T0331
1991/DU

THESE

Présentée par

João Carlos MARTINEZ

pour obtenir
le titre de

Docteur de l'Université
Joseph Fourier - Grenoble I
Spécialité Physique

Anisotropie des propriétés supraconductrices du composé $Y_2Ba_4Cu_8O_{16}$

Soutenue le 13 mai 1991
devant la commission d'examen :

MM. M. Renard (président)
C. Chappert
J.J. Préjean
J. Rossat-Mignod
P. Bordet | (invités)
P. Kes |

Thèse préparée au sein du Centre de Recherches sur les Très Basses Températures
- Centre National de la Recherche Scientifique -

Comme tout le monde,
je dédie cette thèse :
aux amis
aux parents
Et en particulier
A Tencha et Candelas

Je Pense ; donc j'existe.
Descartes

Je crois que je pense ; donc je
crois que j'existe
Ambrose Bierce

Une promenade dans un asile
montre que la foi ne prouve rien
Friedrich Nietzsche

Remerciements

Certes, comme le dit le proverbe, qui part de rien et n'arrive à pas grande chose, n'a de merci à dire à personne... Mais quand même !

Cette thèse a été préparée au Centre de Recherches sur les très Basses Températures (CNRS - Grenoble) avec Jean Jacques PREJEAN. Je profite de cette opportunité pour lui exprimer ma reconnaissance pour son amitié et son aide.

Je remercie Monsieur M. Renard d'avoir accepté la présidence du jury de cette thèse. Je remercie aussi MM. P. Bordet, C. Chappert, P. Kes et J. Rossat-Mignod d'avoir accepté de participer au jury de thèse.

Je remercie MM. J. Flouquet et P. Monceau, directeurs successifs du CRTBT pour m'avoir accueilli au sein du laboratoire.

Je tiens à remercier chaleureusement le personnel technique du CRTBT, qui par sa compétence et sa bonne humeur, a rendu fort agréable et productif mon séjour de trois ans à Grenoble.

Le travail que je présente a bénéficié de diverses collaborations dont le rôle a été fondamental au long de ses trois années. Je tiens particulièrement à remercier :

P. Bordet, J.L. Hodeau et H. Renevier du laboratoire de Cristallographie (CNRS-Grenoble) qui ont réalisé et/ou analysé structurellement de façon approfondie les échantillons que nous avons étudié.

L'équipe du Prof. J.P. Renard (Institut d'Electronique Fondamentale - Orsay) qui m'a donné accès à leur magnétomètre SQUID à bas champ.

O. Laborde grace à qui les mesures de résistivité à haut champ, au SNCI, ont pu être réalisées.

I would like to acknowledge Prof.Dr. E. Kaldis that allowed us to work on his samples. On voudrait remercier le Prof. E. Kaldis pour nous avoir permit de travailler sur ses échantillons.

H. Borges et M. Novak pour les conseils dans la réalisation de contacts ohmiques fiables.

L.B. Bulaevski, J. Capponi et J.L. Tholence pour les nombreuses discussions.

P. Haen et J. Odin avec qui j'ai pu réaliser un calibration fine de thermométrie pour la "manip" d'aimantation.

P. Pataud et de B. Waksmann, responsables du service informatique du CRTBT, pour les conseils relatifs à l'automatisation de l'expérience.

Mesdames D. Devillers et P. Poirier pour leur aide efficace et pour leur gentillesse.

Je suis très reconnaissant au CNPq qui a financé la Bourse d'Etudes qui m'a permis de venir à Grenoble.

TABLE DE MATIERES

1. Introduction 1

2. Théorie de Ginzburg-Landau anisotrope 5

2.1. Equations de Ginzburg-Landau 5

2.2. Longueur de Cohérence 7

2.3. Calcul de H_{c2} 8
2.3.1 Modèle de GL anisotrope 8
2.3.2 Modèle de couche mince 10

2.4. Calcul de H_{c1} 12
2.4.1 Modèle de GL anisotrope 12
2.4.2 Modèle de couche mince 17

3. Détermination de H_{c1} pour le composé $Y_2Ba_4Cu_8O_{16}$ 19

3.1. Introduction 19

3.2. Méthodes de détermination de H_{c1} à partir de mesures d'aimantation proposées dans la littérature 22
3.2.1. Mesures de traînage magnétique 22
3.2.2. Mesures de M(T) 24
3.2.3. Mesures de M(H) 25
3.2.4. H_{c1} dans le composé Y:123 26

3.3. Résultats expérimenteaux obtenus pour le composé Y:248 27
Détermination de $H_{c1}(T)$ pour un monocristal de $Y_2Ba_4Cu_8O_{16}$ 29

3.4. Retour critique à nos résultats expérimentaux 33

3.4.1. Le modèle de Bean 33
a) Introduction 33
b) Calcul de B(H) 34
c) Modèle de Bean anisotrope 37

3.4.2. Résultats à partir de cette nouvelle optique 41
a) Influence du choix de χ_1 et d'un décalage d'origine 41
b) Méthode de dépouillement des données 43
c) B(H) à T=10 K : régime H<<H* 44
d) B(H) au dessus de 10 K 48
e) Courants critiques de Bean J_c 50
f) Avec quel modèle expliquer nos résultats 53

4. Détermination de H_{c2} pour le composé $Y_2Ba_4Cu_8O_{16}$ 61

4.1. Difficulté de déterminer H_{c2} à partir de mesures de magneto-résistance 61
4.1.1. Comparaison entre les H-Tc et les supraconducteurs classiques 61
4.1.2. Magnétorésistance : une interpénétration de plusieurs régimes 63

4.2. Détermination de H_{c2} pour H//c à partir de méthodes classiques ... 65
4.2.1. Introduction 61
4.2.2. Détermination classique 65
4.2.3. Magnetorésistance pour H//c 66
a) Les contacts 66
b) Courbes de magnetorésistance pour H//c 67
c) Détermination de la résistivité à l'état normal .. 68

4.2.4. Diagramme de phase $H_{c2}(T)$ et comparaison avec Y:123 72

4.3. Anisotropie de H_{c2} 74
4.3.1. Porte-échantillon tournant 74
4.3.2. La méthode classique 75
4.3.3. La méthode de scaling en fonction de l'angle θ à T fixe 76
4.3.4. Ginzburg-Landau anisotrope ou plans supraconducteurs couplés ? 80

5. Effets des Fluctuations au-dessus de T_{c0} 83

5.1. Fluctuations à champ nul 83
5.1.1. Une façon de déterminer la transition ? 83
5.1.2. Détermination de la température critique T_{c0} 87
5.2. Fluctuations sous champ 91
5.2.1. Résultats théoriques 91
5.2.2. Détermination de H_{c2} pour H//c 92

6. Conclusion 97

7. Références 103

8. Appendices 109
AI Magnétomètre d'extraction 111
AII Correction par le facteur de désaimantation 129
AIII Liste des publications issues de ce travail 133
AIV Publication : "Study of the Magneto-Resistive Transition ..." 135

1 - Introduction

Depuis la fin de 1986, Bednorz et Müller ont surpris le monde avec la découverte de la supraconductivité au dessus de 30 K [1] dans le composé $La_{1-x}Ba_xCuO_4$. Plus tard d'autres composés ont poussé cette limite jusqu'à 125 K en 1988 ($La_{2-x}Sr_xCuO_4$ [2], $YBa_2Cu_3O_7$ [3], Bi-Sr-Ca-Cu-O [4], Tl-Ca-Ba-Cu-O [5] et $Pb_2Sr_2Y_{1-x}Ca_xCu_3O_8$ [6]). Actuellement, un énorme effort est fait pour améliorer la qualité des échantillons, réaliser des expériences de bonne qualité et proposer de nouvelles théories.

Parmi les nombreuses propriétés physiques présentées par ces composés, compétition entre antiferromagnétisme et supraconductivité, force du couplage électron-phonon, etc., l'anisotropie, non seulement de la structure mais aussi de la supraconductivité, éveille l'intérêt de la communauté scientifique. A l'exception des composés $BaPb_{1-x}Bi_xO_3$ [7] (T_c = 12 K pour x=0,25) et $Ba_{0,6}K_{0,4}BiO_3$ [8] (T_c = 30 K) qui présentent une symétrie cubique, tous les autres composés présentent des structures stratifiées composées d'un ou plusieurs plans de CuO_2 séparés par des sous-structures de différentes natures. Il est donc important de corréler de façon claire l'anisotropie structurelle à l'anisotropie des propriétés supraconductrices. Ce genre d'étude ne peut être mené qu'à partir de l'analyse de résultats obtenus sur des monocristaux.

Récemment, quelques groupes, à partir du $YBa_2Cu_3O_7$ (Y:123) ont synthétisé un nouveau composé de formule $Y_2Ba_4Cu_8O_{16}$ (Y:248) qui présente un T_c de l'ordre de 75 K [9-12]. Les principales différences entre les deux structures apparaissent dans la Fig.1.

La distance entre les blocs de plans de CuO_2-Y-CuO_2 est légèrement plus grande pour le composé Y:248 (13.63 Å contre 11.67 Å pour le Y:123). Sur le plan purement structurel, l'anisotropie entre les axes cristallographiques a et b est plus petite.

Les doubles chaînes de CuO provoquent un décalage d'une distance b/2 entre deux blocs CuO_2-Y-CuO_2 voisins (voir pointillés dans Fig.1), ce qui montre qu'une cellule unitaire de Y:248 est composée de deux cellules $YBa_2Cu_4O_8$. Cette structure ne présente **pas de macles** et la **stoechiométrie en Oxygène** est stable jusqu'à 650°C. Cette stabilité dans la stoechiométrie en oxygène est intéressante du point de vue technologique : des composants

faits à partir du système Y:248 peuvent opérer sous vide sans détérioration des propriétés supraconductrices.

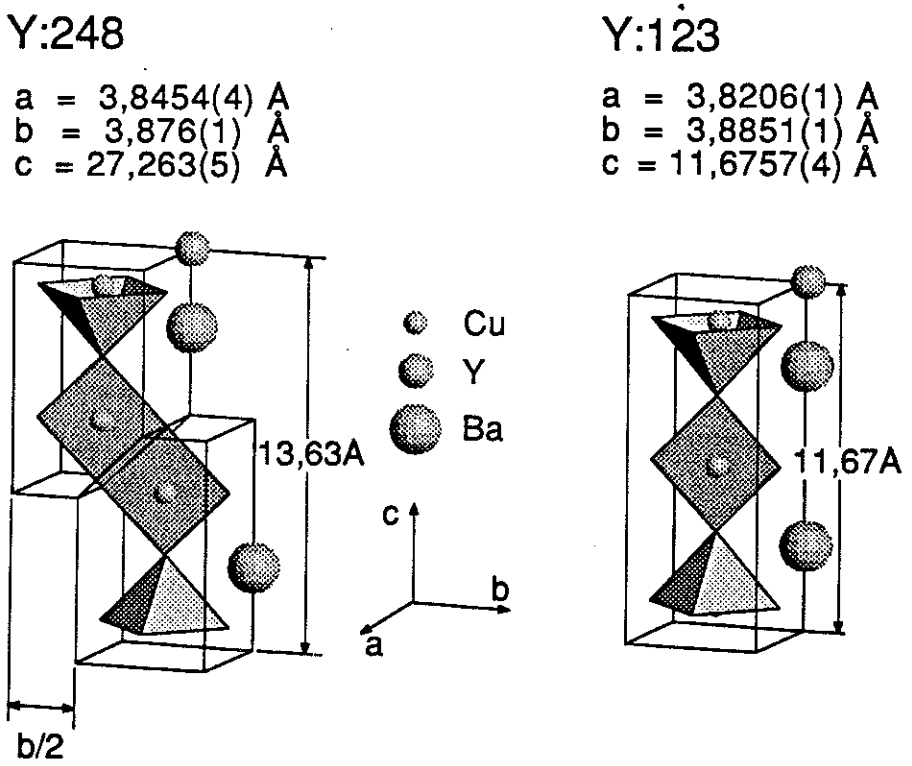


Fig.1a - Comparaison entre les structures des composés Y:248 et Y:123. Par suite du décalage de b/2 entre deux blocs de plans CuO_2-Y-CuO_2 successifs, il faut deux cellules de Y:124 pour récupérer la périodicité du cristal.

Du point de vue de la recherche fondamentale, le composé Y:248 ne présente pas de macles, **les axes cristallographiques a et b sont donc bien définis**. L'étude des propriétés supraconductrices du composé Y:248 devrait permettre de mettre en valeur l'effet des chaînes CuO dans les propriétés supraconductrices des composés de la famille Y-Ba-Cu-O. En particulier, on peut vérifier dans ce composé s'il existe une anisotropie des champs critiques entre l'orientation perpendiculaire (axe a) et parallèle aux chaînes (axe b). Une étude de l'anisotropie entre l'orientation parallèle et perpendiculaire à l'axe c et la comparaison de ces résultats avec ceux du Y:123 peuvent mettre en évidence l'effet de l'augmentation de la distance entre les blocs de plans CuO_2-Y-CuO_2.

Dans ce travail, nous avons étudié l'anisotropie des propriétés supraconductrices d'un monocristal du système $Y_2Ba_4Cu_8O_{16}$. Pour toute

cette étude, nous avons travaillé sur un monocristal synthétisé par J. Karpinski et E. Kaldis à l'ETH-Zürich. Il s'agissait d'un des rares monocristaux de bonne qualité de Y:248 existant sur Grenoble. Ses dimensions étaient convenables pour une étude magnétique détaillée. La bonne qualitée de ce même échantillon a permis précédamment l'étude de la structure du composé Y:248 au laboratoire de Cristallographie du CNRS de Grenoble par le Dr.P. Bordet.

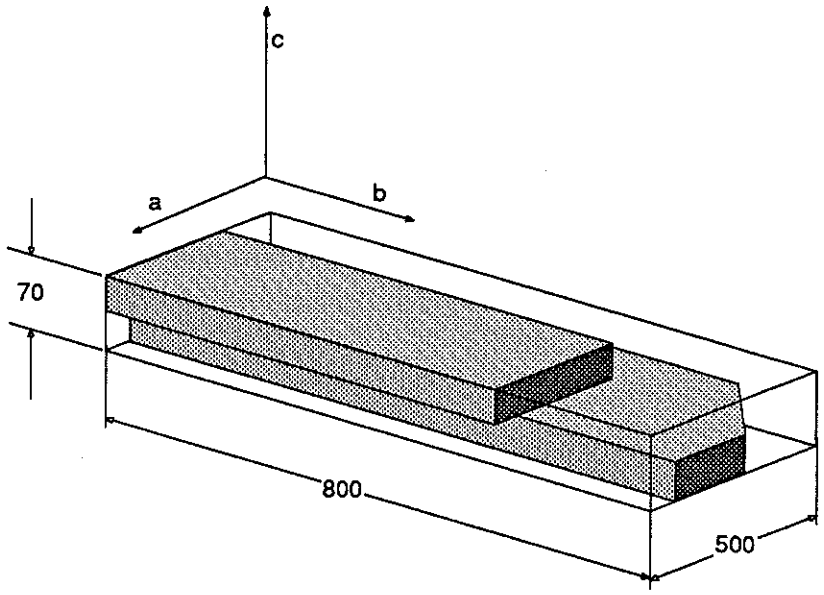


Fig.1b - *O représente la géométrie de l'échantillon. Etant donné la complexité de la forme de l'échantillon on l'associera à un parallépipède dont les dimensions sont représentées sur la Figure. Les unité correspondent à des microns.*

On représente ci-dessus l'échantillon étudié avec les dimensions approximatives en microns. Les deux plaquettes constituent un seul monocristal. Etant donné la complexité de la forme de l'échantillon, on l'assimilera à un parallepipède dont les dimensions sont représentées sur la Figure.

L'étude de l'anisotropie des propriétés supraconductrices consiste à déterminer la dépendance des champs critiques H_{c1} et H_{c2} avec la température et l'orientation du champ magnétique sur un échantillon de faibles dimensions ($0,8\times0,5\times0,070$ mm^3). Comme nous allons le voir par la suite, cette étude est rendue particulièrement difficile à cause des processus de piégeage des vortex par des défauts, ou éventuellement par des

caractéristiques structurelles (piégeage intrinsèque). Selon la température, le piégeage des vortex (ou pinning) écarte plus ou moins l'aimantation ou la résistivité de leur comportement idéal à l'équilibre.

Etant donné les fortes controverses du point de vue des mécanismes microscopiques de la supraconductivité dans les supraconducteurs à haute température critique (H-Tc), nous présentons la théorie phénoménologique de Ginzburg-Landau anisotrope d'où l'on déduit H_{c2} et H_{c1}. Ces résultats, sont comparés avec ceux obtenus à partir d'un modèle de couches supraconductrices couplées par effet Josephson.

H_{c1} correspond au champ à partir duquel on observe la pénétration des vortex à l'intérieur de l'échantillon. H_{c1} a été déterminé à partir d'une étude inspirée par le modèle de Bean pour le champ orienté selon les trois axes cristallographiques. On a apporté un soin particulier aux corrections dues au champ de désaimantation. On a montré aussi qu'il est possible de déduire les courants critiques de Bean (J_c) en limite bas champ à partir des courbes de première aimantation.

H_{c2} est la plus large valeur de champ au-dessous de laquelle la supraconductivité peut nucléer à l'intérieur d'un échantillon massif. A cause des faibles dimensions de l'échantillon et des hautes valeurs de champs critique, H_{c2} a été étudié à partir de mesures de magnétorésistance jusqu'à 20 teslas dans une bobine Bitter au SNCI à Grenoble. Les mesures de magnétorésistance ont permis aussi de déterminer précisément l'anisotropie de H_{c2}.

Cependant, les déterminations traditionnelles de T_c et de la dépendance en température de H_{c2} à partir des mesures résistives présentent quelques problèmes dans les supraconducteurs à haute température, où la contribution des fluctuations supraconductrices au dessus de T_c semble être importante. Nous discuterons donc d'une possible détermination de la transition supraconductrice à partir de l'analyse des fluctuations.

En appendices nous décrivons le montage expérimental que nous avons adapté à l'étude de l'aimantation de Supraconducteurs H-Tc, les problèmes relatifs aux facteurs de désaimantation, et enfin la liste des publications relatives à ce travail.

2 - Théorie de Ginzburg-Landau anisotrope

2.1 Equations de Ginzburg-Landau

Par la suite, nous allons développer les éléments de la théorie phénoménologique de Ginzburg-Landau (GL) qui seront appliqués dans notre étude des propriétés macroscopiques des supraconducteurs anisotropes. Les résultats seront comparés avec ceux obtenus à partir de modèles à deux dimensions : couches minces supraconductrices et multicouches supra-isolant.

Dans la théorie de GL, pour des supraconducteurs isotropes on postule que l'énergie libre f peut s'écrire sous forme d'une expansion en Ψ:

$$f = f_n + \frac{\hbar^2}{2m^*}\left|\left(\frac{1}{i}\vec{\nabla} - \frac{e}{\hbar c}\vec{A}\right)\Psi\right|^2 + \alpha|\Psi|^2 + \frac{\beta}{2}|\Psi|^4 + \frac{\vec{h}^2}{8\pi}$$

Ψ est le paramètre d'ordre qui, dans le cas des supraconducteurs, est une pseudo-fonction d'onde, et m* est la masse effective des quasi-particules.

Dans les composés à forte anisotropie [13], la mobilité des porteurs n'est pas la même selon la direction de propagation de la quasi-particule. Ceci amène à remplacer la grandeur scalaire 1/m* par le tenseur inverse de masse effective: $(1/m^*)_{ij}$. Comme pour les supraconducteurs classiques, on prendra la charge effective comme étant 2e et la masse effective des quasi-particules comme étant m* = 2m où m est la masse effective des porteurs à l'état normal.

Dans ces conditions, on peut écrire l'énergie libre comme étant :

$$f = f_n + \sum_{i,j}\frac{\hbar^2}{4}\left(\frac{1}{m}\right)_{i,j}\left(\frac{1}{i}\nabla_i + \frac{2e}{\hbar c}A_i\right)\Psi\left(\frac{1}{i}\nabla_j - \frac{2e}{\hbar c}A_j\right)\Psi^* + \alpha|\Psi|^2 + \frac{\beta}{2}|\Psi|^4 + \frac{\vec{h}^2}{8\pi} \quad (1)$$

On notera qu'en l'absence de champs et de gradients on a:

$$f_s - f_n = \alpha|\Psi|^2 + \frac{\beta}{2}|\Psi|^4 \ , \quad (2)$$

c'est à dire **la même expression** que celle de l'énergie libre dans le cas isotrope en l'absence de champs et gradients. Donc, si Ψ_∞ correspond au paramètre d'ordre pour lequel f_s-f_n est minimum (Eq.2) et H_c est le champ critique thermodynamique, on retrouve les expressions classiques:

$$|\Psi_\infty|^2 = -\frac{\alpha}{\beta} \quad \text{et} \quad \frac{H_c^2}{8\pi} = \frac{\alpha^2}{2\beta}$$

De la dernière relation ci-dessus, on voit que le **champ critique thermodynamique** d'un échantillon massif est supposé **isotrope, même pour des supraconducteurs anisotropes.**

Pour obtenir les équations d'équilibre nous allons minimiser l'énergie libre par rapport au paramètre d'ordre $\Psi(\vec{r})$, mais aussi par rapport à la distribution de champs $\vec{A}(\vec{r})$. On appliquera la méthode variationnelle standard.

Soit $F(\Psi,\Psi^*,\vec{A})$ l'énergie libre intégrée dans tout le volume de l'échantillon. Dans ce cas, la variation de l'énergie libre δF peut s'écrire:

$$\delta F = \frac{\partial F}{\partial \Psi}\delta\Psi + \frac{\partial F}{\partial \Psi^*}\delta\Psi^* + \frac{\partial F}{\partial \vec{A}}\delta\vec{A},$$

c'est à dire:

$$\delta F = \int_v d\vec{r}\,\delta\Psi^* \left\{ \sum_{i,j} \frac{\hbar^2}{4} \left(\frac{1}{m}\right)_{i,j} \left(\frac{1}{i}\nabla_i - \frac{2e}{\hbar c}A_i\right)\left(\frac{1}{i}\nabla_j + \frac{2e}{\hbar c}A_j\right)\Psi \right.$$
$$\left. + \alpha\Psi + \beta|\Psi|^2\Psi \right\} + \text{Compl. Conj.}$$
$$+ \sum_k \int_v d\vec{r}\,\delta A_k \left\{ \frac{1}{4\pi}\left(\vec{\nabla}\wedge\vec{h}\right)_k + \left[\sum_i \left(\frac{1}{m}\right)_{k,i} e\hbar \left(\Psi^*\frac{\partial\Psi}{\partial x_i} - \Psi\frac{\partial\Psi^*}{\partial x_i}\right) \right.\right.$$
$$\left.\left. -\left(\frac{1}{m}\right)_{k,i}\frac{2e^2}{c^2}\Psi^*\Psi A_i \right] \right\}$$

Trouver les valeurs de Ψ et $\vec{A}$ qui minimisent F correspond à trouver celles pour lesquelles $\delta F = 0$. Si les intégrants correspondant respectivement à $\delta\Psi$, $\delta\Psi^*$ et $\delta\vec{A}$ sont nuls, cette condition est automatiquement obtenue. Nous pouvons donc écrire les équations de Ginzburg-Landau pour un supraconducteur anisotrope. Les termes en $\delta\Psi$ et $\delta\Psi^*$ donnent l'équation pour le paramètre d'ordre Ψ:

$$\sum_{i,j} \frac{\hbar^2}{4}\left(\frac{1}{m}\right)_{i,j}\left(\frac{1}{i}\nabla_i - \frac{2e}{\hbar c}A_i\right)\left(\frac{1}{i}\nabla_j + \frac{2e}{\hbar c}A_j\right)\Psi + \alpha\Psi + \beta|\Psi|^2\Psi = 0 \quad (3)$$

Du terme en $\delta\vec{A}$ (équation **4**) on obtient la densité de courants supraconducteurs. En effet, à partir d'une des équations de Maxwell de l'électromagnétisme dans le cas statique ($\vec{j} = c/4\pi\ \nabla\wedge\vec{h}$) on obtient:

$$j_k = \sum_i \left(\frac{1}{m}\right)_{k,i} \frac{e\hbar}{i}\left(\Psi^*\frac{\partial\Psi}{\partial x_i} - \Psi\frac{\partial\Psi^*}{\partial x_i}\right) - \left(\frac{1}{m}\right)_{k,i}\frac{2e^2}{c}\Psi^*\Psi A_i \qquad (4)$$

2.2 Longueur de Cohérence

Pour une question de simplicité et en tenant compte de la symétrie des supraconducteurs à H-Tc, souvent tétragonale ou orthorhombique, nous pouvons écrire $(1/m)_{i,j}$ comme étant une matrice diagonale.

$$\left(\frac{1}{m}\right) = \begin{pmatrix} \frac{1}{m_x} & 0 & 0 \\ 0 & \frac{1}{m_y} & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{m_z} \end{pmatrix}$$

x,y et z correspondent aux axes cristallographiques a,b et c. Dans ce cas, on peut reécrire (**3**) d'une façon beaucoup plus accessible:

$$\sum_i \frac{\hbar^2}{4m_i}\left(\frac{1}{i}\nabla_i - \frac{2e}{\hbar c}A_i\right)^2\Psi + \alpha\Psi + \beta|\Psi|^2\Psi = 0 \qquad (5)$$

L'indice i dans l'Eq.**5** indique les trois directions x,y et z.

Dans un premier temps, on va considérer le cas $\vec{A} = \vec{0}$ et on écrit, comme dans le cas isotrope, l'Eq.**5** en terme de variables réduites:

$$\Psi = \Psi_\infty f \qquad (6)$$

$$\xi_i^2(T) = \frac{\hbar^2}{4m_i|\alpha(T)|} \qquad (7)$$

L'Eq.**5** devient :

$$\sum_i -\xi_i^2 \frac{d^2 f}{dx_i^2} - f + f^3 = 0$$

ξ_i a la dimension d'une longueur et correspond à l'unité de longueur de variation de f au long de l'axe x_i. L'anisotropie des longuers de cohérence est donnée par :

$$\frac{\xi_i}{\xi_j} = \sqrt{\frac{m_j}{m_i}}$$

2.3 Calcul de H_{c2}

2.3.1 Modèle de GL anisotrope

Le calcul de H_{c2} implique la solution des équations de Ginzburg-Landau, travail qui est loin d'être trivial. Cependant, si le champ appliqué est suffisamment grand pour rendre Ψ beaucoup plus petit que Ψ_∞, on peut linéariser l'équation de GL en oubliant le terme en β. Dans ce cas, l'équation linéarisée se réduit à:

$$\sum_i \frac{\hbar^2}{4m_i}\left(\frac{1}{i}\nabla_i - \frac{2e}{\hbar c}A_i\right)^2 \Psi = |\alpha|\,\Psi \qquad (8)$$

L'expression **8** correspond à l'équation de Schrödinger d'une particule libre de masse 2m dans un champ magnétique de potentiel vecteur $\vec{A}$.

$$\vec{A} = \begin{pmatrix} 0 \\ x\,H\sin\theta \\ -x\,H\cos\theta \end{pmatrix}$$

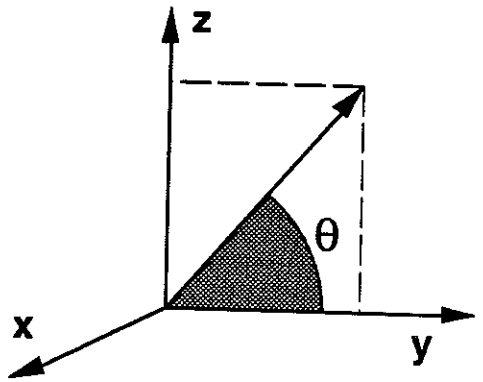


Fig.2:- *Potentiel vecteur correspondant à un champ H uniforme faisant un angle θ avec l'axe y.*

Pour résoudre l'équation de GL linéarisée, on va choisir un champ uniforme $\vec{H}$ dans le plan (yz) faisant un angle θ avec l'axe y.
Si on tourne H dans le plan cristallographique (bc), on remplacera x par a, y par b et z par c. Si on tourne H dans le plan (ac), on remplacera x par b, y par a et z par c, et si H tourne dans le plan (ab) on remplacera x par c, y par a et z par b. Cette hypothèse est d'autant plus vraie qu'on se trouve proche de H_{c2} où les courants d'écrantage sont moins importants. On choisira le potentiel vecteur représenté dans la Fig.2.

En utilisant la notation $\partial/\partial x = \partial_x$, $d/dx = d_x$. et $\phi_0 = \frac{hc}{2e}$ on peut écrire l'équation 8 sous la forme :

$$\frac{-\hbar^2\partial_x^2\Psi}{4m_x} - \frac{\hbar^2\partial_y^2\Psi}{4m_y} - \frac{\hbar^2\partial_z^2\Psi}{4m_z} - \frac{\pi i H \hbar^2 x}{\phi_0}\left(\frac{\sin\theta}{m_y}\partial_y\Psi \frac{\cos\theta}{m_z}\partial_z\Psi\right) + \left(\frac{\pi H \hbar x}{\phi_0}\right)^2\left(\frac{\cos^2\theta}{m_y} + \frac{\sin^2\theta}{m_z}\right)\Psi = |\alpha|\,\Psi$$

Comme le potentiel vecteur ne dépend que de x on peut facilement effectuer la séparation de variables en posant:

$$\Psi = e^{ik_y y}\, e^{ik_z z}\, f(x)$$

On peut donc, en réarrangeant les termes obtenir une équation différentielle pour f(x).

$$-\frac{\hbar^2 d_x^2 f}{4m_x} + A(H)\,(x-x_0)^2 f = [|\alpha| - C(k_y;k_z)]\, f \qquad (9)$$

L'Eq.**9** a la même forme que l'équation de mouvement d'un oscillateur quantique à une dimension. On peut identifier la masse μ a $2m_x$ et le pré-facteur du terme quadratique $\mu\omega^2$ à A(H). La position d'équilibre correspond à x_0.

$$A(H) = \left(\frac{2\pi H\hbar}{\phi_0}\right)^2\left(\frac{\cos^2\theta}{4m_y} + \frac{\sin^2\theta}{4m_z}\right)$$

$$x_0 = \frac{\phi_0}{2\pi H}\left(\frac{k_y \sin\theta}{m_y} + \frac{k_z \cos\theta}{m_z}\right)\left(\frac{k_y \cos^2\theta}{m_y} + \frac{k_z \sin^2\theta}{m_z}\right)^{-1}$$

$$C(k_y;k_z) = \frac{\hbar^2 k_y^2}{4m_y} + \frac{\hbar^2 k_z^2}{4m_z} - \hbar^2 \left(\frac{k_y \sin\theta}{m_y} + \frac{k_z \cos\theta}{m_z}\right)^2 \left(\frac{k_y \cos^2\theta}{m_y} + \frac{k_z \sin^2\theta}{m_z}\right)^{-1}$$

En tenant compte du spectre d'énergie de l'oscillateur harmonique et en substituant les masses effectives par les longueurs de cohérence (relation 7), on obtient:

$$H = \frac{\phi_0}{2\pi\xi_x\xi_y} \frac{\varepsilon_{z,y}}{\sqrt{\cos^2\theta + \varepsilon_{z,y}^2 \sin^2\theta}} \frac{1}{\left(n+\frac{1}{2}\right)} \frac{|\alpha| - C(k_y;k_z)}{2|\alpha|}$$

où $\varepsilon_{z,y}=\sqrt{m_z/m_y}$.

H_{c2}, par définition, est donné par le maximum de champ magnétique sous lequel la supraconductivité peut nucléer dans un échantillon massif [14a]. La plus haute valeur de H pour laquelle on pourra trouver une solution $\Psi\neq 0$ pour l'Eq.9 correspondra à n=0 et $C(k_y;k_z)=0$.

$$H_{c2,(z,y)}(\theta) = \frac{\phi_0}{2\pi\xi_x\xi_y} \frac{\varepsilon_{z,y}}{\sqrt{\cos^2\theta + \varepsilon_{z,y}^2 \sin^2\theta}} \qquad \textbf{(10)}$$

2.3.2 Modèle de couche mince

On peut maintenant comparer cette expression avec la dépendance angulaire de H_{c2} pour un film mince où l'épaisseur $L<<\xi$ [13]. Dans ce cas, le champ critique est donné par l'expression **11**.

$$H_{c2}(\theta) = \frac{\phi_0}{2\pi\xi^2} \frac{\varepsilon}{\sqrt{\left(\frac{\varepsilon}{2}\right)^2 \sin^2\theta + \cos^2\theta + \frac{\varepsilon}{2}\sin\theta}} \qquad \textbf{(11)}$$

où $\varepsilon = H_{c2,//}/H_{c2,z} = 2\sqrt{6}\xi(T)/L$ avec $H_{c2,//}=\sqrt{6}\Phi_0/\pi\xi L$

L'expression 10 rend compte de l'anisotropie due au spectre électronique et correspond au cas de supraconducteurs tridimensionnels (3D) anisotropes. Par contre, dans l'Eq.11, l'anisotropie est dictée par la géométrie: cette expression correspond au cas bidimensionnel (2D).

Dans les deux expressions de H_{c2} ci-dessus, la dépendance en température est dictée par les dépendances en température des longueurs de cohérence ξ. D'autre part, $\xi(T)$ est elle-même reliée à $\alpha(T)$ par la relation **7**. On remarque immédiatemment que le rapport d'anisotropie ε croît comme $1/\sqrt{\alpha(T)}$ pour l'expression 2D (Eq.11) et est indépendant de T dans le cas 3D (Eq.10). Pour mieux saisir la différence qualitative entre les équations **10** et **11** on représente dans la fig.3 $H_{c2,z}$, i.e. $\theta = \pi/2$ et $H_{c2,//}$, i.e.$\theta = 0$, pour les deux dimensionalités (2D et 3D) près de T_c. On a prit l'approximation empirique proche de la transition : $\alpha(T) = \alpha'(1-T/T_c)$, ε=5 à 0 K et la direction parallèle (//) correspond à H dans le plan (a,b). On aura donc un comportement en $\sqrt{1-T/T_c}$ pour le cas 2D et en $1-T/T_c$ pour le cas 3D. On suppose aussi qu'il n'y a pas d'anisotropie dans le plan (xy).

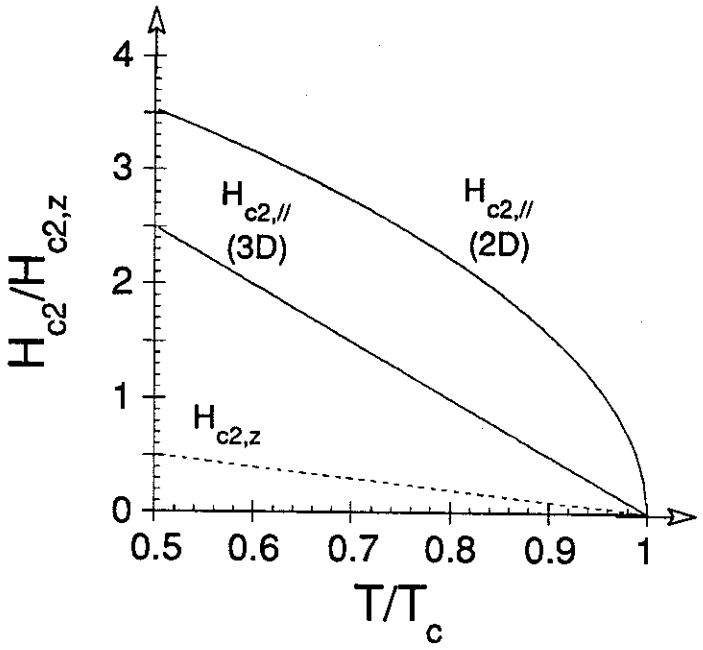


Fig.3 - Dépendance en température de H_{c2} pour les orientations parallèle (plan (xy)) et perpendiculaire (axe z)

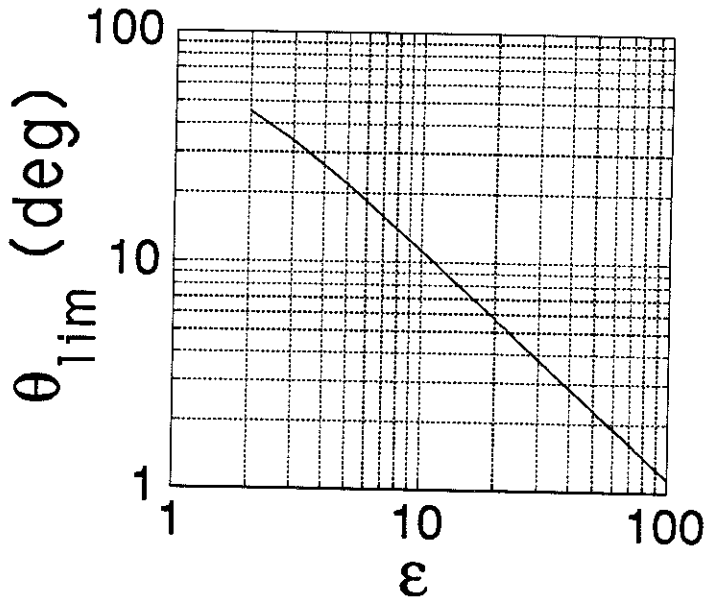


*Fig.4 - θ_{lim} corresponda à l'angle au dessus duquel on ne peut plus distinguer entre les comportements de H_{c2} décrits par **10,11** et par $1/\sin\theta$.*

En comparant **10** et **11**, on voit que si $\theta >> \theta_{lim}$, où $\theta_{lim} = \text{arctg}(2/\varepsilon)$, il est impossible de distinguer les deux expressions: on obtient dans les deux cas $H_{c2}(\theta) = H_{c2,z}/\sin\theta$. Dans la Fig.4, on représente θ_{lim} en fonction de ε.

On remarque d'après la Fig.4 que, pour les supraconducteurs avec une anisotropie ε entre 3 et 10 ($YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$), on devra étudier la dépendance angulaire de H_{c2} pour des angles au dessous de 30°. Pour des composés avec des anisotropies au-dessus de $\varepsilon = 30$ (composés au Bi), il faut une étude d'anisotropie pour des angles au-dessous de 4°.

2.4 Calcul de H_{c1}

2.4.1 Modèle de GL anisotrope

Au premier champ critique H_{c1}, la transition vers l'état mixte a lieu avec l'entrée des premiers vortex. Pour des champs proches de H_{c1}, la séparation entre les vortex est beaucoup plus grande que la longueur de pénétration λ, de sorte que l'énergie d'interaction entre les vortex peut être négligée [14b].

Etant donné que la plupart des expériences se font à pression et champ constants, il est nécessaire de calculer H_{c1} à partir de l'énergie libre de Gibbs [14b]. A la transition, l'énergie de Gibbs à l'état Meissner (M) doit être égale à l'énergie de Gibbs à l'état mixte (mix):

$$G_M = G_{mix} \qquad (12)$$

Les énergies libres de Gibbs et de Helmoltz (F) sont liées par:

$$G = F - \frac{H}{4\pi}\int_V h\, d\vec{r} \qquad (13)$$

En tenant compte de **12**, on obtient la relation entre les énergies de Helmoltz en supposant que λ est beaucoup plus petit que les dimensions de l'échantillon:

$$F_M = F_{mix} - \frac{H_{c1}}{4\pi}\int_V h\, d\vec{r} \qquad (14)$$

Pour des vortex non interagissants et alignés le long du champ, on peut écrire l'énergie libre de Helmoltz à l'état mixte comme étant $F_{mix}=F_M+nLE_1$, où n est la densité de vortex, L la longueur moyenne des vortex et E_1 leur énergie par unité de longueur. En substituant F_{mix} dans **14** on obtient donc:

$$H_{c1}=\frac{4\pi}{\phi_0} E_1 \qquad (15)$$

Dans le cas général, il faudrait calculer la distribution de courants et le paramètre d'ordre à partir des Eq.**3** et **4**, et après calculer f pour 1 vortex à partir de **1**. Ces équations ne présentent pas de solution analytique dans le cas général.

Par contre, pour les supraconducteurs à H-Tc à proximité de H_{c1}, on se trouve dans la situation où $\lambda >> \xi$. Dans ces conditions, on peut calculer E_1 de façon analytique [13].

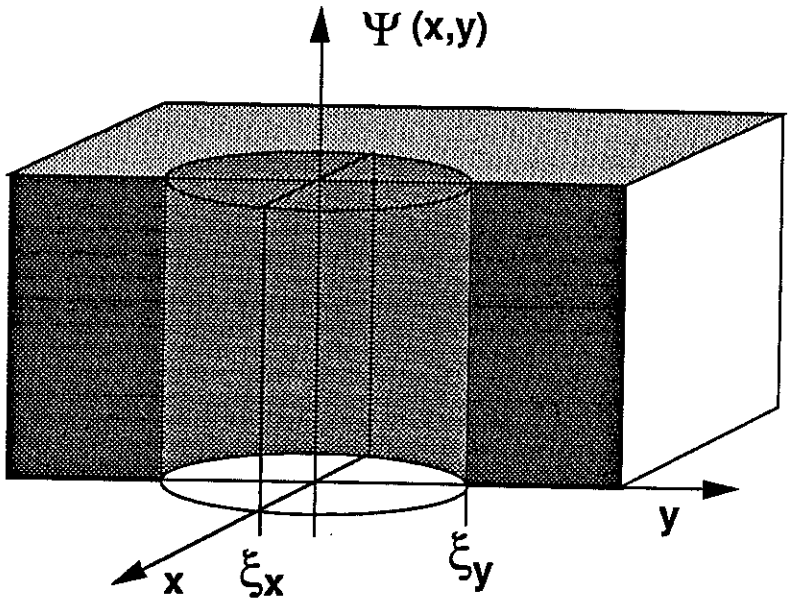


Fig.5 - Dans la limite $\xi << \lambda$, on peut considérer que $\Psi(x,y)$ est constant à l'extérieur du coeur du vortex et vaut zéro à l'intérieur.

Par analogie au cas isotrope, pour calculer H_{c1}, on va se placer dans la limite de London où $|\Psi|$ est constant dans tout l'espace et s'annule dans le coeur du vortex qui correspond aux demi-axes de longueur ξ_x et ξ_y (Fig.5).

Dans ces conditions, on peut écrire l'équation de London à partir de l'Eq.4 pour le cas anisotrope. Comme dans la section 2.2, on choisira le tenseur de masse effective comme étant diagonal et différent selon les trois axes.

$$-\sum_i \lambda_i^2 \nabla_i^2 \vec{h} + \vec{h} = \vec{0}\,; \quad \lambda_i^2 = \frac{m_i c^2}{4\pi |\psi|^2 e^2} \qquad (16)$$

En comparant l'expression ci-dessus avec le rapport des longueurs de cohérence on obtient :

$$\frac{\lambda_i}{\lambda_j} = \frac{\xi_j}{\xi_i} = \sqrt{\frac{m_i}{m_j}}$$

Pour introduire un vortex le long de l'axe z, il suffit d'additionner du coté droit de **16** une fonction delta à deux dimensions, en tenant compte qu'il faut qu'un quantum de flux Φ_0 traverse le vortex.

$$-\sum_i \lambda_i^2 \nabla_i^2 \vec{h} + \vec{h} = \phi_0 \hat{z}\, \delta(x)\delta(y) \qquad (17)$$

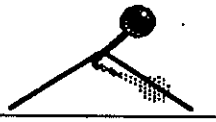
$\hat{z}$ correspond à un vecteur unitaire au long de l'axe z. D'autre part, étant donné la symétrie du problème, on peut aussi supposer que $\vec{h}$ est orienté au long de l'axe z. Dans ce cas, **17** se réduit à:

$$\lambda_x\lambda_y\left(\frac{\lambda_x}{\lambda_y}\partial_x^2 h(x,y) + \frac{\lambda_y}{\lambda_x}\partial_y^2 h(x,y)\right) + h = \phi_0\, \delta(x)\delta(y) \qquad (18)$$

On peut alors faire un changement de variables [Bulaevski] de façon à récupérer l'Equation de London pour le cas isotrope.

$$\lambda_x\lambda_y\left(\partial_{x'}^2 h(x',y') + \partial_{y'}^2 h(x',y')\right) + h = \phi_0\, \delta(x')\delta(y')$$
$$\text{où} \quad x' = \sqrt{\frac{\lambda_y}{\lambda_x}}\, x \quad \text{et} \quad y' = \sqrt{\frac{\lambda_x}{\lambda_y}}\, y \qquad (19)$$

On notera que l'élément de surface dxdy = dx'dy'. L'équation **19** correspond exactement à l'équation du cas isotrope où on a seulement substitué λ^2 par le produit $\lambda_x\lambda_y$. On peut donc écrire directement h_z dans le système de coordonnées (x',y'). L'indice z sert à indiquer la direction du champ.



$$h_z(r') = \frac{\phi_0}{2\pi\lambda_x\lambda_y} K_0\left(\frac{r'}{\sqrt{\lambda_x\lambda_y}}\right) \qquad (20)$$

$$\text{où} \quad r' = \sqrt{\left(\lambda_y/\lambda_x\right) x^2 + \left(\lambda_x/\lambda_y\right) y^2}$$

K_0 correspond à la fonction de Hankel d'ordre zéro.

