de déterminer la susceptibilité statique pour un q quelconque, est ensuite incluse dans l'algorithme principal. La figure 9 donne un aperçu du comportement de la fonction $\Psi(\epsilon)$ qui représente dans (5.58) le résultat de l'intégration sur les vecteurs d'onde. Elle y est tracée pour $U = 0$ (où $\Psi(\epsilon) = N^2(\epsilon)$) et pour un cas particulier du modèle $tt'U$; il est clair que l'ajout des interactions aura pour effet d'augmenter T_1^{-1} .

5.2 L'effet de la répulsion U sur T_1^{-1}

Nous nous intéressons ici au comportement en température du taux de relaxation nucléaire, et plus particulièrement, à la façon dont celui-ci est modifié lorsque sont incluses dans le modèle les interactions électron-électron. Afin de bien cerner la seule influence de U , nous ne considérons pour le moment qu'un cas simple avec $n = .86$, $t' = 0$ et $F(q) = 1$. Nous reportons aux sections ultérieures les effets du niveau de remplissage de la bande, des sauts aux seconds voisins et d'une éventuelle dépendance en q du facteur de forme atomique.

La figure 10 montre les changements que subit la courbe T_1^{-1} vs T suite à l'ajout de la répulsion intrasite. L'intervalle de température choisi devrait en principe couvrir tous les résultats expérimentaux dont nous disposons pour le composé de lanthane (nous avons vu au chapitre 2 que $t \simeq 5000K$). Concernant le système sans interaction, on voit qu'à basse température le taux de relaxation varie à peu près linéairement avec T , comme nous l'a indiqué l'équation (5.55). On note une déviation de plus en plus importante de ce comportement de Korringa à mesure que T monte et que l'approximation de $f(\epsilon)[1 - f(\epsilon)]$ par une fonction delta perd de sa validité. Dans le but de juger des avantages de la méthode ACDP sur la RPA habituelle, nous avons calculé les taux de relaxation de 10(a) en laissant U fixe, tandis que pour 10(b), U a été renormalisé à U_{sp} .

5.2 a) La RPA conventionnelle

Considérons d'abord la première de ces façons de faire. Avec $n = .86$, la RPA permet une tran-

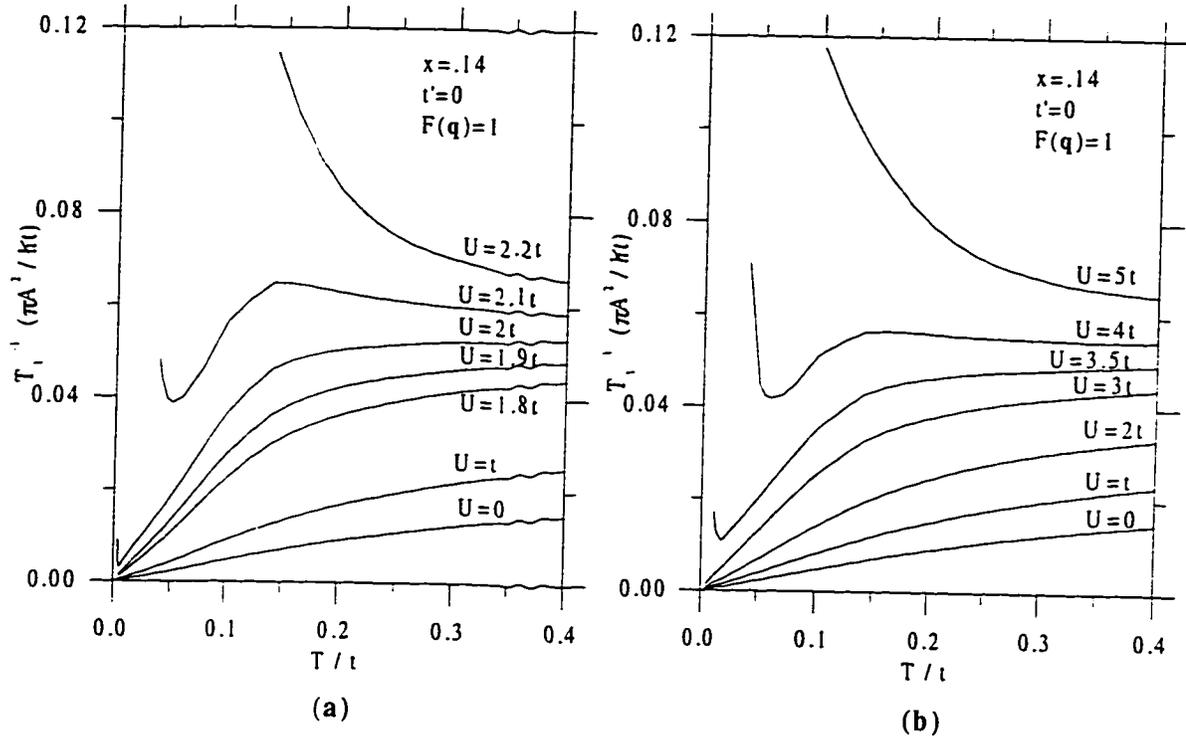


Figure 10 : T_1^{-1} en fonction de la température pour plusieurs valeurs du paramètre U . En (a), on a laissé telle quelle la valeur de la répulsion U , alors qu'en (b), elle été renormalisée au moyen de la méthode ACDP

sition de phase magnétique à température finie si U dépasse l'interaction critique à $T = 0$, soit $U_c \simeq 1.985t$ (il est utile de se référer à la courbe en trait pointillé de la figure 2(b)). Ainsi, parmi les exemples qui sont illustrés en 10(a), on en compte trois qui présentent à basse température un ordre magnétique à longue portée. Dans les trois cas, il s'agit de phases d'onde de densité de spin, orientées selon (π, q_y) , qui surviennent aux températures critiques $T_{ODS}(U = 2t) = .0035t$, $T_{ODS}(U = 2.1t) = .031t$ et $T_{ODS}(U = 2.2t) = .073t$. (Il faut poser $U \gtrsim 2.4t$ pour que la transition prédite par le critère de Stoner se fasse vers un ordre antiferromagnétique). Ces instabilités provoquent la divergence de T_1^{-1} à T_{ODS} (à cause, bien sûr, de la condition $\frac{U}{2}\chi_o(q_{max}, 0) = 1$), ce qui apparaît clairement sur ce graphique pour $U = 2t$ et $U = 2.1t$.

L'état fondamental des systèmes avec $U < 1.985t$ est paramagnétique et leur taux de relaxation est nul à $T = 0$. Dans la limite où le paramètre d'interaction est faible, c'est-à-dire bien en deçà de U_c , T_1^{-1} est augmenté relativement à sa valeur à $U = 0$ d'un facteur qui varie très peu avec la

température, de sorte que l'allure générale de la courbe est conservée. Par exemple, pour $U = t$, le rapport $\frac{T_1^{-1}(U=t)}{T_1^{-1}(U=0)}$ est de 1.68 à $T = .4t$ et il grandit de façon monotone pour atteindre 1.90 à $T = .005t$. Cependant, à mesure que l'on élève U vers $U_c(T=0)$, on remarque que l'aspect qualitatif de la courbe T_1^{-1} vs T diffère de plus en plus du cas sans interaction. Bien qu'à $U = 1.8t$ et $U = 1.9t$ elle affiche toujours une dépendance linéaire en T aux basses températures, à T grand, elle devient presque plate. Il faut y voir une manifestation des fluctuations de spin autour de q_{\max} dont l'influence sur le taux de relaxation, via le facteur $\Gamma(q) = [1 - \frac{U}{2}\chi'_o(q_{\max}, 0)]^{-2}$ dans l'intégrale (5.51), est d'autant plus importante que la répulsion est forte et que la température est basse. S'il est vrai que $\chi'_o(q_{\max}, 0)$ varie lentement avec T (il suffit de regarder l'évolution de U_c à la figure 2(b) pour s'en convaincre), il n'en est rien pour $\Gamma(q_{\max})$ qui peut croître rapidement vers $T = 0$ lorsque la répulsion amène le modèle suffisamment près d'une instabilité. Voyons cela de plus près en comparant les résultats de $U = t$ et $U = 1.9t$. Dans le cas du couplage plus faible, $\Gamma(q_{\max})$ passe de 3.94 à 2.20 dans l'intervalle $.005t \leq T \leq .4t$. Bien entendu, en s'éloignant de q_{\max} , on voit la sensibilité de $\Gamma(q)$ en température chuter. Notamment, au centre de la zone de Brillouin, en $q = 0$, sa modulation est à peine perceptible (moins de 7%). Avec $U = 1.9t$, l'effet de la température sur le facteur $\Gamma(q_{\max})$ est beaucoup plus prononcé. Celui-ci passe alors, entre les mêmes températures, de 308 à 6.96. Encore une fois, $\Gamma(q = 0)$ reste à peu près constant sur cet intervalle. Dans le calcul de T_1^{-1} , le rôle du dénominateur dans la formulation RPA de χ''_{sp} est donc clair. Il est d'accentuer davantage l'apport des fluctuations magnétiques qui sont à proximité de q_{\max} , et ce, spécialement à basse température. Il est intéressant de constater qu'à T petit, en dépit de la croissance rapide de la quantité $\Gamma(q_{\max})$, les courbes pour $U = 1.8t$ et $U = 1.9t$ présentent un comportement de type Korringa sur une plage de température plutôt large qui s'étend de $T = 0$ à $T \simeq .08t$. Ceci implique que dans cette région, $\sum_q \Gamma(q) \lim_{\omega \rightarrow 0} \frac{\chi''_o(q, \omega)}{\omega} \simeq cte$. On voit donc que la contribution de q_{\max} , bien que dominante, ne dicte pas à elle seule le résultat de l'intégrale. (On peut aussi s'en apercevoir en observant qu'à $U = 1.9t$ et $T = .005t$, on a $\frac{T_1^{-1}(U=1.9)}{T_1^{-1}(U=0)} \simeq 6.5 \ll \Gamma(q_{\max})$).

Examinons maintenant les taux de relaxation que nous avons calculés pour $U > 1.985t$. Notons d'abord qu'à haute température, loin des instabilités à T_{ODS} , leur dépendance en T tend à s'affaiblir, comme le fait celle de $\Gamma(q_{\max})$. Ce qui est plus frappant toutefois, c'est le changement dramatique du comportement à basse température qui survient lorsque U est renforcé de $.1t$ seulement. À $U =$

$2t$, la température de transition est extrêmement basse et T_1^{-1} ne déroge de la loi de Korringa qu'à partir de $T \simeq .005t$ (surprenant, puisque de $T = .01t$ à $T = .005t$, $\Gamma(\mathbf{q}_{\max})$ passe de 76 à plus de 18000). Au-dessous de cette température, $\Gamma(\mathbf{q}_{\max})$ grandit beaucoup plus rapidement que $\frac{1}{T}$, annonçant la divergence. Le cas intermédiaire $U = 2.1t$ est particulier parce que le taux de relaxation affiche un maximum à $T \simeq .15t$. La présence de ce dernier est une conséquence du déplacement du vecteur \mathbf{q}_{\max} , qui se détache de $\mathbf{Q} = (\pi, \pi)$ à $T \simeq .16t$ pour devenir incommensurable. Si on abaisse la température, en restant au-dessus de $T \simeq .15t$, le modèle se comporte un peu comme s'il se dirigeait vers une transition antiferromagnétique; les fortes fluctuations à (π, π) font augmenter T_1^{-1} . À partir de $T \simeq .15t$, la nature de la transition pressentie par le système n'est plus la même et T_1^{-1} chute jusqu'à $T \simeq .05t$, où la divergence de $\chi_{sp}(\mathbf{q}_{\max}, 0)$ devient clairement imminente ($T_{ODS} \simeq .031t$). On peut donc concevoir ce maximum dans la courbe T_1^{-1} vs T comme étant une manifestation de la transition commensurable qui aurait pu avoir lieu, moyennant un U plus élevé ($U \gtrsim 2.4t$). Avec $U = 2.2t$ et plus, la croissance des fluctuations critiques est telle que T_1^{-1} ne diminue jamais si on abaisse T , même à $T < .15t$, où $\mathbf{q}_{\max} = (\pi, \pi - \delta)$. (Bien que cela ne soit pas manifeste sur le graphique 10(a), cette dernière affirmation pour $U = 2.2t$ a été vérifiée numériquement jusqu'à la température de transition $T_{ODS} \simeq .073t$).

C'est en se servant du modèle tU avec $U = 2t$ et $n = .86$ que Bulut *et al.* [5] ont entrepris, avec un certain succès, de lisser des mesures du taux de relaxation du cuivre dans les plans conducteurs du $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$. Signalons au passage que leurs résultats numériques montrent que T_1^{-1} varie linéairement en T à basse température, jusqu'à $T = 0$, alors que nos calculs ont mis en évidence l'existence d'une instabilité d'onde de densité de spin à $T_{ODS} \simeq .0035t$ avec ces mêmes paramètres. On peut présumer qu'ils n'ont pas effectué de calculs à T assez petit pour déceler cette transition, ce qui est sans lourde conséquence pour la présente discussion. L'approche que Bulut *et al.* préconisent pour fixer la valeur de U est simple. À un niveau de remplissage donné, ils ajustent l'interaction de manière à ce que le système se trouve très proche d'une instabilité magnétique à $T \rightarrow 0$, en évitant de justesse la condition $\frac{U}{2}\chi'_o(\mathbf{q}_{\max}, 0) = 1$. De cette façon, ils arrivent à incorporer dans le modèle l'apport considérable des fluctuations de spin de grand vecteur d'onde à basse température, lequel est essentiel si on cherche à reproduire les résultats expérimentaux. Selon leur point de vue, lorsque le paramètre U est ainsi fixé, il représente une répulsion effective (ou renormalisée) plutôt que l'interaction de Hubbard nue. Les maintes courbes de T_1^{-1} vs T que nous avons tracées à proximité

de $U = 2t$ portent à réfléchir sur les limitations qui accompagnent une telle démarche. D'une part, cette "renormalisation" est plutôt arbitraire en ce qu'elle ne fait aucunement appel à la répulsion nue qui, nous l'avons mentionné, devrait se situer dans le régime du couplage intermédiaire; ici, U est traité comme un simple paramètre de lissage. De plus, T_1^{-1} étant très sensible à de petites variations de U , il est évident que la répulsion effective doit être réajustée à chaque remplissage considéré, ce qui ajoute à l'incertitude dans cette façon de faire. Idéalement, il faudrait une approche qui puisse, à partir d'une seule valeur de l'interaction nue (de préférence autour de $8t$), assurer une renormalisation qui soit convenable quel que soit le niveau de remplissage de la bande. Nous allons voir si la méthode ACDP peut nous aider dans ce sens.

5.2 b) Utilisation de la méthode ACDP

Examinons à présent les résultats qu'expose la figure 10(b). En premier lieu, rappelons qu'à $n = .86$, seuls les systèmes avec $U \gtrsim 3.4t$ sont caractérisés par la présence d'un régime classique renormalisé à basse température (voir la figure 2(b)). De ceux qu'on retrouve en 10(b), les cas $U = 3.5t$, $U = 4t$, et $U = 5t$ atteignent ce régime à $T_x \simeq .011t$, $T_x \simeq .037t$ et $T_x \simeq .066t$ respectivement. Comme on peut le voir sur ce graphique, la croissance exponentielle du facteur d'augmentation $\tilde{\xi}^2 = \left[1 - \frac{U_{sp}}{2} \chi_o(\mathbf{q}_{\max}, 0)\right]^{-1}$ qui s'amorce avec l'arrivée de la température de crossover entraîne une montée fulgurante du taux de relaxation. Notons que nous n'avons pas effectué de calcul numérique de T_1^{-1} à $T < T_x$; la durée d'exécution du programme lorsque $\tilde{\xi}^2 > 500$ est excessivement longue. Néanmoins, il est possible d'apprécier la croissance de T_1^{-1} dans le régime classique renormalisé par cette analyse simple:

En dimension d , la présence de la petite échelle d'énergie $\delta U \ll T$ nous permet de développer comme suit la susceptibilité de spin autour de \mathbf{Q}_d ($\mathbf{Q}_2 = (\pi, \pi)$, $\mathbf{Q}_3 = (\pi, \pi, \pi)$, etc.) dans la limite $\omega \simeq 0$ (nous supposons pour simplifier que \mathbf{q}_{\max} est le vecteur d'onde antiferromagnétique):

$$\chi_{sp}(\mathbf{q} + \mathbf{Q}_d, \omega) \simeq \xi^2 \frac{2}{U_{sp} \xi_o^2} \left[\frac{1}{1 + q^2 \xi^2 - \frac{i\omega \xi^2}{D}} \right] \quad (5.61)$$

où $D \equiv \frac{\xi_o^2}{\tau_o}$, avec $\tau_o \equiv \frac{1}{\chi_{..}(\mathbf{Q}_d, 0)} \left[\frac{\partial \chi_{..}(\mathbf{Q}_d, \omega)}{\partial(i\omega)} \right]_{\omega=0}$ et $\xi_o^2 \equiv \frac{-1}{2\chi_{..}(\mathbf{Q}_d, 0)} \left[\frac{\partial^2 \chi_{..}(\mathbf{q}, 0)}{\partial q_i^2} \right]_{\mathbf{q}=\mathbf{Q}_d}$ (consulter [38] pour plus de précisions sur ces quantités). Il s'agit évidemment d'un développement analogue à

(2.16), excepté que la fréquence n'est pas strictement nulle. On peut comparer cette approximation à l'expression de scaling plus générale

$$\chi_{sp}(\mathbf{q} + \mathbf{Q}_d, \omega) \simeq \xi^{\gamma/\nu} X(\mathbf{q}\xi, \omega\xi^z) \quad (5.62)$$

On voit immédiatement qu'en ce qui nous concerne, les exposants critiques sont $\frac{\gamma}{\nu} = 2$ et $z = 2$. Se servant de l'équation (5.62), on peut écrire le taux de relaxation comme

$$T_1^{-1} \simeq T\xi^{z+z-d} \frac{1}{(2\pi)^d} \int d^d(q\xi) \lim_{\omega \rightarrow 0} \frac{X''(\mathbf{q}\xi, \omega\xi^z)}{\omega\xi^z} \quad (5.63)$$

Avec $d = 2$, la forme (5.61) de χ_{sp} conduit sans peine au résultat

$$T_1^{-1} \simeq T\xi^2 \frac{1}{(2\pi)^2} \frac{2}{U_{sp}\xi_\sigma^2 D} \int d^2(q\xi) \frac{1}{[1 + (q\xi)^2]^2} \sim T\xi^2 \quad (5.64)$$

Revenons maintenant à la figure 10(b). Pour toutes les valeurs de U considérées, l'interaction renormalisée U_{sp} ne varie que très lentement avec la température (tant que celle-ci est supérieure à T_x , s'il y a lieu). Il en résulte que les dépendances en T obtenues ne sont pas très différentes de celles qui viendraient suite à l'utilisation d'un $U \simeq U_{sp}$ fixe. En effet, à chaque type de comportement illustré en 10(b), on peut en identifier un semblable en 10(a). Notamment, à $U = 4t$, la répulsion effective passe lentement de $U_{sp} \simeq 2.11t$ à $U_{sp} \simeq 2.03t$ entre $T = .04t$ et $T = .4t$ et on observe que T_1^{-1} se comporte à peu près comme si on avait posé $U_{sp} = 2.1t$ sur la première moitié de l'intervalle et $U_{sp} = 2t$ sur la seconde.

Nonobstant, force nous est de constater que, dans le contexte de cette approche auto-cohérente, la sensibilité du taux de relaxation au paramètre U est décrie notablement, ce qui en soi représente un avantage considérable sur la RPA traditionnelle. Par exemple, après renormalisation, le passage de $U = 3t$ à $U = 4t$ modifie la courbe T_1^{-1} vs T à peu près de la même façon que le fait le changement $U = 1.9t \rightarrow U = 2.1t$ en RPA. Bien que la méthode ACDP permette l'emploi d'une interaction nue quelque peu plus forte qu'en RPA ordinaire, il semble que l'accord avec les expériences sur les $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ soit impossible pour un couplage intermédiaire, du moins en ce qui a trait au modèle tU avec la densité électronique $n = .86$. (Il suffit de regarder les calculs à $U = 5t$ pour s'en assurer). L'inspection des résultats expérimentaux présentés au chapitre 4 porte à croire qu'une valeur de

U aux alentours de $3t$ serait plus appropriée. Nous avons déjà anticipé ce genre de problème au chapitre 2 en examinant les diagrammes de phases de la figure 3.

