

Matériaux à propriétés électroniques non conventionnelles

Cet axe de recherche concerne la synthèse, l'étude de la structure et des propriétés physiques de matériaux cristallisés, essentiellement oxydes. Parmi les propriétés explorées, on citera la supraconductivité, l'apparition de conduction électronique dans des hétérostructures d'isolants, le magnétisme et transport électronique dans des architectures de basse dimensionnalité.

Conduction électronique dans des oxydes cristallins de basse dimensionnalité (contacts : A. Pautrat, O. Pérez)

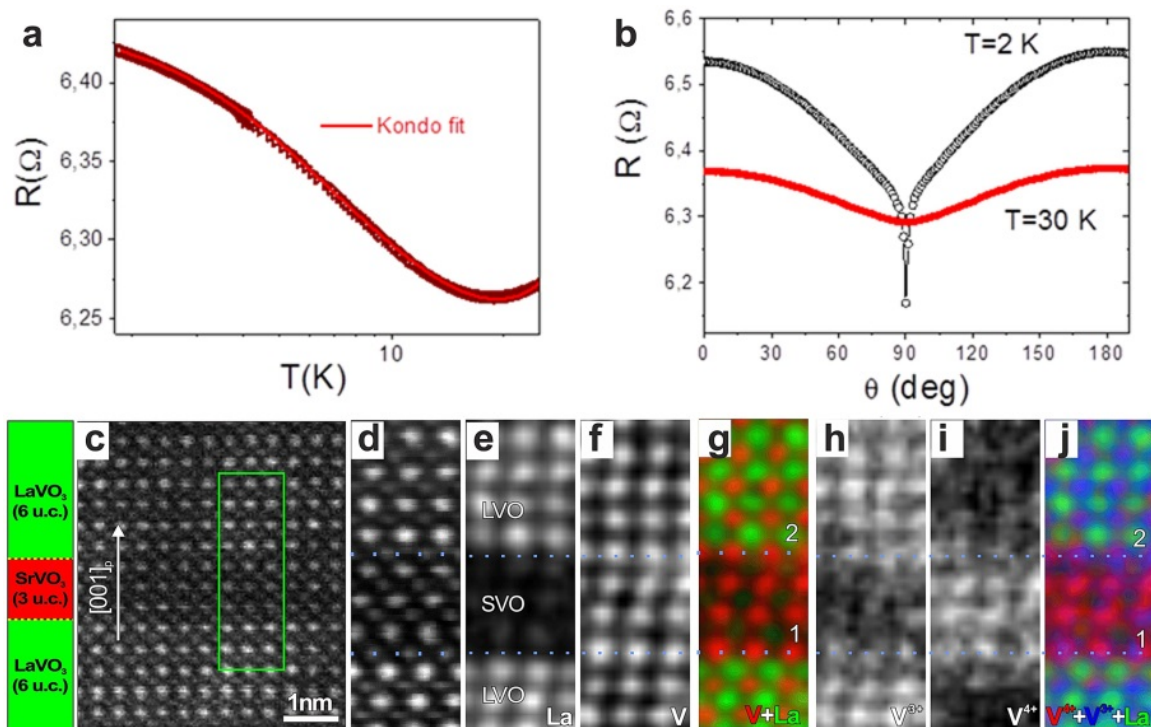
Nous avons étudiés des oxydes monocristallins à basse dimension, susceptibles de présenter des états magnétiques et électroniques non conventionnels. Les systèmes 2D et 1D sont sujets à des instabilités de type onde de densité de charge et/ou supraconducteurs, avec des particularités fondamentales pour les conducteurs 1D. Les hollandites possèdent une structure cristallographique très anisotrope, avec la présence de tunnels qui leur confèrent un caractère quasi-1D, et leur étude nous a donc paru particulièrement intéressante. Parmi les effets remarquables, en séparant les différentes contributions de transport électronique par leur anisotropie spécifique, nous avons démontré que $\text{Ba}_{1.2}\text{Rh}_8\text{O}_{16}$ présente un cross-over dimensionnel effectivement attendu dans les systèmes électroniques quasi-1D, et montre une correction de type Kondo à basse température [PRB 82 (2010) 115113]. KRu_4O_8 semble se comporter comme un bon liquide de Fermi avec une résistivité en T^2 , nous avons montré que cette dépendance venait en fait d'un couplage fort entre les charges et les fluctuations de réseau très anisotrope [EPL 97 (2012) 67003]. L'étude des bronzes phosphates de tungstène $(\text{PO}_2)_4(\text{WO}_3)_{2m}$ a été reprise (ANR ODACE), et couvre la synthèse de monocristaux, la cristallographie et l'étude des propriétés physiques. Dans le contrat en cours, nous nous sommes principalement concentrés sur la sélection des phases et la synthèse de monocristaux en vue d'études approfondies visant à clarifier les diverses transitions observées (onde de densité de charges et/ou de spin, supraconductivité). Ces études s'appuient fortement sur la résolution et la compréhension des structures cristallographiques, complexes, de ces phases [Acta Cryst.B 69 (2013) 122].

