

THESE

présentée par

Niels KELLER

pour obtenir le titre de

DOCTEUR

DE L'UNIVERSITE JOSEPH FOURIER - GRENOBLE I

(Arrêtées ministériels du 5 juillet 1984 et du 30 Mars 1992)

Spécialité : PHYSIQUE

**ETUDE ANGULAIRE DU DEUXIEME CHAMP CRITIQUE
DANS LES SUPRACONDUCTEURS A FERMIONS LOURDS
UPt₃, URu₂Si₂ et CeCu₂Si₂**

DATE DE SOUTENANCE :

14 septembre 1994 (proposée)

COMPOSITION DU JURY :

**MM. B. COQBLIN (Président)
M. CYROT
J. FLOUQUET
F. STEGLICH
J.L. THOLENCE**

THESE PREPAREE AU SEIN DU CENTRE DE RECHERCHES SUR LES TRES BASSES TEMPERATURES
- CENTRE NATIONAL DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE -
(Laboratoire associé à l'Université Joseph Fourier-Grenoble)

Chapitre 0

TABLE DE MATIERE

0. Table de Matière

0.	Table de matière	I
I.	Introduction	1
II.	La supraconductivité non conventionnelle et quelques aspects générales de la supraconductivité	7
II.1.	La supraconductivité non - conventionnelle	9
II.2.	La supraconductivité de surface	14
III.	La supraconductivité d'UPt₃	19
III.0.	Le composé UPt ₃	21
III.1	La supraconductivité non - conventionnelle dans UPt ₃	28
III.1.1	Représentations bi-dimensionnelles (2D-REP) du paramètre d'ordre	28
III.1.2	Représentations uni-dimensionnelles (1D-REP) du paramètre d'ordre	31
III.2.	Les échantillons étudiés	34
III.3.	L'anisotropie du deuxième champ critique $H_{c2}(\Theta, \Phi, T)$	41
III.3.1	Introduction	41
III.3.1.	La supraconductivité de surface dans des whiskers d'UPt ₃	43
III.3.1.1.	Supraconductivité de surface et anisotropie de H_{c2} entre le plan basal et l'axe c	43
III.3.1.2.	Supraconductivité de surface pour $H \perp c$	46
III.3.2	La supraconductivité intrinsèque d'UPt ₃	51
III.3.2.1	Le diagramme de phase	51
III.3.2.2	Anisotropie de H_{c2} entre le plan basal et l'axe c	55
III.3.2.3	Anisotropie du champ critique dans le plan hexagonal	59
III.3.2.4	Discussion de l'anisotropie de $H_{c2}(\Phi)$	66
III.3.2.5	Conclusion	69
IV.	L'état normal dans UPt₃	71

V.	Le composé URu_2Si_2	79
V.1.	Introduction	81
V.2.	Les échantillons d' URu_2Si_2	85
V.3.	Le diagramme de phase	87
V.4.	Anisotropie des champs critiques	87
	(a) Anisotropie de H_{c2} entre le plan basal et l'axe c	87
	(b) Le champ critique $H_{c2}(\Phi)$ dans le plan tétragonal	90
VI.	Le composé CeCu_2Si_2	95
VI.1.	Introduction	97
VI.2.	Anisotropie des champs critiques	99
VII.	Conclusions	103
VIII.	Références	109
Annexe I	Le dispositif expérimental	123
Annexe II	Transformation rotatoire du champ magnétique	139
Annexe III	Propriétés de transport des métaux anisotropes soumis à un champ magnétique	143
Annexe IV	Publications	151

Chapitre I

Introduction

I. Introduction

Les composés à fermions lourds ont comme éléments de base des atomes de Cerium où d'Uranium qui possèdent des électrons de valence 4f (Ce) et 5f (U) localisés sur leurs sites. A hautes températures ces électrons 4f où 5f se comportent comme des moments magnétiques localisés. Par contre, à basses températures, au-dessous d'une température caractéristique T_F^* , ils interagissent avec les électrons de conduction ce qui se traduit par des propriétés de transport et thermodynamiques fortement modifiées par rapport à celles des métaux normaux. La chaleur spécifique par exemple montre une constante de Sommerfeld (γ_e), du ~~du~~ terme électronique ($C_e = \gamma_e T$), qui est 100 à 1000 fois plus élevée que pour des métaux normaux. Comme le γ_e est proportionnel à la masse effective m^* des électrons, cette masse m^* est deux à trois ordres de grandeurs plus élevées que la masse des électrons libres. De même, la susceptibilité de Pauli montre un renforcement de deux à trois ordres de grandeur par rapport à la valeur habituelle. De ces quasi-particules lourdes provient le nom "fermions lourds".

La supraconductivité des composés à fermions lourds a été découverte pour CeCu_2Si_2 en 1979. Cette découverte a incité beaucoup de recherches, car la supraconductivité et le magnétisme sont considérés comme antagonistes (revues: [Steglich90, Flouquet91, Taillef91, Ott92]). Depuis d'autres supraconducteurs à fermions lourds ont été découverts: UBe_{13} , URu_2Si_2 , UPt_3 , UPd_2Al_3 et UNi_2Al_3 . Les mesures de chaleur spécifique à la transition supraconductrice ont prouvé que les mêmes quasi-particules lourdes de la phase normale participent à la formation des paires de Cooper, car le rapport $\Delta C_p / \gamma_e T_c$ vaut 1, ce qui est proche à la valeur 1.43 pour les supraconducteurs classiques (théorie BCS). De même, les pentes initiales du deuxième champ critique $H_{c2}(T)$, qui sont très élevées et qui représentent des vitesses de Fermi très lentes ($\partial H_{c2} / \partial T |_{T=T_c} \propto (\langle v_F^2 \rangle)^{-2}$), montrent la participation des quasi-particules lourdes aux paires de Cooper. Naturellement, la question concernant le mécanisme de formation des paires de Cooper et concernant la nature de la supraconductivité dans ces composés se pose. Comme les vitesses de Fermi ont approximativement les mêmes valeurs que les vitesses du son, un mécanisme autre que les phonons pourrait être responsable de la formation des paires de Cooper. Une telle situation est présumée réaliste dans le superfluide ^3He où l'on considère que les fluctuations de spin ferromagnétique sont à la base d'une superfluidité de type triplet [Leggett75]. A partir de cette superfluidité de type triplet dans ^3He , les supraconducteurs à fermions lourds ont très rapidement été considérés comme candidats d'une supraconductivité de type non conventionnel.

Pour cette thèse nous nous sommes concentrés sur l'étude des trois supraconducteurs UPt_3 , URu_2Si_2 et CeCu_2Si_2 . Le composé UPt_3 , qui est très riche en phénomènes

inhabituels de la supraconductivité (revue [v.Löhne94]), est considéré comme système modèle d'une supraconductivité non conventionnelle. Les deux autres composés URu_2Si_2 (revue [Brisson94C]) et CeCu_2Si_2 (revue [Steglich90]) surprennent également par leurs propriétés non classiques.

Cette thèse porte sur l'étude de la nature de la supraconductivité, présumée non conventionnelle, au moyen des mesures de la variation angulaire du deuxième champ critique $H_{c2}(\Theta, \Phi, T)$ dans les composés UPt_3 , URu_2Si_2 et CeCu_2Si_2 .

Afin de mener cette étude, nous avons construit et mis au point un nouveau dispositif expérimental qui permet de varier le champ magnétique suivant toutes les orientations spatiales, les échantillons étant fixés sur le point froid d'un réfrigérateur à dilution. Les détails techniques, ainsi que les méthodes de mesure et les origines physiques des propriétés galvano-magnétiques sont exposés dans les Annexes I, II et III.

Le Chapitre II a pour but d'introduire les notions théoriques d'une supraconductivité non conventionnelle qui sont nécessaires à la compréhension de la physique des modèles théoriques proposés. Une introduction au phénomène de supraconductivité de surface (observée lors de quelques mesures, notamment sur des whiskers de UPt_3) est donnée à la fin de ce chapitre dans la deuxième partie.

Le Chapitre III, qui présente la partie principale de cette thèse, discute plusieurs aspects de la supraconductivité du composé UPt_3 . Après une introduction générale aux propriétés normales et supraconductrices de UPt_3 (III.0) différents modèles théoriques concernant le diagramme de phase sont discutés (III.1). La partie suivante de ce chapitre (III.2) présente les caractéristiques des différents échantillons étudiés. Puisqu'une supraconductivité non conventionnelle est présumée de déterminer la variation angulaire du deuxième champ critique nous avons étudié le $H_{c2}(\Phi)$ afin de fournir des informations nécessaires concernant la nature du paramètre d'ordre. Dans la partie III.3, nos résultats concernant la supraconductivité non conventionnelle intrinsèque et concernant la supraconductivité de surface des whiskers sont présentés et discutés. Nous concluons que la variation angulaire $H_{c2}(\Phi)$ pourrait être due au caractère non conventionnel de la supraconductivité et à son couplage aux paramètres d'ordre antiferromagnétiques.

Le Chapitre IV contient une étude angulaire de la magnéto-résistance dans l'état normal de UPt_3 , où notre intérêt a porté sur la recherche d'une signature de l'antiferromagnétisme dans les propriétés de transport.

Ensuite, le Chapitre V présente les propriétés anisotropes du deuxième champ critique $H_{c2}(\Theta, \Phi, T)$ dans le composé à fermions lourds URu_2Si_2 que nous avons étudié en détail. Comme dans le cas de UPt_3 la supraconductivité non conventionnelle pourrait être à l'origine de la variation angulaire de $H_{c2}(\Phi)$, mais malheureusement la possibilité d'une contribution des effets de surface n'a pas pu être éliminée.

Dans le Chapitre VI quelques aspects de la supraconductivité du composé $CeCu_2Si_2$ et nos résultats concernant l'anisotropie du deuxième champ critique sont exposés.

Le Chapitre VII présente les conclusions générales de cette thèse concernant la nature non conventionnelle de la supraconductivité dans les composés UPt_3 , URu_2Si_2 et $CeCu_2Si_2$ et les résultats les plus importants obtenus.

Finalement les références figurent dans le Chapitre VIII.

Les Annexes I, II, III représentent une partie essentielle de la thèse. Ils sont consacrés à la description du dispositif expérimental, de la méthode de mesure et des propriétés conductrices des métaux normaux sous influence d'un champ magnétique.

En dernier lieu, l'Annexe IV rassemble les parties de ce travail qui font l'objet de publications.

Chapitre II

La supraconductivité non conventionnelle et quelques aspects généraux de la supraconductivité

Ce Chapitre a pour but d'introduire les notions théoriques nécessaires à la compréhension des différents modèles proposés concernant les propriétés supraconductrices des composés à fermions lourds. La première partie de ce chapitre (II.1) introduit les définitions d'une supraconductivité non conventionnelle qui sont à la base de toutes les approches théoriques. Ce chapitre se terminera (II.2) par une introduction aux propriétés supraconductrices des surfaces, qui ont été observées lors des études du deuxième champ critique au moyen des mesures de résistivité.

II.1. La supraconductivité non conventionnelle

L'état supraconducteur est caractérisé au moyen d'un paramètre d'ordre représentant la fonction d'onde d'une paire de Cooper $\Psi_{s1-s2}(\hat{k})$. Cette fonction d'onde est par définition antisymétrique par rapport à un échange des quasi-particules $\Psi(\hat{k}) = -\Psi(-\hat{k})$, ce qui constitue une propriété fondamentale du paramètre d'ordre. Comme une paire de Cooper est formée par deux électrons faiblement liés, son spin total ne peut être que $S=0$ (singulet) ou $S=1$ (triplet). Ainsi en général, le paramètre d'ordre Ψ est composé d'une superposition des états liés impair et pair ($\Psi = \Psi_s(\hat{k}) + \Psi_t(\hat{k})$). Ces états liés impair $\Psi_s(\hat{k})$ (singulet) et pair $\Psi_t(\hat{k})$ (triplet) sont décrits par

$$\begin{aligned}\Psi_s(\hat{k}) &= \Phi(\hat{k})i\sigma_2 \text{ et} \\ \Psi_t(\hat{k}) &= \sum_{\mu=1}^3 d_{\mu}(\hat{k})\sigma_{\mu}i\sigma_2\end{aligned}\tag{II.1.1}$$

où σ_j est la matrice j de Pauli et $\Phi(\hat{k})$ et $d_{\mu}(\hat{k})$ représentent des fonctions orbitales complexes. L'anti-symétrie de la fonction d'onde détermine la parité des fonctions orbitales $\Phi(\hat{k}) = \Phi(-\hat{k})$ (paire) et $d(\hat{k}) = -d(-\hat{k})$ (impaire). Les supraconducteurs habituels (Pb, NbTi, Sn,...) sont des exemples d'une supraconductivité singulet et les phases superfluides d' ^3He y forment l'exemple classique d'une superfluide triplet de type p. Cette classification des phases supraconductrices suivant l'état singulet ($S=0$) ou l'état triplet ($S=1$) du paramètre d'ordre Ψ est seulement valable si le spin est une grandeur quantique valable et conservé par rotation du référentiel de base. Dans un cristal réel le spin de la paire de Cooper peut être lié à son moment angulaire (et ainsi au réseau cristallin) par des interactions de type spin - orbite. Ainsi, le spin n'est plus conservé comme entité quantique sous rotation du référentiel et une classification des paramètres d'ordre suivant la parité de leur fonctions orbitales ($\Phi(\hat{k})$, $d(\hat{k})$) s'impose [Lee86]. Il est possible de distinguer deux cas:

- (i) l'interaction spin-orbite est négligeable:
 Ψ est classifié suivant le spin de la paire (singulet - triplet),
- (ii) le cristal possède un centre d'inversion et/ou l'interaction spin-orbite est forte:
 Ψ est classifié suivant sa parité (paire - impaire).

Les supraconducteurs à fermions lourds figurent parmi le cas (ii), car ils possèdent un centre d'inversion et l'interaction spin-orbite est forte [Fulde88].

Outre sa parité, le comportement du paramètre d'ordre lors d'une transformation de symétrie du cristal (groupe point G , voir [Hahn87]) caractérise la supraconductivité du

système. Un paramètre d'ordre est appelé 'conventionnel' quand il possède la même symétrie que la surface de Fermi (figure 2.1.1). Sinon, un paramètre d'ordre ayant une symétrie inférieure à la symétrie de la surface de Fermi, est nommé 'non conventionnel'. Ainsi, un supraconducteur 'non conventionnel' ne brise pas seulement la symétrie de jauge ($U(1)$) mais aussi une autre symétrie du groupe point (G) du cristal (ex. dans la figure 2.1.1 la symétrie tétragonale de la surface de Fermi est réduite à une symétrie orthorhombique du gap supraconducteur: la symétrie de rotation de 90° (D_4) est brisée).

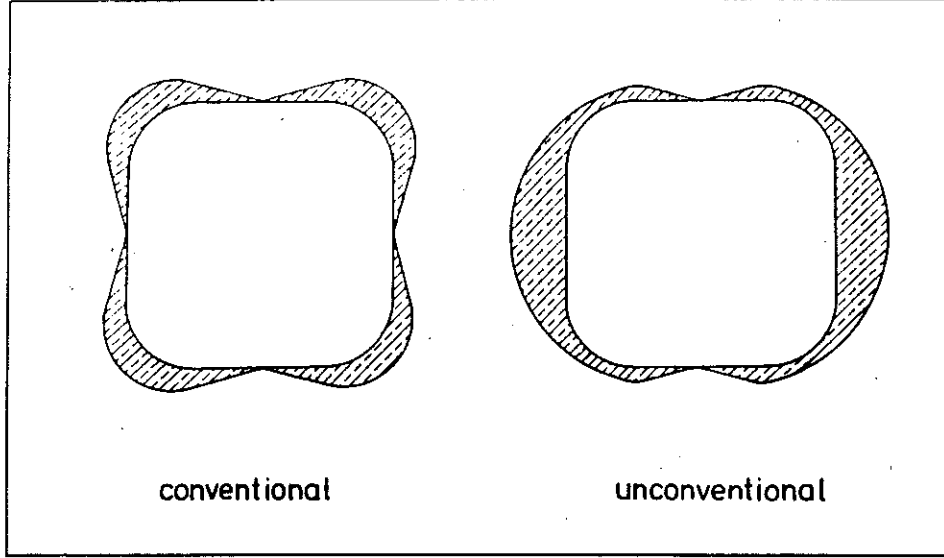


Figure 2.1.1: Exemples d'un gap supraconducteur conventionnel (à gauche) et non conventionnel (à droite). Le gap non conventionnel possède une symétrie réduite par rapport à la symétrie de la surface de Fermi [Fulde88].

Un état fondamental de la phase supraconductrice ne peut être réalisé que pour un paramètre d'ordre Ψ qui possède la symétrie résiduelle d'un sous-groupe (G_1) de $G \times T \times U(1)$ (T : inversion du temps) [voir Fulde88, Lee86] différent de l'identité. D'une manière générale, il est donc possible de déterminer tous les états supraconducteurs non réductibles (Γ) et les paramètres d'ordre en déterminant les sous-groupes G_1 .

Dans la limite de l'interaction spin-orbite forte, les fonctions orbitales $\Phi(\hat{k})$ et $d(\hat{k})$ qui forment les fonctions de base du paramètre d'ordre, doivent être conservées sous rotation $\hat{R}$ du groupe G_1 : $\hat{R}\Phi(\hat{k}) = \Phi(R\hat{k})$ et $\hat{R}d(\hat{k}) = d(R\hat{k})$. Ces fonctions orbitales peuvent être développées en termes de fonctions de base non réductibles $\varphi_{\kappa}(\hat{k})$ du cristal avec leurs coefficients de développement η_{κ} [voir Gor'kov87, Fulde88] où d_{Γ} est égale au nombre des composantes (la dimension):

$$\Phi(\hat{k}) = \sum_{\kappa=1}^{d_{\Gamma}} \eta_{\kappa} \varphi_{\kappa}(\hat{k}) \text{ et } d_{\mu}(\hat{k}) = \sum_{\kappa=1}^{d_{\Gamma}} \eta_{\kappa} \varphi_{\kappa}^{\mu}(\hat{k}). \quad (\text{II.1.2})$$

Les fonctions de base non réductible $\varphi_{\kappa}(\hat{k})$ ont été calculées par différents auteurs pour l'interaction spin-orbite forte [Volovik85, Ueda85, Blount85, Gor'kov87, Yip93] et pour l'interaction spin-orbite faible [Ozaki85, Ozaki89] concernant différentes symétries cristallines (cubique, tétragonale, orthorhombique et hexagonale). Une fois ces représentations connues pour les paramètres d'ordre, l'énergie libre dans une approche de Ginzburg - Landau [Sauls93] s'exprime comme

$$F = \int d^3x \sum_{\Gamma} \alpha_{\Gamma}(T) \sum_{\kappa=1}^{d_{\Gamma}} |\eta_{\kappa}^{(\Gamma)}|^2 + \quad (\text{II.1.3})$$

Chaque état non - réductible Γ ajoute une invariante quadratique à l'énergie libre où les paramètres $\alpha_{\Gamma}(T,p)$ dépendent de la température (T) et de la pression (p) et qui mène à une valeur différente du deuxième champ critique. En général, le paramètre d'ordre $|\Psi|^2$ d'une représentation Γ qui minimise l'énergie libre F , est réalisé comme état fondamental.

En ce qui concerne le composé hexagonal UPt_3 six représentations non réductibles sont possibles pour chacune des parités (paire et impaire) dans la limite du couplage spin - orbite fort. Il y a quatre fonctions de bases unidimensionnelles (1D-REP) différentes et deux représentations bidimensionnelles (2D-REP), qui présentent toutefois une double dégénérescence. Le tableau T.II.1.1 présente ces fonctions de bases de la parité paire et impaire.

Γ	parité paire ($S=0$): $\Phi(\hat{k})$	Γ	parité impaire ($S=1$): $d_{\mu}(\hat{k})$
A_{1g}	1	A_{1u}	$a\hat{z}k_z + b(\hat{x}k_x + \hat{y}k_y)$
A_{2g}	$(k_x^3 - 3k_xk_y^2)(k_y^3 - 3k_yk_x^2)$	A_{2u}	$\hat{z}k_z(k_x^3 - 3k_xk_y^2)(k_y^3 - 3k_yk_x^2)$
B_{1g}	$k_z(k_x^3 - 3k_xk_y^2)$	B_{1u}	$\hat{x}(k_x^3 - 3k_xk_y^2)$
B_{2g}	$k_z(k_y^3 - 3k_yk_x^2)$	B_{2u}	$\hat{y}(k_y^3 - 3k_yk_x^2)$
E_{1g}	$k_z \begin{pmatrix} k_x \\ k_y \end{pmatrix}$	E_{1u}	$\hat{z} \begin{pmatrix} k_x \\ k_y \end{pmatrix}$
E_{2g}	$\begin{pmatrix} k_x^2 - k_y^2 \\ 2k_xk_y \end{pmatrix}$	E_{2u}	$\hat{z}k_z \begin{pmatrix} k_x^2 - k_y^2 \\ 2k_xk_y \end{pmatrix}$

Tableau T.II.1.1 Fonctions de base des systèmes hexagonaux [Volovik85]

En ce qui concerne les systèmes tétragonaux CeCu_2Si_2 et URu_2Si_2 les fonctions de base non réductibles se divisent en quatre représentations unidimensionnelles (1D-REP) et une représentation bidimensionnelle (2D-REP), énumérées dans le tableau T.II.1.2.

Γ	parité paire (S=0): $\Phi(\hat{k})$	Γ	parité impaire (S=1): $d_u(\hat{k})$
A _{1g}	1	A _{1u}	$a\hat{z}k_z + b(\hat{x}k_x + \hat{y}k_y)$
A _{2g}	$k_x k_y (k_x^2 - k_y^2)$	A _{2u}	$(\hat{x}k_y + \hat{y}k_x) (k_x^2 - k_y^2)$
B _{1g}	$k_x^2 - k_y^2$	B _{1u}	$\hat{x}k_x - \hat{y}k_y$
B _{2g}	$k_x k_y$	B _{2u}	$\hat{x}k_y + \hat{y}k_x$
E _g	$k_z \begin{pmatrix} k_x \\ k_y \end{pmatrix}$	E _u	$\hat{z} \begin{pmatrix} k_x \\ k_y \end{pmatrix}$

Tableau T.II.1.1 Fonctions de base des systèmes tétragonaux [Volovik85]

Ces différentes représentations des paramètres d'ordre impliquent que le gap supraconducteur ($\Delta \propto |\Psi|^2$) peut présenter des lignes et des points où il s'annule sur la surface de Fermi. Ainsi des variations suivant les lois de puissance avec la température peuvent être observées pour les propriétés comme la chaleur spécifique [Volovik85], la résonance magnétique nucléaire [Asayama88], la profondeur de pénétration [Gross90, Gross91, Broholm90] etc.

Les différents modèles théoriques proposés pour la description des propriétés physiques des supraconducteurs à fermions lourds se basent sur l'approche phénoménologique de Ginzburg - Landau qui développe l'énergie libre (F) suivant le paramètre d'ordre $|\Psi|^2$ de la supraconductivité. Selon les différents systèmes considérés (UPt₃, URu₂Si₂, CeCu₂Si₂, ...) l'énergie libre varie en fonction de la symétrie cristalline et de la représentation (Γ) du paramètre d'ordre considéré. Dans la suite plusieurs modèles théoriques et leurs implications sur le diagramme de phase et les propriétés angulaires du deuxième champ critique sont discutés pour le système hexagonal d'UPt₃ (chapitre III) et les systèmes tétragonaux d'URu₂Si₂ (chapitre V) et de CeCu₂Si₂ (chapitre VI).

En 1985 Burlachkov [Burlach85] a présenté des calculs de la dépendance angulaire du deuxième champ critique $H_{c2}(\Phi)$ pour certaines orientations du champ magnétique par rapport aux systèmes hexagonal, tétragonal et cubique en considérant des représentations 2D des différents paramètres d'ordre.

Ainsi, les systèmes tétragonaux peuvent présenter une modulation de périodicité de 90° du $H_{c2}(\Phi)$ dans le plan tétragonal pour un paramètre d'ordre de la représentation E (figure II.2.1). Cette dépendance angulaire s'exprime comme

$$H(\Phi) = \alpha \frac{c}{2e} P^{-1/2} \left[P_1 + \frac{P_2 + P_3}{2} - \frac{1}{2} (P_2^2 + (2P_2 P_3 + P_3^2) \cos^2 2\Phi)^{1/2} \right]^{1/2} \quad (\text{II.1.1})$$

où P_1, P_2, P_3 et P_4 sont les paramètres libres du développement de Ginzburg - Landau et $\alpha = \alpha_0 (T_c - T)$. Ici le paramètre P_4 détermine l'anisotropie entre le plan tétragonal et l'axe c [Gor'kov87].

Les systèmes hexagonaux montrent un $H_{c2}(\Phi)$ dans le plan hexagonal qui est *isotrope* pour les représentations E_1 et E_2 du paramètre d'ordre.

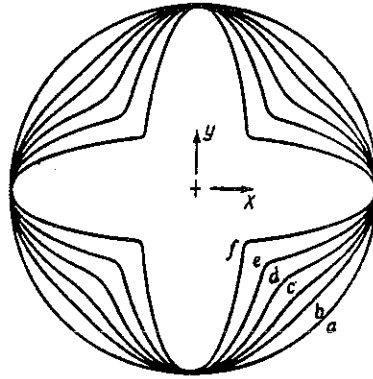


Figure 2.1.2: La variation angulaire de $H_{c2}(\Phi)$ présente une anisotropie d'ordre quatre dans le plan tétragonal pour une représentation E du paramètre d'ordre en fonction des paramètres $P_1:P_2:P_3$ (a -1:1:0, b -1:1:1/2, c -1:1:1, d -1:1:2, e -1:1:4, f -1:1:10) [Burlach85].

II.2. La supraconductivité de surface

Le deuxième champ critique $H_{c2}(T)$ est calculé dans la théorie de Ginzburg-Landau en supposant un volume supraconducteur infini. Ainsi, aucune contrainte de bord n'entre en considération.

L'énergie libre F_s dans la phase supraconductrice s'écrit comme

$$F = \int dV \left\{ \alpha \tau |\Psi|^2 + \frac{1}{2} b |\Psi|^4 + \frac{1}{4m} \left| \left(-i\hbar \nabla - \frac{2e}{c} \mathbf{A} \right) \Psi \right|^2 + \frac{H^2}{8\pi} \right\} \quad (\text{II.2.1})$$

où le terme $\frac{1}{4m} \left| \left(-i\hbar \nabla - \frac{2e}{c} \mathbf{A} \right) \Psi \right|^2$ présente l'énergie cinétique d'une particule avec la masse $2m$ soumise à un champ magnétique. Afin d'obtenir le minimum de l'énergie libre $\delta F = 0$, équation (II.2.1) est dérivée suivant $\delta \Psi^*$. La variation de (II.2.1) suivant $\delta \Psi^*$ et l'intégration sur le volume dV mène à la première équation de Ginzburg - Landau

$$\frac{1}{4m} \left(-i\hbar \nabla - \frac{2e}{c} \mathbf{A} \right)^2 \Psi + \alpha \tau \Psi + \frac{1}{2} b |\Psi|^2 \Psi = 0 \quad (\text{II.2.2})$$

avec la condition de bord

$$\mathbf{n} \left(-i\hbar \nabla - \frac{2e}{c} \mathbf{A} \right) \Psi \Big|_b = 0 \quad (\text{II.2.3})$$

où $\mathbf{n}$ représente le vecteur normal à la surface. La variable $\delta \Psi^*$ est supposée être d'une valeur arbitraire. Dans le cas d'un demi-espace supraconducteur avec une surface plane vers un diélectrique, la condition de bord se simplifie pour une orientation du champ magnétique parallèle à la surface ($\mathbf{H} \perp \mathbf{n}$) à $\frac{\partial \Psi}{\partial \mathbf{n}} = 0$.

La fonction $\Psi_0 = \exp(-\kappa^2(x-x_0)^2 / 2\delta^2)$ présente une solution aux équations (II.2.2) et (II.2.3) dans les cas où $|\Psi_0|^2$ est centrée à la surface ($x_0=0$) ou très à l'intérieur de la surface ($x_0 \ll 0$).

La possibilité de $|\Psi_0|^2$ centrée près de la surface ($x_0 \approx d$) est similaire au cas d'un film mince, dans lequel le champ critique est plus élevé que H_{c2} . Plus précisément, si l'on utilise le potentiel vecteur $\mathbf{A} = (0, H_0 x, 0)$, la fonction d'onde $\Psi = \Psi(x) \exp(iky)$ et les variables

$$\zeta = \left(\frac{2e}{\hbar c} H_0 \right)^{1/2} x, \quad \zeta_0 = \left(\frac{2e}{\hbar c} H_0 \right)^{-1/2} x_0 \quad \text{et} \quad \beta = - \frac{2mc}{e\hbar H_0} \tau \alpha$$

on obtient pour (II.2.1) l'expression suivante

$$-\frac{d^2\Psi}{d\zeta^2} + (\zeta - \zeta_0)^2 \Psi = \beta\Psi. \quad (\text{II.2.4})$$

Le terme $\frac{1}{2} b|\Psi|^2\Psi$ d'équation (II.2.2) est supposé négligeable puisque Ψ est encore très faible à $T_c(H)$. La fonction de test $\Psi = \exp(-b\zeta^2/2)$ satisfait aux conditions de bords ($\Psi(\infty) = 0$ et $d\Psi/d\zeta|_{\zeta=0} = 0$), résout l'équation (II.2.4) et donne à un champ critique de $H_{c3} \approx 1.66 H_{c2}$. La valeur exacte $H_{c3}/H_{c2} = 1.695$ est obtenue en utilisant des fonctions de Weber comme fonction de test [SaintJa63]. Ceci a été clairement observé dans des mesures de résistivité et d'aimantation sous champ magnétique [BonMard64, Burger64, Hempste64, Tomasch64, Burger65]. La variation angulaire du $H_{c3}(\Theta)$ se calcule de la même façon en considérant un potentiel vecteur $\mathbf{A} = (0, H_0(x \cos\Theta - z \sin\Theta), 0)$. L'angle Θ est compté entre le plan de la surface et la direction du champ magnétique. Ainsi, on calcule

$$\frac{1}{H_{c3}(\Theta)} = \frac{1}{H_{c3}(0)} \cos\Theta + \frac{1}{H_{c2}} \sin\Theta. \quad (\text{II.2.5})$$

La figure 2.2.1 montre la dépendance angulaire du $H_{c3}(\Theta)$ mesurée pour différents systèmes [Burger65]. On distingue le maximum très prononcé du champ critique quand le champ magnétique est orienté parallèlement à la surface.

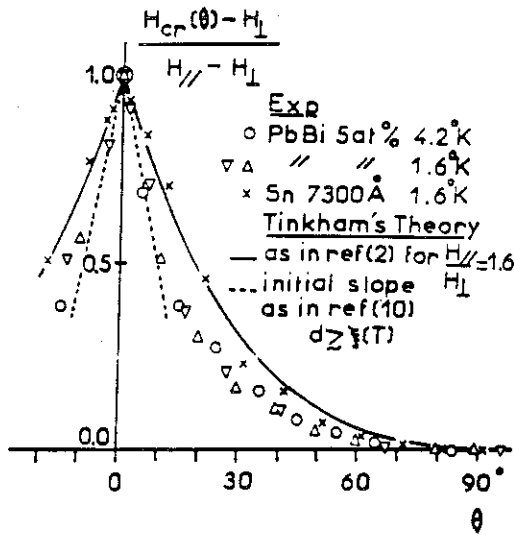


Figure 2.2.1: $H_{c3}(\Theta)$ mesuré sur des couches minces de Pb-Bi 5% et de Sn selon [Burger65].