Maintenant que l'on connait $h_z(r')$, on peut calculer E_1 à partir de l'expression de l'énergie libre (Eq.1). Etant donné la symétrie du problème on peut calculer directement l'énergie par unité de longueur E_1

en intégrant $f-f_n$ dans le plan (x,y). Si on utilise le même système de coordonnées qu'on a utilisé dans **20** :

$$E_1 = \frac{1}{8\pi} \iint dx'dy' \left(h^2 + \lambda_x \lambda_y \left| \vec{\nabla}' \wedge \vec{h} \right|^2 \right) \qquad \textbf{(21)}$$

Si on substitue $\lambda_x\lambda_y$ par λ^2, cette expression aussi devient complètement analogue au cas isotrope. L'intégrale ci dessus est faite dans tout le plan (x,y) en excluant le coeur du vortex. Il faut donc trouver une relation entre les limites d'intégration dans (x,y) et (x',y').

Physiquement, notre changement de coordonnés correspond à faire une transformation d'échelle de façon à récupérer la symétrie cylindrique qu'on a perdue quand on a introduit des masses effectives différentes selon les directions. Une telle transformation doit obligatoirement conserver le volume du coeur du vortex qui sera $V_{Coeur} = L\,\pi\,\xi_x\xi_y$ dans le référentiel (x,y) et $V_{Coeur} = L\,\pi\,\xi^2$ dans le référentiel (x',y') (voir Fig.6). L est la longueur du vortex. On peut donc écrire la relation:

$$\xi = \sqrt{\xi_x \xi_y}$$

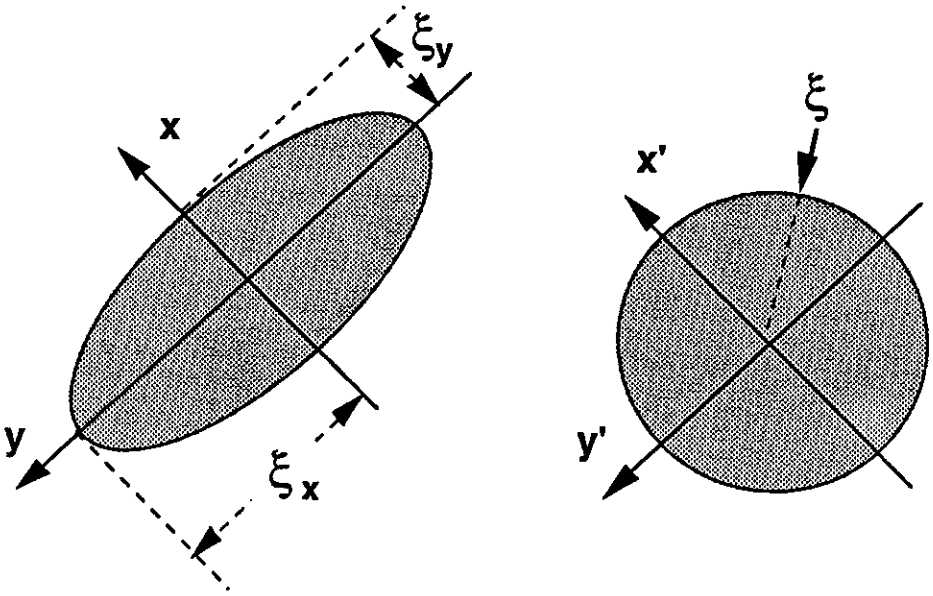


Fig.6 - Quand on fait le changement de variables de (x,y) en (x',y') il faut que le volume du coeur du vortex soit conservé.

Pour avoir le premier champ critique H_{c1} pour le champ appliqué au long de z, il suffit de reprendre les expressions classique des supraconducteurs isotropes et substituer λ^2 par $\lambda_x\lambda_y$ et ξ^2 par $\xi_x\xi_y$. On peut donc écrire:

$$H_{c1,z} = \frac{\phi_0}{4\pi\,\lambda_x\lambda_y} \ln \sqrt{\frac{\lambda_x\lambda_y}{\xi_x\xi_y}} \qquad (22)$$

2.4.2 Comparaison avec un modèle de multicouches

Pour les supraconducteurs H-Tc, on peut aussi imaginer un modèle de couches supraconductrices (correspondant aux plans ou blocs de plans CuO_2) couplées par des jonctions Josephson (modèle de Lawrence & Doniach).

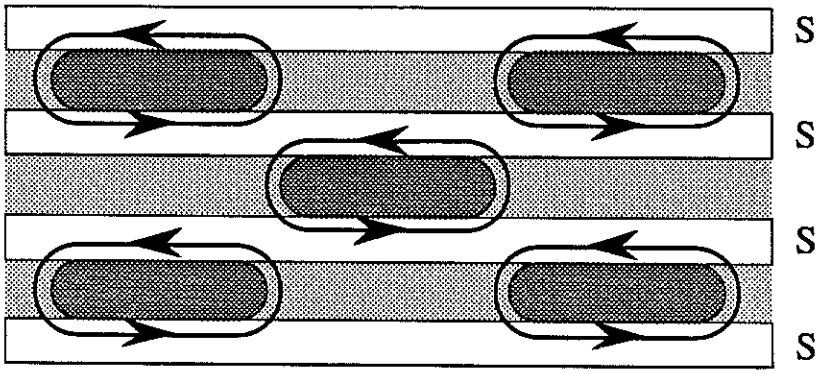


Fig.7 - Pour un système de plans supraconducturs couplés les vortex vont se placer là où le paramètre d'ordre est plus petit: c.à.d. entre les plans .

Plaçons-nous dans le régime dit de Josephson où les plans sont découplés ($\xi_z << d$ où d est la distance entre les plans) [13].

Pour $H_{c1,z}$ on s'attend à avoir le même comportement que celui du modèle de GL anisotrope (Eq.22).

Pour $H_{c1,//}$ parallèle aux plans, la structure des vortex serait légèrement différente. Les vortex dont l'axe est orienté parallèle aux plans préfèrent placer leur coeur là où le paramètre d'ordre est plus faible

(entre les plans) comme on peut le voir dans la Fig.23. Dans ces conditions, nous pouvons écrire :

$$H_{c1,z} = \frac{\Phi_0}{4\pi\lambda_{//}^2} \ln\left(\frac{\lambda_{//}}{\xi_{//}}\right)$$

$$H_{c1,//} = \frac{\Phi_0}{4\pi\lambda_z\lambda_{//}} \ln\left(\frac{\lambda_{//}}{d}\right) \qquad (23)$$

La seule différence avec le modèle de GL anisotrope réside donc dans $H_{c1,//}$, et encore pour celui-ci uniquement dans le terme logarithmique. Nous montrerons dans la partie expérimentale de ce travail la difficulté de choisir entre ces deux descriptions à partir de nos données.

3 Détermination de H_{c1} pour le composé $Y_2Ba_4Cu_8O_{16}$

3.1 Introduction

Comme nous l'avons vu au chapitre précédent (section 2.3), H_{c1} correspond au champ à partir duquel on observe l'entrée des premiers vortex à l'intérieur de l'échantillon. Pour un échantillon idéal sans pinning, on s'attend à trouver une discontinuité de dB/dH à H_{c1} (alors que B est continu à H_{c1}). Ceci vient du fait que, dès qu'on dépasse H_{c1}, une grande quantité de vortex peut se former au même moment. Ce processus ne s'arrêtera que lorsque la distance entre premiers voisins sera assez petite (inférieure à λ) pour que les forces de répulsion entre les vortex entrent en jeu. Pour un échantillon avec fort pinning, les vortex vont pénétrer plus difficilement à l'intérieur de l'échantillon, de sorte que la dérivée dB/dH sera presque continue. Il n'y aura donc plus une signature évidente de H_{c1} (voir Fig.7).

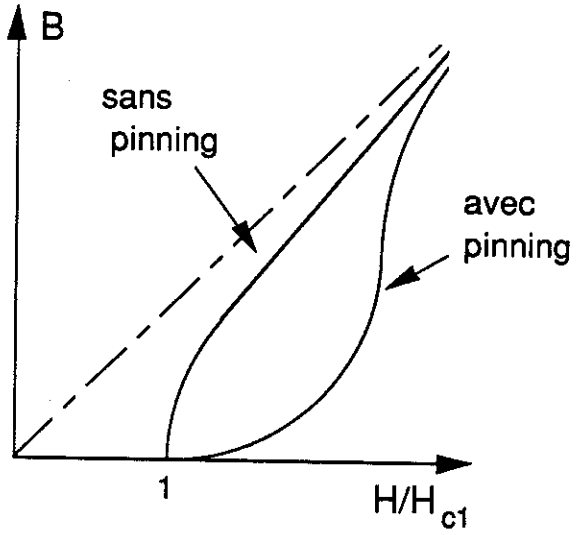


Fig.7 *Différence entre un échantillon idéal (sans pinning) et le cas où le pinning est assez fort pour masquer la transition H_{c1}.*

Un autre point va rendre difficile la détermination de H_{c1}, c'est le champ de désaimantation. Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, le calcul de H_{c1} est fait pour un échantillon idéal, i.e. infini. Or les échantillons sont par définition finis. Les conditions de contour à la surface

font que le champ réel vu par l'échantillon H_i n'est pas le même que celui qu'on applique avec une source externe H_a.

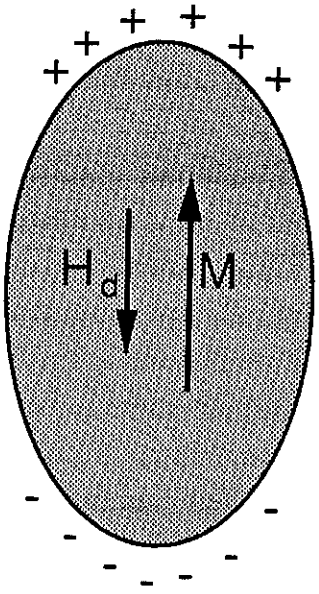


Fig.8 *Champ démagnétisant dû à l'aimantation M de l'échantillon : $H_d = -4\pi nM$*

Originellement, le problème du champ de désaimantation a été développé pour l'étude des ferromagnétiques. Le formalisme est cependant complètement applicable aux supraconducteurs de type II, en particulier à proximité de H_{c1} dans le cadre d'un fort pinning.

Pour mieux comprendre le problème, il est plus facile de prendre l'image des pôles libres : la discontinuité de l'aimantation M à la surface d'un corps, provoque l'apparition d'une densité superficielle de pôles qui engendre un champ de désaimantation H_d de direction opposée à l'aimantation.

Pour un échantillon avec une aimantation uniforme M, on peut écrire :

$$H_d = -4\pi nM,$$

où le facteur de désaimantation n dépend seulement de la géométrie de l'échantillon.

Le champ interne total H_i est la somme des champs appliqués H_a et du champ de désaimantation H_d. Nous pouvons donc écrire:

$$H_i = H_d(M)+H_a = H_a-4\pi nM \qquad (23)$$

L'expression ci-dessus peut être considérée vraie tant que l'aimantation de l'échantillon peut être considérée comme uniforme à l'échelle macroscopique. Des domaines ferromagnétiques de taille de l'ordre du micron ne nous empêchent pas de calculer le champ interne moyen à partir de l'expression 23 [15].

Nous devons noter que l'Eq.23, aussi bien pour les supraconducteurs que pour des ferromagnétiques, ne peut expliquer les

valeurs de champ interne à proximité de surfaces présentant des coins. Les effets de pointes font que les champs locaux peuvent être extrêmement importants. En fait, on ne sait calculer les facteurs de désaimantation que pour des échantillons ayant des formes régulières (ellipsoïdes de révolution).

Dans l'Appendice 2, nous montrons que l'approximation de la géométrie de l'échantillon par un ellipsoïde est assez raisonnable. Effectivement, à partir de mesures de susceptibilité au dessous de H_{c1}, il est possible de "mesurer" les facteurs de désaimantation et vérifier le résultat avec celui des calculs théoriques faits pour un ellipsoïde.

Etant donné les fortes valeurs de champ de désaimantation dans certains endroits de l'échantillon on s'attend à ce que les vortex commencent à se former, dans ces régions, bien au-dessous de H_{c1} Le pinning va cependant empêcher ces vortex de pénétrer plus profondément dans l'échantillon. C'est pourquoi on pense qu'il est raisonnable de calculer le champ interne effectif à partir de l'eq.23. On prendra les facteurs de désaimantation obtennus des mesures de susceptibilité à bas champ.

Diverses méthodes pour déterminer H_{c1} à partir de mesures d'aimantation sont proposées et utilisées dans les supraconducteurs H-Tc (essentiellement sur le composé Y:123). Nous allons suivre l'ordre chronologique en montrant d'abord celles qui ont été proposées avant notre travail. Par la suite, nous présenterons nos résultats pour le H_{c1} du composé Y:248. Les discussions suscitées par ce travail [16-19] nous ont amenés à reformuler le modèle de Bean d'une façon plus adaptée aux supraconducteurs à H-Tc. Nous finissons donc ce chapitre avec un retour critique sur nos résultats.

3.2 Méthodes de détermination de H_{c1} à partir de mesures d'aimantation proposées dans la littérature

Dans la littérature, plusieurs méthodes sont proposées pour déterminer H_{c1} à partir de mesures d'aimantation M. Nous allons présenter ici les principales méthodes aussi bien que leur résultats. Il s'agit de refroidir l'échantillon à champ nul ; puis, en suivant un parcours bien déterminé dans le diagramme de phase (température fixe ou champ fixe), dépasser la transition à H_{c1} ou $T(H_{c1})$ comme on le montre dans la Fig.9.

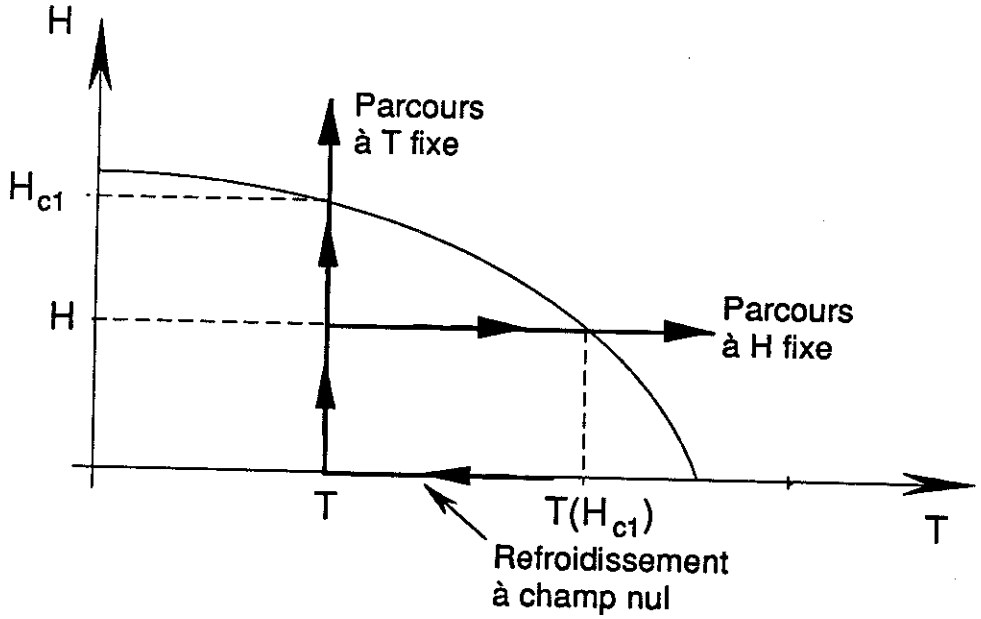


Fig.9 - Pour déterminer Hc1 il y a deux façons de parcourir le diagramme de phase: 1) Refroidir à champ nul, puis augmenter le champ à un température T fixe; 2) Refroidir à champ nul, appliquer un champ H puis réchauffer jusqu'à ce qu'on dépasse la transition.

3.2.1. Mesures de traînage magnétique

La première méthode, proposée par Yeshurun et al [20], consiste à identifier H_{c1} à partir de l'extrapolation à zéro de S=dM/dln(t) : le coefficient de traînage magnétique (ou magnetic after-effect). Effectivement, le piégeage des vortex par les centres de pinning va empêcher le système d'évoluer vers la configuration d'équilibre. A température et champ appliqué constants, des processus d'activation

thermique peuvent donc dépiéger les vortex et faire ainsi évoluer le système, c'est-à-dire l'aimantation, peu à peu vers l'équilibre.

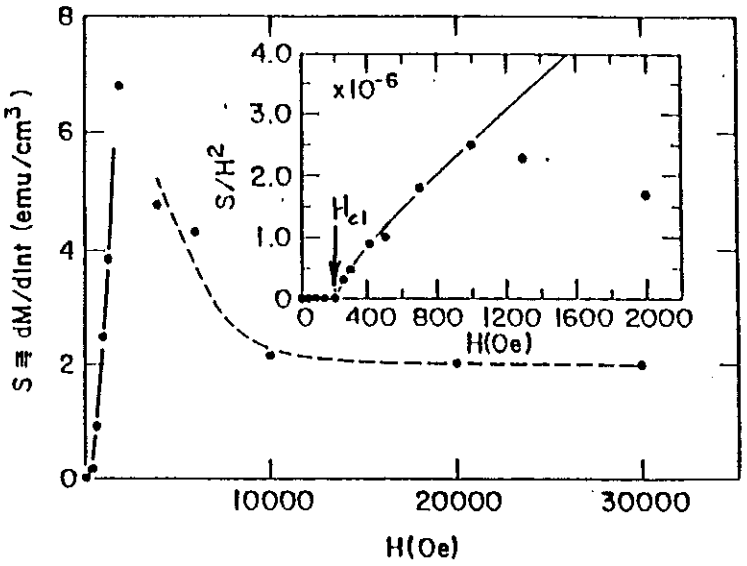


Fig.10 *Coefficient de traînage $S=dM/d\ln(t)$ et S/H^2 en fonction de H pour un échantillon de Y:123. Résultats obtenus par Yeshurun et al [13]. La ligne pleine correspond à l'expression théorique déduite à partir du modèle de Bean modifié où u = 1 (voir Eq.24).*

Comme au-dessous de H_{c1}, par définition, on n'a pas de vortex, on ne peut donc pas détecter de variations de l'aimantation avec le temps. Au-dessus de H_{c1}, Yeshurun et collaborateurs [20] prévoient à partir d'un modèle de Bean modifié que

$$S=S_0kT/U_0.(H^{u+2}-H_{c1}{}^{u+2})$$

où $S_0 = f(H_{c1},J_c,D)$ où J_c est le courant critique de Bean (que nous allons étudier plus en détail plus tard) et D la dimension de l'échantillon, qui est supposé ici bidimensionnel et orienté le long du champ H_a. Ici, u est un exposant introduit ad hoc par Yeshurun et al.[20].

Dans la Fig.10, on montre S = dM/dln(t) en fonction du champ appliqué à une température T = 4,17 K pour plusieurs champs appliqués, après un refroidissement à champ nul. Ces mesures ont été faites sur un monocristal de $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. Pour d'autres températures, chaque point de mesure correspondrait à un temps considérable de travail, dû non

seulement au temps d'observation de la relaxation, mais surtout à la procédure de refroidissement et de stabilisation stricte de la température de mesure T qui intervient au même ordre que ln(t) dans la relaxation.

3.2.2. Mesures de M(T)

D'autres méthodes moins lourdes sont proposées dans la littérature. Parmi celles-ci, deux sont basées sur des mesures de M(T) à champ appliqué constant, après un refroidissement à champ nul. On détermine ici la température $T(H=H_{c1})$ à partir de laquelle on a la formation des premiers vortex.

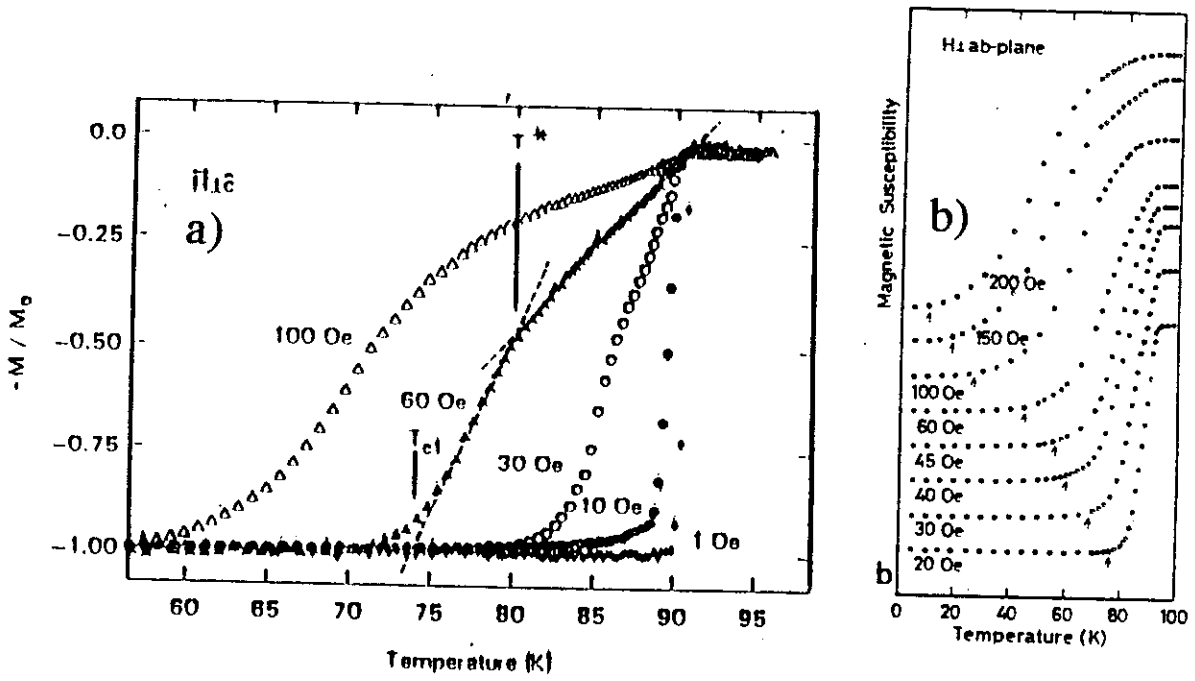


Fig.11 *a) Détermination de $T(H_{c1})$ à partir de l'extrapolation linéaire (T_{c1}) [Krusin-Elbaum et al [21]. b] Détermination à partir de la première pénétration du flux. [22].*

La première des deux méthodes consiste à définir $T(H_{c1})$ comme étant l'extrapolation linéaire de M(T) à partir de la région où il y a pénétration importante du flux (voir Fig.11a) [21].

La deuxième méthode consiste à observer la température à partir de laquelle on a une décroissance "notable" du diamagnétisme parfait (voir Fig.11b) [22].

Ces méthodes ont le désavantage d'être sensibles aux variations de la longueur de pénétration λ avec la température, principalement pour des échantillons de faibles dimensions (de l'ordre de 0,1 mm pour des λ de l'ordre de 1000 Å). D'autre part, comme on peut le voir sur les Fig.11, ces déterminations de $T(H_{c1})$ sont un peu phénoménologiques. En effet, aucun paramètre (ni T, ni le champ réel) n'est fixe : puisque M varie avec la température, le champ interne $H_i=H_a-4\pi nM(T)$ (Eq.23) varie lui aussi. Ceci rend difficile toute analyse de M(T) à partir d'un modèle permettant une analyse plus fine de H_{c1}.

3.2.3. Mesures de M(H)

La dernière méthode consiste à mesurer M(H) à température fixe après un refroidissement à champ nul comme on peut voir dans la Fig.12 [23].

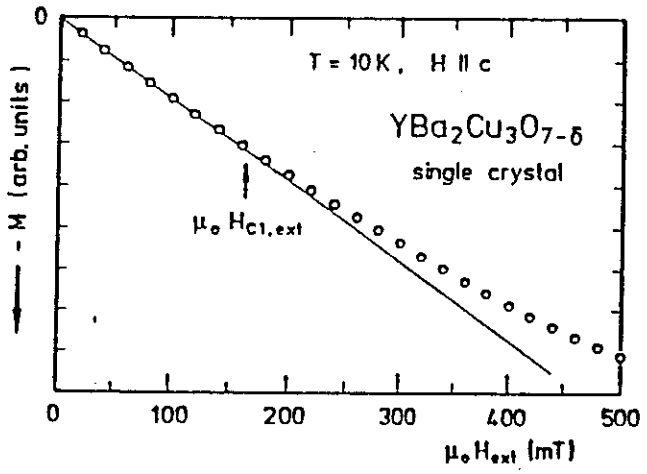


Fig.12- *Détermination de H_{c1} à partir de M(H) selon Adrian et al [23]. On observe le régime linéaire pour des champs inférieurs à H_{c1}. Ceci correspond à l'expulsion complète du flux de l'intérieur de l'échantillon (effet Meissner).*

H_{c1} est déterminé comme étant le champ à partir duquel on observe une pénétration du flux, c'est à dire une déviation de la linéarité de M avec H.

On notera que toute variation notable du volume supraconducteur dû aux variations de $\lambda(T)$ apparaîtra dans la pente de M(H) pour $H<H_{c1}$.

Cette dernière méthode présente l'avantage d'être à température fixe. Comme nous allons le voir plus tard, on peut obtenir les courbes de $B(H_i)$ qui, elles, peuvent être comparées à un modèle théorique conçu pour un échantillon massif.

3.2.4. H_{c1} dans le composé Y:123 : résultats avant notre travail

Les mesures de H_{c1} présentées dans la littérature pour le composé Y:123 montrent un comportement anormal à basses températures. Dans le groupe de Adrian et al [23] on observe une remontée de H_{c1} au dessous de 40 K aussi bien pour H//c que pour H//(ab).

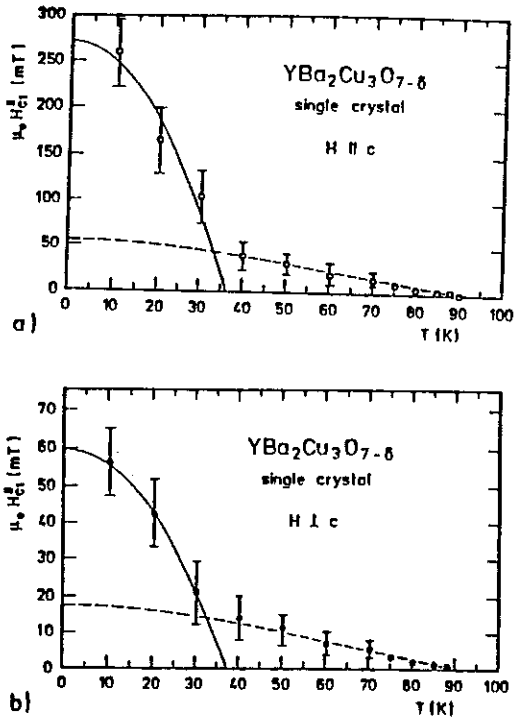


Fig.13a *$H_{c1}(T)$ pour un monocristal de Y:123 selon Adrian et al [23]*

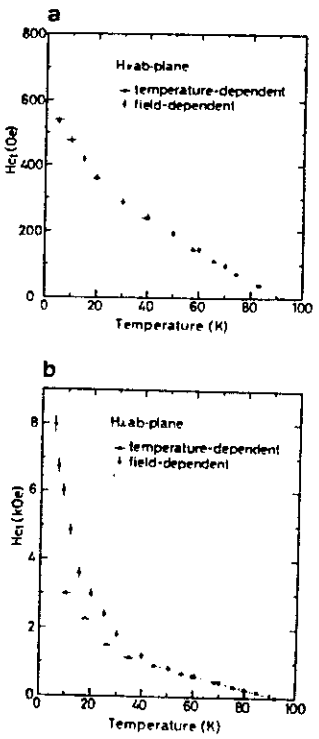


Fig.13b *$H_{c1}(T)$ pour un monocristal de Y:123 selon Ishii et al [22]*

D'autre part, des mesures croisées en M(H) et M(T) réalisées par Ishii et al [22] montrent des résultats similaires avec la $H_{c1}(T)$ linéaire entre T_c et 0.5 T_c et la même remontée au dessous de 40 K. Dans le travail de Adrian et al [23], on suggère même que ce comportement pourrait être associé à l'existence de deux gaps supraconducteurs. Il était pourtant important de déterminer si ce comportement était dû à un artefact de mesure, ou si c'était un vrai fait expérimental. Dans la figure 13, on représente tous les résultats obtenus par S vs H [20], M(T) et M(H) [21,22,23]. Les résultats apparus après la réalisation de ce travail seront discutés à la fin du chapitre.

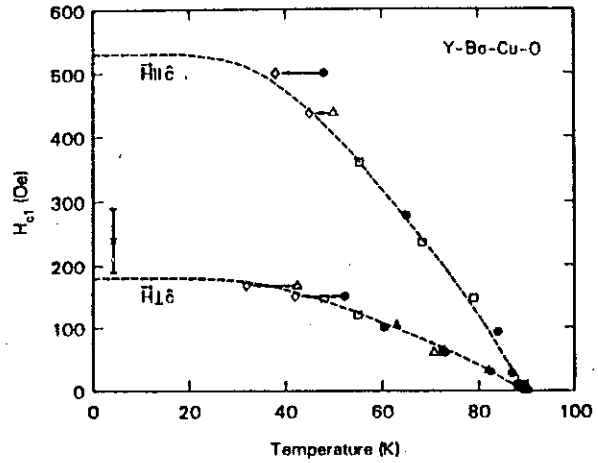


Fig.13c *$H_{c1}(T)$ pour un monocristal de Y:123 selon Krusin-Elbaum et al.*

3.3 Résultats expérimentaux obtenus pour le composé Y:248.

Pour déterminer H_{c1} dans le composé Y:248, nous avons utilisé un magnétomètre qui, durant ce travail de thèse, a été adapté à l'étude de monocristaux de supraconducteurs H-Tc. Le dispositif expérimental est décrit dans l'Appendice 1.

La détermination du facteur de désaimantation apparaît dans l'Appendice 2.

A l'époque où nous avons démarré ce travail, seul le modèle de Bean dans sa forme originale était utilisé dans la littérature des supraconducteurs H-Tc. Nous avons donc au début placé notre analyse dans ce cadre où l'induction B(H) est donnée par :

$$B(H) = 0 \qquad \text{pour } H_i<H_{c1}$$

$$B(H) = \frac{5}{2\pi D\, J_c}(H_i^2-H_{c1}^2) \qquad \text{pour } H_{c1}<H_i\leq H^*$$

$$B(H) = H_i - (H^* - H_{c1})/2 \qquad \text{pour } H_i>H^*$$

où D correspond à l'épaisseur d'une couche mince orientée avec le plan le long du champ, J_c correspond au courant critique de Bean et $H^*=H_{c1}+\pi DJ_c/5$. On notera que pour cette géométrie le facteur de désaimantation n est nul, de sorte que H_i est égal au champ appliqué H_a.

Il faut tenir compte qu'un échantillon macroscopique est loin de la géométrie d'une couche mince: il faut donc modifier le modèle de Bean en tenant compte des effets de champ de désaimantation. Pour simplifier les notations, par la suite, nous appellerons H le champ appliqué. Phénoménologiquement, il est raisonnable de penser que $B(H) = H_i + 4\pi M$ devrait se présenter sous forme d'une série en H pour H peu supérieur à $H_{c1}/(1-n)$ puisque $H_i = H - 4\pi nM$. Le facteur $1/(1-n)$ vient de la correction par le champ de désaimantation.

$$B(H) = \beta_0(T) + \beta_1(T)\, H + \beta_2(T)\, H^2 + \beta_3(T)\, H^3 + \ldots \quad (24)$$

Nous avons donc dans un premier temps ajusté nos données de B(H) par des polynômes du troisième degré avec $H>H_{c1}/(1-n)$. Il faut noter que dans nos régressions, la limite inférieure de la fenêtre de données correspond aussi à un des paramètres ajustables : il ne fallait surtout pas avoir des points au-dessous de H_{c1} contribuant aux régressions. D'autre part, $\beta_3(T)H$ est typiquement plus petit que 10% de $\beta_2(T)$. Nous avons donc négligé le terme en H^3.

Nous présentons par la suite l'article qui résume nos résultats expérimentaux relatifs aux mesures de H_{c1} par aimantation. Dans ce travail, nous mettons surtout en valeur que la détermination de H_{c1} est fortement dépendante de l'analyse des données. En particulier, si ε, le seuil de détection pour la pénétration du flux magnétique dans l'échantillon, est important, on peut même mesurer un comportement de H_{c1} presque exponentiel en T.

Dans la prochaine section, on discutera de ce travail à la lumière d'un modèle plus complet où l'on tient compte de l'aimantation d'équilibre et de l'anisotropie des forces de pinning (J_c de Bean).

Détermination de $H_{c1}(T)$ pour un monocristal de $Y_2Ba_4Cu_8O_{16}$

Résumé: Nous avons réalisé des mesures d'aimantation à faible champ magnétique (<250 Oe) sur un monocristal non maclé de $Y_2Ba_4Cu_8O_{16}$ qui présente une transition supraconductrice à 74 K. A partir de l'aimantation isotherme nous avons déterminé $H_{c1}(T)$ et son anisotropie le long des trois axes cristallographiques. Nous n'avons trouvé aucune anisotropie significative entre les axes a et b.

Solid State Communications, Vol. 75, No. 4, pp. 315-318, 1990.
Printed in Great Britain.

0038-1098/90$3.00+.00
Pergamon Press plc

DETERMINATION OF $H_{c_1}(T)$ ON A $Y_2Ba_4Cu_8O_{16}$ SINGLE CRYSTAL

J.C. Martinez, J.J. Préjean
Centre de Recherches sur les Très Basses Températures, C.N.R.S., BP 166 X, 38042 Grenoble-Cédex, France

J. Karpinski, E. Kaldis
Laboratorium für Festkörperphysik ETH, 8093 Zürich, Switzerland

P. Bordet
Laboratoire de Cristallographie, C.N.R.S., BP 166 X, 38042 Grenoble-Cédex, France

(Received 20 APRIL 1990 *by P. Burlet)*

We performed dc-magnetization measurements in low magnetic fields (< 250 Oe) on an untwinned single crystal of $Y_2Ba_4Cu_8O_{16}$ which exhibits a superconducting transition at 74 K. From isothermal magnetization curves we determined $H_{c_1}(T)$ and its anisotropy along the three crystallographic axes. We do not find any significant anisotropy between the a and b axes.

1. Introduction

$Y_2Ba_4Cu_8O_{16}$ (248) has been synthesized in bulk form for the first time under high oxygen pressure[1]. Single crystals have been grown by a high pressure flux method[2]. The structure is similar to that of $YBa_2Cu_3O_7$ (123), but contains double chains of edge-sharing CuO_4 squares along the b axis instead of single chains of corner-sharing squares[3]. The absence of twins and oxygen stoichiometry are two consequences of that structure. Thus 248 superconductors are specially suitable to study the anisotropy of H_{c_1} and H_{c_2} along the three crystallographic axes. The determination of these fundamental parameters and comparison with results obtained on 123 compounds are the aims of our work.

Several methods are proposed in the literature for the determination of the lower critical field. Yeshurun *et al.*[4] determined $H_{c_1}(T)$ from the onset of the magnetic viscosity coefficient S= dM/dln(t). Krusin-Elbaum *et al.*[5] proposed to deduce the first critical field from M(T) curves. And recently Safar and coworkers[6] described a method where the lower critical field is detected from reversibility on M(T) measurements.

For this work we choose the classical method which consists of determining $H_{c_1}(T)$ from the deviation from linearity in M(H) curves.[7,8] Keeping in mind that we were looking for very small deviations and that many authors found an unusual upturn at low temperatures on $H_{c_1}(T)$ for the 123 compound, we analyzed the data according to two different criteria. The results will be discussed later in this paper.

2. Experiment

The magnetic measurements were performed on a single crystal platelet (0.8x0.5x0.07 mm³).

We used an extraction dc-magnetometer, with 10^{-7} emu resolution and 10^{-6} emu reproducibility. The calibration of the moment has been obtained by measuring the signal of a very pure (99.999 %) sphere of lead and confirmed by latter measurements of the dc-susceptibility of the 248 single crystal in a SQUID susceptometer at the IEF (Orsay).

Using a superconducting Nb-Ti coil we applied fields up to 250 Oe, in the temperature range between 10 K and T_c = 74 K. The applied field was carefully calibrated from the transition of the sphere of lead described above[9]. From this transition we determined a residual field of 0.288 Oe that was carefully compensated during zero field cooling experiments. For all measurements we waited about 30 minutes above T_c. Subsequently we cooled the sample at zero field, down to the temperature where we performed a virgin magnetization curve.

Due to the problem of magnetic relaxation, well known in High-T_c[10], we took special care to keep the same sweep-rate of the order of 10 mOe/sec for the applied magnetic field during an experiment.

3. Results and discussion

In fig.1 we show typical M(H) curves for different temperatures. The field is applied parallel to the crystallographic c axis.

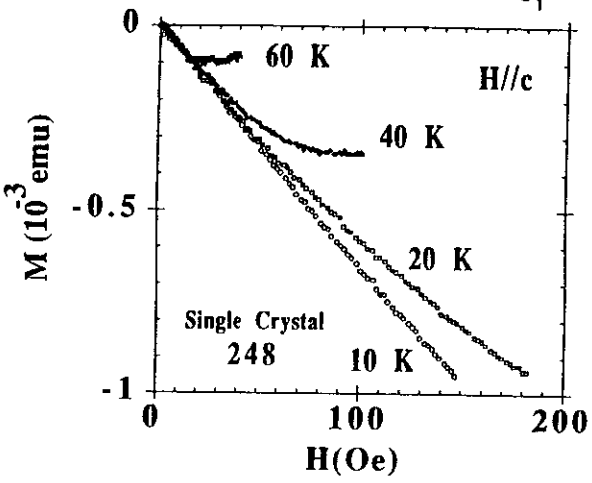


Fig. 1 : dc-magnetization curves for T = 10, 20, 40 and 60 K.

The values of n, ℓ and m, the reduced demagnetizing factors for H along c, a and b respectively, are deduced from the initial slope χ_i of the curves, and from the condition n+ℓ+m=1:

$$\chi_i = \frac{-v}{4\pi(1-\eta)} \qquad (1)$$

where η denotes n, ℓ and m. We obtained values (n=0.80, ℓ=0.179 and m=0.022) in good agreement with the calculated ones[11](n=0.80, ℓ=0.13 and m=0.07). From these measurements we also obtained $v=17\times10^{-3}mm^3$. The relative precision of n, ℓ and m is closely related to the precision of χ_i, which is estimated to be lower than 1%, and to the accuracy of the orientation of H with respect to the crystallographic axis.

In order to observe the deviation from linearity of M(H) we use the plot $-\chi_i H+M(H)$ as Umezawa et al.[7] In fig.2 we show the flux penetration $B_i = -\chi_i H+M(H)$ for H//c. Because of greater thermal activation the determination of $H_{c_1}(T)$ is easier for higher temperatures.

In fig.3 we observe the penetration of flux at T = 40 K. We have here the three regimes predicted by the Bean model for a slab[12], assuming that filamentary currents are flowing to a depth $\Delta = 5(H-H_{c_1})/2\pi J_c$:

$$B_i = 0 \qquad ; H < H_{c_1}$$

$$B_i = \frac{H^2-H_{c_1}^2}{2(H^*-H_{c_1})} \; ; \; H_{c_1} < H < H^* \qquad (2)$$

$$B_i = H - \frac{H^*+H_{c_1}}{2} \; ; \; H^* < H$$

where for a slab of thickness D: $H^*-H_{c_1} = \pi J_c D/5$. Below H_{c_1} we do not observe flux penetration. Between H_{c_1} and a field H* the data can be fitted by a parabola, above H* we observe a linear behaviour in H.

According to Bean, H* corresponds to the field from which the screening currents flow through the entire volume of the specimen (Δ = D/2). The same kind of behaviour can be observed with the field applied along the two other crystallographic axes. For H//a or H//b the slab geometry is a good approximation whereas for H//c the geometry is more complicated, and B_i could be expanded in series of H^2, H^3,...

The previous observations suggest to fit the flux penetration curves with a second order polynomial in H. H_{c_1} was determined from the intercept of the parabola with the H-axis and special care was taken not to have points below the estimated H_{c_1} participating in the fitting. In Fig.4

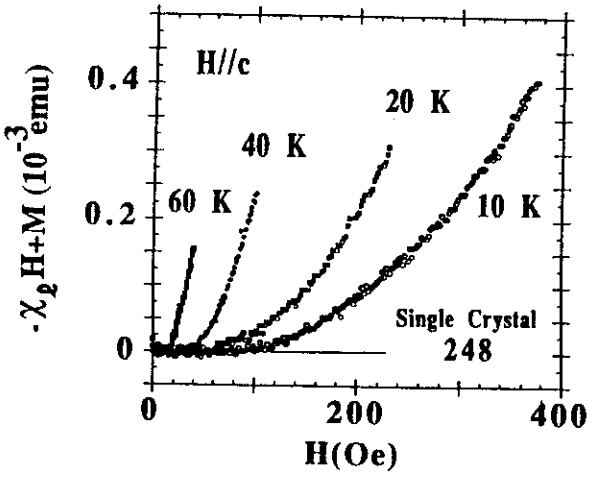


Fig. 2 : Deviation of the moment from the complete expulsion of the magnetic field.

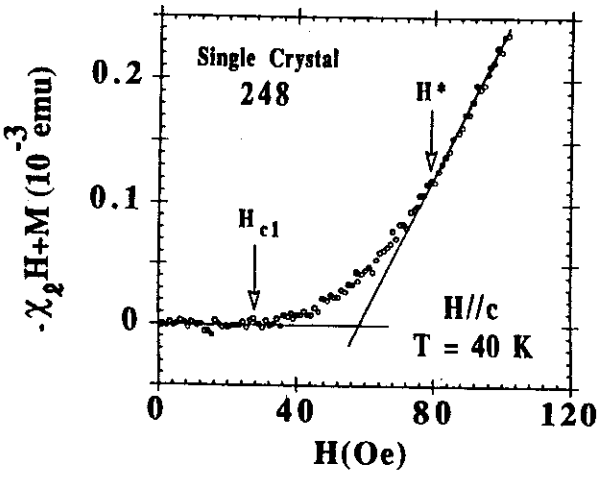


Fig. 3 : Penetration of the magnetic field for T = 40 K. We show the H^2 behaviour and the linear behaviour above H*.

we represent by solid circles our data for H//c. The upturn in $H_{c_1}(T)$ that was described in the literature for the 123 compound in the vicinity of 40 K[7,8] is for our results observed at 10 K.

In order to understand the origin of this disagreement, first we note that the values deduced for H_{c_1} could depend on χ_i . Consequently we verified that all values of χ_i, deduced from the low field fit, were consistent with eq.1 for all temperatures below 65 K. Secondly, we supposed H_{c_1} to be the field in which we observe a fixed deviation ε from linearity. We considered respectively ε = 10, 20 and 40x10^{-6} emu. This choice of H_{c_1} is equivalent to observe the first point from which we have a significant deviation from the initial slope of M(H), ε corresponding to a fictitious resolution. All results appear on Fig. 4. At 40 K we observe an upturn for H_{c_1} deduced from the different values of ε. At decreasing ε, H_{c_1} decreases drastically at low T, but never reaches the values obtained from the parabolic fittings (solid circles). For all ε this discrepancy between the values deduced for the first critical field decreases at increasing temperatures.

We can explain these results in the frame of the Bean model. At the lowest temperatures the thermal activation processes will make the depinning of the vortex harder. This increases the screening currents J_c and consequently H*. On the other hand, when $H^* \rightarrow \infty$ we expect to find $dB_i/dH \rightarrow 0$ when $H=H_{c_1}$ (see eq.2). Thus for hard superconductors a determination of H_{c_1} from a fixed deviation ε will overestimate the value of the first critical field and will be highly dependent on the precision of the measurement technique. The unexpected behaviour of the data deduced from ε can be considered as an artefact.