5.3 Dépendance de T_1^{-1} en x et comportement de Curie-Weiss

Nous nous proposons maintenant d'étudier les modifications que subit la courbe T_1^{-1} vs T suite à la variation du remplissage de la bande. Encore une fois, nous ferons abstraction du terme en t' dans le hamiltonien (2.1) et supposons que la relaxation est régie par un couplage hyperfin de contact ($F(q) = 1$). La figure 11 rapporte des résultats numériques pour le modèle avec $U = 0$ en (a) et $U = 2.5t$ en (b), du demi-remplissage ($x = 0$) jusqu'à $x = .24$. Il va sans dire qu'en présence des interactions électron-électron, le comportement de T_1^{-1} en température est beaucoup plus sensible au paramètre $n = 1 - x$ qu'il ne l'est pour $U = 0$.

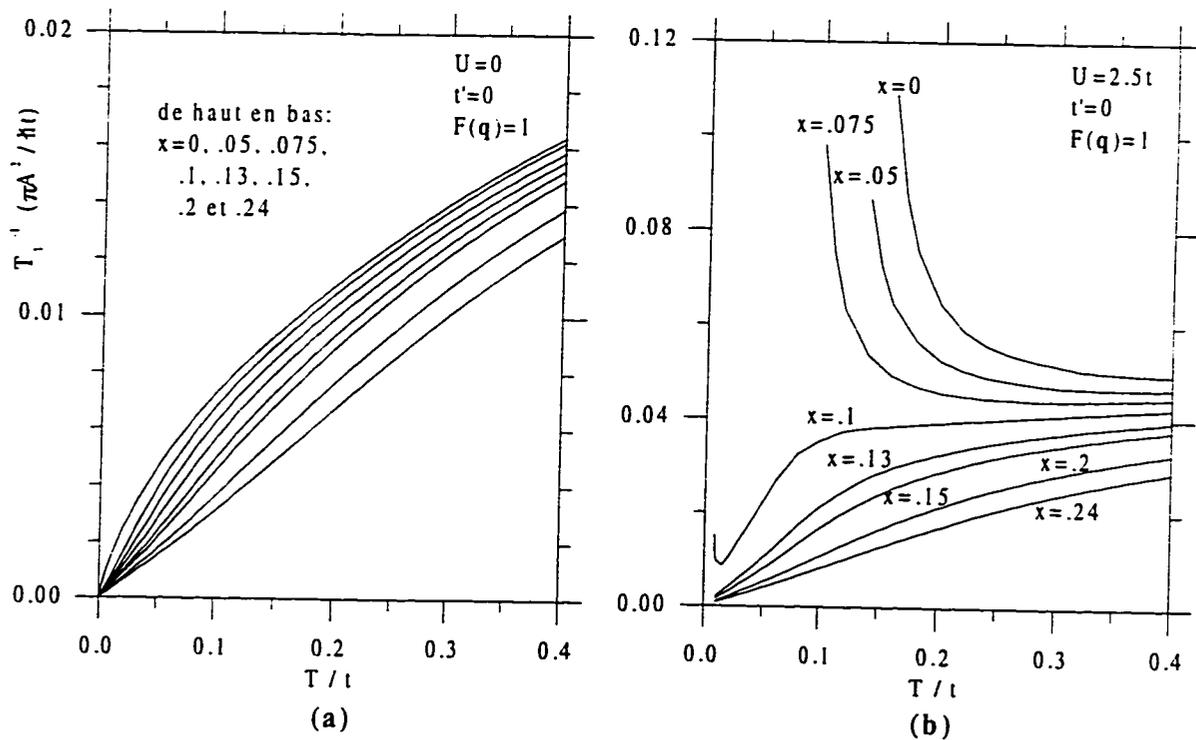


Figure 11 : Taux de relaxation du modèle tU avec $U = 0$ et $U = 2.5t$ en fonction de la température pour maintes valeurs du remplissage $n = 1 - x$. En (b), on a tenu compte de la renormalisation de l'interaction par la méthode ACDP.

Selon l'équation (5.53), lorsque la répulsion est nulle, un changement dans la densité électronique se manifeste dans la valeur de T_1^{-1} simplement par son action sur le potentiel chimique et sa proximité de la singularité de Van Hove. Avec $t' = 0$, celle-ci est à $\epsilon_{V.H.} = 0$, ce qui fait qu'à demi-remplissage ($\mu = 0 \forall T$) le taux de relaxation est à son maximum, comme en témoigne la figure 11(a). L'ajout de trous (i.e. l'augmentation de x) rend μ plus négatif et la contribution de la singularité N^2 ($\epsilon = 0$) dans l'intégrale (5.53) se trouve amoindrie, de même que T_1^{-1} . (Bien entendu, l'ajout d'électrons à partir de $n = 1$ produirait le même effet sur le taux de relaxation; à cause de la symétrie particule-trou qui existe pour $t' = 0$, T_1^{-1} est ici une fonction paire de x). Notons que le rapport $\frac{|T_1^{-1}(x \neq 0) - T_1^{-1}(x=0)|}{T_1^{-1}(x=0)}$, qui mesure l'effet relatif du dopage sur le taux de relaxation, décroît vers T grand quel que soit x . C'est dire que l'échelle d'énergie $|\mu - \epsilon_{V.H.}|$ introduite par le dopage exerce sur T_1^{-1} une influence qui s'atténue à mesure que T augmente et que s'élargit la distribution $f(\epsilon)[1 - f(\epsilon)]$.

Lorsque l'interaction $U = 2.5t$ est incluse, le diagramme de phases du modèle devient celui de la figure 3, et pour $x \lesssim .11$, son état à basse température est un régime classique renormalisé. Les systèmes avec $x > .11$ ont un état fondamental paramagnétique et leurs taux de relaxation varient presque linéairement avec T à basse température, comme à $U = 0$. À T petit, quand on réduit x vers $x = .11$, le modèle se rapproche d'une quasi-transition et, par le biais de l'augmentation $\tilde{\xi}^2$, voit croître sensiblement ses fluctuations incommensurables autour de q_{\max} , de sorte que le rapport $\frac{T_1^{-1}(U=2.5t)}{T_1^{-1}(U=0)}$ est amplifié. (À $T = .01t$, celui-ci passe de 2.7 à 4.6 entre $x = .24$ et $x = .13$). À mesure que T augmente, les effets du dopage et de la température sur $\frac{T_1^{-1}(U=2.5t)}{T_1^{-1}(U=0)}$ s'estompent; l'écart entre U_{sp} et U_c s'élargit et l'apport des fluctuations critiques à la relaxation devient moins important. (À $T = .4t$, ce ratio ne change que de 2.2 à 2.6 entre $x = .24$ et $x = .13$). Tout ceci confère aux courbes T_1^{-1} vs T avec $x \rightarrow .11^+$ une forte pente là où le comportement de Korringa s'applique, puis un aspect plutôt plat à température élevée, tandis que pour x beaucoup plus grand, T_1^{-1} est augmenté d'un facteur presque constant par rapport au cas $U = 0$.

Regardons maintenant ce qui se produit dans les systèmes où la densité d'électrons est supérieure à $n = .89$. Les températures de crossover pour les situations illustrées en 11(b) sont T_x ($x = .1$) $\simeq .009t$, T_x ($x = .075$) $\simeq .05t$, T_x ($x = .05$) $\simeq .11t$ et T_x ($x = 0$) $\simeq .13t$. Comme nous l'avons vu à la section précédente, en atteignant T_x , le taux de relaxation se met à croître très rapidement comme

$T\xi^2$; l'exemple $x = .1$ donne un aperçu de cette croissance. Ce qu'il est important de signaler, c'est la montée plus lente de T_1^{-1} qui s'amorce bien au-dessus de T_x dès que $x \leq .075$. Même loin de T_x , δU devient assez petit pour que les fluctuations de grand q (notons que $q_{\max} = (\pi, \pi)$ dans la région concernée) réussissent à faire grandir appréciablement T_1^{-1} vers les basses températures. Ce phénomène est évidemment fort gênant pour qui cherche à reproduire les résultats expérimentaux. En effet, les données d'Imai *et al.* (figure (7)) révèlent qu'à $x = .075$, T_1^{-1} dépend très faiblement de la température entre $T \simeq 100K$ et $T \simeq 850K$. Bien qu'il faille en principe utiliser le facteur de forme $F_{\parallel}(q)$ pour comparer avec ces expériences sur la relaxation du cuivre, il est facile de voir d'après la figure 4(b) que celui-ci n'atténue pas les fluctuations antiferromagnétiques suffisamment pour contrer cette croissance, clairement indésirable pour $x = .075$ (quoique plutôt souhaitable plus près du demi-remplissage). Il semble donc que dans le contexte du présent modèle, cette valeur modérée de l'interaction nue soit tout de même trop grande pour qu'on obtienne un accord, même qualitatif, avec l'état normal du $\text{La}_{1.925}\text{Sr}_{.075}\text{CuO}_4$. Manifestement, c'est la largeur du diagramme de phases illustré en 3 qui se fait sentir. À $x = .1$ toutefois, on peut encore croire à un accord satisfaisant avec le $\text{La}_{1.9}\text{Sr}_{.1}\text{CuO}_4$ à $T > T_c$; la température de crossover est très basse et ce n'est que près de la quasi-transition que T_1^{-1} commence à augmenter.

Quel que soit le remplissage de la bande, on remarque à la figure 11(b) que la dépendance de T_1^{-1} en T tend à s'affaiblir à haute température, ce que corrobore d'ailleurs l'observation expérimentale. Cependant, l'expérience [33] indique aussi qu'à T grand ($T \gtrsim 700K$) le taux de relaxation devient aussi indépendant de la concentration de dopant, ce qui ne ressort pas de nos calculs avec $U = 2.5t$. À $T = .4t$, ce qui devrait constituer une très haute température si on se fie à l'estimation $t \simeq 5000K$, on a $\frac{T_1^{-1}(x=0)}{T_1^{-1}(x=.24)} \simeq 1.7$. (Ce ratio se rapproche quelque peu de l'unité si on accroît la température, mais il le fait très lentement et à $T = t$, il est environ 1.3). Comme nous l'avons mentionné au chapitre 4, Imai *et al.* suggèrent que ce comportement des $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ à haute température relève du caractère localisé des spins des orbitales $\text{Cu}(3d)$. Or, dans le modèle de Hubbard, surtout à proximité du demi-remplissage, la localisation des moments passe par la condition $U \gg t$. Ainsi, nous serions en droit de nous attendre à ce qu'une hausse de la répulsion U puisse réduire l'écart entre les taux de relaxation calculés pour différentes valeurs de x à T grand. Malheureusement, la figure 12 nous montre qu'il n'en est rien. Cette dernière fait état de l'évolution de T_1^{-1} en x à $T = .4t$, avec des valeurs du couplage allant jusqu'à la largeur de bande. On peut y voir que, loin

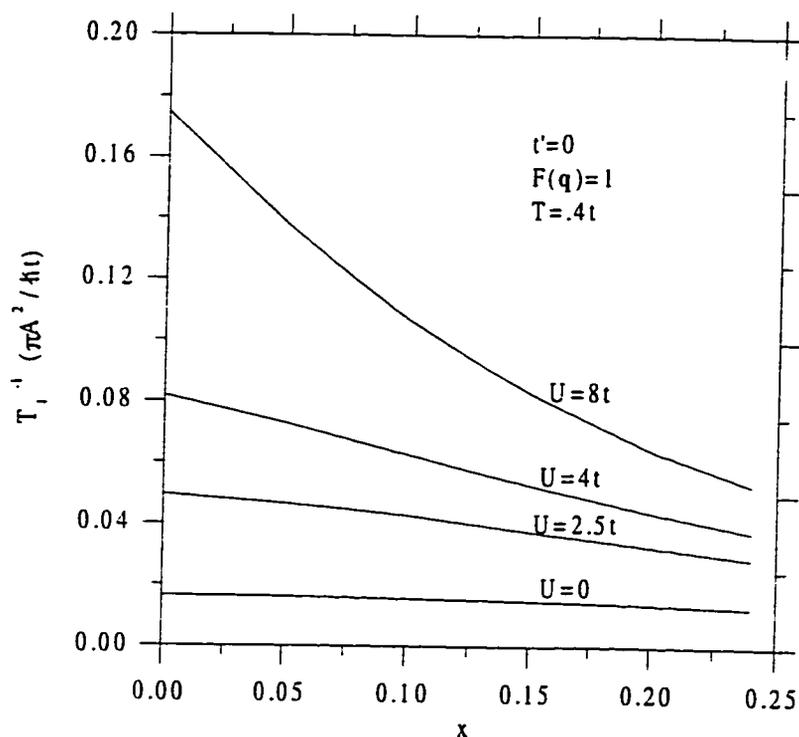


Figure 12 : T_1^{-1} en fonction de x pour le modèle tU à $T = .4t$ avec plusieurs valeurs de la répulsion nue.

de regrouper les courbes T_1^{-1} vs T à haute température, le renforcement de l'interaction nue les sépare davantage, ce qui, semble-t-il, est en contradiction avec la suggestion d'Imai *et al.*. Nous ne pouvons cependant nous prononcer sur les conséquences d'un couplage encore beaucoup plus grand puisqu'à $U > W$, la méthode ACDP telle que nous l'avons utilisée n'est plus valable. Il faut alors inclure des effets de self-énergie, ce qui dépasse les objectifs de ce travail. (Nous verrons à la section suivante qu'il est possible de rendre T_1^{-1} presque indépendant du remplissage à T grand en ayant recours au terme de saut aux seconds voisins).

À la figure 13, nous avons repris les situations décrites par 11(a) et 11(b) pour représenter $T_1 T$ en fonction de T . Nous voulons ainsi établir un parallèle avec la figure 6 et vérifier si notre modèle permet de retrouver la relation de Curie-Weiss (4.49) qui existe chez les $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. Soulignons avant tout que nos calculs à $U = 2.5t$ révèlent la présence d'un minimum de $T_1 T$ à température finie pour les systèmes dont le comportement est de type Korringa ($T_1 T \simeq \text{cte}$) à T petit (i.e. ceux qui ne subissent pas de quasi-transition de phase magnétique). En figure 6, la transition supraconductrice

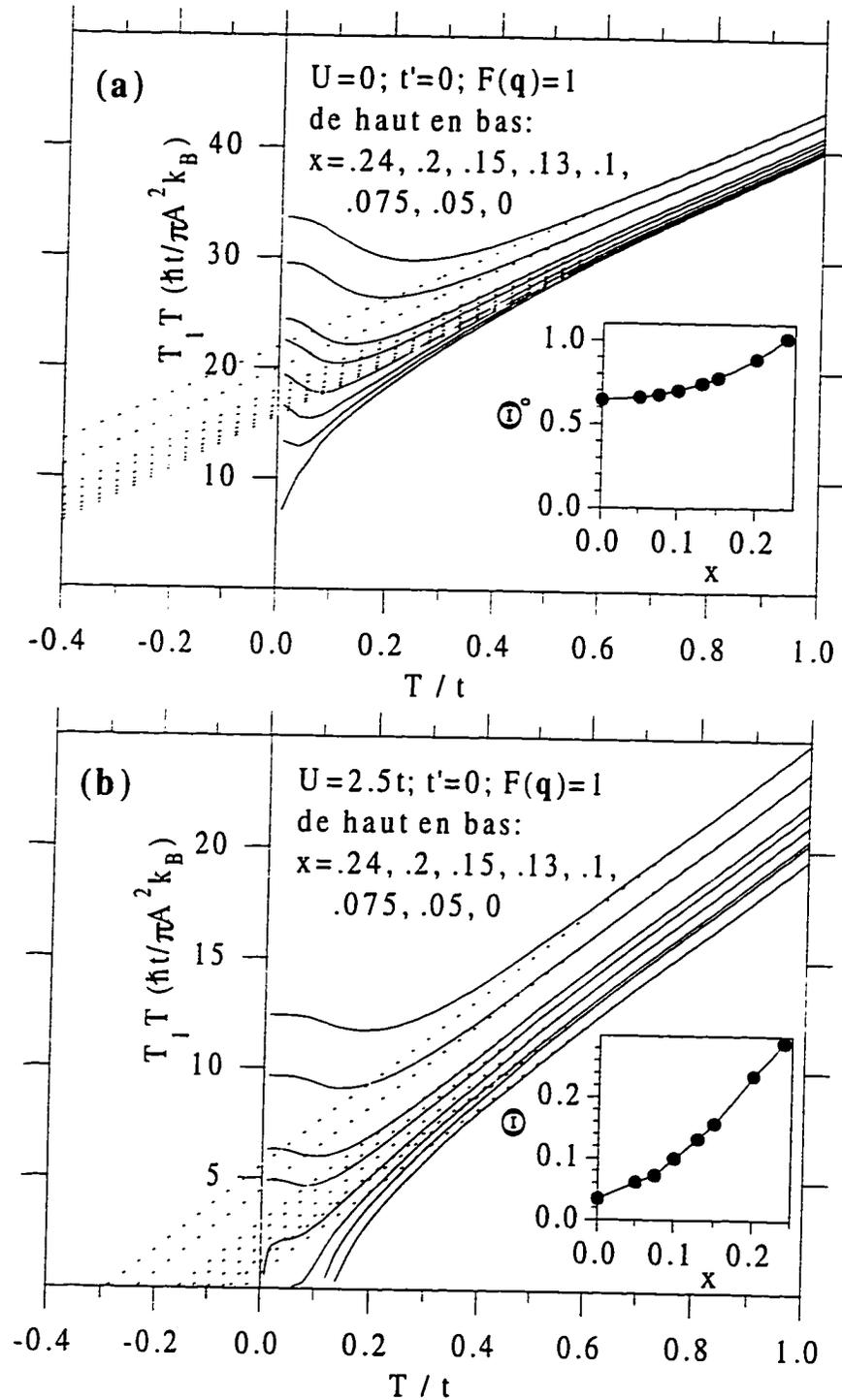


Figure 13 : Les calculs présentés à la figure 11 sont étendus jusqu'à $T = t$ et on illustre $T_1 T$ vs T . Les températures θ_0 et θ sont évaluées par extrapolation (lignes pointillées) et on retrouve leur dépendance en x en médaillon.

Chapitre 5: La méthode auto-cohérente à deux particules appliquée au calcul de T_1^{-1}

nous empêche de savoir si cette caractéristique serait également observée dans l'état normal du composé de lanthane. (Pour le savoir, sans doute faudrait-il que l'on mesure T_1^{-1} avec des matériaux plus fortement dopés ($x \gtrsim .35$) qui n'affichent pas d'état supraconducteur à basse température, ce qui n'a toujours pas été fait). Quoi qu'il en soit, il faut comprendre que cette propriété est une conséquence inévitable de la partie cinétique de notre hamiltonien de départ (2.1), et non un résultat de notre traitement des interactions. En effet, avec $U = 0$, la quantité $T_1 T$ présente aussi si $n \neq 1$ un minimum à $T \neq 0$, lequel s'explique simplement à partir de la singularité de Van Hove dans la densité d'états du réseau carré. (En remplaçant $N^2(\epsilon)$ par une constante dans l'équation (5.53), on trouve aisément $T_1 T \propto \left[\tanh\left(\frac{4t-\mu}{2T}\right) - \tanh\left(\frac{-4t-\mu}{2T}\right) \right]^{-1}$; le minimum est alors situé à $T = 0$, quelle que soit la densité électronique).

Concernant le comportement de $T_1 T$ à haute température, les figures 13(a) et 13(b) démontrent clairement qu'avec ou sans interaction, celui-ci devient linéaire en T pour tous les remplissages considérés, ce qui se traduit bel et bien par une relation de Curie-Weiss de la forme $\lim_{\omega \rightarrow 0} \sum_{\mathbf{q}} \frac{\chi''(\mathbf{q}, \omega)}{\omega} \propto (T_1 T)^{-1} = \frac{1}{C(T+\theta)}$, où C est une constante. Il est intéressant de voir qu'il n'est pas essentiel de tenir compte du terme de couplage électron-électron dans le modèle pour faire ressortir cette propriété; l'augmentation $\tilde{\xi}^2$ de la susceptibilité ne peut être tenue responsable du comportement de Curie-Weiss. Là où les interactions interviennent, c'est dans la valeur de la température θ , de même que dans la pente de $T_1 T$ en fonction de T . Ces deux quantités sont réduites lorsque le paramètre U est introduit dans le calcul. Supposons qu'à haute température on obtienne numériquement, avec $U \neq 0$, $T_1 T \simeq C(T + \theta)$, et dans le cas sans interaction, $T_1 T \simeq C_o(T + \theta_o)$. Or, nous savons du rapport $\frac{T_1^{-1}(U \neq 0)}{T_1^{-1}(U = 0)}$ qu'il diminue toujours lorsque T augmente, reflétant la baisse de $\frac{U_{\mu}}{2} \chi'_o(\mathbf{q}, 0)$. Ceci implique nécessairement que $\frac{C_o(T+\theta_o)}{C(T+\theta)}$ doit aussi décroître avec T , d'où l'inégalité $\theta < \theta_o$. Le renforcement de la répulsion éloigne la température θ de θ_o , et on peut ainsi arriver à une valeur plus conforme à l'observation expérimentale. Pour $x = .2$ par exemple, on estime que $\theta_o \simeq .9t$, ce qui est évidemment beaucoup trop grand si on considère que les mesures d'Ohsugi *et al.* [26] situent cette température autour de 100K. (Avec $U = 2.5t$, on trouve $\theta \simeq .23t$; c'est déjà mieux). Voilà donc une nouvelle indication de l'importance d'inclure les interactions si on cherche à reproduire quantitativement les expériences sur les $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$.