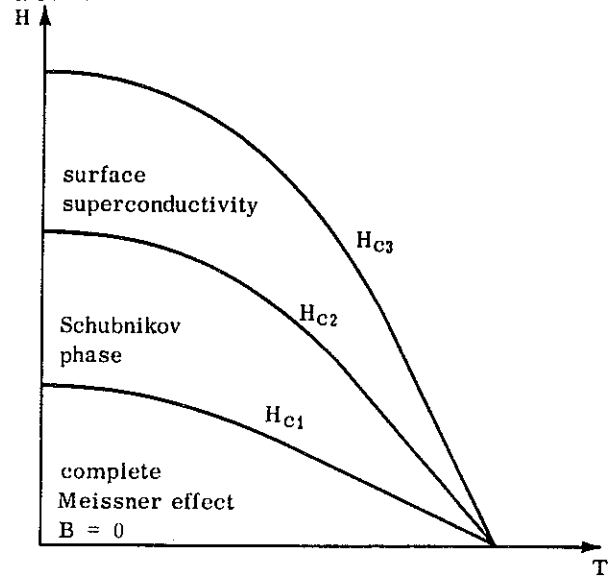


Figure 2.2.2: Diagramme de phase avec la phase de Meissner (H_{c1}), l'état mixte (H_{c2}) et la phase d'une supraconductivité de surface (H_{c3}) [deGenne66].

La dépendance en température près de T_c suit la relation $H_{c3}(T) = 1.7 H_{c2}(T)$ [SaintJa63] et le rapport $H_{c3}(T) / H_{c2}(T)$ augmente de moins que 20% vers $T = 0K$ [Abrikos65, Kulik69]. Ainsi, le diagramme de phase (fig.2.2.2) présente trois phases

différentes: l'état de Meissner à faible champ ($H_{c1}(T)$), l'état mixte ou l'état de Shubnikov ($H_{c2}(T)$) et l'état de la supraconductivité de surface ($H_{c3}(T)$). Les calculs montrent que la supraconductivité se forme dans une couche sous la surface ayant une épaisseur de $\sim \xi(T)$. Ainsi, les mesures de résistivité peuvent mettre en évidence $H_{c3}(T)$ qui dépend fortement de la géométrie contrairement au deuxième champ critique $H_{c2}(T)$. Une mesure d'aimantation par contre montre les deux phases. Comme la couche supraconductrice de surface présente seulement un faible volume par rapport au volume totale, l'aimantation présente d'abord un faible signal diamagnétique dû au H_{c3} et ensuite à plus faible champ ou à plus basse température le diamagnétisme complet se développe ($M = -H$).

La supraconductivité de surface peut être délibérément supprimé en déposant des atomes magnétique ou un film d'un métal normal sur la surface du supraconducteur [Abrikos88, Deutsch69]. Il y a deux conditions nécessaires pour que la supraconductivité de surface soit intégralement détruite par une couche métallique déposée sur la surface [Hurault66]. Il faut que la conductivité du métal σ_N soit supérieure à la conductivité du supraconducteur σ_S dans l'état normal et qu'il y ait un bon contact électrique entre le métal normal et le supraconducteur. Dans le cas d'un film normal déposé sur la surface, la condition de bord (II.2.3) impose que la composante normale à la surface du courant supraconducteur ($\mathbf{jn}|_b=0$) doit disparaître, car un courant non dissipatif n'existe pas dans un métal ordinaire. Ainsi, la condition de bord se modifie à

$$\mathbf{n} \left(-i\hbar \nabla - \frac{2e}{c} \mathbf{A} \right) \Psi \Big|_b = \frac{1}{t} \Psi \Big|_b. \quad (\text{II.2.6})$$

La fonction d'onde Ψ à la surface doit être la même pour les quasi-particules dans la phase supraconductrice et dans le métal normal. Le coefficient t se calcule [Abrikos88] à l'aide de la théorie BCS à

$$t = \begin{cases} 0.6 \xi_{0n} & \text{supraconducteur propre} \\ 0.3 (\xi_{0n} l_e)^{1/2} & \text{supraconducteur sale } \xi_0 \gg l_e \end{cases}$$

où $\xi_{0n} \approx 0.18 \frac{\hbar v_n}{T_c}$ représente la longueur de corrélation, v_n la vitesse de Fermi perpendiculaire à la surface et l_e le libre parcours moyen des électrons. Pour une surface plane équation (II.2.6) se simplifie à

$$\frac{d\Psi}{dx} \Big|_{x=0} = \frac{1}{t} \Psi(0). \quad (\text{II.2.7})$$

Cette condition de bord implique que les paires de Cooper créées près de la surface diffusent à travers la barrière dans le métal normal où elles sont brisées. Ainsi la couche métallique présente un moyen efficace d'inhiber la supraconductivité de surface. Dans le cas de $\sigma_N < \sigma_S$, le champ critique de la surface se réduit ($H_{c2} < H_{//} < 1.69H_{c2}$). La formation des paires de Cooper à l'intérieur de la surface ($x \ll \xi(T)$) n'est pas influencée, donc le H_{c2} n'est pas affecté. Expérimentalement, une couche de cuivre d'une épaisseur de $\approx 1.2 \mu\text{m}$ déposée sur la surface des supraconducteurs $\text{Pb}_{0.83}\text{In}_{0.17}$ [Hempste64] et $\text{In}_{0.94}\text{Pb}_{0.06}$ [Gygax64] a réduit le rapport H_{c3} / H_{c2} de 1.695 à 1.15. La valeur de H_{c2} n'est pas changée par le dépôt de cuivre sur la surface. La figure 2.2.3 montre l'exemple de $\text{Pb}_{0.83}\text{In}_{0.17}$ [Hempste64].

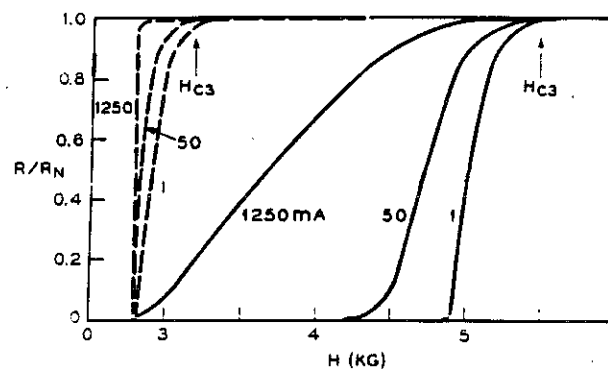


Figure 2.2.3: Le supraconducteur $\text{Pb}_{0.83}\text{In}_{0.17}$ montre des champs critiques différents d'un facteur ~ 1.7 entre l'échantillon couvert d'une couche de cuivre (--- : épaisseur de $1.2 \mu\text{m}$) et l'échantillon pur (—). La supraconductivité est fortement supprimée par le dépôt d'une couche métallique sur la surface.

Chapitre III

La supraconductivité du composé UPt₃

III.0. Le composé UPt₃

Le composé à fermions lourds UPt₃ cristallise dans une structure hexagonale P6₃/mmc (figure 3.0.1) avec des paramètres de maille $\hat{a} \approx \hat{b} \approx 5.7525 \text{ \AA}$ et $\hat{c} \approx 4.8990 \text{ \AA}$ [deVisse87]. Les vecteurs de translation ($\mathbf{a}$, $\mathbf{a}^*$ et $\mathbf{c}$) qui caractérisent le système cristallin sont indiqués dans la figure 3.0.1. Les axes $\mathbf{a}^*$ correspondent ainsi aux directions perpendiculaires aux axes $\mathbf{a}$.

Parmi les propriétés physiques d'UPt₃ on remarque plusieurs températures caractéristiques:

- T^* qui caractérise le début des corrélations entre électrons localisés et électrons de conduction,
- T_N qui indique une transition antiferromagnétique et
- T_c qui marque la transition vers l'état supraconducteur.

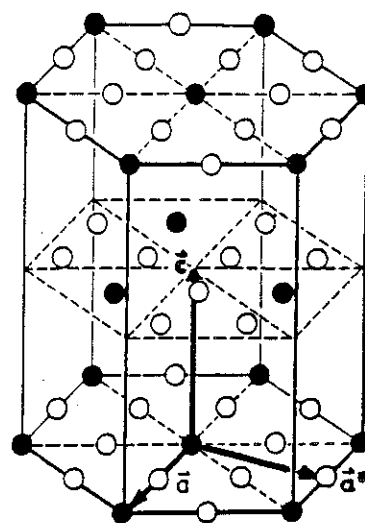


Figure 3.0.1: Structure cristalline P6₃/mmc d'UPt₃. Les cercles noirs marquent les des atomes U et les cercles ouverts les atomes Pt. La direction $\mathbf{a}^*$ est considérée comme orthogonale à l'axe $\mathbf{a}$ [après deVisse87].

1) La température $T^* \sim 70 \text{ K}$ caractérise le début des corrélations entre électrons de conduction et électrons localisés (5f). La susceptibilité (χ) est très anisotrope suivant l'axe $\mathbf{c}$ et le plan basal (figure 3.0.2). Elle suit une loi de Curie-Weiss pour des températures $T > T^*$ avec un moment magnétique $\mu_{\text{eff}} \approx 2.6 \pm 0.2 \mu_B/\text{mole U}$ et une température de Curie-Weiss de -50 K pour le plan basal et -170 K pour l'axe $\mathbf{c}$. Ce moment effectif est difficile à attribuer à une valence fixe de l'uranium, car les moments effectifs déterminés selon la règle de Hund $\mu_{\text{eff}}(\text{U}^{1+}) = 2.54 \mu_B/\text{mole U}$, $\mu_{\text{eff}}(\text{U}^{2+}) = 2.83 \mu_B/\text{mole U}$ et $\mu_{\text{eff}}(\text{U}^{4+}) = 2.68 \mu_B/\text{mole U}$ sont très voisins et couverts par l'incertitude de la valeur expérimentale. Il vient de corrélations entre électrons de conduction et électrons localisés qui sont déterminantes pour la composante électronique de la chaleur spécifique ($C_e = \gamma_e T$). La figure 3.0.3 montre la chaleur spécifique d'un monocristal d'UPt₃ [deVisse87] en fonction de la température. Une extrapolation de C/T vers la température zéro indique une constante de Sommerfeld très élevée: $\gamma_e \approx 450 \text{ mJ/mole K}^2$. Cette valeur est deux ordres de grandeurs plus grande que dans les métaux normaux. Dans un modèle à électrons libres, γ est directement liée à la densité d'états au niveau de Fermi et ainsi indirectement à la masse effective m^* des électrons ($\gamma \propto \frac{2}{3} k_B^2 \pi^2 m^*$).

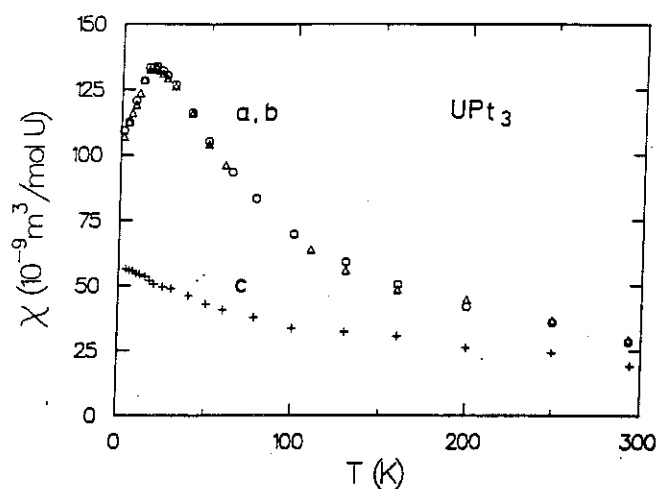


Figure 3.0.2: Anisotropie de la susceptibilité dynamique d'un monocristal de UPt_3 après [deVisse87].

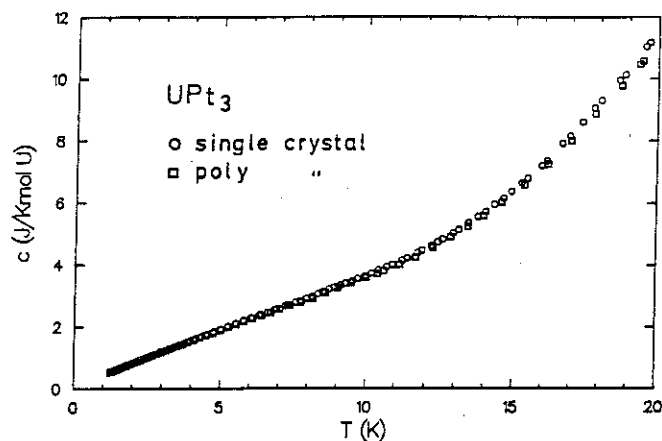


Figure 3.0.3: Chaleur spécifique de UPt_3 dans l'état normal [deVisse87], qui ne montre aucune signature d'une transition antiferromagnétique autour de $T_N \approx 5K$

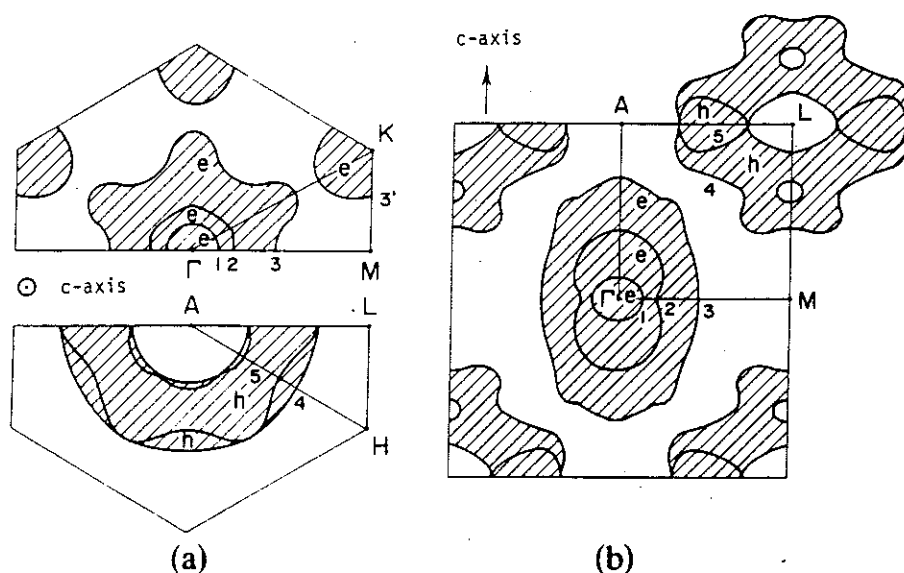


Figure 3.0.4: La surface de Fermi est présentée perpendiculaire (a) et parallèle (b) à l'axe c . L'anisotropie hexagonale de la surface fermée (3) autour du centre Γ de la zone de Brillouin est très prononcée [Oguchi85, Taillefer87].

Par rapport à la masse des électrons libre m_e , la masse effective m^* est ainsi ~ 180 fois plus élevée pour UPt_3 . Ces masses lourdes des quasi-particules ont été observées directement par des mesures de l'effet de Haas - van Alphen [Taillef87, Taillef88A] et de magnétorésistance (Shubnikov - de Haas) [Julian92]. Les masses de cyclotron les plus lourdes observées sont de $m^* \approx 90 m_e$ [Taillef88A] et $m^* \approx 180 m_e$ [Julian92] correspondent aux masses effectives observées lors des mesures de chaleur spécifique. La surface de Fermi déterminée expérimentalement par Taillefer *et.al.* confirme les calculs de la structure de bande [Oguchi85, Oguchi87, Norman88, Wang87]. Toutes les masses de cyclotron calculées sont d'un facteur 12 à 23 plus petites que les masses observées expérimentalement [Norman88], car les corrélations importantes entre électrons localisés et électrons de conduction ne sont pas prises en considération dans les calculs. Néanmoins, l'utilisation de la densité d'états calculé dans un calcul de C_p montre le même facteur multiplicatif comme écart. Ainsi, on peut déduire, que la surface de Fermi calculé est correcte à part du facteur de renormalisation des masses effectives. La figure 3.0.4 montre la surface de Fermi perpendiculaire à l'axe c [Taillef87]. Elle présente une anisotropie hexagonal de $\epsilon_F(\mathbf{a}) / \epsilon_F(\mathbf{a}^*) \sim 1.6$ ($\epsilon \propto k_F^2$) estimée à partir des vecteurs $\mathbf{k}_F$ suivant les deux directions $\mathbf{a}$ et $\mathbf{a}^*$ de la surface $\Gamma(3)$.

2) UPt_3 subit une transition antiferromagnétique à $T_N \approx 5K$ [Aeppli88] avec un moment magnétique effectif ordonné très faible $\mu_{eff} = (0.02 \pm 0.01)\mu_B$. Ces moments sont orientés dans le plan hexagonal suivant les directions $\mathbf{a}^*$ [Goldman86] avec une longueur de cohérence des domaines de $\xi \sim 150 \text{ \AA}$ [Aeppli89]. Cet ordre antiferromagnétique qui s'établit à T_N est uniquement observé par diffraction de neutrons. Les propriétés thermodynamiques comme la chaleur spécifique (figure 3.0.3) [Fisher91, deVisse87] qui ont été étudiées intensivement ne montrent aucune anomalie autour de T_N . L'intensité du pic de Bragg observé par les mesures de neutron croît comme $M^2 \sim (T_N - T)^{1/2}$ lorsque la température est diminuée au-dessous de 5 K (figure 3.0.5).

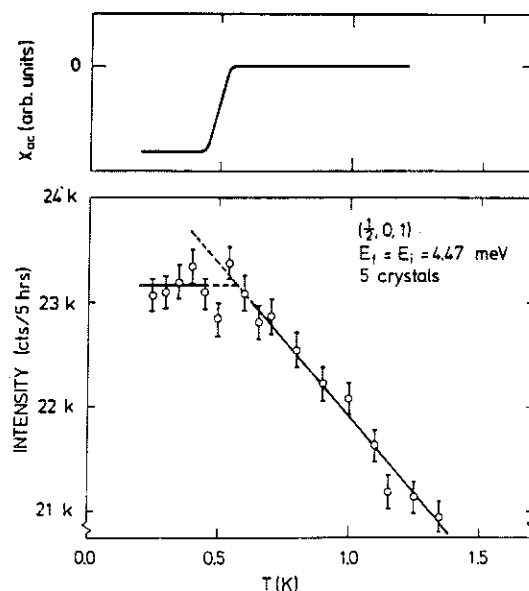


Figure 3.0.5 Intensité de diffraction de neutron à $Q = (1/2, 0, 1)$ de l'ordre antiferromagnétique sature à la transition supraconductrice [Aeppli88]. La partie supérieure de la figure montre la susceptibilité qui devient diamagnétique à T_c .

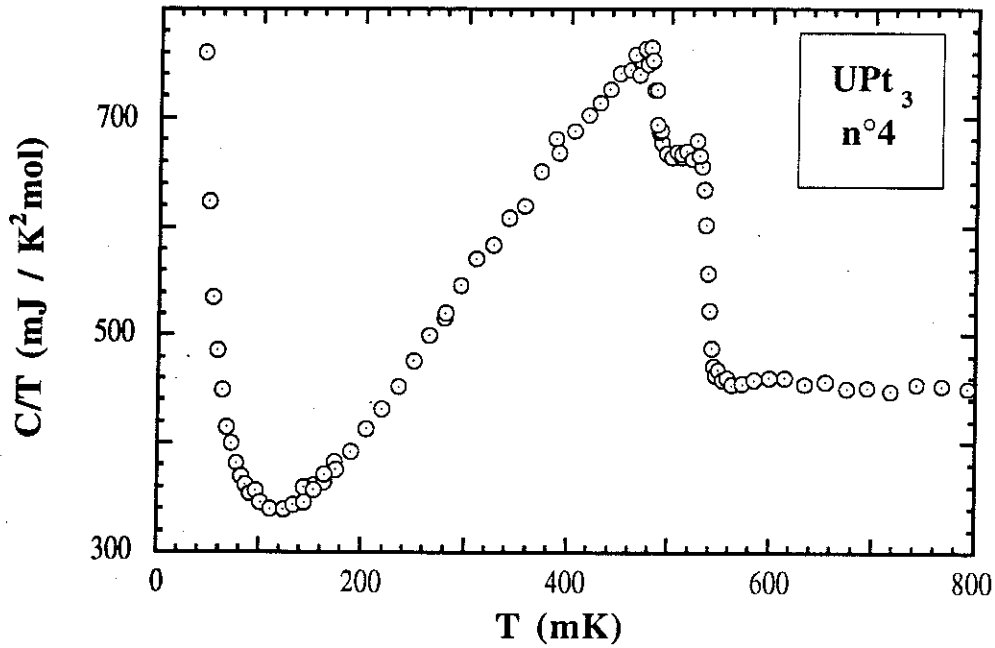


Figure 3.0.6: Chaleur spécifique à la transition supraconductrice mesurée pour l'échantillon n°4.

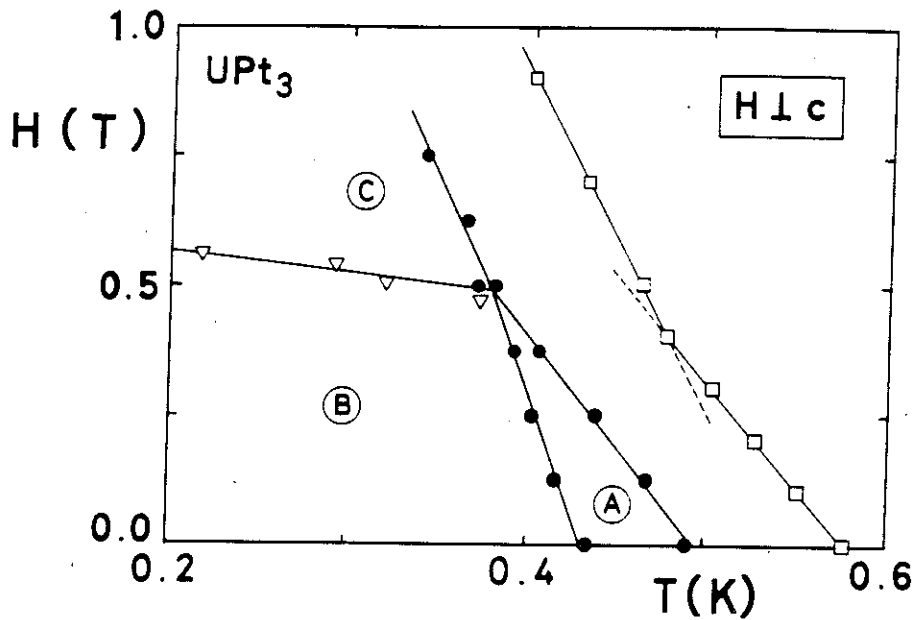


Figure 3.0.7: Le diagramme de phase pour $H \perp c$ [Hasselb89], déterminé par mesure de chaleur spécifique (•) et d'atténuation ultrasonore (triangles) [Schenst89], montre un point tétracritique. Les trois phases sont nommées A, B et C. La deuxième ligne $H_{c2}(T)$ représentée, qui a été déterminée par mesures de résistivité [Taillef88B] et qui est déplacée en température, montre une discontinuité de pente de $H_{c2}(T)$ à la même température T^* et pour le même champ magnétique H^* que les mesures de C_p .

Elle sature à la transition supraconductrice ($T_c \sim 0.5K$) et persiste au-dessous de T_c . La saturation du moment magnétique M^2 à T_c , qui est même suivi d'une diminution pour des températures inférieures à T_c ($H = 0$ T) [Aeppli89], reflète apparemment une compétition concernant les mêmes électrons de conduction entre la formation des domaines antiferromagnétiques et la création des paires de Cooper dans la phase supraconductrice.

Ainsi, UPt₃ montre une coexistence d'un faible ordre antiferromagnétique orienté suivant les axes a^* dans le plan hexagonal avec la phase supraconductrice au-dessous de T_c .

3) L'état supraconducteur qui s'établit à $T_c = 0.52$ K, présente un diagramme de phase très complexe. Les mesures de chaleur spécifique [Fisher89, Hasselb89] ont révélé une double transition supraconductrice avec un $\Delta T_c \approx 60$ mK, qui disparaît progressivement par application d'un champ magnétique. La figure 3.0.6 montre cette transition supraconductrice mesurée pour l'échantillon UPt₃ n°4, où les deux transitions à T_{c+} et T_{c-} sont séparées de 61 mK. La constante de Sommerfeld, déterminée par extrapolation de l'état normal vers $T = 0$ K, a une valeur de 453 mJ/moleK². L'ensemble du saut de chaleur spécifique $\Delta C_p \approx 400$ mJ/moleK² à la transition supraconductrice est du même ordre de grandeur que la chaleur spécifique dans l'état normal. Ainsi, les mêmes électrons qui ont une masse effective élevée dans l'état normal, forment aussi les paires de Cooper. Dans la phase supraconductrice, C_p ne suit pas la décroissance exponentielle prédite par la théorie de BCS, mais varie en T^2 , ce qui indique que le gap supraconducteur s'annule sur une ligne de la surface de Fermi. Ainsi la symétrie du gap est réduite par rapport à la symétrie de la surface de Fermi. D'autres propriétés comme la profondeur de pénétration $\lambda_L(T)$ mesurée par aimantation [Gross90, Gross91] et relaxation de spin de muons (μ^+ SR) [Broholm90] suggèrent que le gap supraconducteur s'annule à la fois aux pôles (axe c) et sur une ligne équatoriale de la surface de Fermi. Ces résultats indiquent un paramètre d'ordre non conventionnel (cf. chapitre II.1) et sont soulignés par des mesures de relaxation magnétique nucléaire (RMN) [Kohori88]. Le Knight shift, observé lors de ces mesures, reste constant au passage de la transition supraconductrice et indique ainsi que le paramètre d'ordre est impair. De plus, le temps de relaxation nucléaire spin-réseau $1/T_1$ ne décroît pas exponentiellement (théorie BCS), mais suit une loi en T^3 à basse température qui est interprétée comme un état polaire du paramètre d'ordre (ligne équatoriale de zéro du gap supraconducteur). Cet état polaire est en accord avec la dépendance en température de la chaleur spécifique.

Le diagramme de phase du deuxième champ critique déterminé par différentes techniques comme la chaleur spécifique, la dilatation thermique, l'atténuation ultrasonore et l'effet magnétocalorique pour les orientations du champ magnétique $H \perp c$

[Schenst89, Hasselb89, vanDijk93, Bogenbe93], $\angle(\mathbf{H}, \mathbf{c}) = 45^\circ$ [Adenwal92, Lin94] et $\mathbf{H} // \mathbf{c}$ [Qian87, Hasselb90, Bruls90] présente trois phases supraconductrices qui se rejoignent en un point tétracritique (voir figure 3.0.7 pour $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$). Bien que le diagramme de phases soit qualitativement similaire suivant les axes principales ($//a$ et $//c$) ayant toujours trois phases supraconductrices, il montre une anisotropie parfois importante. Le point tétracritique apparaît comme point de changement de pente dans le $H_{c2}(T)$ qui sépare deux phases supraconductrices. Cette discontinuité dans la pente du $H_{c2}(T)$ a été aussi observée au moyen des mesures de résistivité [Shivara86, Hasselb90, Behnia90B, Taillef88B, Taillef90A, Taillef90B]. Ces trois phases reflètent une propriété intrinsèque de la phase supraconductrice car elles ne sont pas liées à un changement structural. Elles sont couplées à un changement d'énergie de condensation ΔF_s qui est observé dans le premier champ critique $H_{c1}(T)$ [Shivara89, Zhao90, Vincent91, Knetsch92, Knetsch93, Wüchner93]. La dépendance en température du $H_{c1}(T)$ montre un changement de pente à $\Delta T \approx 60 \text{ mK}$ en-dessous de T_c . Ce changement de pente correspond à la deuxième transition supraconductrice observée dans $C_p(T)$.

Les deux transitions successives ont fait l'objet d'une étude de chaleur spécifique sous pression hydrostatique [Trappma91]. La séparation des deux transitions supraconductrices diminue en fonction de la pression hydrostatique appliquée et s'annule à une pression critique de $p_c \sim 3.5 \text{ kbar}$. La même pression critique p_c est observée lors des mesures de diffraction de neutrons [Hayden92] qui montrent que l'antiferromagnétisme disparaît au-delà de la pression p_c (figure 3.0.8). A $(5.4 \pm 2.9) \text{ kbar}$ le moment ordonné n'est plus observé et une seule transition supraconductrice apparaît en chaleur spécifique. Ces mesures indiquent que le paramètre d'ordre de la supraconductivité est directement couplé à l'aimantation des sous-réseaux de l'antiferromagnétisme.

Le diagramme de phase complet est anisotrope pour les directions parallèle et perpendiculaire à l'axe c . A la température $\sim T_c/2$ cette anisotropie du $H_{c2}(T)$ entre $\mathbf{H} // \mathbf{c}$

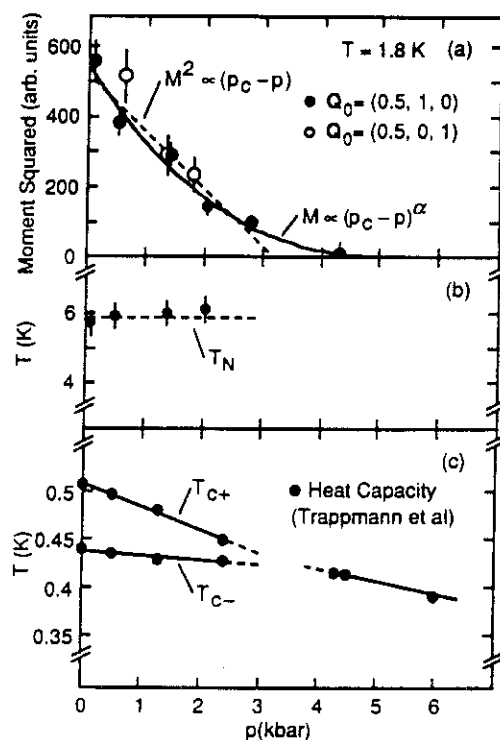


Figure 3.0.8: Dépendance en fonction d'une pression hydrostatique du moment magnétique ordonné [Hayden92]. A $p_c \approx 3.5 \text{ kbar}$ le pic de Bragg $(0.5, 0, 1)$ disparaît (a), le T_n n'est plus observée (b) et une seule transition en chaleur spécifique est mesurée (c).

et $H_{\perp c}$ s'inverse (voir figure 3.0.9) [Shivara86, Piquema87]. Ce croisement des lignes de phases a été récemment interprété par Choi *et.al.* [Choi91, Choi93] en termes d'une limitation du champ critique (H/c) par le paramagnétisme de Pauli. Selon leur approche, cette limitation unidirectionnelle de $H_{c2}(T)$ est seulement possible si la parité du paramètre d'ordre est impaire, ce qui est en accord avec le Knight shift mesuré par RMN.