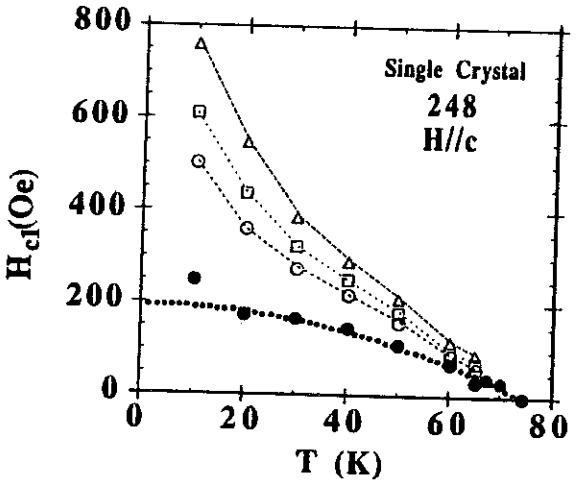


Fig.4 : $H_{c_1}(T)$ for the field applied along the crystallografic c axis. Different symbols correspond to different criturias for H_{c_1}. ● Parabolic fitting ; ○ ε= 10x10^{-6} emu ; □ ε = 20x10^{-6} emu ; Δ ε = 40x10^{-6} emu.

In the parabolic fittings we used a large number of points between H_{c_1} and H* to determine the functional behaviour of B_i, thus we expect to be more close to the true value of H_{c_1}. Even the values deduced from these fittings exhibited upturns at 10 K for all orientations. We should consider these upturns cautiously. At the lowest temperatures (T<15 K), we are more sensitive to magnetization jumps[13], thus we do not have a continuous variation of the vortex-line density inside the sample. That means that the Bean model cannot be used, particularly near H_{c_1}.

On fig. 5 we plot $H_{c_1}(T)$ along the three crystallographic axes. The values are corrected by the demagnetizing factors. The curves correspond to the following phenomenological expression :

$$H_{c_1}(T) = H_{c_1}(T=0)\,(1-(T/T_c)^2)^{\gamma}$$

We can summarize the data by $H_{c_1}(T=0)$ = (44±1) Oe with γ = 0.7 along (a,b), and $H_{c_1}(T=0)$ = (197±8) Oe with γ = 1 along c. In all cases we considered T_c = 74.3 K.

The values obtained are about 3 times lower than in the 123 system. The first critical field exhibits an anisotropy ratio between 4 and 5 between the c-axis and the ab-plane. This large incertitude in the determination of the anisotropy ratio comes essentially from the accuracy in the demagnetizing factor n.The ratio of our results for H//c and H⊥c is slightly larger than that obtained for the 123 system[5,7,8,10] (between 3 and 4). This can be explained by the distance between CuO_2-Y-CuO_2 blocks which is larger in the 248 compound (13.63 Å and 11.67 Å in 248 and 123 compouds respectively). Nevertheless the difficulty of measuring the anisotropy ratio in 248 as well as in 123 does not allow us to make a definitive comparison between these two systems.

We do not observe any significant anisotropy between the a-axis and the b-axis for 248. Recent

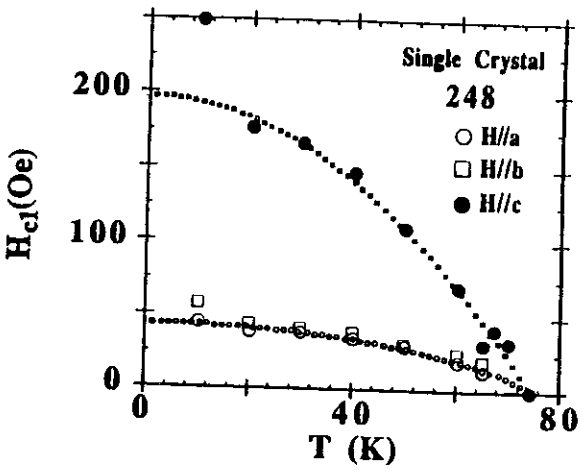


Fig.5 : $H_{c_1}(T)$ for the field applied along the three crystallographic axes.

H_{c_2} measurements on 123 untwinned single-crystals show a small or no anisotropy at all in the ab plane[14,15], what corroborates our results.

4. Conclusion

We determined H_{c_1}(T) for the field H oriented along the three crystallographic axes. We observed an anisotropy of 4.5±0.5 between the c axis and the ab plane. This result is not far from that obtained in the 123 compound[5,10,13]. We do not find any significant anisotropy of H_{c_1}(T) between the a and b axes. We notice smaller Tc and H_{c_1} of the 248 system compared to 123.

For comparison, such a systematic study of the anisotropy of H_{c_1} should also be carried out on untwinned 123 single-crystals.

Finally we suggest that an artefact in the analysis of the data could induce an unusual behaviour of H_{c_1}(T) at low temperatures.

Acknowledgement - We are indebted to O. Laborde, J.L. Tholence, and J.L. Hodeau for fruitfull discussions. The authors wish to thank M. Hausenblas and A. Buzdin for reading the manuscript. We are gratefull to C. Chappert, J.P. Renard and P. Beauvillain for making available their SQUID susceptometer at the Institut d'Electronique Fondamentale (Orsay). This work was partially supported by CNPq-Brazil.

References

1 J. Karpinski, E. Kaldis, E.Jilek, S. Rusiecki, B. Bucher, Nature 336(1988) 660.
2 J. Karpinski, E. Kaldis, S. Rusiecki, E.Jilek, P. Fischer, P. Bordet, C. Chaillout, J. Chenevas, J.L. Hodeau, M. Marezio, J.Less Common Metals 150 (1989) 129.
3 P. Bordet, J.L. Hodeau, R. Argoud, J. Muller, M. Marezio, J.C. Martinez, J.J. Préjean, J. Karpinski, E. Kaldis, S. Rusiecki, B. Bucher, Physica C 162-164 (1989) 524.
4 Y. Yeshurun, A.P. Malozemoff, F. Holtzberg, T.R. Dinger, Phys. Rev. B 38 (1988) 11828.
5 L. Krusin-Elbaum, A.P. Malozemoff, Y. Yeshurun, F. Holtzberg, Phys. Rev. B 39 (1989) 2936.
6 H. Saffar, H. Pastoriza, J. Guimpel, F. de La Cruz, D.J. Bishop, L.F. Schneemeyer, J.V. Wasczak, to be published.
7 A. Umezawa, G.W. Crabtree, J.Z. Liu, T.J. Moran, S.K. Malik, L.H. Nunez, W.L. Kwok, C.H. Sowers, Phys. Rev. B 38 (1988) 2843.
8 H. Adrian, W. Assmus, A. Höhr, J. Kowalewski, H. Spille, F. Steglich, Physica C 162-164 (1989) 329.
9 D.L. Decker, D.E. Mapother, R.W. Shaw, Phys. Rev 112 (1958) 1888.
10 A.P.Malozemoff, *Physical properties of Hight Temperature Superconductors*. World Scientific Publishing Co., Singapore (1989)
11 J. A. Osborn, Phys. Rev. 67 (1945) 351.
12 C.P. Bean, Phys. Rev. Lett. 8 (1962) 250.
13 J. C. Levet, M. Potel, P. Gougeon, H. Noel, M. Guillot, J. L. Tholence, Nature 331 (1988) 307.
14 U. Welp, M. Grimsditch, H. You, W.K. Knowk, M.M. Fang, G.W. Crabtree, J.Z. Liu, Physica C 161 (1989) 1.
15 W. Bauhofer,W. Biberacher, B. Gegenheimer, W. Joss, R. K. Kremer, Hj. Mattausch, A. Müller, A. Simon, Phys. Rev. Lett. 63 (1989) 2520.

3.4. Retour critique sur nos résultats expérimentaux

Les résultats présentés ci-dessus ont été postérieurement confirmés, pour H//(a,b), par Umezawa et al [16] sur des monocristaux non maclés de $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. Le même résultat dans le plan (a,b) a été observé par Moshchalkov et al [18,19] sur de gros monocristaux maclés. En particulier, la saturation de H_{c1} à basse température a été retrouvée pour H//(ab), ce qui est en accord avec les résultats obtenus par μSR [25] et pénétration rf [26].

Depuis l'apparition de la publication exposée ci-dessus quelques améliorations ont été apportées au modèle de Bean original. Notamment on a introduit, d'une part l'influence de l'aimantation d'équilibre [18,19], d'autre part la possibilité d'avoir des forces de pinning différenciées selon la direction de déplacement des vortex [27,28] (courants critiques de Bean anisotropes). Dans cette section, nous allons déduire une version du modèle de Bean plus adaptée aux supraconducteurs H-Tc. Ce modèle sera dans la prochaine section appliqué à nos données expérimentales.

3.4.1 Le modèle de Bean

a) Introduction

Le modèle a été introduit par Bean pendant les années 60 [29] pour expliquer le comportement hystérétique des supraconducteurs de Type II à l'état mixte. Dans un supraconducteur à l'équilibre la densité de lignes de flux $n_{eq} = B_{eq}(H)/\Phi_0$ est uniforme à l'intérieur du supraconducteur. B_{eq} correspond à l'induction à l'équilibre et Φ_0 est un quantum de flux. Comme dans l'hélium superfluide, les vortex se forment à la surface de l'échantillon et pénètrent ensuite vers l'intérieur. En présence de pinning, les vortex vont être empêchés de pénétrer à l'intérieur de l'échantillon. Dans l'état métastable, la densité de vortex (donc $n = B/\Phi_0$) ne sera donc pas constante à l'intérieur de l'échantillon. Cette distribution spatiale de densité de lignes de flux présente un gradient qui sera assimilé à un gradient de B à l'intérieur de l'échantillon. Elle engendre donc une densité de courant macroscopique $\vec{J} = c/4\pi\ \vec{\nabla}\wedge\vec{B}$. La force de répulsion entre les lignes de flux va uniformiser n à l'intérieur de l'échantillon. Ceci revient à introduire une pression à l'intérieur du

système de vortex. Tant que la force F engendrée par cette pression est inférieure à une limite F_c (force de pinning), le système reste figé.

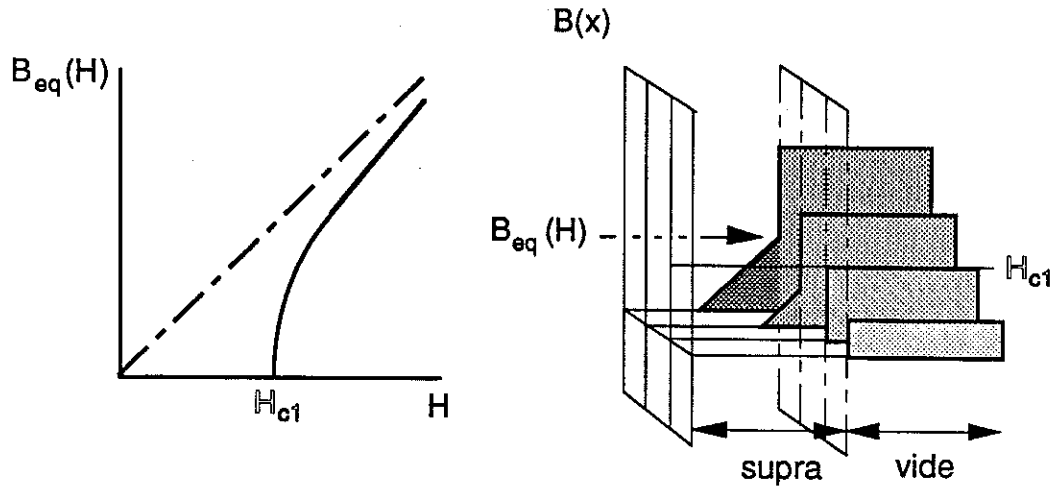


Fig.14 - Dans le modèle de Bean, tant que $H<H_{c1}$, il n'y a pas de pénétration du flux. Aussitôt que $H>H_{c1}$, B(x) pénètre linéairement avec la distance de la surface de l'échantillon. $B_{eq}(H)$ détermine la densité de vortex à la surface du supraconducteur.

Si $F>F_c$, les lignes de flux ont assez d'énergie pour se libérer en dissipant de l'énergie jusqu'à ce que les forces de pinning soient à nouveau assez importantes pour refiger le système (état critique). Une image physique a été introduite par De Gennes qui compare l'état critique au phénomène d'avalanches dans un tas de sable [30]. F_c correspondrait à l'angle limite à partir duquel les avalanches surviennent.

b) Calcul de B(H)

Le modèle le plus simple consiste à considérer que la densité de lignes de flux n varie linéairement avec la distance à la surface (Fig.15). D'autre part, si on suppose que la distribution de centres de pinning est en volume, à l'interface Supraconducteur/Vide on trouve en première approximation que $n = n_{eq}$. Physiquement, la situation peut être plus compliquée. Par exemple, on pourrait imaginer une situation où les vortex piégés à une distance plus petite que λ de la surface empêcheraient la densité de vortex en surface d'être celle à l'équilibre. Dans ces conditions, on aurait une sur-accumulation de vortex en surface. Nous allons revenir à ce sujet à la fin du chapitre.

Par ailleurs, dans les supraconducteurs de Type II, les conditions de contour engendrent une barrière de surface qui empêche la pénétration des vortex. Cependant, ce genre de phénomène n'a été observé que sur des échantillons cylindriques dont la surface a été polie électrolytiquement.

On peut aussi supposer que la densité de lignes de flux dépend elle même du B local (Anderson & Kim [31,32]).

Comme plus tard nous allons appliquer le modèle aux supraconducteurs anisotropes, ce qui correspond à une complication additionnelle, nous allons rester ici dans le cas le plus simple : $n(x) = n_{eq} - (\alpha/\Phi_0).x$, où x est la distance à la surface. En termes de courant critique de Bean $J_{c,y}$ (en A/cm^2), on peut écrire:

$$\alpha_x = \frac{2\pi}{5} J_{c,y} \qquad (25)$$

où x correspond à la direction de pénétration du flux et y à une direction perpendiculaire à la fois à l'axe des x et au champ H. Afin de ne pas trainer le coefficient $2\pi/5$, on parlera plutôt en termes de α que de J_c.

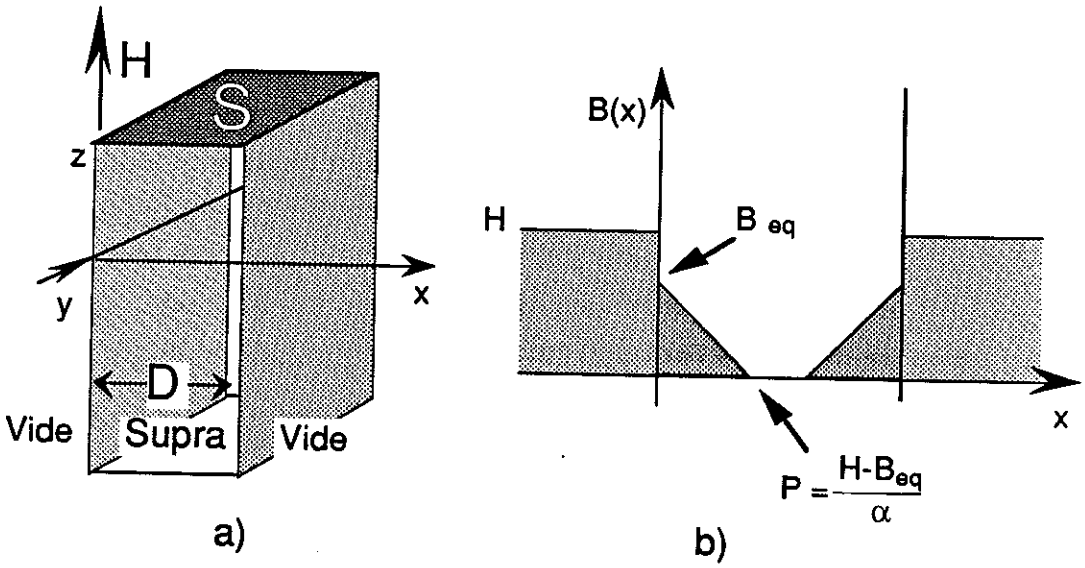


Fig.15 - a) Echantillon bidimensionnel, d'épaisseur D et infini selon les axes y et z. Le champ H est orienté selon z. b) B(x) varie linéairement avec la distance x. P correspond au point où B(x) = 0, i.e. $H = -M_{eq}(H_{c1}) = H_{c1}$. On définit H^* comme étant le champ pour lequel P=D/2.

Pour un échantillon bidimensionnel d'épaisseur D, le champ étant appliqué le long du plan (Fig.15a), l'induction totale de l'échantillon sera donnée par :

$$B = \frac{1}{S}\int_s ds\ B(\vec{r}) \qquad (25)$$

On introduit ici la grandeur H* qui correspond au champ à partir duquel les vortex ont pénétré jusqu'au centre de l'échantillon :

$$P(H^*) = (H^*-B_{eq})/\alpha = D/2$$

Dans la figure 15b, nous représentons B(x) en fonction de x dans le modèle de Bean pour H<H*. Il est facile de voir, dans le cas bidimensionnel, que B(H) = P(H).B_{eq}/D. Pour x=0, B_{eq} est donné par la Fig.14. La discontinuité en surface (H-B_{eq}) est par définition -M_{eq} qui varie avec le champ. Il est cependant difficile de trouver une expression analytique de $B_{eq}=H+4\pi M_{eq}$ pour des champs appliqués de l'ordre de H_{c1}. La solution la plus simple consiste à modéliser M_{eq} par une fonction qui vaut $4\pi M_{eq}=-H_{c1}$ pour $H<H_{c1}$ et M_{eq}=Cte pour $H>H_{c1}$ [18] (voir Fig 13).

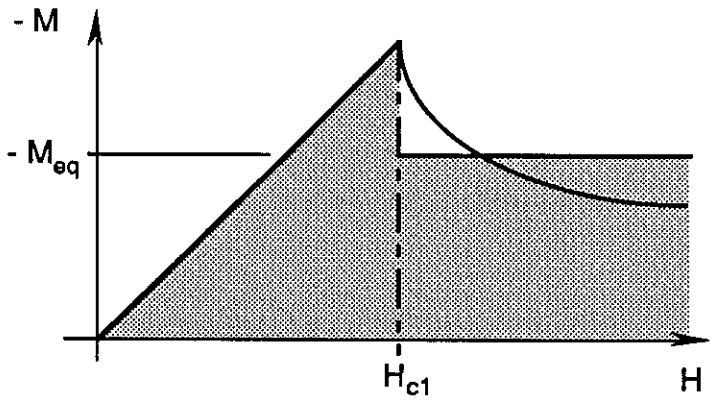


Fig.16 - *Modélisation d'équilibre de l'aimantation d'un supraconducteur de type II.*

M_{eq} correspond à la valeur moyenne de $M_{eq}(H)$ pour des champs entre H_{c1} et H_{max}. Ici H_{max} est le champ appliqué maximum.

$$\langle M_{eq}\rangle = \frac{1}{(H_{max}-H_{c1})}\int_{H_{c1}}^{H_{max}} dh\ M_{eq}(h) \qquad (26)$$

Une pareille modélisation de $M_{eq}(H)$ (Fig.16) oblige l'introduction (ad hoc) d'une discontinuité dans l'aimantation, donc dans B(H) à H_{c1}. Dorénavant on notera :

$$/4\pi<M_{eq}>/ = m_{eq}.$$

Il faut donc corriger le modèle de Bean comme dans la figure 17.

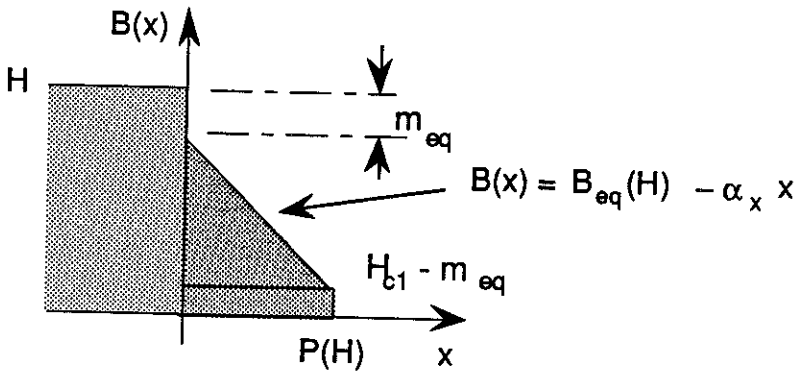


Fig.17 - Modèle de Bean pour le cas où $M_{eq}(H)$ correspond à la Fig.13

Au voisinage de H_{c1}, on passe brusquement d'une densité de vortex nulle à une densité H_{c1}-m_{eq}.

On peut donc écrire le B(H) pour l'échantillon bidimensionnel décrit dans la Fig.15a comme étant :

$$B(H) = \frac{(H-H_{c1})^2}{D\alpha_x} + \frac{2(H_{c1}-m_{eq})}{D\alpha_x}(H-H_{c1}) \quad ; \text{pour } H_{c1} \le H \le H^* \qquad (27)$$

$$B(H) = H - m_{eq} - \frac{1}{2}(H^* - H_{c1}) \quad ; \text{pour} \quad H > H^*$$

Examinons les deux cas limites pour $m_{eq} \approx H_{c1}$ et $m_{eq}=0$. Quand $m_{eq} \to H_{c1}$ alors, au-dessous de H*, B(H) devient proportionnel à $(H-H_{c1})^2$ [18,19]. Au-dessus de H*, on obtient :

$$B(H) = H - (H^*+H_{c1})/2.$$

On remarque qu'il n'y a pas de discontinuité de dB/dH ni à H_{c1}, ni à H*. D'autre part, quand $m_{eq} \to 0$, qui n'a de sens physique (pour les supraconducteurs de type II) que dans la limite où $H \gg H_{c1}$, on obtient l'expression traditionnelle de Bean pour H<H* [20] :

$$B(H) = \frac{H^2 - H_{c1}^2}{D\,\alpha_x} \qquad (28)$$

Ceci implique que H* ($\gg H_{c1}$) est très grand, ce qui correspond à avoir un échantillon très large, et/ou un très fort pinning. Pour H>H*, on obtient $B(H) = H - (H^*-H_{c1})/2$. Cette expression est différente de celle

du cas précédent mais dans cette limite $H^*>>H_{c1}$ on retrouve le même résultat : $B(H) \approx H - H^*/2$.

Reéxaminons l'équation 27 pour $H>H^*$ dans le cas où H^*-H_{c1} est très petit devant m_{eq}. Ceci correspond pratiquement au cas d'un échantillon très mince et/ou en régime de fort dépiégeage. Dans ce cas, on retrouve mathématiquement : $B(H) \approx H+4\pi M_{eq} = B_{eq}$. Cependant ,dans cette limite, le modèle de Bean, avec ses hypothèses originales, est beaucoup trop simpliste pour décrire l'approche de l'équilibre.

c) Modèle de Bean anisotrope

Il est maintenant fondamental de développer le modèle de Bean pour un supraconducteur anisotrope. Effectivement, il est naturel de penser que si les forces entre vortex et l'interaction vortex-défaut dépendent des paramètres λ et ξ, une anisotropie de ces paramètres devrait correspondre à des forces de pinning anisotropes. Pour un échantillon ayant une dimension finie le long des l'axes x et y, on aura donc un profil $B(x,y) = B_{eq} + \alpha_x.x + \alpha_y.y$, où x et y sont les distances aux interfaces Supraconducteur-Vide normales aux axes x et y respectivement (voir Fig.18). α_x et α_y correspondent respectivement aux densités de courants critiques de Bean $J_{c,y}$ et $J_{c,x}$ respectivement (Eq.23). On notera qu'il y a inversion des indice x et y entre les α_i et $J_{c,i}$ car ces grandeurs sont liées par un rotationnel.

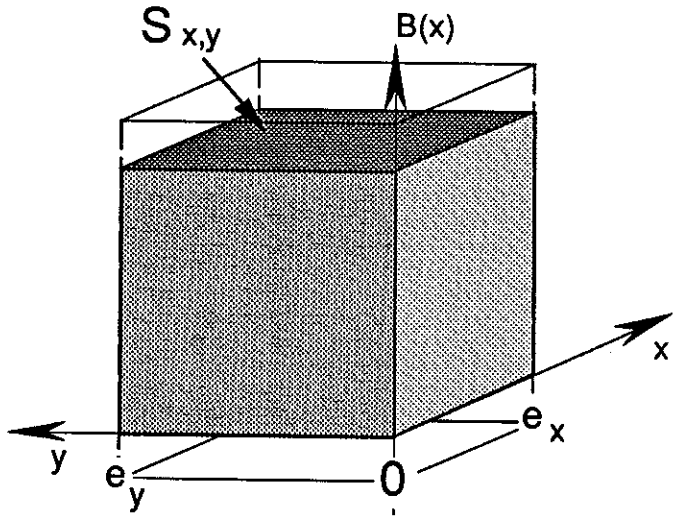


Fig.18 - *Echantillon où les dimensions x et y sont finies (infinie le long de z). S_{xy} et la surface normale à l'orientation du champ.*

A partir de l'Eq.25, on peut calculer B(H) pour l'échantillon décrit dans la figure ci-dessus pour $H_{c1} \leq H \leq H^*$. Le résultat apparaît dans l'Eq.29.

$$B(H) = B_1 (H-H_{c1}) + B_2 (H-H_{c1})^2 + B_3 (H-H_{c1})^3 \qquad (29)$$

$$B_1 = 2 (H_{c1} - m_{eq}) \left(\frac{1}{e_x \alpha_x} + \frac{1}{e_y \alpha_y} \right)$$

$$B_2 = \left[\left(\frac{1}{e_x \alpha_x} + \frac{1}{e_y \alpha_y} \right) - \frac{4 (H_{c1} - m_{eq})}{S_{x,y} \alpha_x \alpha_y} \right]$$

$$B_3 = \frac{-4}{3 S_{x,y} \alpha_x \alpha_y}$$

On notera que si $e_y \rightarrow \infty$, $S_{x,y} = e_x e_y \rightarrow \infty$ et on obtient que $B_1 \rightarrow 2(H_{c1}-m_{eq})/(e_x \alpha_x)$, $B_2 \rightarrow 1/(e_x \alpha_x)$ et B_3 tend vers 0. On retrouve donc les résultats obtenus pour un échantillon bidimensionnel (Eq.27). D'autre part, quand m_{eq} tend vers H_{c1}, alors B_1 disparaît et les seuls termes qui survivent sont B_2 et B_3. Le développement des termes en $(H-H_{c1})^2$ et $(H-H_{c1})^3$ va donner des termes en H, H^2 et H^3 comme dans l'Eq.24.

D'autre part, on notera que si $1/(\alpha_x \alpha_y) << 1/\alpha_x$ et $1/\alpha_y$, et si $H-H_{c1}$ est suffisamment petit ($B_3(H-H_{c1}) << B_2$), on récupère une expression analogue à la relation pour un échantillon bidimensionnel en substituant $1/D\alpha_x$ par $1/e_x\alpha_x + 1/e_y\alpha_y$

On notera que dans les calculs de B(H) on suppose que le champ appliqué est égal au champ à la surface de l'échantillon : on ne tient pas compte des effets de champ de désaimantation.

3.4.2 Résultats à partir de cette nouvelle optique

Les courbes de B(H) sont extraites des courbes de M(H) : on soustrait de M(H) le régime linéaire ($-\chi_1 H$) correspondant à $H<H_{c1}$ (voir Fig.19). Effectivement :

$$M - \chi_1 H = \frac{vB(H)}{4\pi(1-n)}$$

où v correspond au volume supraconducteur et n au facteur de désaimantation.

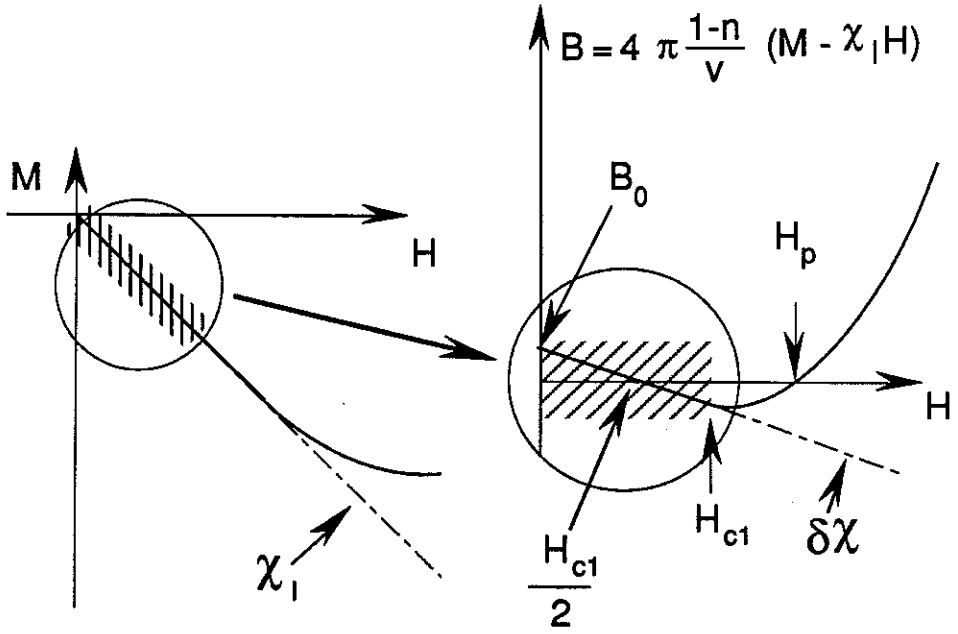


Fig.19 - *Dans la figure ci-dessus, la pente initiale qui correspond au régime où il y a diamagnétisme parfait est sous-estimée. Dans ces conditions H_p correspond à l'estimation de H_{c1}. Le trait plein correspond à $B_0+\delta\chi H$ pour $H<H_{c1}$ et $B_0+\delta\chi H+B_2(H-H_{c1})^2$ pour $H>H_{c1}$.*

a) Influence du choix de χ_1 et d'un décalage d'origine

Expérimentalement, on peut toujours avoir un terme constant B_0 se rajoutant à B(H), dû par exemple à une correction du porte-échantillon. L'influence de cet éventuel décalage de l'origine est équivalente à celle du paramètre ε, introduit dans la publication présentée dans la section 3.3,

qui correspond à une détermination de H_{c1} basée sur un critère de seuil de détection pour la pénétration du flux magnétique.

Comme le problème de $\mathcal{E}$ a déjà été traité précédemment (section 3.3), nous allons nous borner à étudier l'influence dans la détermination de H_{c1} d'une incertitude de χ_1 : $\delta\chi_1$.

Nous partons de l'hypothèse que $B(H)=B_2(H-H_{c1})^2$ pour $H>H_{c1}$ et $B=0$ pour $H<H_{c1}$ et nous appelons $\delta\chi_1$ l'incertitude dans χ_1. Dans la Figure 19, H_p correspond au H_{c1} estimé à partir de $B(H_p) = 0$. Le paramètre B_0 correspond à un décalage de l'origine. En général, χ_1 est déterminé à partir d'un ajustement des points qui se trouvent dans la région hachurée ($0<H<H_{c1}$) de la Fig.19 par une loi linéaire..

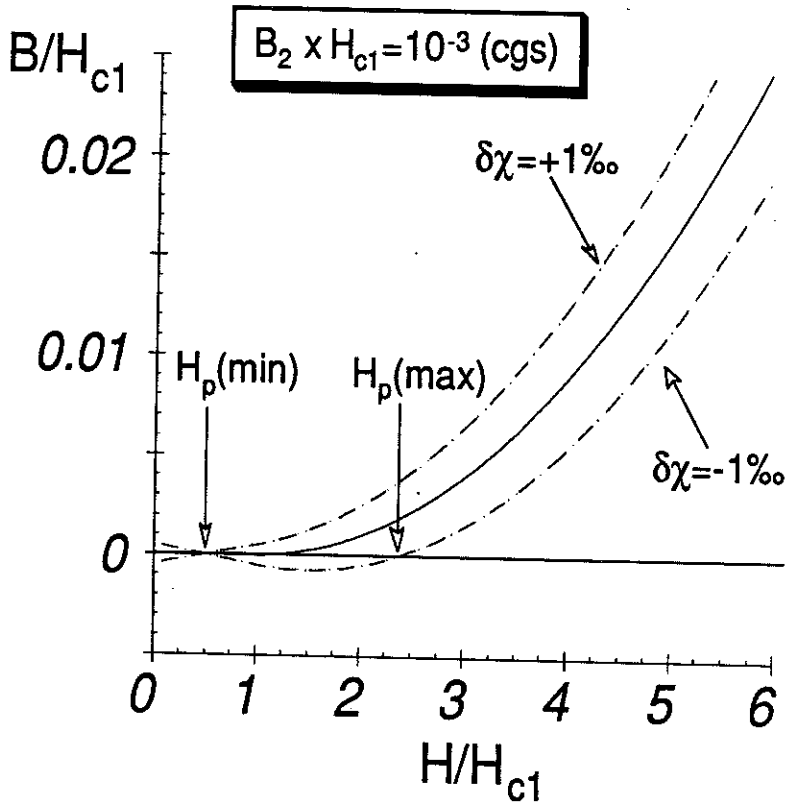


Fig.20 - *Même diagramme que pour la Fig.19, mais où B et H sont normalisés à H_{c1} (B/H_{c1} et H/H_{c1}) et pour des valeurs proches de nos données expérimentales (H_{c1}=100 Oe et $B_2=10^{-5}$ gauss^{-1}). Les deux courbes pointillées correspondent à une imprécision de χ de ±1‰.*

Supposons que les points de la région hachurée de la Fig.19 soient en moyenne distribués autour de B=0. Ceci revient à dire que la seule source d'incertitude est l'indétermination de χ_1. Dans ces conditions, nous pouvons écrire: $B_0=\delta\chi_1 H_{c1}/2$.

Dans la figure 20, nous représentons le rapport B/H_{c1} en fonction de H/H_{c1}. Nous avons choisi $B_2=10^{-5}$ gauss^{-1}, H_{c1}=100 Oe et nous avons rajouté un $\delta\chi$ de ±1‰ (χ_1 = -1 pour un supraconducteur). Comme nous allons le voir plus tard, ces valeurs correspondent aux ordres de grandeur que l'on trouve pour H//c et T<30 K.

A partir de la figure présentée ci-dessus, nous pouvons faire plusieurs remarques. Avec $B_0=\delta\chi_1 H_{c1}/2$, la limite inférieure H_p(min) sera toujours $H_{c1}/2$. D'autre part, pour nos résultats expérimentaux, nous estimons que l'imprécision de χ_1 (c.a.d. $\delta\chi$) est de l'ordre de 1‰. Ceci veut dire que la limite supérieure H_p(max) sera de l'ordre de $2H_{c1}$ pour B_2 de l'ordre 10^{-5}. La barre d'erreur sur H_{c1}, pour les points à basse température, est donc par principe extrêmement non symétrique et large. Ceci serait une explication possible pour le point H_{c1}(T=10 K) dans la figure 5 (publication dans la section 3.3) qui ne suit pas le comportement de saturation.

b) Méthode de dépouillement des données

Nous avons donc voulu re-tester nos données en tenant compte, d'une part de la nouvelle expression théorique disponible (Section 3.4.1), et d'autre part des remarques faites ci-dessus. Il fallait donc trouver une façon d'ajuster nos données expérimentales par une seule et même expression aussi bien au dessus qu'au-dessous de H_{c1}. La solution a été d'introduire une fonction de Heaviside définie par:

$$Y(x) = \begin{cases} 0 & ; \; x \leq 0 \\ 1 & ; \; x > 0 \end{cases}$$

Nous pouvons simplement ajuster numériquement nos données de B(H) par un ajustement par moindres carrés :

$$B(H) = a + bH + Y(H-H_{c1}^*)\,[B_1(H-H_{c1}^*) + B_2(H-H_{c1}^*)^2 + B_3(H-H_{c1}^*)^3] \qquad \textbf{(30)}$$

L'avantage réside dans le fait que les paramètres a et b de l'expression ci-dessus vont tenir compte d'une incertitude $\delta\chi$ et d'un léger décalage du zéro. On pourrait bien sûr essayer d'ajuster directement M(H) par l'expression ci-dessus en prenant $bH=\chi_1 H$.Cependant, dans ce cas, bH est le terme dominant dans M(H). L'avantage de traiter B(H) est que, a et bH n'étant que des corrections à B(H), l'ajustement sera beaucoup plus précis pour les autres paramètres : H_{c1}, B_1, B_2 et B_3.

En fonction de la gamme de champ et de température dans laquelle on se trouve, la signification physique des paramètres H_{c1}^*, B_1, B_2 et B_3 sera différente. Pour $H_{c1}<H<H^*$, $H_{c1}^*=H_{c1}$ et nos résultats montrent que $B_1\approx 0$ et $B_3(H-H_{c1})<<B_2$. Ceci est compatible avec ce que l'on trouve dans la littérature [18,19]. Pour $H>H^*$, nos données peuvent être décrites par $H_{c1}^*= m_{eq}+(H^*-H_{c1})/2$ (Eq.27 section 3.4.1), $B_1\approx 1$ et $B_2\approx 0$. D'une façon générale, nos résultats sont compatibles avec les dépendances en champ déduites par le modèle de Bean avec $m_{eq}\approx H_{c1}$ (voir Eq.27 et 29).

Etant donné que la plus grande source d'incertitude est certainement $\delta\chi$, nous avons calculé les barres d'erreur en faisant varier $\delta\chi$ de ± 5‰ pour H//c et ±3% pour H//(ab). Comme χ_1 est inversement proportionnel à (1-n) et que l'échantillon a la forme d'une plaquette (avec le petit axe le long de c), nous avons moins de signal, donc plus d'incertitude dans le plan (ab).

c) B(H) à T=10 K: régime H<<H*

Dans la Fig.21, nous présentons $B(H_i)$ à 10 K en fonction du champ interne H_i pour H//c. B(Hi) a été déduit à partir de $M - \chi_1 H$ où χ_1 est obtenu par un ajustement de moindres carrés de la partie linéaire de M(H). La ligne pleine correspond à l'ajustement par l'expression 30. Cet ajustement permet d'affiner la détermination de χ_1 en rajoutant $\delta\chi$=0,3%. On trouve pour H_{c1} une valeur de 300±100 Oe. Cette barre d'erreur a été obtenue en fixant dans l'Eq.30 $\delta\chi$ = (0,3+0,5)% pour la limite inférieure de H_{c1} et $\delta\chi$ = (0,3-0,5)% pour la limite supérieure. Comme nous l'avons vu dans la figure 20, le coefficient $B_2=(3,3\pm 0,4)\ 10^{-5}$ gauss^{-1} est assez faible pour expliquer la large barre d'erreur dans H_{c1}.

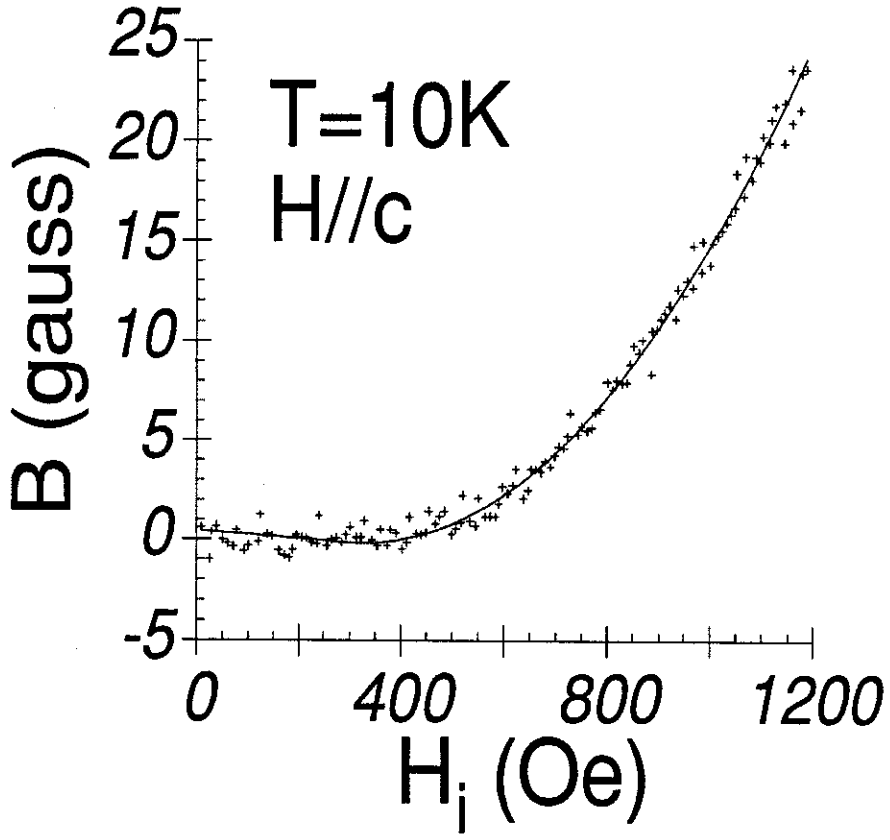


Fig.21 - B en fonction de H (//c) pour un monocristal de Y:248 à T=10 K. Le trait plein correspond à l'ajustement par la méthode des moindres carrés en prenant $m_{eq} = H_{c1}$. on obtient H_{c1}=300±100 Oe, B_2=(3,3±0,4)×10^{-5} gauss^{-1}. On notera qu'une correction de la pente initiale de l'ordre de $\delta\chi$=3‰ a été introduite par l'ajustement par moindres carrés.

Dans la Fig.22, nous représentons nos données pour H//a et H//b. Quantitativement, comme $B_{2,c} << B_{2,a}$ et $B_{2,b}$, il est impossible d'obtenir avec le modèle de Bean anisotrope l'anisotropie entre α_a et α_b (donc l'anisotropie entre les courants critiques dans le plan). Effectivement, pour T=10 K et en reprenant les résultats pour les trois orientations, on peut écrire le système d'équations :

$$\frac{1}{e_a\alpha_{a,c}} + \frac{1}{e_b\alpha_{b,c}} = B_{2,c} = 3{,}3\text{x}10^{-5} \qquad \textbf{(31a)}$$

$$\frac{1}{e_a\alpha_{a,b}} + \frac{1}{e_c\alpha_{c,b}} = B_{2,b} = 3{,}2\text{x}10^{-3} \qquad \textbf{(31b)}$$

$$\frac{1}{e_b\alpha_{b,a}} + \frac{1}{e_c\alpha_{c,a}} = B_{2,a} = 5{,}6\text{x}10^{-3} \qquad \textbf{(31c)}$$

Si maintenant on écrit ce système en termes de courants critiques de Bean J_c, on aura:

$$\frac{5}{2\pi e_a J_{c,b}} + \frac{5}{2\pi e_b J_{c,a}} = B_{2,c} = 3{,}3\text{x}10^{-5} \qquad \textbf{(32a)}$$

$$\frac{5}{2\pi e_a J_{c,c}} + \frac{5}{2\pi e_c J_{c,a}} = B_{2,b} = 3{,}2\text{x}10^{-3} \qquad \textbf{(32b)}$$

$$\frac{5}{2\pi e_b J_{c,c}} + \frac{5}{2\pi e_c J_{c,b}} = B_{2,a} = 5{,}6\text{x}10^{-3} \qquad \textbf{(32c)}$$

avec e_a=0,8mm; e_b=0,5mm et e_c=0,07mm.

Les indices après la virgule dans $B_{2,a}$, $B_{2,b}$ et $B_{2,c}$ indiquent la direction du champ, tandis que les indices après la virgule dans $J_{c,a}$ indiquent la direction de la densité de courants. Comme $B_{2,c}$ est environ 100 fois plus petit que $B_{2,b}$ et $B_{2,a}$ et comme e_c est seulement 10 fois plus petit que les autres dimensions, nous avons essentiellement les termes $1/e_aJ_{c,c}$ et $1/e_bJ_{c,c}$ qui vont contribuer dans $B_{2,b}$ et $B_{2,a}$. Ceci revient à supposer que, pour H//a ou H//b, l'échantillon se comporte formellement comme un échantillon bidimensionnel avec une épaisseur e_a ou e_b selon que le champ est orienté le long de b ou de a respectivement.

L'écart entre les courbes de $B(H_i)$, de la Fig.22 est simplement dû à la différence entre $B_{2,a}$ et $B_{2,b}$ qui sont d'ailleurs bien dans le rapport des épaisseurs e_b/e_a :

$$\frac{B_{2,a}}{B_{2,b}} \approx \frac{5{,}6 \text{ x } 10^{-3}}{3{,}2 \text{ x } 10^{-3}} = 1{,}75 \text{ alors que } \frac{e_b}{e_a} \approx \frac{800}{500} = 1{,}6$$

En multipliant 32b et 32c par des facteurs convenables et en effectuant après la somme des deux équations, il est possible d'isoler $J_{c,c}$ en terme de 32a. Dans ce cas, on peut calculer $J_{c,c}$= $3\text{x}10^3 A.cm^{-2}$.

Etant donné que les incertitudes sur $B_{2,a}$ et $B_{2,b}$ sont largement supérieures au %, il est impossible d'isoler les termes $J_{c,a}$ et $J_{c,b}$. Si on cherchait mathématiquement la solution du système d'équations 32, on obtiendrait $J_{c,b}$ négatif !