Cette loi de Curie-Weiss qui survient à T grand implique qu'à $T \gg \theta$, le taux de relaxation devient

quasi indépendant de la température. À $U = 0$, ce phénomène est relié à la localisation thermique des particules. La longueur d'onde thermique de de Broglie des électrons étant définie par $\lambda_{th} \equiv \frac{v_f}{\pi T}$, on montre aisément qu'à proximité du demi-remplissage, on a $\lambda_{th} \sim t/T$. Clairement, lorsque $T \gg t$, cette longueur devient petite devant la distance intersite, d'où la notion de localisation. Remarque qu'en laissant de côté l'interaction électron-électron, on trouve que θ_o est de l'ordre de t (voir la figure 13(a)), ce qui laisse entendre qu'à $T = \theta_o$, la longueur d'onde λ_{th} est comparable au pas du réseau a (rappelons que nous utilisons des unités telles que $a \equiv 1$). Lorsqu'on ajoute l'énergie potentielle U , on a $\theta < \theta_o$, de sorte que le plateau dans la courbe T_1^{-1} vs T apparaît à une température moindre en comparaison avec le cas des électrons libres. Il y a alors, en plus de la localisation d'origine thermique, un effet de localisation des porteurs lié au coût énergétique qui accompagne la double occupation d'un site. (Cette autre tendance à la localisation, issue du terme de couplage, s'estompe à mesure que le remplissage s'éloigne de l'unité).

En médaillon aux figures 13(a) et 13(b), on illustre θ et θ_o en fonction de x . Rappelons qu'expérimentalement, il a été établi que θ varie à peu près linéairement en fonction du dopage sur l'intervalle $.075 \leq x \leq .24$. Nos calculs avec $U = 2.5t$ imitent assez bien ce comportement si on s'en tient à $x \gtrsim .1$. Plus près du demi-remplissage, θ vs x ne représente plus une droite et on pourrait penser que la largeur du diagramme de phases 3 puisse être la cause de cette déviation. Toutefois, il n'en est rien puisqu'en posant $U = 0$, on trouve que la dépendance de θ_o en x s'affaiblit de la même façon à l'approche d'une bande à moitié remplie. Soulignons qu'il serait possible de réviser U à la hausse de manière à ce qu'à $x = .05$, la température θ soit nulle, comme le soutiennent les résultats expérimentaux. Cependant, en agrandissant ainsi le diagramme de phases, il est clair que l'aspect qualitatif des courbes T_1^{-1} vs T à basse température changerait dramatiquement et deviendrait incompatible avec l'expérience sur un large éventail de dopages. Mentionnons finalement que dans les $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, T_1T atteint son régime linéaire aussitôt que la température devient supérieure à θ . À la figure 13(b), il apparaît que cette caractéristique n'est réalisée que dans les systèmes avec $x = .13$ et $x = .15$, c'est-à-dire ceux qui ont un état fondamental paramagnétique et qui sont le plus près de $x = .11$ (le dopage en deçà duquel il existe une température de crossover pour $U = 2.5t$). Pour toutes les autres valeurs de x , il faut aller passablement plus loin que θ pour rejoindre la région où $T_1T \simeq C(T + \theta)$. Il semble qu'à $x = .2$ et $x = .24$ l'apport des fluctuations critiques à T_1^{-1} soit insuffisant et qu'une augmentation de l'interaction effective U_{sp} à basse température avancerait

la venue du comportement de Curie-Weiss. En contrepartie, les courbes avec $x = .075$ et $x = .1$ pourraient quant à elles bénéficier d'une réduction de U_{sp} à T petit afin de limiter la croissance de ces fluctuations.

5.4 Utilisation du modèle $tt'U$: calculs de χ_{sp} et de T_1^{-1}

Nous allons ici nous servir du hamiltonien plus général $tt'U$ et mesurer l'effet du terme de saut aux seconds voisins dans le calcul de la susceptibilité de spin uniforme et du taux de relaxation nucléaire. La relation de dispersion (2.9) exprime clairement une compétition entre deux symétries de la surface de Fermi; les axes de symétrie d'une surface obtenue dans la limite $t = 0$ et $t' \neq 0$ sont tournés de 45 degrés par rapport à ceux qui viennent dans la situation contraire $t \neq 0$ et $t' = 0$. En permettant aux électrons de se déplacer, via un $t' \neq 0$, le long de la diagonale du réseau carré, on brise la symétrie particule-trou du modèle de Hubbard tU . Jusqu'à présent, toutes les quantités que nous avons calculées (U_{sp} , T_x , T_1^{-1} , etc.) étaient insensibles au changement $n \leftrightarrow 2 - n$. Or, en présence de t' , le demi-remplissage ne correspond plus nécessairement à un extrémum. Nous restreignons notre étude à des valeurs négatives de t' puisque les comparaisons avec les expériences sur les comportements magnétiques des $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ vont généralement dans ce sens (voir par exemple [19] et [21]).

Au chapitre 2, nous avons défini le potentiel chimique μ de façon à ce que la surface de Fermi à $\mu = 0$ soit complètement emboîtée par le vecteur $\mathbf{Q} = (\pi, \pi)$ si t' et U sont nuls. (Il faut souligner que μ est toujours évalué uniquement à partir de la partie cinétique tt' du hamiltonien (2.1)). Avec $t' = 0$, la condition $n = 1$ se réalise à $\mu = 0$ quelle que soit la température considérée. La densité d'états (5.54) étant singulière à $\epsilon_{V.H.} = 4t'$, l'emboîtement parfait et la singularité de Van Hove se confondent au demi-remplissage dans le modèle tU , ce qui n'est pas le cas lorsque $t' \neq 0$. En effet, l'ajout des sauts aux seconds voisins détruit l'instabilité d'emboîtement qui existait à $n = 1$ en introduisant une courbure dans la surface de Fermi. (Avec $-\frac{t}{2} < t' < 0$, on montre que celle-ci est non-convexe et disjointe pour les remplissages tels que $\mu > 4t'$, ce qui comprend le cas $n = 1$. Voir la thèse de doctorat de Pierre Bénard [21] pour une étude détaillée des différents régimes géométriques de la surface de Fermi en fonction de μ pour le modèle $tt'U$). Le potentiel chimique

de la bande à moitié remplie acquiert une dépendance en T et on trouve qu'à basse température, il se situe autour de $\mu \simeq 2t'$; sa coïncidence avec la singularité de Van Hove est donc levée par le paramètre t' . Notons de plus que contrairement au cas $t' = 0$, la surface de Fermi correspondant à $\mu = 4t' \neq 0$, qui marque la transition entre les orbites disjointes ($\mu > 4t'$) et fermées ($\mu \leq 4t'$) dans la première zone de Brillouin, n'est plus associée à une instabilité d'emboîtement. Les calculs de structure de bande pour le La_2CuO_4 paramagnétique [11] prédisent que la surface de la bande à demi remplie est de type trou (non-convexe et disjointe), n'est pas emboîtée et ne coïncide pas avec une singularité de Van Hove. De ce fait, il semble que sur la question des propriétés géométriques de la surface de Fermi, le hamiltonien de Hubbard $tt'U$ constitue un meilleur point de départ que sa version abrégée tU . Voyons maintenant si on peut en tirer profit dans l'évaluation des quantités mesurables en RMN/RQN.

Nous avons vu au chapitre 3 que la partie du Knight shift attribuable à la polarisation des spins était donnée par, modulo des constantes hyperfines, la composante uniforme et statique de la suscep-

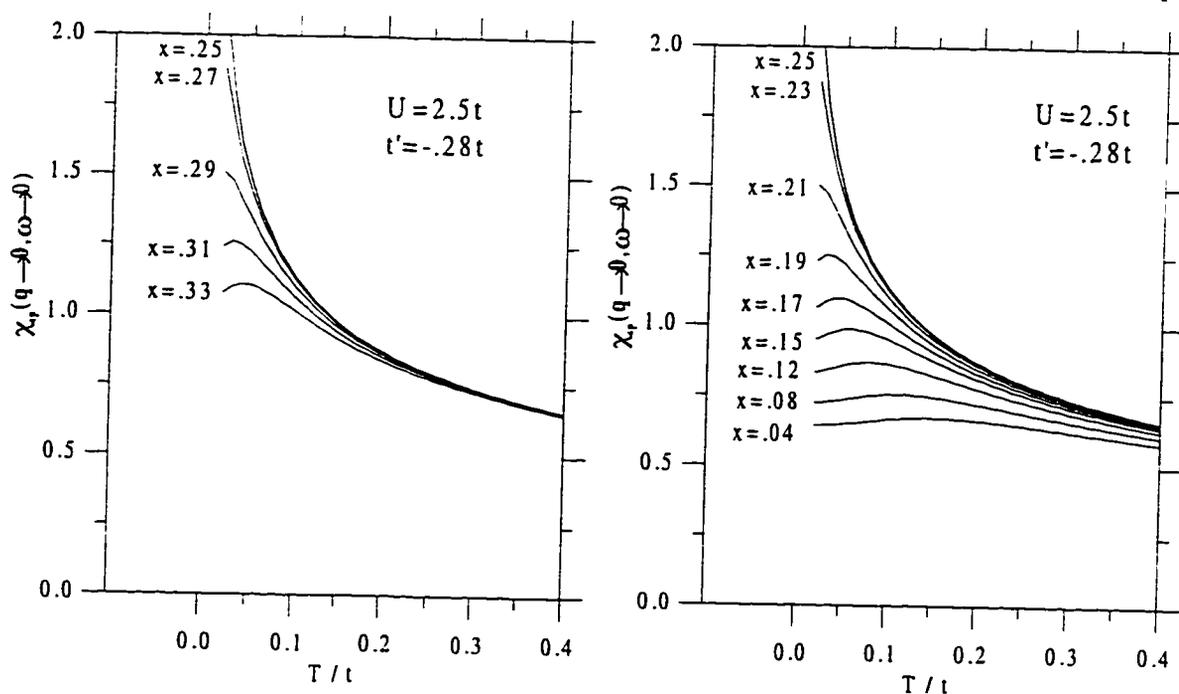


Figure 14 : Susceptibilité uniforme du modèle $tt'U$ avec $U = 2.5t$ et $t' = -.28t$.

tibilité magnétique, c'est-à-dire $\lim_{q \rightarrow 0} \lim_{\omega \rightarrow 0} \chi_{sp}(q, \omega) \equiv \chi_{sp}$. Dans l'état normal des $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, celle-ci présente un maximum à $x = .25$ sur toute la gamme de températures (figure 8), ce que ne peut rendre notre forme RPA $\chi_{sp} = \frac{\chi_o}{1 - \frac{U_{sp}}{2} \chi_o}$ ($\chi_o \equiv \lim_{q \rightarrow 0} \lim_{\omega \rightarrow 0} \chi_o(q, \omega)$) dans le contexte du modèle tU . Nous savons qu'en dehors du régime classique renormalisé, la répulsion effective U_{sp} affiche une très faible dépendance en x et en T . Il est alors facile de voir que le maximum de χ_{sp} se produit au même endroit que celui de χ_o , ce qui signifie au demi-remplissage si $t' = 0$. Pour le système sans interaction, on montre à partir de l'équation (2.10) et de l'égalité $\lim_{q \rightarrow 0} \frac{f(\epsilon(\mathbf{k}+q)) - f(\epsilon(\mathbf{k}))}{\epsilon(\mathbf{k}) - \epsilon(\mathbf{k}+q)} = \frac{1}{T} f(\epsilon(\mathbf{k})) [1 - f(\epsilon(\mathbf{k}))]$ que

$$\chi_o = \frac{1}{T} \int_{-4t-4t'}^{4t-4t'} d\epsilon N(\epsilon) f(\epsilon) [1 - f(\epsilon)] \quad (5.65)$$

Clairement, pour obtenir ce maximum au bon remplissage, il suffit de chercher une valeur de t' telle que $\mu \simeq 4t'$ à $x = .25$. Le paramètre $t' = -.28t$ satisfait à cette exigence, comme nous l'indique la figure 14. Cette dernière illustre l'évolution de χ_{sp} en température pour tous les dopages représentés à la figure 8, avec la répulsion $U = 2.5t$. Soulignons que la force de l'interaction a peu d'influence sur l'aspect qualitatif de ces courbes; elle agit plutôt sur la valeur absolue de χ_{sp} . En effet, à cause de la relation $U_{sp} < \frac{2}{\chi_o(q_{\max}, 0)}$, l'augmentation $\left(1 - \frac{U_{sp}}{2} \chi_o\right)^{-1}$ de la susceptibilité à $q = 0$ varie lentement avec T même en présence d'un couplage plus fort. (C'est à proximité de q_{\max} que l'amplitude de l'interaction peut jouer un rôle important. Or, en ce qui nous concerne, q_{\max} est toujours en bord de zone à $q = (\pi, \pi - \delta)$). Le comportement de la susceptibilité uniforme en dopage et en température est donc régi principalement par la singularité de Van Hove et s'explique simplement au moyen du modèle avec $U = 0$.

Nos calculs montrent que $\chi_{sp}(T)$ possède un maximum qui se déplace vers les hautes températures et devient plus évasé à mesure que le dopage s'éloigne de $x = .25$. Le même effet est observé expérimentalement. (Voir à la figure 8 les échantillons avec $.15 \leq x \leq .21$. Des mesures prises à haute température [39] révèlent que les maxima se produisent à $T > 800K$ dans les matériaux avec $x \leq .12$). L'existence de ce maximum est liée au jeu entre l'énergie qui sépare le potentiel chimique de la singularité de Van Hove, et la température. Celle-ci détermine l'étendue du domaine où la dérivée de la fonction de Fermi-Dirac $-\frac{\partial f}{\partial \epsilon} = f(\epsilon) [1 - f(\epsilon)]$ est non-négligeable. Dans toutes les situations illustrées en 14, l'évaluation de χ_o par une intégration sur l'intervalle $\epsilon \in [-\infty, \infty]$

Chapitre 5: La méthode auto-cohérente à deux particules appliquée au calcul de T_1^{-1}

constitue une excellente approximation; le potentiel chimique est toujours compris entre $-4t - 4t'$ et $4t - 4t'$, et la température demeure suffisamment basse pour que la fonction $f(\epsilon) [1 - f(\epsilon)]$ ne prenne des valeurs importantes qu'à l'intérieur de ces mêmes bornes. Si on remplaçait la densité d'états $N(\epsilon)$ par une constante, en vertu de l'égalité $\int_{-\infty}^{\infty} d\epsilon f(\epsilon) [1 - f(\epsilon)] = T$, on trouverait $\chi_o = cte$. Il faut donc attribuer les maxima observés à la participation de $N(\epsilon)$ à l'intégrale (5.65). Notons que bien que μ soit fonction de la température, sa variation en T est lente et le remplacement de $\mu(T)$ par $\mu(T \rightarrow 0)$ a peu d'effet sur la courbe χ_o vs T .

Considérons la susceptibilité nue d'un système dont le potentiel chimique est distinct de $4t'$. À $T \rightarrow 0$, la singularité de Van Hove contribue peu à χ_o , vu l'étroitesse de la distribution $f(\epsilon) [1 - f(\epsilon)]$. Cette dernière s'élargit avec une hausse de la température, accentuant ainsi l'apport de la singularité à l'intégrale qui se met à croître plus rapidement qu'en T , d'où l'augmentation initiale de $\chi_o(T)$. Lorsque la température devient comparable à l'énergie $|\mu - 4t'|$, $f(\epsilon) [1 - f(\epsilon)]$ couvre un domaine qui s'étend au delà de la singularité et sa valeur à $\epsilon_{V.H.} = 4t'$ ne grandit plus appréciablement avec T . On assiste alors à une chute de $\chi_o(T)$. Évidemment, plus on s'éloigne de $x = .25$, plus il faut prendre T grand pour avoir $T \sim |\mu - 4t'|$. (μ est une fonction toujours croissante du remplissage). Si on compare la position des maxima observés par Torrance *et al.* (figure 8) à ce que nous avons obtenu numériquement, on trouve qu'il faut poser $t \sim 5000K$ pour que nos calculs soient compatibles avec l'expérience. On retrouve donc la valeur de t proposée par Schluter *et al.* [18] que nous avons énoncée au chapitre 2. Si on peut se réjouir de cet accord quant à l'amplitude de saut aux premiers voisins, il faut toutefois souligner qu'il nous a fallu utiliser $t' = -.28t$ pour reproduire la bonne dépendance de χ_{sp} en dopage. C'est presque le double de l'estimation de ce paramètre ($t' = -.16t$) faite par Schluter *et al.*.

Il convient à présent d'examiner ce qu'il advient du taux de relaxation dans le cadre de ce modèle $tt'U$. Dans la plage de concentration de strontium où nous disposons de mesures de T_1^{-1} , soit $0 \leq x \leq .24$, on peut deviner de l'équation (5.53) qu'en se servant de $t' = -.28t$ et d'une valeur modérée du couplage électron-électron, il est impossible d'arriver au juste comportement en x . Pour le système sans interaction, comme dans le calcul de la susceptibilité uniforme, l'influence de la densité électronique se résume à modifier la distance entre le potentiel chimique et la singularité de Van Hove. Ainsi, en prenant $t' = -.28t$, le taux de relaxation avec $U = 0$ croît avec x dans le

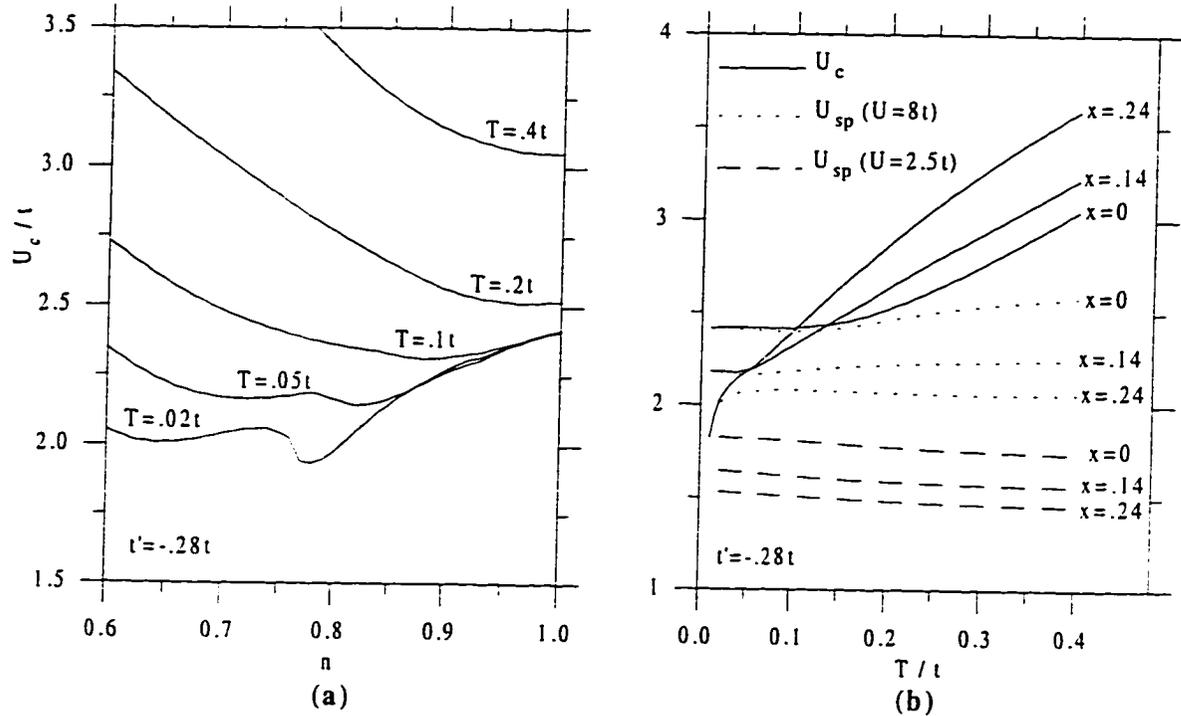


Figure 15 : Variation des répulsions critique U_c et effective U_{sp} en dopage et en température pour le modèle $tt'U$ ($t' = -.28t$). (a) U_c en fonction du remplissage à diverses températures. (b) Évolution de U_c et U_{sp} en T pour deux valeurs de l'interaction nue et quelques dopages.

régime de dopage qui nous intéresse; c'est tout le contraire de ce que nous dicte l'expérience. Les courbes T_1^{-1} vs T qu'on obtient sont semblables à celles de la figure 11(a) si on inverse l'ordre des concentrations de dopant. Si on utilisait plutôt $t' = -.16t$, tel que suggéré par Schluter *et al.*, T_1^{-1} serait maximal à $x \simeq .135$ et diminuerait en s'éloignant de part et d'autre de cette concentration. Manifestement, si on laisse de côté les interactions, un modèle avec $t' < 0$ ne présente aucun avantage sur le modèle tU en ce qui touche les comparaisons avec les mesures de T_1^{-1} sur le composé de lanthane. (Si la répulsion est nulle, il faut nécessairement poser $t' \geq 0$ pour que le taux de relaxation soit toujours réduit par une hausse du paramètre x).