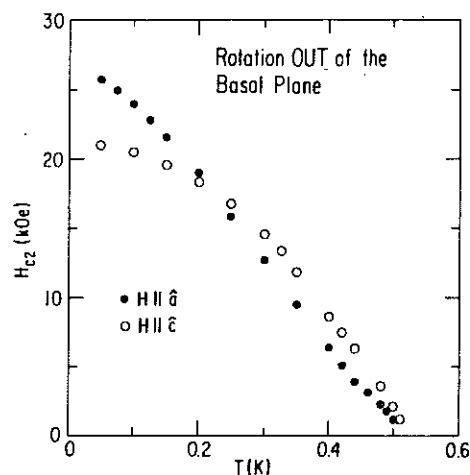


Figure 3.0.9: L'anisotropie du diagramme de phase s'annule à $T_{cr} \approx T_c/2$ et est inversé pour les plus basses températures [Shivara86].

III.1. La supraconductivité non conventionnelle dans UPt₃

Les propriétés thermodynamiques (chaleur spécifique, profondeur de pénétration, RMN, diagramme de phase,...) de la phase supraconductrice d'UPt₃ suggèrent que

- *le paramètre d'ordre réalisé est d'un type non conventionnel et*
- *il est probablement couplé à l'antiferromagnétisme.*

Ces domaines antiferromagnétique qui sont orientées suivant les axes $\mathbf{a}^*$ dans le plan hexagonal, réduisent localement la symétrie hexagonale du cristal vers une symétrie orthorhombique. Dans la suite, cette réduction de symétrie est abrégée par le terme SBF ("symmetry breaking field").

L'ensemble des approches théoriques [revue Joynt92, Sauls94] qui essayent d'expliquer le diagramme de phase observé, peut être classifié en fonction de la représentation et de la parité du paramètre d'ordre ($|\Psi|^2$) choisie.

Dans la suite les caractéristiques principaux des modèles théoriques utilisant des représentations bi-dimensionnelles (chapitre III.1.1) et des représentations uni-dimensionnelles (chapitre III.1.2) du paramètre d'ordre $|\Psi|^2$ sont résumées.

III.1.1. Représentations bi-dimensionnelles (2D-REP) du paramètre d'ordre

La plupart des modèles considèrent un paramètre d'ordre de la représentation E_1 (cf.II.1) dans la limite de couplage spin-orbite forte [Joynt88, Hess89, Machida89, Blount90, Joynt90, Mineev90, Sundara91, Barash92, Garg94, Sauls94].

Un paramètre d'ordre de la représentation E_1 (caractérisé par le coefficients $\eta = (\eta_x, \eta_y)$) qui possède des points de zéro suivant l'axe c du gap supraconducteur [Volovik85], présente un diagramme de phase $H_{c2}(T)$ isotrope avec un seul T_c où le paramètre d'ordre $\eta = (1,i)$ se réalise. Ainsi, cette approche simple n'est pas suffisante pour tenir compte des trois phases supraconductrices observées.

L'introduction d'un terme de couplage ($f_{\text{couplage}} = \gamma |\mathbf{M}\eta|^2$) entre le SBF et le paramètre d'ordre $|\Psi|^2$ dans l'énergie libre F , permet de prédire l'apparition de deux transitions supraconductrices successives à des températures critiques différentes: T_{c+} pour $\eta = (1,0)$ et T_{c-} pour $\eta = (1,i)$. Hess *et.al.* [Hess89] déterminent la différence en

température critique à $T_{c\pm} = T_{c0} \pm \gamma \frac{M^2}{2\alpha}$ où α est le coefficient du terme f_{supra} . Ainsi elle est liée aux moments magnétiques.

Dans un champ magnétique appliqué, des termes de gradient ($f_{gradient}$) de $|\Psi|^2$ doivent être considérés dans l'énergie libre [Machida89]:

$$F = \int d^3x (f_{supra} + f_{couplage} + f_{gradient}) \quad (III.1.1)$$

avec

$$f_{supra} = \alpha \eta \eta^* + \beta_1 (\eta \eta^*)^2 + \beta_2 |\eta \eta^*|^2,$$

$$f_{gradient} = \kappa_1 (|D_x \eta_x|^2 + |D_y \eta_y|^2) + \kappa_2 (|D_x \eta_y|^2 + |D_y \eta_x|^2) + \kappa_3 \{ (D_x \eta_x)(D_y \eta_y)^* + cc. \} + \kappa_4 \{ (D_x \eta_y)(D_y \eta_x)^* + cc. \} + \kappa_5 (|D_z \eta_x|^2 + |D_z \eta_y|^2)$$

et $D_j = \partial_j - i2eA_j/c$ où A représente le potentiel vecteur.

Diagramme de phase pour $H \perp c$

Suivant l'orientation du champ magnétique ($H = H_0(-\sin\Phi; \cos\Phi; 0)$) dans le plan hexagonal où les moments magnétique sont orientés le long d'une axe a^* ($M//x$), Hess *et.al.* [Hess89] et Machida *et.al.* [Machida89] ont calculé le diagramme de phase qui est représenté dans la figure 3.1.1. Le $H_{c2}(\Phi)$ est anisotrope dans le plan hexagonal due au couplage entre $|\Psi|^2$ et SBF. Pour un terme de couplage néant ($\gamma = 0$) le $H_{c2}(\Phi)$ est isotrope, conformément aux premiers calculs de Burlachkov [Burlach85].

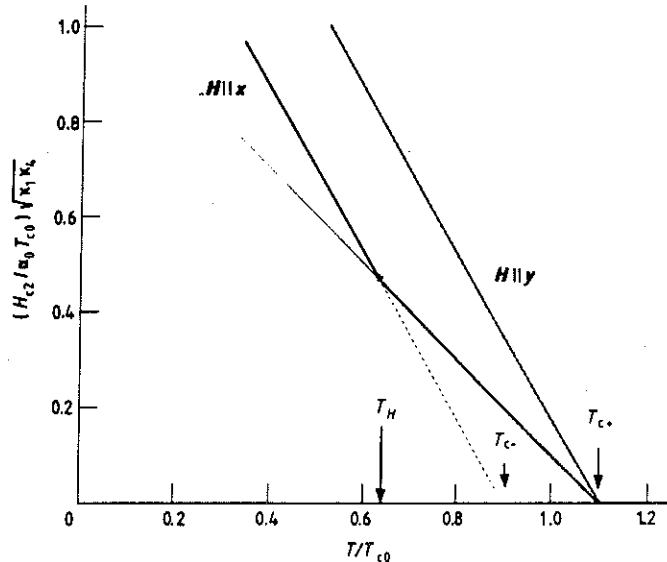


Figure 3.1.1: $H_{c2}(T)$ dans le plan hexagonal calculé par Hess *et.al.* [Hess89] montre une anisotropie prononcée suivant les directions $H//a$ ($H//x$) et $H//a^*$ ($H//y$). Le changement de pente à T^* ($=T_H$) est uniquement présent, quand le champ est orienté perpendiculaire par rapport aux moments magnétiques ($H \perp m$, ici $H//x$).

Ce modèle possède la particularité que le changement de pente de $H_{c2}(T)$ dans le plan $(\mathbf{a}, \mathbf{a}^*)$ est présent uniquement pour la direction du champ magnétique perpendiculaire à l'orientation des moments magnétique ($\mathbf{H} \perp \mathbf{m}$). L'orientation $\mathbf{H} // \mathbf{m}$ ne présente pas de discontinuité dans la pente de $H_{c2}(T)$ (voir figure 3.1.1). Aussi pour $\mathbf{H} // \mathbf{c}$, la discontinuité de pente du $H_{c2}(T)$ n'est pas explicable [Machida89, Sundara89, Blount90].

Le changement de pente de $H_{c2}(T)$ observé suivant *toutes* les directions du champ magnétique ($\mathbf{H} // \mathbf{c}$, $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$, $\angle(\mathbf{H}, \mathbf{c})$, cf. chapitre III.0), n'est pas explicable avec ce modèle.

La discontinuité de pente du $H_{c2}(T)$ dans le plan hexagonal qui était observée expérimentalement pour les orientations du champ magnétique parallèle et perpendiculaire aux moments magnétiques, peut être introduite dans le modèle de couplage entre $|\Psi|^2$ de la représentation E_1 et le SBF de la façon suivante:

- (a) Les faibles moments antiferromagnétiques ($\mu_{\text{eff}} \approx 0.02\mu_B$) suivent la rotation du champ magnétique et sont toujours orientés perpendiculairement à la direction du champ magnétique [Blount90]. De cette manière, il est possible d'expliquer la similitude du diagramme de phase pour toutes les orientations $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$, qui se présente isotrope dans ce modèle. Mais le changement de la pente du $H_{c2}(T)$ pour $\mathbf{H} // \mathbf{c}$ n'est pas expliqué.
- (b) Les domaines d'antiferromagnétisme ayant une longueur caractéristique de $\xi \approx 150 \text{ \AA}$ sont orientés aléatoirement dans le plan hexagonal [Joynt90, Mineev90]. En tenant compte de la longueur de cohérence faible ($\xi_0 \approx 90 \text{ \AA}$) de la supraconductivité, chaque orientation du champ magnétique correspond à la situation où quelques domaines magnétiques sont orientés perpendiculairement au champ appliqué. Ainsi, dans cet état de verre des domaines, la discontinuité de pente du $H_{c2}(T)$ est présente pour toutes les directions ($//\mathbf{a}$, $//\mathbf{a}^*$, $//\mathbf{c}$).

En résumé, le modèle d'une supraconductivité non conventionnelle avec un paramètre d'ordre de représentation E_1 présente le défaut que la discontinuité de pente de $H_{c2}(T)$ suivant toutes les orientations du champ ne peut pas être expliquée. Les améliorations (a) et (b) apportées à ce modèle, introduisent une isotropie de $H_{c2}(T)$ dans le plan basal et l'approche (b) est aussi capable d'expliquer le diagramme de phase pour $\mathbf{H} // \mathbf{c}$.

Dépendance angulaire de $H_{c2}(\Theta)$ entre $H \perp c$ et $H // c$

Dans le cadre de ce modèle de la supraconductivité non conventionnelle avec un paramètre d'ordre de représentation E_1 qui est le plus étudié à présent, plusieurs auteurs [Machida89, Sundara91, Barash92, Garg94] ont calculé la dépendance angulaire du deuxième champ critique $H_{c2}(\Theta)$ entre le plan basal et l'axe c .

Deux différentes formules analytiques de la variation angulaire du $H_{c2}(\Theta)$ sont considérées:

1) Machida *et al.* et Garg *et al.* [Machida89, Garg94] ont calculé indépendamment la dépendance angulaire de $H_{c2}(\Theta)$ à:

$$\frac{H_{c2}(\Theta)}{H_{c2}(0^\circ)} = [1 + K \sin^2 \Theta]^{-1/2} \quad (\text{III.1.2})$$

Le paramètre K varie selon la température actuelle (T) par rapport à la température de discontinuité (T^*). Suivant le modèle de Machida *et al.*, le paramètre K dépend aussi de l'orientation du champ magnétique dans le plan basal ($//a$ ou $//a^*$).

2) Barash *et al.* [Barash92] ont calculé la dépendance angulaire entre un plan hexagonal et l'axe c d'une manière générale sans considération d'un couplage entre $|\Psi|^2$ et SBF. Leur résultat est applicable pour UPt_3 uniquement en-dessous de T^* dans une gamme de température très limitée.

III.1.2. Représentations uni-dimensionnelles (1D-REP) du paramètre d'ordre

Les paramètres d'ordres uni-dimensionnelles (A_1, A_2, B_1, B_2) sont considérés selon deux approches différentes.

- La première de Ozaki *et al.* [Ozaki92] suppose le couplage spin-orbite faible et considère un paramètre d'ordre de parité impaire.
- La deuxième de Chen *et al.* [Chen93, Garg94] propose un mélange de deux représentations uni-dimensionnelles (A et B), qui par dégénérescence accidentelle mène aux propriétés des diagrammes de phase déterminés expérimentalement.

1) Le modèle de la supraconductivité dans UPt_3 proposé par Ozaki *et al.* [Ozaki92] considère le couplage spin-orbite faible des quasi-particules et utilise des paramètres d'ordre uni-dimensionnels de parité impaire ($A_{1u}, A_{2u}, B_{1u}, B_{2u}$). Ils introduisent l'interaction entre les différentes composantes ($\eta = (\eta_x, \eta_y, \eta_z)$) et les moments

magnétiques ($\mathbf{m}$) suivant un couplage des spins. L'orientation des moments est choisie comme $\mathbf{m}/\mathbf{x}$ ($\mathbf{m}/\mathbf{a}^*$). Dans l'énergie libre ce couplage est considéré par le terme

$$f_{\text{couplage}} \propto M^2(2|\eta_x|^2 - |\eta_y|^2 - |\eta_z|^2).$$

Ainsi, deux transitions successives sont possibles avec des températures critiques de $T_c^{(+)} = T_{c0} + 2(\gamma M^2/\alpha_0)$ et $T_c^{(-)} = T_{c0} - (\gamma M^2/\alpha_0)$.

Comme la susceptibilité de spin des quasi-particules n'est pas nulle pour un paramètre d'ordre de parité impaire, le champ magnétique appliqué ajoute un terme de susceptibilité χ_0 isotrope

$$f_{\text{isotrope}} = \chi_0 \sum_{\mu\nu} H_\mu H_\nu \eta_\mu^* \eta_\nu \quad ; \mu, \nu = x, y, z$$

et un terme de χ_a anisotrope où $\chi_a \propto M^2$

$$f_{\text{anisotrope}} = \chi_a H^2(2|\eta_x|^2 - |\eta_y|^2 - |\eta_z|^2)$$

à l'énergie libre.

Le diagramme de phase calculé de cette manière présente une discontinuité de pente dans le $H_{c2}(T)$ suivant toutes les directions du champ magnétique ($\mathbf{H}/\mathbf{a}$, $\mathbf{H}/\mathbf{a}^*$ et $\mathbf{H}/\mathbf{c}$). Néanmoins, dans le plan hexagonal une faible anisotropie entre les directions de champ $\mathbf{H}/\mathbf{a}$ et $\mathbf{H}/\mathbf{a}^*$ doit être présente. Le rapport des champs critiques $H_{c2//\mathbf{a}}(T) / H_{c2//\mathbf{a}^*}(T)$ se calcule dans le régime entre champ nul et le champ H_{cr} (H_{cr} caractérise le point tétracritique) par:

$$\frac{H_{c2//\mathbf{a}}(T)}{H_{c2//\mathbf{a}^*}(T)} = \frac{|T - T'_{c1}(H_{c2})|}{|T - T_{c1}(H_{c2})|} \quad (\text{III.1.6})$$

avec $T_{c1}(H) = T_{c1} - (\chi_0 + 2\chi_a)H^2$, $T'_{c1}(H) = T_{c1} - 2\chi_a H^2$ et $H_{cr}^2 = (T_{c1} - T_{c2}) / (\chi_0 + 3\chi_a)$. Pour des champs supérieurs à H_{cr} le rapport $H_{c2//\mathbf{a}}(T) / H_{c2//\mathbf{a}^*}(T)$ est égale à l'unité. Donc, l'anisotropie disparaît en fonction de l'amplitude du champ magnétique.

2) Le deuxième modèle proposé par Chen et Garg [Chen93, Garg94] est basé sur la présence possible de deux paramètres d'ordre ayant des représentations Γ différentes (A_i et B_j). Ces deux paramètres d'ordre (η_a et η_b) devraient avoir des températures critiques

proches mais non liées. Ainsi, l'énergie libre comprend des termes relatifs aux paramètres d'ordre η_a et η_b :

$$f_{GL} = \sum_{i=a,b} \alpha_i |\eta_i|^2 + \beta_i |\eta_i|^4 + \kappa_i |\mathbf{D}_\perp \eta_i|^2 + \kappa'_i |\mathbf{D}_z \eta_i|^2 + \beta_1 |\eta_a|^2 |\eta_b|^2 + \beta_2 [(\eta_a \eta_b^*)^2 + \text{c.c.}]$$

avec $\alpha_i = \alpha_0(T - T_i)$, $T_a = T_0 + \varepsilon$, $T_b = T_0 - \varepsilon$ et ε déterminé par la double anomalie de C_p .

Le diagramme de phase est similaire pour toutes les directions du champ magnétique avec trois phases supraconductrices. Comme aucune réduction de la symétrie dans le plan hexagonal n'est nécessaire, le $H_{c2}(\Phi)$ doit être isotrope dans le plan basal.

L'anisotropie entre le plan basal et l'axe c est décrit par la dépendance angulaire (équation III.1.2) où le paramètre K change suivant la phase dominante.

L'approche selon une supraconductivité non conventionnelle avec un paramètre d'ordre de représentation 1D est capable d'expliquer le diagramme de phase avec une discontinuité de pentes de $H_{c2}(T)$ pour toutes les orientations du champ magnétique. Les deux modèles discutés se distinguent par leur comportement dans le plan hexagonal. $H_{c2}(T)$ est isotrope pour $\mathbf{H} \perp \mathbf{c}$ selon l'approche de Garg et Chen. Par contre, une faible anisotropie entre les directions $\mathbf{H} // \mathbf{m}$ et $\mathbf{H} \perp \mathbf{m}$ doit être observable selon le modèle d'Ozaki et Machida.

Ainsi, une étude détaillée de la dépendance angulaire du deuxième champ critique $H_{c2}(\Theta, \Phi, T)$ pourra fournir des informations nécessaires concernant le paramètre d'ordre réalisé dans UPt₃.

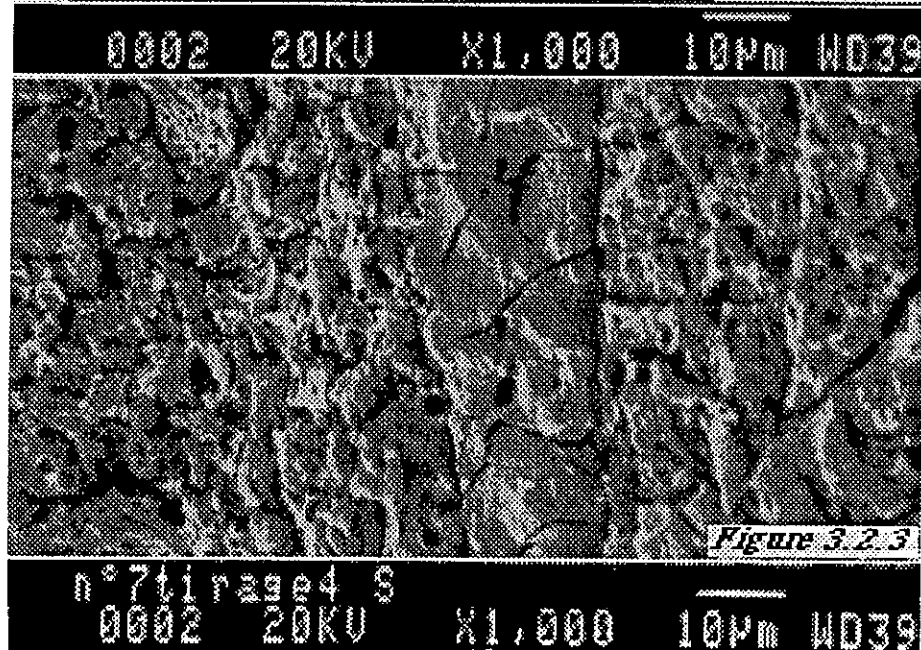
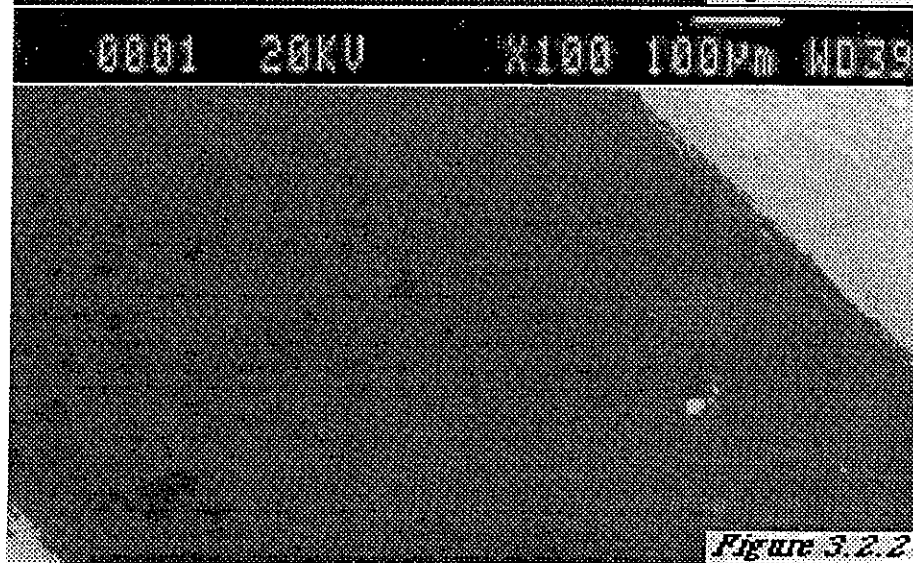
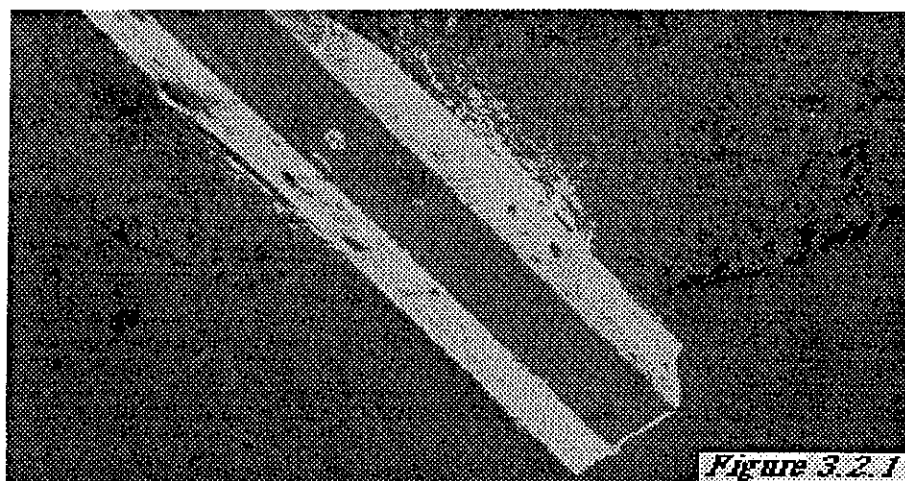


Figure 3.2.1 Image d'un whisker de UPt_3 .

Figure 3.2.2 Agrandissement de la surface du whisker de UPt_3 (figure précédente).

Figure 3.2.3 Surface d'un monocristal UPt_3 , coupé par électro-érosion et montre à la même échelle que l'agrandissement dans la figure 3.2.2.

III.2. Les échantillons étudiés

L'étude portait sur différentes sortes d'échantillons:

- des whiskers et
- des barrettes coupées à l'électroérosion à partir d'un monocristal.

Les whiskers, utilisés au cours de cette étude, ont été élaborés par Z.Fisk (Los Alamos) et par P.Lejay (CRTBT). Ils se forment suivant leur axe cristallographique c en refroidissement rapide ("quenching") d'un cristal très pur d' $U\text{Pt}_3$ en fusion sous ultravide. Ainsi, l'axe de l'aiguille (whisker) correspond à l'axe c . Les dimensions typiques des plus grandes échantillons sont égales à $5 \times 0.2 \times 0.3 \text{ mm}^3$. La figure 3.2.1 montre un

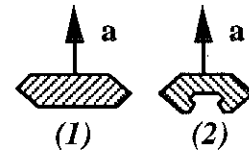


Figure 3.2.4: Sections des whiskers mesurés. Les axes a sont perpendiculaires aux surfaces.

whisker d' $U\text{Pt}_3$, qui présente des surfaces très régulières et pratiquement sans défauts sur une échelle de $10 \mu\text{m}$ (la figure 3.2.2 présente un agrandissement de la zone centrale de la figure 3.2.1). En comparaison, les échantillons coupés par électroérosion présentent des surfaces plus rugueuses à l'échelle de $10 \mu\text{m}$ (figure 3.2.3). Il est bien visible que les whiskers ont des arrêtes très régulières et droites. La section de ces échantillons est quasiment hexagonale avec six surfaces dont les normales ont une périodicité de 60° (voir schéma 3.2.4). Les clichés de diffraction rayon X (Laue) ont montré que les axes a (cf. figure 3.1.1 (structure cristalline)) sont orientés perpendiculairement aux surfaces, ainsi les normales n correspondent aux axes a . Deux whiskers (nommés $n^\circ 1$ et $n^\circ 2$) ont été étudiés.

Les autres échantillons étudiés proviennent de deux monocristaux différents d' $U\text{Pt}_3$, élaborés par A.Huxley. Le tirage des monocristaux se fait par la méthode Czochralsky en utilisant un germe d' $U\text{Pt}_3$ comme point de cristallisation. Les matériaux de départ, de l'uranium (4N) appauvri et du platine (5N), ont été purifiés successivement dans un four HF sous ultravide ("zone-refining"). Les matériaux traités de cette manière ont servi à former l'alliage de départ pour la croissance des monocristaux sous ultravide.

Ensuite ils ont subi un traitement thermique ("recuit") pendant trois jours et à différentes températures (1200°C - 1300°C). Les échantillons ($n^\circ 3$, $n^\circ 4$, $n^\circ 5$, $n^\circ 6$) ont été taillés par électroérosion dans des monocristaux. Ils ont la forme de barrettes de sections rectangulaires. Les dimensions typiques de ces barrettes sont de l'ordre $6 \times 0.4 \times 0.6 \text{ mm}^3$. Après la coupe, les échantillons ont été nettoyés à l'acide sulfo-chromique et recuits

(n°4, n°5, n°6) une deuxième fois à température moins élevée (950°C pendant 7 jours). Les détails concernant les traitements thermiques suivant les différents échantillons sont précisés dans le tableau T.III.2.1.

La caractérisation des échantillons a été effectuée au moyen de mesures de résistivité en utilisant une méthode de quatre fils (Pont basse impédance - Barras Provence - CRTBT) et dans le cas de l'échantillon n°6 au moyen de mesures de susceptibilité alternative. Les quatre contacts sont faits à l'aide des soudures d'Indium sur les whiskers n°1 et n°2. La résistance de contact est de l'ordre de $\sim 3\Omega$. Une résistance de contact moins élevée ($\sim 1\Omega$) est mesurée pour les échantillons n°3, n°4 et n°5 en utilisant des contacts en fils d'or ($\phi 100\mu\text{m}$), soudé à la micro-soudeuse aux ultrasons (LETI - CEA).

échantillon n°	tirage	recuit	recuit après coupe
1	Fisk - whisker	-	-
2	Fisk - whisker	-	-
3	A.Huxley - tirage 3	1300°C - 72h	-
4	A.Huxley - tirage 3	1300°C - 72h	950°C - 7d
5	A.Huxley - tirage 4	1200°C - 72h	950°C - 7d
6	A.Huxley - tirage 4	1200°C - 72h	950°C - 7d

Tableau T.III.2.1: traitement thermique appliqué aux différents échantillons étudiés

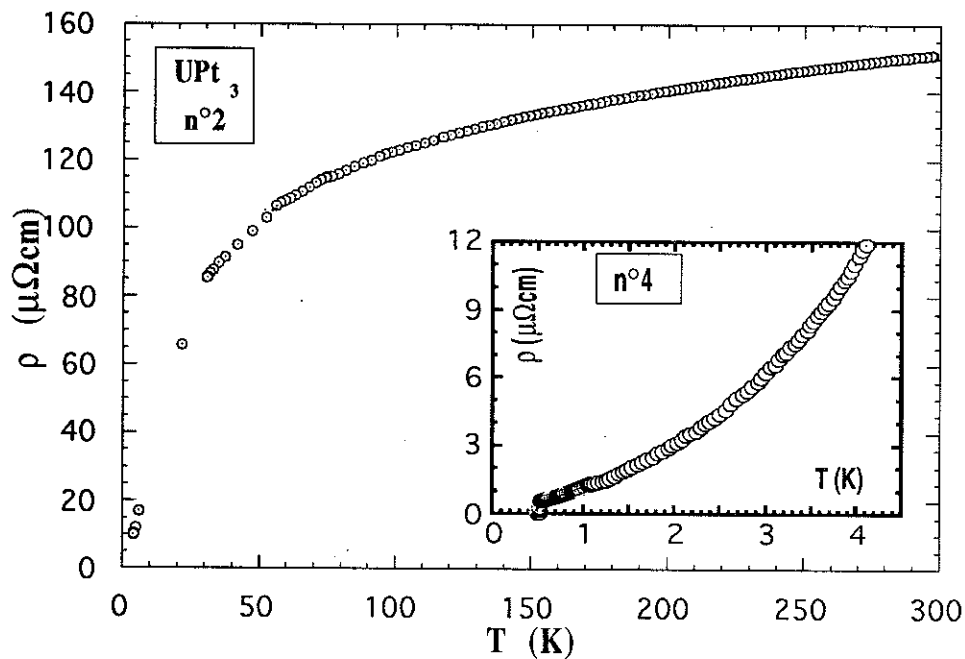


Figure 3.2.5: Variation thermique de la résistivité à haute température (300 K - 4.2 K: n°2) et à très basses températures (4.2 K - 0 K: n°4, insert).

n°	RR (300K/4.2K)	RR (300K/0.54K)	ρ_0 $\mu\Omega\text{cm}$	A $\mu\Omega\text{cm}/\text{K}^2$	T_c mK	ΔT_c mK
1	13.4	105.4	1.35 ^{\$}	-	508	18.5
2	14.4	140.2	1.03 ^{\$}	-	500.5	~15
3	15	186	0.67	0.815	511	15.8
4	16.1	389.3	0.41	0.661	527.9	6
5	16.8	314.6	0.76	1.110	526.1	10
6	-	-	-	-	527.1	-

Tableau T.III.2.2: caractéristiques des échantillons (rapport de résistivité, résistivité résiduelle déterminé avec $\rho = \rho_0 + AT^2$, température de transition T_c et largeur de transition ΔT_c entre 10% - 90% de ρ_n); ^{\$}résistivité à 0.53K

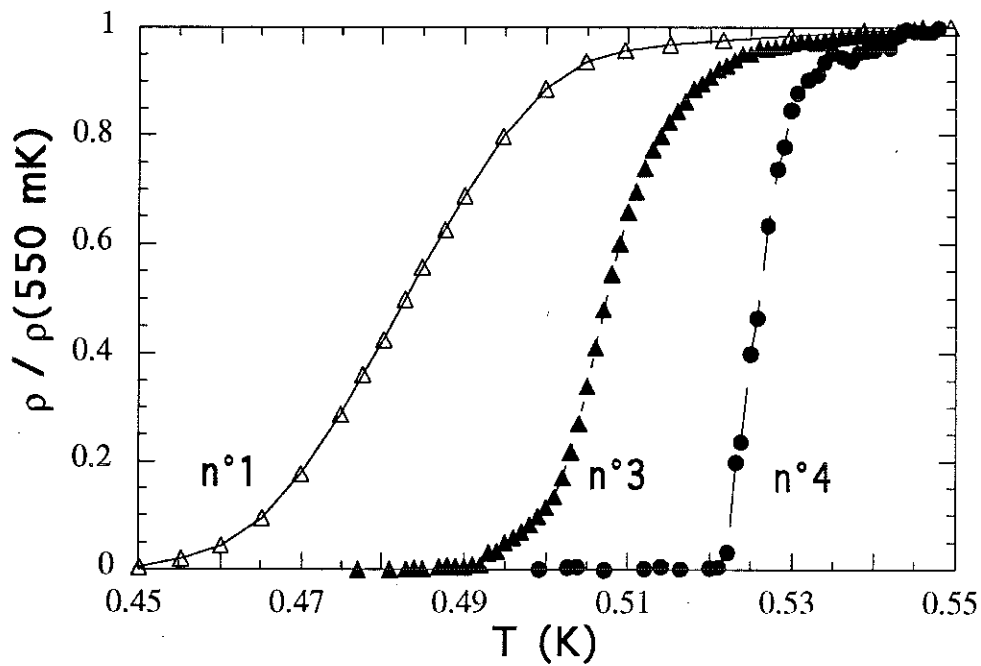


Figure 3.2.6: Comparaison des largeurs de transition des échantillons n°1, n°3 et n°4 mesurées par résistivité.