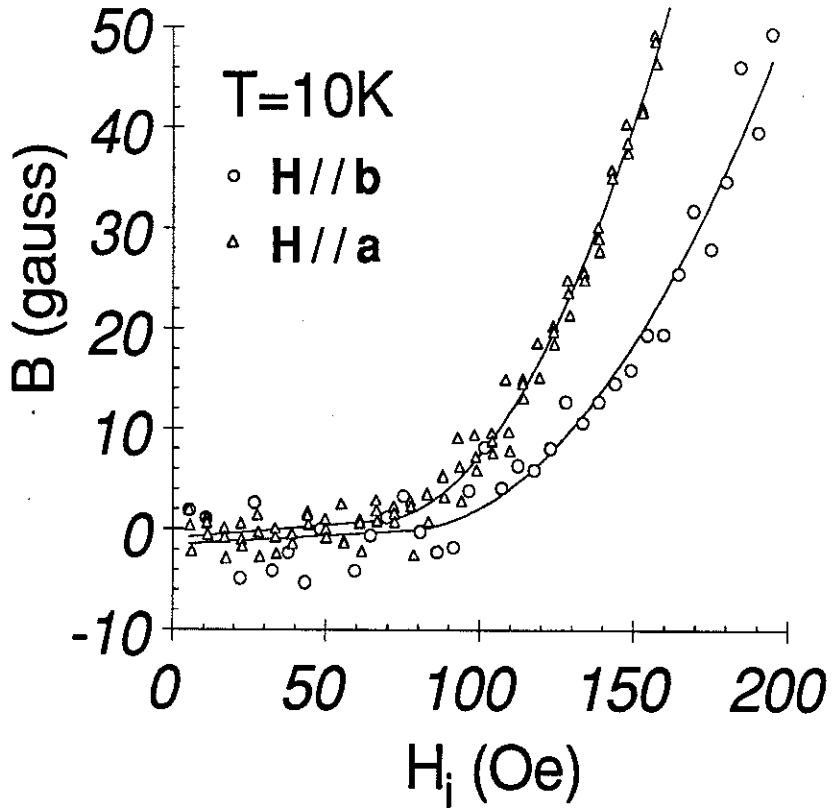


Fig.22 - *B en fonction de H pour un monocristal de Y:248 à T=10 K, pour H le long des axes b et a. Les traits pleins correspondent à l'ajustement par la méthode des moindres carrés en prenant $m_{eq} = H_{c1}$. Pour H//a, on a H_{c1}=65±5 Oe, B_2=(5,2±0,4) 10^{-3} gauss^{-1} et $\delta\chi$=2%. Les paramètres pour H//b sont H_{c1}=70±10 Oe, B_2=(3,2±0,1) 10^{-3} gauss^{-1} et $\delta\chi$=0,8‰. La différence entre les deux courbes peut être expliquée par la géométrie de l'échantillon.*

Si on suppose que l'anisotropie entre les axes a et b est faible, il est possible de calculer, à partir de l'équation 32a, les courants critiques de Bean dans le plan ab : ($J_{c,(ab)}$). En reprenant les dimensions de l'échantillon, on obtient $J_{c,(ab)} \approx 8 \times 10^5$ A.cm^{-2}, ce qui correspond à une anisotropie de 300 pour les courants critiques à 10 K.

d) B(H) au-dessus de 10 K

Nous avons fait une étude systématique analogue à celle qui a été décrite pour T=10 K pour des températures entre 10 et 65 K. Pour T>65 K, nous n'avions plus assez de précision sur notre magnétomètre pour pouvoir poursuivre l'étude à proximité de T_{c0} =73,2 K (déterminée à partir des mesures de transport). Dans cette étude où nous regardons H_{c1} entre $0,1T_{c0}$ et $0,9T_{c0}$, nous observons plusieurs régimes. Pour H//c nous sommes jusqu'à 60 K dans la situation où $m_{eq} \approx H_{c1}$ et $H \ll H^*$. Pour cette orientation, les températures T=60 K et T=65 K constituent des situations un peu plus délicates qui seront traitées en détail par la suite. Pour H//(a,b), à partir de 30 K, nous sommes déjà dans la situation où on ne peut pratiquement plus distinguer H_{c1} de H* : B(H) est nul, puis varie linéairement avec H, avec une pente qui peut être supérieure à 1. C'est un point que nous avons déjà abordé dans la discussion de l'Eq.27 (section 3.4.1.b) : $B(H) \approx H - m_{eq}$. On observe à H_{c1} une discontinuité de B(H), et à $H>H_{c1}$ une variation de B(H) qui dépend fortement de $M_{eq}(H)$.

Dans les tableaux 1, 2 et 3, nous avons compilé nos résultats. Les coefficients B_1 et B_2 correspondent aux termes $(H-H_{c1})$ et $(H-H_{c1})^2$ de l'ajustement des données par l'expression 30. Les trois étoiles (***) correspondent aux cas où le paramètre en question a été considéré comme nul. Pour H//a et H//b par exemple, pour T≤20 K, B(H) se comporte comme $(H-H_{c1})^2$, de sorte que $B_1=0$. Pour T>20 K, comme B(H) suit une loi du type linéaire en H, on a $B_2=0$. Le cas où $B_2=0$ correspond à la situation où H^*-H_{c1} n'est plus décelable. Dans la figure 23, nous montrons justement un cas typique où l'on ne peut plus déceler de différence entre H_{c1} et H*. Effectivement, si on suppose que pour H//(ab) on a un comportement de J_c exponentiel en T (comme pour H//c), il est facile de montrer à partir de l'extrapolation de B_2 au-dessus de 30 K que $H_{c1}-H^*<4$ Oe ! Nous sommes donc tout de suite au-dessus de H*. Sur la Fig.23, les pentes de B(H) pour H>H* (qui correspond à peu de chose près à H_{c1}) sont de l'ordre de 1,2 (unités cgs). Cette valeur plus importante que ce à quoi on s'attendait pour B(H) à partir de l'Eq.27 (pente égale à 1) vient de l'influence de $M_{eq}(H)$.

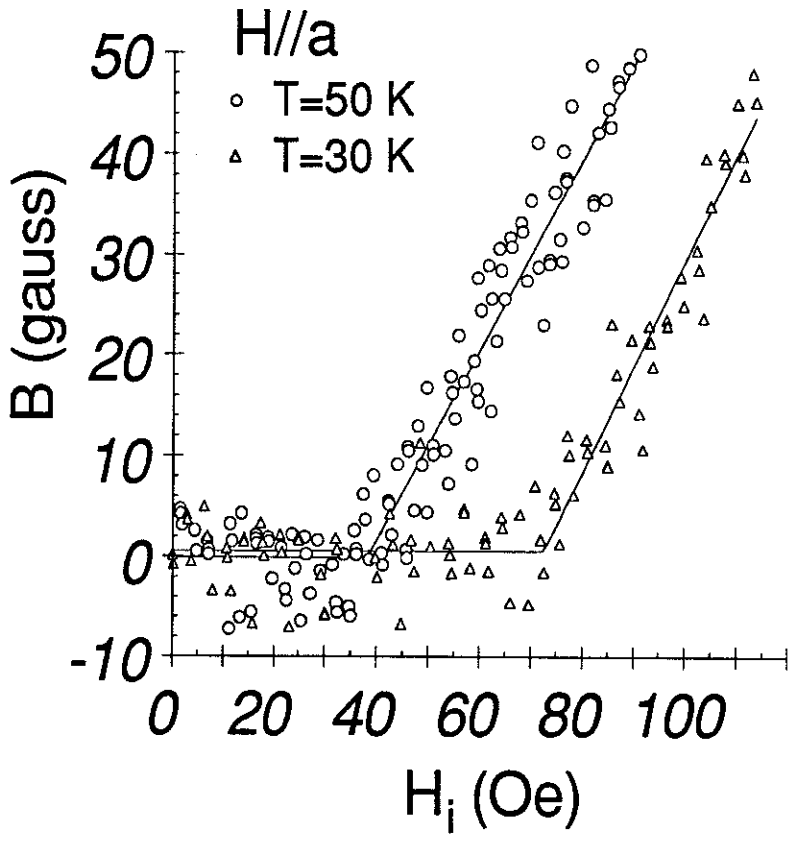


Fig.23 - B en fonction de H pour un monocristal de Y:248 pour H//a, T=30 et 40 K. Les résultats apparaissent dans le tableau 3. On notera que $\delta\chi$ pour T=30 K et 50 K sont 1,4% et -4,2% respectivement.

Pour H//c et T≥60 K, il est plus difficile de savoir dans quel régime on se trouve. Les données de $B(H_i)$ peuvent être aussi bien ajustées par le modèle de Bean en prenant $m_{eq}=0$ (c.a.d. en $H^2-H_{c1}^2$) que par une loi linéaire en H. Dans l'exemple de la Fig.24, nous avons ajusté $B(H_i)$ par l'expression quadratique en H de l'Eq.29 avec $m_{eq}=0$. Le courant critique de Bean calculé à partir de B_2 est cohérent avec les résultats à plus basse température (voir Fig.25).

Un simple ajustement linéaire aurait donné des résultats similaires pour H_{c1}. On notera tout de même qu'on ne peut pas affirmer qu'on est au-dessus de H*. En effet, la pente est très inférieure à 1 (elle est de 0,44) et d'autre part on peut estimer $H^*-H_{c1}=2/B_2=600$ Oe à 60 K à partir de l'extrapolation de $B_2(T)$ (voir Fig.25).

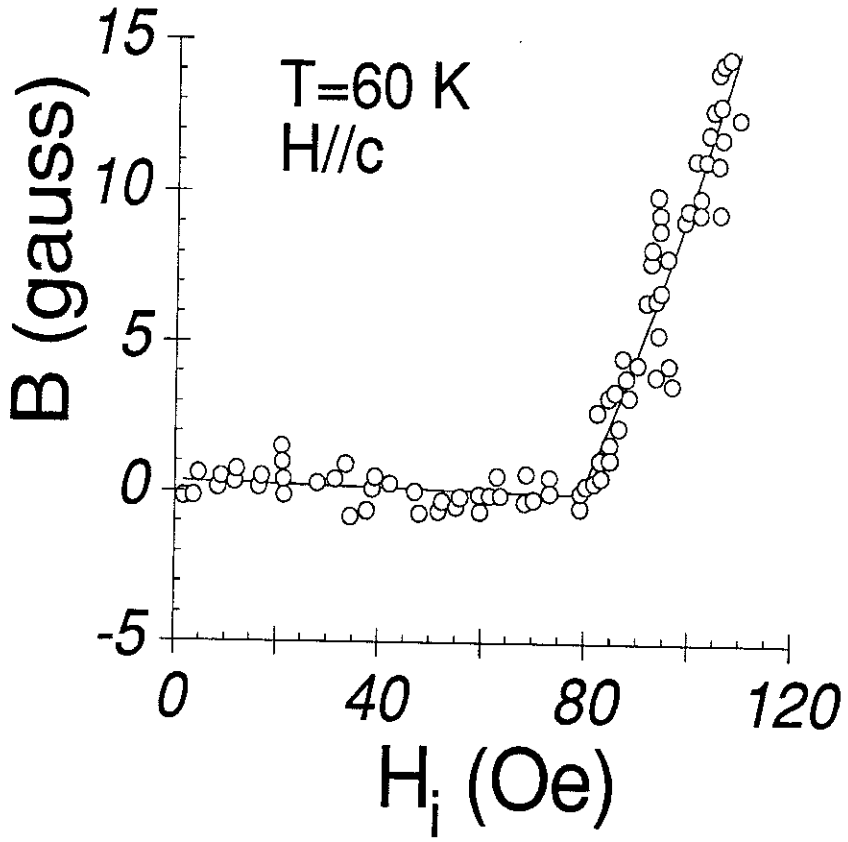


Fig.24 - B en fonction de H pour un monocristal de Y:248 à T=60 K et H//c. Ici, nous avons calculé $\delta\chi$=-4‰ et m_{eq}=0. Un ajustement linéaire au-dessus de H_{c1} donnerait une pente de 0,44.

e) Courants critiques de Bean J_c

A partir des relations 32, on peut calculer les courants critiques $J_{c,c}$ et $J_{c,(a,b)}$. Malheureusement, on ne peut pas distinguer une éventuelle anisotropie entre les axes a et b. Comme on l'a fait pour T=10 K, nous allons supposer que les courants critiques le long des axes a et b sont du même ordre de grandeur. Dans la Fig.25, on représente les courants critiques dans le plan (a,b) et le long de l'axe c. On note un comportement exponentiel fortement marqué: $J_{c,(a,b)}=J_{c,(a,b)}(T=0)\ e^{-\alpha T}$. Dans le cadre d'un processus thermiquement activé, on peut écrire $\alpha=\ln(t/\tau_0)/U_0$, où t est le temps de mesure, τ_0 le temps caractéristique de déplacement d'un vortex en absence de barrières et U_0 l'énergie de pinning moyenne. On a choisi ici $\tau_0 = 10^{-9}$ s. A partir de nos courbes de B(H), on obtient que les

les courants critiques peuvent être décrits par $J_{c,(a,b)}(T=0)=2,6x10^6$ A.cm^{-2} et $U_0=190$ K pour H//c. Tandis que pour H//(ab), à partir des valeurs moyennes de H//a et H//b pour 10 et 20 K, nous obtenons: $J_{c,c}(T=0)=2x10^4$ A.cm^{-2} et $U_0=120$ K. On notera que l'anisotropie de $J_c(T=0)$ est cette fois-ci de 130 (alors que pour T=10 K nous avons une anisotropie de 300), tandis que U_0 est pratiquement le même pour les orientations parallèle et perpendiculaire au plan (ab).

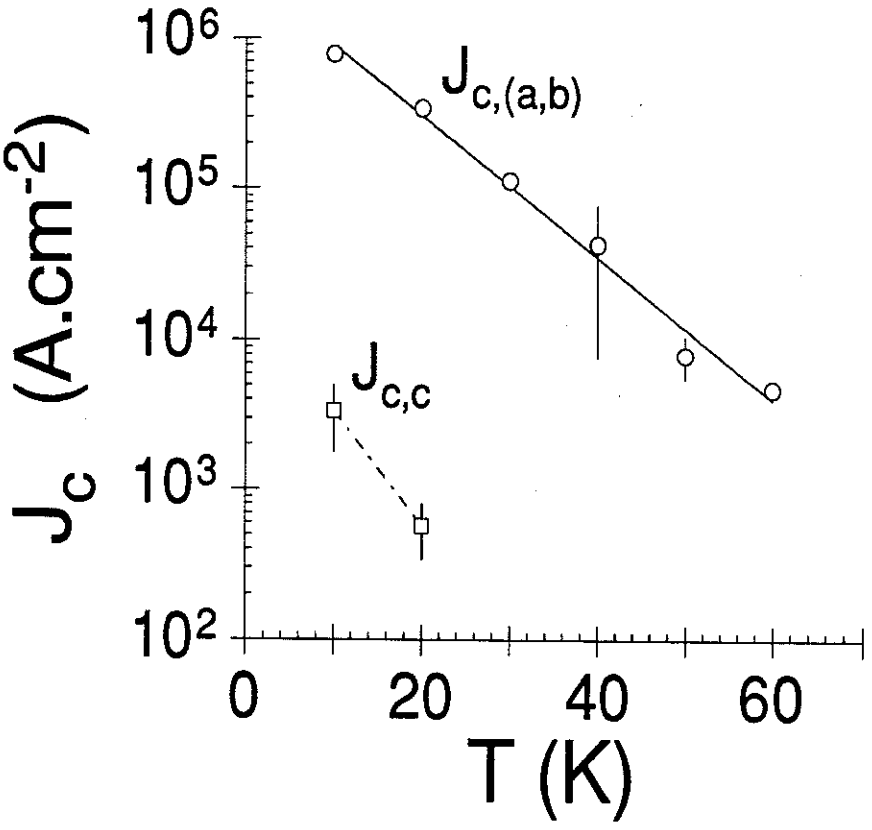


Fig.25 - J_c en fonction de T pour un monocristal de Y:248. Les traits correspondent aux ajustements par moindres carrés par une loi exponentielle. Pour $J_{c,c}$ la loi sert seulement à titre de comparaison avec $J_{c,(a,b)}$. Pour $J_{c,(a,b)}$ on obtient $J_{c,(a,b)}(T=0) = 2,6x10^6$ A.cm^{-2} et une énergie d'activation $U_0=190$ K. Pour $J_{c,c}$ on obtient $J_{c,c}(T=0) = 2x10^4$ A.cm^{-2} et une énergie d'activation $U_0=120$ K.

T (K)	H_{c1} (Oe)	B_2 (gauss^{-1})
10	300 ± 100	(3,3 ± 0,4) 10^{-5}
20	200 ± 70	(7,0 ± 0,3) 10^{-5}
30	190 ± 30	(2,3 ± 0,3) 10^{-4}
40	172 ± 5	(6,1 ± 0,5) 10^{-4}
50	136 ± 3	(4,5 ± 0,4) 10^{-3}
60	79 ± 1	(2,8 ± 0,3) 10^{-3}
65	60 ± 1	***

Tableau 1 - H_{c1} et le coefficient B_2 pour un monocristal de Y:248 avec H // c. Pour T = 65 K, B_1 vaut 0,46.

T (K)	H_{c1} (Oe)	B_2 (gauss^{-1})	B_1 (unités cgs)
10	80 ± 10	(3,2 ± 0,1) 10^{-3}	***
20	50 ± 20	(2 ± 1) 10^{-2}	***
30	60 ± 10	***	1,3 ± 0,1
40	60 ± 10	***	1,7 ± 0,1
50	45 ± 5	***	1,4 ± 0,1
60	30 ± 1	***	1,9 ± 0,2
65	26 ± 1	***	1,3 ± 0,1

Tableau 2 - H_{c1} et les coefficients B_2 et B_1 pour un monocristal de Y:248 avec H // b.

T (K)	H_{c1} (Oe)	B_2 (gauss^{-1})	B_1 (unités cgs)
10	64 ± 4	(5,6 ± 0,1) 10^{-3}	***
20	62 ± 5	(2,9 ± 0,5) 10^{-2}	***
30	70 ± 8	***	1,0 ± 0,2
40	55 ± 2	***	1,5 ± 0,1
50	40 ± 5	***	0,9 ± 0,1
60	21 ± 3	***	1,0 ± 0,3
65	13 ± 3	***	1,0 ± 0,2

Tableau 3 - H_{c1} et le coefficient B_2 pour un monocristal de Y:248 avec H // a.

f) Avec quel modèle expliquer nos résultats ?

Pour le système Y:248 nous avons deux images possibles. Soit il s'agit d'un supraconducteur anisotrope décrit par le modèle de GL, soit nous avons affaire à un système de couches supraconductrices (correspondant aux plans ou blocs de plans CuO_2) couplées par des jonctions Josephson (modèle de Lawrence & Doniach).Ces modèles ont déjà été décrits dans le chapitre 2.4.

Comme nous l'avons vu précédemment, les deux modèles donnent le même résultat pour H//c (H perpendiculaire aux couches). La différence réside dans les expressions pour H//(a,b) (H parallèle aux couches) que nous rappelons ci-dessous :.

$$H_{c1,y}=\frac{\Phi_0}{4\pi\lambda_x\lambda_c}\ln\left(\sqrt{\frac{\lambda_x\lambda_c}{\xi_x\xi_c}}\right) \qquad \textbf{GL anisotrope}$$

$$H_{c1,(ab)}=\frac{\Phi_0}{4\pi\lambda_{(ab)}\lambda_c}\ln\left(\frac{\lambda_{(ab)}}{d}\right) \qquad \textbf{LD}$$

Dans le modèle de GL anisotrope, les indices x et y doivent être remplacés par a et b. Pour H//a, on a y=a et x=b tandis que pour H//b on pose y=b et x=a.

Le modèle de LD ne prévoit pas d'anisotropie entre a et b. Dans la relation ci-dessus, $\lambda_{(ab)}$ correspond simplement à la longueur de pénétration dans le plan (a,b).

Nous pouvons essayer d'ajuster nos données respectivement par le modèle de GL anisotrope et LD en introduisant des dépendances en températures de λ et $K=\lambda/\xi$ extraites d'un modèle à deux fluides [14] :

$$\lambda^{-2}=\lambda_0^{-2}\left(1-\left(\frac{T}{T_{c0}}\right)^4\right)$$

$$K=\frac{K_0}{1+\left(\frac{T}{T_{c0}}\right)^2}$$

On notera que ce modèle à deux fluides a été utilisé avec succès pour ajuster les données expérimentales de λ à partir de mesures de μSR [25] et de pénétration rf [26].

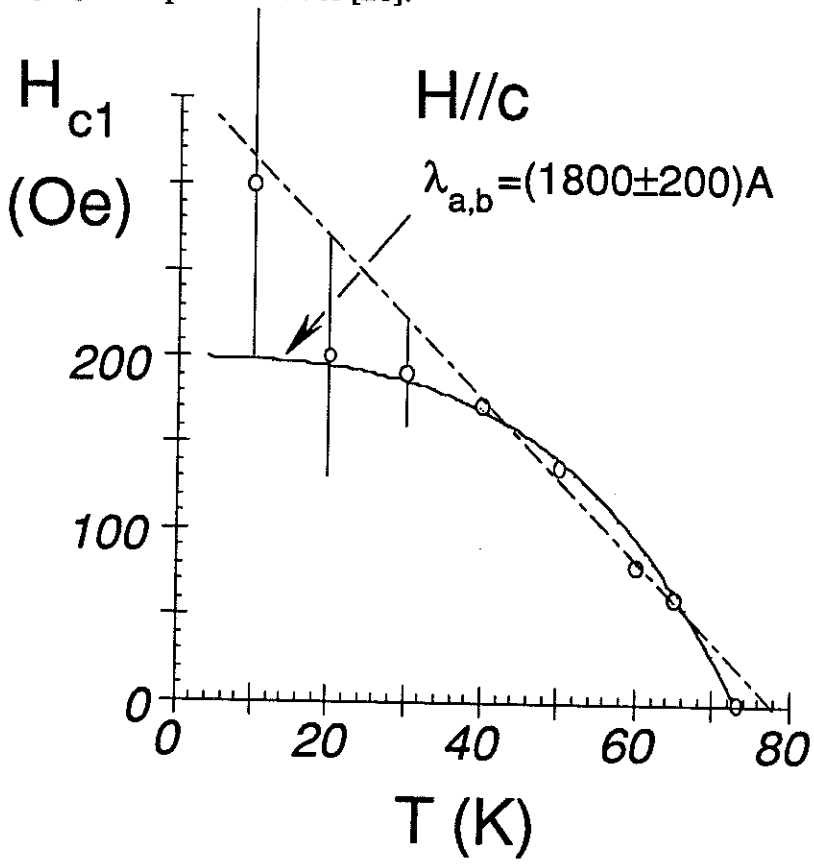


Fig.26 - $H_{c1}(T)$ pour H//c. Le trait plein correspond au fit par un modèle de Ginzburg-Landau en introduisant les dépendances en température de λ et ξ données par un modèle de deux fluides. La ligne pointillée correspond à ajuster les données par une loi linéaire.

Dans la figure 26 nous représentons H_{c1} en fonction de T pour H//c. Le trait plein correspond à l'ajustement par l'expression de GL (Eq.22). Pour $\xi_{(ab)}$ nous avons pris la valeur déterminée à partir de mesures de transport effectuées sur le même échantillon [33]. Il est intéressant de noter que la valeur de $\lambda_{(ab)}$ ajustée ($\lambda_{(ab)}$=1800±200Å) est assez voisine de celle déterminée pour le composé Y:123 ($\lambda_{(ab)}$=1420±30Å) [25].

Une simple loi linéaire (qui correspond à la plus simple approximation) dans le cadre du modèle de GL aurait aussi passé par les barres d'erreur, cependant étant donné la nature de la détermination de H_{c1} on s'attend à ce que les points à basse température soient systématiquement **sur estimés** (voir pointillé dans la Fig.26). D'autre

part, à partir d'un tel comportement linéaire, on peut calculer T_{c0}=78 K. La seule façon d'expliquer un tel écart entre T_{c0} à H=0 et T_{c0} déterminé à partir de l'extrapolation de $H_{c1}(T)$ serait de considérer comme possible des mécanismes du type Kosterlitz-Thouless (création de paires vortex-antivortex par activation thermique) [34]. Dans le chapitre des fluctuations nous allons voir que cette possibilité est assez improbable. Nous avons donc écarté la possibilité d'une loi linéaire.

D'autre part nous devons noter que toute subtilité liée à un comportement non standard de ξ avec T correspondant à un comportement de H_{c2} avec une courbure positive est complètement noyée dans le terme logarithmique dans l'expression de H_{c1} (Eq.22,pag.17).

Une fois traité le problème de l'orientation H//c, nous avons attaqué les orientations H//a et H//b. D'un côté nous avons voulu voir s'il était possible de distinguer avec nos données si H_{c1} dans le plan (ab) suit le modèle de GL ou LD. Dans la Fig.26, nous montrons $H_{c1}(T)$ pour H//a et H//b. La ligne pleine correspond au fit par GL. Au lieu d'ajuster les paramètres $\lambda_{(a,b)}$ et $\xi_{(a,b)}$ à T=0 K dans l'Eq.22 nous avons écrit $\lambda_x=\sqrt{m_x/m_y}\,\lambda_y$ et $\xi_x=\sqrt{m_y/m_x}\,\xi_y$ en ajustant pour le rapport m_x/m_y. En fonction de l'orientation nous remplaçons x et y par a,b ou c. Le paramètre $\lambda_{(a,b)}$ est extrait des résultats pour H//c, tandis que T_{c0} = 73,2 K et $\xi_{(ab)}$ = 40 Å sont obtenus à partir des expériences de transport réalisées sur le même échantillon [33].

Dans la Fig.27 nous reproduisons le même graphique, mais cette fois-ci avec un modèle de LD. Les deux ajustements donnent des résultats peu différents. A partir de nos points expérimentaux, il est impossible de distinguer entre les deux modèles !

D'autre part, étant donné les barres d'erreur, on ne peut pas affirmer qu'il y ait une anisotropie dans le plan (ab). Cependant, sauf pour T=20 et 30 K, tous les points correspondant à H//b sont au-dessus des points correspondant à H//a. Récemment le même type de résultats a été retrouvés par Umezawa et al [16] sur des monocristaux de Y:123. Pour le système Y:123 des déterminations de l'anisotropie de H_{c2} ont montré cependant qu'il devrait y avoir une anisotropie de l'ordre de 1,2 entre les axes a et b [35].

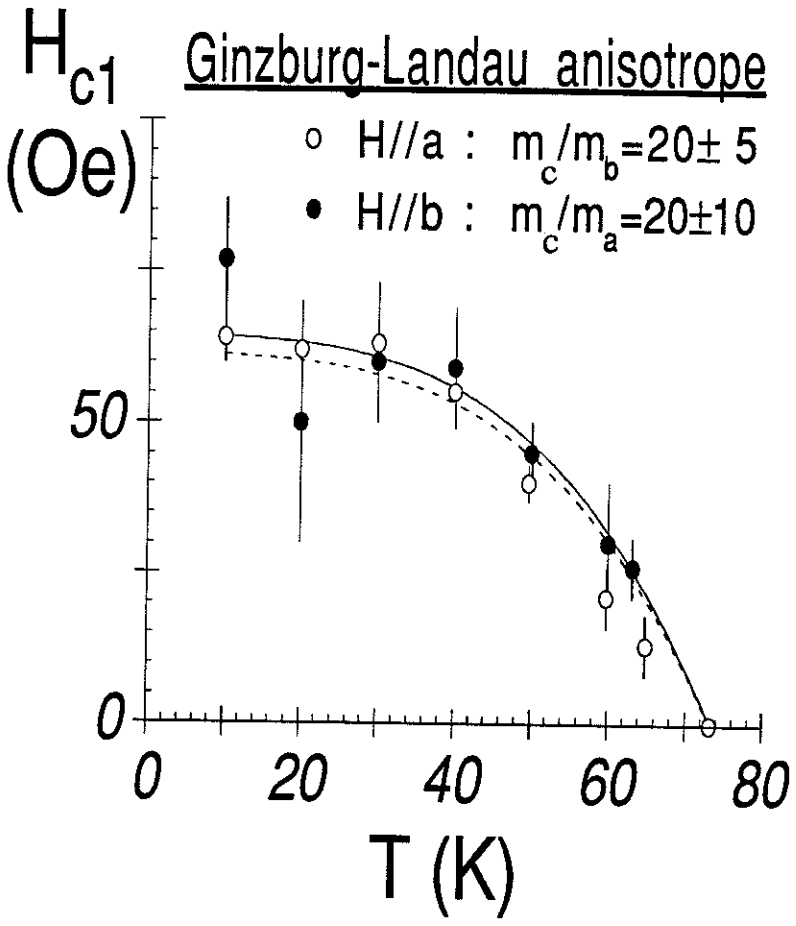


Fig.26 - $H_{c1}(T)$ pour le champ orienté le long des axes a et b. Le meilleur ajustement par le modèle de GL anisotrope est représenté par une ligne pleine pour H//b et pointillée pour H//a. On représente aussi les rapports des masses effectives obtenues à partir des ajustements.

On note qu'à haute température les points expérimentaux ont plutôt tendance à se placer au dessous de la courbe théorique. Ceci peut être expliqué avec l'idée selon laquelle l'extrapolation à B=0 de B(H) pour H>>H* serait m_{eq} (Eq.27). Effectivement, H_{c1} est la limite supérieure de m_{eq}.

Dans le tableau 4, nous résumons touts les résultats obtenus à partir des ajustements par les modèles de LD et GL. Etant donné que nous avions un doute par rapport au choix de la distance interatomique pour d dans le modèle de LD, nous avons pris systématiquement d=4Å et d=13Å [36] . Ces deux valeurs correspondent respectivement aux distances entre deux plans successifs de CuO_2 et deux blocs de plans CuO_2-Y-CuO_2.

GL anisotrope		Lawrence Doniach		
$\frac{m_z}{m_a}$	$\frac{m_z}{m_b}$	$\frac{m_z}{m_a}$	$\frac{m_z}{m_b}$	d (Å)
20±10	20±5	30±10	30±10	4
		19±7	20±8	13

***Tableau 4** - Rapport des masses effectives obtenus à partir des ajustements par les différentes expressions théoriques.*

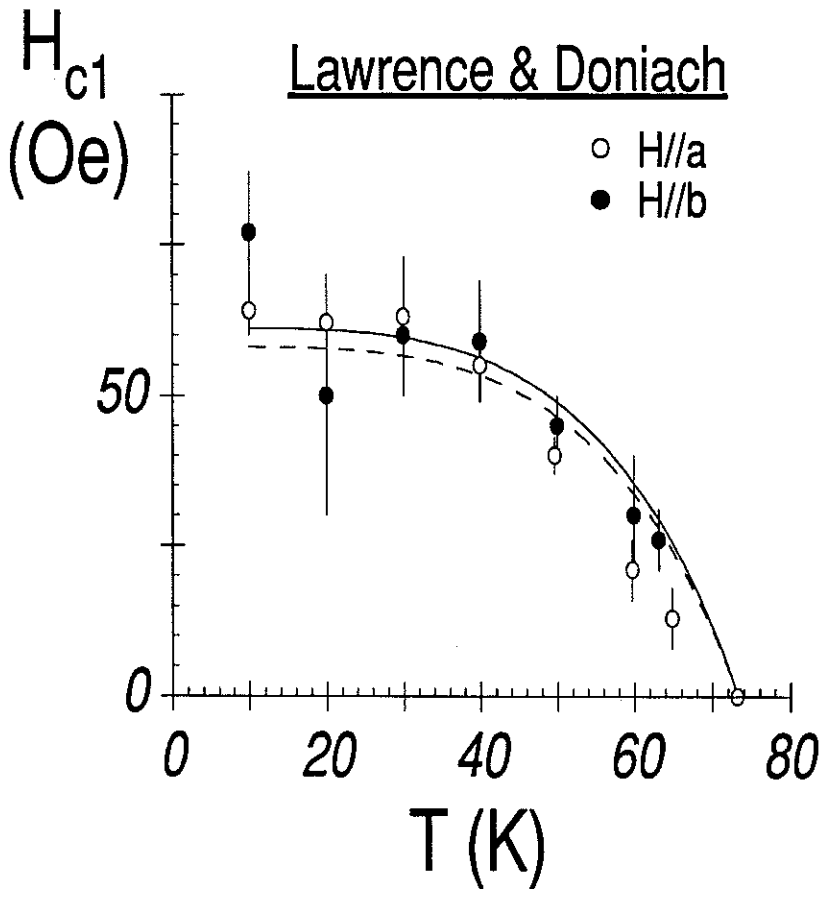


***Fig.27** - Le meilleur ajustement par le modèle de Lawrence-Doniach est représenté par une ligne pleine pour H//b et pointillée pour H//a Les rapports de masses effectives sont 30±10 pour H//a et H//b en prenant d=4Å. Le rapport des masses effectives sera 20 pour d=13Å (voir tableau 4).*

On notera sur le tableau la ressemblance entre les différents résultats. En premier lieu, on ne voit aucune anisotropie dans le plan (a,b). D'autre part, que ce soit à partir d'un modèle de LD où de GL anisotrope, on trouve une anisotropie des masses effectives entre 20 et 30.

Nous allons finir ce chapitre avec la Fig.28 qui résume en quelque sorte le problème lié au choix à partir des données expérimentales, du meilleur modèle théorique. Nous avons tracé la différence entre $H_{c1,(ab)}$ calculé selon deux modèles (LD et GL) en reprenant les paramètres ajustés à partir de nos données expérimentales.

Pour pouvoir distinguer entre LD et GL anisotrope, il faudrait avoir des barres d'erreur dans la détermination de $H_{c1,(ab)}$ plus petites que 0,5 Oe ! D'autre part, pour pouvoir distinguer entre d=4Å et d=13Å (traits plein et pointillé) les barres d'erreur devraient être encore plus petites!

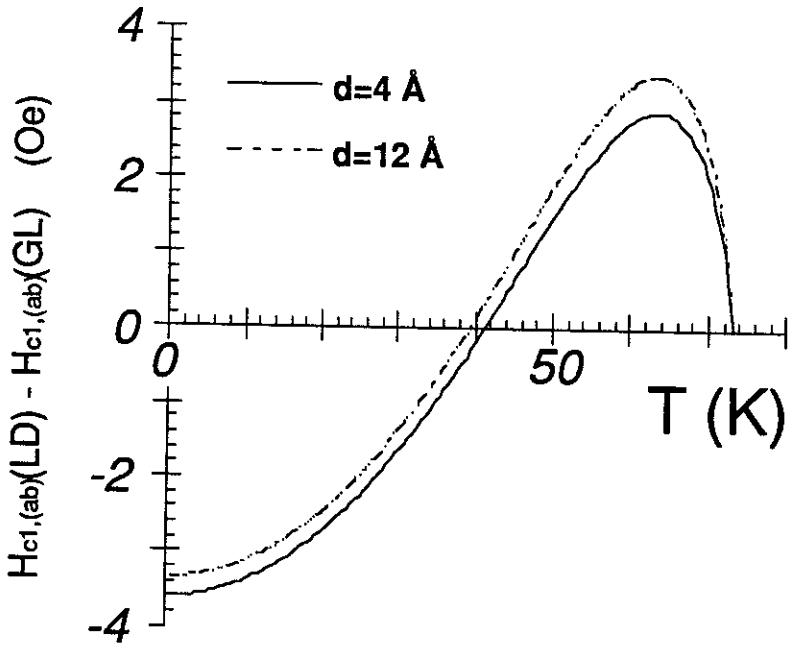


Fig.28 - Différence entre les expressions de LD et GL anisotrope en reprenant les paramètres ajustés par nos données expérimentales. Nous avons prit T_{c0} et $\xi_{(a,b)}$ des mesures de transport réalisées sur le même échantillon. La longueur de pénétration $\lambda_{(a,b)}$ vient de $H_{c1}(T)$ pour H//c et les valeurs de rapports des masses effectives sont répertoriés sur le Tableau 4.

Pour conclure cette partie sur la mesure de H_{c1} sur le composé Y:248, nous pouvons faire plusieurs remarques.

Pour H//(a,b), nous avons trouvé une saturation de $H_{c1}(T)$ à basse température. En dépit de la grande précision de notre montage, nous

n'avons pu déceler aucune anisotropie entre les axes cristallographiques a et b. D'autre part, il faudrait aussi une beaucoup plus grande précision pour pouvoir distinguer entre un modèle de GL anisotrope et un modèle de plans supraconducteurs couplés par des jonctions Josephson.

Pour H//c nous retrouvons une tendance à la saturation à basse température comme pour H//(a,b). Il y a cependant une remontée à T=10 K qui peut être due à un artefact expérimental. Effectivement dans une situation où il y a fort pinning il est facile de montrer qu'une petite erreur dans la détermination du zéro d'une part, mais aussi dans la détermination de la pente initiale χ_1 peuvent entraîner une sur-estimation importante de H_{c1} (jusqu'à 3 fois).

A partir des ajustements pour H//(a,b) nous avons trouvé des anisotropies de masses effectives de l'ordre de 25 entre les orientations dans le plan (a,b) et perpendiculaire (direction c). Ce résultat est très proche des résultats obtenus pour le composé Y:123 [25,26,35]. Une anisotropie entre les masses effectives de 25 correspond à une anisotropie $\lambda_c/\lambda_{(a,b)} = 5$. Le même résultat a été obtenu pour le composé Y:133 [25].

Une fois que nous avons étudié $H_{c1}(T)$ et son anisotropie pour le composé Y:248, nous allons par la suite étudier H_{c2} sur le même échantillon. Etant donné les petites dimension de l'échantillon et les importantes valeurs de H_{c2}, nous allons essayer de faire cette étude à partir de mesures de transport.

4 Détermination de H_{c2} pour le composé $Y_2Ba_4Cu_8O_{16}$

4.1 Difficulté liée à la détermination de H_{c2} à partir des mesures de magnétorésistance.

4.1.1 Comparaison entre les H-Tc et les supraconducteurs classiques

Dans les supraconducteurs classiques, il est assez facile de déterminer H_{c2} à partir des courbes de magnétorésistance. Si les courants de mesure sont faibles par rapport à un courant critique J_c, la résistivité est pratiquement nulle jusqu'au voisinage de H_{c2}. En effet, la force de Lorentz ($\mathbf{J} \wedge \Phi_0/c$) par vortex est inférieure aux forces de pinning. A la transition supraconductrice, la résistivité monte rapidement jusqu'à la résistivité à l'état normal ρ_n (voir Fig.29). Le courant critique J_c correspond au principe d'état critique introduit précédemment dans le modèle de Bean (Section 3.4.1).

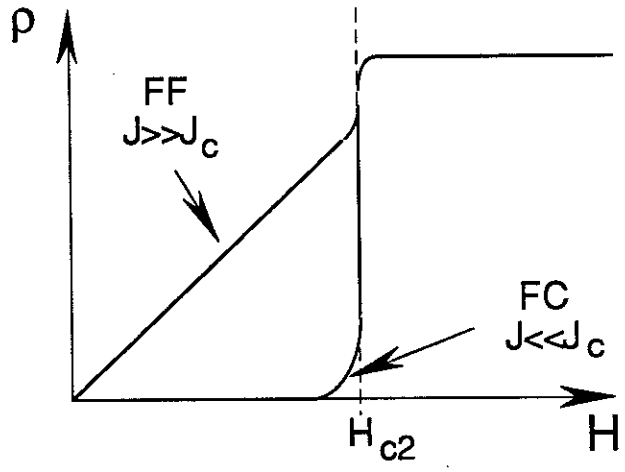


Fig. 29 - Représentation schématique de la magnétorésistance des supraconducteurs traditionnels. Pour des courants de mesure comparables aux courants critiques, on observe un régime de Flux Flow (FF). Pour des courants faibles, la transition résistive est beaucoup plus étroite. Une résistivité due au mouvement thermiquement activé des vortex a lieu près de H_{c2}.

La largeur de la transition n'est pas assez importante au point de rendre ambigüe la détermination de la dépendance de H_{c2} avec la température T.

Le pied de transition juste au-dessous de H_{c2} correspond à un régime de Flux Creep (FC) où les fluctuations thermiques permettent occasionellement de dépiéger des vortex.

Dans cette figure, nous représentons aussi la situation où le courant de mesure J est plus important que J_c. Dans cette situation, la force de Lorentz est assez importante pour dépiéger les vortex des centres de pinning. Il y a donc un fluage des vortex, limité par une viscosité, avec une dissipation d'énergie qui va correspondre à un régime ohmique nommé: "Flux Flow" ($\rho \approx \rho_n B/B_{c2}$).

Dans la figure 30, nous représentons une courbe de magnétorésistance typique d'un monocristal d'Y:123 pour deux orientations du champ appliqué (H//(a,b) et H⊥(a,b)) [37]. Les courants de mesure (de l'ordre du mA) sont beaucoup plus petits que le courant critique J_c.

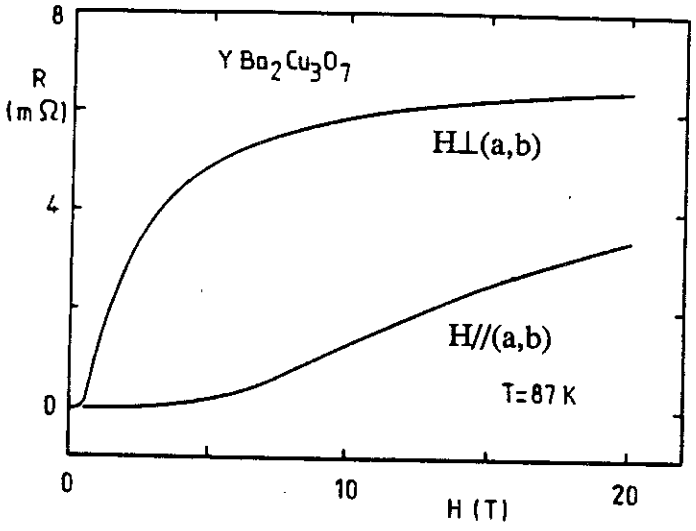


Fig. 30 - Magnétorésistance d'un monocristal de Y:123 selon Tholence et al [37]. On représente deux orientations du champ (H//(a,b) et H⊥(a,b)).

On notera l'énorme largeur de transition qui rend difficile toute détermination de $H_{c2}(T)$. D'autre part, même pour des champs

de 20 teslas, nous sommes assez éloignés de la résistivité à l'état normal.

4.1.2 Magnétorésistance : une interpénétration de plusieurs régimes ?

Cette grande largeur de transition dans les H-Tc n'est pas encore complètement expliquée. En particulier, dans une courbe de magnétorésistance, nous avons au moins deux phénomènes physiques distincts qui vont agir au-dessus et au-dessous de la transition. Cette idée est illustrée par la Fig.31 où l'on montre que, pour $H < H_{c2}$, la résistivité serait dictée par la dynamique des vortex tandis que pour $H > H_{c2}$ on s'attend à avoir une importante contribution des fluctuations supraconductrices.

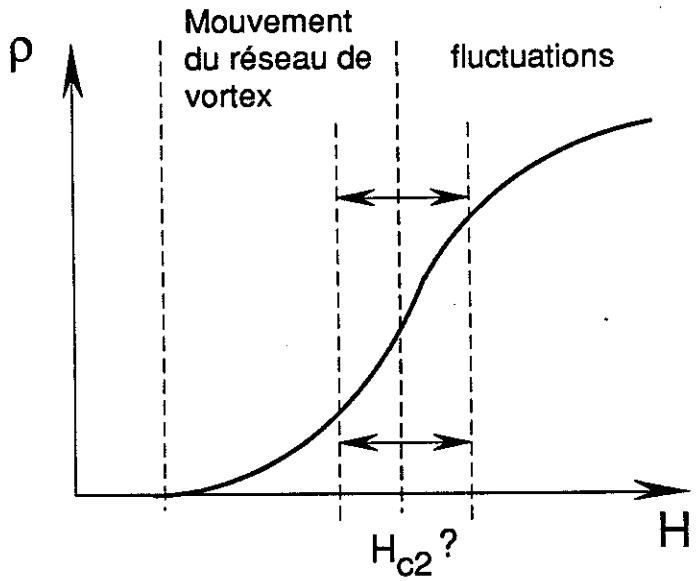


Fig. 31 - *Il est particulièrement difficile de situer le champ critique H_{c2}, en particulier dans la situation où les phénomènes qui ont lieu des deux côtés de la transition sont encore mal compris.*

Au-dessous de la transition supraconductrice, nous avons une dissipation essentiellement provoquée par la dynamique du réseau de vortex. Dans les H-Tc, le FC est observé même très loin de la région critique. Pour cette raison, beaucoup d'auteurs ont rebaptisé le mécanisme de dépiégeage comme le Giant Flux Creep [38] aussi connu sous le nom de Thermally Assisted Flux Flow

(TAFF) [38,39]. L'élan de créativité ne s'est pas du tout arrêté là, des idées de fusion du réseau de vortex et même de création de paires vortex-antivortex (mécanismes du type Kosterlitz-Thouless) ont été introduites pour expliquer notamment la ligne d'irréversibilité.