En incluant un couplage entre les électrons, il est possible de renverser la dépendance de T_1^{-1} en x prédite par la partie cinétique seule du hamiltonien $tt'U$ ($t' < 0$) à proximité du demi-remplissage. Afin de bien saisir ce point, considérons la figure 15(a) qui rapporte, dans le cas du modèle avec $t' = -.28t$, l'évolution en n de l'interaction critique U_c pour différentes températures. Ce qu'il faut

retenir de ces résultats, c'est que le minimum de U_c se déplace vers le demi-remplissage à mesure que T augmente. Signalons au passage qu'à $T = 0$, ce minimum est précisément à $\mu = 4t'$ (cela équivaut à $n \simeq .75$ si $t' = -.28t$) où on montre [21] que $U_c = 0$. (À température nulle, ce point constitue une frontière entre l'antiferromagnétisme ($\mu \geq 4t'$) et un ordre incommensurable selon $q_{\max} = (\pi, \pi - \delta)$ ($\mu < 4t'$)). Dès que la température devient comparable à $|t'|$, on se retrouve dans une situation analogue au modèle tU en ce sens que l'interaction critique est minimale à $n = 1$. En RPA conventionnelle, où le couplage U est indépendant de x et de T , il est facile de voir que l'augmentation $\tilde{\xi}^2 = \frac{U_c}{U_c - U}$ de la susceptibilité à $T \gtrsim |t'|$ est d'autant plus importante que l'on est près d'une bande à moitié remplie. En choisissant une interaction assez forte, on peut contrer l'effet de l'énergie $|\mu - 4t'|$ pour obtenir un taux de relaxation qui diminue avec x dans la fenêtre de dopage qui nous intéresse. Cependant, l'utilisation d'un couplage suffisamment grand entraîne un diagramme de phases très large qui nuit au comportement de T_1^{-1} à basse température dans les systèmes dopés.

Regardons maintenant ce qu'amène la théorie ACDP dans ce contexte. À la figure 15(b), on peut comparer à U_c les répulsions renormalisées U_{sp} issues de couplages faible ($U = 2.5t$) et intermédiaire ($U = 8t$), et ce, pour trois valeurs de la densité électronique. Ces résultats sont représentés en fonction de la température pour faciliter l'interprétation des courbes T_1^{-1} vs T qui font l'objet de la figure 16. Fait à noter, s'il est vrai que U_{sp} varie lentement avec la température au-dessus de T_x , on ne peut toutefois négliger sa dépendance en dopage. On remarque en effet que la répulsion effective croît sensiblement avec la densité d'électrons, ce qui a des répercussions importantes sur le comportement de $\tilde{\xi}^2$ en x . (Avec un U fixe en RPA, le maximum du facteur d'augmentation coïncide avec le minimum de U_c . Le formalisme ACDP n'admet pas cette analyse simple).

Étudions en premier lieu le cas du couplage modéré $U = 2.5t$. Notons qu'avec cette valeur de l'interaction, la condition $\delta U \ll T$ n'est jamais réalisée dans l'intervalle $0 \leq x \leq .24$, du moins jusqu'à $T = .005t$, température au-dessous de laquelle nos calculs numériques perdent de leur fiabilité. On peut cependant présumer qu'il existe un régime classique renormalisé à très basse température dans les systèmes avec $x \simeq .25$, sachant qu'à $T = 0$, l'interaction critique est nulle si $\mu = 4t'$. L'ajout du terme de saut aux seconds voisins modifie donc en profondeur le diagramme de phases du modèle tU dont nous avons discuté au chapitre 2. Comme on peut le constater à la figure 16(a), ce cou-

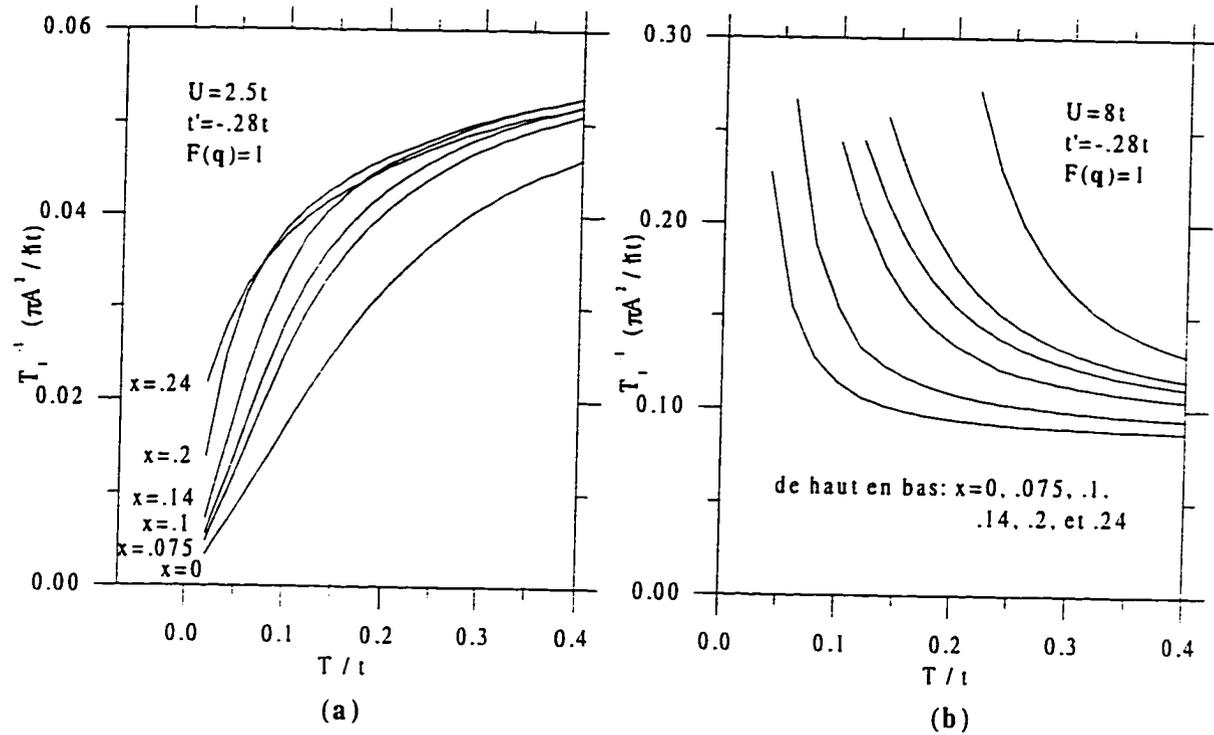


Figure 16 : T_1^{-1} vs T pour le modèle $tt'U$ avec $t' = -.28t$. En (a), $U = 2.5t$, et en (b), $U = 8t$. (La répulsion est renormalisée à U_{sp} dans les deux cas).

plage faible ne parvient pas à rectifier le comportement de T_1^{-1} en x . Le jeu entre U_{sp} et U_c est tel que l'augmentation $\tilde{\xi}^2$ de $\chi_{sp}(q_{max}, 0)$ est une fonction croissante du remplissage si $T \gtrsim .06t$. À T grand, même si les fluctuations de grand vecteur d'onde ne sont pas rehaussées au point de rétablir la bonne dépendance en dopage, elles exercent une influence suffisante pour déplacer le maximum de T_1^{-1} vers le demi-remplissage. (On peut voir la courbe correspondant à $x = .24$, celle qui serait la plus haute dans le modèle sans interaction, passer successivement sous les courbes $x = .2$ et $x = .24$ lorsqu'on élève la température). À basse température, on note que la dépendance du facteur d'augmentation en x est plutôt complexe: les courbes $\tilde{\xi}^2$ vs T que l'on peut tracer pour divers dopages se croisent entre elles à $T \lesssim .06t$. Néanmoins, dans la fenêtre $x \in [0, .24]$, la valeur de $\tilde{\xi}^2$ reste très modeste (elle ne dépasse jamais 4) jusqu'à $T \rightarrow 0$ et on trouve qu'à T petit, le taux de relaxation augmente avec x tel qu'il le ferait si on avait omis les interactions. (Rappelons que l'effet de l'échelle d'énergie $|\mu - \epsilon_{V.H.}|$ sur T_1^{-1} est plus prononcé à basse température, comme nous l'avons indiqué à la section 5.3).

La figure 16(b) montre ce qui se produit lorsque l'interaction nue est renforcée à $U = 8t$. Chacun des systèmes étudiés est caractérisé par l'existence d'un régime classique renormalisé à T petit. En suivant notre critère $\tilde{\xi}^2 = 500$, on découvre que la température de crossover est très basse ($T \lesssim .05t$) dans chaque cas. (En comparaison, le modèle tU avec une bande à moitié remplie rejoint ce régime à $T_x \simeq .2t$ lorsque le couplage est deux fois moindre ($U = 4t$)). Puisque le minimum de U_c se déplace avec T , il est difficile de prévoir dans quel ordre ces systèmes atteignent leur crossover. Les courbes de $\tilde{\xi}^2$ en fonction de T se chevauchent si $T \lesssim .05t$ et la dépendance de T_x en x est très sensible à la valeur numérique de $\tilde{\xi}^2$ que l'on fixe pour satisfaire à $\delta U \ll T$. Dans le modèle tU , la situation est plus simple: U_c s'amenuise en direction du demi-remplissage quelle que soit la température et on obtient un T_x qui décroît toujours avec le dopage. En présence de t' , on serait porté à croire que le choix d'un couplage beaucoup plus fort ($U \gg W$) permettrait de retrouver un T_x qui diminue avec x . Il faudrait une hausse substantielle des répulsions effectives, suffisante pour qu'à chaque concentration le crossover s'effectue à $T_x \gtrsim |t'|$, c'est-à-dire dans la gamme de température où l'interaction critique est minimale à $x = 0$. On note cependant qu'à partir de $U \sim W$, l'amplitude de U_{sp} dépend très faiblement de l'interaction nue U . Ainsi, avec une grandeur appréciable du paramètre t' , comme c'est le cas avec $t' = -.28t$, il s'avère impossible même au demi-remplissage de produire une quasi-transition à $T_x \gtrsim |t'|$. (De toute façon, la validité de l'approche ACDP ne s'étend pas au delà du couplage intermédiaire). Quoi qu'il en soit, le couplage intermédiaire $U = 8t$ réussit à renverser la dépendance du taux de relaxation en dopage prédite par le hamiltonien sans répulsion, comme en témoigne la figure 16(b). (Remarquer que ce résultat apparaît dès que $U \gtrsim 6.5t$). Comme avec $U = 2.5t$, on trouve qu'à partir de $T \simeq .06t$, le facteur d'augmentation $\tilde{\xi}^2$ grandit avec la densité d'électrons. Cependant, il prend ici des valeurs assez importantes, même si $T > T_x$, pour contrecarrer l'effet qui accompagne le déplacement du potentiel chimique vers la singularité de Van Hove. Il est clair que qualitativement, les courbes T_1^{-1} vs T ainsi obtenues pour les systèmes dopés sont incompatibles avec l'expérience. Avec $t' = -.28t$, l'établissement d'une dépendance correcte en x oblige l'emploi d'un couplage qui, à basse température, accentue démesurément les fluctuations magnétiques autour de q_{\max} et suscite un diagramme de phases trop large.

Le modèle de Hubbard tU semble donc plus approprié pour les calculs de T_1^{-1} que le hamiltonien plus complet $tt'U$, du moins si on injecte dans ce dernier un paramètre t' négatif et indépendant

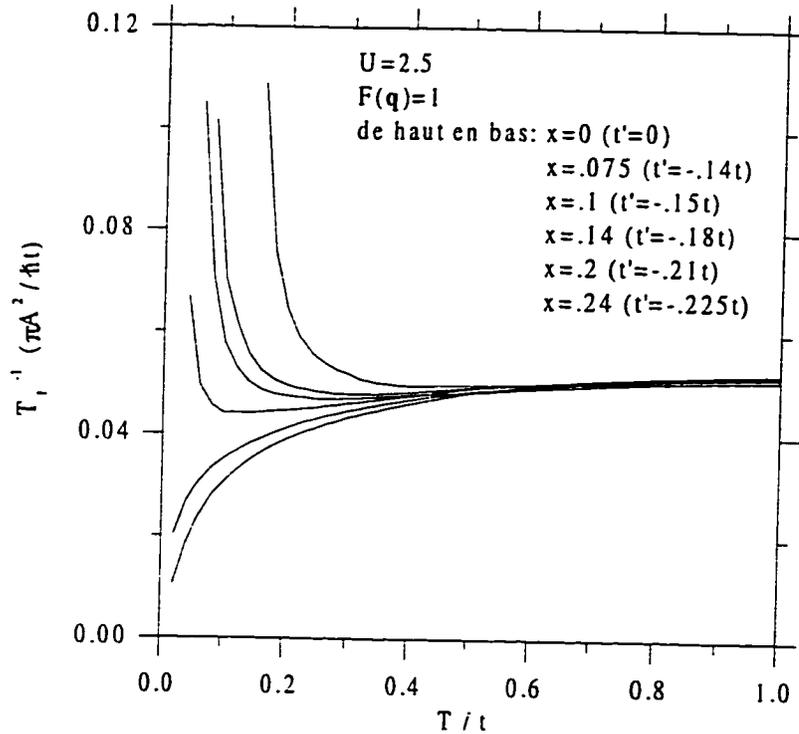


Figure 17 : Taux de relaxation en fonction de la température pour le modèle $tt'U$. L'amplitude de l'interaction est $U = 2.5t$. Le paramètre t' varie avec la densité électronique; il est ajusté de façon à ce que T_1^{-1} soit indépendant de x à T grand. Notons que les valeurs $t' = -.16t$ ($x = .075$) et $t' = -.25t$ ($x = .14$) proposées par Bénard *et al.* [19] ne satisfont pas à cette exigence.

de la densité électronique. Or, Bénard *et al.* [19] ont mis en évidence la nécessité d'utiliser un t' négatif mais variable pour expliquer la position des pics incommensurables observés en diffusion neutronique dans le composé de lanthane dopé. L'expérience [30] révèle que ces maxima dans la section efficace de diffusion sont situés à $(\pi \pm \delta, \pi)$ et $(\pi, \pi \pm \delta)$, avec $\frac{\delta}{\pi} \simeq .14$ et $\frac{\delta}{\pi} \simeq .25$ pour les concentrations de strontium $x = .075$ et $x = .14$ respectivement. En évaluant le facteur de structure nu $S_o(\mathbf{q}, \omega) = 2 \frac{\chi_o''(\mathbf{q}, \omega)}{1 - \exp(-\beta\omega)}$ ($\omega, T \ll 2|\mu|$) du modèle $tt'U$, on peut reproduire les déplacements δ de ces pics d'intensité. Bénard *et al.* estiment qu'il faut poser $t' \simeq -.16t$ dans le cas $x = .075$ et $t' \simeq -.25t$ pour le composé plus dopé $x = .14$.

On peut se demander s'il serait avantageux, dans les calculs du taux de relaxation, de s'affranchir du hamiltonien à bande rigide (t' fixe) pour favoriser une dépendance en x du paramètre de saut aux seconds voisins. Nous avons vu que la croissance de T_1^{-1} avec n ressort naturellement du modèle tU ,

ce qui fait de celui-ci notre meilleur point de départ pour les comparaisons avec les $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ à $T \lesssim 700\text{K}$. Nous savons également qu'à l'intérieur des limites d'applicabilité de la théorie ACDP, ce modèle est incapable de produire un T_1^{-1} qui soit indépendant du dopage à haute température; l'accord avec l'expérience se voit alors compromis. À ce niveau, l'utilisation d'un t' variable peut s'avérer salutaire, comme nous l'indique la figure 17. Sur cette dernière, on propose des valeurs de t' qui, en présence d'un couplage modéré, permettent d'ajuster les courbes T_1^{-1} vs T de manière à ce qu'elles se confondent à T grand. Nous avons entrepris de chercher, pour chaque système dopé, le paramètre t' qui, à $T = .6t$, minimise l'écart avec le taux de relaxation au demi-remplissage. (Noter que le choix de $t' = 0$ à $x = 0$ est arbitraire). On voit qu'avec cette façon de procéder, on obtient un T_1^{-1} qui varie très peu en x et en T sur une très large fenêtre de température. Suivant cette démarche, une réduction de la densité d'électrons doit s'accompagner d'une hausse de $|t'|$, conformément à ce qu'on a souligné Bénard *et al.*. Bien que ceci reste vrai si on modifie la force de la répulsion U , il faut cependant réajuster les valeurs de t' . Il faut préciser que la méthode que nous proposons ici pour régler le comportement à T grand est purement empirique. C'est-à-dire qu'au plan microscopique, nous n'avons pas de véritable justification de cette dépendance de t' en x . Rappelons cependant que notre modèle constitue une caricature plutôt simpliste des couches de cuivre et d'oxygène. (Modèle à une seule bande, interaction coulombienne intrasite seulement, ...) En réalité, l'action du dopage dans les $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ n'est certes pas limitée au changement du nombre d'électrons de conduction. Par exemple, on sait que la distance entre les atomes de cuivre des plans CuO_2 est légèrement sensible aux variations de x [15], ce qui n'apparaît pas dans notre modèle. Voilà peut-être une raison de faire évoluer le rapport $\frac{t'}{t}$ avec le dopage. (Il va sans dire que les intégrales de saut peuvent changer avec le pas du réseau). Notons finalement qu'à basse température, même si l'usage d'un t' variable permet de préserver la croissance de T_1^{-1} avec le remplissage, il élargit le diagramme de phases $T - x$, ce qui représente un désavantage face au cas $t' = 0$. (Remarquer à la figure 17 le crossover du système avec $x = .14$; dans le modèle tU ($U = 2.5t$), le régime classique renormalisé est inaccessible si $x \gtrsim .11$).

5.5 Lissage des mesures du taux de relaxation du ^{63}Cu dans les $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

Nous allons conclure ce chapitre en comparant quantitativement les résultats de nos calculs numériques de T_1^{-1} aux données d'Imai *et al.* [33] obtenues par des expériences de résonance quadrupolaire nucléaire (RQN) sur le composé de lanthane. Ce faisant, nous pourrions d'une part exposer l'inaptitude du modèle choisi à reproduire simultanément l'ensemble des mesures, et d'autre part, proposer des paramètres du hamiltonien de Hubbard qui permettent au moins un accord partiel avec ces expériences. Noter que si on ne s'intéresse ici qu'à la relaxation aux sites de cuivre, c'est parce que dans la littérature, on retrouve très peu de mesures de T_1^{-1} concernant les noyaux ^{17}O des couches conductrices. Les seules qui sont disponibles à ce jour sont celles de Walstedt *et al.* [40]; elles se rapportent au $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$ à $T \lesssim 250\text{K}$. Les résultats d'Imai *et al.* sont beaucoup plus complets puisqu'en plus de couvrir un large éventail de dopage, ils s'étendent jusqu'à $T \simeq 850\text{K}$. Il faut également mentionner que notre modèle ne tient aucunement compte des effets de dilatation thermique qui pourraient se manifester dans ces matériaux. (Dans les calculs, le volume est supposé constant. Or, dans les expériences que nous voulons décrire, c'est plutôt la pression qui est maintenue constante). Des mesures de Torrance *et al.* [15] suggèrent que le pas de réseau des plans conducteurs peut varier de quelques dixièmes de pour-cent dans l'intervalle de température qui nous concerne. Il est clair qu'un changement des distances interatomiques pourrait agir sur la susceptibilité magnétique et sur le taux de relaxation nucléaire. Dans le cadre de notre modèle, de telles variations pourraient se traduire notamment par une dépendance en T des intégrales de recouvrement t et t' . Néanmoins, nous présumons ici que ces effets de la température sont négligeables.