La figure 3.2.5 présente la variation thermique de la résistivité à hautes températures (1.5K - 300K, n°2) et à très basses températures (insert: 0.5K - 4.2K, n°4). Le rapport de résistivité (RR) entre 300K et 4.2K (ou 0.54K) montre la qualité de l'échantillon en fonction du recuit utilisé. Suivant les différents traitements ce rapport de $\rho(300K)/\rho(4.2K)$ (et $\rho(300K)/\rho(0.54K)$) varie entre ~13 (et ~105) et ~16 (et ~390) pour les whiskers et les barrettes. Le comportement à très basses températures ($T < 4.21K$) se décrit bien en termes de $\rho = \rho_0 + AT^2$ d'un liquide de Fermi. La valeur de la résistivité résiduelle ρ_0 dépend fortement du traitement thermique. Toutes ces caractéristiques de RR, ρ_0 et A, ainsi que la température de transition (T_c) à champ nul et la largeur de transition (ΔT_c) qui est définie entre 10% et 90% de ρ_n à T_c , sont résumées dans le tableau T.III.2.2.

A partir de la valeur de résistivité résiduelle ρ_0 on estime le libre parcours moyen des électrons l_e comme $l_e = v_F \tau$, où $v_F = \hbar k_F / m$ est la vitesse de Fermi et $\tau = m / p n e^2$ est le temps de relaxation entre deux collisions des électrons. L'hypothèse d'une surface de Fermi sphérique dans le modèle d'un gaz d'électrons libres détermine le nombre des électrons de conduction $n = k_F^3 / 3\pi^2$. Ainsi, l_e s'écrit comme

$$l_e = \frac{3\pi^2 \hbar}{k_F^2 e^2 \rho} \quad (\text{III.2.1})$$

En prenant $k_F \approx 1.2 \text{ \AA}^{-1}$ [deVisse87, Taillef87], le libre parcours moyen électronique l_e , vaut 2060 Å (échantillon n°4), ce qui est comparable aux valeurs déjà déterminées [Jaccard85, Sulpice86, Shivara86]. Considérant le changement de la résistivité entre 4.2K et 0.54K ($RR \approx 24.2$ - n°4), on réalise que le libre parcours moyen des électrons est fortement réduit à plus haute température ($l_e \approx 85 \text{ \AA}$ à 4.2K).

Les caractéristiques les plus importantes pour l'étude des champs critiques sont la température critique (T_c), la largeur de transition (ΔT_c) et la pente initiale du deuxième champ critique $\partial H_{c2}(T)/\partial T$. La figure 3.2.6 compare les largeurs de transition des échantillons n°1, n°3 et n°4. Le recuit après la préparation des barrettes (n°3 et n°4) réduit la largeur ΔT_c de $\approx 10 \text{ mK}$ à $\approx 6 \text{ mK}$ et augmente le T_c de 16 mK (cf. tableau T.III.2.2). Le whisker (n°1) qui n'a pas été recuit présente une largeur de transition de $\Delta T_c \approx 19 \text{ mK}$ ce qui est trois fois moins raide que la transition de l'échantillon n°4. la raideur de la transition supraconductrice a une influence déterminante sur l'amplitude de l'anisotropie $R(\Phi)$ décrite dans le chapitre III.3.2.3.

L'utilisation de la bobine "3 axes" a permis de déterminer le diagramme de phase à faible champ magnétique (H) pour les orientations de H parallèle et perpendiculaire à l'axe c de la structure hexagonale. Toute cette étude a été effectuée en utilisant une

géométrie de contacts alignées suivant l'axe c de l'échantillon (cf. Annexe III). Le diagramme de phase à faible champ magnétique (figure 3.2.7) montre une anisotropie prononcée suivant les directions du champ magnétique $H//c$ et $H \perp c$. Dans le plan basal un changement de pente $\partial H_{c2}(T)/\partial T$ est clairement visible à une température de $\Delta T_c = T^* - T_c \approx 90 \text{ mK}$ plus basse que la température critique sans champ magnétique appliqué. A partir de la pente initiale de $H_{c2}(T)$ à $T_c(H=0)$ on peut déduire la longueur de corrélation du paramètre d'ordre dans la phase supraconductrice. Le $H_{c2}(T)$ s'exprime comme $H_{c2}(T) = \Phi_0 / (2\pi \xi_0^2(T))$ [Tinkham75] avec variation thermique de la longueur de corrélation

$$\xi_0(T) = \begin{cases} 0.74 \frac{\xi_0}{(1-T/T_c)^{1/2}} & \text{supraconducteur propre} \\ 0.855 \frac{(\xi_0 l_e)^{1/2}}{(1-T/T_c)^{1/2}} & \text{supraconducteur sale.} \end{cases}$$

Ainsi, ξ_0 est égale à $\left[-\Phi_0 / (1.0952\pi * dH_{c2}(T)/dT) \right]^{1/2}$ dans la limite propre et elle est égale à $-\Phi_0 / (1.71\pi * l_e * dH_{c2}(T)/dT)$ dans la limite sale. Supposant la limite propre (ou sale), on calcule $\xi_{0,\perp c} \approx 91 \text{ \AA}$ ($2.6 \text{ \AA}$) pour l'échantillon n°4 qui montre un $dH_{c2}(T) / dT$ de -7.2 Tesla/K ($H//c$). Dans le cas des échantillons mesurés, la situation $l_e \gg \xi_0$ est observé, il s'agit donc de la supraconductivité en limite propre. L'anisotropie des champs critiques peut être exprimée en introduisant deux longueurs de cohérences différentes $\xi_{0,\perp c}$ et $\xi_{0,\parallel c}$, dont la première est mesurée avec le champ magnétique $H//c$. Dans l'orientation $H \perp c$, le $H_{c2}(T)$ s'écrit $H_{c2}(T) = \Phi_0 / (2\pi \xi_{0,\perp c} \xi_{0,\parallel c}(T))$. Donc la connaissance de $\xi_{0,\perp c}$ permet l'évaluation de $\xi_{0,\parallel c}$. Cette $\xi_{0,\parallel c}$ est égale à $\approx 146 \text{ \AA}$ pour un $dH_{c2}(T) / dT = -4.5 \text{ Tesla/K}$ pour $H \perp c$ (échantillon n°4). Ces valeurs caractéristiques du diagramme de phases ($dH_{c2}(T)/dT$, T^* , $\xi_{0,\perp c}$ et $\xi_{0,\parallel c}$) sont résumées dans le tableau T.III.2.3.

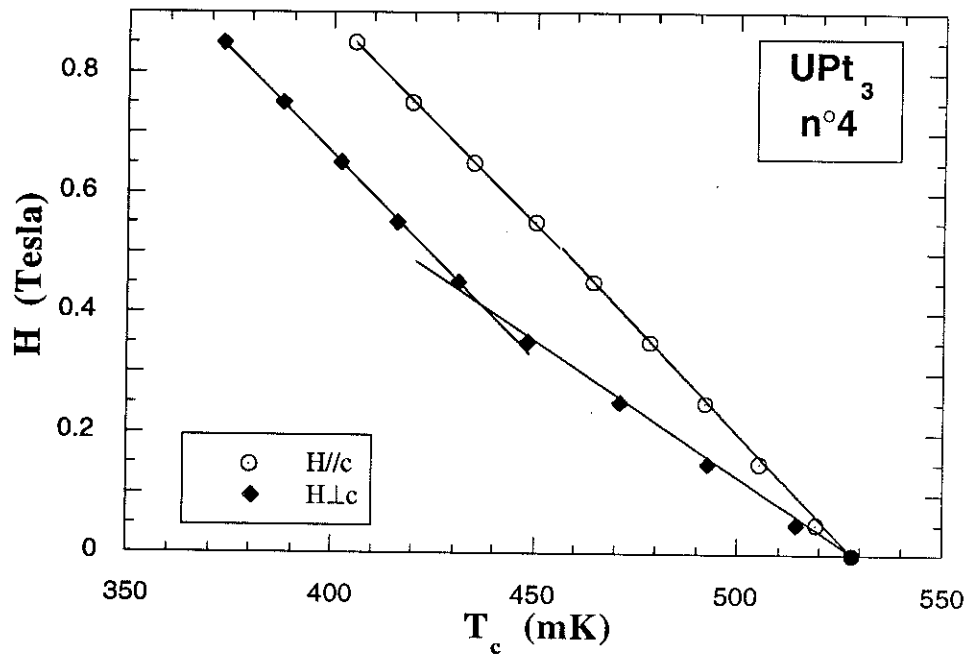


Figure 3.2.7: Diagramme de phase de l'échantillon n°4 mesuré à faible champ magnétique. La discontinuité de pente de $H_{c2}(T)$ pour $H\perp c$ est très prononcée.

n° échantillon	T^* (mK)	$\frac{dH_{c2}}{dT} \Big _{//c}$	$\frac{dH_{c2}}{dT} \Big _{//c}$	$\frac{dH_{c2}}{dT} \Big _{\perp c}$	$\frac{dH_{c2}}{dT} \Big _{\perp c}$	$\xi_{0,\perp c}$ (Å)	$\xi_{0,//c}$ (Å)
		$H < 0.4T$ (Tesla / K)	$H > 0.4T$ (Tesla / K)	$H < 0.4T$ (Tesla / K)	$H > 0.4T$ (Tesla / K)		
1	~430	-7.69	-7.96	-4.88	-7.06	88.5	139.3
2	~405	-7.76	-7.02	-4.46(-4.4)	-6.73(-6.6)	88.1	153.1
3	399.6	-6.14	-6.59	-4.34	-6.68	99	140
4	437	-7.18	-6.68	-4.46	-6.12	91.5	147.4
5	421.2	-7.17	-6.31	-4.27	-6.12	91.6	153.8
6	442	-7.15	-5.36	-4.41	-6.34	91.7	148.8

Tableau T.III.2.3: Caractéristiques de la phase supraconductrice des échantillons étudiés (la température de la discontinuité de pente de $H_{c2}(T)$ (T^*), les pentes dH_{c2}/dT et les longueurs de corrélation $\xi_{0,\perp c}$ et $\xi_{0,//c}$)

III.3. L'anisotropie du deuxième champ critique $H_{c2}(\Theta, \Phi, T)$

III.3.0 Introduction

La première étude de la dépendance angulaire du deuxième champ critique entre les directions parallèle et perpendiculaire à l'axe c et dans le plan hexagonal d' UPt_3 par Shivaram *et.al.* [Shivara86] a montré que $H_{c2}(\Phi)$ était isotrope dans le plan hexagonal car leur résolution expérimentale n'était sans doute pas suffisante. En 1990 Taillefer *et.al.* [Taillef90A, Taillefer90B] ont réalisé des mesures de résistivité dans la transition supraconductrice à T_c en fonction de l'orientation du champ magnétique dans le plan

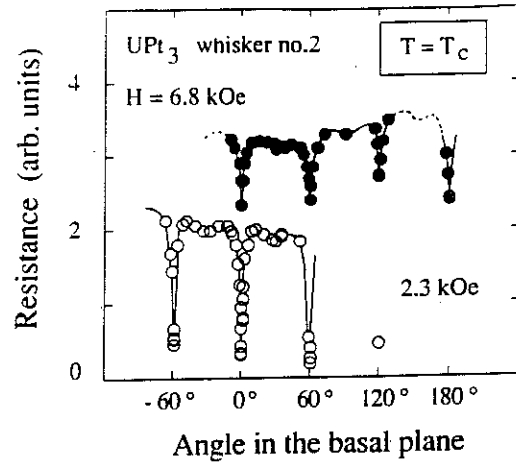


Figure 3.3.1: La variation angulaire de la résistivité montre des pics très prononcés avec une périodicité de 60° [Taillef90B].

hexagonal sur des whiskers. Ils ont trouvé une variation angulaire de la résistivité avec une périodicité de 60° (figure 3.3.1). Les diagrammes de phase $H_{c2}(T)$ pour $\Phi = 0^\circ$ et $\Phi = 30^\circ$ sont très similaires avec un changement de pente de $H_{c2}(T)$ pour chaque orientation. La nature des pics de résistivité observés avec une périodicité de 60° n'était pas déterminée.

Cette faible anisotropie de $H_{c2}(\Phi)$ a été la motivation essentielle de notre étude de la dépendance angulaire de $H_{c2}(\Phi)$ dans le plan hexagonal. Elle devrait nous permettre d'en préciser les origines.

Une première partie de cette étude (III.3.1) présente des mesures de résistivité sur les whiskers ($n^\circ 1$ et $n^\circ 2$) d' UPt_3 , qui s'interprètent essentiellement en termes d'une supraconductivité de surface qui est à l'origine de l'anisotropie observée par Taillefer *et.al.*

La deuxième partie (III.3.2) est consacrée aux propriétés intrinsèques des phases supraconductrices d' UPt_3 qui ont été mesurées sur des barrettes mono-cristallines pour éliminer les effets de surface. Une anisotropie résiduelle intrinsèque de $H_{c2}(\Phi)$ est interprétée selon deux modèles:

- modèle de couplage entre le paramètre d'ordre supraconducteur non conventionnel et l'ordre antiferromagnétique et
- modèle de $H_{c2}(\Phi)$ qui considère un paramètre d'ordre supraconducteur non conventionnel et l'anisotropie hexagonale de la surface de Fermi.

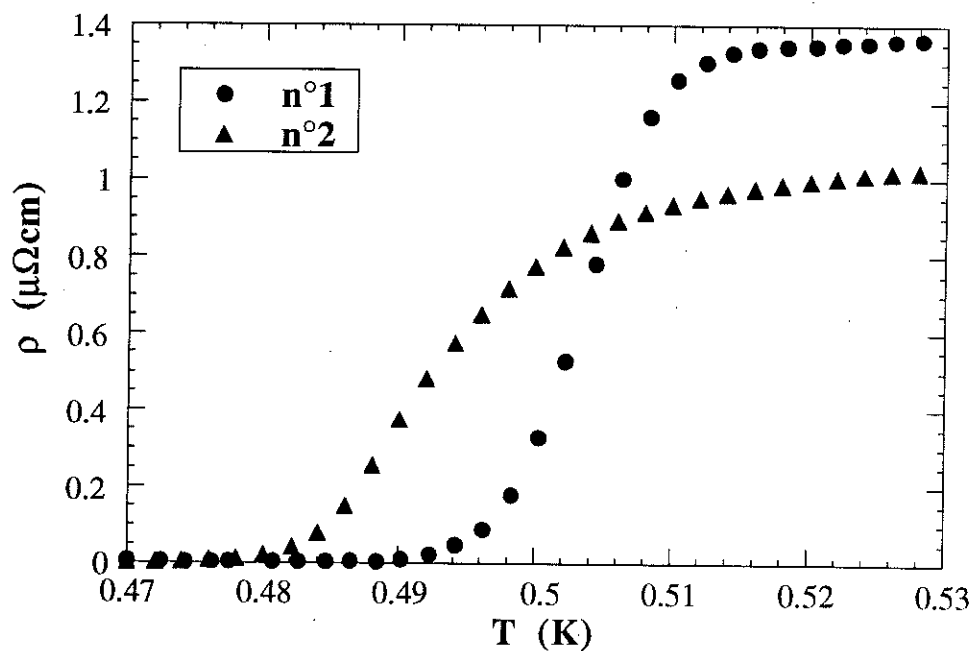


Figure 3.3.2: Transitions supraconductrices des whiskers $n^\circ 1$ et $n^\circ 2$ mesurées par résistivité.

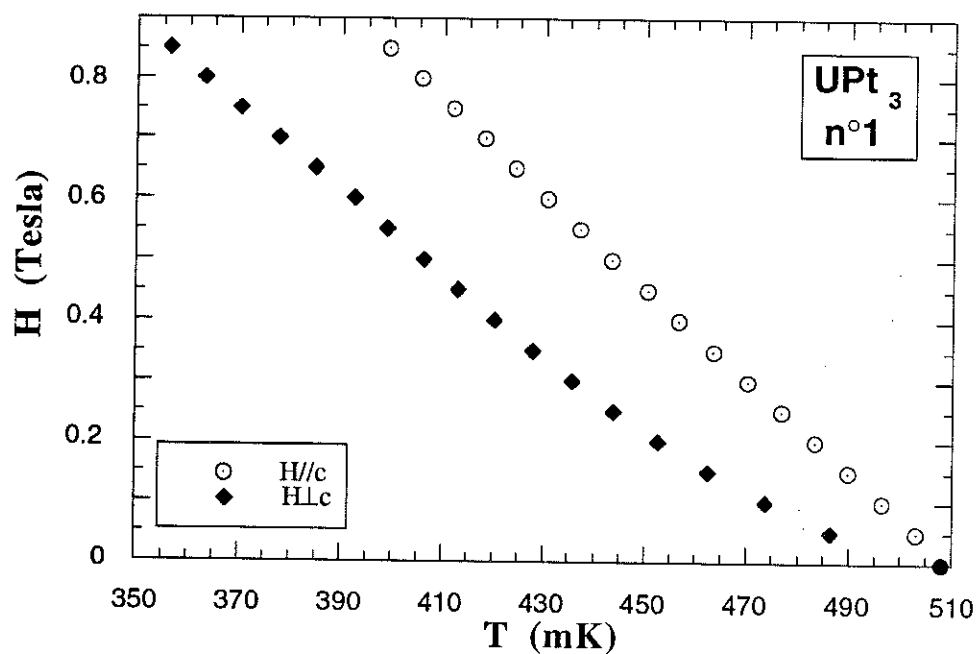


Figure 3.3.3: Diagramme de phase (H/c et $H_\perp c$), déterminé pour l'échantillon $n^\circ 1$. La direction $H_\perp c$ montre un forte courbure de $H_{c2}(T)$ à faible champ magnétique.

III.3.1. La supraconductivité de surface dans des whiskers de UPt₃

L'anisotropie de $H_{c2}(\Phi)$ dans les whiskers n°1 et n°2 est déterminée au moyen des mesures de résistivité dans la transition supraconductrice sous champ magnétique. Le dispositif expérimental: système de réfrigération, bobines de champ magnétique et méthode de mesure (champ critique et résistivité), est décrit en détail dans l'annexe I. Les propriétés de transport des métaux anisotropes dans l'état normal et soumis à un champ magnétique sont précisées dans l'annexe III.

Les deux whiskers étudiés, dont les transitions supraconductrices sont comparées dans la figure 3.3.2, présentent des températures critiques T_c , des largeurs de transition, ΔT_c , et des résistivités résiduelles différentes (cf. tableau T.III.2.2). Le diagramme de phase (montré pour l'échantillon n°1 dans la figure 3.3.3) a été déterminé en prenant pour définition de T_c la température à mi-valeur de la résistivité normale ($\rho_n = 0.65 \mu\Omega\text{cm}$ et $0.5 \mu\Omega\text{cm}$ pour n°1 et n°2) sous champ magnétique. Le changement de pente de $H_{c2}(T)$ pour $H \perp c$ est clairement observé malgré la forte courbure à faible champ magnétique. Les caractéristiques des deux échantillons, les $\partial H_{c2}/\partial T$, les longueurs de corrélations et la température de discontinuité T^* sont énumérées dans le tableau T.III.2.3.

III.3.1.1. Supraconductivité de surface et anisotropie de H_{c2} entre le plan basal et l'axe c

L'anisotropie entre l'orientation du champ suivant l'axe c et le plan hexagonal près de T_c , $H_{c2}/\kappa / H_{c2\perp c} \approx 3$ (figure 3.3.3), est deux fois plus élevée que les valeurs ~ 1.7 obtenues auparavant [Piquemal87, Taillefe90B, Shivara86]. La variation angulaire du deuxième champ critique entre le plan basal et l'axe c (figure 3.3.4) reflète cette forte anisotropie. Proche de l'axe c ($\Theta = 0^\circ$) $H_{c2}(\Theta)$ montre un maximum très pointu. Le modèle des masses effectives anisotropes (eq.III.3.1) des quasi-particules décrit bien cette variation de $H_{c2}(\Theta)$ entre 90° et 50° , mais montre une variation angulaire plus arrondie près de $\Theta = 0^\circ$.

$$\frac{H_{c2}(\Theta)}{H_{c2}(90^\circ)} = (\sin^2\Theta + \varepsilon^2 \cos^2\Theta)^{-1/2} \quad (\text{III.3.1})$$

Le paramètre $\varepsilon^2 = \left(\langle v_{\perp}^2 \rangle_F / \langle v_{\parallel c}^2 \rangle_F \right)^2 = (H_{c2}(90^\circ) / H_{c2}(0^\circ))^2$ mesure l'anisotropie des vitesses de Fermi des quasi-particules (le rapport des masses effectives) pour une surface de Fermi anisotrope.

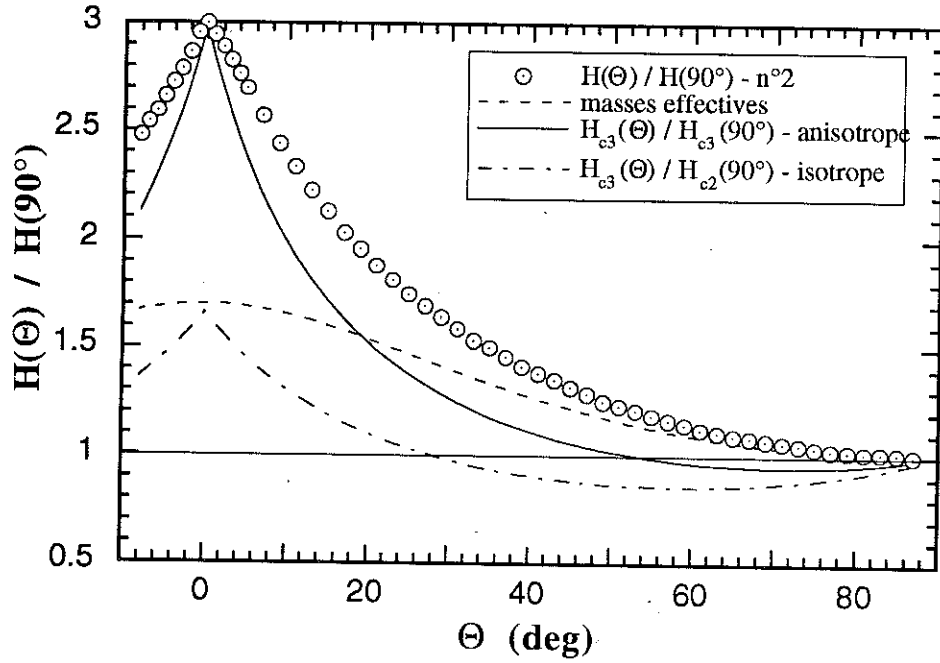


Figure 3.3.4: Variation angulaire du champ critique $H_{c3}(\Theta)$ entre le plan basal et l'axe c à une température $T = 470 \text{ mK}$ ($t = 0.923$). Trois modèles théoriques (voir texte) sont également représentés: un modèle des masses effectives (m^*) anisotropes ($\epsilon^2 = 0.35$, ligne: —), un modèle de supraconductivité de surface (m^* isotropes) (ligne: - - -) et un modèle de supraconductivité de surface (m^* anisotropes, ligne: — —).

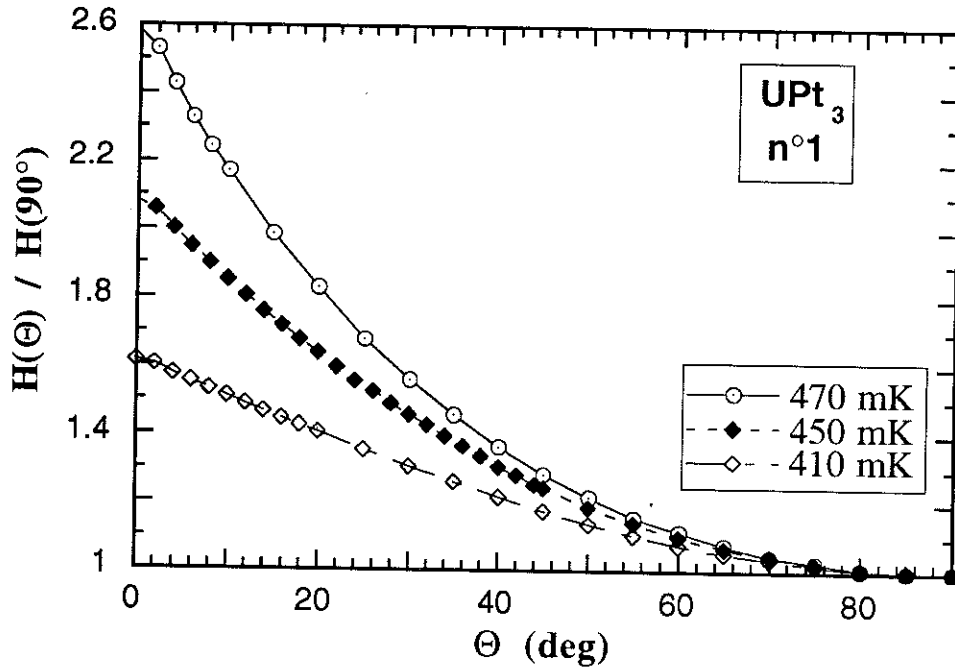


Figure 3.3.5: Variation thermique du rapport $H_{c3}(\Theta) / H_{c3}(90^\circ)$ selon l'échantillon n°1. Le rapport décroît avec la température contrairement aux prédictions théoriques (voir texte)

En supposant une anisotropie de $H_{c2,\parallel c} / H_{c2,\perp c} = 1.7$ qui a été déterminé dans des mesures de chaleur spécifique ou de l'atténuation ultrasonore, l'équation III.3.1 montre une variation angulaire insuffisante pour la description du champ critique mesuré (figure 3.3.4, ligne: ----). La variation angulaire observée, qui est très pointue près de $H_{\parallel c}$, ressemble au champ critique de surface $H_{c3}(\Theta)$ [BonMard64, Burger64, Hempste64, Tomash64, Burger65], dont les notions sont décrites dans le chapitre II.2. Dans le cas d'un supraconducteur isotrope, la variation angulaire du champ critique $H_{c3}(\Theta)$ est décrite par la formule II.2.5 où le rapport $H_{c3}(0)/H_{c2}$ vaut 1.695. La courbe calculée (courbe: —, figure 3.3.4) présente un maximum pointu pour la direction H parallèle à l'axe c , qui ressemble aux mesures, mais avec des valeurs du H_{c3} inférieur au H_{c2} dans la gamme angulaire de 30° à 90° . Le calcul de H_{c3} utilise une fonction de test qui ne peut décrire sa variation dans toute la gamme angulaire. La formule de $H_{c3}(\Theta)$ calculée par Yamafuji *et.al.* [Yamafuj66] est plus proche de la réalité, mais sa dépendance angulaire est beaucoup plus complexe.

La prise en compte d'une anisotropie ellipsoïdale de la surface de Fermi (ϵ^2) dans l'équation de Ginzburg-Landau (II.2.2) mène à une dépendance angulaire modifiée de $H_{c3}(\Theta)$:

$$\frac{H_{c2}(90^\circ)}{H_{c3}(\Theta)} = (\epsilon\sigma \cos\Theta + |\sin \Theta|), \quad (\text{III.3.2})$$

où $\sigma = (1 - 2/\pi)^{1/2}$ pour le cas idéal d'une surface infiniment étendue (voir aussi [Minenko83]). Cette variation angulaire de $H_{c3}(\Theta)$ est représentée dans la figure 3.3.4 (ligne: —). Son rapport $H_{c3}(0^\circ) / H_{c2}(90^\circ)$ est très bien décrit par l'anisotropie $H_{c2}(0^\circ) / H_{c2}(90^\circ) (=1.8)$ à laquelle est superposé l'effet de la supraconductivité de surface. Le $H_{c3}(\Theta)$ calculé (cas idéal: équation III.3.2) dépend fortement de la géométrie de l'échantillon (cp. $H_{c4}(\Theta)$ pour les films minces [vanGeld71]) et montre ainsi une différence par rapport à la courbe expérimentale.

L'anisotropie entre le plan basal et l'axe c change avec la température. Son rapport $H(0^\circ)/H(90^\circ)$ diminue lorsque la température diminue. La figure 3.3.5 montre la variation angulaire du champ critique pour trois températures différentes (470 mK, 450 mK, 410 mK) pour l'échantillon n°1. D'après le modèle de la supraconductivité de surface pour une anisotropie de la surface de Fermi, le rapport des champs critiques $H_{c3}(0^\circ) / H_{c2}(90^\circ)$ est déterminé par le terme $(\epsilon\sigma)^{-1}$. Près de la température critique (T_c) le coefficient σ peut être considéré comme une constante. Ainsi toute la variation en température du rapport d'anisotropie doit être proportionnelle au paramètre ϵ . Les résultats précédents ont montré que les lignes de phase pour $H_{\parallel c}$ et $H_{\perp c}$ se croisent à $T \sim T_c/2$ [Shivara86, Piquema87, Piquema88]. En utilisant la variation en température

du rapport ε , déterminé selon les mesures de Shivaram *et.al.*, le changement de $H(0^\circ) / H(90^\circ)$ dans la figure 3.3.5 ne peut pas être décrit. Contrairement à l'hypothèse d'un coefficient σ constant, celui-ci décroît fortement lorsque la température diminue (voir tableau T.III.3.1).

T (mK)	$H_{c, c} / H_{c,\perp c}$ mesure n°1	$\varepsilon = H_{c2, c} / H_{c2,\perp c}$ [Shivara86]	$\sigma =$ $(H_{c, c} / H_{c,\perp c}) / \varepsilon$
470	2.6	1.63	1.59
450	2.12	1.62	1.31
410	1.65	1.37	1.21

Tableau T.III.3.1: La supraconductivité de surface, caractérisée par le coefficient σ , disparaît successivement avec la diminution de la température.

Cette diminution des effets de surface avec la température ne peut pas être expliquée dans le cadre du modèle de supraconductivité de surface décrit dans le chapitre II.2.