En dépit de tout le travail développé jusqu'à présent, il n'y a pas pour le moment de vision claire et simple du problème de la dissipation au-dessous de H_{c2}.

Au-dessus de la transition supraconductrice, on s'attend à avoir une large contribution des fluctuations de la supraconductivité [40,41]. Effectivement, si on regarde l'incrément de conductivité dû aux fluctuations, on s'attend à avoir, au-dessus de la température critique T_{c0}, une contribution à champ nul du type [14,42] :

$$\sigma' \alpha \frac{1}{\xi} \sqrt{\frac{m_{(a,b)}}{m_c}} \left(\frac{T-Tc0}{Tc0} \right)^{-(d-4)/2}$$

où d est la dimension d'espaçe. Dans les H-Tc, ξ est très petit comparativement aux supraconducteurs classiques (de l'ordre de 10 Å) et en même temps le rapport des masses effectives est important $m_{(a,b)}/m_c \approx 25$ à 100. Ces deux faits vont augmenter considérablement la contribution des fluctuations dans les supraconducteurs à H-Tc.

Le problème des fluctuations sera traité plus en détail dans le chapitre 5 de ce travail.

4.2 Détermination de H_{c2} pour H//c à partir de méthodes classiques.

4.2.1 Introduction

Dans cette partie, nous allons détailler comment nous avons déterminé $H_{c2}(T)$ pour H le long de l'axe cristallographique c. Le problème de la mesure du champ H_{c2} pour H le long du plan sera discuté en détail dans le chapitre 4.3 qui traitera spécifiquement de l'anisotropie de H_{c2}.

4.2.2 Détermination classique

Comme nous l'avons vu ci-dessus, le problème de la détermination du champ critique H_{c2} n'est pas facile. Cependant, si on veut comparer nos résultats avec ceux obtenus par d'autres groupes sur d'autres composés, il est important d'utiliser des critères phénoménologiques très répandus pour déterminer H_{c2}. Ces critères apparaissent résumés dans la Fig. 32 où ρ_n est la résistivité à l'état normal.

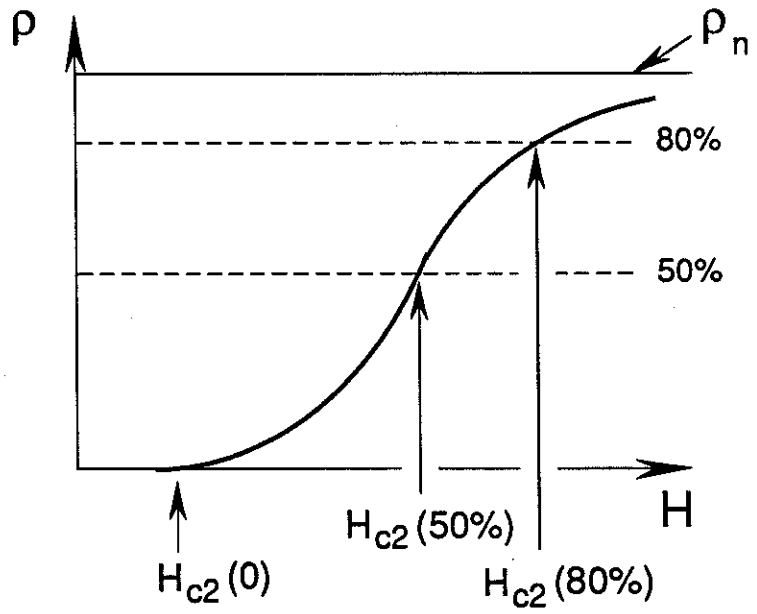


Fig. 32 - Critères de détermination de $H_{c2}(T)$ à partir de la magnetorésistance $\rho(H)$. On peut définir H_{c2} à partir de $\rho=0$, $\rho=0,5\rho_n$ ou alors $\rho=0,80\rho_n$.

Bien entendu, les "H_{c2}" obtenus par ces méthodes ne correspondent pas forcément à H_{c2} thermodynamique. D'abord le choix d'une valeur particulière de ρ/ρ_n est totalement arbitraire et reste d'ordre phénomenologique. Ensuite, étant donné que le pied de la courbe de magnétorésistance est fortement sensible au pinning, la différence entre $H_{c2}(0)$ et $H_{c2}(50\%)$ peut être fortement dépendante des défauts qu'il y aura dans l'échantillon. Par ailleurs, la détermination de H_{c2} pour $\rho/\rho_n \rightarrow 1$ sera fortement dépendante du choix de ρ_n.

4.2.3 Magnétorésistance pour H//c

a) Les contacts

Après avoir réalisé sur l'échantillon les mesures magnétiques pour l'étude de H_{c1}, nous avons posé des contacts afin de réaliser des mesures de transport jusqu'à 20 teslas.

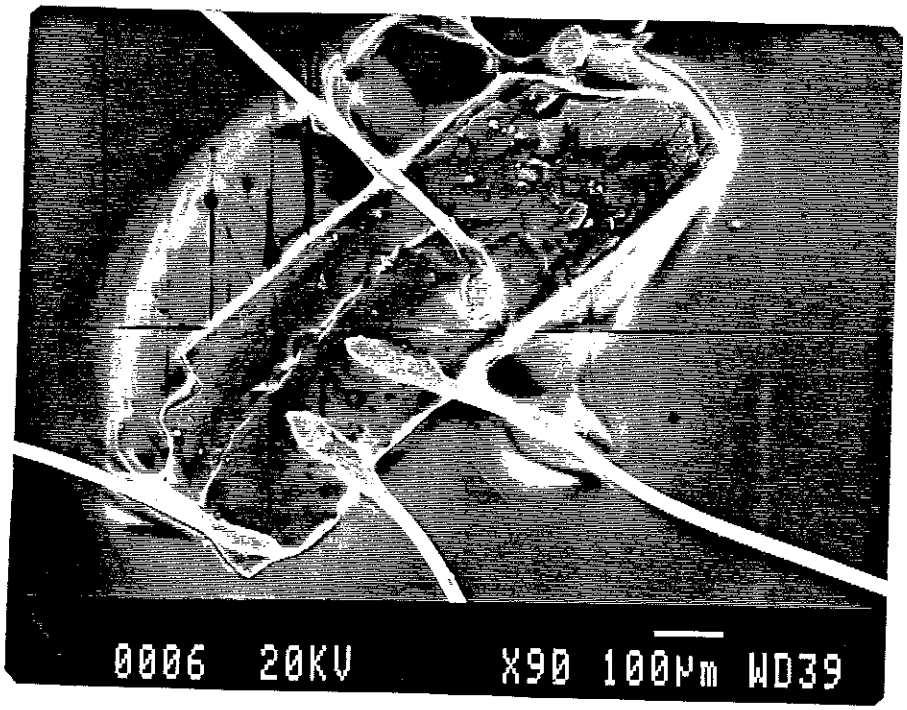


Fig. 33 - Microphotographie du monocristal de Y:248 avec les contacts. Nous avons posé quatre contacts à l'Epoxy argent. Les fils d'or qui apparaissent font un diamètre de 30µm. La résistance de contact était de l'ordre de 2Ω.

Dans la Figure 33, nous reproduisons une micro-photographie de l'échantillon, faite avec un microscope électronique à balayage, après la pose des contacts.

Les traits horizonteaux et verticaux qui apparaissent sur la figure correspondent a des lignes au long desquelles on a réalisé des analyses de composition. L'objectif était de vérifier qu'il n'y avait pas de cour-circuit entre les contacts. Les quatre contacts à l'Epoxy argent (Epotech 35H) sont plus ou moins alignés le long de l'axe cristallographique b (au long des chaînes). Nous les avons posés avec l'aide d'un micromanipulateur. Après un recuit de 30 min à 250°C on a obtenu une résistance de contact de l'ordre de 2 Ω. Afin de pouvoir manipuler plus facilement l'échantillon, celui-ci a été colé (avec du Collodion) sur une plaquette de silicium de 5×5 mm^2. Les fils de mesure ont été, eux aussi, immobilisés avec du Collodion.

Pour déterminer la résistance de l'échantillon nous avons utilisé une méthode classique dite de "quatre fils". Les résistances ont été mesurées avec l'aide d'un pont Barras Provence travaillant à une fréquence voisine de 22Hz.

Comme on peut le voir sur la Fig.33, il n'est pas évident de déterminer la section, donc la résistivité, de l'échantillon. D'autre part, étant donné que les contacts sont posés sur la surface du petit cristal de dessus, nous ne sommes pas sûrs non plus si la distribution des courants de mesure est homogène dans l'échantillon.

Afin d'avoir un ordre de grandeur, nous avons calculé la "résistivité" à partir de la section totale de l'échantillon. En faisant ceci, nous sommes, cependant, en train de sur-estimer la section par rapport au courant de mesure, et donc la résistivité.

b) Courbes de magnétoresistance pour H//c

Sur la figure 34 nous représentons nos résultats pour plusieurs températures entre 76 et 30 K. La température critique est proche de 73 K.

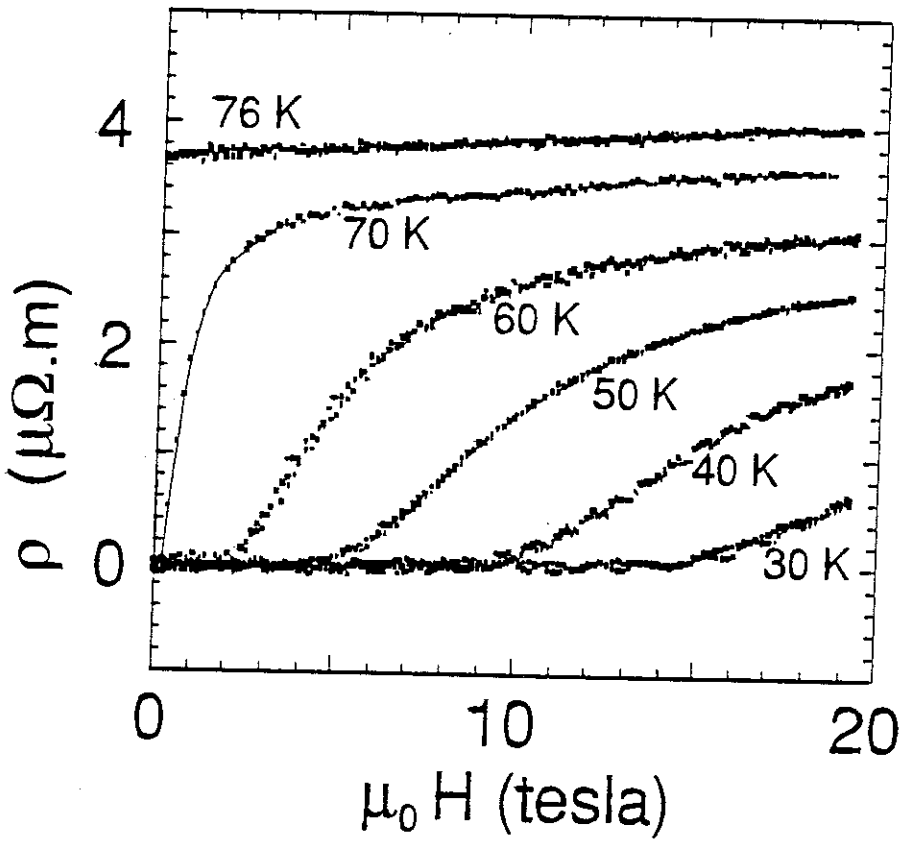


Fig. 34 - Courbes de magnétorésistance pour H orienté selon l'axe cristallographique c. La transition supraconductrice est proche de 73 K.

On note sur ces courbes le fort élargissement de la transition sous champ. D'autre part, un régime d'approche à la saturation peut être observé au-dessus de 40 K.

c) Détermination de la résistivité à l'état normal

Proche de la transition on ne s'attend pas à ce que la résistivité à l'état normal ρ_n varie trop avec le champ H [43] :

$$\frac{\rho_n(H) - \rho_n(H=0)}{\rho_n(H=0)} \approx (\omega_c \tau)^2 \approx \left(\frac{H}{ne\rho_n(H=0)c}\right)^2$$

Dans ce cas, à partir d'un nombre de porteurs $n = 210^{22}$ cm^{-3} obtenu pour un film de Y:248 [50], on peut calculer à 20 teslas une contribution de l'ordre de $2{,}5.10^{-5}$ venant de la phase normale. La forme de la magnétorésistance est essentiellement dictée par des

mécanismes liés à la supraconductivité. On s'attend à ce que la magnétorésistance sature à haut champ à la valeur ρ_n. Comme on le voit dans la figure 34, même à 20 teslas $\rho(H)$ n'est pas saturé.

En l'absence d'un modèle définitif pour la disparition de la supraconductivité à haut champ, on peut phénoménologiquement tenter de déterminer ρ_n à partir de l'extrapolation linéaire à $H \rightarrow \infty$ de la courbe $\rho(H)$ versus $1/H$ ou $\rho(H)$ vs $1/H^2$.

Sur les figures 35 et 36, nous représentons les comportements asymptotiques de $\rho(H)$. Sur la Fig. 35, on trace $\rho(H)$ en fonction de $1/H$, tandis que sur la fig.36 on représente les mêmes points en fonction de $1/H^2$. On notera que sur les deux figures on représente exactement les mêmes plages expérimentales qui vont de 5 teslas jusqu'à 19,2 teslas.

Dans l'extrapolation de ρ_n à partir de $1/H$, on suppose qu'on est beaucoup plus loin de la saturation de la magnétorésistance que lorsqu'on fait l'extrapolation à partir de $1/H^2$.

Pour la courbe de ρ vs $1/H$, on observe pour $T = 44,6$ K une saturation plus forte que $1/H$ pour les points à haut champ. On n'a donc pas pu extrapoler ρ_n pour $T = 44,6$ K.

Sur le tableau 5, nous avons compilé toutes les valeurs de ρ_n extrapolées à partir des Fig. 35 et 36.

On montre dans la Fig. 37 ρ_n vs T obtenu par les deux extrapolations. Nous avons aussi représenté sur la même figure la transition résistive à champ nul. Les lignes correspondent seulement à des courbes interpolées entre les points.

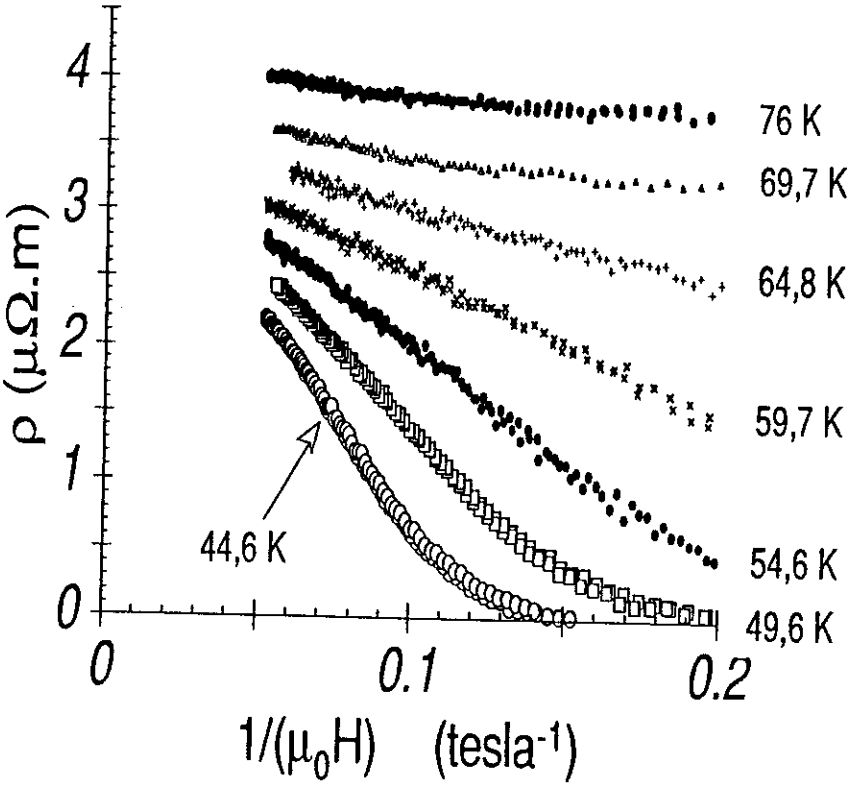


Fig.35 - Détermination de ρ_n à partir d'un comportement asymptotique en 1/H à H infini pour plusieurs températures.

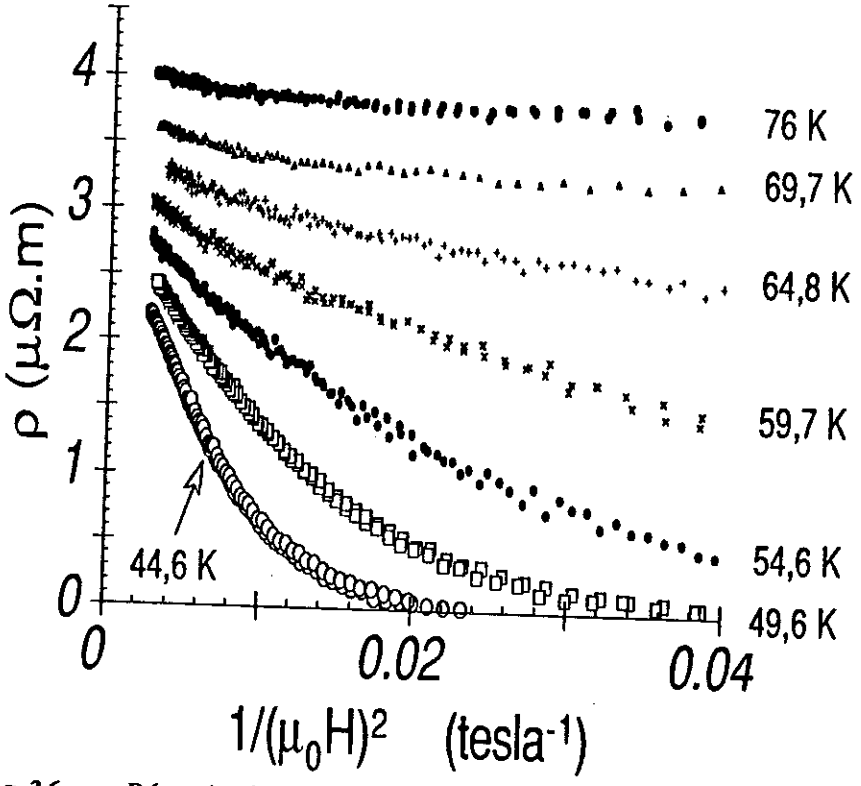


Fig.36 - Détermination de ρ_n à partir d'un comportement asymptotique en $1/H^2$ à H infini pour plusieurs températures.

T (K)	ρ_n ($\mu\Omega$.m) (1/H)	ρ_n ($\mu\Omega$.m) ($1/H^2$)
76,0	4,13	4,08
69,7	3,81	3,72
64,8	3,64	3,46
59,7	3,57	3,22
54,6	3,61	3,05
49,6	3,76	2,92
44,6	***	2,88

Tableau 5 - *Extrapolation des résistivités normales à partir des courbes de $\rho(H)$ vs $1/H$ et $\rho(H)$ vs $1/H^2$.*

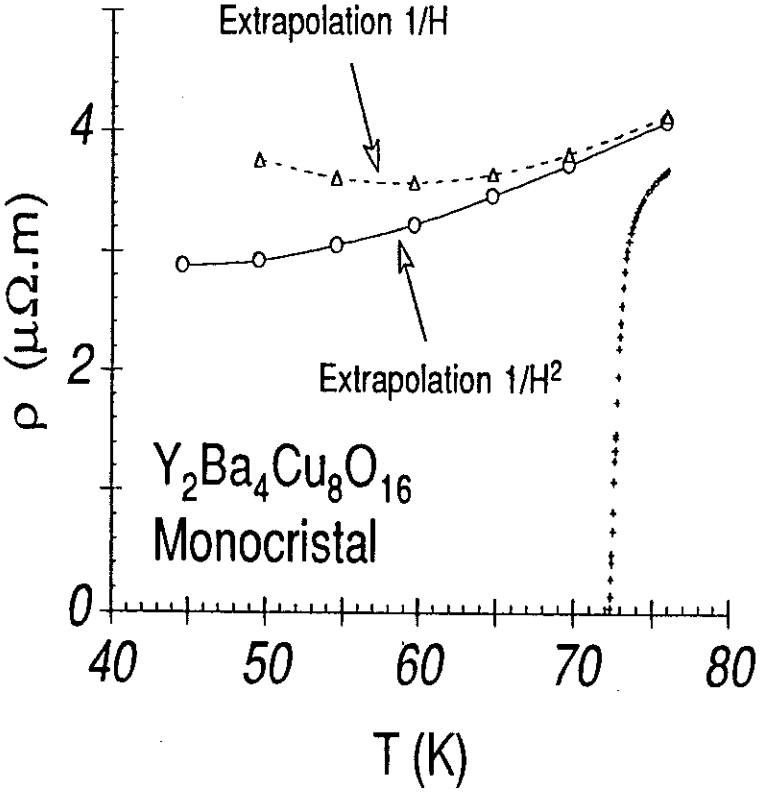


Fig.37 - *Extrapolations des résistivités à l'état normal obtenues à partir des saturations des courbes de magnétorésistance. Les petites croix correspondent à la transition supraconductrice à champ nul.*

Il est clair, à partir de nos résultats, qu'au-dessous de la transition supraconductrice la résistivité à l'état normal semble se saturer aux alentours de 3 $\mu\Omega$.m. Etant donné qu'à basse température on est loin de la saturation de ρ à 20 teslas, il faut prendre avec précaution la remontée de ρ_n donné par 1/H à basse température (ligne pointillée). Nous n'avons pas pour le moment de justifications

physiques pour nos extrapolations : on va donc se garder de faire quelque chose de plus que des considérations qualitatives. Nous reviendrons sur ce problème quand nous aborderons le sujet des fluctuations.

4.2.4 Diagramme de phase $H_{c2}(T)$ et comparaison avec Y:123

A partir de la résistivité à l'état normal (déduite de l'extrapolation de $\rho(H)$ en $1/H^2$), et des courbes de magnétorésistance, nous avons déterminé H_{c2} en utilisant les critères décrits ci-dessus (Sec.4.2.2). Sur la Fig.38, nous représentons pour H//c les dépendances en température de plusieurs H_{c2} obtenus à partir de trois critères ($\rho=0$, $\rho/\rho_n=0,50$ et $\rho/\rho_n=0,80$).

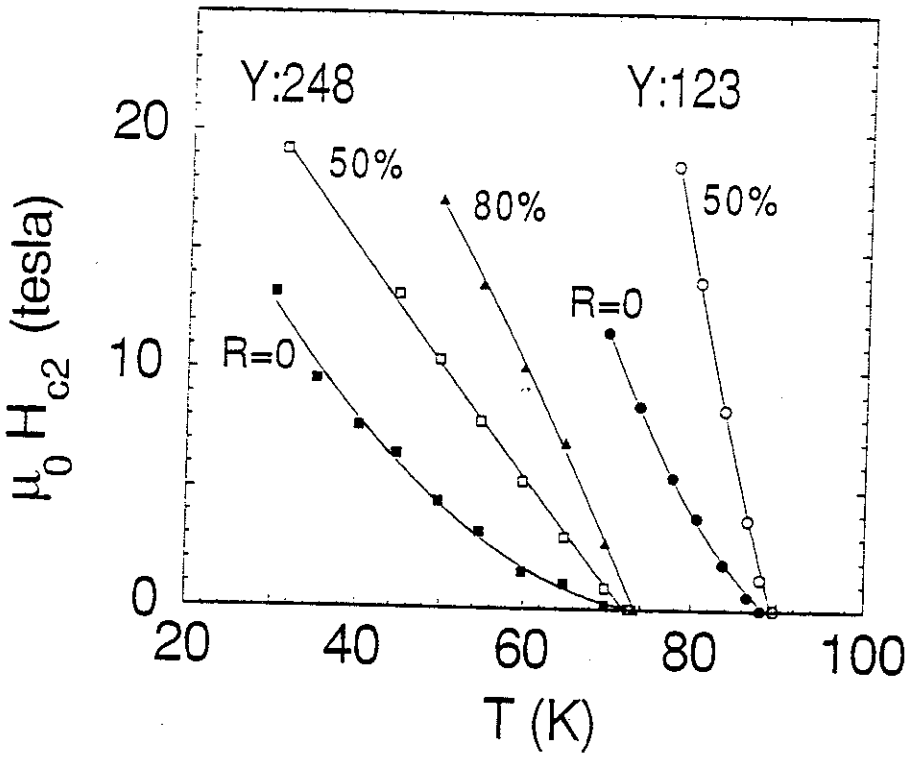


Fig.38 - Courbes de $H_{c2}(T)$ pour les composés Y:248 (ce travail) et Y:123 [Tholence et al] déduits à partir des critères $\rho=0$, $\rho/\rho_n=0,50$ et $\rho/\rho_n=0,80$.

Pour le composé Y:248, nous avons obtenu comme températures critiques à champ nul : $T_c=72,4$ K ($\rho=0$), $T_c=73,0$ K ($\rho/\rho_n=0,50$) et $T_c=73,6$ K ($\rho/\rho_n=0,80$). Comme nous allons le voir

plus tard, ces températures critiques ne correspondent pas forcément à la température critique de champ moyen : T_{c0}.

Les courbures de $H_{c2}(T)$ peuvent être positives ou négatives en fonction du critère choisi. Donc les courbes de magnétorésistance ne diffèrent pas d'un simple facteur d'échelle dans l'axe des H. Ceci met en question toute tentative de déduire la vraie dépendance en température de H_{c2} à partir de mesures de résistivité à l'aide des critères décrits ci-dessus. Cependant, même si à partir de ces critères nous ne pouvons pas obtenir le vrai H_{c2}, nos résultats peuvent être comparés avec ceux obtenus pour le Y:123 (en utilisant les mêmes critères). Sur la Fig.38, nous avons aussi représenté à titre de comparaison $H_{c2}(T)$ pour le composé Y:123. Ces résultats sont extraits de la littérature [37] et ont été obtenus, d'une part à partir des mêmes genres d'expérience (magnétorésistance), et d'autre part en utilisant les mêmes critères : $\rho=0$ et $\rho/\rho_n=0{,}50$. En ramenant les diagrammes en T/T_c, on voit des champs critiques 3 à 5 fois plus importants pour le composé Y:123 !

critères	$H_{c2}(\perp)$ (T)	$\xi_{//}$ (Å)
80%	36	30
50%	25	40
$\rho=0$	13	50

***Tableau 6** - Valeurs de $\xi_{//}$ calculées à partir de 69% des extrapollations linéaires à T=0 K de $H_{c2}(\perp)$ pour les trois critères choisis (BCS-couplage faible).*

Sur le tableau 6 on représente les valeur de $\xi_{//}$ déduites à partir de 69% (BCS-couplage faible) des extrapolations linéaires de $H_{c2}(\perp)$ à T=0. Par la suite on utilisera :

$$\xi_{//} = (40\pm10)\ \text{Å}.$$

4.3 Anisotropie de H_{c2}

4.3.1 Porte-échantillon tournant

Afin d'étudier l'anisotropie de H_{c2} par rapport à l'orientation du champ, nous avons utilisé un porte-échantillon tournant monté sur une canne (montage du Dr. O. Laborde [44]) pouvant être insérée dans une bobine Bitter de 10 MW du SNCI [45].

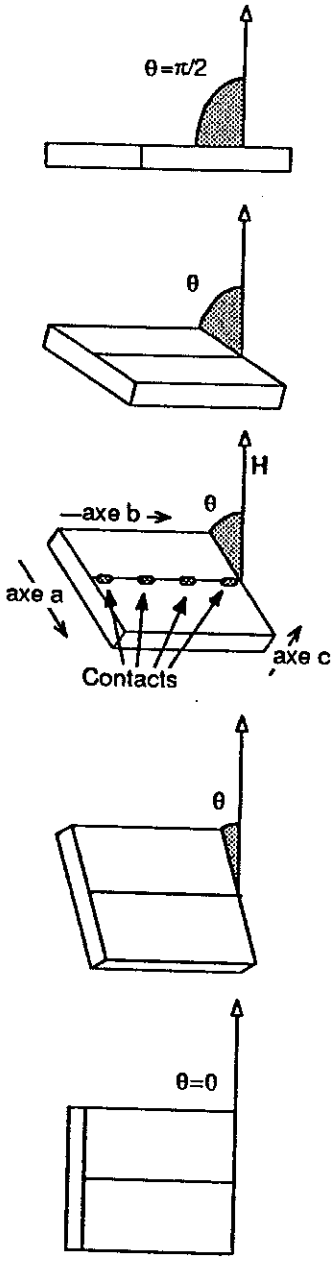


Fig.39 - Orientation du champ H par rapport aux axes cristallographiques et aux contacts.

Comme nous pouvons le voir sur la Fig. 33, à cause des faibles dimensions de l'échantillon le long de l'axe a, nous n'avons pas pu poser de contacts le long de cette direction. Nous avons donc grosso modo mesuré la résistivité le long de l'axe b (le long des chaînes).

Sur la Fig. 39 nous représentons l'orientation du champ H par rapport aux axes cristallographiques. On notera, que pour garder la symétrie entre le courant de mesure et le champ, nous avons choisi l'axe b comme étant l'axe de rotation. L'angle entre l'axe a et le champ H est donné par θ. Le montage expérimental a une résolution pour θ meilleure que 0,5°.

Nous n'avons pas pu vérifier s'il y avait une anisotropie dans le plan (a,b). En tout cas, on s'attend à observer une anisotropie entre les axes a et b qui serait beaucoup plus faible que celle obtenue entre le plan (a,b) et l'axe c. Effectivement, les mesures de H_{c1} n'ont pas détecté d'anisotropie dans le plan (a,b).

Pour le composé Y:123, on a observé une anisotropie de 1,2 pour les champs critiques H_{c2}, valeur beaucoup plus petite que celle vérifiée entre le plan (a,b) et c qui est entre 5 et 10 [25,26,37].

4.3.2 La méthode classique

Sur la Fig. 40, nous représentons les courbes de magnétorésistance pour plusieurs orientations du champ appliqué et T=62 K.

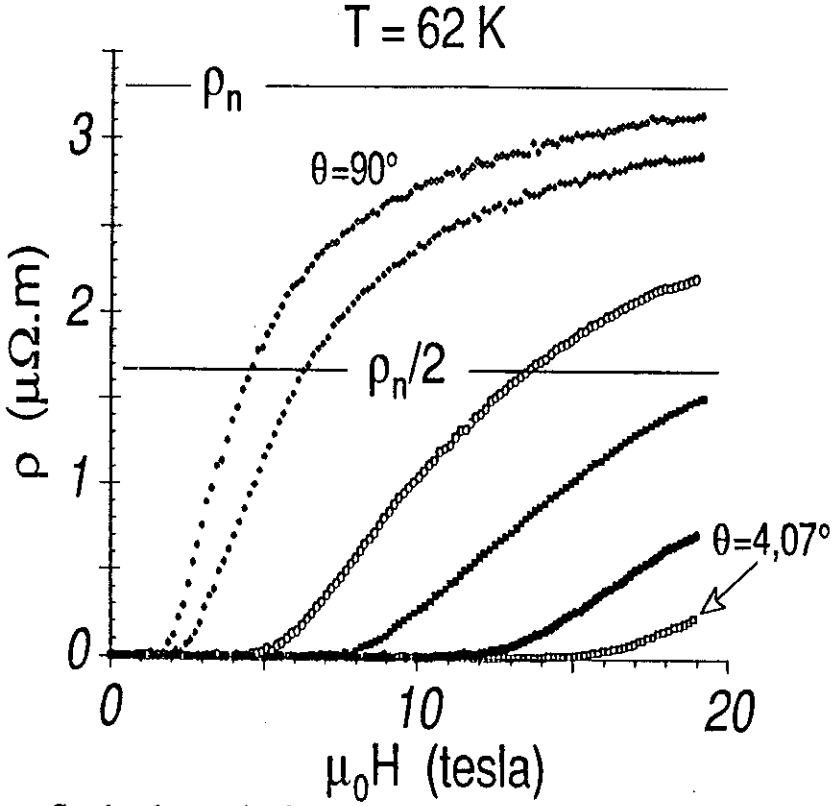


Fig.40 - *Courbes de magnétorésistance jusqu'à 20 teslas pour plusieurs orientations du champ. Dans cette figure, on a T = 62 K. La ligne aux alentours de 3 μΩ.m correspond à ρ_n extrapolé à partir des courbes de ρ vs $1/H^2$. Sur la figure, on indique le niveau correspondant à $\rho_n/2$.*

La procédure utilisée traditionnellement pour déterminer $H_{c2}(T)$ (voir section 4.2.2) peut être aussi utilisée pour déterminer $H_{c2}(\theta)$ [37]. Cette méthode consiste à regarder la dépendance de H_{c2} avec θ en déterminant H_{c2} à partir d'une valeur fixe de ρ (par exemple $\rho = \rho_n/2$). Etant donné qu'on ne sait pas où se trouve H_{c2}, on ne peut pas, à partir de cette méthode, garantir qu'on est en train d'étudier la vraie dépendance de H_{c2} avec θ. Nous pouvons cependant montrer qu'il est possible de trouver une simple loi d'échelle

reliant toutes les courbes de magnétorésistance, comme nous allons le voir par la suite.

4.3.3 La méthode de scaling en fonction de l'angle θ à T fixe.

Nous nous sommes demandés s'il n'était pas possible de trouver une loi d'échelle entre les courbes de magnétorésistance à différents angles. Pour cela, nous avons défini un facteur d'échelle en champ h_s tel que :

$$\rho(H ; \theta) = \rho(h_s H ; \theta = 90°) \qquad (33)$$

Si une telle relation est vérifiée avec h_s ne dépendant que de θ, en inversant les fonctions de l'équation 33 on obtient :

$$h_s H(\rho ; \theta = 90°) = H(\rho ; \theta) \qquad (34)$$

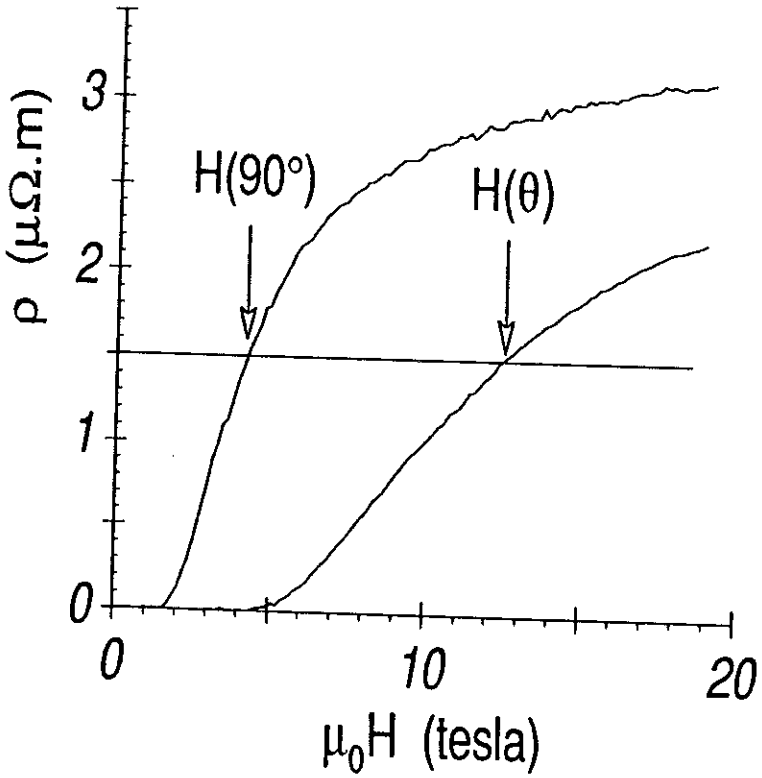


Fig.41 - Détermination de H(θ) et H(90°) à partir des courbes de magnétorésistance.

Nous avons donc déterminé h_s de la façon suivante : pour une résistivité ρ donnée et un θ donné on détermine H(θ = 90°) et H(θ) comme on le voit sur la Fig. 41.

Une procédure informatique va déterminer H(θ) en fonction de H(θ = 90°) pour une série de valeurs de ρ entre 0 et la valeur maximum de résistivité.

Comme on peut le voir sur les Fig. 42a et 42b (T = 62 et 68 K respectivement) pour notre plage de champs, **on vérifie bien** une relation linéaire entre H(θ) et H(90°) (chaque point correspond à une valeur de ρ). La pente donne directement la valeur de h_s (voir Eq. 34).

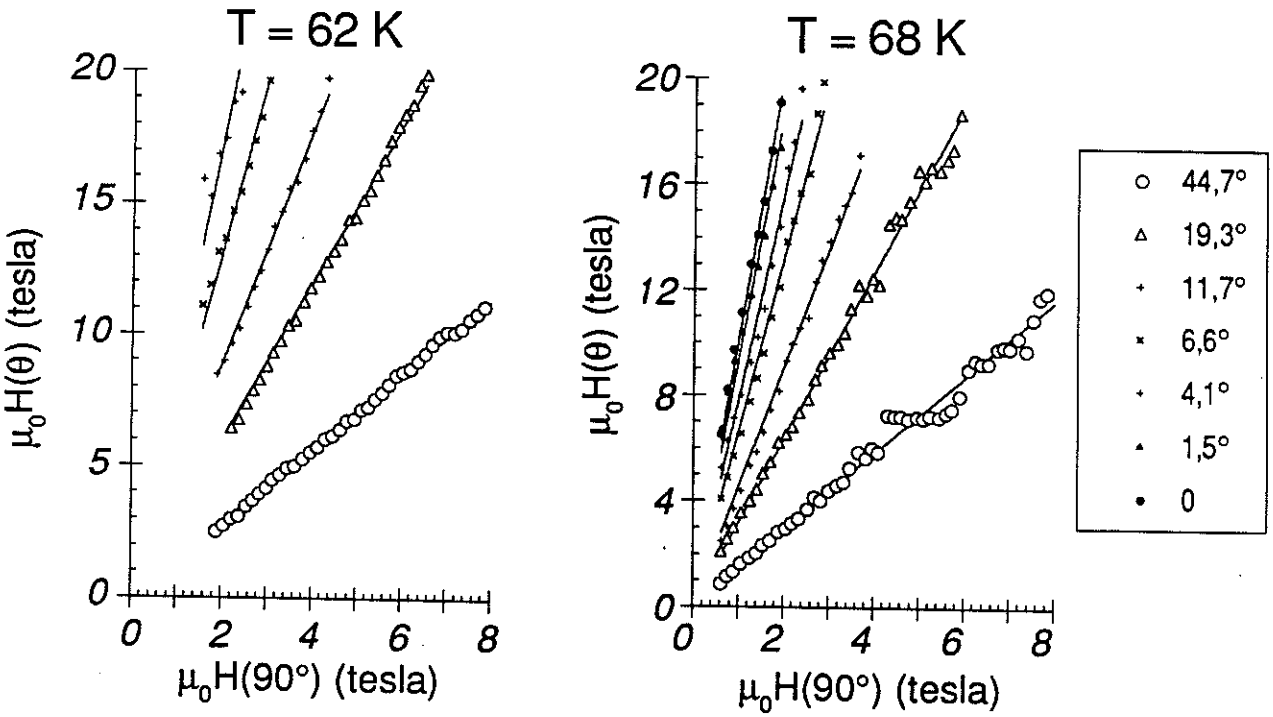


Fig.42 - H(θ) versus H(90°) pour T = 62 K (a) et T = 68 K (b) et pour plusieurs valeurs de θ. Dans les encarts figurent les valeurs de θ correspondant aux différentes courbes. Les pentes des droites ajustées donnent directement les facteurs d'échelle h_s correspondant aux différentes orientations.

Malheureusement, à cause des forts champs critiques pour l'orientation H//a, nous n'avons pas pu étudier l'anisotropie au-dessous de 62 K.

Sur la Fig.43, nous avons tracé toutes les courbes de magnétorésistance en fonction de $H/h_s(\theta)$. On peut ainsi réduire toutes les courbes de magnétorésistance pour les différents angles θ en une seule courbe universelle.

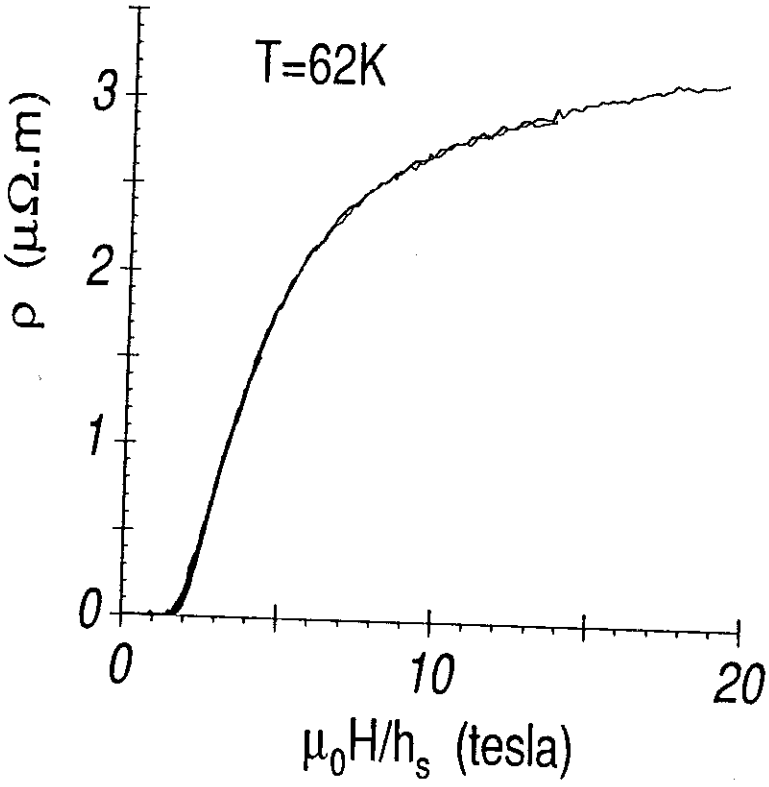


Fig.43 - Courbe de magnétorésistance universelle correspondant aux différentes orientations du champ θ pour T=62 K.

Comme on le voit sur la Fig.43, dans une échelle linéaire, les différentes courbes semblent se superposer parfaitement à une courbe universelle. Afin de mieux visualiser d'éventuelles déviations à la loi d'échelle au pied de la transition, nous avons utilisé, sur la Fig.44, un diagramme semi-log qui dilate l'échelle à bas ρ. Dans cette figure on constate que au-dessous de 0,3 $\mu\Omega$.m (un dixième de la résistivité maximale) la loi d'échelle ne marche plus aussi bien.

θ (degrés)	h_s (sans dimension)	
	T = 62 K	T = 68 K
90	1	1
44,7	1,43	1,45
19,3	2,98	3,16
11,7	4,43	4,53
6,6	6,57	6,64
4,1	8,83	7,86
1,5	***	9,44
0,0	***	10,21

Tableau 7 - *Paramètres de scaling h_s pour T=62K et T=68K déterminés à partir de la procédure décrite ci-dessus.*

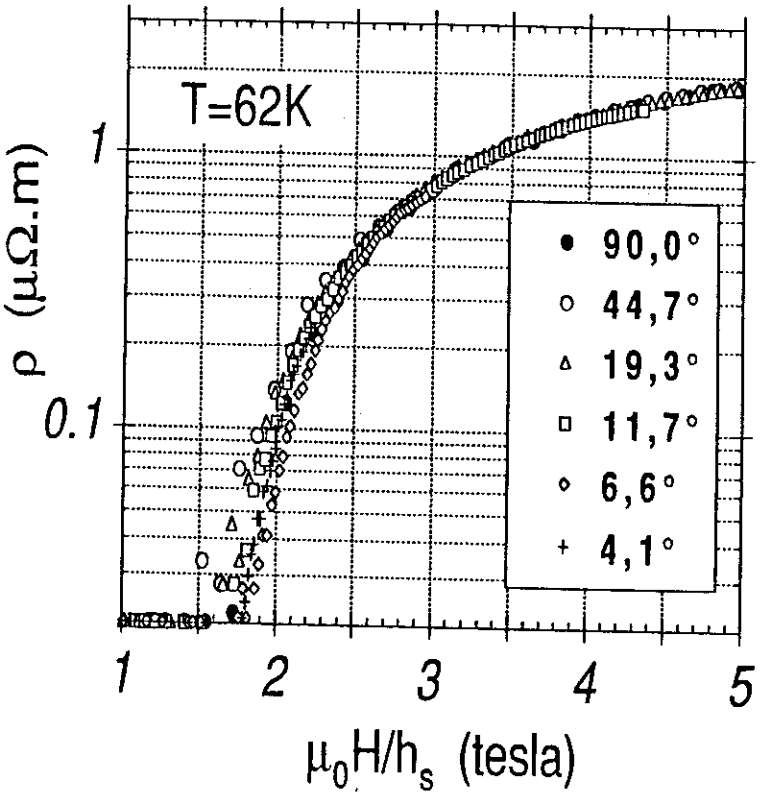


Fig.44 - *Courbe de magnétorésistance en fonction de H/h_s pour T=62 K. Les points au-dessous de 0,3 μΩ.m ne suivent plus rigoureusement la loi d'échelle obtennue par les résultats à plus haute résistivitée.*

4.3.4 Ginzburg-Landau ou Plans supraconducteurs couplés?

Maintenant, nous sommes devant le problème qui est de savoir quel sens physique donner à $h_s(\theta)$. Ce facteur d'échelle permet de décrire avec précision la dépendance angulaire ρ sur une décade de la résistivité (0,3 $\mu\Omega$.m - 3 $\mu\Omega$.m).