Dans tous les calculs du taux de relaxation que nous avons présentés jusqu'à maintenant, nous avons omis toute dépendance en q du facteur de forme atomique et posé simplement $F(q) = 1$. Ceci revient à supposer qu'un hamiltonien hyperfin purement local (e.g. $H_{hf} = A\mathbf{I}_n \cdot \mathbf{S}_n$) est à l'origine de la relaxation des spins nucléaires. Or, le lissage des points expérimentaux relatifs aux noyaux ^{63}Cu des plans CuO_2 nous amène à considérer plutôt le mécanisme plus raffiné suggéré par Mila et Rice (équation (3.26)). Parce que celui-ci tient compte d'un couplage entre les spins nucléaire et électronique associés à deux sites Cu voisins, le facteur de forme varie en fonction du vecteur

d'onde. Tous les résultats numériques qui font l'objet de la présente section ont été calculés avec $F_{\parallel}(\mathbf{q}) = (a_{ab} + 4b\gamma_{\mathbf{q}})^2$ (équation (3.34)). (Rappelons que dans ces expériences de RQN, les moments nucléaires sont quantifiés selon la direction principale du gradient du champ électrique issu de l'environnement cristallin. Au site du cuivre, cette direction est parallèle à l'axe c du cristal).

Dans tout ce qui suit, les paramètres hyperfins qui sont utilisés sont les suivants:

$$\begin{aligned} B &= 3.82 \times 10^{-7} eV \\ A_c &= -4B \\ A_{ab} &= .84B \\ a_{ab} &\equiv \frac{A_{ab}}{|A_c|} = .21 \\ b &\equiv \frac{B}{|A_c|} = .25 \end{aligned} \quad (5.66)$$

Ils ont été déterminés par Monien *et al.* [27] suite à l'examen du Knight shift observé en RMN pour le composé $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.63}$. Tout semble indiquer que les quantités A_c , A_{ab} et B sont des propriétés intrinsèques aux plans conducteurs CuO_2 des oxydes de cuivre; elles paraissent insensibles à la composition et à la stochiométrie du cristal. En effet, il existe plusieurs raisons de croire que, sauf l'erreur expérimentale ($\sim 10\%$), ces mêmes paramètres s'appliquent tant aux $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ qu'aux $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, et ce, quelle que soit la valeur de x (voir Barzykin *et al.* [41]). Par exemple, une analyse de Millis *et al.* [42] montre que ces couplages hyperfins sont presque identiques dans le $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$. Aussi, Imai *et al.* [24] ont démontré que leurs mesures de T_1^{-1} sur le La_2CuO_4 peuvent être expliquées quantitativement au moyen du modèle de Heisenberg 2D antiferromagnétique si, et seulement si, on utilise les égalités (5.66) pour A_{ab} et B , et l'énergie d'échange $\frac{J}{k_B} \simeq 1590K$ obtenue des expériences de diffusion de neutrons [43]. Une autre confirmation de la pertinence des relations (5.66) dans le contexte du composé de lanthane vient des données d'Ishida *et al.* [44] sur le Knight shift avec $\mathbf{H}_o \perp c$ dans le $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{.15}\text{CuO}_4$. Ces derniers ont montré qu'en traçant K_{\perp} en fonction de la susceptibilité de spin uniforme χ_{sp} (celle-ci peut être déterminée indépendamment par des expériences de magnétométrie), avec la température comme paramètre implicite, on obtient une droite. Sa pente donne directement $A_{ab} + 4B$ (voir l'équation (3.48)). Ishida *et al.* trouvent $A_{ab} + 4B \simeq 1.77 \times 10^{-6} eV$, ce qui est en accord avec les paramètres (5.66) (l'écart est de moins de 5%). Soulignons que la relation empirique $A_c = -4B$ traduit le fait qu'avec $\mathbf{H}_o \parallel c$, la contribution des spins au Knight shift est nulle, ou du moins, indétectable (voir l'équation (3.47)). Cette observation est valable aussi bien chez les $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ [42] [27] [45] que chez les $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

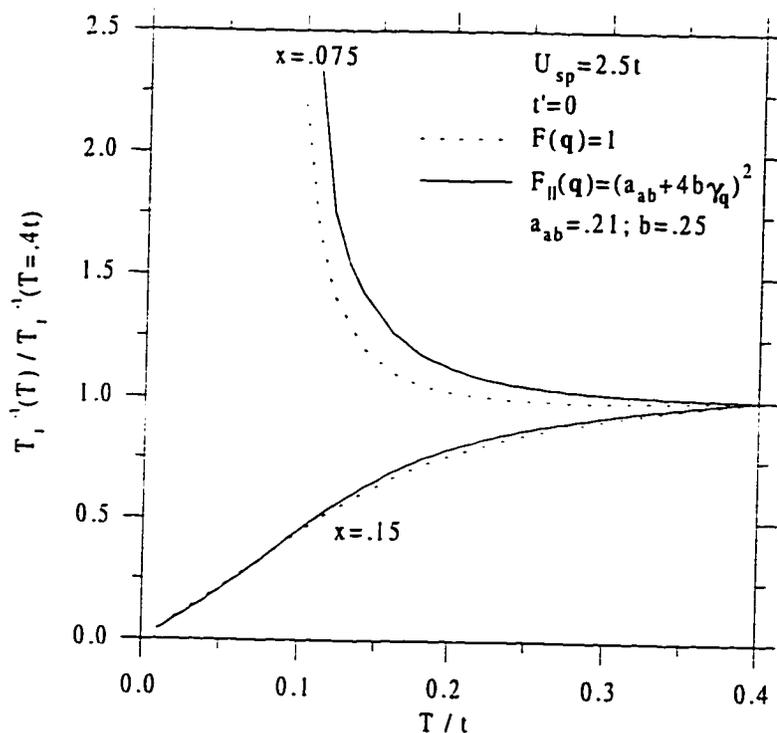


Figure 18 : L'effet du facteur de forme atomique $F_{||}(\mathbf{q})$ sur la dépendance du taux de relaxation en température pour le modèle tU avec $U = 2.5t$. (T_1^{-1} est ici normalisé par sa valeur à $T = .4t$). On illustre les cas $x = .075$ et $x = .15$ qui présentent des comportements différents à T petit. Les constantes hyperfines a_{ab} et b utilisées sont celles que proposent Monien *et al.* [27].

[26] . Le Knight shift qui est mesuré pour $\mathbf{H}_o || c$ est de nature orbitale (déplacement chimique) et sa valeur est indépendante du dopage et de la température, même au-dessous de T_c . (Notons que K_{\perp} comprend aussi une composante orbitale. Toutefois, celle-ci étant également insensible à T , la pente de K_{\perp} en fonction de χ_{sp} doit bel et bien donner $A_{ab} + 4B$).

La figure 18 permet d'apprécier l'influence qu'exerce le facteur de forme $F_{||}(\mathbf{q})$ sur les courbes T_1^{-1} vs T du modèle tU ($U = 2.5t$) avec $x = .075$ et $x = .15$. Afin de mieux cerner l'effet de $F_{||}(\mathbf{q})$ sur la dépendance de T_1^{-1} en température, plutôt que sur sa valeur absolue, nous avons divisé chaque courbe par $T_1^{-1}(T = .4t)$. Il apparaît clairement que le remplacement de $F(\mathbf{q}) = 1$ par $F_{||}(\mathbf{q})$ dans le calcul ne modifie que très légèrement les résultats. Considérons d'abord le cas du système avec $x = .075$, caractérisé par une quasi-transition incommensurable à $T_x \simeq .05t$. On constate que l'utilisation de $F_{||}(\mathbf{q})$ mène à une croissance de T_1^{-1} vers T petit quelque peu plus rapide que celle

qui vient avec un facteur de forme constant. Ceci est évidemment une conséquence du maximum local de $F_{\parallel}(\mathbf{q})$ situé à $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ (voir la figure 4(a)) puisque dans un tel système, le comportement de T_1^{-1} est régi, via le facteur $\tilde{\xi}^2(\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{q}_{\max})$, par les fluctuations de grand vecteur d'onde. Bien que la fonction $F_{\parallel}(\mathbf{q})$ affiche également un maximum à $\mathbf{q} = (0, 0)$, son effet sur la dépendance en T est négligeable en comparaison car l'augmentation $\tilde{\xi}^2(\mathbf{q} \rightarrow 0)$ de la susceptibilité au centre de la zone de Brillouin est presque insensible à la température. À plus fort dopage, avec $x = .15$, l'influence de $F_{\parallel}(\mathbf{q})$ est tout juste perceptible; les fluctuations de spin à $\mathbf{q} \simeq \mathbf{q}_{\max}$ ne dominent plus la relaxation, de sorte que le maximum $F_{\parallel}(\mathbf{q} = (\pi, \pi))$ se fait à peine sentir. Somme toute, l'aspect qualitatif des courbes de T_1^{-1} en fonction de T reste à peu près inchangé suite à l'inclusion de ce facteur de forme atomique dans la formule de Moriya (3.42). (Bien entendu, si on s'intéressait plutôt à la relaxation des noyaux d'oxygène ^{17}O , la situation serait toute autre. Le facteur de forme correspondant, $F(\mathbf{q}) = 4 \cos^2 \frac{q_x}{2}$, filtre entièrement la contribution du vecteur antiferromagnétique à T_1^{-1}).

À la figure 19, on représente à la fois les points expérimentaux d'Imai *et al.* [33] et des résultats numériques du modèle tU pour trois valeurs du dopage. Le choix des amplitudes de U et de t repose, en (a), sur l'accord avec l'expérience pour $x = .15$, alors qu'en (b), on a cherché les paramètres qui conviennent le mieux aux données à $x = 0$. Examinons en premier lieu ce qui ressort de notre modèle lorsqu'on pose $U = 3.5t$ et $t = 900K$ (figure 19(a)). Si ces paramètres paraissent appropriés dans le cas du dopage $x = .15$, ils sont manifestement inadéquats en ce qui concerne les deux autres composés. Pour $x = .075$, on voit immédiatement que l'interaction choisie est trop forte. La croissance des fluctuations critiques à l'approche du régime classique renormalisé ($T_x \simeq .13t = 117K$) empêche ce modèle tU de rendre, ne serait-ce que qualitativement, le comportement observé à T petit. (Notons qu'avec $U = 3.5t$, une quasi-transition magnétique est possible jusqu'à $x = .13$). Au demi-remplissage cependant, l'aspect qualitatif de la courbe T_1^{-1} vs T obtenue numériquement est conforme aux mesures sur le La_2CuO_4 . (Rappelons que ce composé, contrairement au $\text{La}_{1.925}\text{Sr}_{0.075}\text{CuO}$, présente un état de Néel à basse température ($T_N \simeq 325K$)). Pour faire coïncider la courbe théorique à $x = 0$ avec les résultats expérimentaux, il faut renforcer la répulsion à $U = 4.5t$ et prendre $t = 1700K$ comme énergie de saut. La figure 19(b) fait état des calculs effectués avec ces nouvelles grandeurs de U et de t . Même si celles-ci s'avèrent inaptes à décrire la relaxation dans les matériaux dopés, il faut souligner que ce lissage des points relatifs

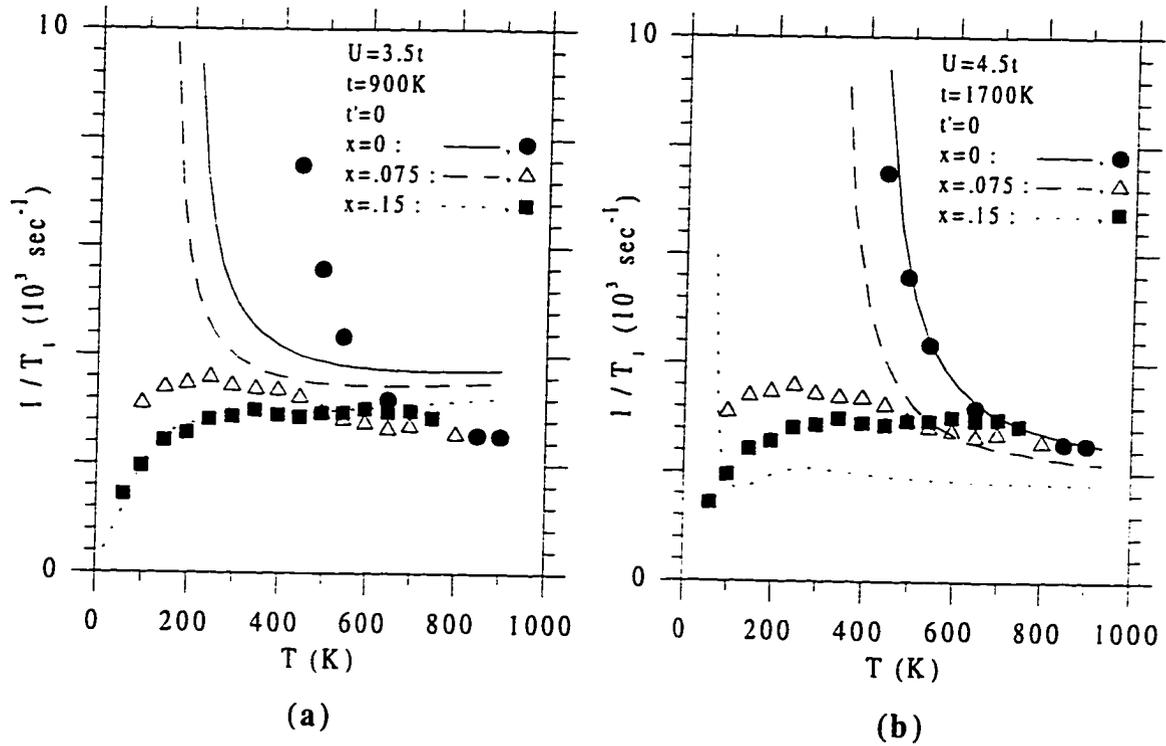


Figure 19 : On confronte les prédictions du modèle de Hubbard tU aux mesures d'Imai *et al.* [33] sur les matériaux $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ avec $x = 0(\bullet)$, $x = .075(\Delta)$ et $x = .15(\blacksquare)$. En (a), les paramètres U et t ont été choisis de manière à reproduire le plus fidèlement possible les données relatives au composé $x = .15$. En (b), on a ajusté U et t en fonction des points expérimentaux se rapportant au La_2CuO_4 .

au La_2CuO_4 a l'avantage de rapprocher les paramètres U et t des valeurs qu'on retrouve dans la littérature [16] [17] [11] [18].

Clairement, pour concilier nos calculs du taux de relaxation avec l'expérience, il faut envisager des modifications au modèle visant à amincir l'intervalle de dopage où une température de crossover existe. Il est donc opportun à ce stade-ci de s'interroger sur la présence du désordre dans les plans conducteurs des composés avec $x > 0$. Imai *et al.* [24] rapportent que les signaux associés à la résonance des noyaux ^{63}Cu et ^{65}Cu en RQN sont typiquement vingt fois plus étroits en fréquence dans le La_2CuO_4 que dans les matériaux dopés. Ils attribuent ce phénomène au désordre dans les couches CuO_2 que suscite le dopage au strontium. De même, Ohsugi *et al.* [26] estiment que la largeur à mi-hauteur de ces pics d'intensité dans le $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$ ($\sim 2.2\text{MHz}$) surpasse d'un ordre de grandeur celle qui est mesurée dans le $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ ($\sim .22\text{MHz}$). Cette largeur excessive,

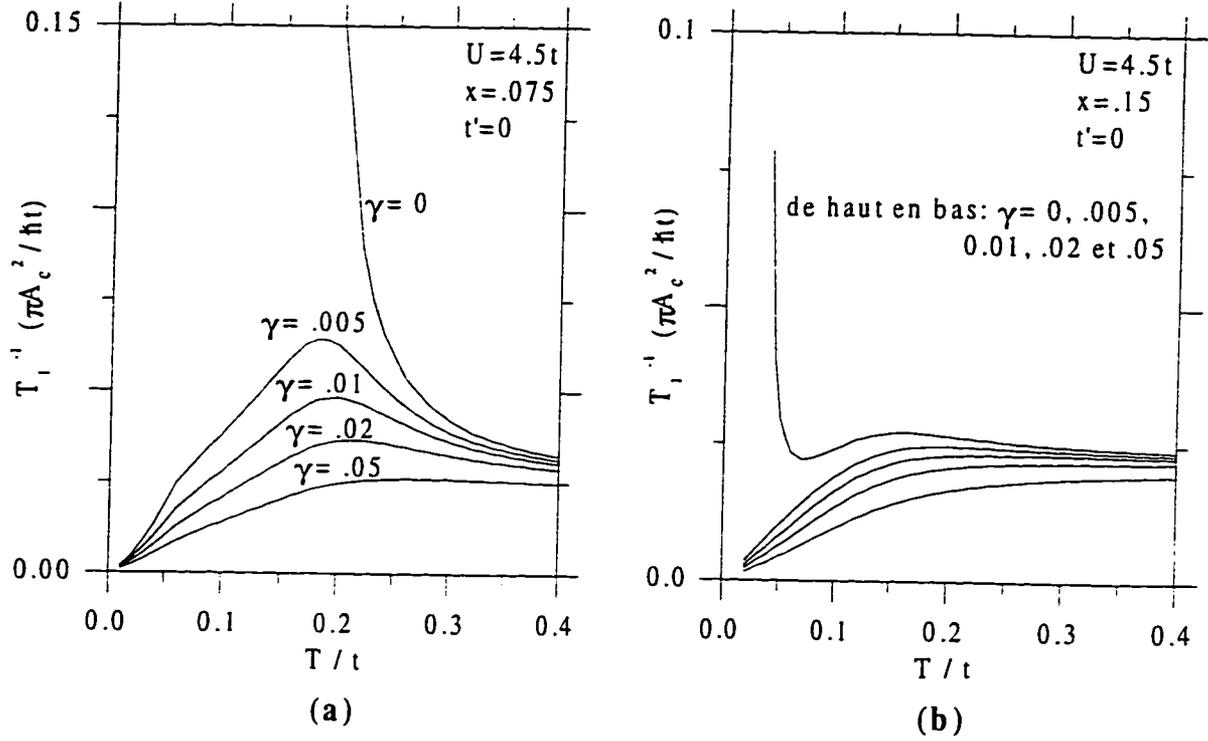


Figure 20 : On mesure l'influence du paramètre γ chargé de limiter la croissance des fluctuations à proximité de \mathbf{q}_{\max} . On cherche ainsi à établir un comportement qualitatif acceptable pour T_1^{-1} dans les systèmes dopés présentés à la figure 19(b). Les inflexions à $T \simeq .06t$ des courbes pour $x = .075$ se produisent là où le vecteur \mathbf{q}_{\max} se détache de $\mathbf{Q} = (\pi, \pi)$ pour devenir incommensurable ($\mathbf{q}_{\max} = (\pi, \pi - \delta)$) à $T \lesssim .06t$.

selon eux, est une conséquence de la distribution aléatoire des atomes Sr contenus dans l'échantillon. On voit donc que, contrairement à ce que sous-entend notre modèle, le dopage n'agit pas uniquement sur le nombre de porteurs dans les plans. L'ajout de strontium introduit dans le milieu un certain désordre qui se manifeste en RQN par une incertitude sur la fréquence de résonance des noyaux de cuivre.

Pour la suite, nous allons présumer que l'influence du désordre dans les systèmes avec $x > 0$ est suffisamment importante pour saturer la croissance des fluctuations critiques et interrompre l'établissement d'un ordre magnétique à longue portée à basse température. Nous modéliserons cet effet d'une façon quelque peu simpliste en augmentant d'un nombre γ le dénominateur $\left[1 - \frac{U_{\pi\pi}}{2} \chi'_o(\mathbf{q}_{\max}, 0)\right]^2$ de la fonction $\Gamma(\mathbf{q})$ dans l'intégrale (5.52). Cette modification équivaut à fixer une limite supérieure $\gamma^{-1/2}$ à l'augmentation $\tilde{\xi}^2$ de la susceptibilité de spin. On peut ainsi éviter la divergence exponen-

tielle de la longueur de corrélation ξ (nous avons vu au chapitre 2 que $\xi \propto \tilde{\xi}$) à $T \rightarrow 0$ et s'affranchir du régime classique renormalisé qui nuit au comportement de T_1^{-1} à T petit. (Ceci n'est pas sans rappeler les calculs qu'ont effectué Bulut *et al.* [4] dans le cadre du hamiltonien de Heisenberg 2D. Ces derniers ont simulé l'action des trous dans les plans des $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ en imposant une limite à la longueur de corrélation antiferromagnétique).

