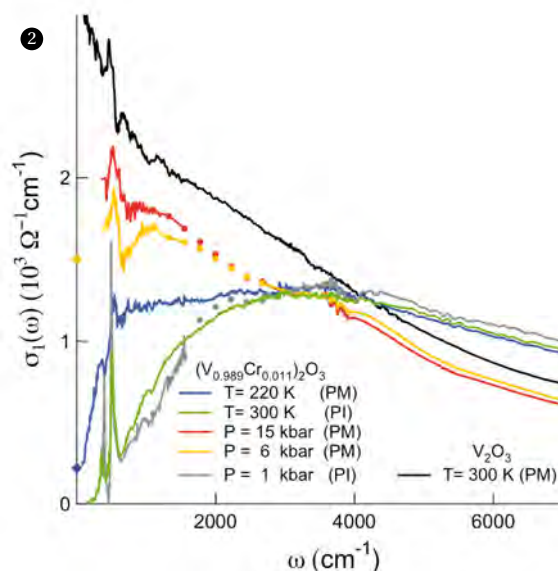
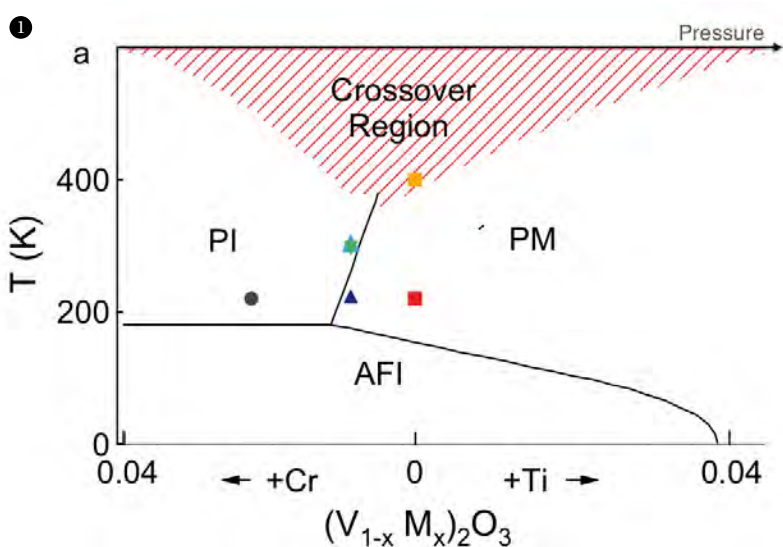


TRANSITION MÉTAL-ISOLANT

La transition de Mott à la lumière du rayonnement synchrotron

La transition de Mott traduit le passage entre l'état isolant d'un système d'électrons corrélés et une phase métallique (voir encadré). Comprendre cette transition métal-isolant est essentiel non seulement du point de vue fondamental mais aussi pour maîtriser les propriétés électroniques des matériaux, avec des implications technologiques majeures dans la recherche de dispositifs plus rapides et plus performants.



La transition de Mott reste mal connue et d'une grande complexité : les matériaux ont un comportement intermédiaire entre métal et isolant, mal décrit par la théorie et difficile à caractériser expérimentalement. Les spectroscopies à l'aide du rayonnement synchrotron les plus avancées peuvent donner des réponses à ces questions ouvertes. Dans le cadre d'une collaboration internationale impliquant l'Université de Rome « La Sapienza » et le Laboratoire de Physique des Solides (LPS) d'Orsay, des chercheurs des lignes GALAXIES, PSICHE et CRISTAL à SOLEIL ont entrepris une étude de la transition métal-isolant dans V_2O_3 dopé au Cr, un matériau modèle des systèmes d'électrons fortement corrélés, par différentes techniques, de l'infrarouge aux rayons X. Ce travail initié dans le cadre d'une thèse SOLEIL/LPS, a abouti dernièrement à des

résultats spectaculaires obtenus par une approche originale combinant sondes électroniques et structurale.