Peut-on lier la dépendance angulaire de H_{c2} avec $h_s(\theta)$? Si on suppose que ρ est une fonction de H/H_{c2} pour ρ supérieur à $\rho_n/10$, alors $h_s(\theta)$ peut s'écrire comme étant :

$$h_s(\theta) = \frac{H_{c2}(\theta)}{H_{c2}(\theta = 90°)} \qquad (35)$$

Dans cette hypothèse, à partir de la relation 35, on voit donc que même si on ne peut pas déterminer la valeur absolue de $H_{c2}(\theta)$ on peut obtenir sa dépendance avec l'angle directement de $h_s(\theta)$. Sur la Fig.45 on représente $h_s(\theta)$ en fonction de θ pour T = 62 K et T = 68 K. Les points se superposent sur la même courbe excepté pour T = 62 K et θ = 4,1°. Mais, pour ce dernier point, $h_s(\theta)$ est déduit dans une limite de ρ faible (voir Fig.42) c.a.d. où la loi d'échelle ne marche plus aussi bien.

A partir du calcul de H_{c2} développé dans la section 2.3, nous pouvons écrire les dépendances de $h_s(\theta)$ comme étant :

$$h_s(\theta) = \frac{\varepsilon_{c,a}}{\sqrt{\cos^2\theta + (\varepsilon_{c,a})^2\sin^2\theta}} \qquad \text{(modèle 3D)}$$

$$h_s(\theta) = \varepsilon/2\left((\varepsilon/2)\sin\theta + \sqrt{\cos^2\theta + (\varepsilon/2)^2\sin^2\theta}\right)^{-1} \qquad \text{(modèle 2D)}$$

On rappelle que, dans le modèle 2D, $\varepsilon = 2\sqrt{6}\xi/L$

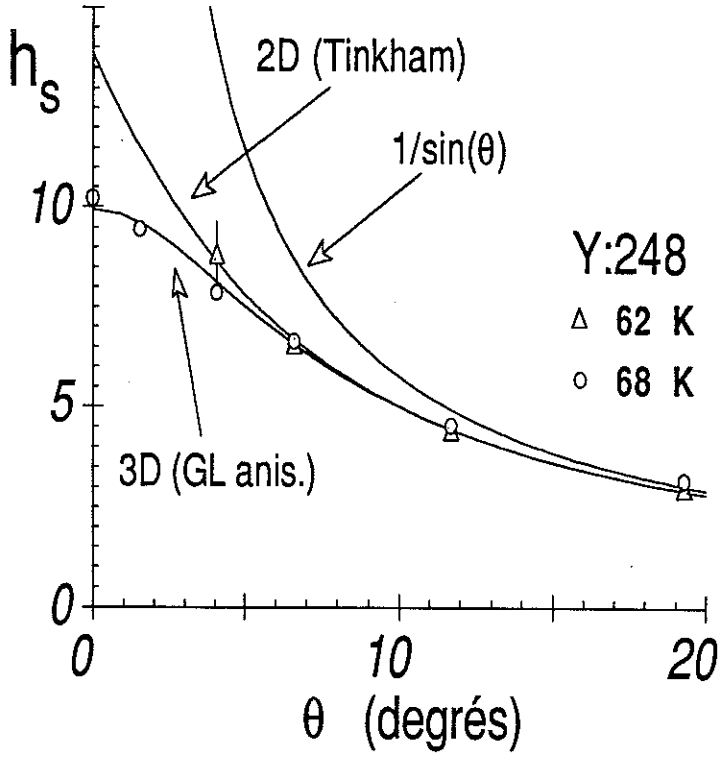


Fig.45 - *h_s vs θ pour T=62 K et T=68 K. Les traits correspondent à des dépendances de h_s en 1/sin(θ), le modèle développé par Tinkham pour des couches minces à 2D (Eq.11 - section 2.3.2) et le modèle de GL anisotrope (Eq.10 - section 2.3.1). L'ajustement par l'expression de GL donne un rapport de masses effectives de 100.*

Sur la Fig. 45 on représente les ajustements par les lois 3D et 2D. On montre aussi un comportement en 1/sinθ qui correspond à la valeur limite de $H_{c2}(\theta)$ quand ε est très important (voir Section 2.3 pag.12). Le meilleur résultat est obtenu avec l'expression 3D en prenant $\varepsilon_{c,a}=\sqrt{m_c/m_a}=10$.

En conclusion, le modèle de GL anisotrope est donc celui qui décrit le mieux la variation angulaire de $h_s(\theta)$.

Ceci est une forte indication que l'hypothèse de départ ($\rho(H) = f(H/H_{c2})$ à T donné) est valable.

Nous avons trouvé la même valeur de ε pour 62 et 68 K : l'anisotropie est indépendante de la température pour $T/T_c>0,85$.

Cette valeur de ε correspond à une anisotropie de 100 pour les masses effectives. Cette anisotropie des masses effectives est beaucoup plus importante que celle de 20 obtenue à partir de H_{c1}

(sur le même échantillon). On discutera ceci dans la conclusion générale.

Enfin l'anisotropie de $\varepsilon_{c,a}=10$ obtenue pour le composé Y:248 n'est que très légèrement supérieure à celle du Y:123 ($\varepsilon_{c,a}=9$)[37].

5 Effets des fluctuations au-dessus de T_{c0}

5.1 Fluctuations à champ nul

5.1.1 Fluctuations : une façon de déterminer la transition ?

Dans les supraconducteurs H-Tc, les importantes températures critiques et champs critiques H_{c2} observés devraient s'accompagner de fluctuations au-dessus de la transition beaucoup plus grandes que pour les supraconducteurs classiques. Comme nous allons le voir par la suite, l'incrément de conductivité dû aux fluctuations est proportionnel à l'inverse de la longueur de cohérence c.à.d. à $1/\xi$. Comme $\xi \alpha 1/\sqrt{H_{c2}}$, les fluctuations seront d'autant plus importantes que H_{c2} est grand.

Dans le passé, Mooij et al [46] ont montré qu'on pouvait déterminer la température critique T_{c0} de films minces (dans la limite sale) à partir d'une étude des fluctuations inspirée par les expressions de Aslamasov-Larkin (AL) [47]. Etant donné les difficultés actuelles pour déterminer la vraie ligne de transition Supraconducteur/Normal dans les H-Tc, nous avons eu l'idée d'appliquer la même méthode pour déterminer T_{c0} (à champ nul).

A une température finie T, on a une probabilité $e^{-F/kT}$ de trouver le paramètre d'ordre Ψ égal à une valeur non nulle au-dessus de T_{c0}. On doit donc s'attendre à l'existence de supraconductivité induite par les fluctuations au-dessus de T_{c0}. Sur la Fig.46, on représente pour le cas unidimensionnel, les valeurs que le paramètre Ψ peut avoir autour de sa valeur moyenne $|\Psi|$.

A partir des variations spatiales des fluctuations et du modèle de Ginzburg-Landau dépendant du temps, Aslamasov et Larkin [16,47] ont calculé quel devrait être l'incrément de conductivité dû aux fluctuations. Ce phénomène est aussi connu sous le nom de "paraconductivité". Ce modèle a décrit avec succès la "queue" de résistivité au-dessus de T_{c0} de films minces supraconducteurs du type sale. Pour expliquer le comportement de films dans la limite propre, Maki et Thomson (MT)[47] ont introduit une contribution indirecte due à l'interaction des fluctuations avec les électrons de conduction. Cependant, selon Hikami et Larkin [48], le

terme de AL est dominant à proximité de la transition supraconductrice.

Etant donné que notre objectif est de déterminer T_{c0} à partir des fluctuations, nous allons nous intérésser seulement à la contribution de AL.

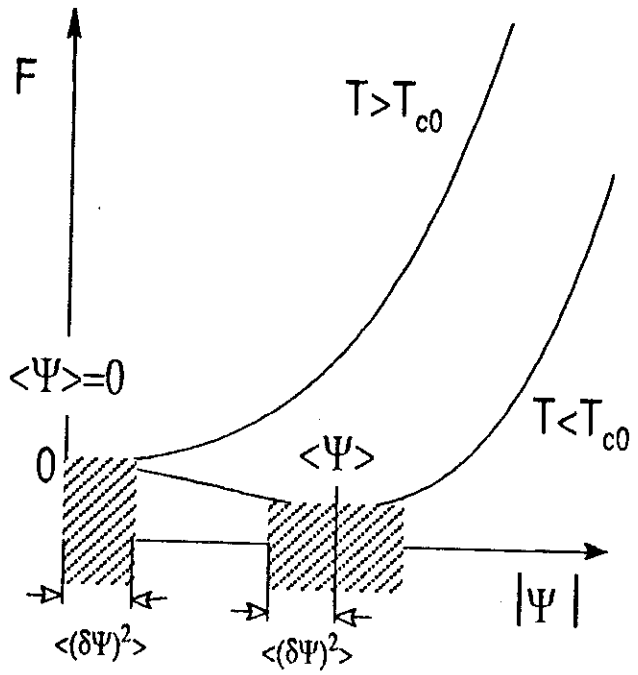


Fig.46 - Illustration du phénomène de fluctuations pour une particule ponctuelle (Ψ constant dans l'espace). Les régions hachurées correspondent aux valeurs que le paramètre d'ordre peut avoir à une température finie.

Selon Tinkham [14], la contribution de Aslamasov-Larkin à la paraconductivité diverge comme :

$$\sigma' = \alpha_d \left(\frac{T-T_{c0}}{T_{c0}}\right)^{-(4-d)/2} \qquad (36)$$

où d (=1,2,3) correspond à la dimensionalité d'espace pour les fluctuations. Pour les supraconducteurs classiques, α_d est donné par :

$$\alpha_1 = \pi e^2 \xi(0)/16\hbar A$$
$$\alpha_2 = e^2/16\hbar L$$
$$\alpha_3 = e^2/32\hbar\xi(0)$$

Dans les expressions ci-dessus, A correspond à l'aire de la section d'un fil unidimensionnel et L à l'épaisseur d'une couche mince.

En 1972, Lawrence et Doniach ont calculé quelle devrait être la contribution de AL à la paraconductivité pour un système de couches supraconductrices de périodicité s, couplées par effet Josephson [42]. Ils ont obtenu une paraconductivité parallèle aux plans $\sigma'_{//}$ donnée par :

$$\sigma'_{//} = \frac{e^2}{16\,\hbar\,s}\left(1 + \frac{m_{//}}{m_z}\left(\frac{2\xi_{//}(T)}{s}\right)^2\right)^{-1/2}\frac{T_{c0}}{T - T_{c0}} \qquad (37)$$

s est la périodicité des plans supraconducteurs et le rapport $m_{//}/m_z$ est donné par $(\xi_z/\xi_{//})^2$.

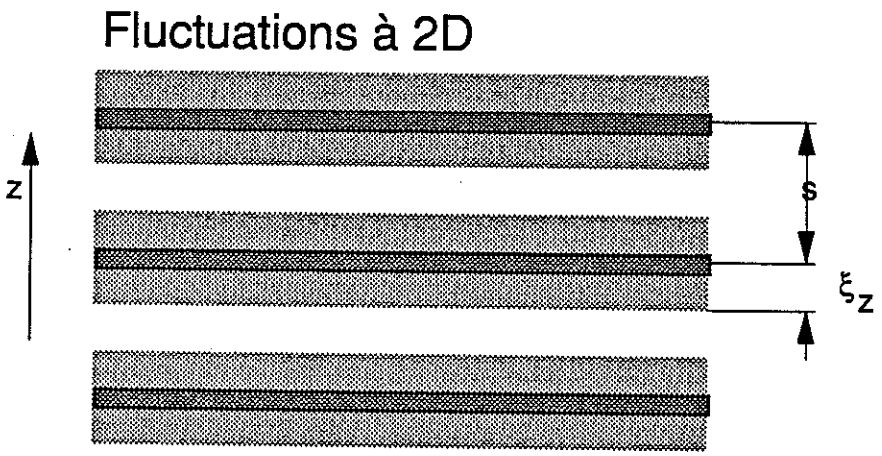


Fig.46 - *Couches supraconductrices ayant une périodicité s le long de l'axe z. Nous sommes à une température telle que ξ_z est plus petit que la distance entre plans. Les plans sont donc découplés et nous avons des fluctuations à deux dimensions.*

Dans le modèle de Lawrence-Doniach, il est facile de montrer que la forme de $\sigma'_{//}$ est déterminée par le rapport $2\xi_z/s$. Si $\xi_z(T)$ est beaucoup plus petit que la distance s/2, les plans sont découplés et l'équation 37 prend la forme de l'expression de AL à deux dimensions. La seule différence est dans le fait que l'**épaisseur** du film L qui apparaît dans AL doit être remplacée par la **périodicité** s des plans ! D'autre part, si $\xi_z(T) >> s/2$, on se trouve dans la situation 3D, la forme asymptotique de l'Eq.37 étant

exactement celle de AL avec ξ_z à la place de la longueur de cohérence ξ. Comme la longueur de cohérence est fonction de la température, $\xi_z(T_0)=s/2$ définit T_0 la température de cross-over entre le régime 3D (proche de la transition) et le régime 2D :

$$T_0 = T_{c0}\left(1 + \frac{m_{//}}{m_z}\left(\frac{2\xi_{//}}{s}\right)^2\right) \qquad (38)$$

Pour les supraconducteurs H-Tc, nous avons donc deux possibilités : si l'anisotropie est très importante, alors $m_{//}/m_z$ est très petit, de sorte que T_0 se confond pratiquement avec T_{c0}. Dans ce cas, immédiatement au-dessus de T_{c0}, on entre très vite dans le régime 2D et $\sigma'_{//}$ suit le comportement décrit par la relation 36 avec d=2 :

$$\sigma'_{//} \propto (T-T_{c0})^{-1} \qquad (39)$$

La deuxième possibilité correspond au cas où l'on est entre T_{c0} et T_0 mais dans la situation où $T<<T_0$. Ici, la paraconductivité devrait pouvoir se décrire à partir de la relation 36 avec d=3 :

$$\sigma'_{//} \propto (T-T_{c0})^{-1/2} \qquad (40)$$

En comparant nos données avec 39 et 40, il est possible de vérifier, d'une part la dimensionalité des fluctuations supraconductrices immédiatement au-dessus de T_{c0}, d'autre part on pourra aussi déterminer la température critique de champ moyen T_{c0}.

5.1.2 Détermination de la température critique T_{c0}

L'incrément de conductivité dû aux fluctuations est obtenu par :

$$\sigma' = \sigma - \sigma_n$$

où σ est la conductivité totale et σ_n la conductivité de l'état normal.

Comme nous l'avons vu dans la section 4.2.3, à proximité de la transition à champ nul, les différentes extrapolations phénomé-

nologiques de la résistivité à l'état normal different seulement de 2 %. D'autre part, autour de la transition, le comportement de ρ_n ne semble pas être très différent d'un comportement linéaire en température. Nous avons donc déduit la paraconductivité à partir de la courbe de résistivité à champ nul et des différentes interpolations de la résistivité à l'état normal entre 70 et 76 K.

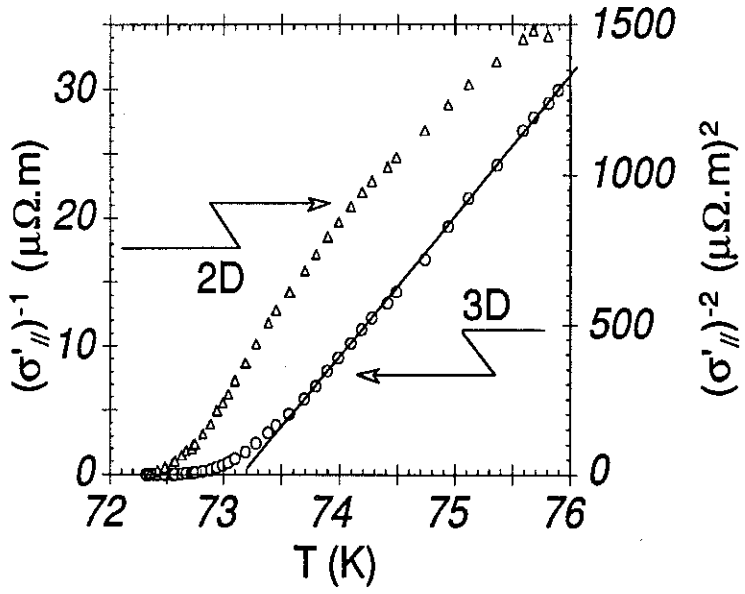


Fig.47 - A gauche, on représente $(\sigma'_{//})^{-1}$ en fonction de T. Si la paraconductivité est du type 2D, on devrait obtenir une droite (voir Eq.39). Par contre, à droite on représente $(\sigma'_{//})^{-2}$ en fonction de T. On peut ici déterminer T_{c0} = 73,2 K à partir de l'interception avec l'axe des températures. La pente correspond ici à 470 $(\mu\Omega.m)^2K^{-1}$

Comme on le voit sur la Fig.47, la paraconductivité peut être décrite par l'équation 40 qui correspond à des fluctuations 3D du type AL.

Il est intéressant de regarder quelle est l'influence du choix de ρ_n. Nous avons donc représenté sur la Fig.48 $(\sigma')^{-2}$ proche de la transition pour deux extrapolations de ρ_n (en 1/H et en $1/H^2$).

On a dans les deux cas un comportement linéaire confirment le caractère 3D des fluctuations. Seules les pentes des droites représentées sur la Fig.48 correspondant à 470 $(\mu\Omega.m)^2/K$ et 350 $(\mu\Omega.m)^2/K$ respectivement pour des ρ_n obtenus d'extrapolations d'un comportement en $1/H^2$ et 1/H respectivement.

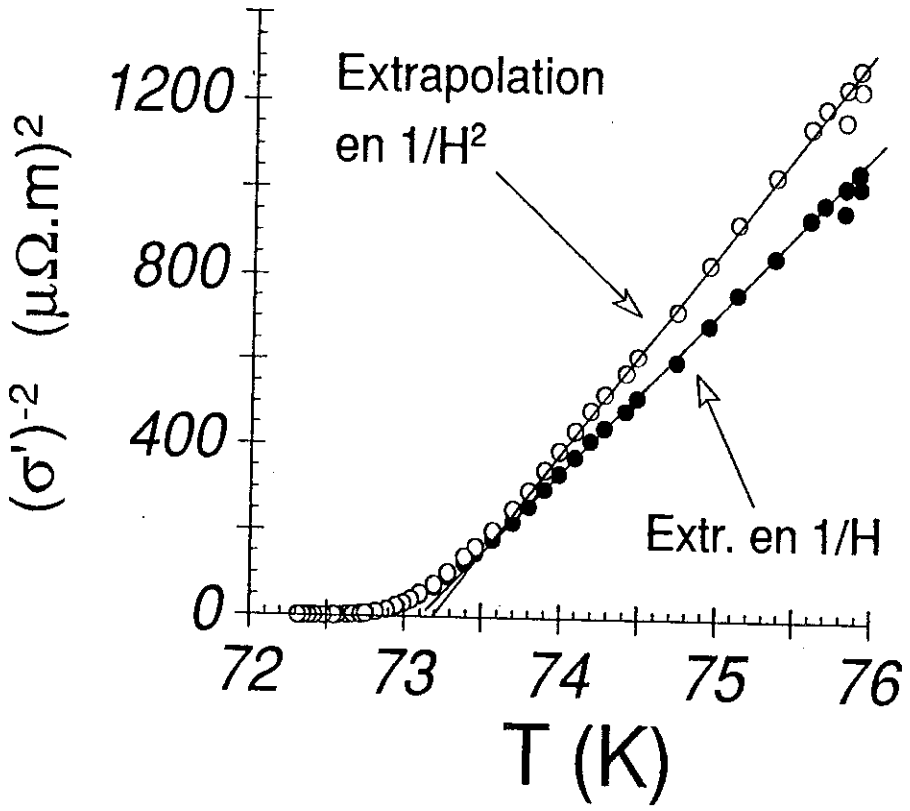


Fig.48 - Paraconductivité en fonction de T pour deux extrapolations de ρ_n. On représente $(\sigma')^{-2}$ pour des ρ_n déterminés à partir de comportements asymptotiques en 1/H et 1/H² à haut champ.

On notera que T_{c0} diffère seulement de 0,1 K pour les deux extrapolations de ρ_n. Nous pouvons donc déterminer la valeur de la température critique de champ moyen : $\mathbf{T_{c0} = (73{,}2 \pm 0{,}1)\ K}$.

A partir de la pente de $(\sigma'_{//})^{-2}$ vs $T\text{-}T_{c0}$, il est possible de calculer la valeur de ξ_z en prenant la forme asymptotique de l'Eq.37 ($T \ll T_0$) :

$$\frac{e^2}{32\ \xi_z} = (2{,}0 \pm 0{,}2)\ 10^{-12}\ \text{ues}$$

on rappelle que 1 ues = 9 $10^{11}\ \Omega$. De la relation ci-dessus, on obtient $\xi_z = (14 \pm 2)$ Å ! En tenant compte de l'anisotropie de 10 entre $\xi_{(ab)}$ et ξ_z, on aurait : $\xi_{(ab)} = (140 \pm 20)$ Å. Cette valeur est **3,5 fois au-dessus** de celle qu'on a trouvée, pour le même échantillon, dans la section 4.2.4 où $\xi_{(ab)} = (40 \pm 10)$ Å est

obtenu à partir d'une détermination classique de H_{c2}. Une sur-estimation de ξ_z correspond à une **paraconductivité 4 fois moins importante** que ce à quoi on s'attendrait à partir de la contribution AL.

La résistivité mesurée à partir de contacts posés à la surface d'un échantillon ne correspond pas à la résistivité réelle [49]. Comme nos deux contacts de tension sont relativement proches des contacts de courant (voir Fig.50), nous avons sur-estimé la résistivité de l'échantillon. La distribution de courants n'étant pas homogène à l'intérieur de l'échantillon, si les contacts de tension sont placés à proximité des injections de courant, on peut sur-estimer la résistivité de l'échantillon [49]. Ceci est confirmé par les valeurs de résistivité de la littérature : des échantillons de même provenance que les notres (groupe du Dr. Kaldis/ETH-Zürich) donnent des valeurs de l'ordre de 0,5 $\mu\Omega$.m, c'est à dire 6 fois plus faibles que les notres [50].

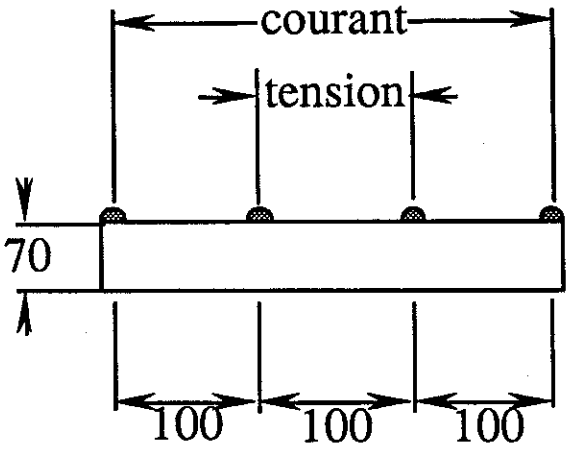


Fig.50 - *Configuration des contacts sur notre échantillon de Y:248. Les dimensions représentées correspondent à des µm.*

Sur la Fig.51, nous représentons les résultats de résistivité confrontés aux courbes d'aimantation que nous avons réalisées à l'aide d'un magnétomètre SQUID (bas champ) à l'Institut d'Electronique Fondamentale à Orsay. Il est intéressant de vérifier le bon accord entre la température de disparition de l'effet meissner et le T_{c0} déterminé à partir des fluctuations.

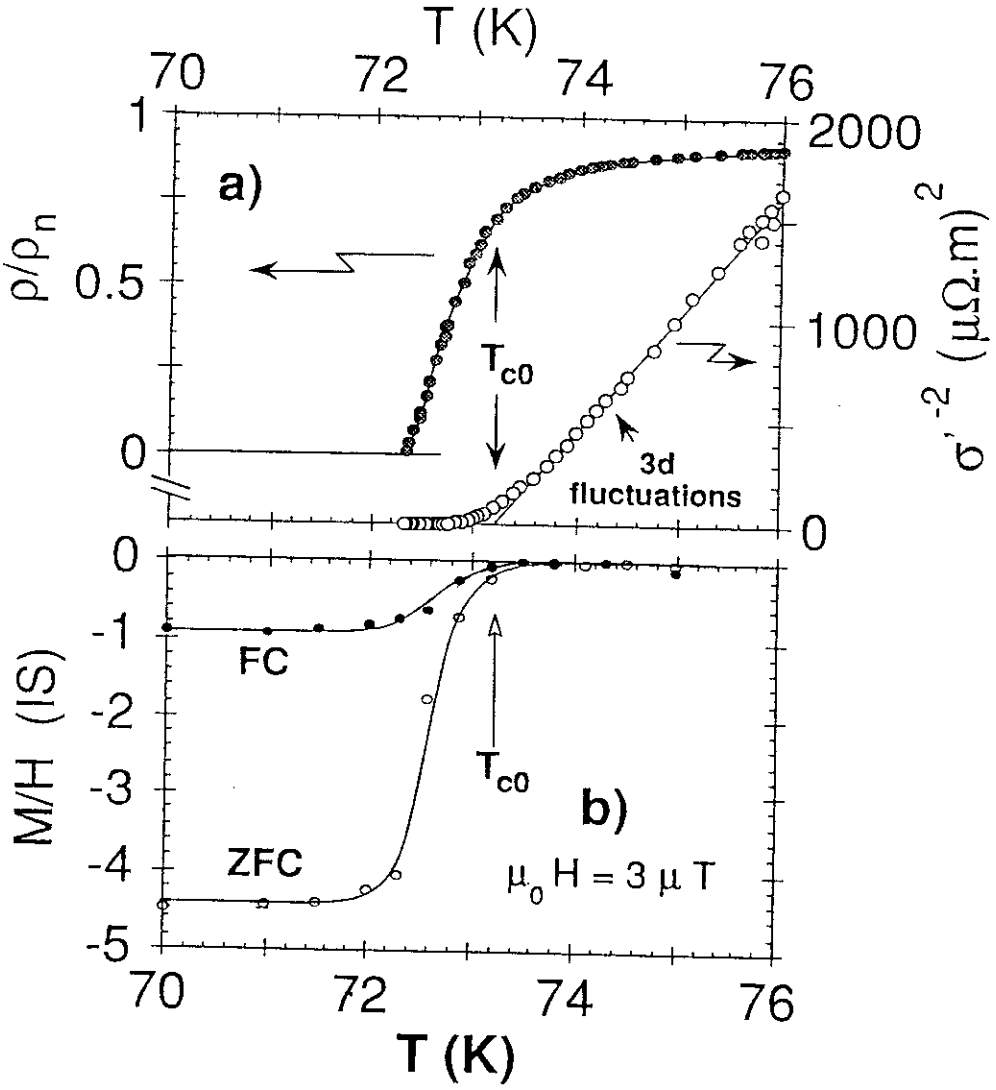


Fig.51 - *Comparaison entre les mesures de résistivité et d'aimantation réalisées sur le même monocristal d'Y:248 qui présente une transition de champ moyen à T_{c0} = 73,2 K. a) r/rn vs T et la paraconductivité à proximité de la transition ; b) Courbes d'aimantation après un refroidissement à champ nul (zfc) et un refroidissement sous champ (fc) pour H = 3 μT (ou 30 mOe). Le champ est appliqué le long de l'axe c. Le facteur de désaimantation est n = 0,80. La courbe n'a pas été corrigé par n.*

Pour un échantillon de faibles dimensions, il est difficile de mesurer les fluctuations à partir de la susceptibilité. Effectivement,

pour les supraconducteurs 3D classiques on trouve pour la contribution de AL [14] :

$$\chi = -\frac{\pi\, kT}{6\Phi_0{}^2}\xi(T) \approx -10^{-7}\left(\frac{T_{c0}}{T-T_{c0}}\right)^{1/2}$$

Etant donné que notre échantillon a un volume de 10^{-6} cm^3, on s'attend à avoir un signal de fluctuations de l'ordre de 10^{-13} emu, ce qui est la limite de précision pour un SQUID. Nous ne nous attendons donc pas à observer, dans un échantillon aussi petit, des fluctuations à partir des mesures d'aimantation.

5.2 Fluctuations sous champ

5.2.1 Résultats théoriques

En fonction de ce qui a été fait dans la section précédente, nous avons eu l'idée d'étendre le même type d'analyse aux mesures de magnétorésistance.

Comme point de départ, nous avons utilisé les résultats théoriques de Maki de 1969 [51] où il calcule la contribution de AL sous champ à la paraconductivité pour des supraconducteurs "sales". Dans son calcul, K. Maki obtient, que pour un supraconducteur 3D à proximité de H_{c2}, la paraconductivité se comporte différemment en fonction de l'orientation du champ par rapport au courant de mesure.

Pour le courant perpendiculaire au champ, ce qui correspond à notre cas, il obtient une divergence de σ' en $(H-H_{c2}(T))^{-1/2}$.

Pour le courant parallèle au champ, il obtient une divergence de σ' en $(H-H_{c2}(T))^{-3/2}$.

Comme le font remarquer Skocpol et Tinkham dans leur travail de 1975 [47], cette anisotropie de l'exposant de la paraconductivité a été qualitativement observée dans des films de Mo-Ti.

Pour des couches minces, on s'attend à une divergence de σ' en $(H-H_{c2}(T))^{-1}$.

5.2.2 Détermination de H_{c2} pour H//c

Nous avons donc repris nos résultats de magnétorésistance, et avons extrait des valeurs de σ' vs H. L'avantage des mesures de magnétorésistance est que la résistivité à l'état normal étant assez importante, elle va peu contribuer à la magnétorésistance au-dessus de la transition. Toute variation de résistivité au-dessus de H_{c2} sera donc essentiellement due aux fluctuations.

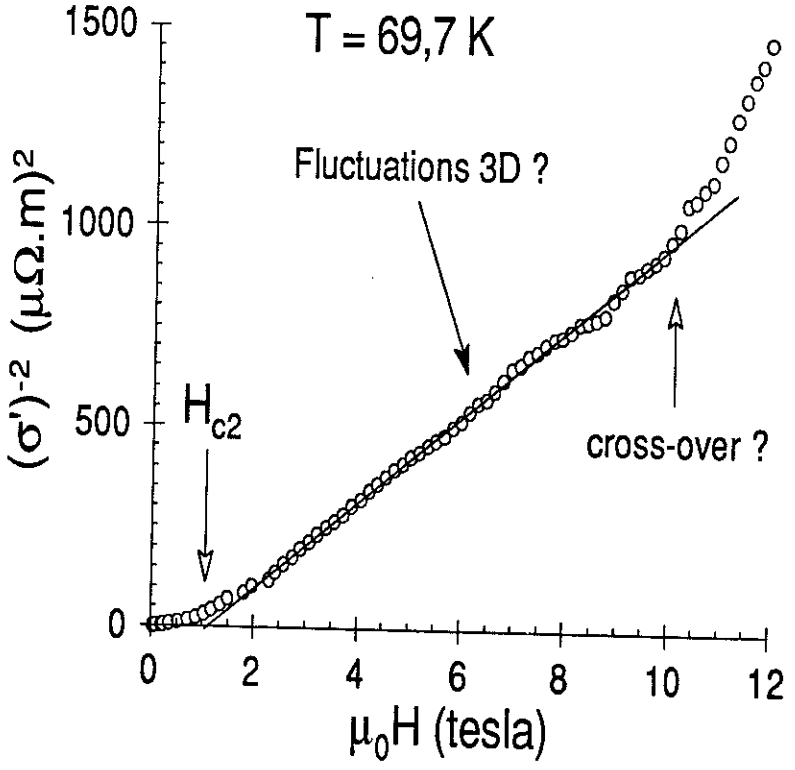


Fig.52 - $(\sigma')^{-2}$ en fonction de H. On notera le bon accord avec l'exposant -1/2 prévu pour des fluctuations 3D à proximité de H_{c2}. De cette courbe, on obtient H_{c2}= 1,1 teslas. La résistivité à l'état normal a été choisie à partir d'un comportement asymptotique en 1/H.

Sur la Fig.52 nous représentons $(\sigma')^{-2}$ en fonction de H. L'intercept de la loi linéaire ajustée au-dessus de H_{c2} donne la valeur même du H_{c2} de champ moyen. Pour un ρ_n obtenu de 1/H on a

H_{c2} = 1,1 T, tandis que pour l'autre extrapolation on obtient H_{c2} = 1,6 T.

Sur la Fig.53 on représente σ' en fonction du champ réduit $(H-H_{c2})/H_{c2}$ pour les deux extrapolations de ρ_n que nous avons utilisé jusqu'à présent.

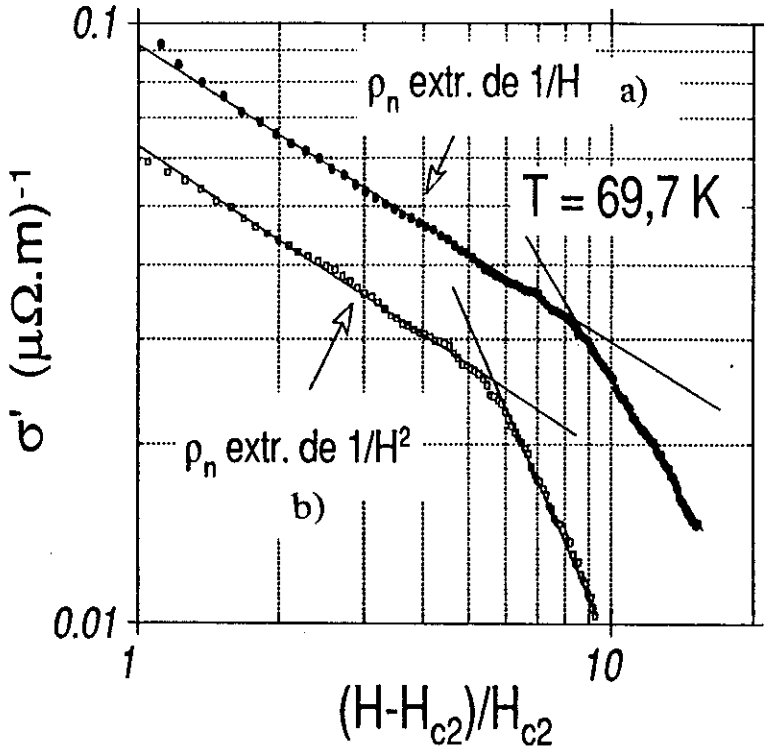


Fig.53 - Paraconductivité en fonction des variables réduites $(H-H_{c2})/H_{c2}$. On notera l'excellent accord avec l'éxposant 1/2 prévut par Maki pour des fluctuations 3D. On notera cependant un "cross-over" vers 10 tesla. Il est impossible pour le moment de savoir si ce cross-over est réel ou s'il est simplement induit par le type d'extrapolation pour ρ_n. Pour les deux courbes nous avons sistématiquement prit les valeurs de H_{c2} déterminées à partir des courbes de $(\sigma')^{-2}$ vs H (H_{c2}=1,1 T pour (a) et 1,6 T pour (b)).

Comme on l'observe sur la Figure ci-dessus, on a un comportement dont l'exposant est en excellent accord avec des **fluctuations 3D** jusqu'à des champs de 10 teslas. Au-dessus de ce champ, on observe un comportement qui est fortement dépendant de la valeur choisie pour ρ_n. En particulier pour ρ_n obtenu à partir d'une extrapolation en 1/H, $\sigma' \propto (H-H_{c2})^{-1.36}$ pour

$(H-H_{c2})/H_{c2}>9$. D'autre part pour l'extrapolation en $1/H^2$ on a une paraconductivitée proportionelle à $(H-H_{c2})^{-1,81}$.

Comme il a été signalé par Hikami et Larkin [48], on peut avoir non seulement un cross-over 3D-2D mais aussi un cross-over entre les contributions de AL et Maki Thomson MT. Proche de la transition, on a une prédominance du terme de AL, avec une contribution du terme de MT de plus en plus importante au fur et à mesure qu'on s'éloigne de la transition. De plus, selon leurs prévisions, ces deux cross-over devraient se produire à peu près aux mêmes valeurs de T (ou H selon le paramètre qu'on fixe). On ne peut donc pas distinguer pour le moment si le changement de régime qu'on observe est dû à :

1) Cross-over dimensionel entre 3D et 2D
2) Cross-over entre les contributions de AL et MT
3) Un simple artefact dû à l'extrapolation de ρ_n.

On doit remarquer que notre changement de régime peut aussi bien être provoqué par un mélange des phénomènes cités ci-dessus.

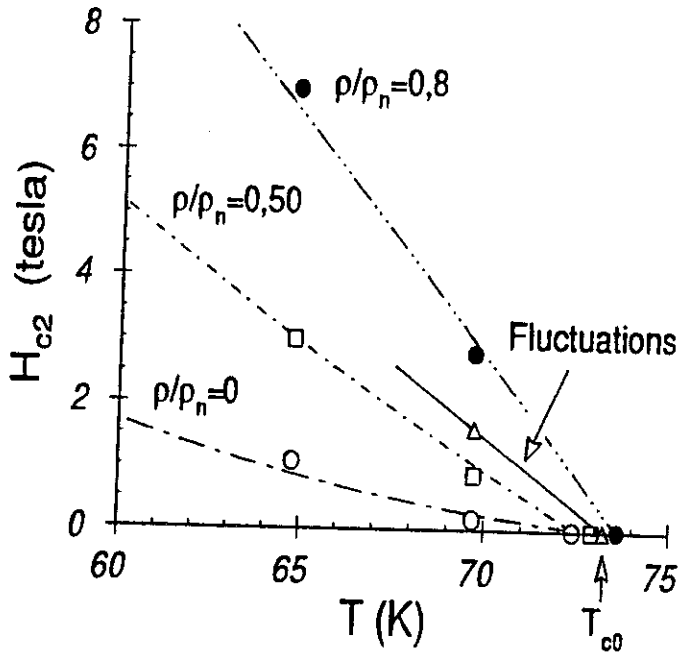


Fig.54 - $H_{c2}(T)$ déterminé à partir des fluctuations et de critères du type ρ/ρ_n constant. Pour une question de cohérence nous avons choisi ρ_n des extrapolations linéaires de ρ vs $1/H^2$.

Sur la Fig.54 nous représentons $H_{c2}(T)$ déterminé à partir de critères du type ρ/ρ_n = Constante. Les triangles correspondent au résultat obtenu à partir des fluctuations sous champ ($H_{c2}(T=69,7K) = 1,6$ T) et en champ nul ($T_{c0}=73,2$ K). Ici, ρ_n a été déduit des extrapolations à zéro de ρ vs $1/H^2$. Si on prend une extrapolation de ρ_n à partir de ρ vs. 1/H, à 69,7 K, on obtient $H_{c2} = 1,1$ T.

On remarque (tableau 5, pag.71) que, près de T_{c0}, ρ_n déduit de 1/H est peu différent de ρ_n déduit de $1/H^2$. Donc les H_{c2} déduits d'un critère de type ρ/ρ_n=constante ne sont pas très différents pour les deux extrapolations. On obtient $H_{c2} \approx 0,9$ T pour $\rho/\rho_n = 0,5$ et $T = 69,7$ K.

Donc on aurait tendance à dire que le vrai H_{c2} se trouverait entre $H_{c2}(\rho/\rho_n = 0,5)$ et $H_{c2}(\rho/\rho_n = 0,8)$. Ceci est **une forte indication** comme quoi $H_{c2}(T)$ se comporterait linéairement avec la température. Une étude plus détaillée des fluctuations au-dessus de $H_{c2}(T)$ se montre donc nécessaire.

Pour les courbes de magnétorésistance à plus basse température, étant donné que nous ne sommes plus très proches de la saturation vers l'état normal, l'extrapolation de ρ_n peut avoir une influence considérable dans l'analyse de σ'.

Nous allons donc conclure ce chapitre en proposant que la meilleure façon de mesurer les fluctuations supraconductrices consisterait à mesurer simultanément la résistivité ρ et sa dérivée $d\rho/dH$ en fonction du champ appliqué H. Dans ces conditions on s'affranchit du problème de la résistivité à l'état normal car si on suppose que ρ_n varie peut avec H :

$$\frac{d\rho/dH}{\rho^2} = \frac{d\sigma'}{dH}$$

D'autre part, pour être sûr qu'on observe vraiment des fluctuations 3D à proximité de H_{c2}, il faudrait faire des courbes de magnetorésistance à haut champ pour des orientations **H//J** et **H⊥J**, où **J** est le courant de mesure, et vérifier si on observe bien le comportement prévu par Maki [47,51].

6 Conclusion

Nous avons étudié sur un monocristal d'Y:248 l'anisotropie de H_{c1} à partir de mesures d'aimantation. Des mesures de transport réalisées, sur le même échantillon, jusqu'à 20 tesla ont donné des renseillements sur l'anisotropie de H_{c2}.

Dans ce travail, nous avons regardé quelles devraient être les expressions de H_{c1} et H_{c2} pour des supraconducteurs anisotropes. On a comparé le modèle de GL anisotrope avec les résultats théoriques pour des systèmes multi-couches. On a vu que, aussi bien pour H_{c1} que pour H_{c2}, il est difficile de distinguer entre un supraconducteur très anisotrope a trois dimensions (3D) et un système de plans supraconducteurs couplés par des jonctions Josephson.

En utilisant un magnétomètre d'extraction spécialement conçu pour mesurer des monocristaux de H-Tc, nous avons donc regardé les mesures de première aimantation (M vs H après un refroidissement à champ nul). A partir de ces mesures d'aimantation et d'un modèle de Bean étendu, nous avons étudié en profondeur les problèmes liés à la mesure de H_{c1}. Un diagramme de phase $H_{c1}(T)$ a été déduit pour la première fois pour le composé Y:248 [52]. Nous avons montré en particulier que la remontée de H_{c1} observée à basse température dans les composés Y:123 [22,23,24] pourrait être simplement un artefact lié au pinning (dépiégeage des vortex).

Les valeurs de H_{c1} semblent être pour le composé Y:248 de l'ordre de 3 à 4 fois plus faibles que pour le Y:123.

Pour H//c, nous avons ajusté nos résultats de H_{c1} par le modèle de GL anisotrope, dans l'approximation de deux fluides, avec 1 paramètre ajustable : la longueur de pénétration dans le plan $\lambda_{(a,b)}$ à T=0 K. Nous avons trouvé :

$$\lambda_{(a,b)} = (1800 \pm 200)\ \text{Å}.$$

Nous avons analysé H_{c1} pour les orientations le long des axes a et b sans cependant trouver d'anisotropie dans le plan.

Pour H⊥c, nous avons trouvé à partir du même ajustement par GL anisotrope :

$$\lambda_c = (8000 \pm 4000)\ \text{Å}$$

La large barre d'erreur dans la détermination de la longueur de pénétration λ_c vient essentiellement des importantes incertitudes retrouvées dans les déterminations de H_{c1} à partir de M vs H. Dans l'ajustement de $H_{c1}//(a,b)$ on a seulement un paramètre ajustable : l'anisotropie des masses effectives m_z/m_b et m_z/m_a. La longueur de pénétration $\lambda_{(a,b)}$ a été reprise à partir des résultats de H_{c1} pour H//c et $\xi_{(a,b)}$ a été obtenu à partir de valeurs de H_{c2} déduites des courbes de magnétorésistance sur le même échantillon [33].

On notera que les valeurs des longueurs de pénétration obtenues pour Y:248 ne sont pas très différentes des valeurs de la littérature pour Y:123 [20,21,25,26,54] qui sont :

$$\lambda_{(a,b)} = (1420 \pm 30)\ \text{Å}$$
$$\lambda_c \approx 8000\ \text{Å}$$

Pour le moment, aucune anisotropie de H_{c1} n'a été retrouvée dans le plan (a,b) pour des monocristaux de Y:123 non maclés [16].