Films et hétérostructures d'oxydes (contacts : W. Prellier, U. Lüders, A. David, A. Pautrat, P. Boullay)

Ce sujet, très transversal, s'appuie sur la synthèse de films et hétérostructures d'oxydes par la technique d'ablation laser pulsé. Récemment, l'apparition d'une conduction 2D et de supraconductivité dans des hétérostructures à bases d'isolants ($\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$) a eu un grand impact sur la communauté scientifique [Nature 427 (2004) 423, Science 317 (2007) 1196], même si les mécanismes en jeu sont encore largement débattus. Nous avons travaillé sur des structures à bases de vanadates déposées sur SrTiO_3 , en se focalisant sur plusieurs aspects : avoir des informations structurales les plus fines possibles en couplant différentes techniques; mieux comprendre l'origine de la conduction électronique dans des hétérostructures formées d'isolants; profiter des possibilités de dopage confiné contrôlé en insérant des fines couches de métal corrélé (e.g. SrVO_3) dans un isolant de Mott (e.g. LaVO_3).

Un projet ANR jeune chercheur (U. Lüders, GeCoDo 2011-2014) s'est intéressé aux effets de dopage confiné dans différents isolants de Mott tels que LaVO_3 et LaCrO_3 . Des calculs de la structure de bande de $\text{SrVO}_3/\text{LaVO}_3$ en collaboration avec l'Université d'Augsburg ont confirmé le confinement des charges [EPL 103 (2013) 37003], en accord avec le transport électronique caractéristique d'un système 2D mesuré dans une tri-couche $\text{LaVO}_3/\text{SrVO}_3/\text{LaVO}_3$ [PRB 91 (2015) 035420]. D'autres travaux se sont concentrés sur la

caractérisation de la structure de films LaVO_3 et d'hétérostructures ($\text{SrVO}_3/\text{LaVO}_3$) déposés sur SrTiO_3 . La MET conventionnelle et avancée, réalisée au CRISMAT ou en collaboration (CEMES Toulouse et EMAT Anvers), a permis d'obtenir des informations précieuses sur la structure et la microstructure de ces hétérostructures [PRB 83 (2011) 125403], en démontrant une reconstruction électronique, ainsi que l'apparition de valence mixte sur une distance d'environ 1,2 nm pour des interfaces $\text{SrVO}_3/\text{LaVO}_3$ abruptes à l'échelle atomique [PRB 88 (2013) 155123]. Les conséquences de cette valence mixte pour les propriétés de magnéto-transport ont été étudiées en détail, et un effet Kondo d'une anisotropie remarquable a été démontré. Des études structurales avancées par DRX et PED, se sont également intéressées à la quantification de la rotation des octaèdres VO_6 de la composante LaVO_3 , soit dans des films épais LaVO_3 [PRB 85 (2012) 184101 ; J. Phys. Cond. Mater. 27 (2015) 175001] soit dans des hétérostructures ($\text{SrVO}_3/\text{LaVO}_3$) possédant différentes épaisseurs de SrVO_3 [J. Phys. Chem. Solids 75 (2014) 1354], afin d'identifier leur rôle dans les propriétés observées [APL 98 (2011) 212103]. Nos hétérostructures $\text{LaVO}_3/\text{SrTiO}_3$ se sont révélées conductrices avec des propriétés très proches de $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$, mais nous montrons que l'origine de cette conduction est le dopage de SrTiO_3 par des lacunes d'oxygènes [J. Phys.: Cond Mat 27 (2015) 095603]. Une même approche transversale, couplant synthèse, étude structurale et propriétés magnétiques, a été menée sur $\text{PrVO}_3/\text{SrTiO}_3$, et nous avons montré que PrVO_3 , antiferromagnétique dans sa forme massive, pouvait être rendu ferromagnétique par contrainte du substrat et rotation des octaèdres VO_6 [J. Phys.: Cond Mat 25 (2013) 492201].