La figure 20 illustre l'effet du terme γ sur les courbes de T_1^{-1} en fonction de T pour les systèmes $x = .075$ et $x = .15$ de la figure 19(b). On peut constater que la saturation du facteur d'augmentation $\tilde{\xi}^2$ s'accompagne d'un changement dramatique dans les comportements à basse température; dans chaque situation, T_1^{-1} décroît maintenant vers zéro à $T \rightarrow 0$. La présence d'un γ assez grand permet de masquer toute trace du régime classique renormalisé qui surviendrait autrement. Soulignons qu'il est possible de retrouver des résultats tout à fait similaires en soustrayant simplement une quantité ΔU de la répulsion renormalisée U_{sp} . Par exemple, la courbe tracée pour $\gamma = .01$ en 20(a) est presque identique à celle qu'on obtient avec $\Delta U = .1$. Il s'agit là de deux façons à peu près équivalentes de contrer l'effet de l'échelle d'énergie $\delta U = U_c - U_{sp} \ll T$.

À la figure 21(a), nous avons utilisé à nouveau les énergies $U = 4.5t$ et $t = 1700K$ adaptées aux points expérimentaux du La_2CuO_4 . Pour tenir compte de l'effet possible du désordre lorsqu'il y a dopage, les prédictions du modèle tU à $x = .075$ et $x = .15$ ont été corrigées en posant $\gamma = .01$. Dans ces nouvelles conditions, même si l'accord quantitatif avec l'expérience n'a rien d'extraordinaire, la comparaison avec la figure 19(b) nous amène à reconnaître, d'un point de vue qualitatif, les avantages qui découlent du terme γ . Nous savons depuis la section 5.3 que, dans le contexte du modèle tU enrichi de la méthode ACDR, la quasi-indépendance de T_1^{-1} en x observée chez les $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ est irréalisable. Ceci apparaît d'ailleurs clairement sur le graphique 21(a). Nous savons aussi (section 5.4) que l'ajout d'un t' variable dans la relation de dispersion des systèmes dopés permet d'améliorer sensiblement cette situation à haute température. Il est donc concevable que l'utilisation conjointe de γ et d'un t' dépendant de x puisse rapprocher davantage les résultats numériques pour $x = .075$ et $x = .15$ des données d'Imai *et al.*. Néanmoins, nous laisserons cette idée de côté, soucieux de ne pas exagérer le nombre de paramètres ajustables pour lesquels les justifications physiques seraient contestables.

La figure 21(b) montre qu'il est également possible de lisser les points expérimentaux à $x = 0$ en se

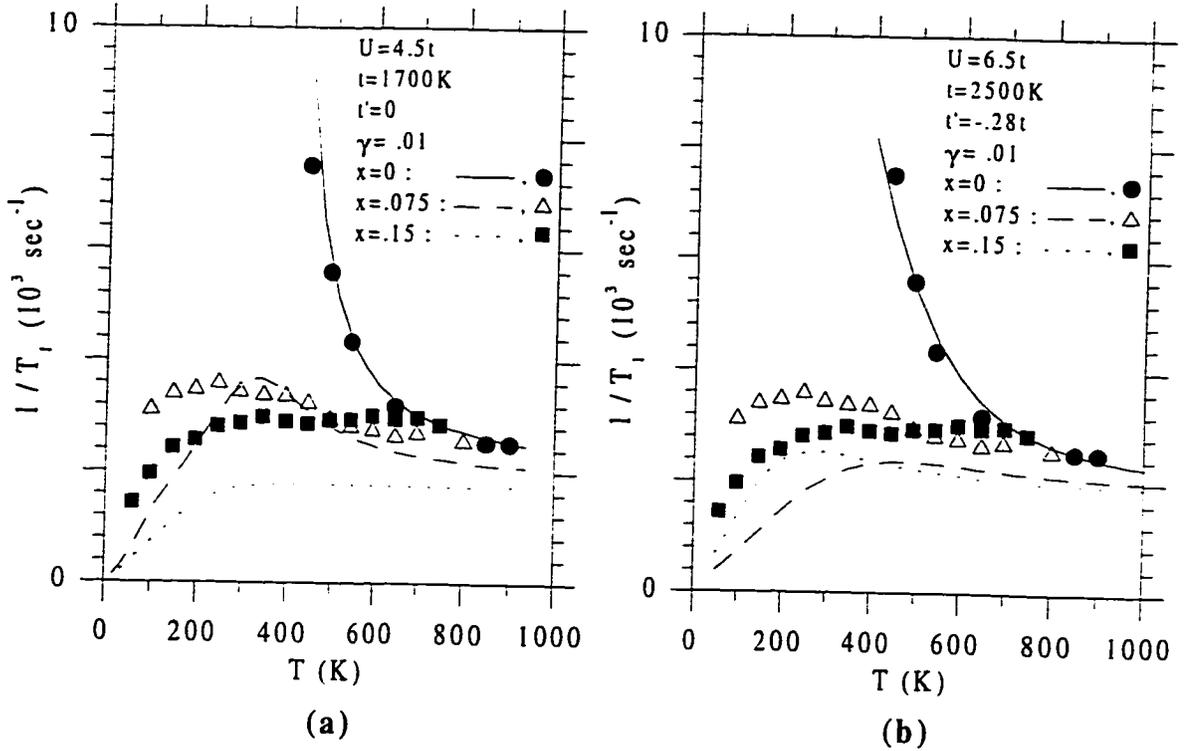


Figure 21 : En (a), on a repris les paramètres U et t utilisés à la figure 19(b) et ajouté, pour les dopages $x = .075$ et $x = .15$, le terme $\gamma = .01$ au dénominateur de la fonction $\Gamma(\mathbf{q})$ (équation (5.52)). En (b), dans le cadre du modèle $tt'U$ avec $t' = -.28t$, les valeurs de U et t sont ajustées pour lisser les points expérimentaux du La_2CuO_4 . Les courbes tracées pour $x = .075$ et $x = .15$ ont été calculées avec $\gamma = .01$.

servant du hamiltonien $tt'U$ avec $t' = -.28t$. Ce dernier, rappelons-le, est capable de reproduire les caractéristiques essentielles de la susceptibilité uniforme des $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. L'ajustement des amplitudes de U et de t conduit ici à des valeurs plus raisonnables ($U = 6.5t$ et $t = 2500K$), si on se fie à la littérature, que dans le cas $t' = 0$. Ceci est lié au fait que ce terme de saut aux seconds voisins a tendance à retarder la croissance des fluctuations critiques vers T petit et à abaisser considérablement la température de crossover T_x ; il aplatit en quelque sorte le diagramme de phases $T_x - x$ du modèle à proximité du demi-remplissage. Il faut donc renforcer l'interaction et hausser le paramètre t pour que la montée de T_1^{-1} se fasse comme le réclame l'observation expérimentale. Avec $U = 6.5t$, les systèmes dopés $x = .075$ et $x = .15$ subissent une quasi-transition à basse température. C'est pourquoi nous avons utilisé $\gamma = .01$ dans ces calculs à dopage non-nul. On remarque que la saturation du facteur $\tilde{\xi}^2$ qui s'ensuit fait en sorte que c'est l'échelle d'énergie $|\mu - 4t'|$, une pro-

priété de la partie libre du hamiltonien, qui détermine la dépendance de T_1^{-1} en x à T petit. En effet, à $T \lesssim 400K$ ($T \lesssim .08t$), on a $T_1^{-1}(x = .075) < T_1^{-1}(x = .15)$, en désaccord avec l'expérience. (Noter qu'avec $\gamma = 0$, même si l'aspect de ces courbes pour $x \neq 0$ est inadéquat, on obtient quand même $T_1^{-1}(x = .075) > T_1^{-1}(x = .15)$, quelle que soit la température). Une façon de remédier à ce problème à basse température serait d'employer un γ qui augmente avec le dopage. Par exemple, en posant $\gamma = .01$ pour $x = .075$ et $\gamma \gtrsim .02$ pour $x = .15$, on réussit à rétablir le bon comportement en x . Le rôle de γ étant d'imiter l'effet du désordre relié à l'ajout de strontium, il paraît raisonnable de lui assigner une telle dépendance en dopage.

Chapitre 6

Le modèle de Hubbard pour un système orthorhombique

Comme nous l'avons souligné au chapitre 2, le composé de lanthane avec $x \lesssim .2$ présente une transition structurale entre une cellule-unité tétragonale à haute température, et une cellule-unité orthorhombique à T petit. (Voir le diagramme de phases $T - x$ de la figure 1(a)). Or, le modèle de Hubbard à une bande que nous avons utilisé jusqu'ici suppose que les atomes de cuivre des couches conductrices sont disposés sur un réseau carré. Il convient donc de se demander ce qu'il adviendrait du diagramme de phases magnétique de notre modèle si on lui imposait une transition structurale de cette nature. Évidemment, on espère ainsi réduire l'étendue en densité de ce diagramme.

La figure 22 montre de façon schématique la configuration des atomes de cuivre dans les plans CuO_2 des matériaux $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ dans leurs phases tétragonale et orthorhombique. On y indique également les diverses possibilités de sauts intersites. On voit immédiatement que la géométrie du réseau orthorhombique face-centrée préserve l'équivalence des paramètres de saut aux premiers voisins t . Cependant, comme $b > a$, il faut faire la distinction entre un saut le long de $\pm a$, d'amplitude t' , et un autre selon $\pm b$, d'amplitude t'' ; l'orthorhombicité brise partiellement la symétrie qui existe entre les sauts aux quatre seconds voisins dans le système tétragonal. En réalité, la différence entre a et b est minime. Par exemple, à $x = .16$ et $T \simeq 10K$, Torrance *et al.* [15] ont mesuré $a \simeq 5.320$ et $b \simeq 5.334$, ce qui constitue un écart relatif très faible, à savoir $\frac{b-a}{\frac{1}{2}(a+b)} \simeq .26\%$. C'est pourquoi, dans notre traitement du cas orthorhombique, nous n'allons pas nous préoccuper de la forme ou la taille de la cellule-unité et de la zone de Brillouin correspondante. Nous continuerons de présumer que les sites Cu sont répartis sur un réseau carré, et n'agirons que sur la grandeur des paramètres de saut. Puisque ces derniers représentent des intégrales de recouvrement d'orbitales de Wannier localisées sur des sites voisins, on peut s'attendre à ce qu'ils soient très sensibles à des variations, même très subtiles, des distances interatomiques. Aussi, plutôt que d'introduire une asymétrie dans les sauts le long des deux diagonales du réseau carré, nous allons intervenir au niveau des paramètres

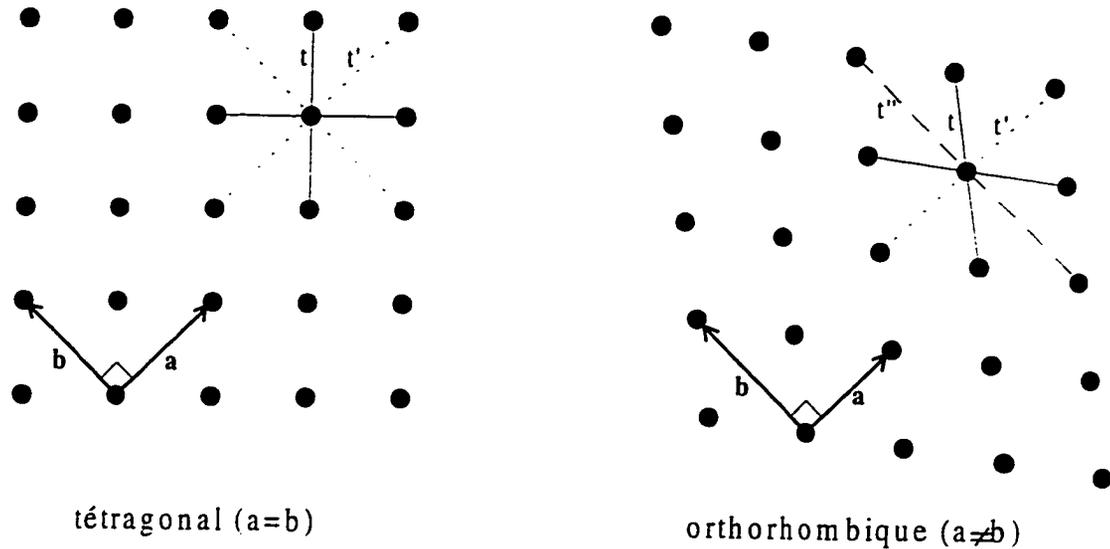


Figure 22 : Arrangement des atomes Cu des plans conducteurs du composé de lanthane dans les phases tétragonale et orthorhombique. (La différence entre les longueurs a et b a été grandement exagérée dans le cas orthorhombique afin de mieux visualiser la distinction entre les deux configurations). Remarquer que les sauts aux quatre seconds voisins d'un site dans l'état tétragonal ne sont plus équivalents entre eux après la transition vers une cellule orthorhombique. Lorsque $a \neq b$, les paramètres t' et t'' désignent les amplitudes des sauts selon $\pm a$ et $\pm b$ respectivement.

de saut aux premiers voisins. Cette manière de procéder, même si elle ne s'applique pas directement aux matériaux $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, produit un effet beaucoup plus marqué sur le diagramme de phases du modèle. (Noter que cette méthode serait bien adaptée à la structure orthorhombique simple des $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$. Dans les plans CuO_2 de ces composés, les atomes Cu dessinent un réseau rectangulaire ($a = a\hat{x}$; $b = b\hat{y}$) de pas $a \simeq 3.823$ et $b \simeq 3.887$. Dans ce cas, l'orthorhombicité se manifeste véritablement par une différence entre les sauts aux plus proches voisins le long des axes x et y).

Notre approche consiste donc à faire le changement suivant dans le hamiltonien de Hubbard (2.1):

$$-t \sum_{\langle i,j \rangle, \sigma} \left(c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + c_{j\sigma}^\dagger c_{i\sigma} \right) \rightarrow -t_x \sum_{\langle i,j \rangle_{x,\sigma}} \left(c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + c_{j\sigma}^\dagger c_{i\sigma} \right) - t_y \sum_{\langle i,j \rangle_{y,\sigma}} \left(c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + c_{j\sigma}^\dagger c_{i\sigma} \right) \quad (6.67)$$

où les indices de sommation $\langle i,j \rangle_{x,y}$ font référence aux paires de plus proches voisins dans les directions x et y du réseau carré. Nous désignerons par $t_x t_y t' U$ le modèle qui résulte de cette modification. La diagonalisation de sa partie cinétique dans l'espace réciproque conduit à la relation de dispersion

$$\epsilon(\mathbf{k}) = -2t_x \cos k_x - 2t_y \cos k_y - 4t' \cos k_x \cos k_y \quad (6.68)$$

En simulant l'orthorhombicité par $t_x \neq t_y$, on lève la dégénérescence $\epsilon(k_x, k_y) = \epsilon(k_y, k_x)$. Il faut mentionner que les résultats qui vont suivre ne sont valables que si $|t'| < \frac{1}{2}t_{x,y}$. Aussi, nous poserons toujours $t_y \geq t_x$, si bien que $\Delta t \equiv t_y - t_x \geq 0$.

La bande de conduction s'étend maintenant sur l'intervalle $-4\langle t \rangle - 4t' \leq \epsilon(\mathbf{k}) \leq 4\langle t \rangle - 4t'$ et sa largeur est $W = 8\langle t \rangle$, avec $\langle t \rangle \equiv \frac{1}{2}(t_x + t_y)$. La densité d'états associée à l'énergie cinétique (6.68) se calcule exactement (la démonstration est faite à l'annexe A). Elle est donnée par

$$N(\epsilon) = \begin{cases} \frac{1}{\pi^2} \frac{1}{\sqrt{4\langle t \rangle^2 - (2t' + \frac{\epsilon}{2})^2}} \mathbf{K} \left\{ 2 \sqrt{\frac{t_x t_y - t' \epsilon}{4\langle t \rangle^2 - (2t' + \frac{\epsilon}{2})^2}} \right\} & \text{si } 4t' - 2\Delta t \leq \epsilon \leq 4t' + 2\Delta t \\ \frac{1}{2\pi^2} \frac{1}{\sqrt{t_x t_y - t' \epsilon}} \mathbf{K} \left\{ \frac{1}{2} \sqrt{\frac{4\langle t \rangle^2 - (2t' + \frac{\epsilon}{2})^2}{t_x t_y - t' \epsilon}} \right\} & \text{si } -4\langle t \rangle - 4t' \leq \epsilon \leq 4t' - 2\Delta t \\ & \text{ou } 4t' + 2\Delta t \leq \epsilon \leq 4\langle t \rangle - 4t' \end{cases} \quad (6.69)$$

où \mathbf{K} représente l'intégrale elliptique complète de première espèce. On montre aisément à partir de cette équation que l'asymétrie $t_x \neq t_y$ provoque un dédoublement de la singularité de Van Hove qui existait à $\epsilon_{V.H.} = 4t'$. La fonction $N(\epsilon)$ est maintenant singulière à $\epsilon_{V.H.}^{\pm} \equiv 4t' \pm 2\Delta t$. (Pour s'en convaincre, il suffit de repérer les énergies où l'argument de \mathbf{K} est égal à l'unité). La figure 23(a) illustre l'effet du paramètre d'orthorhombicité $\frac{\Delta t}{\langle t \rangle} = .2$ sur la densité d'états du modèle avec $t' = -.16\langle t \rangle$. (Nous nous inspirons ici de la valeur de t' suggérée par Schluter *et al.*). En 23(b), on a tracé des surfaces de Fermi pour ce modèle orthorhombique. Une singularité de Van Hove survient quand, à une énergie donnée, on peut associer un vecteur d'onde qui correspond à une vitesse de Fermi nulle. Avec la relation de dispersion (6.68), les vecteurs \mathbf{k} qui satisfont $v_F \equiv |\nabla_{\mathbf{k}} \epsilon(\mathbf{k})| = 0$ sont $(\pm\pi, 0)$ et $(0, \pm\pi)$, pour lesquels $\epsilon(\mathbf{k}) = \epsilon_{V.H.}^-$ et $\epsilon(\mathbf{k}) = \epsilon_{V.H.}^+$ respectivement. (Voir les surfaces à $\mu = \epsilon_{V.H.}^{\pm}$, en trait gras à la figure 23(b)). Les singularités de Van Hove signalent des transitions entre différents régimes géométriques de la surface de Fermi. Pour $\mu < \epsilon_{V.H.}^-$, celle-ci est fermée. Après avoir franchi la première singularité, lorsque $\epsilon_{V.H.}^- < \mu < \epsilon_{V.H.}^+$, elle devient disjointe, s'ouvrant sur les frontières $(\pm\pi, k_y)$ de la zone de Brillouin. Enfin, en traversant la seconde singularité ($\mu > \epsilon_{V.H.}^+$), la surface s'ouvre à nouveau, cette fois-ci sur les bords $(k_x, \pm\pi)$ de la zone.

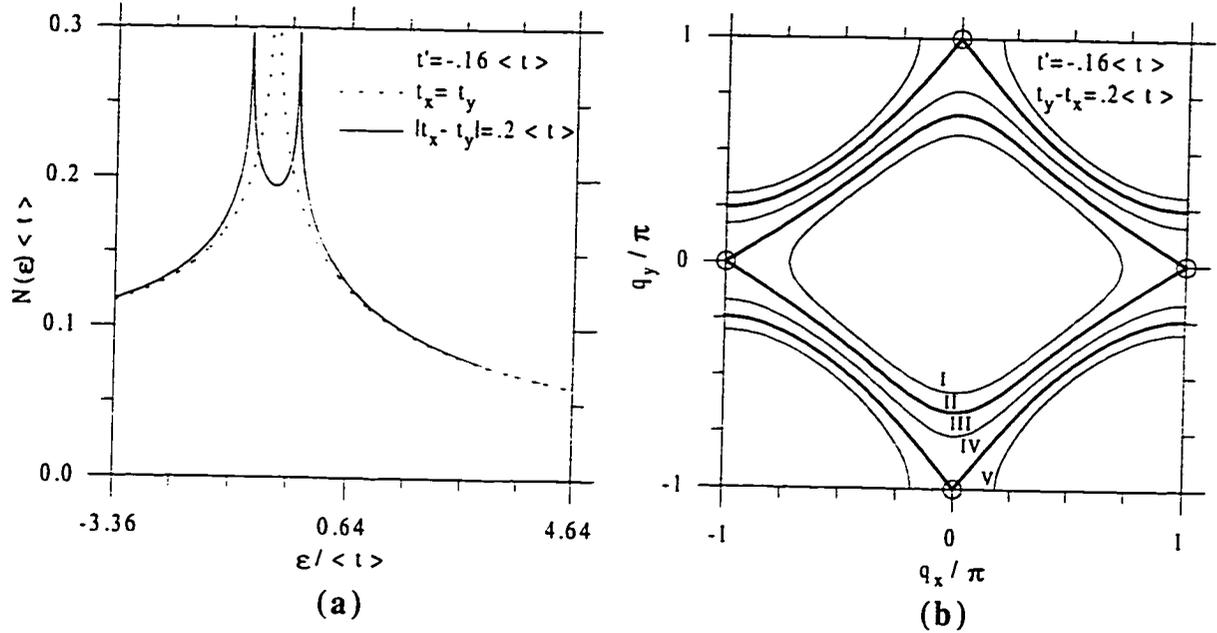


Figure 23 : (a) Densité d'états pour la partie cinétique du hamiltonien $t_x t_y t' U$ lorsque $t' = -.16 \langle t \rangle$, avec $\Delta t = 0$ (trait pointillé) et $\Delta t = .2 \langle t \rangle$ (trait plein). (b) Surfaces de Fermi du modèle orthorhombique ($\Delta t \equiv t_y - t_x = .2 \langle t \rangle$) correspondant à $\mu / \langle t \rangle = -1.44$ (I), -1.04 (II), $-.64$ (III), $-.24$ (IV) et $.16$ (V). Les surfaces aux singularités de Van Hove ($\mu = \epsilon_{V.H.}^{\pm} \equiv 4t' \pm 2\Delta t$) sont identifiées par un trait gras. Les cercles vides indiquent les points où la vitesse de Fermi est nulle.