III.3.1.2. Supraconductivité de surface pour $H \perp c$

La résistivité dans l'état normal est isotrope lors d'une rotation du champ magnétique ($H < 1$ Tesla) dans le plan (a, a^*) du système hexagonal (la figure 3.3.6 précise la géométrie). La figure 3.3.7 montre cette isotropie de la résistivité mesurée pour un champ magnétique $H = 0.7$ Tesla à $T = 420$ mK. Par contre, la variation angulaire de la résistivité mesurée dans la transition supraconductrice (cp. annexe I.4) présente des pics très prononcés tous les 60° (figure 3.3.7). Puisque la magnéto-résistance est isotrope dans l'état normal, ces maxima doivent être associés directement aux propriétés de la phase supraconductrice. Des pics similaires ont été observés par Taillefer *et.al.* [Taillef90A, Taillef90B].

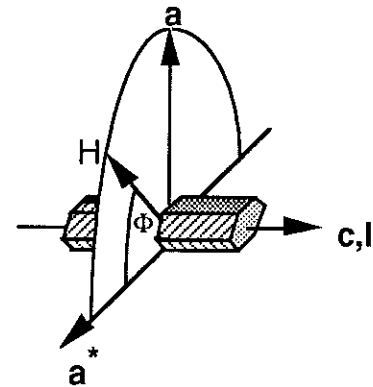


Figure 3.3.6: Géométrie de l'échantillon et plan de rotation du champ.

En ce qui concerne l'orientation du champ magnétique dans le plan (a, c) décrit précédemment (chapitre III.3.1.1), le maximum très aigu est interprété en terme d'une supraconductivité de surface. Une interprétation similaire des pics de la résistivité dans le plan hexagonal s'impose comme nous allons le voir. La géométrie des whiskers n°1 et n°2 est représentée schématiquement dans la figure 3.3.6. La section montre six surfaces, dont les normales parallèles aux axes a possèdent une symétrie d'ordre six.

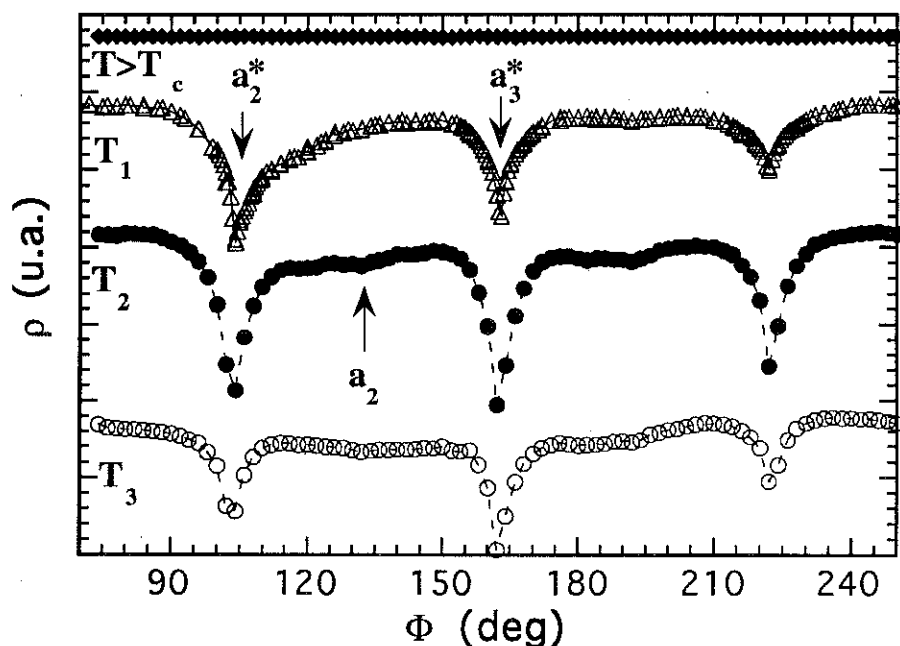


Figure 3.3.7: La variation angulaire de la résistivité $\rho(\Phi)$ présente des pics très prononcés à la transition supraconductrice (Δ : 462.5 mK (T_1), 0.1 Tesla; $\bullet$: 420 mK (T_2), 0.3 Tesla; $\circ$: 355 mK (T_3), 0.7 Tesla) et est constante dans l'état normal ($\diamond$: 420 mK, 0.7 Tesla). Ainsi, ces pics sont liés à la supraconductivité. Différentes directions cristallographiques sont indiquées.

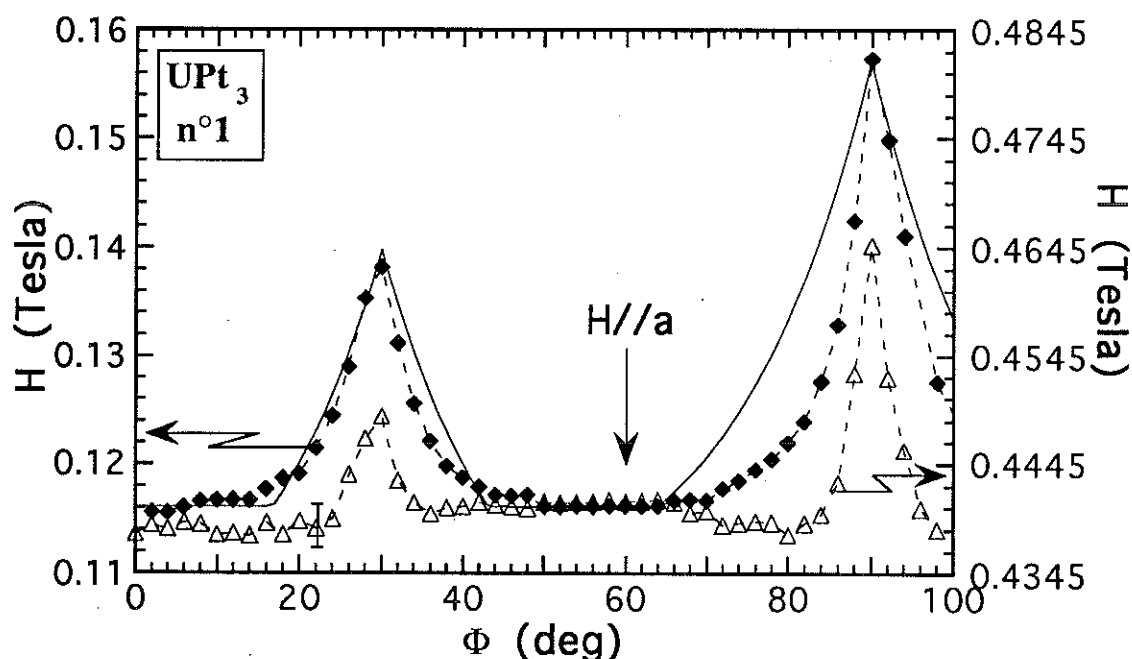


Figure 3.3.8: $H_{c3}(\Phi)$ mesuré pour n°1 à deux températures différentes ($\diamond$: 470 mK et $H \approx 0.12$ Tesla, Δ : 415 mK et $H \approx 0.45$ Tesla). La ligne (—) représente un calculé selon un modèle de supraconductivité de surface (voir texte)

Ainsi, un pic est observé pour chaque orientation du champ magnétique parallèle à deux surfaces donc perpendiculaire à un axe $\mathbf{a}$. Le champ critique dans le plan basal est représenté dans la figure 3.3.8 pour le whisker n°1. Les courbes expérimentales correspondent à deux températures différentes ($\blacklozenge$: 470 mK et $H \approx 0.12$ Tesla, Δ : 415 mK et $H \approx 0.45$ Tesla). La périodicité de 60° observée reflète la symétrie des surfaces. Un cliché de diffraction des rayons-X a montré que les axes $\mathbf{a}$ sont orientés perpendiculairement aux surfaces de l'échantillon et le montage expérimental a imposé l'orientation d'un axe $\mathbf{a}$ suivant l'angle $\Phi = 0^\circ$ du champ magnétique. De cette manière, la mesure du champ critique (figure 3.3.8) montre des maxima très pointus suivant l'orientation du champ magnétique parallèle aux surfaces. Donc une interprétation des résultats en termes de supraconductivité de surface s'impose. Le modèle du $H_{c3}(\Theta)$ cité dans le chapitre II.2 ne considère qu'une surface infiniment étendue. Par contre la géométrie réelle montre six surfaces dont les normales sont tournées de 60° par rapport aux normales voisines. Une simple approche consiste à considérer six surface "idéales" superposées à des angles $\Phi_n = (2n+1) \pi / 6$, d'une manière qu'elles reflètent la symétrie expérimentale. Ainsi, le maximum du $H_{c3}(\Phi)$ se calcule à

$$H_{c3}(\Phi) / H_{c2} = \max_n \left| \left(|\sin(\Phi - \Phi_n)| + \varepsilon_n^* |\cos(\Phi - \Phi_n)| \right)^{-1} \right|_n \quad (\text{III.3.3})$$

où le paramètre $\varepsilon_n^* = H_{c2} / H_{c3}(0^\circ) \big|_n$ varie selon la surface ($n = 1, 2, 3$) considérée. Le trait continu dans la figure 3.3.8 présente $H_{c3}(\Phi) / H_{c2}$ calculé avec des paramètres $\varepsilon_1^* = 0.831$ and $\varepsilon_2^* = \varepsilon_3^* = 0.739$. Le rapport des paramètres $\varepsilon_1^* / \varepsilon_2^* \approx 1.12$ qui correspond au rapport des amplitudes des pics de H_{c3} , reflète approximativement le rapport des surface concernées qui est de l'ordre de 1.2. La géométrie de l'échantillon est prédominante en ce qui concerne le paramètre ε_n^* et la variation angulaire. Ceci a été démontrée par van Gelder *et.al.* [vanGeld71] pour des films minces supraconducteurs qui possèdent des bords très pointus (H_{c4}). Donc, la formule III.3.3 présente uniquement une première approximation de la situation réelle.

La dépendance en température de $H_{c3}(\Phi)$ est aussi indiquée dans la figure 3.3.8. Il est clairement visible que le rapport $H_{c3}(\Phi_0) / H_{c2}$ diminue avec la température. Ce comportement est contraire aux prédictions théorique [Abrikos65, Kulik69] selon lesquelles $H_{c3}(\Phi_0) / H_{c2}$ devrait augmenter de 20% entre T_c et $T = 0$ K. Nous avons étudié ce changement du rapport $H_{c3}(\Phi_0) / H_{c2}$ en fonction de la température par mesure de la température critique selon l'amplitude et l'orientation du champ magnétique. Les courbes de transition résistive suivant les axes $\mathbf{a}_2$, $\mathbf{a}_2^*$ et $\mathbf{a}_3^*$ (cf. figure 3.3.7) sous champ magnétique ont été mesurées (figure 3.3.9). L'écart en température critique ΔT_c suivant

les directions $\mathbf{a}_2^* - \mathbf{a}_2$ et $\mathbf{a}_3^* - \mathbf{a}_2$ reflète directement la variation du rapport $H_{c3}(\Phi_0) / H_{c2}$ selon le champ magnétique (et la température) appliqué. Cet écart $\Delta T_c(H)$, tracé dans la figure 3.3.10, passe par un maximum à $H \approx 0.2$ Tesla, décroît avec l'augmentation de l'intensité du champ magnétique et s'extrapole vers zéro pour un champ de ~ 1.1 Tesla ($\mathbf{a}_3^* - \mathbf{a}_2$). Une explication possible consiste à considérer un changement de mécanisme pour la brisure des paires de Cooper. La limitation orbitale du champ critique pourra être remplacée par une limitation due au paramagnétisme de Pauli. Ceci est envisageable pour le cas d'un paramètre d'ordre impair, dont les quasi-particules possèdent une susceptibilité de spin non nulle. Pour l'instant aucune explication définitive ne peut être retenue concernant la disparition du $H_{c3}(T)$ à très basses températures.

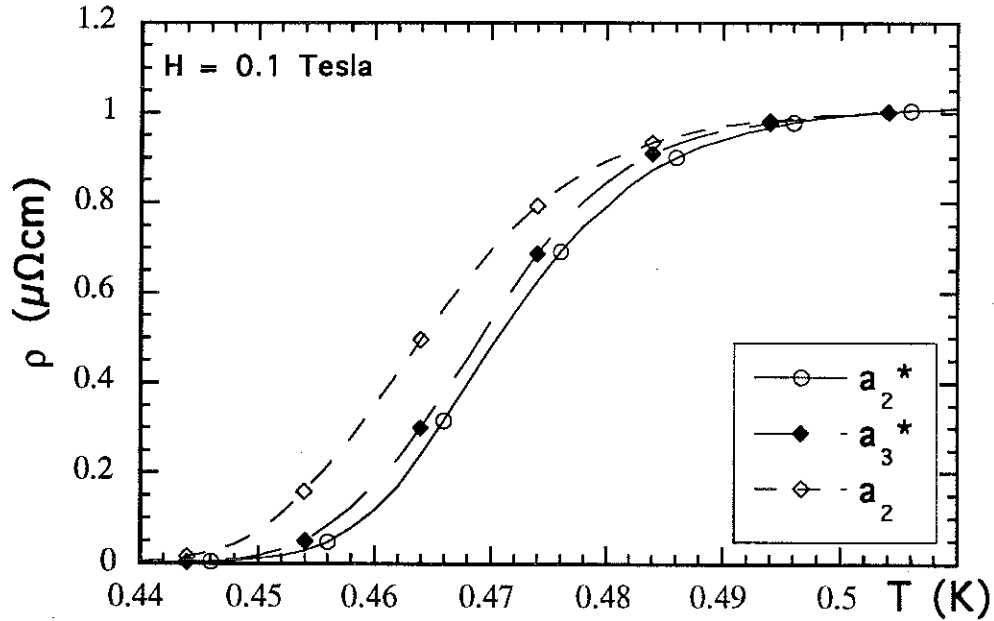


Figure 3.3.9: Les transitions résistives montrent un écart en T_c selon l'orientation du champ magnétique par rapport aux axes cristallographiques $H//(\mathbf{a}_2, \mathbf{a}_2^* \text{ ou } \mathbf{a}_3^*)$. Les orientations $\mathbf{a}_2, \mathbf{a}_2^*$ et $\mathbf{a}_3^*$ sont indiquées dans la figure 3.3.7.

Nous avons montré que la variation angulaire des champs critiques mesurés dans les whiskers ($n^\circ 1$ et $n^\circ 2$) est fortement influencée par les effets de surface. Notamment, le champ critique $H_{c3}(\Theta)$ entre le plan basal et l'axe c est bien expliqué par une supraconductivité de surface dans le cadre d'une surface de Fermi anisotrope (masses effectives de quasi-particules $m_{//c} \neq m_{\perp c}$). Aussi, la variation angulaire $H_{c3}(\Phi)$ dans le plan hexagonal, qui présente des pics très pointus tous les 60° , s'exprime bien aux

termes d'un modèle de supraconductivité de surface. Toutefois la disparition des effets de surface sous champ magnétique, qui est contraire aux prédictions théoriques, reste ouverte à une discussion.

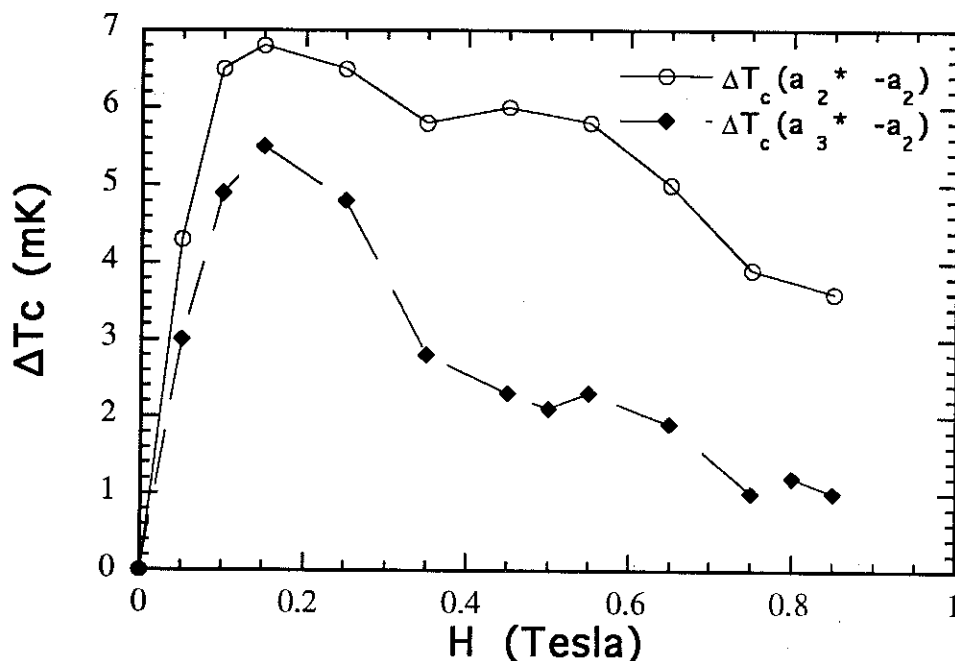


Figure 3.3.10: L'écart en température, qui correspond au H_{c3} pour $H \perp a$, passe par un maximum à $H \approx 0.25$ Tesla et décroît avec le champ magnétique contrairement aux théories.

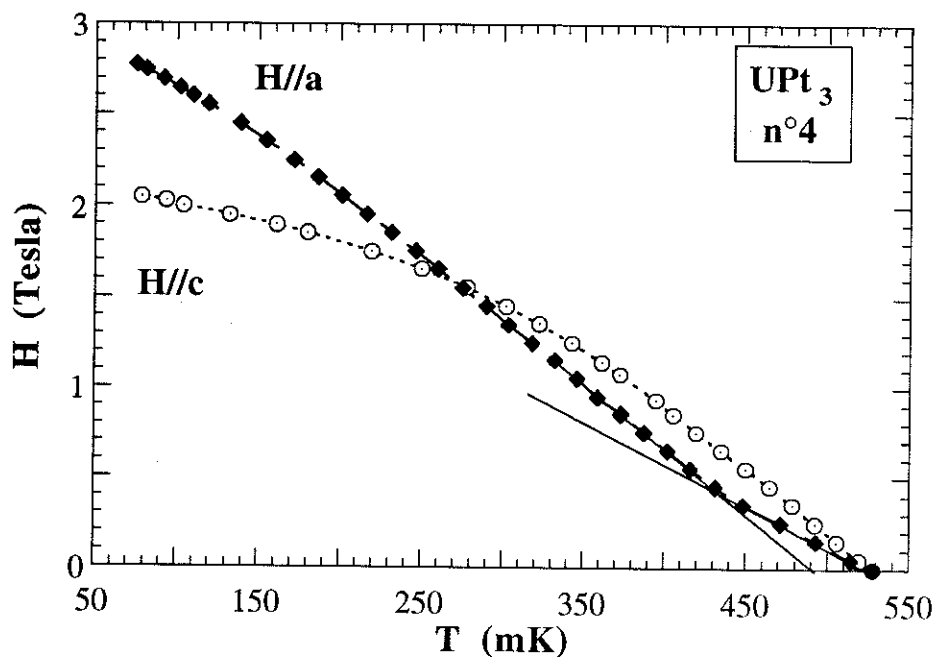


Figure 3.3.11: Diagramme de phase qui montre le changement d'anisotropie entre les directions $H//a$ et $H//c$ en fonction de la température. Un changement de pente pour $H//c$ peut être estimé à $T \approx T_c - 120$ mK ($H \approx 0.8$ Tesla).

III.3.2. La supraconductivité intrinsèque d'UPt₃

Les propriétés des phases supraconductrices des whiskers d'UPt₃, comme nous venons de le voir, sont dominées par les effets de surface qui se manifestent dans les mesures de résistivité. En particulier, la variation angulaire du champ critique dans le plan hexagonal est déterminée par la symétrie d'ordre six de l'arrangement des surfaces. Afin de distinguer entre ces effets de surfaces et la possibilité d'effets intrinsèques d'une supraconductivité non conventionnelle, nous avons choisi d'étudier des monocristaux d'UPt₃ taillés sous forme de barrettes qui montrent une section rectangulaire. L'anisotropie des champs critiques H_{c2} a été étudiée pour un champ magnétique orienté dans le plan hexagonal ou dans un plan (a, c), comme pour les whiskers. Le diagramme de phase, ainsi établi pour les échantillons n°3, n°4 et n°5 au moyen des mesures de la transition résistive suivant l'orientation du champ, a été confirmé grâce aux mesures de susceptibilité sur l'échantillon n°6, qui lui aussi a la forme d'une barrette.

III.3.2.1. Le diagramme de phase

Les trois échantillons n°4, n°5 et n°6 ont des T_c très voisines avec des largeurs ΔT_c inférieures ou égales à 10 mK. Ces valeurs, ainsi que les pentes initiales des $H_{c2}(T)$, les longueurs de corrélation et les rapports de résistivité sont énumérés dans les tableaux T.III.2.2 et T.III.2.3. Le diagramme de phase de l'échantillon n°4 est présenté dans figure 3.2.7 pour la région à faible champ magnétique. La variation en température des lignes de phase est similaire pour les échantillons n°3, n°5 et n°6. Les lignes de phase (indiquées par les traits continus) s'extrapolent linéairement vers une T_c à champ nul commune. Pour l'orientation du champ magnétique $H \perp c$, la discontinuité de pente est très marquée et se caractérise au moyen d'une température $T^* \approx T_c - 90$ mK et d'un champ magnétique de $H^* \approx 0.38$ Tesla. Suivant l'orientation $H // c$ la discontinuité de pente est plus faible. Elle peut être observée à champ magnétique plus élevé ($H \approx 0.8$ Tesla) et à une température $T \approx T^* - 30$ mK comme le montre la figure 3.3.11.

L'anisotropie de $H_{c2}(T)$ entre les axes cristallographiques **a** et **c** est représentée dans la figure 3.3.11. A une température de $T_{cr} \approx T_c / 2$ le croisement des lignes de phase pour $H // c$ et $H // a$ est observé [Piquemal88]. Pour $T = 0$ K les champs critiques s'extrapolent à $H_{c2, // c}(0) = 2.05$ Tesla et $H_{c2, \perp c}(0) = 2.9$ Tesla. Le comportement du H_{c2} en fonction de la température peut être comparé aux calculs théoriques en utilisant des unités réduites. Les figures 3.3.12 et 3.3.13 montrent les courbes $H_{c2}(T)$ pour $H // c$ et pour $H // a$ en unités de champ $h = H_{c2}(t) / (-\partial H_{c2}/\partial t)_{t=1}$ et température $t = T / T_c$ réduite.

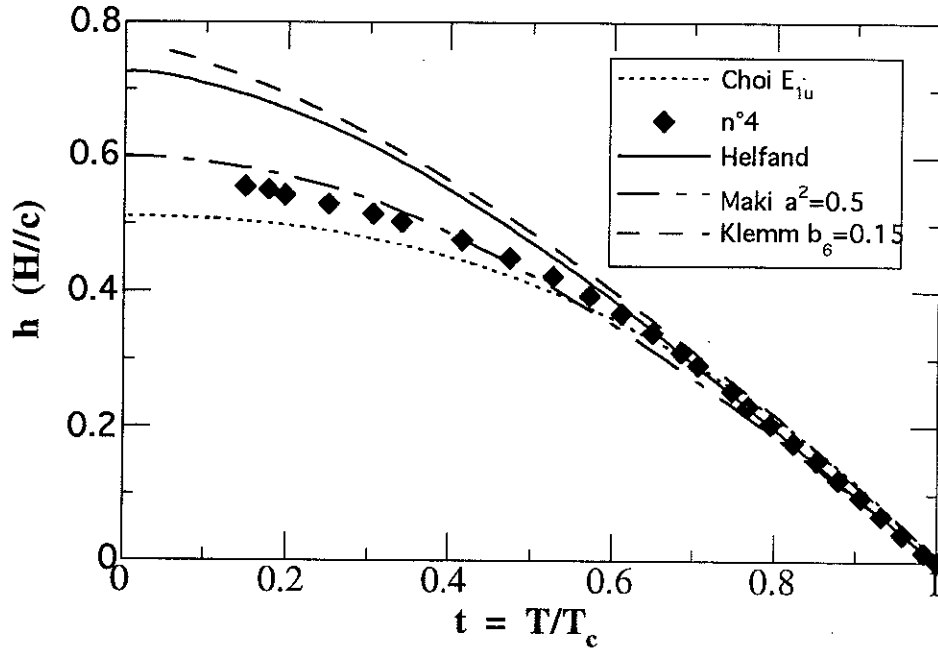


Figure 3.3.12: $H_{c2}(T)$ pour H/c exprimé en unités réduites de température $t = T/T_c$ et champ magnétique $h = H_{c2} / (\partial H_{c2} / \partial t |_{t=1})$. Sa dépendance thermique est comparée aux modèles de Helfand et Wertheimer [Helfand66] (supraconductivité isotrope), de Younger et Klemm [Younger80] (anisotropie hexagonale de la surface de Fermi), de Maki [Maki64] (limitation paramagnétique de Pauli de h) et de Choi et Sauls [Choi91] (limitation de Pauli et paramètre d'ordre non conventionnel).

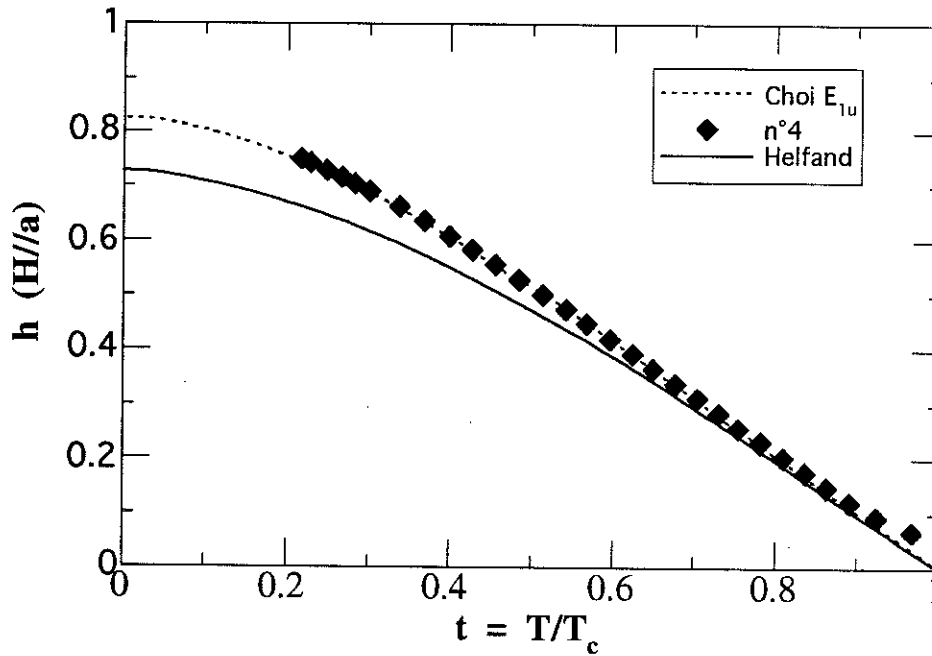


Figure 3.3.13: $H_{c2}(T)$ pour H/a aussi exprimé en unités réduites de t et h . La courbe est comparée aux modèles de Helfand et Wertheimer [Helfand66] (supraconductivité isotrope) et de Choi et Sauls [Choi91] (limitation de Pauli et paramètre d'ordre non conventionnel).

Cette dépendance en température de $h(t)$ a été calculée par Helfand et Wertheimer [Helfand66] pour un supraconducteur isotrope en limite propre ($\lambda \ll 1$ ($\lambda = 0.882\xi_0 / l_e$)) et ils donnent une valeur de champ critique $h_{HW} = 0.727$ à la température $t = 0$. Pour l'échantillon n°4 considéré, $\lambda \approx 0.03$ ($\xi_0 \approx 90 \text{ \AA}$ et $l_e \approx 2500 \text{ \AA}$, cf. tableau T.III.2.3), ce qui établit la limite propre pour la supraconductivité. Le trait continu dans les figures 3.3.12 et 3.3.13 présente $h(t)$ calculé pour un supraconducteur isotrope ($\lambda = 0$). Le h parallèle à l'axe c présente une forte diminution au-dessous du comportement d'un supraconducteur isotrope pour des températures réduites $t < 0.6$. En 1980, Younger *et.al.* [Younger80] ont considéré une surface de Fermi hexagonale pour décrire la dépendance en température de h dans les composés anisotropes $2H\text{-NbSe}_2$ [Toyota76] qui possèdent une structure cristalline hexagonale. La symétrie hexagonale de la surface de Fermi est paramétrisée par la vitesse de Fermi perpendiculaire à l'axe c :

$$|v_{\perp}| = v_F [1 + b_6 \cos(6\Phi)] \sin\Theta$$

où le paramètre b_6 caractérise l'anisotropie hexagonale. L'anisotropie de la surface de Fermi renforce $h(\parallel c)$ par rapport au cas isotrope (fig. 3.3.12, ligne: ---). Rieck *et.al.* [Rieck91] ont obtenu des résultats similaires, aussi pour une orientation du champ magnétique dans le plan hexagonal. Par contre la diminution de $h^*(t)$ suivant l'axe c par rapport au cas isotrope ne peut pas être expliquée par une anisotropie de la surface de Fermi en limite propre.

Toutefois, les approches théoriques mentionnées considèrent une limitation orbitale du champ critique, selon laquelle le champ magnétique appliqué interagit uniquement avec l'impulsion ($\mathbf{p}$) des paires de Cooper: $f = e(\mathbf{pA})/m$. Quand f devient comparable à l'énergie de condensation F_S des quasi-particules, les paires de Cooper sont brisées et le champ critique H_{C2} est atteint. Mais le comportement paramagnétique des électrons donne aussi un terme d'énergie $f_{para} = \frac{1}{2} \chi_p H^2$ qui abaisse l'énergie libre $F_N - \frac{1}{2} \chi_p H^2 = F_S$ [Clogsto62] et aboutit à une limitation du champ critique (voir annexe 3 de [Piquemal88]). La limitation de $H_{C2}(T)$ due au paramagnétisme de Pauli des spins a été calculée par Maki [Maki64, Maki66] pour un supraconducteur isotrope en fonction du paramètre $a = \sqrt{2} H_{C2}(0) / H_{cp}(0)$. $H_{cp}(0)$ correspond au champ magnétique pour lequel les paires de Cooper sont brisées. A température nulle, la limitation du champ critique s'exprime comme $h_{para} = h(1+a^2)^{-1/2}$. A partir de la valeur expérimentale $h_{para} \approx 0.57$, on calcule le rapport $H_{C2}(0) / H_{cp}(0) = 0.55$ ($a = 0.79$). La courbe théorique, qui est représentée dans la figure 3.3.12, est capable d'expliquer la diminution de h par rapport à h_{HW} . Selon ce modèle, la limitation paramagnétique doit

être isotrope suivant toutes les directions du champ magnétique, ce qui est contradictoire aux mesures où h^* (H/a) est supérieur à h_{HW}^* .

Récemment, Choi et Sauls [Choi91, Choi93] ont proposé un modèle de $H_{c2}(T)$ qui inclut la limitation de Pauli du champ critique ainsi que des paramètres non conventionnels et une surface de Fermi anisotrope. Pour une parité impaire du paramètre d'ordre, une limitation uni-directionnelle du champ critique suivant l'axe c peut être obtenue. La dépendance en température de $H_{c2}(T)$ suivant le paramètre d'ordre impair E_{1u} est reproduite pour les deux orientations en unités réduites dans les figures 3.3.12 et 3.3.13 (ligne:). L'utilisation d'un moment effectif ($\mu \approx 0.34 \mu_B$) des paires de Cooper résulte dans une courbe qui décrit aussi qualitativement le comportement $h(t)$ de l'échantillon n°4.