Moins simple qu'il n'y paraît

Le diagramme de phase de V_2O_3 a été établi dans les années 1970 en fonction de la température, du dopage et de la pression (Figure 1). D'après ce diagramme, V_2O_3 est métallique à température ambiante (phase Paramagnétique Métallique PM) et devient isolant à basse température (phase AntiFerromagnétique Isolante, AFI) ou par dopage au Cr (phase Paramagnétique Isolante PI) ; dans ce dernier cas, il est possible de rétablir la phase métallique soit par l'application d'une pression externe (échelle supérieure) à partir d'un échantillon dopé soit en température avec un choix judicieux du dopage (triangles). Nous nous sommes particulièrement attachés à la transition

PM-PI dans le composé dopé V_2O_3 -1.1%Cr. Contrairement à la transition PM-AFI, la transition PM-PI a lieu sans changement de structure et à ce titre est considérée comme une pure manifestation des corrélations électroniques et donc de la transition de Mott. Il est vite apparu cependant que la simplicité apparente du diagramme de phase cachait en réalité une grande complexité physique : le comportement dans la phase PM est celui d'un mauvais métal; la structure de V_2O_3 -1.1%Cr présente un mélange de phases; le dopage induit des distorsions locales de la structure; enfin, le mécanisme de la transition reste mal compris. Une première confirmation de cette complexité est venue des mesures de conductivité optique dans le domaine infrarouge (Figure 2) obtenues à ELETTRA. Si la phase PI montre clairement une bande interdite - c'est la signature même d'un

Figure 1 : Diagramme de phase de V_2O_3 en fonction de la température (échelle gauche), du dopage (bas) et de la pression (haut). Les points de couleur correspondent aux températures et pressions des mesures sur V_2O_3 -1.1%Cr présentées en figure 2.

Figure 2 : Conductivité optique mesurée dans le domaine infrarouge en fonction de la température et de la pression.

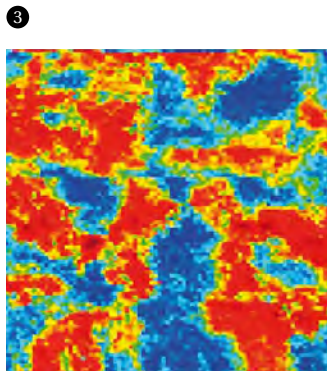


Figure 3 : Coexistence de phases métallique (rouge) et isolante (bleu) observées par spectro-microscopie X. L'image couvre une zone de 50 x 50 μm^2 .

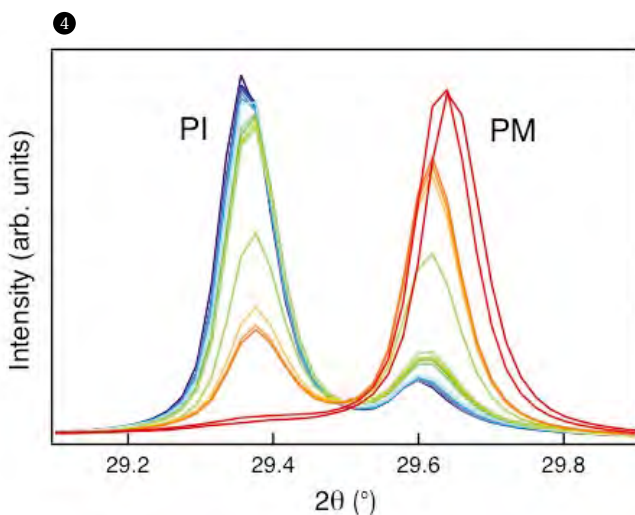


Figure 4 : Transition métal-insolant observée par diffraction des rayons X. A partir de la phase isolante (PI, en bleu), à haute pression seule la phase métallique (PM, en rouge) subsiste.

isolant - (courbe verte), les spectres obtenus dans la phase métallique varient suivant le point considéré dans la région étiquetée « PM » du diagramme de phase : on y trouve un mauvais métal (courbe bleue, $T=220\text{ K}$, $x=1.1\%$), un bon métal (courbe noire, $T=300\text{ K}$, $x=0$) et des situations intermédiaires (courbes jaune et rouge). Nous avons confirmé ces observations par des calculs (approche EMA, effective medium approximation) de la conductivité optique. Les calculs montrent que tous les spectres peuvent être décrits par un mélange entre isolant et métal de différentes concentrations. Ainsi, le spectre « PM » mesuré à 220 K est composé à 45 % de

phase métallique et à 55 % de phase isolante, loin de l'image d'une phase pure !