Nous allons à présent aborder la question du diagramme de phases de notre modèle orthorhombique. Notre analyse se fera dans le cadre de la RPA traditionnelle, où la répulsion U entre deux électrons sur un même site est supposée indépendante de la température et de la densité électronique. Nous laisserons donc de côté la renormalisation de U par le formalisme ACDP et utiliserons le couplage modéré $U = 2 \langle t \rangle$. (La généralisation du calcul numérique de U_{sp} pour le cas orthorhombique nécessiterait des modifications plutôt lourdes à l'algorithme). De toute façon, puisque la variation de U_{sp} en x et en T est relativement lente en dehors du régime classique renormalisé, du moins lorsque $t_x = t_y$, il semble raisonnable de se servir d'un U fixe en première approximation. Le diagramme de phases ainsi obtenu devrait, en principe, comporter les éléments essentiels du diagramme de crossover $T_x - n$ qui viendrait avec la méthode ACDP, en admettant que $U_{sp}(T > T_x) \simeq 2 \langle t \rangle$.

Rappelons qu'en RPA ordinaire, la température critique où s'installe l'ordre à longue portée est déterminée au moyen du critère de Stoner $1 - \frac{U}{2} \chi_o(q_{max}, \omega = 0) = 0$. (Voir les équations (2.14) et

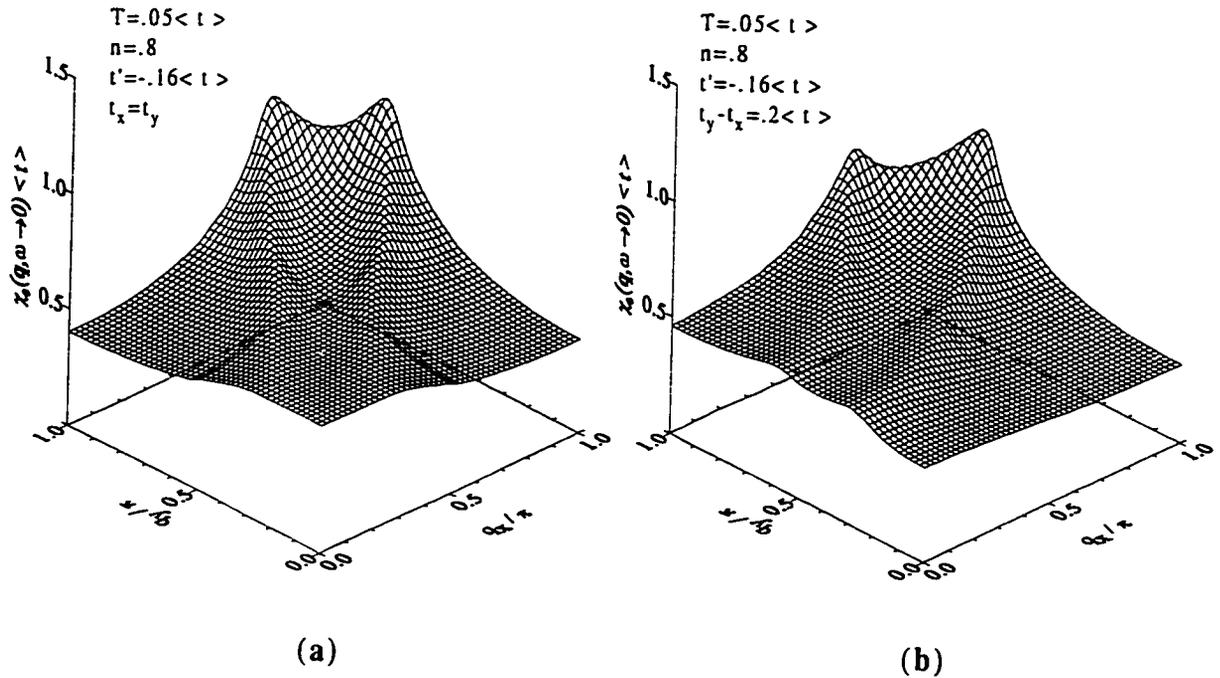


Figure 24 : L'effet d'une asymétrie $t_x \neq t_y$ sur la susceptibilité statique nue à $T = .05 \langle t \rangle$ pour le remplissage $n = .8$, avec $t' = -.16 \langle t \rangle$. En (a), on illustre $\chi_o(\mathbf{q}, \omega \rightarrow 0)$ pour le cas $t_x = t_y$, alors qu'en (b), on a posé $\Delta t = .2 \langle t \rangle$.

(2.15). La susceptibilité nue χ_o est toujours donnée par la fonction de Lindhard (2.8). Si on abaisse la température jusqu'à $T = T_c$, le gaz d'électrons subit une transition d'un état paramagnétique à une phase magnétique, laquelle est ordonnée selon le vecteur \mathbf{q}_{\max} . Les symétries du modèle $tt'U$ sont telles qu'il suffit d'examiner la portion irréductible ($q_x \in [0, \pi]$; $q_y \in [0, q_x]$) de la zone de Brillouin pour identifier les maxima de la susceptibilité statique $\chi_o(\mathbf{q}, 0)$ et connaître la grandeur de l'interaction critique $U_c \equiv \frac{2}{\chi_o(\mathbf{q}_{\max}, \omega=0)}$. Avec notre modèle orthorhombique $t_x t_y t' U$, il faut désormais balayer tout le premier quadrant de la zone. (Noter qu'en vertu de la symétrie de la relation de dispersion (6.68) sous la transformation $k_{x,y} \rightarrow 2\pi - k_{x,y}$, les frontières de la zone sont toujours des extréma locaux. Or, cela ne signifie pas que le maximum global de $\chi_o(\mathbf{q}, 0)$ s'y trouve forcément). La figure 24 montre comment la fonction $\chi_o(\mathbf{q}, 0)$ est transformée par l'orthorhombicité $\frac{\Delta t}{\langle t \rangle} = .2$ dans les conditions $T = .05 \langle t \rangle$, $n = .8$ et $t' = -.16 \langle t \rangle$. En 24(a), la susceptibilité du système avec $t_x = t_y$ présente deux maxima incommensurables équivalents situés à $\mathbf{q} = (\pi, \pi - \delta)$ et $\mathbf{q} = (\pi - \delta, \pi)$, où $\frac{\delta}{\pi} \approx .23$; la symétrie $\chi_o(q_x, q_y, 0) = \chi_o(q_y, q_x, 0)$ est évidente. Lorsqu'on

introduit l'orthorhombicité (figure 24(b)), on obtient aussi deux maxima locaux en bordure de la zone. Cependant, il est clair que la hauteur et la position de ces pics n'affichent plus cette symétrie par rapport à l'axe $k_y = k_x$. Dans cet exemple, c'est le maximum sur le côté (π, q_y) de la zone qui fixe l'amplitude de la répulsion critique U_c .

Comme dans la situation $t_x = t_y$, la susceptibilité du modèle orthorhombique à proximité du demi-remplissage culmine au vecteur antiferromagnétique. Si toutefois on injecte suffisamment de trous ou d'électrons dans la bande à moitié remplie, ce maximum à $\mathbf{Q} = (\pi, \pi)$ se divise et donne lieu à deux pics inégaux en $\mathbf{q} = (\pi, \pi - \delta_y)$ et $\mathbf{q} = (\pi - \delta_x, \pi)$. Pour peu que l'on ne s'écarte pas trop de $n = 1$, on trouve que les maxima incommensurables demeurent sur ces frontières de la zone de Brillouin. Les déplacements $\delta_{x,y}$ augmentent à mesure qu'on s'éloigne du demi-remplissage. (Remarquer que c'est aussi le cas du déplacement δ qui vient avec le modèle $tt'U$). En posant $t_y > t_x$, on a toujours $\delta_x > \delta_y$. S'il est vrai que dans les conditions choisies pour la figure 24(b), c'est la composante à $\mathbf{q} = (\pi, \pi - \delta_y)$ qui domine, ça ne l'est pas en général. Il existe en effet, pour une température donnée, une plage de densité électronique où c'est le pic à $\mathbf{q} = (\pi - \delta_x, \pi)$ qui constitue le véritable maximum de $\chi_o(\mathbf{q}, 0)$. (Ceci ne se produit cependant que si $t' \neq 0$). Dans l'élaboration d'un diagramme de phases pour le modèle $t_x t_y t' U$, il est donc primordial d'identifier les deux types d'ordre incommensurable, c'est-à-dire les ondes de densité de spin dirigées soit selon $\mathbf{q}_{\max} = (\pi, \pi - \delta_y)$, ou bien selon $\mathbf{q}_{\max} = (\pi - \delta_x, \pi)$.

Afin de clarifier davantage la situation avant l'analyse des diagrammes de phases $T_c - n$, considérons la figure 25. Celle-ci illustre, pour quelques valeurs de T , l'évolution en n de l'interaction critique du modèle $t_x t_y t' U$ avec $t' = -.16 \langle t \rangle$ et l'orthorhombicité $\frac{\Delta t}{\langle t \rangle} = .2$. Sur cet intervalle de remplissage, on discerne bien trois sortes d'instabilités accessibles en RPA. Moyennant une répulsion assez forte, l'antiferromagnétisme peut s'installer sur une plage de densité dont fait partie le demi-remplissage. De part et d'autre, les transitions se font plutôt vers les deux types de phases d'onde de densité de spin dont nous avons discuté. À $T = .01 \langle t \rangle$, U_c présente un minimum à $n \simeq .7$, et un autre à $n \simeq .93$. Le premier d'entre eux survient lorsque la surface de Fermi traverse la première singularité de Van Hove ($\mu \simeq \epsilon_{V.H.}^- = -1.04 \langle t \rangle$). Le deuxième se produit là où le vecteur \mathbf{q}_{\max} atteint $\mathbf{Q} = (\pi, \pi)$. La région antiferromagnétique, où $\delta_{x,y} = 0$, est centrée sur la densité $n \simeq 1.03$, lequel correspond à la seconde divergence de la densité d'états (6.69) ($\mu \simeq \epsilon_{V.H.}^+ = -.24 \langle t \rangle$). Si on augmente la

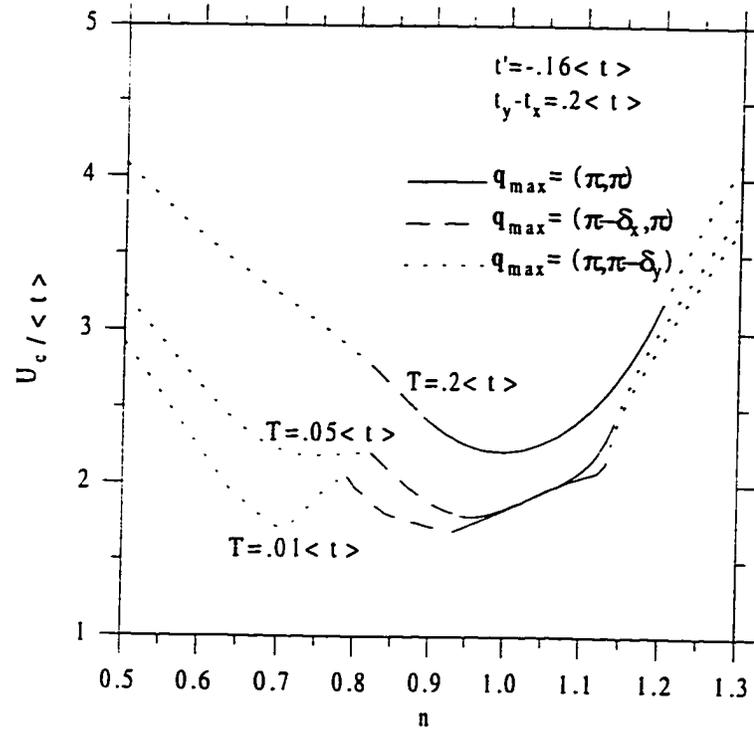


Figure 25 : Interaction critique U_c en fonction de la densité électronique pour le modèle orthorhombique $t_x t_y t' U$ avec $t' = -.16 \langle t \rangle$ et $\Delta t = .2 \langle t \rangle$.

température, le minimum associé à $\mu = \epsilon_{V.H.}^-$ disparaît progressivement. L'autre se déplace dans le domaine de remplissage où $\mathbf{q}_{\max} = (\pi, \pi)$ et rejoint $n = 1$ à T grand. On voit donc que lorsque la température devient comparable aux échelles d'énergie $|t'|$ et Δt , le profil de l'interaction critique du modèle orthorhombique $t_x t_y t' U$ s'apparente à celui du modèle tU .

La figure 26 montre comment l'orthorhombicité agit sur les diagrammes de phases RPA des modèles avec $t' = 0$ et $t' = -.16 \langle t \rangle$, en présence de la répulsion $U = 2 \langle t \rangle$. Le critère de Stoner se traduit ici par $\chi_o(\mathbf{q}_{\max}, 0) \langle t \rangle = 1$. Par analogie avec les composés $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, on ne s'intéresse ici qu'à la portion $n \leq 1$ des diagrammes. (Noter qu'avec $t' = 0$, la partie $n \gtrsim 1$ peut s'obtenir simplement en remplaçant n par $2 - n$ dans le graphique 26(a); l'orthorhombicité préserve la symétrie particule-trou du modèle de Hubbard tU . La même chose n'est évidemment pas vraie pour la situation décrite en 26(b) puisque le terme de saut aux seconds voisins détruit cette symétrie). Examinons en premier lieu le cas $t' = 0$ à la figure 26(a). On remarque que la hausse du paramètre

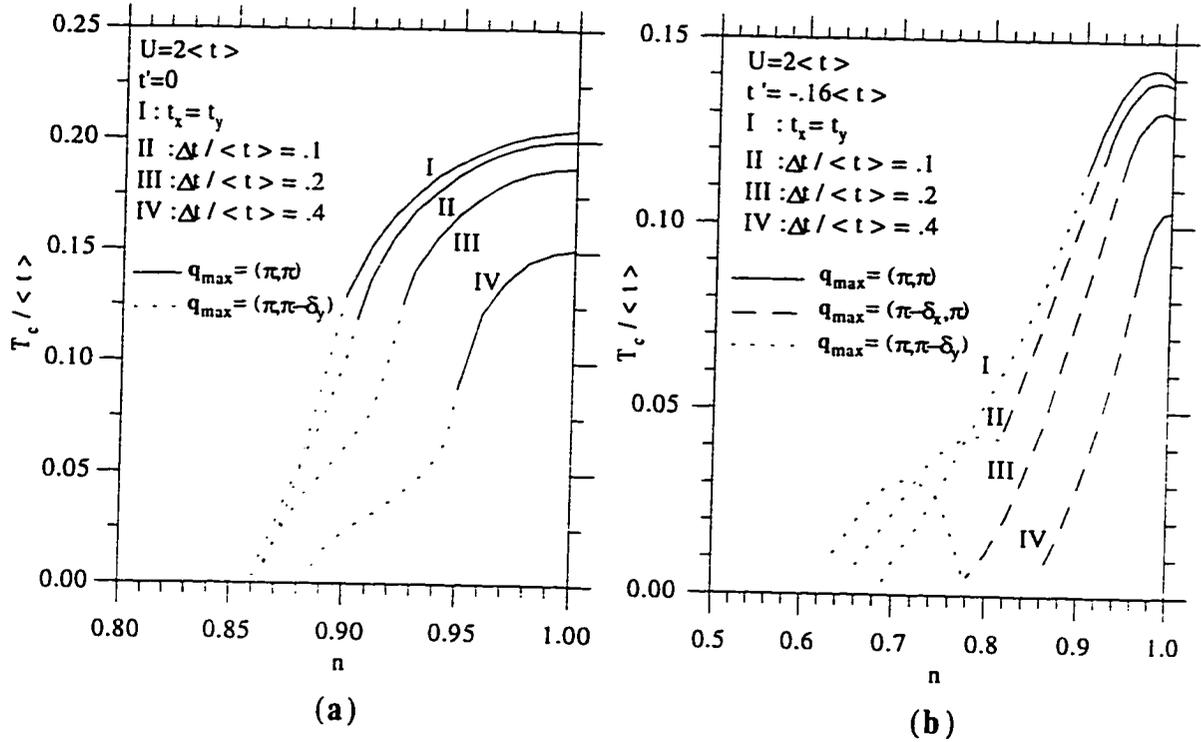


Figure 26 : Diagrammes de phases RPA du modèle $t_x t_y t' U$ ($U = 2 \langle t \rangle$) avec en (a), $t' = 0$, et en (b), $t' = -0.16 \langle t \rangle$. On a utilisé des paramètres d'asymétrie $\frac{\Delta t}{\langle t \rangle}$ allant de 0 à .4. Les températures critiques T_c où apparaissent les diverses phases magnétiques sont évaluées à partir du critère de Stoner $\frac{U}{2} \chi_o(q_{\max}, \omega = 0) = 1$.

$\frac{\Delta t}{\langle t \rangle}$ réduit systématiquement l'intervalle de remplissage où l'état antiferromagnétique peut s'installer. Toutefois, à basse température, les phases d'onde de densité de spin pour $\frac{\Delta t}{\langle t \rangle} = .1$ et $.2$ continuent de persister jusqu'à $n \simeq .86$, comme elles le font à $t_x = t_y$. Pour amincir globalement le diagramme de phases, il faut introduire une asymétrie entre les paramètres de saut qui soit au moins de l'ordre de 40% ($\frac{\Delta t}{\langle t \rangle} \gtrsim .4$). On constate à la figure 26(b) que l'inclusion du terme en t' ajoute à la complexité des diagrammes; il faut maintenant tenir compte de la contribution des maxima de $\chi_o(q, 0)$ situés sur les deux frontières de la zone de Brillouin. (Avec $t' = 0$, cela est inutile étant donné que le pic incommensurable à $q = (\pi, \pi - \delta_y)$ est toujours plus élevé que l'autre à $q = (\pi - \delta_x, \pi)$). Soulignons aussi que le seul fait d'adjoindre au modèle tU une possibilité de saut vers les seconds voisins a comme conséquence d'élargir son diagramme de phases. (Comparer les courbes de T_c en fonction de n tracées pour $t_x = t_y$, avec et sans t'). Encore une fois, la fenêtre de densité où se manifeste l'antiferromagnétisme rétrécit à mesure qu'on augmente l'asymétrie entre les sauts aux

premiers voisins. Il en irait de même pour l'ensemble du diagramme si, en présence de Δt , l'ordre incommensurable était toujours régi par $\mathbf{q}_{\max} = (\pi - \delta_x, \pi)$. Or, il s'avère que pour $\frac{\Delta t}{t} = .1$ et $.2$, il surgit à basse température des phases d'onde de densité de spin, orientées selon $\mathbf{q}_{\max} = (\pi, \pi - \delta_y)$, qui rendent le diagramme de phases plus large qu'il ne l'est lorsque $t_x = t_y$. Cet effet est relié à l'existence d'une singularité de Van Hove à $\epsilon_{V.H.}^- = 4t' - 2\Delta t$; la condition $\mu \simeq \epsilon_{V.H.}^-$ se réalise à $n \simeq .77$ si $\frac{\Delta t}{t} = .1$, et à $n \simeq .73$ si $\frac{\Delta t}{t} = .2$. (Nous avons vu à la figure 25 qu'à T petit, l'interaction critique affiche un minimum au remplissage correspondant à $\mu \simeq \epsilon_{V.H.}^-$). Pour diminuer l'étendue du diagramme de phases à basse température, il est nécessaire, comme dans le cas $t' = 0$, d'employer un Δt encore plus grand. En posant $\frac{\Delta t}{t} = .4$, on arrive enfin à rétrécir sensiblement l'intervalle de densité où les transitions de phases peuvent se produire. À ce niveau d'orthorhombicité, on a toujours $U_c > 2\langle t \rangle$ si $n \lesssim .84$, de sorte qu'on évite toute manifestation d'un ordre incommensurable dirigé le long de $\mathbf{q}_{\max} = (\pi, \pi - \delta_y)$, même aux alentours de $n \simeq .6$, où $\mu \simeq \epsilon_{V.H.}^-$.