A partir du modèle de Bean étendu aux supraconducteurs anisotropes, nous avons réussi à expliquer presque complètement la courbe de première aimantation. Comme résultat, nous avons l'anisotropie des courants critiques de Bean J_c dans les plans Cu-O_2 et le long de l'axe c. Pour H//c et dans la limite bas champ, un comportement thermiquement activé, avec des barrières de l'ordre de U_0=190 K, explique la variation en température du J_c de Bean. Nous avons d'autre part une anisotropie des courants critiques entre 100 et 300, pour des températures au dessous de 30 K.

Une fois que les mesures magnétiques ont été réalisées, nous avons posé, sur le même échantillon, quatre contacts de qualité ohmique. Grâce à ces contacts, et en collaboration avec le Dr. O. LABORDE (SNCI-Grenoble), nous avons réalisé des mesures

de magnétorésistance jusqu'à 20 teslas. Ces mesures ont été réalisées en fonction de la température, mais aussi en fonction de l'orientation du champ magnétique.

Comme résultat de ces mesures nous avons obtenu des longueurs de cohérence trois à quatre fois plus importantes que le composé Y:123. Nous avons obtenu que :

$$\xi_{(a,b)} = (40\pm10)\ \text{Å}$$

Il faut noter que ce résultat est tout à fait similaire à celui obtenu par d'autres groupes, avec des techniques différentes sur des échantillons différents de Y:248 [40,50].

A partir des mesures de magnétorésistance en fonction de l'orientation du champ, nous avons réussi à montrer l'existence d'une simple loi d'échelle en $H/h_s(\theta)$ qui permet de superposer les différentes courbes de ρ vs H pour différents angles. L'angle θ correspond à l'angle entre l'axe a et le champ H. Il n'a pas été possible de mesurer l'anisotropie entre les axes b et c. Il aurait fallu dans ce cas poser les quatre contacts le long de l'axe a, ce qui pour nous, n'était pas possible étant donné les faibles dimensions de l'échantillon.

Nous avons vérifié que la loi d'échelle $h_s(\theta)$ obéit à la dépendance angulaire de $H_{c2}(\theta)$ du modèle de GL anisotrope. Le modèle de Tinkham ou un comportement du type $1/\sin(\theta)$ ne suffisent pas pour expliquer $h_s(\theta)$. Ce fait expérimental est en accord avec l'**hypothèse** selon laquelle la partie supérieure de la courbe de magnétorésistance serait une fonction du type :

$$\rho(H,T,\rho_n) = \rho(H/H_{c2},T,\rho_n)$$

A partir de h_s, on déduit de l'ajustement par le modèle de GL anisotrope, un rapport des masses effectives de :

$$\frac{m_c}{m_{(a,b)}} = 100$$

Ceci correspond à :

$$\xi_z(T=0) = \xi_{(a,b)}(T=0) / \sqrt{m_c / m_{(a,b)}} \approx 4 \text{ Å}$$

Ces résultats sont en accord avec ceux obtenus à partir des mesures d'aimantation réalisées sur le même type d'échantillon [50].

A cause des fortes valeurs de $H_{c2}(H//a)$, nous n'avons pu étudier l'anisotropie qu'au dessus de T = 62 K. Entre 62 K et T_{c0}, on observe donc un comportement du type 3D. Effectivement, naïvement on pourrait estimer une température de cross-over T_0, entre un régime 3D et 2D pour un système de plans supraconducteurs écartés d'une distance L, à partir de $\xi_c(T=T_0) = L/2$ où L est la distance entre les blocs de plans CuO_2-Y-CuO_2. Dans ce cas, en prenant $\xi_c = 4$ Å et L = 13 Å, on obtient $T_0 \approx 45$ K. Nous sommes donc tout le temps dans le régime 3D !

Pour finir, nous avons regardé le problème des fluctuations supraconductrices au dessus de T_{c0}.

Nous avons montré qu'à partir des courbes de magnéto-résistance il est possible d'extrapoler la valeur de ρ_n. Le champ magnétique va seulement "tuer" la supraconductivité sans avoir trop d'influence sur la résistivité à l'état normal. Proche de la transition, 20 tesla sont suffisants pour qu'on soit assez proche de ρ_n pour l'estimer. On a donc pu déduire l'incrément de conductivité σ' dû aux fluctuations. Comme on peut s'y attendre [47,48], on observe un comportement du type AL à trois dimensions. A partir de ce comportement, on obtient une valeur de T_{c0} qui est en excellent accord avec le onset à zéro de l'aimantation à faible champ (voir chapitre 5). Des fluctuations, on peut déduire une valeur $\xi_z \approx$ **14** Å. Cette valeur est 4 fois plus grande que la valeur déduite à partir de $H_{c2}(T)$. Ceci pourrait s'expliquer par la géométrie de nos contacts.

Nous avons essayé d'étendre, le même genre d'étude menée pour les fluctuations à champ nul aux fluctuations sous champ. Le but ici était de déduire les valeurs de $H_{c2}(T)$.

Nous avons aussi montré que les fluctuations sous champ, à T fixe (et égal à 70 K), ont un caractère 3D entre H_{c2} (1,2 teslas) et presque $10xH_{c2}$ (10 teslas). A 10 teslas il y a cependant un changement de régime qu'on ne réussit pas à identifier. On pourrait être en train de vérifier aussi bien un cross-over 3D-2D, un cross-over entre AL et MT [48], ou alors simplement un artefact dû aux extrapolations de ρ_n à

partir de ρ(H). Etant donné que pour des températures plus basses, même à 20 teslas, on est beaucoup plus loin d'un régime de saturation de ρ(H), nous n'avons pas poursuivi cette étude au-dessous de 70 K.

Ces résultats sont cependant une forte indication comme quoi il faudrait envisager une expérience spécifique afin d'étudier les fluctuations supraconductrices à T fixe au dessous de T_{c0}.

On finira ce travail avec les remarques suivantes :

1) **Proche de la transition** supraconductrice à champ nul (T_{c0}), le composé **Y:248** se comporte, même sous champ, comme **un supraconducteur 3D**.

2) Pour le moment nous n'avons **pas de preuve** expérimentale **d'un cross-over 3D-2D** "loin" de la transition.

3) Le **modèle de Bean peut décrire la pénétration du flux** dans le composé Y:248 à condition de le développer dans le contexte anisotrope et en tenant compte de l'aimantation à l'équilibre.

4) Pour le composé **Y:248**, les champs critiques **H_{c1} et H_{c2} sont de l'ordre de 3 à 5 fois plus petits que** pour le composé **Y:123**.

7 - Références

1 J. G. Bednorz, K. A. Müller, *Z. Physik B* **64**(1986) 189

2 H. Takagi, S. Uchida, K. Kitazewa, S. Tanaka, *Jpn.J.Appl.Phys.* **26**(1987)123

3 C. N. Chu, P. H. Hor, R. L. Meng, L. Gao, Z.J. Huang, T. Q. Wang, *Phys.Rev.Lett.* **58** (1987) 405

4 H. Maeda, Y. Tanaka, M.F. Fikutomi, T. Azano, *Jpn.J.Appl.Phys.* **27** (1988)L209

5 S. P. Parkin, V. Y. Lee, E. M. Engler, A. I. Nazzal, T. C. Huang, G. Gorman, R. Savoy, R. Beyers, *Phys.Rev.Lett.* **60** (1988) 2539

6 R.Cava, B. Batlogg, J. J. Krajewski, L. W. Rupp, L. F. Schneemeyer, T. Seigrist, R. B. van Dover, P. Marsh, W. F. Peck, Jr., P. K. Gallagher, S. H. Gharum, J. H. Marshall, R. C. Farrow, J. V. Waszczak, R. Hull, P. Trevor, *Nature* **336** (1988) 211

7 A. W. Sleight, J. L. Gillson, P. E. Bierstedt, *Solid State Comm* **17** (1975) 27

8 R. J. Cava, B. Batlogg, J. J. Krajewski, R. C. Farrow, L. W. Rupp, A. F. White, K. Short, W. F. Peck, T. Konetani, *Nature* **332** (1988) 814.

9 J. Karpinski, E. Kaldis, E.Jilek, S. Rusiecki, B. Bucher, *Nature* **336**(1988) 660.

10 J. Karpinski, E. Kaldis, S. Rusiecki, E.Jilek, P. Fischer, P. Bordet, C. Chaillout, J. Chenevas, J.L. Hodeau, M. Marezio, *J.Less Common Metals* **150** (1989) 129.

11 P. Bordet, J.L. Hodeau, R. Argoud, J. Muller, M. Marezio, J.C. Martinez, J.J. Préjean, J. Karpinski, E. Kaldis, S. Rusiecki, B. Bucher, Physica C **162-164** (1989) 524.

12 E. Kaldis, J.Karpinski, "Superconductors in the $Y_2Ba_4Cu_{6+n}O_{14+n}$ Family" in " Solid State Chemistry of High Tc Superconductors", Ed. E. Kaldis, Special issue, *Europ.J. Solid State Chem* **27** (1990) 143.

13 L.B. Bulaevski, *Inter. J. Mod. Phys.* **4** (1990) 1849

14 M.Tinkham, "*Introduction to Superconductivity*", McGraw Hill (1975) - 14a pag.128 ; 14b pag.144

15 S. Chikazumi, *"Physics of Magnetism"*, John Wiley & Sons, Inc (1964) 19

16 A. Umezawa, G.W. Crabtree, U. Welp, W.K. Kwok, G. Vandervoort, *Phys Rev.B*, **42** (1990) 8744

17 H.W. Weber, *private communication*

18 V.V. Moshchalkov, J.Y. Henry, C. Marin, J. Rossat-Mignot, J.F. Jacquot, to be published in *Physica C*

19 V.V. Moshchalkov, C. Marin, J.Y. Henry, J. Rossat-Mignot, J.F. Jacquot, *Submitted to Phys.Rev.Lett.*

20 Y. Yeshurun, A.P. Malozemoff, F. Holtzberg, T.R. Dinger, *Phys. Rev. B* **38** (1988) 11828.

21 L.Krusin-Elbaum, A.P. Malozemov, Y. Yeshurun, D.C. Cronemeyer, F. Holzberg, *Phys.Rev.B* **39** (1989) 2936

22 T. Ishii, T. Yamada, *Physica C* **159** (1989) 483

23 H. Adrian, W. Assmus, A. Höhr, J. Kowalewski, H. Spille, F. Steglich, *Physica C* **162-164** (1989) 329.

24 A. Umezawa, G.W. Crabtree, J.Z. Liu, T.J. Moran, S.K. Malik, L.H. Nunez, W.L. Kwok, C.H. Sowers, *Phys. Rev. B* **38** (1988) 2843.

25 D.R. Harshmann, L.F. Scheemeyer, J.V. Waszczak, G. Aeppli, R.J. Cava, B. Batlogg, L.W. Rupp, E.J. Ansaldo, D. LI. Williams, *Phys.Rev.B* **39** (1989) 851

26 S. Sridart, D.H. Wu, W. Kenedy, *Phys.Rev.Lett.* **63** (1989) 1873

27 E.M. Gyorgy, R.B. van Dover, K.A. Jackson, L.F. Scheemeyer, J.V. Wazczak, *Appl.Phys.Lett.* **55** n°3 (1989) 283

28 F.M. Sauerzopf, H.P. Wiesinger, H.W. Weber, *Cryogenics* **30** (1990) 650

29 C.P. Bean, Phys. Rev. Lett. 8 (1962) 250.

30 P.G. De Gennes, *"Superconductivity of Metals and Alloys"*, W.A. Benjamin, New York (1966) 83

31 P.W. Anderson, Phys.Rev.Lett. **9** (1962) 309

32 Y.B. Kim, C.F. Hempstead, A.R. Strnad, Phys.Rev. **129** (1963) 528

33 J.C. Martinez, O. Laborde, J.J. Préjean, C. Chappert, J.P. Renard, J. Karpinski, E. Kaldis, *Europhysics Letters* **14** (7) (1991)

34 P. Minnhagen, *Rev.Mod.Phys.* **59** (4) (1987) 1001

35 W. Bauhofer,W. Biberacher, B. Gegenheimer, W. Joss, R. K. Kremer, Hj. Mattausch, A. Müller, A. Simon, *Phys. Rev. Lett.* 63 (1989) 2520.

36 L. N. Bulaevskii, lors de son séjour au Grenoble, a proposé de prendre la plus petite distance entre les plans CuO_2 (4 Å). Nous avons cependant considéré que les plans pourraient être couplées deux à deux : dans ce cas il fallait prendre la distance entre deux blocs de plans (12 Å).

37 J. L. Tholence,M. Saint-Paul, O. Laborde, P. Monceau, M. Guillot, H. Noel, J. C. Levet, M. Pottel, J. Padiou, P. Gougeon, à apparaitre dans "*Studies of High Temperature Superconductors* " Nova Science Publishers Inc., New York, Ed.Narlikar.

38 E.H. Brandt, *Internat. Conf. on Low Temperature Physics* LT19, Brighton, UK, 16-22 Aug.1990 (Physica B)

39 P.H. Kes, J. van den Berg, à apparaitre dans "*Studies of High Temperature Superconductors* " Nova Science Publishers Inc., New York, Ed.Narlikar.

40 P.Berghuis, P.H. Kes, B. Dam, G.M. Stollman, J.Van Bentum, *Physica.C.* **167** (1990) 348

41 K. Winzer, G. Kumm, *Z. Phys. B - Condensed Matter* **82** (1991) 317

42 W.E. Lawrence, S. Doniach, *Proceedings of 12th International Conference on Low Temperature Physics*, , Kyoto-Japan (1970) 361

43 C.Kittel, *"Quantum Theory of Solids"*,J.Wiley & Sons (1975) 237; and J. Schoenes, J.Karpinski, E. Kaldis, J.Keller, P. de la Mora; *Physica C* **166** (1990) 145

44 O. Laborde, P. Monceau, M. Pottel, P. Gougeon, J. Padiou, J.C. Levet, H. Noel, *Physica.C* **153-155** (1988) 1467

45 J.C. Picoche, P. Rub, J.C. Valier, H.J. Schneider-Muntau, International Symposium on High Field Magnetism , Osaka (1982) 257

46 J.E. Mooij, *"Percolation Localization, and Superconductivity"*, Edited by A.M. Goldman and S.A. Wolf, Plenum Press, New York (1984) 325

47 W.J. Skocpol, M. Tinkham, *Rep. Prog.Phys*, **38** (1975) 1049

48 S. Hikami, A.I. Larkin, *Mod.Phys.Lett. B*, **2** (5) (1988) 693

49 M.C. Saint Lager, *"Etude de la cohérence de phase des ondes de densité de charge"*, **Thèse** pour obtenir le grade de Docteur ès-Sciences Physiques de l'Université Joseph Fourier - Grenoble I (1988) 78

50 B. Bucher, J.Karpinski, E. Kaldis, P.Wachter, *Physica C*, **167** (1990) 324

51 K. Maki, *Jour.Low.Temp.Phys.*, **1** (5) (1969) 513

52 J.C. Martinez, J.J. Préjean, J. Karpinski, E. Kaldis, P. Bordet,*Solid State Comm.***75** n°4 (1990) 315

53 A. Umezawa, G.W. Crabtree, J.Z. Liu, T.J. Moran, S.K. Malik, L.H. Nunez, W.L. Kwok, C.H. Sowers, Phys. Rev. B **38** (1988) 2843.

54 A.P.Malozemoff, *Physical properties of Hight Temperature Superconductors*. World Scientific Publishing Co., Singapore (1989)

55 A.Junod, T. Graf, D. Sanchez, G. Triscone, J. Müller,.*Physica B* **165&166** (1990) 1335

Appendices

AI Magnétomètre à extraction

SOMMAIRE

1 Introduction

2 Température

2.1 Mesure de température
2.2 Etalonnage de température
a) Thermomètre Ge
b) Thermomètre Pt
2.3 Régulation sous champ

3 Champ magnétique

4 Mesure d'aimantation

5 Mesure de susceptibilité

6 Calorimètre et système d'extraction

6.1 Introduction
6.2 Calorimètre
6.3 Système d'extraction

7 Traitement des données

8 Bibliographie

AI Magnétomètre à extraction

1 Introduction

Dans cette section, nous allons décrire le montage expérimental que nous avons adapté à l'étude des supraconducteurs à H-T_c.

On commencera par la mesure de température et son étalonnage. Le champ magnétique est stabilisé dans ce montage par une sonde à effet Hall. On peut réaliser avec le même montage des mesures d'aimantation en dc et des mesures de susceptibilité à basse fréquence (22 Hz et 240 Hz). Ce magnétomètre est équipé d'une bobine supraconductrice pouvant fournir des champs jusqu'à de 8 teslas.

Comme résultat, nous avons, grâce au travail du groupe au cours des trois dernières années, obtenu une précision de l'ordre de 10^{-7} emu à bas champ (H<300 Oe) et 10^{-6} emu pour des champs de l'ordre du tesla. La contribution du porte-échantillon + calorimètre est de l'ordre de 10^{-7} emu elle aussi. La régulation de température par sonde capacitive nous donne une stabilité en température sous champ de l'ordre de 0,1 ‰ entre 6 K et 150 K.

2 Température

2.1 Mesure de température

Les températures sont déterminées à partir de mesures de résistivité. En fonction de la gamme de température, nous avons utilisé deux thermomètres différents. Entre 1 K et 25 K, nous avons utilisé une résistance germanium (R-Ge), de type GR-200B-1500 commercialisée par Lake Shore Cryotronics, Inc. Pour les températures situées entre 25 et 293 K, nous avons utilisé comme thermomètre une résistance de platine (R-Pt). Ces thermomètres ont comme avantage par rapport aux sondes de carbone d'être plus reproductibles et sans traînage après un changement de température. Initialement les mesures de résistivité étaient faites grâce à un pont de résistivité basé sur une détection synchrone. Plus tard, nous avons utilisé un ohmmètre régulateur PX1 développé par le service électronique du CRTBT et commercialisé par Barras-Provence. Cet ohmmètre régulateur est commandé par un µ-ordinateur Epson PX4

qui est dédié exclusivement à la régulation et mesure de température. La régulation étant numérique, on peut à la fois mesurer une résistance, et l'utiliser comme référence de régulation, sans avoir les inconvénients d'une régulation analogique (décalage possible entre la consigne et la valeur de résistance).

Une interface RS232 assure la communication avec l'ordinateur qui contrôle le montage (un Apple II-GS).

Etant donné que les thermomètres R-Ge et R-Pt présentent une magnétorésistance non négligeable, les mesures de température sont toutes faites à champ nul. Dés qu'on applique un champ magnétique, on régule sur un thermomètre capacitif.

2.2 Etalonnage des thermomètres

a) Thermomètre R-Ge

Nous avons étalonné la résistance de germanium avec le Dr. Jacques ODIN au CRTBT * qui dispose d'un montage ayant des thermomètres primaires : bulbes à pression de vapeur de He^3, He^4, H_2-para et un thermomètre à gaz à volume constant.

En fonction des gammes de température, l'étalonnage de R-Ge a été fait avec l'aide d'un thermomètre différent :

1,2 K	à	3,3 K	bulbe à He^3
2,2 K	à	4,5 K	bulbe à He^4
4,0 K	à	30 K	therm. à gaz
13,8 K	à	30 K	bulbe H_2-para

La dispersion des mesures est inférieure à 1 mK entre 2,2 K et 3,3 K. Elle augmente jusqu'à 10 mK dans la région entre 3,3 et 21 K.

---

* A. Berton, J. Chaussi, J. Odin, B. Souletie, Compte-rendu des Journées de Calorimétrie et d'analyse Thermique, Vo.7, Besançon 13-14 Mai 1976

b) Thermomètre Pt

Nous avons pris comme étalonnage de la résistance de platine la fonction de référence IPTS-68 corrigée de la résistance résiduelle à 4,2 K (1 ‰ R_{273K}). On estime que la précision de nos mesures de température n'est pas meilleure que 1 ‰. Par manque de thermomètres primaires à notre disposition, on n'a pas pu faire un étalonnage qui puisse être du même ordre de grandeur que notre stabilité en température qui est de l'ordre de 0,1 ‰. On notera tout de même que 1 ‰ à 100 K correspond à 0,1 K.

2.3 Régulation sous champ

Comme nous pouvons appliquer des champs jusqu'à 8 teslas, on ne peut utiliser comme référence les thermomètres résistifs qui présentent des magnétorésistances non négligeables (notamment R-Pt et R-Ge). Ceci fausse les mesures de température sous champ et la stabilité de celle-ci quand on varie le champ si on prend ces thermomètres comme référence de régulation. Il est alors impossible de réaliser une vraie courbe d'aimantation isotherme.

Nous avons donc utilisé une régulation de température à référence capacitive. La capacité de référence est un CS-401LG-C de chez Lake Shore Cryotronics, Inc. Ce thermomètre ne présente évidemment pas de dépendence en champ et il a une forte variation ($C = C_0 + \alpha T$) à basse température ($T < 50$ K). Il présente cependant deux inconvénients. Premièrement, il présente un maximum de C en fonction de T vers 65 K. D'autre part, on observe des relaxations du diélectrique avec le temps après un changement de température. Il faut donc des temps de stabilisation de température assez importants. Nous avons trouvé une solution simple pour ces problèmes : il suffit de réguler à champ nul pendant quelques heures sur les thermomètres résistifs et passer sur la régulation capacitive quelques minutes avant de monter le champ. Cette procédure donne une stabilité de 0,1 ‰ même pour des températures proches de 65 K. Le seul inconvénient de la méthode est le temps d'attente qui peut être de deux à trois heures.

Une particularité du montage est que la capacité de référence du pont de mesure de capacité est scellée dans une boite en cuivre

régulée à 40°C à 0,1° près. En effet, cette capacité, pourtant réputée stable en température à l'ambiante, varie de 15 ppm/degré. Ceci est équivalent à une variation de 3 mK de la température régulée du calorimètre (pour T < 50 K) par degré de changement de la température de la référence (vers 300 K). Cette variation sera encore plus importante vers 65 K où C(T) passe par un maximum.

3 Champ magnétique

Dans ce montage, on a une bobine supraconductrice de Nb-Ti qui peut nous fournir un champ de 8 teslas. L'alimentation de la bobine peut fournir des courants jusqu'à 70 A. Ce type d'alimentation présente toujours un bruit à très basse fréquence et des dérives de courant à cause des échauffements de l'électronique après établissement de courants importants. On peut annuler ces effets par asservissement de l'alimentation de courant par le déséquilibre d'un pont adapté à la mesure d'une sonde à effet Hall. Celle-ci est localisée à 4,2 K près du centre de la bobine de champ. On obtient ainsi une stabilité de l'ordre de 0,1 Oe à 80 kOe (8 teslas).

Etant donné que la plupart de nos résultats (en particulier les résultats de H_{c1}) ont été obtenus à bas champ (~100 Oe), nous avons aussi utilisé des alimentations de 100 mA et 1 A ayant un bruit et une stabilité meilleurs que $\Delta I/I \sim 10^{-5}$.

Pour les bas champs (H < 250 Oe), on ne dépasse jamais le H_{c1} de la bobine de Nb-Ti. Dans ce cas, la compression du flux magnétique à l'intérieur de la bobine oblige une recalibration de la valeur du champ en fonction du courant. Nous l'avons fait avec la transition supraconductrice d'une sphère de plomb (pureté de 99,999 %) qui est bien tabulée dans la littérature*. Pour les hauts champs (de l'ordre du tesla, c.à.d. quand l'aimantation de Nb-Ti devient négligeable), on utilise la constante de calibration donnée par le calcul théorique du champ d'une bobine (1,207 Oe/mA). Par contre, notre étalonnage donne à bas champ une constante de 1,304 Oe/mA.

---

* D.L. Decker, D.E. Mapother, R.W. Shaw, Phys.Rev, **112** n°6 (1958)1888

4 Mesure d'aimantation

L'idée consiste à déplacer l'échantillon aimanté entre deux bobines de mesure connectées en série et enroulées en sens inverse. La variation du flux dû au déplacement de l'échantillon va engendrer une force électromotrice qui, après intégration, sera proportionnelle à l'aimantation.

Ces bobines de détection sont enroulées de façon à ce que le flux magnétique total traversant le jeu de bobines soit nul. Un jeu de bobines en opposition est rajouté à l'extérieur de façon à réduire la sensibilité aux perturbations externes sur l'axe z loin de la zone de mesure (les enroulements sont du type ⊖⊕⊖⊕). Cette bobine de mesure sert aussi de secondaire d'une mutuelle dont le primaire est constitué d'un bobinage en cuivre additionnel.

Le système de mesure (sans le calorimètre) est représenté dans la Fig. A1. Pour éviter qu'un bruit important soit généré par des flux coupés aléatoirement par la bobine de mesure, un grand soin est apporté pour éviter toute vibration due à des origines externes, aux bulles d'He, etc. Pour cela, le bobinage primaire est noyé dans l'araldite composant le mandrin de la bobine de mesure. L'espace entre les bobines de mesure/primaire et la bobine de champ est rempli de μ-billes de verre. Ceci rend les bobines plus solidaires et fixe la position de l'ensemble des fils sans empêcher la circulation d'He liquide. La bobine de mesure et le primaire sont donc gardés à la température de l'He liquide.

La force électromotrice induite par le déplacement de l'échantillon est injectée dans un amplificateur galvanométrique de gain 10^4 à impédance d'entrée infinie. Un circuit de contre-réaction passant par un intégrateur permet d'utiliser l'amplificateur comme détecteur de zéro. C'est le signal de contre-réaction qui va nous donner la force electromotrice amplifiée. Un convertisseur tension-fréquence va transformer le signal dc en un signal carré (0 +5V) de fréquence proportionnelle à la tension injectée (entre 1 Hz et 100 kHz). Un ordinateur Apple II Gs compte le nombre de pics +5V qui arrivent durant le temps d'extraction. Le signal se trouve donc automatiquement intégré par cette procédure.

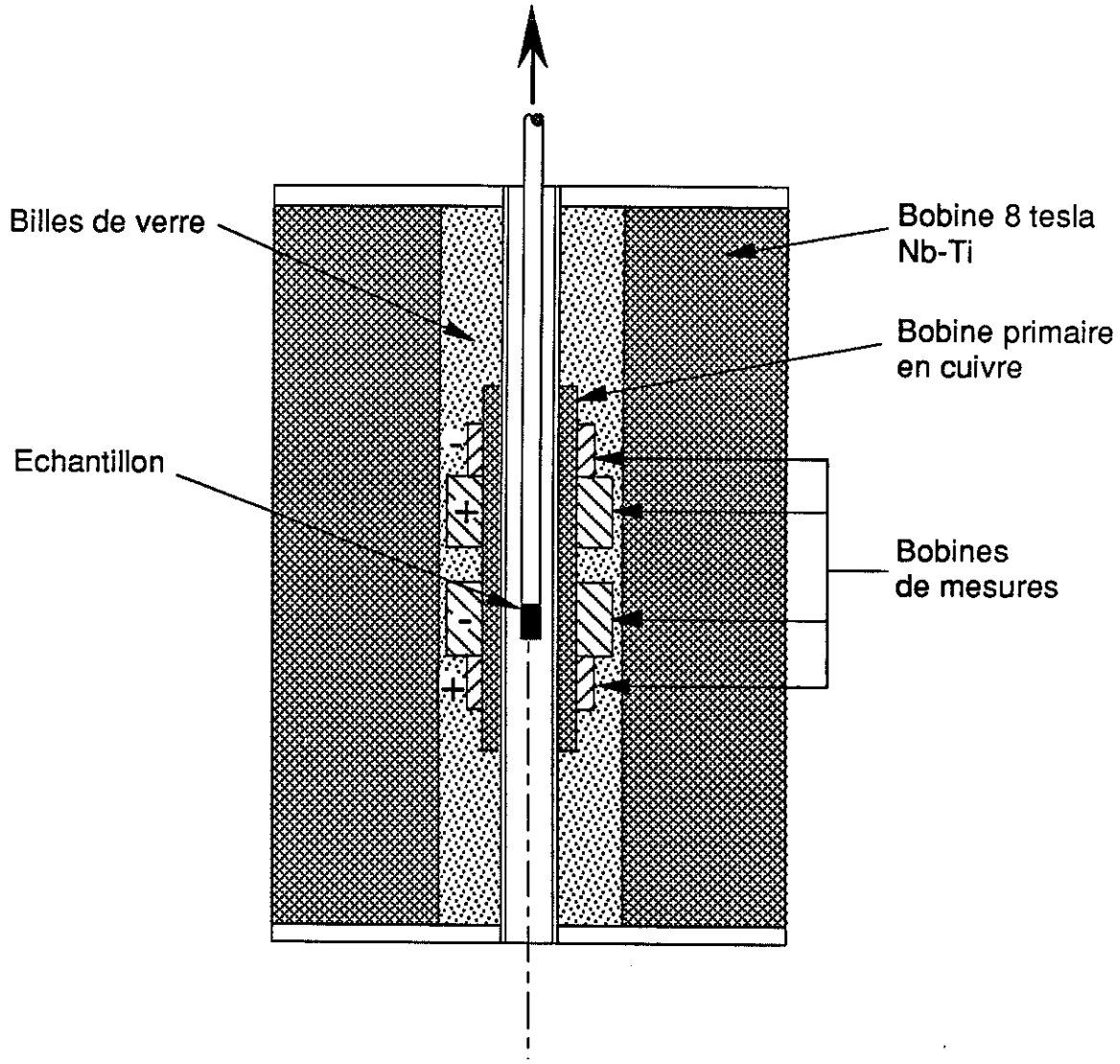


Fig.A1 - Diagramme représentant la bobine de champ, la bobine primaire et les bobines de mesure. L'échantillon est extrait entre les deux bobines de mesure internes. Les bobines de mesure externes en opposition servent à réduire la sensibilité au bruit et contributions d'aimantation loin du centre.

5 Mesure de susceptibilité

Comme on peut le voir sur la Fig. A1, on a dans le montage une bobine primaire où on peut injecter un courant d'excitation AC provenant d'une source de courant pilotée par un générateur basse fréquence. Une tension, somme de deux tensions ajustables (l'une en quadrature et l'autre en phase avec le courant d'injection) est opposée au signal de la bobine de mesure. Le tout est amplifié,

d'abord par un transformateur puis par un amplificateur à bas niveau/bas bruit avec pré-filtrage en fréquence. La sortie de l'amplificateur est branchée sur la détection synchrone DS. La DS est utilisée comme détecteur de zéro et la susceptibilité est donnée par la tension d'opposition.

En principe, la géométrie de nos bobines de mesures devrait être telle que la mutuelle entre le primaire et le secondaire à vide devrait être nulle. Dans la réalité, l'équilibre est loin d'être parfait : pour de petits échantillons tels que des monocristaux d'Y-Ba-Cu-O, le signal est plus petit que la contribution à vide. Pour avoir une mesure absolue de la susceptibilité, on est donc obligé de déplacer l'échantillon entre les bobines de mesure. Cette procédure nous permet de soustraire la contribution à vide en soustrayant le signal en ⊕ du signal en ⊖ (voir Fig. A1). En pratique, on équilibre le pont sans échantillon et on mesure la tension en déséquilibre avec l'échantillon en ⊕ puis en ⊖. Le temps de réponse de la DS est réglé à 0,3 s (pour qu'un parasite relaxe vite) et on effectue une intégration numérique pendant 10 s. Une série de mesures permet de rejeter les points notablement aberrants.

Ici, nous avons obtenu une précision de l'ordre de 10^{-8} emu à 22 Hz.

6 Calorimètre et système d'extraction

6.1 Introduction

Par suite de l'espace réduit à l'intérieur du système de mesure (bobine de champ + bobine primaire + bobines de mesure), nous nous sommes vus devant le problème de construire un calorimètre non magnétique dont le diamètre externe ne soit pas supérieur à 15 mm. D'autre part, pour éviter une variation de la température de l'échantillon durant l'extraction entre les bobines de mesure, il fallait extraire **tout** le calorimètre. Ceci veut dire qu'une éventuelle contribution magnétique venant du calorimètre était à proscrire. Cette exigence impose le choix de matériaux les moins magnétiques possibles. De plus, ceci entraine une difficulté pour la thermométrie. En effet, les sondes résistives et capacitives ayant une contribution magnétique, il est nécessaire de les placer loin de l'échantillon. Il

faut alors concevoir un montage qui évite un gradient significatif de température entre thermomètres et échantillons.

6.2 Calorimètre

La partie froide du calorimètre se divise en trois parties : un tube en laiton, un anneau en cuivre et une queue en quartz.

Nous avons choisi le laiton car les soudures sur l'inox peuvent engendrer une transformation martensitique qui va amener la formation de α-ferrite qui est ferromagnétique.

Nous avons utilisé un calorimètre à parois en quartz (assez pur et peu magnétique) qui est un isolant électrique. Ceci permet d'éviter des courants de Foucault, à proscrire non seulement pour des mesures AC mais aussi pour des mesures DC. Dans ce dernier cas, même de légers gradients de champ peuvent produire des courants pendant l'extraction et donner un signal parasite si le calorimètre était métallique.

Pendant la construction du calorimètre, nous avons eu deux problèmes. Le premier a été la réalisation d'une jonction étanche cuivre/quartz. Le deuxième a été les pertes par radiation, qui peuvent être considérables dans un calorimètre en quartz.

La pièce en cuivre a été conçue de sorte à ne pas être trop ajustée aux tubes de quartz pour tenir compte des contractions différentiées des deux matériaux à froid. L'étanchéité entre le quartz et le Cu est assurée par du CAF-535 *.

L'utilisation du quartz dans la partie basse favorise les pertes par radiation. Des feuilles d'aluminium ont donc été collées sur les tubes de quartz avec du stycast blanc (qui a une faible contribution magnétique). En plus, du super-isolant très propre (non représenté sur la Fig. A2 pour plus de clarté) a été mis entre les deux tubes de quartz.

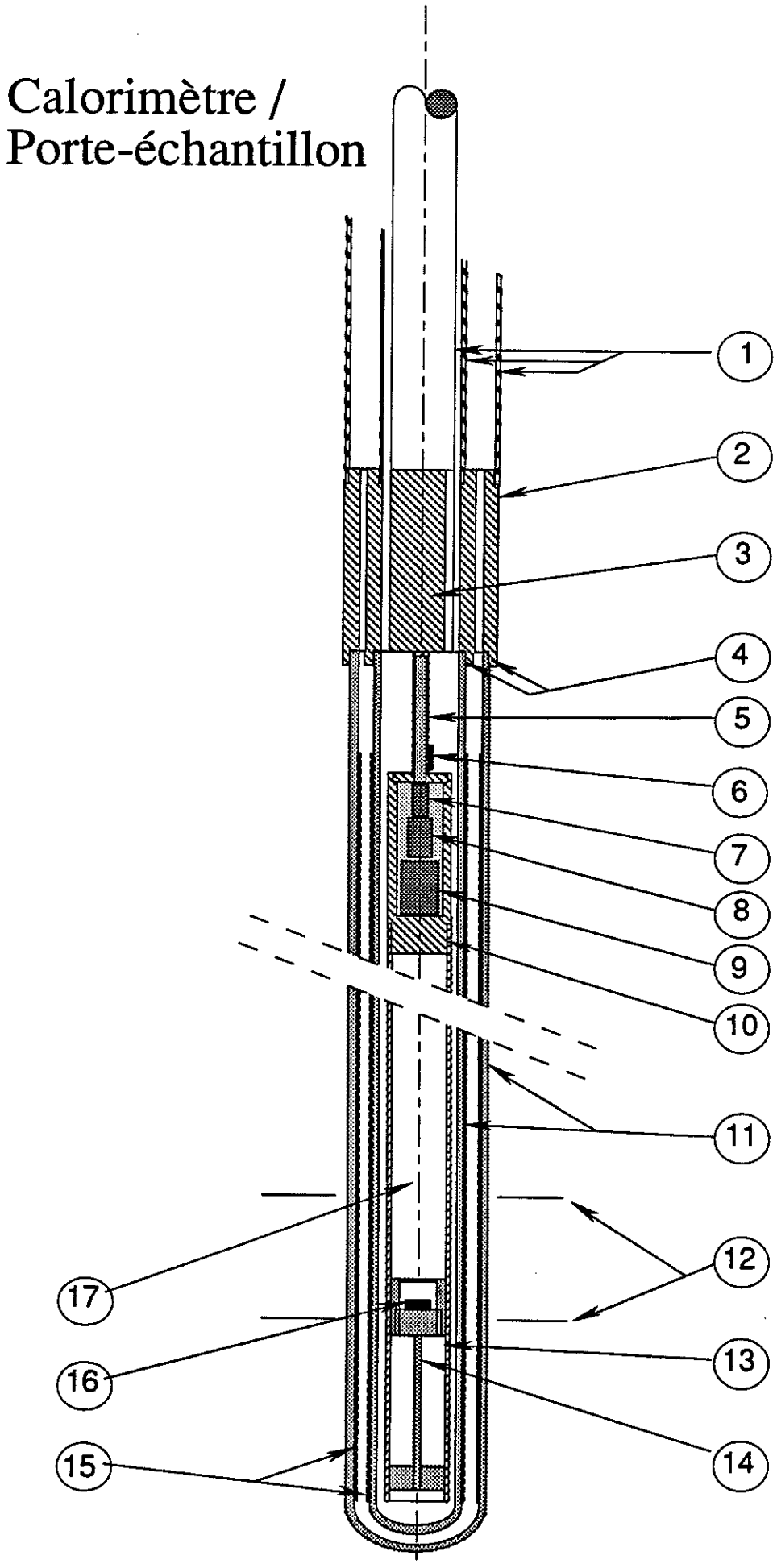
Après quelques essais sans porte-échantillon, nous nous sommes aperçus qu'il y avait une petite contribution venant du calorimètre. Cette contribution pouvait être annulée à condition de bien

---

* J. Chaussy, G. Escalon, P. Gianese, J.P. Roux, Cryogenics **501** (1978) august

positionner le calorimètre par rapport au bobines de mesures. Nous avons donc conçu un système d'extraction où l'on pouvait ajuster indépendamment la position du calorimètre et de l'échantillon.

Légende Fig.A2	
1	Tubes de laiton
2	Anneau en cuivre
3	Point froid
4	Joint cuivre/quartz (CAF 538)
5	Fuite thermique
6	Résistance de chauffage (Jauges de contraintes de platine /tungstène)
7	Thermomètre Pt
8	Thermomètre Ge
9	Thermomètre capacitif
10	Chausson en cuivre
11	Tubes en quartz
12	Position des bobines de mesure
13	Ecran en Cu fendu tout le long
14	Support d'échantillon en araldite pur
15	Ecrans collés sur les tubes en quartz (stycast blanc)
16	Echantillon
17	Gaz d'échange


Calorimètre /
Porte-échantillon
1
2
3
4
5
6
7
8
9
10
11
12
13
14
15
16
17

Le porte-échantillon comprend un tube de Cu-Ni de 5,5mm, une pièce en cuivre doré (pour accroître l'échange thermique avec le gaz) qui, placée en face de l'anneau en Cu, constitue le point froid. Celle-ci est reliée par une fuite thermique à un écran en Cu doré qui enveloppe les thermomètre et l'échantillon. Cet écran, comme la fuite thermique, est fendu selon une génératrice de façon à réduire les courants de Foucault.

L'anneau en cuivre se trouve en contact avec l'He liquide et juste en face de la pièce en cuivre doré. Une faible pression d'He gazeux dans le calorimètre assure le contact thermique entre les deux pièces. La fuite thermique est constituée par un cylindre en cuivre avec une paroi de l'ordre de 0,1 mm. La tenue mécanique durant l'usinage a été obtenue grâce à de l'araldite coulée à l'intérieur du tube. Deux jauges de contraintes de platine-tungstène non magnétiques collées sur la fuite thermique servent de résistances de chauffage.

Les trois thermomètres sont insérés à l'intérieur d'un chausson en cuivre qui, lui, est en contact avec un écran fendu qui descend jusqu'au-dessous de la position de l'échantillon.

Le support du porte-échantillon a été usiné à partir d'un bloc d'araldite pur.

La partie haute du calorimètre a été conçue de façon à ce que l'on puisse changer l'échantillon à froid sans changer la position du calorimètre. Ceci nous permet d'ajuster, une fois pour toutes, la meilleure position du calorimètre par rapport aux bobines de mesure.

Un sas a été aussi rajouté de façon à ce que l'on puisse changer d'échantillon à froid (voir Fig. A3). Comme la fuite thermique représentée sur la Fig. A2 est assez fragile, toute la partie haute du sas est démontable de façon à ce qu'un tube en inox vienne protéger la fuite thermique, l'écran en Cu et l'échantillon.

6.3 Système d'extraction

Sur les figures A3 et A4, on montre le système d'extraction qui va garantir le déplacement de l'échantillon entre les bobines de mesure. Sur la Fig. A3, on montre une coupe du sas, tandis que sur la Fig. A4, on représente tout le système d'extraction.