Nous avons montré que le diagramme de phase présente un renforcement de h pour H/a par rapport au cas isotrope. Ce renforcement peut être expliqué par considération d'une surface de Fermi hexagonale. La diminution de h pour H/c au-dessous de h_{HW} demande la prise en compte d'autres effets comme la limitation paramagnétique de h . Le comportement thermique du diagramme de phase est bien décrit par modèle de Choi *et.al.* qui considère un paramètre d'ordre non-conventionnel de parité impaire et la limitation paramagnétique de h .

III.3.2.2. Anisotropie des champs critique entre le plan basal et l'axe *c*

Le diagramme de phase (figure 3.2.7) montre une anisotropie des pentes de $H_{c2}(T)$ de 1.6 ou 1.65 pour les échantillons n°4 et n°5. Cette anisotropie de la pente initiale $(\partial H_{c2} / \partial T)_{T \rightarrow T_c}$ entre l'axe *c* et le plan basal est consistante avec d'autres résultats (voir chapitre III.3.1.1). A une température réduite $t (= T/T_c) \approx 0.923$ proche de $t = 1$, le deuxième champ critique des échantillons n°3, n°4 et n°5 montre une variation angulaire qui peut être décrite par un modèle de surface de Fermi ellipsoïdale avec des masses effectives $m_{//}$ et $m_{\perp}$ différentes suivant les directions principales (équation III.3.1). Dans la figure 3.3.14 le champ critique $H_{c3}(\Theta)$ des whiskers n°1 et n°2 est comparé au $H_{c2}(\Theta)$ des échantillons n°3, n°4 et n°5. L'effet des surfaces dans la variation angulaire du champ critique des whiskers est très marqué.

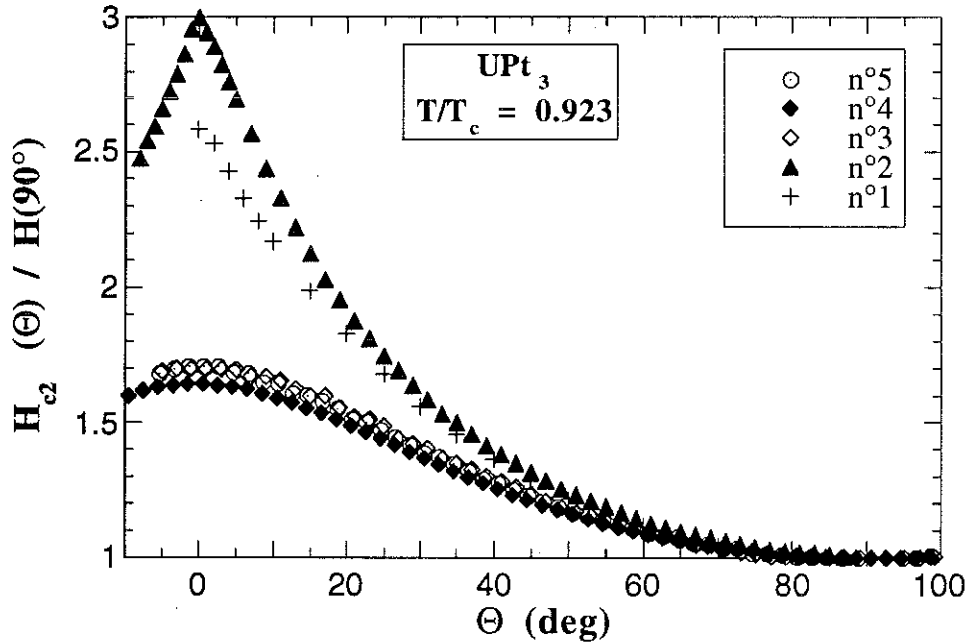


Figure 3.3.14: $H_{c2}(\Theta)$ des whiskers (n°1, n°2), mesuré entre le plan basal et l'axe *c* pour une température $t = 0.923$, est comparé aux échantillons n°3, n°4 et n°5. Les effets de surface sont bien visibles au cas des whiskers.

Le croisement des lignes de phase à la température T_{cr} (figure 3.3.11) ne peut pas être expliqué par un simple modèle de masses anisotropes car un renversement de l'anisotropie en fonction de la température (figure 3.3.15) correspondrait dans le cadre de ce modèle à un changement de la surface de Fermi sous champ magnétique, ce qui n'est pas réaliste.

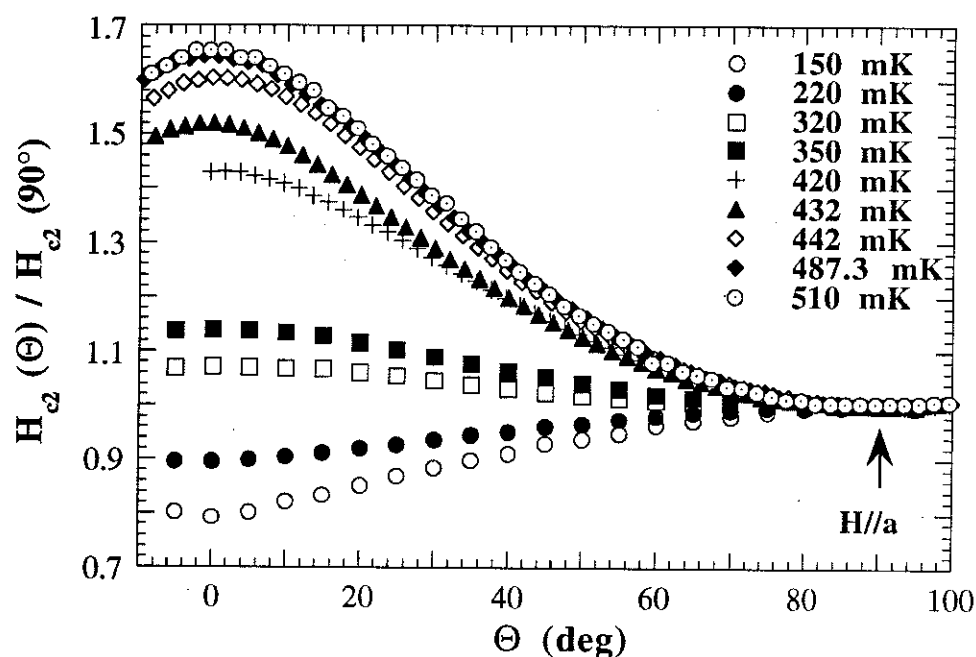


Figure 3.3.15: Evolution thermique de $H_{c2}(\Theta) / H_{c2}(90^\circ)$ mesuré pour l'échantillon n°4. L'anisotropie entre $H//c$ et $H//a$ est renversée à $T_{cr} \approx T_c/2$. Pour des températures inférieure à ≈ 400 mK la variation angulaire ne peut plus être exprimée par une loi de type "masse effective" (éq. III.1.2).

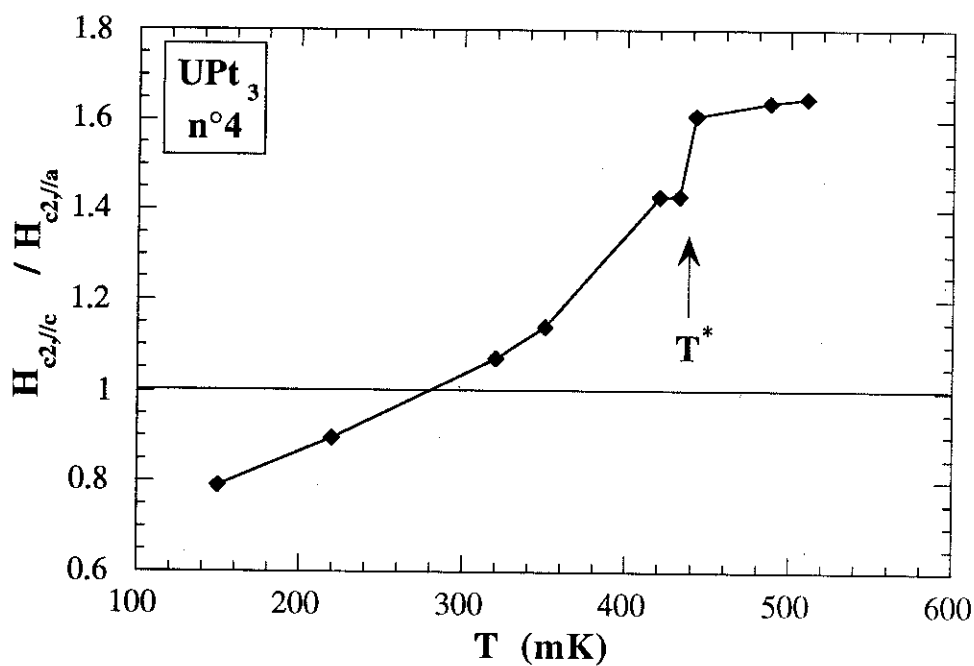


Figure 3.3.16: Le rapport $H_{c2//c} / H_{c2//a}$ montre un premier changement brusque à la température T^* et au-dessous de $T \approx 400$ mK il décroît rapidement vers des valeurs inférieure à 1.

De plus, le rapport $H_{c2,\parallel c} / H_{c2,\perp c}$ montre ce changement de régime au voisinage d'une température de ~ 400 mK (figure 3.3.16). Pour des températures supérieures à 400 mK, il est possible d'expliquer la variation angulaire du champ critique avec des modèles discutés dans le chapitre III.1. L'équation III.1.2 exprime bien le changement de régime à T^* avec un changement d'un seul paramètre K ($K = 1.72$ et 1.05 pour $T > T^*$ et $T < T^*$ respectivement). Ces modèles proposés ne sont plus valables au-dessous de ~ 400 mK car ils ne prévoient pas la forte suppression de $H_{c2,\parallel c}(T)$ sous champ magnétique.

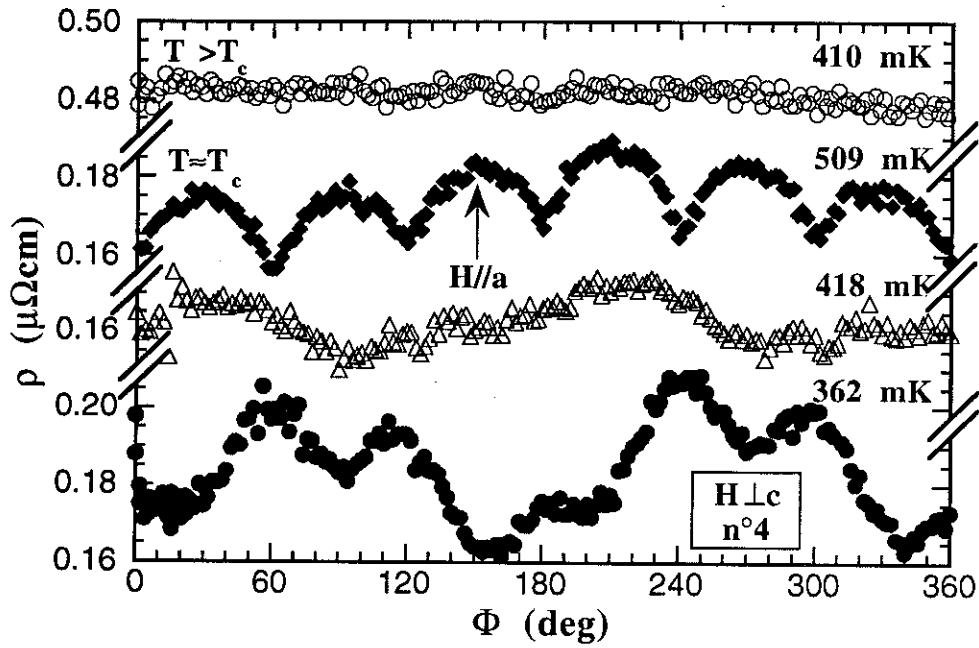


Figure 3.3.17: $\rho(\Phi)$ mesurée pour l'échantillon n°4. Les courbes expérimentales correspondent aux mesures dans l'état normal (o : 410 mK, 0.75 Tesla), près de T_c à champ faible (♦ : 509 mK, 0.07 Tesla), près de T^* (Δ : 418 mK, 0.53 Tesla) et à champ plus élevé (● : 632 mK, 0.73 Tesla). Une modulation d'une périodicité de 60° est visible dans l'état supraconducteur pour des températures inférieures et supérieures à T^* , mais avec un renversement de signe.

III.3.2.3. Anisotropie du champ critique dans le plan hexagonal

La variation angulaire de $H_{c2}(T)$ dans le plan hexagonal devrait permettre de faire un choix parmi les différents modèles proposés pour la supraconductivité d'UPt₃.

L'étude de la résistivité en fonction de l'orientation du champ magnétique dans le plan hexagonal du système cristallin et en fonction de la température a porté uniquement sur les échantillons n°4 et n°5 qui montrent une largeur de transition faible ($\Delta T_c = 6$ mK pour n°4 et 10 mK pour n°5). Selon une rotation du champ magnétique dans le plan basal, la résistivité dans l'état normal des deux échantillons (n°4 et n°5) est comparable et constante, ce qui est semblable aux mesures sur les whiskers (n°1 et n°2).

Par contre, $\rho(\Phi)$ mesurée à la mi-valeur de la transition résistive à $T = T_c$ montre une modulation $\delta\rho$, qui possède une périodicité de 60° . Cette dépendance angulaire de $\rho(\Phi)$ est représentée dans la figure 3.3.17 pour l'échantillon n°4. Les courbes expérimentales correspondent aux mesures dans l'état normal (o : 410 mK, 0.75 Tesla), près de T_c à champ faible (♦ : 509 mK, 0.07 Tesla), près de T^* (Δ : 418 mK, 0.53 Tesla) et à champ plus élevé (• : 632 mK, 0.73 Tesla). On observe que cette modulation avec périodicité de 60° est prononcée à faible champ magnétique. Elle disparaît autour de T^* et réapparaît à plus basses températures ($T < T^*$), mais avec un renversement de signe. Néanmoins, il est important de noter que l'amplitude de la modulation observée est très faible ($\Delta\rho/\rho_n \sim 0.8\%$) et dépend directement de la largeur de transition. Les mesures d'échantillon n°5 montrent une amplitude de la modulation qui est de l'ordre ($\Delta\rho/\rho_n \sim 0.2\%$) près de T_c .

Cette anisotropie de la résistivité $\rho(\Phi)$ dans le plan basal présente une propriété des phases supraconductrices car la magnéto-résistance angulaire dans l'état normal est constante pour des intensités du champ comparables. Nos mesures sur des échantillons ayant une section rectangulaire montrent pour la première fois qu'une anisotropie de la résistivité (et du champ critique) existe dans le plan hexagonal.

Toutefois, il est possible d'imaginer que cette symétrie de l'ordre six de $\delta\rho$ puisse encore être liée à une microstructure comme des facettes hexagonales superposées à la section rectangulaire sur la surface des échantillons (comme le H_{c3} observé pour les whiskers). Dans ce cas, il est possible d'estimer la taille caractéristique qu'aurait cette structure grâce aux mesures des whiskers. Le $H_{c3}(\Phi)$ observé lors de ces mesures montre une différence d'amplitude où le rapport des pics reflète approximativement le rapport des aires de surface. Ainsi, on peut estimer que les surfaces responsables de la modulation $\delta\rho$ avec périodicité de 60° devraient avoir une taille caractéristique de 10 à 30 fois plus petites que les surfaces des whiskers.

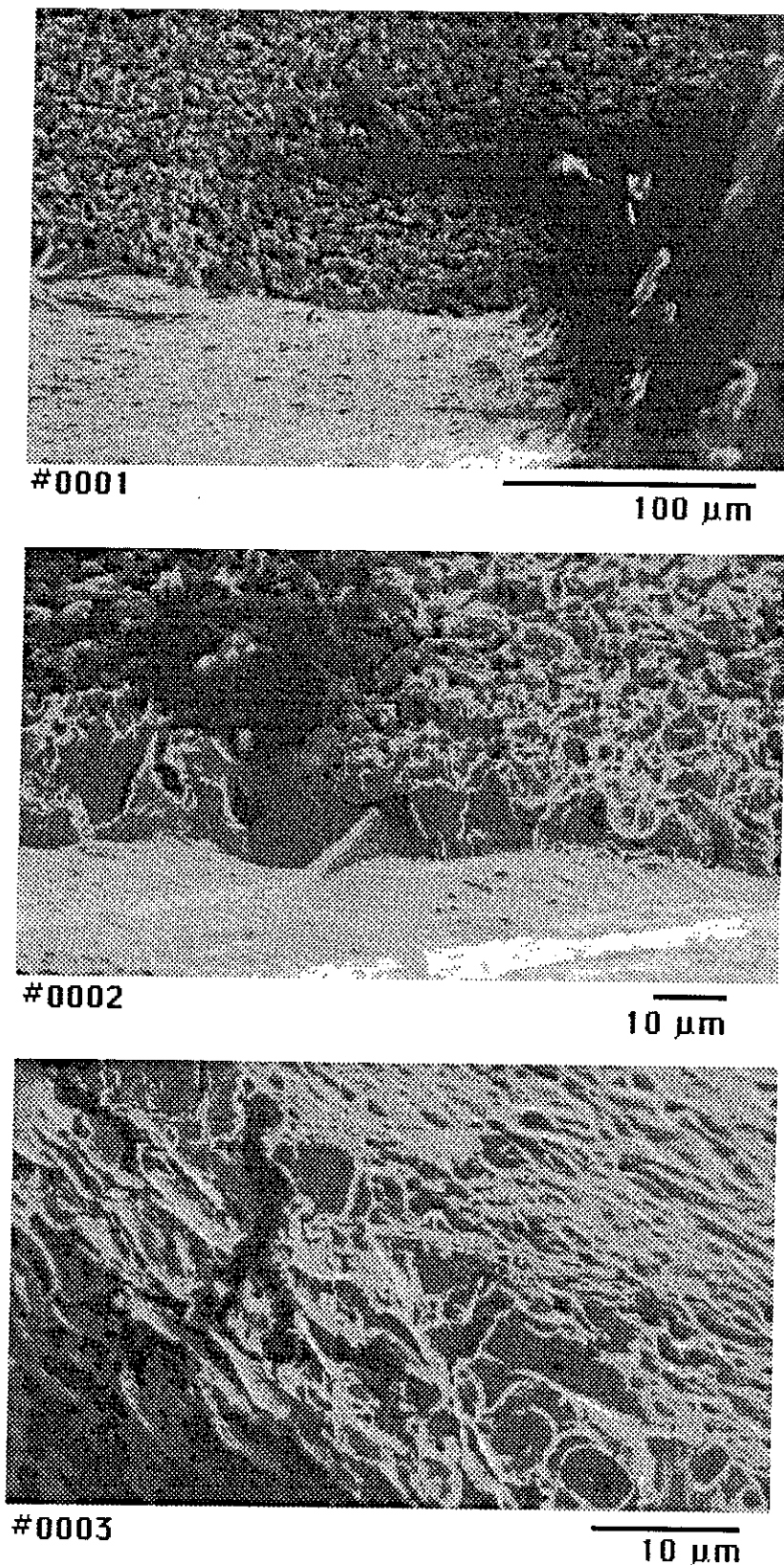


Figure 3.3.18: Structure de la surface d'un échantillon coupé par électro-érosion. Ces images ont été prises avec un microscope à balayage par Mme P.Amiot (CRTBT). La photo #0001 montre une surface perpendiculaire à l'axe *c*. L'agrandissement du bord (au premier plan de #0001) ne montre aucune structure hexagonale (#0002). La structure se présente plutôt amorphe. De même l'image #0003, prise sur l'autre côté de l'échantillon ne montre pas une structure préférentielle dans le plan hexagonal.

Autrement dit, une structure hexagonale de la surface devrait se voir à une échelle de 3 μm à 10 μm . L'étude de la structure de surface à l'aide d'un microscope électronique à balayage ne montre aucune structure préférentielle à une échelle supérieure à 1 μm . Une série d'images est montrée dans la figure 3.3.18. La première photo (#0001) montre une surface principale qui est orientée parallèlement au plan hexagonal. Le bord qui peut être observé au premier plan permet une étude de la structure de cette surface. La photo #0002 montre un agrandissement du bord, le long du plan hexagonal. Aucune structure préférentielle hexagonale n'est observable. La photo #0003 est prise sur le bord opposé de la grande surface montrée dans #0001. Dans les deux cas, la surface présente plutôt un caractère amorphe. Ainsi, une contribution des effets de surface à la modulation d'ordre six de $\rho(\Phi)$ peut être exclue.

Afin de mieux caractériser l'évolution en fonction de la température de cette modulation de la résistivité, le spectre des harmoniques pour toutes les courbes $\rho(\Phi)$ a été calculé grâce à une transformation de Fourier:

$$R(n) = \sum_{k=0}^{N-1} R(\Phi_k) \exp(-i2\pi n\Phi_k/N).$$

L'ensemble des N points de mesure dans la gamme angulaire de 0° à 360° de chaque courbe est utilisé pour le calcul du spectre des harmoniques. La figure 3.3.19 montre les amplitudes des harmoniques $R(n)$ selon la mesure de $\rho(\Phi)$ à $T = 362 \text{ mK}$ de l'échantillon n°4. Plusieurs harmoniques sont observées ($R(2)$, $R(4)$ et $R(6)$). La modulation d'ordre deux ($R(2)$) est très prononcée. Elle est due à l'effet d'un alignement imparfait des contacts électriques (voir annexe III) et à l'effet de la rotation du champ magnétique dans un plan légèrement incliné par rapport au plan basal. Sa variation d'amplitude selon les différentes mesures n'est pas couplée au changement de la température. La modulation d'ordre quatre ($R(4)$) peut être attribuée aux effets de surface de ces échantillons ayant une section rectangulaire. Son amplitude augmente proportionnellement avec la diminution de la température. Finalement, la troisième composante importante est la modulation d'ordre six ($R(6)$). La variation thermique de la valeur absolue d'amplitude $R(6)$ est représentée dans la figure 3.3.20 pour les deux échantillons (Δ : n°4, $\blacklozenge$: n°5) et comparée au diagramme de phase de l'échantillon n°4 ($\bullet$). Ainsi, on s'aperçoit que $R(6)$ décroît avec une diminution de la température vers T^* où elle disparaît. Pour des températures inférieures à T^* , la modulation $R(6)$ réapparaît avec le signe renversé.

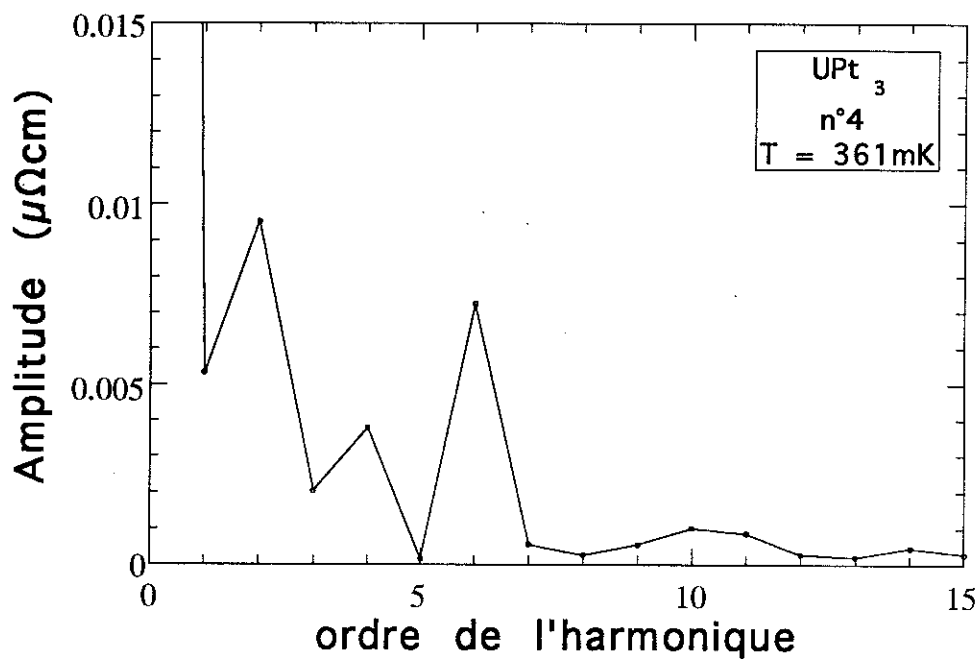


Figure 3.3.19: Spectre des harmoniques qui est présent dans la mesure de $\rho(\Phi)$ (calculé par transformation de Fourier).

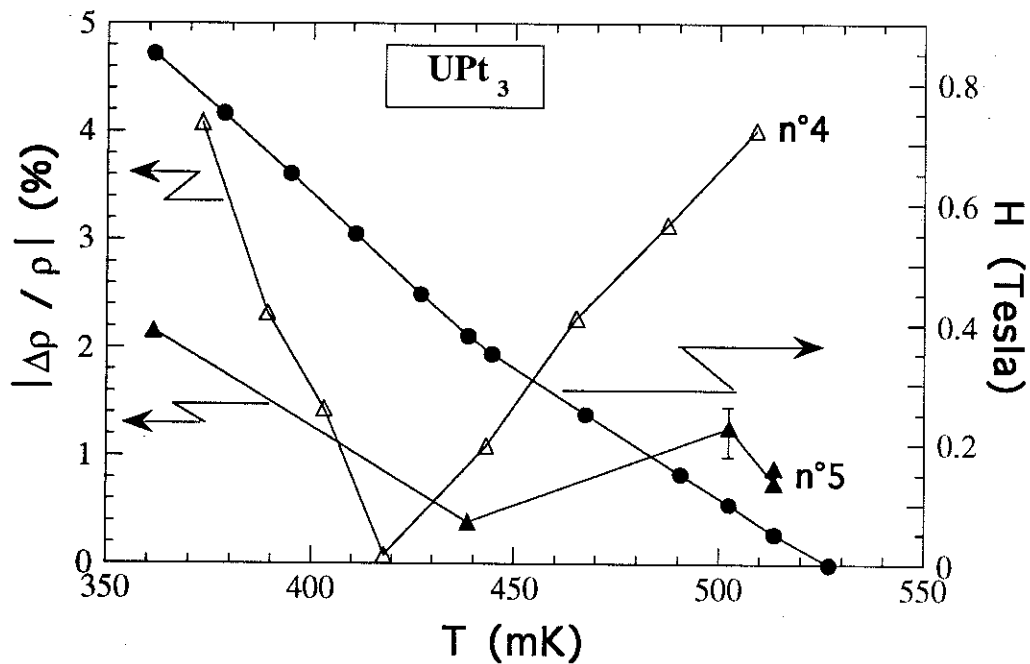


Figure 3.3.20: Variation thermique de la composante $R(6)$ des échantillons n°4 et n°5 comparée au diagramme de phase (H/a) de l'échantillon n°4.

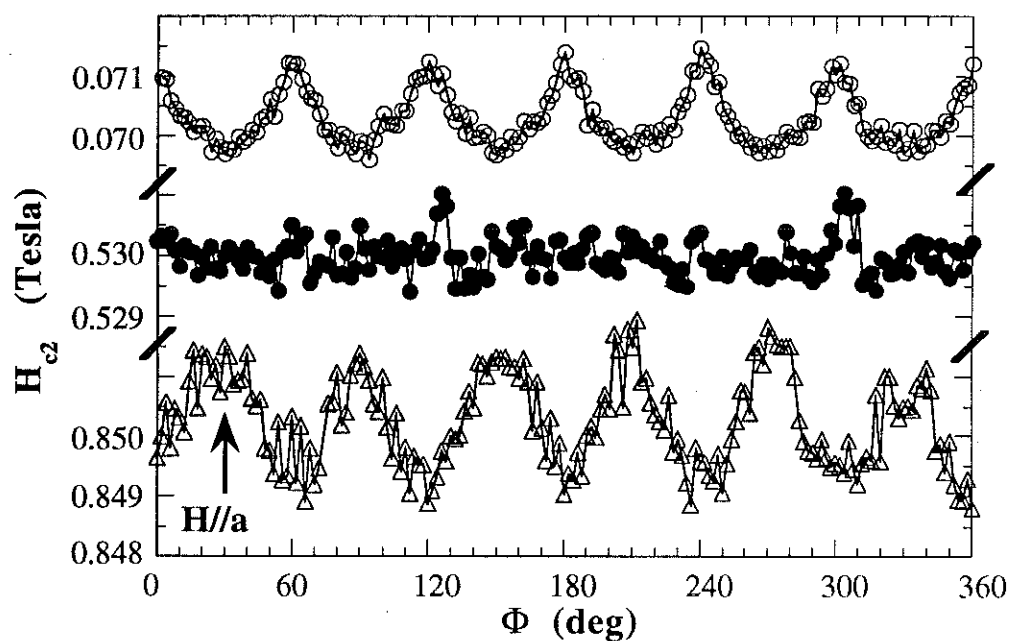


Figure 3.3.21: $H_{c2}(\Phi)$ calculé à partir de $\rho(\Phi)$ et corrigé pour les harmoniques $R(2)$ et $R(4)$ selon l'échantillon n°4.

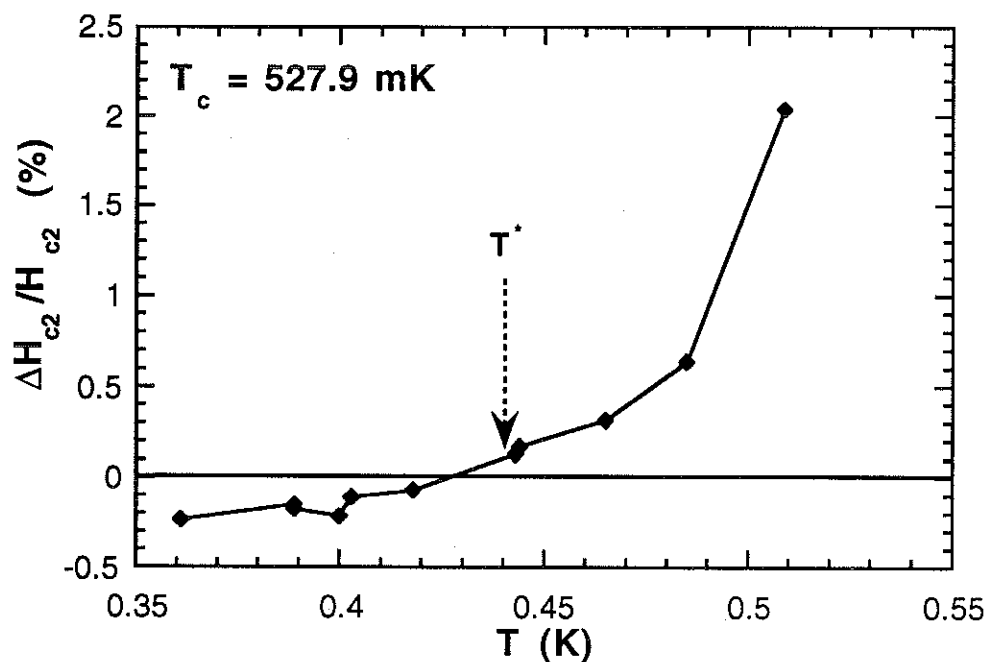


Figure 3.3.22: L'amplitude de la modulation d'ordre six ($|\Delta H_{c2} / H_{c2}|$) de $H_{c2}(\Phi)$ décroît d'une valeur d'environ 2% à $T=T_c$ et s'annule à T^* . A plus basses températures la modulation de $H_{c2}(\Phi)$ réapparaît mais avec un signe renversé.