Les résultats que nous avons présentés nous apprennent que les diagrammes de phases $T_c - n$ des modèles tU et $tt'U$ calculés en RPA peuvent bel et bien être rendus plus étroits par le changement $t \rightarrow t_x \neq t_y$. Cependant, pour arriver à cette fin, on doit imposer à ces modèles une asymétrie considérable ($\frac{\Delta t}{t} \sim 40\%$), et ce, entre les paramètres de saut aux premiers voisins. Or, nous savons que pour simuler l'orthorhombicité des matériaux $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, il faudrait plutôt agir, via un $\Delta t'$, sur le terme de saut aux seconds voisins. Il est clair que dans ce cas, l'effet serait beaucoup moins important, sinon marginal. Il ne faut donc pas voir dans l'orthorhombicité une manière de réconcilier le diagramme de phases du modèle de Hubbard avec celui du composé de lanthane.

Chapitre 7

Conclusion

Nous avons exploré certaines propriétés magnétiques du modèle de Hubbard 2D à une bande, et appliqué ces connaissances à l'étude de l'état normal des matériaux supraconducteurs $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. Nous avons tiré profit d'une approche récente, la théorie auto-cohérente à deux particules (ACDP), qui offre à ce jour le meilleur accord quantitatif avec les simulations Monte-Carlo du modèle. Sa plage de validité s'étend jusqu'au régime de couplage intermédiaire, ce qui en fait un outil important pour les comparaisons avec l'expérience. Nous avons prêté une attention particulière au taux de relaxation nucléaire du cuivre et à la susceptibilité uniforme, deux quantités mesurables en RMN/RQN. Ayant réalisé ce travail, nous sommes à même d'identifier certains points forts, ainsi que certains insuccès, qui accompagnent l'utilisation d'un tel modèle dans la description des comportements magnétiques de basse énergie du composé de lanthane.

En examinant l'influence de la répulsion nue U sur les courbes T_1^{-1} vs T calculées en RPA conventionnelle, puis avec la méthode ACDP, nous avons mis en évidence la plus grande robustesse de cette dernière approche; la sensibilité du taux de relaxation au paramètre d'interaction se voit considérablement réduite par la renormalisation $U \rightarrow U_{sp}$, ce qui permet une certaine latitude dans le choix de la valeur de U . Même si, contrairement à la RPA ordinaire, le formalisme ACDP exclut toute transition de phase proprement dite à température finie, il peut donner lieu à un régime classique renormalisé, lequel est caractérisé par une montée exponentielle de la longueur de corrélation spin-spin ($\xi \sim e^{\frac{c}{T}}$) à $T < T_x$. À l'approche de ce crossover, la croissance des fluctuations critiques nous empêche de reproduire qualitativement la dépendance de T_1^{-1} en T observée dans les matériaux $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ($x \gtrsim .02$) qui ne présentent pas d'ordre magnétique à T petit.

Avec le modèle tU , même si le couplage est choisi modéré ($U = 2.5t$), le régime classique renormalisé se manifeste sur un intervalle de dopage trop large ($0 \leq x \leq .11$). Comme celui-ci s'élargit avec l'amplitude de U , il est clair que l'emploi d'un couplage intermédiaire ($U \sim W$), tel que prescrit dans la littérature, ajouterait à l'incompatibilité entre nos calculs de T_1^{-1} à basse tempéra-

ture et l'expérience. Les observations d'Ohsugi *et al.* indiquent que T_1^{-1} tend à diminuer lorsqu'on augmente la teneur en strontium de l'échantillon, et que la quantité $(T_1 T)^{-1}$ obéit à une loi de Curie-Weiss. Nous avons compris que ces deux caractéristiques ressortaient naturellement du modèle tU , que l'on inclut ou non la répulsion électron-électron. (Voir les figures 11 et 13). Toutefois, ce modèle ne fournit pas d'explication aux mesures d'Imai *et al.* qui révèlent que le taux de relaxation est pratiquement indépendant de x à $T \gtrsim 700K$. (Il nous a fallu un t' ajusté à chaque valeur du dopage pour remplir cette condition).

L'ajout d'un paramètre fixe de saut aux seconds voisins ($t' = -.28t$) permet de rendre assez fidèlement, via l'échelle d'énergie $|\mu - 4t'|$, les variations en x et en T de la susceptibilité de spin uniforme des $La_{2-x}Sr_xCuO_4$. Dans ce contexte, c'est à la partie libre du hamiltonien que l'on doit cet accord; l'influence des interactions n'apparaît essentiellement que dans la valeur absolue de χ_{sp} . Cette même échelle d'énergie $|\mu - 4t'|$ a tendance à inverser la dépendance de T_1^{-1} en dopage à proximité du demi-remplissage ($x \leq .25$); le jeu entre le potentiel chimique et la singularité de Van Hove est tel que le taux de relaxation augmente avec x si $U = 0$. Le rétablissement du bon comportement en x commande l'utilisation d'un couplage intermédiaire ($U \gtrsim 6.5t$). Ce faisant, à cause de la largeur excessive du diagramme $T_x - x$ que cela entraîne, l'aspect des courbes T_1^{-1} vs T pour les systèmes dopés n'est plus conforme à l'expérience. (Consulter la figure 16). Il est donc difficile de formuler des paramètres du hamiltonien de Hubbard qui concilient les mesures de la susceptibilité uniforme et celles du taux de relaxation en fonction du dopage, tout en conservant un bon comportement qualitatif pour T_1^{-1} à T petit. Il est cependant clair que c'est la forme $tt'U$ du modèle qui répond le mieux globalement aux contraintes imposées, non seulement par les observations de T_1^{-1} et de χ_{sp} , mais aussi par les analyses de structure de bande et les comparaisons avec d'autres expériences comme la diffusion de neutrons. (Importance des sauts aux seconds voisins, nécessité d'une interaction comparable à la largeur de bande, etc.).

Cherchant à lisser les points expérimentaux relatifs au taux de relaxation, nous avons réalisé qu'à un niveau de dopage donné, il était toujours possible, avec ou sans t' , de trouver des grandeurs de U et de t qui font en sorte que la courbe T_1^{-1} vs T coïncide avec l'observation. Cela dit, si on fait évoluer par la suite la valeur de x , l'accord qualitatif peut se voir compromis par l'imminence d'une quasi-transition à $T = T_x$. (La figure 19 en témoigne). C'est ce qui nous a amené à proposer des mo-

difications au modèle visant à réduire l'étendue en remplissage de son diagramme de phases. Nous avons d'abord imposé, au moyen du paramètre γ , une limite supérieure à l'augmentation $\tilde{\xi}^2 \equiv \frac{U_c}{\delta U}$ de la susceptibilité pour les systèmes avec $x \neq 0$; il s'agit d'une façon quelque peu simpliste de modéliser l'influence présumée du désordre qui accompagne l'ajout de strontium dans le La_2CuO_4 . L'ajustement de γ permet bel et bien d'obtenir un comportement de T_1^{-1} plus convenable à T petit. Ensuite, motivés par l'existence d'une transition structurale dans les $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, nous avons vérifié si un changement $t \rightarrow t_x \neq t_y$ apporté aux modèles tU et $t'U$ pouvait amincir leurs diagrammes de phases en RPA conventionnelle. Il s'est avéré que l'effet recherché n'apparaissait véritablement qu'en présence d'une forte asymétrie entre les sauts aux premiers voisins ($\frac{\Delta t}{t} \gtrsim 40\%$). Or pour simuler plus correctement la transition d'une cellule-unité tétragonale à orthorhombique dans le composé de lanthane, il faudrait plutôt séparer les termes de saut aux seconds voisins. Comme l'effet serait alors beaucoup plus subtil (si on considère que $|t'| \ll t$), nous n'avons pas jugé utile de pousser plus loin notre analyse de l'orthorhombicité.

Pour donner suite à ce travail, il serait intéressant d'appliquer notre modèle à l'étude des matériaux supraconducteurs $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ qui, nous l'avons mentionné, présentent un état de Néel sur une plage de dopage beaucoup plus large, à savoir $0 \leq x \leq .14$. En quelque sorte, les calculs du taux de relaxation que nous avons effectués, hormis ceux où nous avons tenu compte du désordre, offrent une prédiction plus juste de ce qu'on devrait observer dans ces composés de néodyme. (Pour ces matériaux dopés avec des électrons, les données expérimentales disponibles sur l'évolution de T_1^{-1} en x et en T restent toutefois assez sommaires). Il serait également pertinent de vérifier si, dans la limite du couplage fort $U \gg W$, il est possible de reproduire l'indépendance de T_1^{-1} en dopage observée par Imai *et al.* à $T \gtrsim 700\text{K}$. (Rappelons que ces auteurs soutiennent qu'il s'agit là d'une manifestation de la forte localisation des spins électroniques). Pour pouvoir considérer cette limite, il faudrait ajouter des effets de self-énergie à la méthode ACDP telle que nous l'avons utilisée. Enfin, il serait important d'investiguer d'une manière plus approfondie le phénomène du désordre dans les plans CuO_2 . Nous avons ici abordé cet aspect du problème de façon purement phénoménologique.

Annexe A

Calcul de la densité d'états du modèle orthorhombique

On utilise comme point de départ la relation de dispersion (6.68) issue de la partie libre du hamiltonien $t_x t_y t' U$:

$$\epsilon(\mathbf{k}) = -2t_x \cos k_x - 2t_y \cos k_y - 4t' \cos k_x \cos k_y \quad (\text{A.70})$$

On suppose ici que $t_y \geq t_x$, de sorte que $\Delta t \equiv t_y - t_x \geq 0$. Rappelons que la bande d'énergie est délimitée par $-4 \langle t \rangle - 4t' \leq \epsilon(\mathbf{k}) \leq 4 \langle t \rangle - 4t'$, avec $\langle t \rangle \equiv \frac{1}{2}(t_x + t_y)$. Noter que la démonstration qui suit n'est valable que si $|t'| < \frac{1}{2}t_{x,y}$. La densité d'états est donnée par l'équation

$$N(\epsilon) = \frac{1}{(2\pi)^2} \int_{\text{z.B.}} d\mathbf{k} \delta(\epsilon - \epsilon(\mathbf{k})) = \frac{1}{\pi^2} \int_0^\pi dk_x \int_0^\pi dk_y \delta(\epsilon - \epsilon(\mathbf{k})) \quad (\text{A.71})$$

(La seconde égalité découle de l'invariance de l'énergie (6.68) sous la transformation $k_{x,y} \rightarrow -k_{x,y}$). Le changement de variables $x, y \equiv \cos k_{x,y}$ conduit à

$$N(\epsilon) = \frac{1}{\pi^2} \int_{-1}^1 \frac{dx}{\sqrt{1-x^2}} \int_{-1}^1 \frac{dy}{\sqrt{1-y^2}} \delta(\epsilon - (-2t_x x - 2t_y y - 4t' xy)) \quad (\text{A.72})$$

Le delta de Dirac peut se récrire de la façon suivante:

$$\delta(\epsilon - (-2t_x x - 2t_y y - 4t' xy)) = \frac{\delta\left(y - \left(\frac{-2t_x x - \epsilon}{2t_y + 4t' x}\right)\right)}{2t_y + 4t' x} \quad (\text{A.73})$$

On peut maintenant effectuer l'intégrale sur y dans l'équation (A.72). On obtient sans peine

$$N(\epsilon) = \frac{1}{2\pi^2} \frac{1}{\sqrt{t_x^2 - 4t'^2}} \int_{D(\epsilon)} \frac{dx}{\sqrt{(1+x)(1-x) \left(\frac{2t_y + \epsilon}{2t_x + 4t'} + x\right) \left(\frac{2t_y - \epsilon}{2t_x - 4t'} - x\right)}} \quad (\text{A.74})$$

où le domaine d'intégration $D(\epsilon)$ est défini comme suit:

$$D(\epsilon) \equiv \begin{cases} \left[\frac{-2t_y - \epsilon}{2t_x + 4t'}, 1 \right] & \text{si } -4\langle t \rangle - 4t' \leq \epsilon \leq 4t' - 2\Delta t \\ [-1, 1] & \text{si } 4t' - 2\Delta t \leq \epsilon \leq 4t' + 2\Delta t \\ \left[-1, \frac{2t_y - \epsilon}{2t_x - 4t'} \right] & \text{si } 4t' + 2\Delta t \leq \epsilon \leq 4\langle t \rangle - 4t' \end{cases} \quad (\text{A.75})$$

La solution analytique de (A.74) est possible grâce à l'égalité (Gradshteyn et Ryzhik [46], équation 3.147#5)

$$\int_c^b \frac{dx}{\sqrt{(a-x)(b-x)(x-c)(x-d)}} = \frac{2}{\sqrt{(a-c)(b-d)}} \mathbf{K} \left\{ \sqrt{\frac{(b-c)(a-d)}{(a-c)(b-d)}} \right\} \quad (\text{A.76})$$

$(a > b > c > d)$

où \mathbf{K} désigne l'intégrale elliptique complète de première espèce. Après quelques manipulations, on trouve

$$N(\epsilon) = \begin{cases} \frac{1}{\pi^2} \frac{1}{\sqrt{4\langle t \rangle^2 - (2t' + \frac{\epsilon}{2})^2}} \mathbf{K} \left\{ 2 \sqrt{\frac{t_x t_y - t' \epsilon}{4\langle t \rangle^2 - (2t' + \frac{\epsilon}{2})^2}} \right\} & \text{si } 4t' - 2\Delta t \leq \epsilon \leq 4t' + 2\Delta t \\ \frac{1}{2\pi^2} \frac{1}{\sqrt{t_x t_y - t' \epsilon}} \mathbf{K} \left\{ \frac{1}{2} \sqrt{\frac{4\langle t \rangle^2 - (2t' + \frac{\epsilon}{2})^2}{t_x t_y - t' \epsilon}} \right\} & \text{si } -4\langle t \rangle - 4t' \leq \epsilon \leq 4t' - 2\Delta t \\ & \text{ou } 4t' + 2\Delta t \leq \epsilon \leq 4\langle t \rangle - 4t' \end{cases} \quad (\text{A.77})$$

(Remarquer qu'en posant $t_x = t_y \equiv 1$, on retrouve bien la relation (5.54) pour $N(\epsilon)$ que nous avons énoncée au chapitre 5 (équation (5.54)), alors que les directions x et y étaient jugées équivalentes). Comme la fonction $\mathbf{K}(q)$ diverge à $q = 1$, le modèle orthorhombique est caractérisé par la présence de deux singularités de Van Hove dans sa densité d'états. Elles sont situées à $\epsilon_{V.H.}^{\pm} = 4t' \pm 2\Delta t$.

Bibliographie

- [1] J. Bednorz et K.A. Müller. *Physik B*, 64: 189, 1986.
- [2] G. Baskaran, Z. Zou et P.W. Anderson. *Solid State Comm.*, 63: 973, 1987.
- [3] A. Aharony *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 60: 1330, 1988.
- [4] N. Bulut, D.W. Hone, D.J. Scalapino et N.E. Bickers. *Phys. Rev. B*, 41(4): 1797, 1990.
- [5] N. Bulut, D.Hone. D.J. Scalapino et N.E. Bickers. *Phys. Rev. Lett.*, 64(22): 2723, 1990.
- [6] L. Chen, C. Bourbonnais, T. Li et A.-M.S. Tremblay. *Phys. Rev. Lett.*, 66: 369, 1991.
- [7] Y.M. Vil'k, Liang Chen et A.-M.S. Tremblay. *Phys. Rev. B*, 49(18): 13267, 1994.
- [8] Y.M. Vil'k et A.-M.S. Tremblay. *Europhys. Lett.*, 32(2): 159, 1996.
- [9] R.J. Cava *et al.* *Physica C*, 165: 419, 1990.
- [10] B. Keimer *et al.* *Phys. Rev. B*, 46(14053): 14034, 1992.
- [11] W.E. Pickett. *Rev. Mod. Phys.*, 61: 433, 1989.
- [12] S.-W. Cheong *et al.* *Solid State Commun.*, 65: 111, 1988.
- [13] T. Thio *et al.* *Phys. Rev. B*, 38: 905, 1988.
- [14] K. Tamasaku, Y. Nakamura et S. Uchida. *Phys. Rev. Lett.*, 69: 1455, 1992.
- [15] J.B. Torrance *et al.* *Phys. Rev. B*, 40(13): 8872, 1989.
- [16] M.S. Hybertsen, E.B. Stechel, W.M.C. Foulkes et M. Schluter. *Phys. Rev. B*, 45: 10032, 1992.
- [17] M.S. Hybertsen, E.B. Setchel, M. Schluter et D.R. Jennison. *Phys. Rev. B*, 41: 11068, 1990.
- [18] M.S. Schluter. *Superconductivity and its Applications*. Plenum Press, New York, 1990.
- [19] P. Bénard, Liang Chen et A.-M.S. Tremblay. *Phys. Rev. B*, 47(22): 15217, 1993.
- [20] A.M. Daré. thèse de doctorat, Université de Sherbrooke, 1994.
- [21] P. Bénard. thèse de doctorat, Université de Sherbrooke, 1993.
- [22] G.M. Luke *et al.* *Phys. Rev. B*, 42(13): 7981, 1990.
- [23] F. Mila et T. Rice. *Physica C*, 157: 561, 1989.
- [24] T. Imai, C.P. Slichter, K. Yoshimura et K. Kosuge. *Phys. Rev. Lett.*, 70(7): 1002, 1993.
- [25] T. Moriya. *J. Phys. Soc. Jpn*, 18(4): 516, 1963.
- [26] S. Ohsugi *et al.* *J. Phys. Soc. Jpn*, 63(2): 700, 1994.
- [27] H. Monien, D. Pines et N. Takigawa. *Phys. Rev. B*, 43: 258, 1991.
- [28] T. Imai *et al.* *J. Phys. Soc. Jpn*, 11(11): 3846, 1990.

Bibliographie

- [29] T. Mason *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 71: 919, 1993.
- [30] S.W. Cheong *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 67: 1791, 1991.
- [31] P.C. Hamel *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 63(18): 1992, 1989.
- [32] F. Mila et T.M. Rice. *Phys. Rev. B*, 40(16): 11382, 1989.
- [33] T. Imai *et al.* *Physica B*, 197: 601–608, 1994.
- [34] A.V. Chubukov et S. Sachdev. *Phys. Rev. Lett.*, 71: 169, 1993.
- [35] M.P. Gelfand et R.R.P. Singh. *Phys. Rev. B*, 47: 14413, 1993.
- [36] A. Sokol, E. Gagliano et A. Bacci. *Phys. Rev. B*, 47: 14646, 1993.
- [37] R. Birgeneau *et al.* *Phys. Rev. B*, 38: 6614, 1988.
- [38] A.-M. Daré, Y.M. Vilk et A.-M.S. Tremblay. *Phys. Rev. B*, 53: 14236, 1996.
- [39] D.C. Johnston et S.K. Sinha. *Physica C*, 572: 153, 1988.
- [40] R.E. Walstedt, B.S. Shastry et S.-W. Song. *Phys. Rev. Lett.*, 72(22): 3610, 1994.
- [41] V. Barzykin, D. Pines et D. Thelen. *Phys. Rev. B*, 50: 16052, 1994.
- [42] A.J. Millis, H. Monien et D. Pines. *Phys. Rev. B*, 42(1): 167, 1990.
- [43] M. Hayden *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 67: 3022, 1991.
- [44] K. Ishida, Y. Kitaoka, G. Zheng et K. Asayama. *J. Phys. Soc. Japan*, 60: 3516, 1991.
- [45] S.E. Barrett *et al.* *Phys. Rev. B*, 41(10): 6283, 1990.
- [46] I.S. Gradshteyn et I.M. Ryzhik. *Table of Integrals, Series, and Products*. Academic Press Inc., London, 1980.