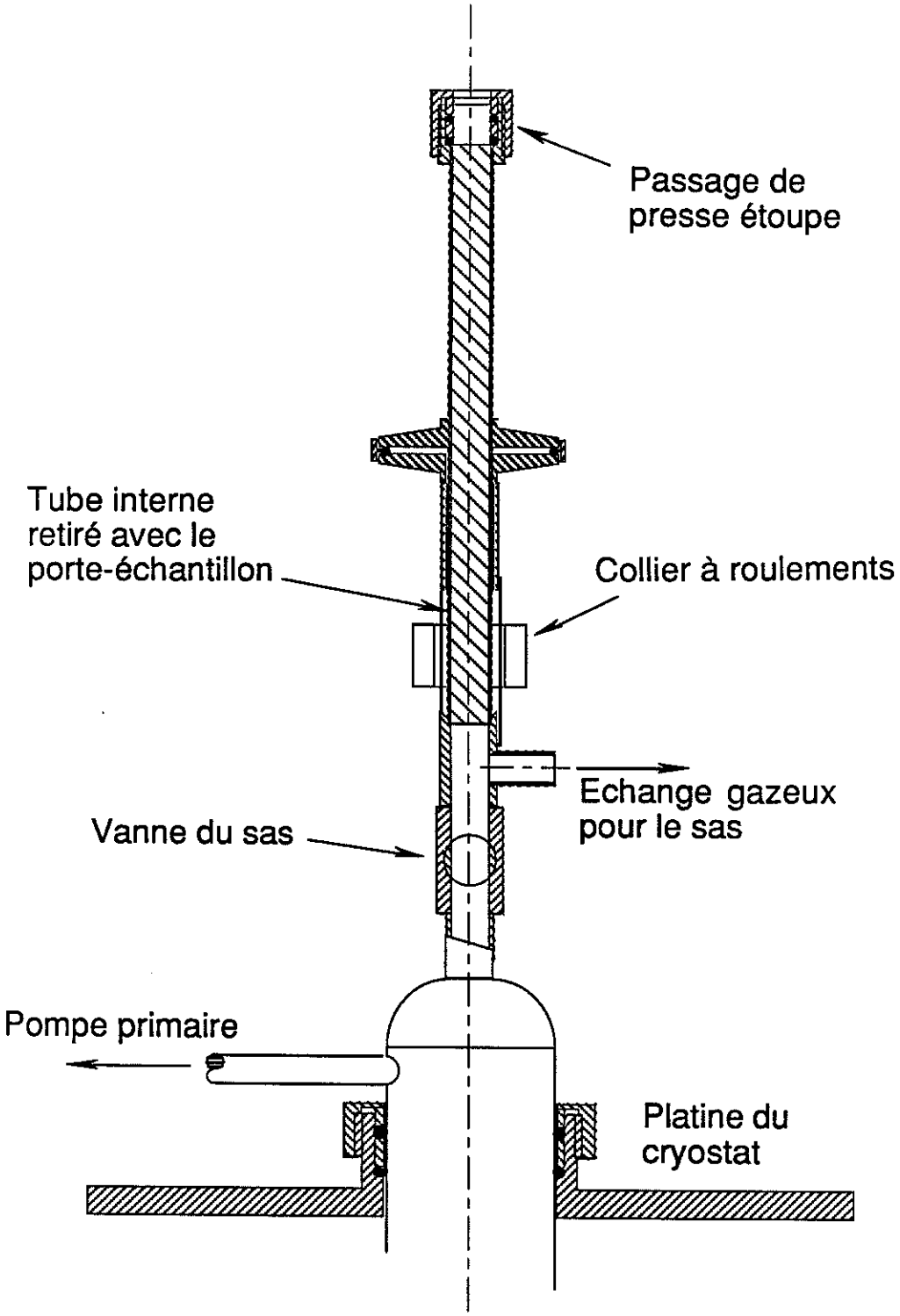


Fig.A3 - *La partie haute du calorimètre a été conçue de façon à ce que l'on puisse changer d'échantillon, sans changer le positionnement du calorimètre par rapport aux bobines de mesure. La partie du tube hachurée est retirée avec le système porte-échantillon de façon à protéger la fuite thermique et l'écran thermique lors du changement d'échantillon.*

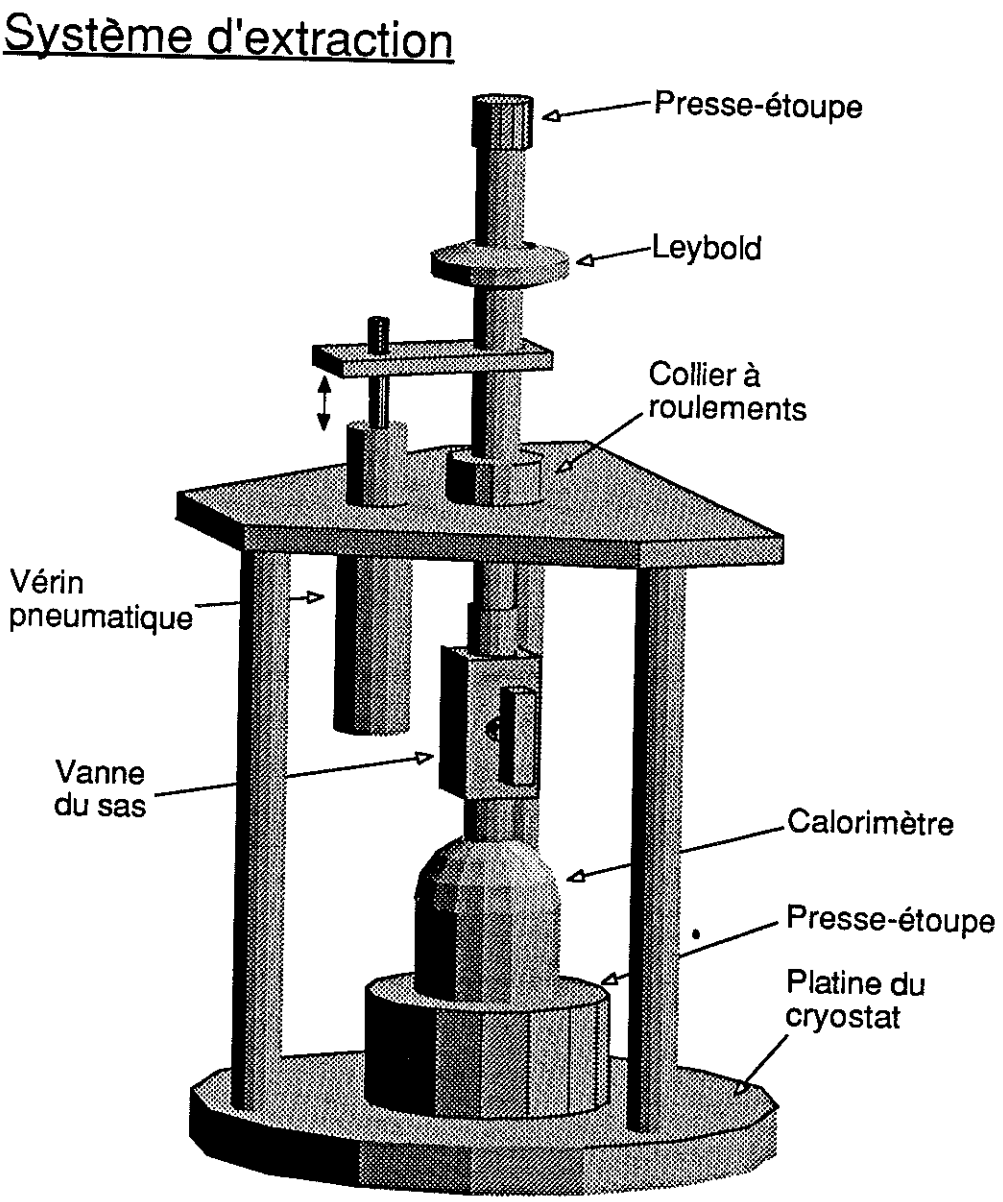


Fig.A4 - *Système d'extraction de notre système de mesure. On a libre accès à l'échantillon à froid. Il est notamment possible de faire des mesures du calorimètre à vide.*

Un micro-vérin pneumatique placé latéralement permet d'avoir l'axe du calorimètre libre. Pour empêcher un désalignement du système dû à la position asymétrique du vérin, un collier à roulement à billes a été rajouté.

L'air comprimé injecté dans le vérin est contrôlé par l'interface série de l'Apple II. Tout le processus d'extraction est donc

automatisé. La vitesse d'extraction est ajustée pour une valeur d'environ 6 mm/s.

7 Procédures de mesure

Notre système de mesure a été conçu de façon à ce que l'on puisse faire de façon compètement automatique des mesures de M vs H ou M vs T ou χ vs H ou χ vs T. Tous les paramètres, c.a.d. le champ H pour les différentes sources de courant utilisées, et la température T, peuvent être commandés et mesurés de façon automatique par l'Apple II GS. Un programme séparé en modules indépendants a été mis au point. Ce programme va lire un fichier texte qui décrit (dans un langage propre) toutes les procédures relatives à une expérience. On peut par exemple programmer le système de mesure de façon à réaliser une ou plusieurs courbes d'aimantation vierges :

1) Chauffer au-dessus de Tc
2) Attendre 30 minutes
3) Refroidir et stabiliser à une température donnée (au-dessous de Tc)
4) Monter le champ par pas programmables en mesurant l'aimantation à chaque pas.
5) Redescendre à champ nul
6) Réchauffer au-dessus de Tc
7) Etc.

En principe le nombre et l'ordre des instructions est arbitraire.

La stabilisation de température est réalisée par un ordinateur esclave (Epson PX1). A chaque pas de température, l'Apple II vérifie la stabilité en calculant la dérivée de T en fonction du temps (sur 10 secondes). Si cette dérivée est au-dessous d'un certain critère ($\Delta T/T < 10^{-4}$), il revérifie trois fois cette stabilité avant de faire la mesure, sinon il continue en état d'attente. Cette procédure élimine toute possibilité de mesure avant une stabilisation complète de température.

8 Traitement des données

La procédure habituelle utilisée pour mesurer des aimantations consiste à soustraire le signal intégré durant le déplacement de la bobine + à la bobine - du signal obtenu à partir du mouvement de retour à la position initiale. Cette procédure donnera le résultat correct à condition que le décalage de zéro ne dérive pas avec le temps. Cependant, dans notre montage, il y a toujours une légère dérive due à l'électronique. Nous avons compensé cet effet en supposant que la dérive pendant le temps de mesure peut être modélisée par une parabole.

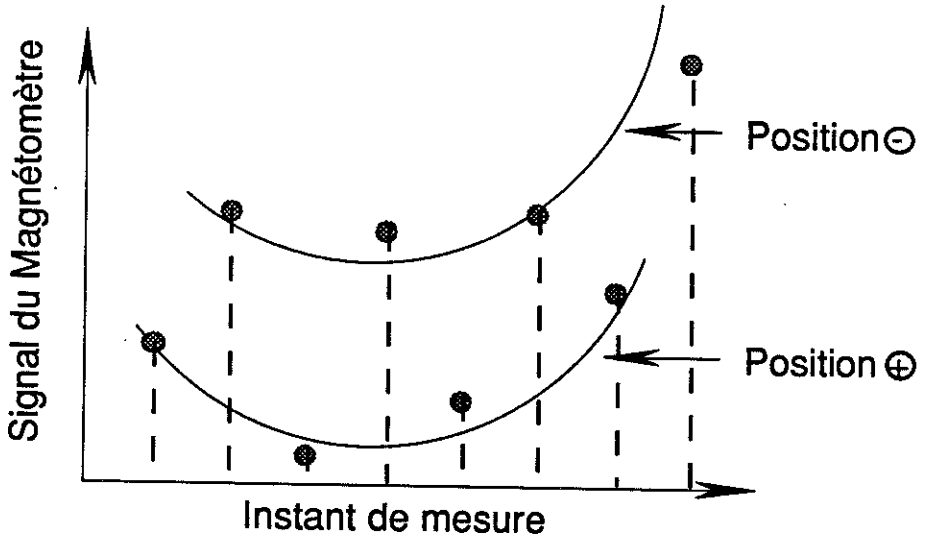


Fig.A5 - On suppose que, durant les extractions, la dérive due à l'électronique peut être modélisée par une parabole.

Dans notre traitement de données, on suppose qu'une parabole $\Delta+a+bx+cx^2$ passe par nos points correspondant au déplacement de ⊖ vers ⊕ (position ⊖) et qu'une parabole $a+bx+cx^2$ décrit nos données correspondant au chemin inverse (position ⊕). Un simple ajustement par moindre carrés permet d'obtenir les valeurs de Δ, a, b et c aussi bien que leur incertitudes. Le Δ donne la valeur d'aimantation correspondant à la mesure.

Plus tard, nous nous sommes aperçus qu'il y avait une corrélation forte de l'écart quadratique moyen avec des événements ponctuels (comme le passage d'une bouteille d'He dans le couloir).

Nous avons donc rajouté à la procédure la possibilité de rejeter le point si son écart à l'ajustement est plus que trois fois l'écart quadratique moyen. Il faut cependant prendre quelques précautions supplémentaires : un nombre excessif de points rejetés annule automatiquement la mesure et refait le point. Pour illustrer l'influence de l'activité humaine du laboratoire dans la précision des points, nous avons noté que, pendant les heures de maximum d'activité du laboratoire, 4 extractions sur 8 sont rejetées, tandis que la nuit seulement 2/8 des extractions est rejeté.

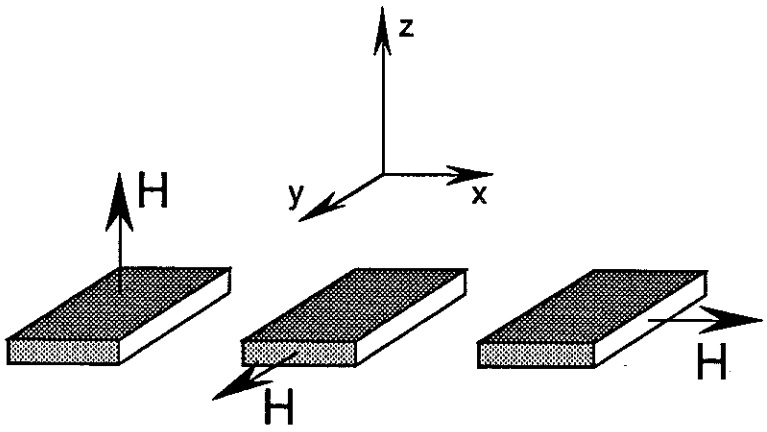
L'étalonnage du signal d'aimantation a été effectué à partir de mesures d'une sphère de Pb (avec une pureté de 99,999 %) au-dessous de H_c.

AII Correction par le facteur de desaimantation.

Pour un supraconducteur de type II au dessous de H_{c1} nous pouvons écrire ($M = -H/4\pi$):

$$H_i = \frac{H}{1-n}$$

H étant le champ magnétique appliqué. Les résultats obtenus pour H_{c1} devront donc être corrigés par les facteurs de desaimantation n,l et m qui correspondent aux trois orientations du champ (selon les axes).



$$\chi_z = \frac{-v}{4\pi(1-n)} \qquad \chi_y = \frac{-v}{4\pi(1-m)} \qquad \chi_x = \frac{-v}{4\pi(1-l)}$$

Fig.A1 - *Susceptibilité au dessous de H_{c1} pour le champ orienté au long des trois axes x, y et z, qui pour notre échantillon, correspondent aux axes cristallografiques a, b et c respectivement.*

Les facteurs de desaimantation ne peuvent être calculés que pour des échantillons ayant des géométries ellipsoïdales. Pour des échantillons supraconducteurs avec des géométries plus compliquées il est possible de déterminer n,l et m à partir des mesures de susceptibilité (Fig.13). χ_x, χ_y et χ_z i.e. les valeurs de susceptibilité au dessous de H_{c1} pour le champ orienté au long des axes x,y et z respectivement plus la condition n+l+m=1 constituent un système de quatre équations à quatre inconnues (il faut aussi considérer le volume v comme inconnue). Dans la figure 15 on montre les valeurs de susceptibilité selon les trois orientation du champ.

Dans le tableau 1, nous résumons les résultats obtenus pour notre monocristal d'Y:248.

Les mesures d'aimantation à bas champ ont été réalisées dans un susceptomètre SQUID à l'Institut d'Electronique Fondamentale (Orsay).

Fact. Desaim..	Suscep-tibilité	Calcul Ellipsoïde
n	0,80	0,80
l	0,179	0,13
m	0,022	0,07

Tableau 1 - Facteurs de desaimantation pour un monocristal d'Y:248. Le volume calculé de χ correspond à $v=17.10^{-3}mm^3$ (80% du volume total). La dernière colonne correspond au calcul où l'échantillon est assimilé à un ellipsoïde [*] .

En examinant le tableau ci dessus on voit que l'accord est excellent pour n et l. Pour m l'accord est pitoyable, cependant dans cette configuration le champ interne est pratiquement le champ appliqué (H_i = 1,02 H). De sorte que l'erreur dans le calcul de m n'à aucune importance. On notera que pour le champ orienté au long de l'axe z (axe cristallografique c) $H_i = H/(1-0,80) = 5$ H !

[*] J. A. Osborn, Phys. Rev. 67 (1945) 351

Publications

AIII - Publications relatives à ce travail

1 - Conférences locales

1 H. RENEVIER, J.L. HODEAU, M. MAREZIO, J.C. MARTINEZ,J.J. PREJEAN, *"Diffusion et microstructure dans les composés* $YBa_2(Cu_{1-y}Co_y)_3O_{6+x}$", ARC MICROSTRUCTURE DES SUPRACONDUCTEURS, La Plagne, 11-15 March 1990

2 J.C.MARTINEZ, O.LABORDE, J.J.PREJEAN, J. KARPINSKI, E. KALDIS, P. BORDET, *"Study of the anisotropy of the superconducting properties of the* $Y_2Ba_4Cu_8O_{16}$ *compound"*, Journées de la Matière Condensée,Montpellier, 3 a 6 September 1990

2 - Conférences internationales

1 H. RENEVIER, J.L. HODEAU, T. FOURNIER, P. STROBEL, M. MAREZIO, J.C. MARTINEZ, J.J. PREJEAN, *"Variation of symmetry at constant stoicchiometry: relation with superconducting properties"*, European Materials Research Soceity - Strasbourg 1990.

2 J.C. MARTINEZ, J.J. PREJEAN, J. KARPINSKI, E. KALDIS, P.BORDET, "$H_{c1}(T)$ *and critical current on a* $Y_2Ba_4Cu_8O_{16}$ *single crystal* ", 19th International Conference on Low Temperature Physics, LT19, Brighton, U.K., 16-22 August 1990

3 - Publications

1 P.BORDET, J.L. HODEAU, R. ARGOUD, J. MULLER, M. MAREZIO, J.C. MARTINEZ, J.J. PREJEAN, J. KARPINSKI, E. KALDIS, S.RUSIECKI, B. BUCHER, *"Single crystal study of the 80 K superconductor* $YBa_2Cu_4O_8$ ", Physica C **162-164** (1989) 329

2 H. RENEVIER, J.L. HODEAU, P. BORDET J.J. CAPPONI, M. MAREZIO, F. BAUDELET, H. TOLENTINO, G. TOURILLON, E. DARTIGE, A. FONTAINE, J.C. MARTINEZ, J.J. PREJEAN, "*Cobalt Clusters in Substituted* $YBa_2(Cu_{1-y}Co_y)_3O_{6+x}$ ", Physica C **162-164** (1989) 51

3 J.C. MARTINEZ, J.J. PREJEAN, J. KARPINSKI, E. KALDIS, P. BORDET, "*Determination of* $H_{c1}(T)$ *on a* $Y_2Ba_4Cu_8O_{16}$ *single crystal* ",Solid State Comm. **75** n°4 (1990) 315

4 J.C. MARTINEZ, O. LABORDE, J.J. PREJEAN, C. CHAPPERT, J.P. RENARD, J. KARPINSKI, E. KALDIS, "*Study of the resistive transition of a* $Y_2Ba_4Cu_8O_{16}$ *single crystal*", Europhysics Letters **14** (7) (1991)

EUROPHYSICS LETTERS 1 April 1991

Europhys. Lett., 14 (7), pp. 693-700 (1991)

Study of the Magneto-Resistive Transition of a $Y_2Ba_4Cu_8O_{16}$ Single Crystal.

J. C. MARTINEZ (*), O. LABORDE (**), J. J. PRÉJEAN (*), C. CHAPPERT (***)
J. P. RENARD (***), J. KARPINSKI (*_*) and E. KALDIS (*_*)

(*) *Centre de Recherches sur les Très Basses Températures, C.N.R.S.*
BP 166 X, 38042 Grenoble-Cédex, France
(**) *Service National de Champs Intenses, C.N.R.S.*
BP 166 X, 38042 Grenoble-Cédex, France
(***) *IEF, Bat. 220, Université Paris-Sud, C.N.R.S.*
UA 022, 91405 Orsay-Cédex, France
(*_*) *Laboratorium für Festkörperphysik ETH, 8093 Zürich, Switzerland*

(received 3 October 1990; accepted in final form 10 January 1991)

PACS. 74.60 – Type-II superconductivity.
PACS. 74.40 – Fluctuations and critical effects (inc. noise, chaos, nonequilibrium, superconductivity, localisation, etc.).

Abstract. – We study the superconducting transition of a $Y_2Ba_4Cu_8O_{16}$ (248) single crystal. From magnetoresistance measurements up to 19 T we estimate $H_{c2}(T)$. Its anisotropy between the orientations parallel and perpendicular to the (a, b)-plane is found to be 10 close to the transition T_{c0}. From an analysis of the fluctuation-enhanced conductivity we obtain a mean-field transition temperature $T_{c0} = 73.2$ K which is in good agreement with magnetic measurements. We observe 3D fluctuations up to 88 K.

Introduction. – For a better understanding of high-T_c superconductivity it is important to find the correlations between the structural and the superconducting properties of the different compounds. This explains the interest in the $Y_2Ba_4Cu_8O_{16}$ (248) compound whose structure is similar to that of $YBa_2Cu_3O_7$ (123) [1]. The main difference between 123 and 248 is that the latter exhibits double chains of CuO_4 instead of a single one. This increases the distance between the CuO_2-Y-CuO_2 blocks from 11.67 Å in the 123 to 13.63 Å in the 248 compound without changing significantly the other interatomic distances [2]. Another consequence of the additional chains in the 248 is the absence of twins and the oxygen stability (up to 850 °C) leading to a stable stoichiometry. The first bulk synthesis and single-crystal growth of this 248 compound was achieved by Karpinski *et al.* in 1988 [1]. An overview of the material properties is given in ref. [3].

We present a study performed on the single crystal previously used for the structural analysis [2] and $H_{c1}(T)$ measurements [4]. From magnetic measurements we found for the lower critical field an anisotropy of 4.5 between the (a, b)-plane and the c-axis. No noticeable anisotropy was found between the a and b axes. Even for a very careful analysis an upturn

was found at 10 K but it is not clear up to now whether this is due to an artifact resulting from strong pinning at low T or not.

To complete this work, we measured in the same sample the magnetoresistance up to 19 T at different temperatures and orientations of the magnetic field. From the fluctuation-enhanced conductivity we determined the mean-field critical temperature T_{c0} and a cross-over temperature T_0 from which we lose the 3d character of fluctuations. T_{c0} is in good agreement with the critical temperature determined from the onset of M *vs.* T measurements realized in a low-field SQUID magnetometer.

Magnetoresistance. — We measured the resistivity using the classical four-probe method. Because of the geometry of the sample, we aligned the four silver epoxy contacts along the crystallographic b-axis (chains). The experimental set-up allows us to change continuously the orientation of the sample with respect to the magnetic field H. A Bitter magnet provides fields up to 19 T [5].

In fig. 1*a*) we show typical magnetoresistance $R(H)$ plots ($H \| c$) for different temperatures. The qualitative behaviour is similar to that of good 123 samples [6] and to epitaxial grown 248 [7]. The transition is considerably widened by the magnetic field, this makes more difficult to define H_{c2}.

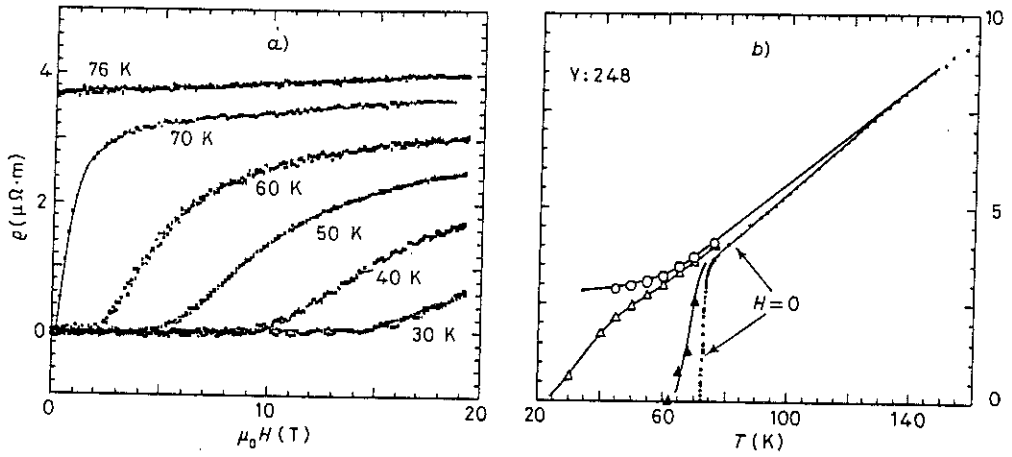


Fig. 1. – *a*) $R(H)$ *vs.* H plot for different temperatures for $H \| c$. *b*) Temperature dependence of resistivity for $H = 0$ (dotted line) and $H = 19.2$ T applied along the a (△) and c (▲) axes. We represent also the normal-state resistivity (○) deduced from the asymptotic behaviour of ρ at high fields (see text).

The anisotropy of the magnetoresistance is readily apparent in the plot of fig. 1*b*) where we show the T-dependence of the resistivity for $H = 0$ and 19.2 T applied, respectively, along the c and a axes. In the same figure, we represent the normal resistivity ρ_n obtained from the following analysis. ρ_n will be important to determine H_{c2} and to analyse the fluctuations at zero field later on. The normal-state resistivity can be obtained from the saturation of the magnetoresistance at high fields. ρ_n is not expected to vary very much with the magnetic field. Indeed, close to the transition [8],

$$\frac{\rho_n(20\,\mathrm{T}) - \rho_n(0)}{\rho_n(0)} \approx (\omega_c \tau)^2 \approx 4 \cdot 10^{-6},$$

ω_c and τ denote, respectively, the cyclotron frequency and the mean scattering time for the normal electrons. $|\omega_c|\tau$ can be deduced [8] from the resistivity just above the transition of the order of 3 $\mu\Omega \cdot$ m and from the carrier density given by the literature for this compound [9]. The magnetoresistance clearly saturates close to 20 T only for temperatures between 60 and 76 K. ρ_n is phenomenologically deduced in that range of temperature from the linear extrapolation of ρ *vs.* $1/H^2$ at $1/H^2 = 0$. At the transition the values deduced for ρ_n do not differ substantially if instead of $1/H^2$ we take $1/H$. We note that ρ_n at 70 K is not far from a linear extrapolation between ρ_n(76 K) and the resistivity at $H = 0$ and 140 K (see fig. 1*b*)).

In fig. 2 we represent the temperature dependence of H_{c2} for $H \| c$, obtained from three different criteria: $\rho(H_{c2}) = 0$, $\rho(H_{c2})/\rho_n = 0.50$ and $\rho(H_{c2})/\rho_n = 0.80$. For the 248 single crystal we obtain $T_c = 72.4$ K ($\rho = 0$), $T_c = 73.0$ K ($\rho/\rho_n = 0.50$) and $T_c = 73.6$ K ($\rho/\rho_n = 0.80$). As we will see later these values do not correspond to the mean-field critical temperature T_{c0}.

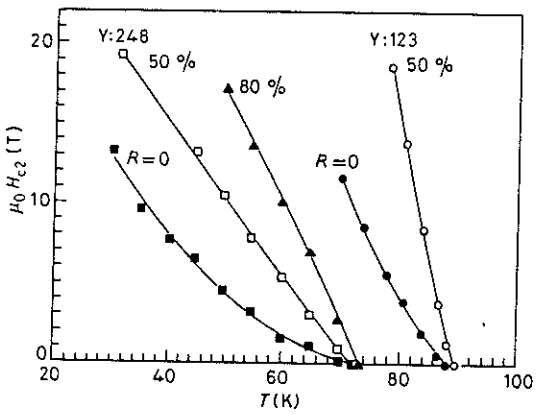


Fig. 2. – H_{c2} plots for 248 (this work) and 123 (ref. [6]) compounds deduced from the criteria $\rho = 0$, $\rho/\rho_n = 0.50$ and $\rho/\rho_n = 0.80$.

We emphasize that the curvature of H_{c2}(T) can be downward or upward depending on the criteria. Thus we do not obtain values of H_{c2} that differ only by a scaling factor. That rises the question of how to deduce the real T-dependence of H_{c2}. However, even if we do not have, from standard procedures, the true H_{c2}(T), the previous data can be compared with those obtained in the 123 compound. In fig. 2 we plot for comparison H_{c2}(T) for 123 compound determined with the criteria $\rho = 0$ and $\rho/\rho_n = 0.50$ [6]. For any given $T/T_c > 0.70$, H_{c2} is 3 to 5 times larger for 123, whereas the T_c of 123 is only 20% larger.

We determined also the anisotropy of H_{c2} with respect to the orientation of the magnetic field. θ is the angle between the a-axis and the magnetic field. H was applied always in the (a, c)-plane and the current is always perpendicular to the field. Since $\rho = 0$ even at 19.2 T for $T < 60$ K (see fig. 1*b*)), our study of anisotropy is limited to temperatures between 60 K and the transition.

To determine H_{c2} as a function of θ at fixed temperature we can, as a first approximation, use one of the criteria described above. However, for ρ/ρ_n close to zero the angular dependence of H_{c2} could be masked by vortex lines lattice effects.

A more powerful method consists in determining a scaling field $H_s(\theta)$ that reduces all the different magnetoresistance curves to a universal plot that corresponds to $H_{c2}(\perp)$ (fig. 3). In the case that H_{c2} is given by any $\rho(H_{c2})/\rho_n > 0$, we have $H_s(\theta) = H_{c2}(\theta)/H_{c2}(\perp)$ (insert of fig. 3).

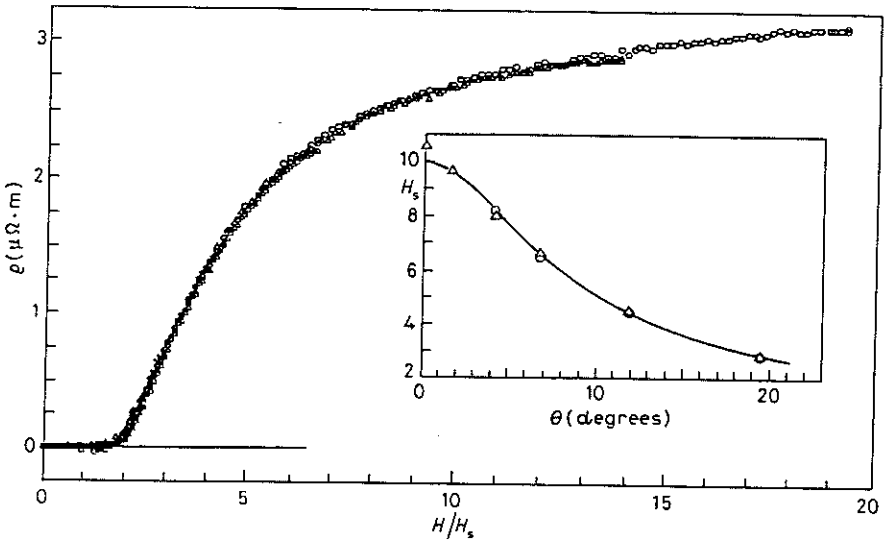


Fig. 3. – Resistivity *vs.* scaled field H/H_s for the 248 compound at 62 K. H_s is represented as a function of θ in the insert ($\varepsilon = 10$, ○ 62 K, △ 68 K). θ is the angle between the a-axis and the magnetic field (see text).

The solid line corresponds to the expression obtained from the linearized Ginzburg-Landau equation [6] with effective masses M and m perpendicular and parallel to the (a, b)-plane, respectively.

$$H_s(\theta) = \frac{H_{c2}(\theta)}{H_{c2}(\perp)} = \frac{\varepsilon}{\sqrt{\varepsilon^2 \sin^2\theta + \cos^2\theta}}, \tag{1}$$

where $\varepsilon = \sqrt{M/m}$. From our data we get $\varepsilon = 10$ for 62 K and 68 K. No significant change with temperature was observed in the anisotropy. Thus for $H \| a$ the temperature dependence of H_{c2} is qualitatively similar to that obtained for $H \| c$. However, we note that the experimental range is only above 62 K which represents $T/T_{c0} > 0.80$.

For the 123 compound [6] the same analysis provides $\varepsilon = 9$. This value is slightly smaller than that obtained for 248.

In table I we report the extrapolation at $T = 0$ K of the critical fields and the fundamental parameters ξ and λ parallel and perpendicular to the (a, b)-plane. H_{c2} parallel to a is deduced from the $\varepsilon = 10$. The coherence lengths $\xi_\perp$ and $\xi_\parallel$ and the penetration depths $\lambda_\parallel$ and $\lambda_\perp$ are

TABLE I. – *Critical fields and the fundamental parameters ξ and λ parallel and perpendicular to the (a, b)-plane at $T = 0$. Between parenthesis we represent the direction of the applied field. $H_{c2}(\|)$ is deduced from the anisotropy $\varepsilon = 10$. $H_{c2}(T = 0)$ is deduced from* 69% (BCS-*weak coupling) of the linear extrapolation of H_{c2} at low temperatures.*

	$H_{c1}(\parallel)$ (mT)	$H_{c1}(\perp)$ (mT)	$H_{c2}(\perp)$ (T)	$\xi_\parallel$ (Å)	$\lambda_\parallel$ (Å)	$\xi_\perp$ (Å)	$\lambda_\perp$ (Å)
248 ($\rho = 0$)	4.4	19.7	13	50	1700	5	12 000
248 (50%)	4.4	19.7	25	40	1800	4	13 000
248 (80%)	4.4	19.7	36	30	1840	3	12 500

obtained from [10]:

$$H_{c1}(\perp) = \frac{\phi_0}{4\pi\lambda_{\parallel}^2} \ln\left(\frac{\lambda_{\parallel}}{\xi_{\parallel}}\right); \quad H_{c1}(\parallel) = \frac{\phi_0}{4\pi\lambda_{\parallel}\lambda_{\perp}} \ln\sqrt{\frac{\lambda_{\parallel}\lambda_{\perp}}{\xi_{\parallel}\xi_{\perp}}},$$

$$H_{c2}(\perp) = \frac{\phi_0}{2\pi\xi_{\parallel}^2}; \quad H_{c2}(\parallel) = \frac{\phi_0}{2\pi\xi_{\parallel}\xi_{\perp}},$$

$\lambda_{\parallel}$ and $\lambda_{\perp}$ are numerically calculated from the ratio H_{c1}/H_{c2}.

We observe that the coherence length is 3 to 4 times larger for the 248 compound than for the 123 one [11]. On the other hand, $\lambda_{\parallel}$ and $\lambda_{\perp}$ are of the same magnitude for the two compounds.

The anisotropy of the lower critical field is given by

$$\frac{H_{c1}(\parallel)}{H_{c1}(\perp)} = \varepsilon \frac{\ln(\lambda_{\parallel}/\xi_{\parallel})}{\ln(\varepsilon\lambda_{\parallel}/\xi_{\parallel})}.$$

Taking $\lambda_{\parallel}/\xi_{\parallel} = 50$ and $\varepsilon = 10$, we obtain an anisotropy of H_{c1} of 6.2. This result is close to the upper limit of the anisotropy of H_{c1} (between 4 and 5) measured in the *same* sample from isothermal magnetization curves [4]. This difference of the order of 20% between the two results could be due to a misorientation of the sample during H_{c1} measurements.

Fluctuations above T_{c0}. – In fig. 4*a*) we see that after the rapid increase of resistivity close to 73 K we are far from $\rho/\rho_n = 1$. Thus we have an important contribution of

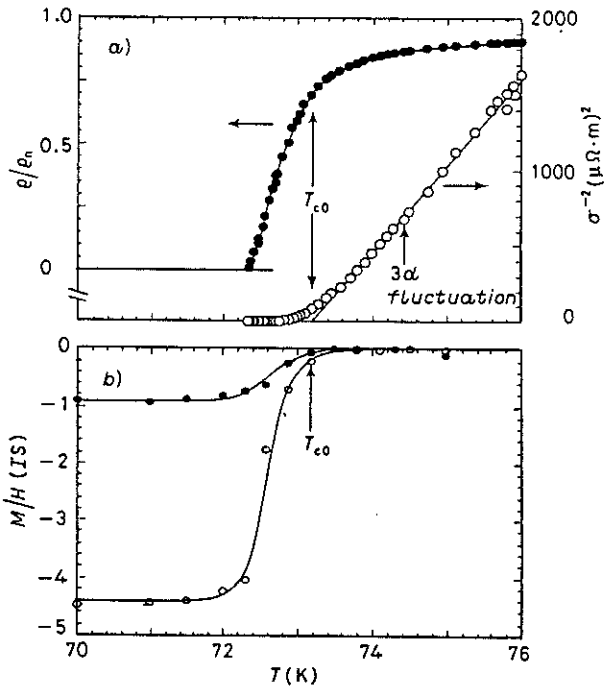


Fig. 4. – Comparison between resistivity and magnetic measurements performed in the same 248 sample. *a*) Plot of ρ/ρ_n *vs.* T and fluctuation-enhanced conductivity close to the transition; *b*) ZFC (○) and FC (●) magnetization curves for 3 μT. T_{c0} is the mean-field critical temperature. The field is applied perpendicular to the (*a*, *b*)-plane. For this sample and for this orientation the demagnetizing factor is $n = 0.80$. No demagnetizing field corrections are made.

superconducting fluctuations. ρ_n is calculated from the linear interpolation between $T = 70$ K and $T = 76$ K.

Above the thermodynamic critical temperature T_{c0} we can deduce the fluctuation-enhanced conductivity σ' from

$$\sigma' = \sigma - \sigma_n , \tag{2}$$

where σ is the measured conductivity and σ_n the normal-state contribution.

Lawrence and Doniach (LD)[12] have calculated $\sigma'_{\parallel}$ for a system composed of superconducting layers, separated by a distance s, coupled by Josephson tunnelling. $\sigma'_{\parallel}$, the conductivity along the superconducting planes, shows two asymptotic forms induced by the divergence of the coherence length at T_{c0}. Close to the transition $\xi_{\perp}$ is larger than the distance between the superconducting plane. Thus we should observe 3D fluctuations. At higher temperatures, in particular above a cross-over temperature T_0, $\xi_{\perp}$ will be much smaller than the distance between the planes and we should observe 2D fluctuations.

The asymptotic forms of $\sigma'_{\parallel}$ can be described by the expression[13]

$$\sigma'_{\parallel} = \alpha(d)\left(\frac{T - T_{c0}}{T_{c0}}\right)^{-(4-d)/2} , \tag{3}$$

where d $(= 2, 3)$ is the dimensionality of the system and T_{c0} the mean-field critical temperature. The coefficients $\alpha(d)$ are given by

$$\alpha(3) = \frac{e^2}{32\hbar\xi_0}\sqrt{\frac{M}{m}}, \qquad \text{for } T < T_0 , \tag{4a}$$

$$\alpha(2) = \frac{e^2}{16\hbar s}, \qquad \text{for } T > T_0 , \tag{4b}$$

and the crossover temperature T_0 by

$$T_0 = T_{c0}\left(1 + \frac{m}{M}\left(\frac{2\xi_0}{s}\right)^2\right). \tag{5}$$

As was pointed out by Mooij[14] for thin superconducting films, it is possible to find T_{c0} from fluctuation-enhanced conductivity.

In our case the best agreement was obtained from the 3d expression. In fig. 4*a*) we plot $\sigma'^{-2}_{\parallel}$ *vs.* T. The data lie on a straight line as is predicted by eq. (3) for $d = 3$, and we deduce $T_{c0} = 73.2$ K. If we consider that ρ_n varies linearly between 76 K and 140 K, we can verify this 3D behaviour up to 88 K. This represents a range of validity of almost two decades in reduced temperatures $(T - T_{c0})/T_{c0}$.

In fig. 4*b*) we plot for comparison zero-field–cooled and field-cooled magnetization curves for $H = 3\,\mu$T. The agreement between the onset of the magnetization and T_{c0} is excellent. On the other hand, comparing fig. 4*a*) and *b*), we note that the temperature where $\rho/\rho_n = 0$ is close to the point where we have the maximum in the variation of the magnetization (ZFC) with temperature.

From ξ_0 and ε we can verify the coefficient $\alpha(3)$ of the square root of $T_{c0}/(T - T_{c0})$ in eq. (4*a*). The estimated conductivity is 5 times larger. Nevertheless we cannot say that this is an intrinsic property of high-T_c superconductors, because this could be provoked by a nonuniform distribution of the currents inside the sample.

Conclusion. – For the first time H_{c1} and H_{c2} were systematically studied in the same 248 single crystal. We found for H_{c1} values three times lower than that obtained for the 123 compound. The values of H_{c2} are between three and five times lower according to the criterion used ($\rho = 0$ or $\rho/\rho_n = 0.5$). This means that the coherence length and the ratio $v_f/\Delta(\xi \approx 2\hbar v_f/\pi\Delta)$ are between 3 to 5 times larger for 248 than for 123. These facts are in agreement with the specific-heat jump that is four times lower for the 248 compound [15].

The anisotropy of H_{c2}, $\varepsilon = 10$, is slightly larger for 248 than that for 123 ($\varepsilon = 9$) and the anisotropy obtained for H_{c1} is (4.5 ± 0.5), *i.e.* a result coherent with the anisotropy of H_{c2} in the frame of a generalized GL model.

The introduction of extra chains between the CuO_2-Y-CuO_2 seems to have a larger influence on the critical field and on the critical temperature than on the anisotropy.

On the other hand the fluctuation-enhanced conductivity can be successfully fitted by the 3D form of the LD expression (Aslamazov-Larkin). From that fitting we deduced $T_{c0} = 73.2$ K, a value that agrees with the onset of the low-field magnetization measurements. This 3D behaviour can be observed within a range of almost two decades in reduced temperatures.

The estimated fluctuation-enhanced conductivity is 5 times larger than the measured value and we did not succeed in observing any significant range of validity for the 2D behavior above 88 K. These two facts are not understood till now.

* * *

We are indebted to H. A. BORGES and M. NOVAK who developed the technique for making contacts used in this work, H. JENSEN and OSQUIGUIL for fruitful discussions, and L. B. BULAEVSKY for insight into GL anisotropic theory. One of the authors would like to acknowledge the Ministério de Ciência e Tecnologia, CNPq (Brasil) for the financial support. The work in Zürich has been supported by the Swiss National Funds Program SUPRA 2.

REFERENCES

[1] KARPINSKI J., KALDIS E., JILEK E., RUSIECKI S. and BUCHER B., *Nature*, 336 (1988) 660.
[2] BORDET P., HODEAU J. L., ARGOUD R., MULLER J., MAREZIO M., MARTINEZ J. C., PREJEAN J. J., KARPINSKI J., KALDIS E., RUSIECKI S. and BUCHER B., *Physica C*, 162-164 (1989) 524.
[3] KALDIS E. and KARPINSKI J., *Superconductors in the* $Y_2Ba_4Cu_{6+n}O_{14+n}$ *family, Solid State Chemistry of High-*T_c *Superconductors*, edited by E. KALDIS, *Europ. J. Solid State Chem.*, 27 (1990) 143 (Special issue).
[4] MARTINEZ J. C., PREJEAN J. J., KARPINSKI J., KALDIS E. and BORDET P., *Solid State Commun.*, 75 (1990) 315.
[5] LABORDE O., MONCEAU P., POTTEL M., GOUGEON P., PADIOU J., LEVET J. C. and NOEL H., *Physica C*, 153-155 (1988) 1467.
[6] THOLENCE J. L., SAINT-PAUL M., LABORDE O., MONCEAU P., GUILLOT M., NOEL H., LEVET J. C., POTTEL M., PADIOU J. and GOUGEON P., to appear in *Studies of High Temperature Superconductors* (Narlikar, Nova Science Publishers Inc., New York, N. Y.).
[7] BERGHUIS P., KES P. H., DAM B., STOLLMAN G. M. and VAN BENTUM J., *Physica C*, 167 (1990) 348.
[8] KITTEL C., *Quantum Theory of Solids* (J. Wiley & Sons) 1975, p. 237; and SCHOENES J., KARPINSKI J., KALDIS E., KELLER J. and DE LA MORA P., *Physica C*, 166 (1990) 145.
[9] BUCHER B., KARPINSKI J., KALDIS E. and WACHTER P., *Physica C*, 167 (1990) 324.
[10] BULAEVSKI L. B., *Inter. J. Mod. Phys.*, 4 (1990).
[11] KRUSIN-ELBAUM L., MALOZEMOV A. P., YESHURUN Y., CRONEMEYER D. C. and HOLZBERG F., *Phys. Rev. B*, 39 (1989) 2936.

[12] LAWRENCE W. E. and DONIACH S., *Proceedings of XII International Conference on Low Temperature Physics* (Kyoto-Japan) 1970, p. 361.
[13] TINKHAM M., *Introduction to Superconductivity* (McGraw-Hill) 1975, p. 252.
[14] MOOIJ J. E., *Percolation Localization, and Superconductivy*, edited by A. M. Goldman and S. A. Wolf (Plenum Press, New York, N. Y.) 1984, p. 325.
[15] JUNOD A., GRAF T., SANCHEZ D., TRISCONE G. and MULLER J., *Physica B*, 165-166 (1990) 1335.

Résumé

Ce travail est consacré à l'étude de l'anisotropie de H_{c1} et H_{c2} sur un même monocristal de $Y_2Ba_4Cu_8O_{16}$ (Y:248).

Ce composé, de la même famille que le $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ (Y:123) présente les avantages d'avoir une stoechiométrie stable en oxygène jusqu'à 650°C et de ne pas avoir de macles. Nous avons donc des axes cristallographiques a et b bien définis.

Nous avons montré que le composé Y:248 présente une température de transition supraconductrice de $T_{c0} = 73{,}2$ K. Les champs critiques H_{c1} et H_{c2} sont de trois à cinq fois plus faibles par rapport au composé Y:123.

Le comportement en température de H_{c1} peut être décrit par un modèle de Ginzburg-Landau (GL) anisotrope utilisant pour les paramètres λ et ξ les dépendances en température d'un modèle à deux fluides avec $\lambda_{(a,b)} \approx 1800$ Å et $\lambda_c \approx 8000$ Å. Aucune anisotropie de H_{c1} n'a été observée dans le plan (a,b).

La magnétorésistance mesurée jusqu'à 20 teslas suit une loi d'échelle en $H/h_s(\theta)$ où θ est l'angle entre l'axe a et le champ H. Le paramètre $h_s(\theta)$ obéit à la dépendance angulaire de $H_{c2}(\theta)$ du modèle de GL anisotrope.

En utilisant des critères usuels de détermination de H_{c2}, nous avons obtenu : $\xi_a \approx 40$ Å et $\xi_c \approx 4$ Å par extrapolation de H_{c2} à T=0 K. A cause de la géométrie de l'échantillon aucune mesure de résistivité n'a pu être faite pour le champ parallèle au plan (b,c).

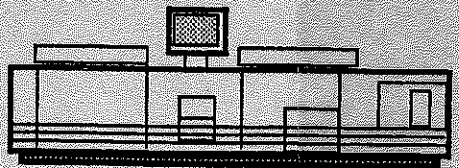
Pour H = 0, la conductivité est en bon accord avec un modèle de fluctuations à trois dimensions (3D). Juste au-dessous de T_{c0} (70 K), les fluctuations sous champ semblent aussi suivre un comportement 3D. La forte dépendance des résultats avec la détermination de la résistivité à l'état normal ne nous a pas permis de poursuivre cette étude plus bas en température.

L'anisotropie de H_{c2} d'une part et les fluctuations au-dessus de T_{c0} d'autre part indiquent que, proche de la transition, le composé Y:248 se comporte comme un supraconducteur 3D anisotrope.

Mots Clés :

$Y_2Ba_4Cu_8O_{16}$
Champs critiques H_{c1} et H_{c2}
Ginzburg-Landau anisotrope
Modèle de Bean anisotrope
Supraconductivité anisotrope
Fluctuations au-dessus de T_c

Grenoble, avril 1991



Impression et finition réalisées sur Rank Xerox 5090.