Cette modulation $\delta\rho$ d'une périodicité de 60° ne peut pas être attribuée à une dépendance angulaire du réseau de vortex, car la forme de la transition résistive ne change pas sous champ magnétique. Une variation d'amplitude et d'orientation du champ magnétique appliqué résulte en un déplacement de T_c vers les hautes ou les basses températures, sans que la transition s'élargisse. Cette propriété importante permet de calculer la dépendance angulaire à partir des courbes $\rho(\Phi)$. La variation de la résistivité $\delta\rho$, mesurée à la mi-valeur de la transition résistive, présente un changement linéaire de la température critique ($\delta T_c \propto \delta\rho$). A l'aide du diagramme de phase (figure 3.3.11) et grâce au fait que la transition résistive ne change pas de forme sous champ magnétique, il est donc possible d'évaluer la variation angulaire de $H_{c2}(\Phi)$. La figure 3.3.21 présente $H_{c2}(\Phi)$ calculé à partir de la figure 3.3.17 (échantillon n°4). Les composantes $R(2)$ et $R(4)$ visibles dans la résistivité $\rho(\Phi)$ ont été soustraites avant le calcul de $H_{c2}(\Phi)$. Dans cette figure, le changement de signe est très bien observé. D'une façon quantitative, l'évolution de cette anisotropie avec symétrie six dans le plan hexagonal est caractérisée par le rapport $\Delta H_{c2} / H_{c2}$ où ΔH_{c2} est déterminé par la différence $H_{c2}(60^\circ) - H_{c2}(30^\circ)$. Ce rapport décroît d'une valeur de 2% près de T_c avec diminution de la température, s'annule à $\sim T^*$ et semble se saturer autour d'une valeur de $\approx -0.4\%$ pour des plus basses températures (figure 3.3.22).

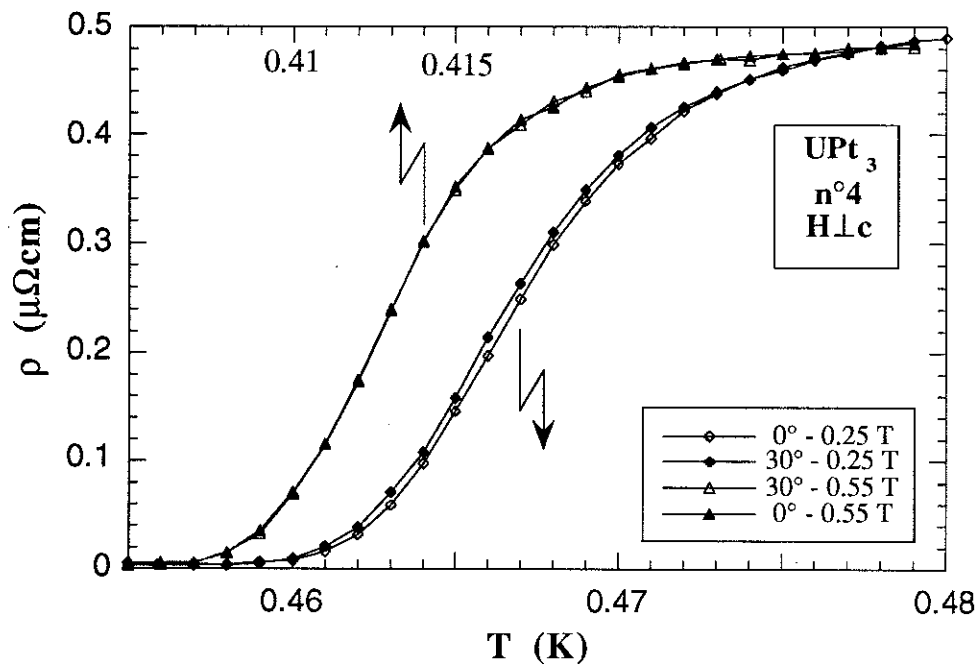


Figure 3.3.23: *Ecart thermique entre les transitions résistives suivant $H//a$ et $H//a^*$. A faible champ une différence entre les T_c est distinguable. Par contre, à plus haut champ les courbes semblent de coïncider.*

Cette anisotropie observée dans le $H_{c2}(\Phi)$ (figure 3.3.21) suivant les directions cristallographiques a et a^* peut s'exprimer en termes d'une différence des températures critiques de l'ordre de ~ 0.5 mK. Ainsi, la transition supraconductrice mesurée au moyen de la résistivité devra montrer une différence de T_c suivant les deux directions a et a^* du plan hexagonal. La figure 3.3.23 montre à titre d'exemple les transitions résistives mesurées suivant les deux axes (0° : $H//a^*$; 30° : $H//a$) à deux valeurs d'amplitude du champ magnétique différentes (0.25 Tesla et 0.55 Tesla). L'écart en T_c de $\Delta T_c = T_c(//a^*) - T_c(//a)$ pour les deux directions est clairement visible pour les faibles champs et est montré dans la figure 3.3.24. On remarque que l'anisotropie à faible champ s'annule autour de la discontinuité de pente du $H_{c2}(T)$ à $H^* \approx 0.45$ Tesla. Le renversement attendu de l'anisotropie est plus difficilement détectable dans des mesures de $\rho(T)$ à plus haut champ due au fait qu'elle devient plus petite (cp. figure 3.3.22) et est comparable à l'incertitude sur la mesure de T lors de sa variation.

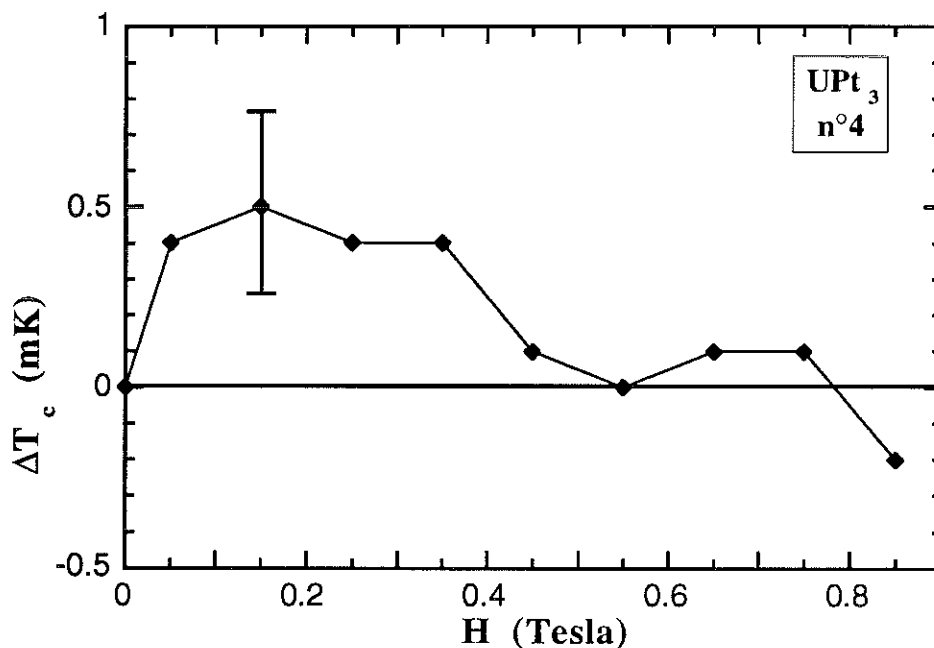


Figure 3.3.24: Anisotropie entre $H//a$ et $H//a^*$ exprimée comme différence ΔT_c . Dans la phase A du diagramme de phase l'anisotropie est de l'ordre de 0.5 mK. Elle disparaît à la discontinuité de pente du $H_{c2}(T)$.

Cette anisotropie de $H_{c2}(\Phi)$ a été observée lors des mesures de deux échantillons provenant de différents cristaux. La modulation de symétrie six ne dépend pas de la procédure de mesure et est reproductible indépendamment du mode de refroidissement entre 10K et 10mK. En particulier, un refroidissement sous champ de 0.85 Tesla à partir de T_N ne change pas l'amplitude et la périodicité de la modulation de $H_{c2}(\Phi)$. Egalement, le sens de la rotation du champ magnétique et l'histoire magnétique (ex. rampes du champ

magnétique, mesure champ fort - champ faible) n'ont aucune influence sur l'anisotropie de H_{c2} observée dans le plan hexagonal.

Nous avons donc montré qu'il existe une anisotropie intrinsèque du $H_{c2}(\Phi)$ qui présente des caractéristiques fortement corrélées aux anomalies du diagramme de phase d' UPt_3 .

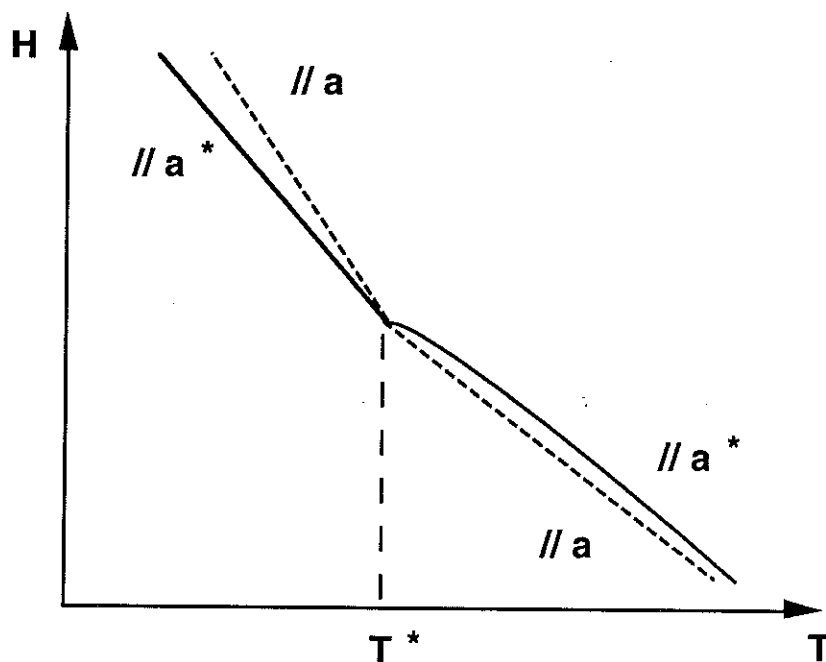


Figure 3.3.25: Représentation schématique du diagramme de phase dans le plan hexagonal. L'anisotropie des lignes $H_{c2}(T)$ est renversée à T^* .

III.3.2.4 Discussion de l'anisotropie de $H_{c2}(\Phi)$

Schématiquement, le comportement du diagramme de phase suivant les différentes orientations du champ magnétique dans le plan basal est présenté dans la figure 3.3.25. Plusieurs points importants peuvent être notés:

- (1) La discontinuité de pente du $H_{c2}(T)$ est présente pour toutes les orientations du champ magnétique dans le plan basal.
- (2) Le $H_{c2}(T)$ présente une anisotropie suivant les directions $H//a$ et $H//a^*$ avec une périodicité de 60° .
- (3) L'anisotropie entre $H//a$ et $H//a^*$ est renversée en fonction de la température au moment du passage de la phase A (haute température, faible champ) à la phase C (basse température, haut champ).

Ces trois caractéristiques du deuxième champ critique H_{c2} orienté dans le plan hexagonal permettent de revoir les prédictions théoriques avec de nouvelles contraintes. Tous les modèles en considération prédisent un changement du paramètre d'ordre entre la phase A et la phase C, qui se manifeste par un changement de $\partial H_{c2}/\partial T$ dans le diagramme de phase.

La discontinuité de la pente de $H_{c2}(T)$ pour toutes les orientations du champ magnétique (point (1) et voir aussi le chapitre III.0), n'est pas prédite par une approche théorique qui utilise une représentation bi-dimensionnelle de type E_1 ou E_2 du paramètre d'ordre (chapitre III.1.1). Les améliorations apportées à ce modèle, notamment la considération d'une rotation des domaines magnétiques suivant l'orientation du champ magnétique [Blount90] et le modèle de l'état de verre de domaines antiferromagnétiques qui seraient distribuées aléatoirement dans le plan [Joynt90, Mineev90], concluent en une isotropie du $H_{c2}(\Phi)$. Elle sont en contradiction avec les résultats expérimentaux qui montrent une anisotropie entre $H//a$ et $H//a^*$ (point (2)).

De même, le modèle à représentation uni-dimensionnelle du paramètre d'ordre (chapitre III.1.2) proposé par Chen et Garg [Chen93, Garg94], qui prédit la discontinuité de pente du $H_{c2}(T)$ pour toutes les directions du champ magnétique et l'isotropie de $H_{c2}(\Phi)$ dans le plan basal, est en contradiction avec l'anisotropie entre les axes a et a^* .

Le deuxième modèle du paramètre d'ordre à représentation uni-dimensionnel (chapitre III.1.2) proposé par Ozaki et Machida [Ozaki92] est capable d'expliquer la discontinuité de $\partial H_{c2}/\partial T$ suivant toutes les directions principales, il prévoit une faible anisotropie du $H_{c2}(T)$ suivant les deux directions $H//a$ et $H//a^*$ dans la phase à haute température et faible champ magnétique (nommé A). Ainsi, la discontinuité de $\partial H_{c2}/\partial T$ (point (1)) et l'anisotropie entre les axes a et a^* (point (2)) peuvent être expliqués. Toutefois, en ce qui concerne le point (3), le modèle prédit une isotropie du $H_{c2}(\Phi)$ pour la phase C à basse température et haut champ magnétique contrairement aux observations expérimentales.

Ainsi, d'une manière ou d'une autre, tous les modèles du diagramme de phase considérés pour la supraconductivité d' UPt_3 ont des difficultés à expliquer le renversement de l'anisotropie à la température T^* .

En ce qui concerne le point (3), Mineev a récemment développé un autre modèle qui considère une dégénérescence accidentelle des deux représentations uni-dimensionnelles du paramètre d'ordre (1D-REP) [Mineev94] suivant la proposition de Chen et Garg [Chen93, Garg94]. Dans son approche, l'anisotropie hexagonale du $H_{c2}(T)$ dans le plan

basal qui peut renverser son signe au point tétracritique, est introduite grâce aux termes de gradient spatial de $|\Psi|^2$ de sixième ordre. Ceci reflète la symétrie hexagonale du système. Selon la phase supraconductrice A ou C, cette anisotropie s'exprime comme

$$H_{c2}(T) = H_{c2}^{\text{isotr.}}(T) \left(1 - \frac{15 q_1}{8 K_3^3} \left(1 - \frac{T}{T_c} \right)^2 \cos 6\Phi \right) \quad (\text{III.3.4})$$

où T_c , $H_{c2}^{\text{isotr.}}(T)$, q_1 et K_3 varient selon T par rapport à T^* . Les courbes expérimentales ont été analysées selon cette dépendance angulaire et le coefficient $(15 q_1 / 8 K_3^3)$ doit montrer une valeur constante pour $T > T^*$ et $T < T^*$. La figure 3.3.26 montre la variation en température du coefficient $(15 q_1 / 8 K_3^3)$ pour les deux échantillons n°4 et n°5. Dans la phase C ($T < T^*$) il reste constant. Par contre à plus haute température, une forte variation de $(15 q_1 / 8 K_3^3)$ peut être observée. Ainsi, d'autres effets doivent encore se manifester dans la phase A.

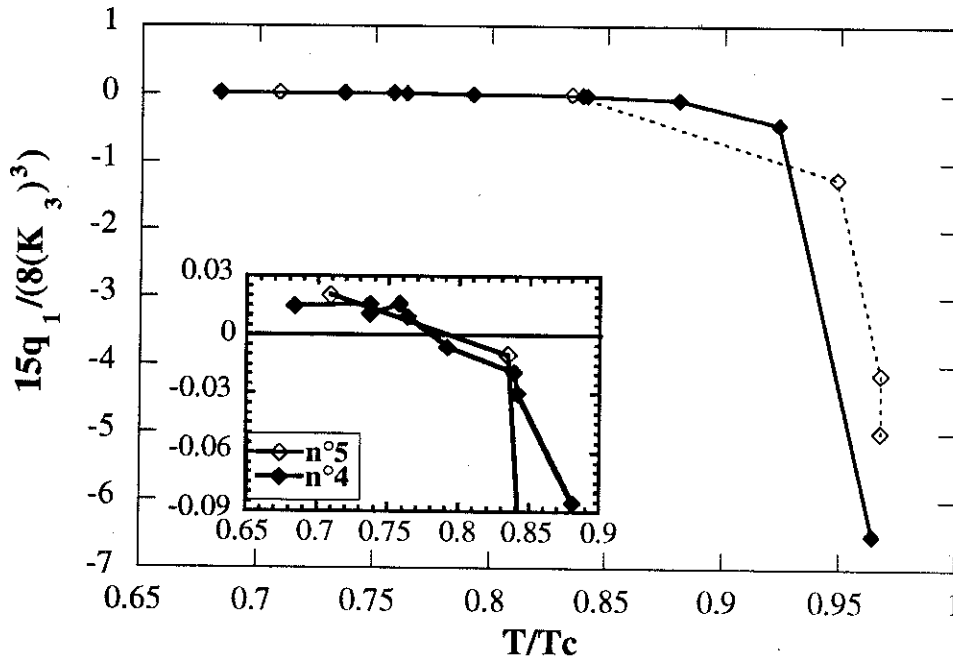


Figure 3.3.26: L'évolution thermique du coefficient $(15 q_1 / 8 K_3^3)$, qui représente l'anisotropie de $H_{c2}(\Phi)$, est tracée. Dans la phase C pour $t \approx T/T_c < 0.83$ le coefficient $(15 q_1 / 8 K_3^3)$ est constante (voir insert). Par contre dans la phase A, il varie fortement ce qui indique qu'au moins dans la phase C le modèle de Mineev [Mineev90] l'anisotropie pourra être déterminée par les effets d'une surface de Fermi hexagonale.

III.3.2.5 Conclusion

Nos résultats qui montrent une anisotropie d'ordre six du $H_{c2}(\Phi)$ dans le plan hexagonal, permettent d'exclure certains des modèles théoriques proposés pour la supraconductivité d'UPt₃. Notamment, tous les modèles qui prédisent une isotropie de $H_{c2}(\Phi)$ sont en contradiction avec nos résultats. Les modèles théoriques proposés d'une part par Ozaki et Machida [Ozaki92] et d'autre part par Mineev [Mineev94] sont partiellement en accord avec le $H_{c2}(\Phi)$ observé. Les deux modèles basent sur des paramètres d'ordre non-conventionnels (1D-REP) de parité impaire qui sont aussi considérés dans l'interprétation du croisement des lignes de phases par effet de limitation de Pauli du champ critique pour $H//c$ [Choi93]. Le changement d'anisotropie entre la phase A et la phase C peut être expliqué par un changement de paramètre d'ordre à T^* . La symétrie hexagonale de la surface de Fermi qui est prise en compte dans le modèle de Mineev, semble de déterminer l'anisotropie de $H_{c2}(\Phi)$ dans la phase C, mais le comportement thermique dans la phase A n'est pas reproduite. Dans ce modèle, l'origine du point tétracritique reste accidentelle. En ce qui concerne le modèle d'Ozaki et de Machida qui prédit le point tétracritique du diagramme de phase à partir d'un couplage entre antiferromagnétisme et supraconductivité, il ne peut pas rendre compte d'une anisotropie de $H_{c2}(\Phi)$ dans la phase C.

Chapitre IV

L'état normal de UPt_3

IV. L'état normal d' UPt_3

Dans l'état normal, la susceptibilité montre une anisotropie marquée (figure 3.0.2). Suivant l'axe cristallographique **a**, un maximum est observé à $T \approx 25$ K avant une décroissance vers les basses températures. La variation thermique de $\chi = M / H$ a été mesurée sous champ magnétique intense de 14 Tesla (figure 4.1). χ décroît proportionnellement avec la température et montre une saturation à très basses températures. Sa variation thermique peut être décrite par une loi de liquide de Fermi $\chi_p + AT^2$ pour des températures inférieures à 2 K. La susceptibilité paramagnétique de Pauli χ_p vaut $97 \cdot 10^{-9} \text{ m}^3 / \text{mole}$, une valeur d'un facteur 100 plus élevée que pour les métaux normaux. Ainsi, les quasi-particules se comportent comme un gaz d'électrons libres ayant des masses effectives très lourdes.

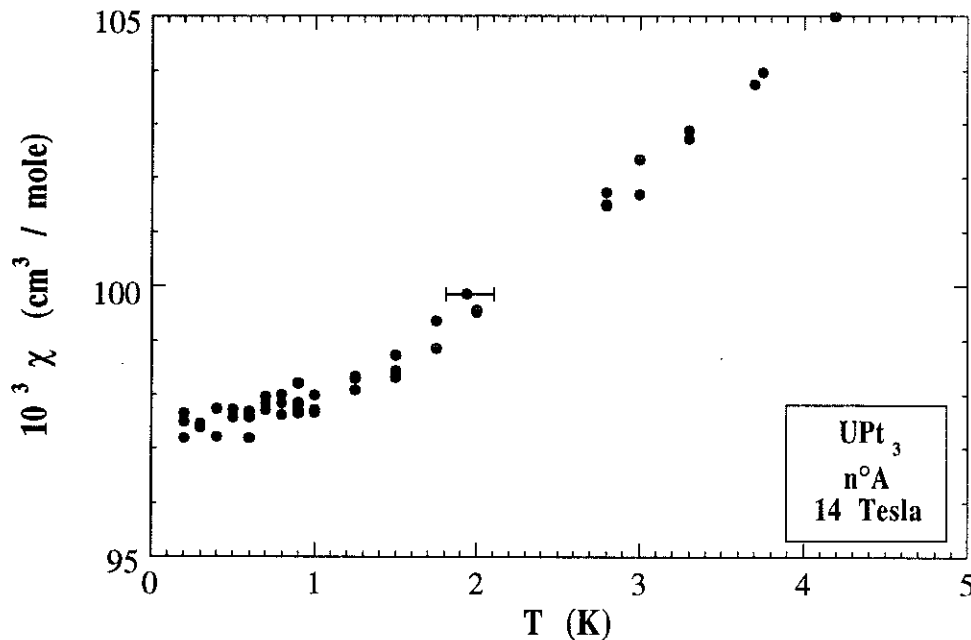


Figure 4.1: Susceptibilité de Pauli mesurée pour un échantillon de UPt_3 par mesures d'aimantation à 14 Tesla.

L'ordre antiferromagnétique d' UPt_3 , détecté par la diffraction des neutrons, ne présente pas d'anomalie à la température de Néel (T_N) dans la variation thermique de la chaleur spécifique C_p (figure 3.0.3), de $\chi(T)$ (figures 3.0.2 et 4.1) ou de $\rho(T)$ (figure 3.2.5). Au contraire un autre composé supraconducteur à fermions lourds, URu_2Si_2 présente des anomalies très prononcées à T_N ($\approx 17\text{K}$). K.Behnia *et.al.* [Behnia90A] ont réalisé des mesures de magnéto-résistance dans l'état normal d' UPt_3 afin de détecter une signature de l'ordre magnétique.

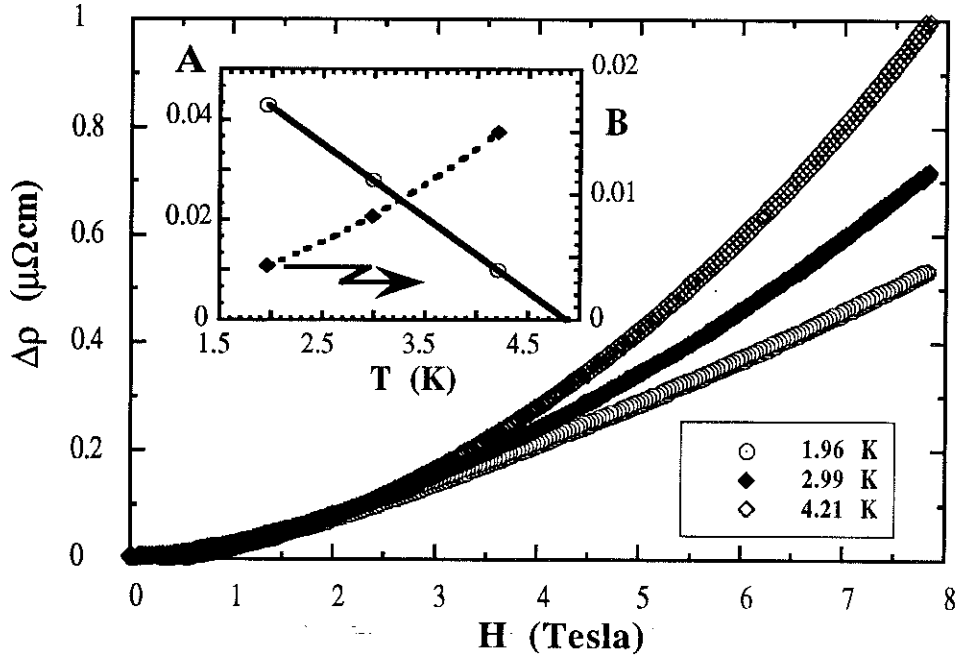


Figure 4.2: Courbes de magnétorésistance $\Delta\rho(H)$ mesurées à différentes températures 4.21 K, 2.99 K et 1.9 K (échantillon n°2). L'insert montre les coefficients A ($\mu\Omega\text{cm/K}$) et B ($\mu\Omega\text{cm/K}^2$) selon une analyse avec la formule IV.1.

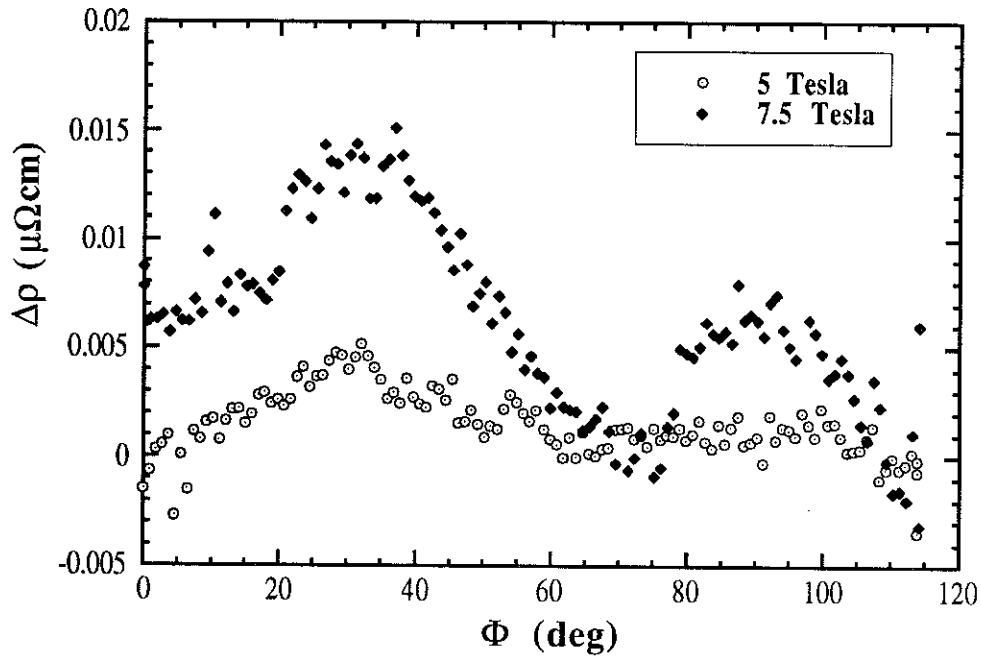


Figure 4.3: Magnétorésistance angulaire $\rho(\Phi)$ mesurée avec l'échantillon n°2 à 4.2 K et sous champ magnétique de 5 Tesla et 7.5 Tesla. Une périodicité de 60° est observable pour $H = 7.5$ Tesla, qui n'est plus mesurable pour des champs magnétiques inférieur à 5 Tesla.

Dans la gamme de température entre 1.6 K et 20 K les courbes de magnéto-résistances $\rho(H)$ ont été analysées en terme d'une loi

$$\Delta\rho = \rho(H) - \rho(0) = a H + b H^2 \quad (IV.1)$$

Les coefficients 'a' et 'b' ont des variations thermiques différentes. La mesure de $\rho(H, T)$ a montré que 'a' est nul pour des températures $T > T_N$ et qu'il croît très rapidement lorsque la température baisse. Aussi, le coefficient 'b' commence à décroître à T_N et disparaît pour $T \approx T_N / 2$. L'apparition d'un terme linéaire de la magnéto-résistance à T_N exactement suggère sa relation avec l'antiferromagnétisme. Alors, en supposant que l'ordre antiferromagnétique contribue avec un terme 'aH' à la magnéto-résistance, on peut penser que les moments magnétiques qui sont orientés dans le plan hexagonal suivant les axes $\mathbf{a}^*$ [Aeppli89] provoquent une anisotropie hexagonale dans $\rho(\Phi, H)$ au-dessous de T_N . Dans le but de détecter cette signature angulaire de l'antiferromagnétisme dans la magnéto-résistance, une série de mesures de $\rho(\Phi)$ a été entreprise en collaboration avec O.Laborde sur les échantillons n°2 et n°5. Ils ont montré un comportement de $\rho(\Phi, H, T)$ similaire, mais comme la résistance mesurable de n°5 a été très faible, uniquement les résultats obtenus de l'échantillon n°2 sont discutés.

Les courbes $\rho(H)$ à trois températures différentes (figure 4.3) ont été analysées avec l'équation IV.1 suivant l'approche de K.Behnia. Comme pour les résultats précédents, le coefficient $a(T)$ apparaît à $T \approx 5$ K et augmente quand la température baisse. Une forte diminution du coefficient $b(T)$ est observée en fonction de la température (insert figure 4.3). Les deux échantillons étudiés montrent le même comportement de la magnéto-résistances en fonction de la température.

Plusieurs courbes $\rho(\Phi)$ à différente amplitude du champ magnétique ont été mesurées à $T = 4.2$ K. La figure 4.4 montre cette variation angulaire de $\rho(\Phi)$ pour une orientation du champ magnétique dans le plan hexagonal. A un champ magnétique de 7.5 Tesla, une anisotropie de l'ordre six est clairement observable. L'amplitude de cette modulation d'ordre six décroît rapidement avec une réduction de l'intensité du champ magnétique. Pour $H = 5$ Tesla, l'anisotropie est à peine visible par rapport à la résolution expérimentale. En ce qui concerne des intensités du champ magnétique inférieur à 5 Tesla, aucune anisotropie de $\rho(\Phi)$ n'est observable. L'évolution thermique de la modulation de symétrie six a été étudiée pour une intensité du champ de $H = 6$ Tesla. La figure 4.5 montre la variation thermique de $\Delta\rho(\Phi)$ pour des températures 1.9 K, 2.99 K et 4.21 K. L'amplitude décroît avec l'augmentation de la température comme représentée dans la figure 4.6. Une extrapolation linéaire des points de mesure indique que la modulation disparaît à une température entre 5 K et 6 K.