Des mélanges de phases en image

Il est même possible de visualiser directement ce mélange de phases électroniques par spectro-microscopie X, une technique de spectroscopie consistant à mesurer en chaque point de l'échantillon un spectre de photoémission. Les images réalisées à ELETTRA et traitées ici en fausses couleurs, révèlent clairement une coexistence de phases isolantes et métalliques à l'échelle microscopique lors de la transition métal-insolant induite en température (zones

bleues et rouges, Figure 1). Plus étonnant encore, les mesures montrent que le système garde en mémoire le motif formé par le mélange de phases, même après un cycle complet à travers la transition, sans doute en raison de la présence d'impuretés de Cr qui servent de centres de nucléation.

Le mélange de phases est particulièrement marqué lors de la transition induite en température. En revanche, lors de la transition sous pression, la coexistence de phases observée, indirectement, par diffraction des rayons X (Figure 4) sur la ligne CRISTAL à SOLEIL, disparaît presque totalement à haute pression, laissant place à une phase métallique plus homogène et pure. Ce résultat corrobore les mesures de conductivité optique réalisées sous pression (Figure 2) dont le caractère essentiellement métallique s'affirme à mesure que la pression augmente.

Une combinaison de techniques s'impose

En conclusion, les mesures mettent clairement en évidence un mélange de phases isolante et métallique à l'échelle microscopique dans V_2O_3 , à travers la transition de Mott induite en température, en dopage ou en pression. Le degré de pureté de la phase métallique dépend sensiblement des paramètres externes mais aussi des impuretés présentes dans l'échantillon. Plus généralement, cette étude met en évidence la complexité sous jacente dans le diagramme de phase des matériaux corrélés et la nécessité d'une approche multimodale.

Pour en savoir plus :

Lupi, S. et al., Nature Communications 1, 105 (2010)

→ Contacts :

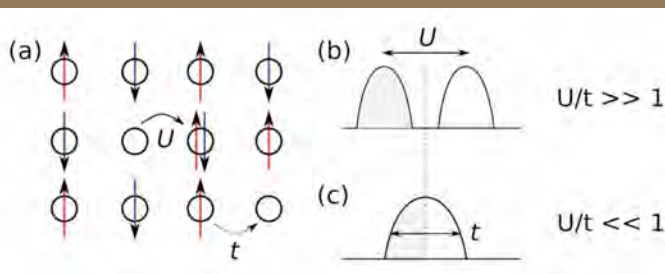
jean.pascal.rueff@synchrotron-soleil.fr
jean-paul.itie@synchrotron-soleil.fr
sylvain.ravy@synchrotron-soleil.fr
stefano.lupi@roma1.infn.it
marino.marsi@u-psud.fr

Références :

• F. Rodolakis, Thèse de l'Université Paris XI (2009) - Direction : J.-P. Rueff & M. Marsi
• F. Rodolakis et al., Phys. Rev. Lett. 102, 066805 (2009), J. Phys. Conf. Series 190, 012092 (2009); Phys. Rev. Lett. 104, 047401 (2010).

La Transition de Mott

À l'instar de Kondo, Anderson ou de Gennes, Mott est une des rares personnalités scientifiques ayant laissé son nom à un effet physique encore largement d'actualité. Le modèle d'isolant de Mott permet d'expliquer pourquoi certains matériaux sont isolants au lieu d'être conducteurs (métalliques) comme on pourrait s'y attendre d'après le remplissage des niveaux électroniques, alors que la transition de Mott s'attache au passage d'un état à l'autre sous l'influence de paramètres externes (dopage, pression, température, etc.) Les deux phénomènes sont intimement liés au modèle de Hubbard qui décrit le comportement d'un électron se déplaçant dans un réseau antiferromagnétique (a). Le déplacement d'un électron (*hopping*) de site en site est possible par l'interaction de saut t , identifiée à la largeur de bande électronique. Dans le cas où un site est doublement occupé, il en coûte une énergie U , d'interaction Coulombienne. C'est le rapport U/t qui détermine la nature du système : si $U/t \ll 1$ - (c), la bande d'électron est semi-remplie (grisée) et les électrons sont libres de se déplacer par excitations dans les états vides (en blanc) :



le système se comporte comme un métal ; si $U/t \gg 1$ - (b) l'interaction U ouvre une bande interdite en énergie que les électrons ne peuvent franchir. Ils sont piégés : le comportement est celui d'un isolant, ici induit par les corrélations.