a) $R(T)$ pour une hétérostructure ($\text{SrVO}_3/\text{LaVO}_3$)/ SrTiO_3 et ajustement par un modèle Kondo de spin $1/2$. b) Résistance angulaire pour $B=14T$. La MR, négative et très anisotrope à basse température, montre l'anisotropie remarquable de cet effet Kondo qui peut être associé à la reconstruction électronique $v_0^{**}/V^{3+}/V^{4+}$ aux interfaces $\text{SrVO}_3/\text{LaVO}_3$ [article soumis]. c) et d) images STEM-HAADF. e) et f) cartographies STEM-EELS au seuils du La et du V. g) image composite associant la contribution du La (vert) et du V (rouge). h) et i) décomposition du signal EELS au seuil du V en composante V^{3+} et V^{4+} . j) cartographie chimique La (vert) et états de valence V^{3+} (rouge) et V^{4+} (bleu). Coll. EMAT-Anvers [PRB 88 (2013) 155123].

Supraconductivité (contacts : A. Pautrat, P. Bernstein)

Depuis 2010, nous avons focalisé nos études expérimentales sur les réseaux de vortex supraconducteurs avec des techniques particulières de diffusion neutronique (collaboration LLB-Grenoble). Nous avons utilisé pour la première fois la diffraction en temps de vol pour imager le réseau de vortex dans du Nobium. Grâce au gain en résolution inhérent au temps de vol, nous avons pu mesurer la taille finie d'une cristallite de vortex et prouver son absence de lien avec les propriétés d'ancrage [PRB 85 (2012) 184504]. Une nouvelle supraconductivité, dite « 1.5 » a été proposée suite à l'observation de clusters de vortex [PRL 102 (2009) 117001]. Ces états sont générés par une compétition entre interactions attractives et répulsives entre vortex, lorsque ceux-ci sont très éloignés (quelques microns). En utilisant le nouveau spectromètre à très petit angle (TPA) du LLB, nous avons pu mesurer le réseau de vortex jusqu'à des vecteurs de diffusion extrêmement petits $Q=5.10^{-4} \text{ \AA}^{-1}$, permettant de progresser dans la compréhension et l'origine de ces états particuliers [J. Phys. : Cond Mat 26 (2014) 232201].

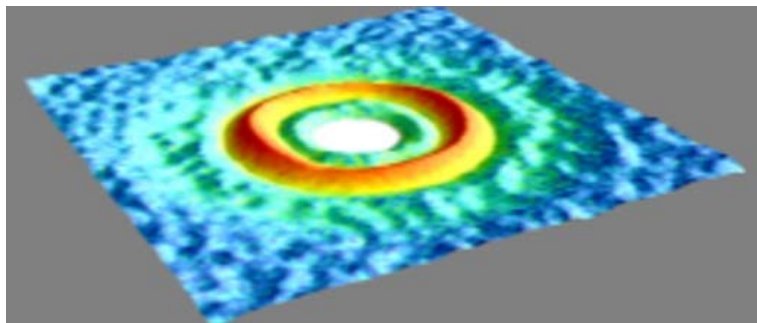


Image de diffusion neutronique par le réseau de vortex à très petits angles ($B=100G$, $T=8K$), dans le cadre d'une coexistence de phase entre le réseau d'Abrikosov et des clusters de vortex en interaction attractives («*featured article*» in J. Phys.: Condens. Matter 26 (2014) 232201).

Concernant la supraconductivité à visée technologique, nos études se sont focalisées sur les rubans supraconducteurs de deuxième génération et les massifs MgB_2 et YBCO. Ces développements ont été faits en coopération étroite avec J. Noudem (équipe E4). Dans le domaine des rubans, les principaux acquis ont été la mise au point d'une méthode simple de détermination de la dépendance en température de leur courant critique par des mesures magnétiques et la mise en évidence du rôle des parois de macles dans la limitation de celui-ci [J. Sup. Nov. Mag. 26 (2013) 545]. Ces travaux ont été menés en collaboration avec diverses équipes (GREYC Caen, INSP Paris, Ecole Polytechnique Montréal et l'Université de Saint Jacques de Compostelle) et se poursuivent aujourd'hui sur des rubans irradiés (Institut RTI Moscou). En ce qui concerne les massifs MgB_2 et YBCO, il s'est agi, d'étudier leurs propriétés d'écrantage du champ magnétique (collaboration avec l'Ecole Polytechnique de Turin et l'INSA de Rouen) [JAP 114 (2013) 233913], de développer des aimants supraconducteurs de petite taille destinés à l'instrumentation scientifique [JAP 116 (2014) 163916] et de développer un système de lévitation magnétique dans le cadre d'un contrat industriel (collaboration avec l'Université de Rio de Janeiro).