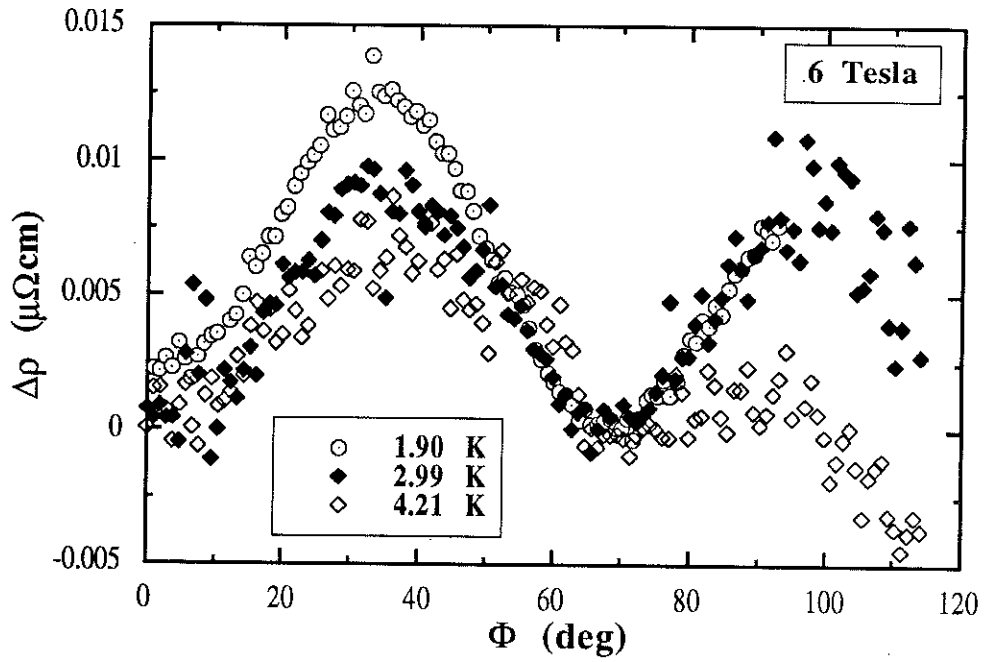


Figure 4.4: Variation thermique de la magnétorésistance angulaire $\rho(\Phi)$ à 6 Tesla (4.21 K, 2.99 K et 1.9 K). L'amplitude de signal décroît quand la température augmente.

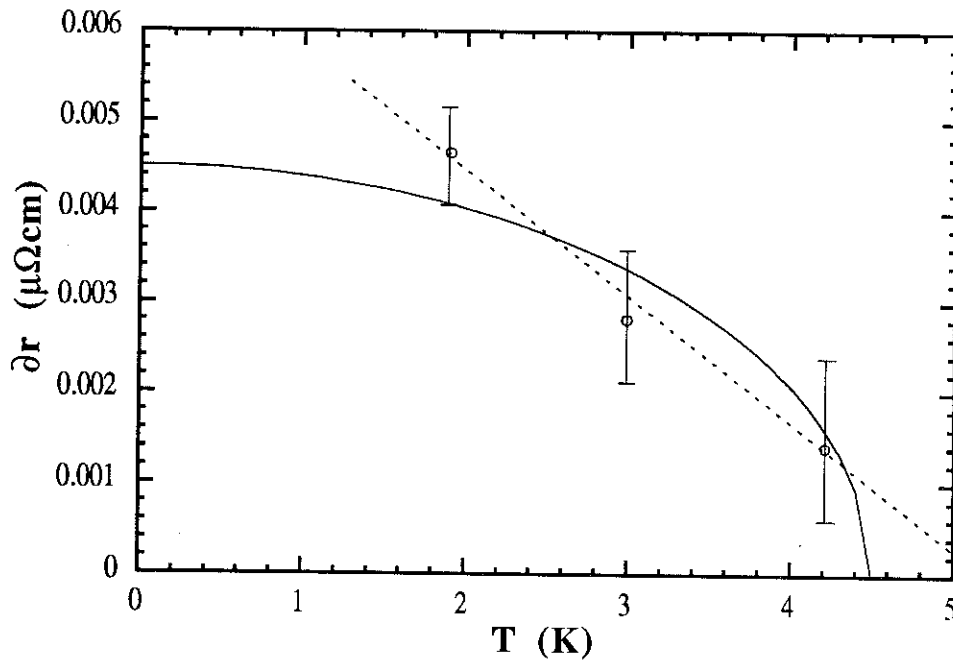


Figure 4.5: L'amplitude de la modulation de $\rho(\Phi)$ décroît rapidement avec une augmentation de la température. Une extrapolation linéaire de $\Delta\rho(T)$ donne une température $T \approx 5$ K pour la disparition de $\Delta\rho$. Mais aussi une description selon une dépendance thermique $\propto (1 - (T/T_N)^2)^{-1/2}$ est possible (voir texte).

Ainsi, la variation thermique de $\Delta\rho$ peut être décrite par une loi $\propto (1 - (T/T_N)^2)^{1/2}$ de type Stoner-Wohlfarth [Barbara88], qui traduit la disparition de $\Delta\rho$ à $T \approx 4.5$ K. Cette température correspond à la température d'apparition du terme linéaire dans la magnéto-résistance.

Néanmoins, il n'est pas prouvé que cette anisotropie de $\rho(\Phi)$ soit liée à l'antiferromagnétisme. Des mesures de magnéto-résistance transverse à très fort champ par Taillefer *et.al.* [Taillef88C] ont montré que des effets de surface de Fermi dans le plan hexagonal peuvent être observés quand $\omega\tau \sim 1$ (le temps caractéristique de diffusion τ des électrons est comparable à la fréquence de cyclotron). Selon leurs mesures, cette anisotropie de ρ disparaît pour des températures supérieures à ~ 0.6 K.

En ce qui concerne les mesures de $\rho(\Phi)$ de l'échantillon n°2 à des températures plus élevées, on peut estimer cette valeur caractéristique $\omega\tau$:

$$\omega\tau = \frac{3\pi^2}{2e k_F^3} \frac{B}{\rho} \approx 5.35 \cdot 10^{-3} \frac{B}{\rho}$$

avec $\omega = eB/2m_e$, $\tau = m_e/(\rho n e^2)$, $n = k_F^3/3\pi^2$ et $k_F \approx 1.2 \text{ \AA}^{-1}$. On calcule $\omega\tau \approx 0.03 / \rho$ pour un champ $B = 6$ Tesla et ρ exprimée en $\mu\Omega\text{cm}$. Dans la gamme de température entre 1.9 K et 4.21 K, $\rho(T)$ varie entre 2.5 $\mu\Omega\text{cm}$ à 1.7 K et 10.2 $\mu\Omega\text{cm}$ à 4.21 K. Ainsi, à toutes les températures de mesure on calcule $\omega\tau \ll 1$. La structure précise de la surface de Fermi n'est pas mesurable dans cette gamme de T. Néanmoins, une signature de la symétrie hexagonale de la surface de Fermi dans le $\rho(\Phi)$ ne peut pas être exclue.

Chapitre V

Le composé URu_2Si_2

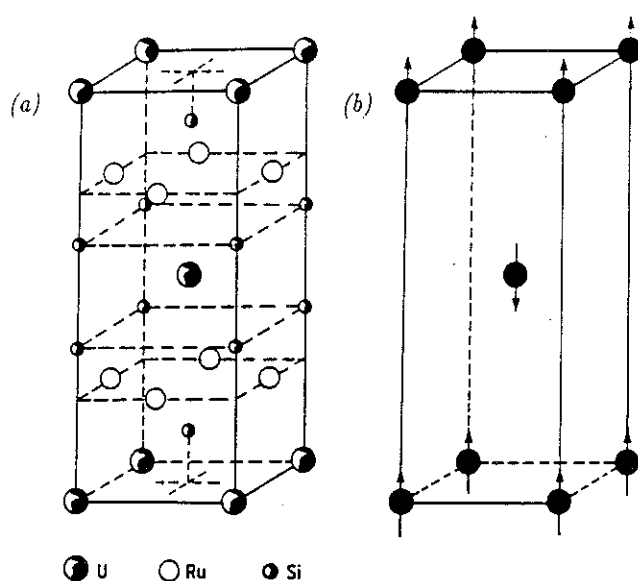


Figure 5.1: (a) Structure de maille de URu_2Si_2 qui appartient au groupe point $I4/mmm$. (b) Structure magnétique qui montre le vecteur de propagation antiferromagnétique le long de l'axe c . [Knetsch93]

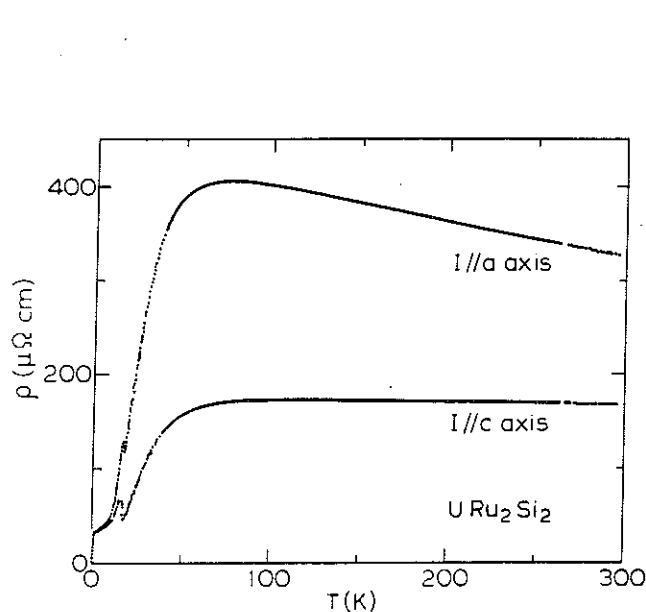


Figure 5.2: La variation thermique de la résistivité montre une anisotropie élevée à haute température [Palstra86].

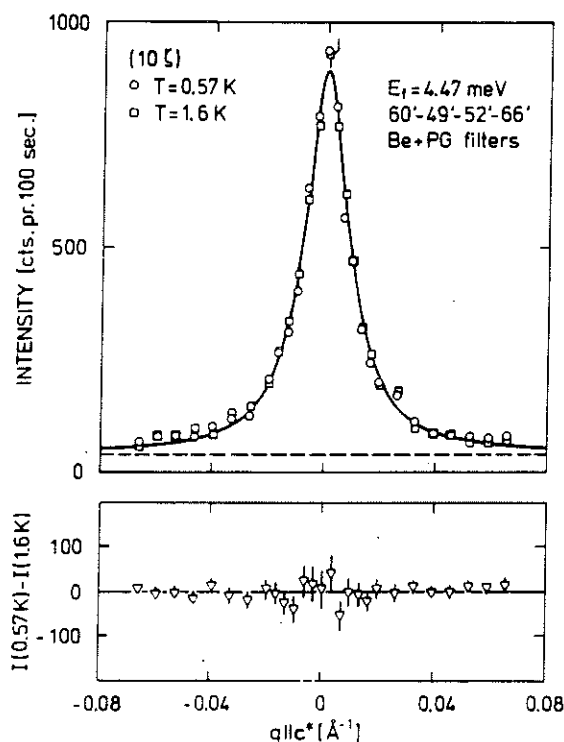


Figure 5.3: Le pic de Bragg à $Q=(1,0,0)$ (moment AF) ne change pas à T_c . La petite figure montre la différence des intensités entre $T = 1.6 \text{ K}$ et $T = 0.57 \text{ K}$ [Broholm88].

V. Le composé URu_2Si_2

V.1 Introduction

Le deuxième composé supraconducteurs fermions lourds étudié, URu_2Si_2 , a été découvert en 1984 par Schlabit et collaborateurs [Schlabi84, Schlabi86]. Il cristallise dans une structure tétragonale de type $ThCr_2Si_2$ [Cordier85] avec des paramètres de maille $a = 4.126 \text{ \AA}$ et $c = 9.568 \text{ \AA}$ et possède une symétrie de groupe point $I4/mmm$. La figure 5.1 montre sa structure cristalline et magnétique. URu_2Si_2 constitue le premier exemple d'un composé supraconducteur à fermions lourds avec coexistence d'un ordre antiferromagnétique à longue portée et d'une phase supraconductrice. Cet ordre antiferromagnétique s'établit à une température de 17.5 K [Broholm87]. La diffraction de neutrons a montré que URu_2Si_2 subit de fortes fluctuations ferromagnétiques à hautes températures qui sont remplacées à températures inférieures à 100 K par des fluctuations antiferromagnétiques. La forte résistivité dans l'état normal ($T > 75 \text{ K}$) reflète la présence de ces fluctuations ferromagnétiques (figure 5.2). Au-dessous de $T \approx 75 \text{ K}$, une forte diminution de la résistivité est observée qui montre une anomalie à 17.5 K [Schlabi86, Palstra86, Hasselb91B, Schmidt93]. A cette température, l'ordre antiferromagnétique (AFM) à longue portée apparaît. Le vecteur de propagation de cet ordre AFM est orienté selon l'axe c (figure 5.1) et la longueur de corrélation antiferromagnétique ξ vaut $\sim 240 \text{ \AA}$ [Mason90]. Comme pour l'antiferromagnétisme de UPt_3 , le moment magnétique ordonné dans URu_2Si_2 est très faible, $\mu_{\text{eff}} \approx (0.04 \pm 0.01) \mu_B$ [Broholm88], et persiste dans l'état supraconducteur ($T < 1.5 \text{ K}$) sans changement (figure 5.3). Contrairement à UPt_3 , une anomalie à T_N est observée dans la dilatation thermique [deVisse86], l'atténuation ultrasonore [Fukase87] et la chaleur spécifique [Schlabi86, Fisher90, Maple86].

La résistivité, pour l'intensité du courant $I//a$ et $I//c$, devient isotrope à basse température ($T < 5 \text{ K}$) et présente la variation thermique d'un liquide de Fermi ($\rho \propto AT^2$). Ce comportement de la résistivité [Schmidt93] est dominé par la formation des ondes de spin à T_N , qui réduit le nombre des porteurs due à la formation d'un gap. La résistivité résiduelle ρ_0 est de l'ordre de $10 \mu\Omega\text{cm}$ [Hasselb91A, Knetsch93, Schmidt93] et très élevée par rapport à celle de UPt_3 ($\rho_0 \sim 0.3 \mu\Omega\text{cm}$).

L'état supraconducteur, qui s'établit à $\sim 1.5 \text{ K}$, montre un diagramme de phase $H_{c2}(T)$ très anisotrope suivant les axes a et c (figure 5.4) [Palstra85, Hasselb91A]. Près de T_c , le $H_{c2}(T)$ possède une courbure positive qui a incité plusieurs interprétations théoriques en termes d'une supraconductivité non conventionnelle couplée à l'antiferromagnétisme [Kwok90, deLong90, Thalmei91] avec les arguments similaires au cas d' UPt_3 .

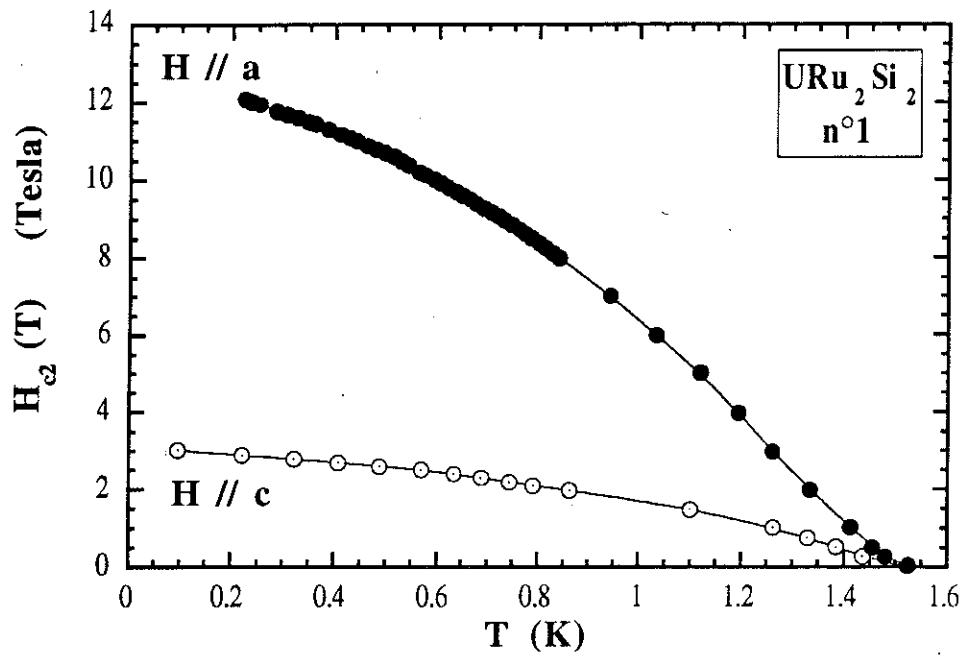


Figure 5.4: Diagramme de phase pour la supraconductivité dans URu_2Si_2 (échantillon n°1) [Schmidt93].

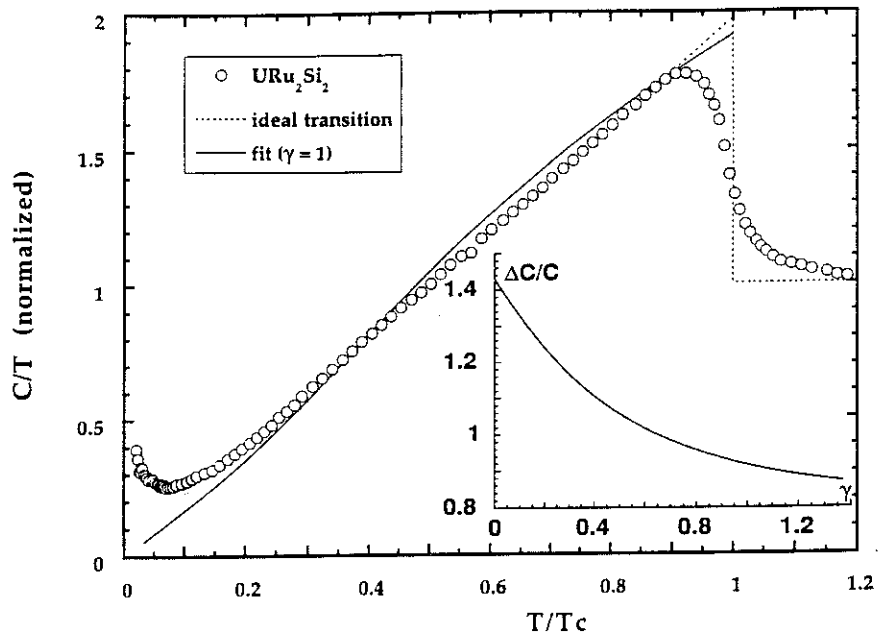


Figure 5.5: La transition supraconductrice mesurée par chaleur spécifique [Brison94A]

Néanmoins, les moments magnétiques sont orientés suivant l'axe *c* du système tétragonal et la symétrie n'est pas réduite par la présence de l'antiferromagnétisme. De plus la transition supraconductrice observé en chaleur spécifique (figure 5.5) [Hasselba91A, Hasselba91B, Brison94A] ne présente qu'une transition bien définie. Toutefois, la qualité des échantillons étudiés est déterminante en ce qui concerne les propriétés de la phase supraconductrice. Ramirez *et.al.* [Ramirez91] ont montré que des doubles transitions peuvent apparaître dans les mesures de chaleur spécifique en fonction de la qualité de l'échantillon (plusieurs phases supraconductrices étaient présentes).

La nature de la supraconductivité réalisée dans URu₂Si₂ est toujours très controversée. Des variations thermiques en loi de puissance des propriétés physiques comme la chaleur spécifique ($C_s = \gamma_s T + \beta T^2$) sont en général interprétées en termes d'une supraconductivité non conventionnelle avec état un polaire du gap supraconducteur. Récemment Hasselbach *et.al.* [Hasselb92] ont montré que le gap supraconducteur mesuré au moyen de spectroscopie de pointe est explicable par une supraconductivité de type "d", mais sans qu'une décision soit possible. Toutefois, un modèle théorique de type BCS qui considère la présence de l'ordre antiferromagnétique [Brison94B] est capable de reproduire la forme du saut de chaleur spécifique et sa variation thermique dans l'état supraconducteur. Ce modèle montre aussi un état polaire du gap supraconducteur.

Selon une théorie de Ginzburg-Landau, proposée par Burlachkov en 1985 [Burlach85] qui est discutée dans le chapitre II.1, il sera possible de distinguer la nature du paramètre d'ordre au moyen des mesures du deuxième champ critique $H_{c2}(\Phi)$ dans le plan tétragonal. Une modulation avec symétrie quatre du $H_{c2}(\Phi)$ (figure 2.2.1) est seulement possible pour la représentation bi-dimensionnelle E_1 (voir chapitre II.1) du paramètre d'ordre de cette symétrie cristalline tétragonale. Ainsi une modulation d'ordre quatre de $H_{c2}(\Phi)$ serait une évidence directe d'une supraconductivité non conventionnelle dans le composé URu₂Si₂. En 1988, Moshchalkov et collaborateurs [Moshcha88] ont étudié l'anisotropie des champs critiques dans un monocristal d'URu₂Si₂. Leur mesures montrent que le $H_{c2}(\Phi)$ est isotrope dans le plan basal selon la résolution expérimentale de $\pm 5\%$.

Comme pour UPt_3 et compte tenu de notre bonne précision expérimentale, nous avons mesuré les champs critiques en fonction de l'orientation du champ magnétique par rapport aux axes du cristal. Les résultats sont exposés dans le chapitre suivant qui se dévise en plusieurs parties:

- (1) les échantillons d' URu_2Si_2 (chapitre V.2),
- (2) le diagramme de phase (chapitre V.3) et
- (3) l'anisotropie des champs critiques $H_{c2}(\Theta, \Phi, T)$ (chapitre V.4).

V.2. Les échantillons d'URu₂Si₂

La croissance des monocristaux d'URu₂Si₂ a été faite par P. Lejay au CRTBT / CNRS. Les matériaux de départ pour la synthèse des siliciures ternaires, l'uranium (4N), le ruthénium (5N) et le silicium (6N) subissent une pré-fusion sous ultravide afin d'améliorer la pureté (ex. évaporation des gaz adsorbés). Ensuite des échantillons polycristallins sont préparés à partir d'un mélange stoechiométrique des composés de départ, qui est fondu en lévitation au-dessus d'un creuset refroidi dans une atmosphère d'argon purifié. Finalement, le tirage des monocristaux est effectué selon la méthode de Czochralski dans un four "tri-arc".

Les trois échantillons étudiés, proviennent de deux tirages différents. L'échantillon n°1 a été découpé dans le cristal I (tirage du 10/5/90) et les échantillons n°2 et n°3 ont été coupés dans le cristal II (tirage du 17/10/90) par L. Schmidt [Schmidt93]. Les deux cristaux (I et II) ont subi des traitements thermiques différents après tirage. Le cristal I a été recuit à 850°C pendant 8 jours sous vide secondaire et le cristal II a subi un recuit à 1100°C pendant 8 jours sous ultra-vide. Les deux cristaux ont été caractérisés au moyen de mesure de la chaleur spécifique à très basses températures. Ils présentent une seule transition supraconductrice, comme montré pour un échantillon du cristal II dans la figure 5.5. Tous les échantillons ont été découpés par électro - érosion sous forme de barrettes. En ce qui concerne nos échantillons (n°1, n°2 et n°3) seulement l'échantillon n°3 a été recuit après le découpage pendant 5 jours à 950°C sous ultra-vide.

Les caractéristiques comme le rapport de résistivité $RR(300K / 4.2K)$, la résistivité à température ambiante et la résistivité résiduelle varient suivant le traitement thermique appliqué. Le tableau T.V.1 résume ces propriétés des échantillons.

n°	cristal	recuit recuit a.c.	ρ_0 $\mu\Omega\text{cm}$	A $\mu\Omega\text{cm}/K^2$	RR (300/4.2)	RR (300/1.7)	$\rho(300K)$ $\mu\Omega\text{cm}$
1	I	8d, 850°C —	4.4?	2.11	~24	~29	~310
2	II	8d, 1100°C —	25.1	0.527	11.5	13.3	350.5
3	II	8d, 1100°C 5d, 950°C	11.0	0.218	17.2	20.5	235.2

Tableau T.V.1: Caractéristiques des échantillon n°1,2,3. Seulement le n°3 a été recuit après coupe (recuit a.c.). La résistivité résiduelle ρ_0 et le coefficient A ont été déterminés pour une gamme de température très restreinte ($T_c < T < 2K$) selon la loi $\rho = \rho_0 + AT^2$.

La température critique de la transition supraconductrice varie selon l'échantillon étudié entre 1.388 K (n°2) et 1.53 K (n°1). La largeur de la transition supraconductrice ΔT_c , mesurée entre 10% et 90% de ρ_n , se réduit fortement en fonction du traitement thermique de $\Delta T_c = 240$ mK pour n°1 à $\Delta T_c = 60$ mK pour n°3. La figure 5.6 montre la transition mesurée pour les trois échantillons. Il est bien visible que n°3 possède les meilleurs caractéristiques en ρ_0 , T_c et surtout une faible largeur ΔT_c de la transition résistive, ce qui est important pour l'étude angulaire des champs critiques. Le tableau T.V.2 résume les caractéristiques des transitions supraconductrices, ainsi que les pentes initiales des $H_{c2}(T)$ à T_c .

n°	cristal	T_c (K)	ΔT_c (mK)	$dH_{c2}/dT \parallel c$ (Tesla / K)	$dH_{c2}/dT \parallel a$ (Tesla / K)
1	I	1.53	240.8	-4.203	-8.644
2	II	1.388	119.6	-4.043	-8.588
3	II	1.457	60	-3.526	-10.773

Tableau T.V.2: Caractéristiques (T_c , ΔT_c et pentes initiales de $H_{c2}(T)$ à T_c) de la transition supraconductrice des échantillons n°1,2,3.

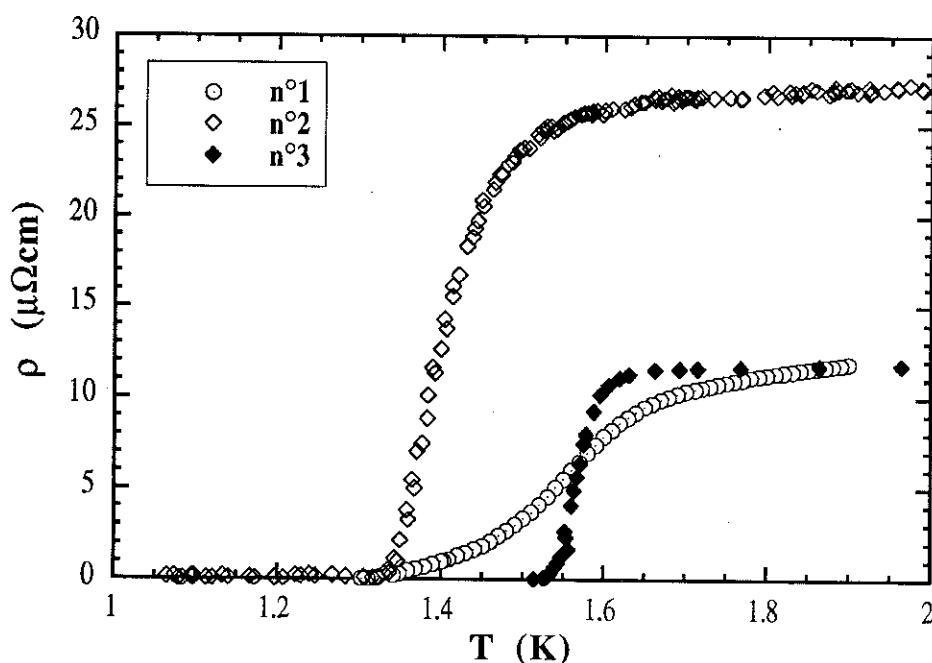


Figure 5.6: La transition supraconductrice mesurée par résistivité montre l'influence dramatique de traitement thermique (voir tableaux T.V.1 et T.V.2).

V.3. Le diagramme de phase

Le diagramme de phase du composé URu₂Si₂ est très anisotrope, comme l'indiquent les figures 5.4 (échantillon n°1 [Schmidt93]) et 5.7 (échantillon n°3). Le rapport d'anisotropie $H_{c2}(//a) / H_{c2}(//c)$ varie fortement entre ~ 2 près de T_c jusqu'à une valeur ~ 5 à $T = 10$ mK. L'insert de la figure 5.7 présente la variation thermique du rapport d'anisotropie entre T_c et 1.1 K. De plus, les lignes de phase $H_{c2}(T)$ montrent une courbure positive à faible champ magnétique près de T_c . Cette courbure est moins prononcée pour les échantillon n°2 et n°3 par rapport à l'échantillon n°1. Le traitement thermique, qui influence fortement la largeur de la transition ΔT_c (tableau T.V.2), semble aussi influencer la courbure de $H_{c2}(T)$ près de T_c .

Un deuxième point important à noter est la variation thermique plutôt linéaire de $H_{c2}(T)$ près de $T = 0$ K. Le comportement habituelle, $H_{c2}(T) \propto (1 - (T / T_c)^2)^{1/2}$ [Meserve69], ne semble pas être observé selon les deux directions principales (cf. figure 5.4). Cette variation plutôt linéaire de $H_{c2}(T)$ est encore mieux visible, quand on trace les lignes de phase en unités réduites (cp. chapitre III.3.2.1). La figure 5.8 montre $h (= H_{c2}(t) / (\partial H_{c2} / \partial t)|_{t=1})$ en fonction de $t (= T / T_c)$ pour les deux échantillons n°1 et n°3. Le cas d'une supraconductivité isotrope calculé par Helfand et Wertheimer [Helfand66] est indiqué par la ligne continue (—). Le champ critique h suivant les deux directions $H//a$ et $H//c$ est inférieur à cette limite. Selon la discussion dans le chapitre III.3.2.1, une limitation paramagnétique du champ critique peut résulter en une diminution de h par rapport aux valeurs du cas isotrope. Les deux autres lignes présentées dans la figure 5.8 correspondent à cette limitation paramagnétique du champ critique calculé par Maki [Maki64, Maki66] avec des paramètres $a_2 (= \sqrt{2} H_{c2}(0) / H_{cp}(0))$ de 0.5 (ligne: ---) et 1 (ligne: — - —) pour un supraconducteur isotrope. Qualitativement, les courbes sont bien décrites par un modèle qui suppose cette limitation de Pauli du champ critique. Par contre on observe que la variation thermique de h qui est plutôt linéaire pour $t < 0.2$ et ne semble pas se saturer.

V.4 Anisotropie des champs critiques

(a) Anisotropie de H_{c2} entre le plan basal et l'axe c

La forte anisotropie des $H_{c2}(T)$ entre les directions $H//a$ et $H//c$, qui augmente quand la température est baissée, est encore mieux visible dans les courbes de variation angulaire du champ critique $H_{c2}(\Theta)$ entre le plan basal et l'axe c . La figure 5.9 montre nos mesures de $H_{c2}(\Theta)$ des échantillons n°1, n°2 et n°3 avec une mesure du n°1 faite par S. Julian à Cambridge à très basse température (10 mK) [Schmidt93, Brison94A].

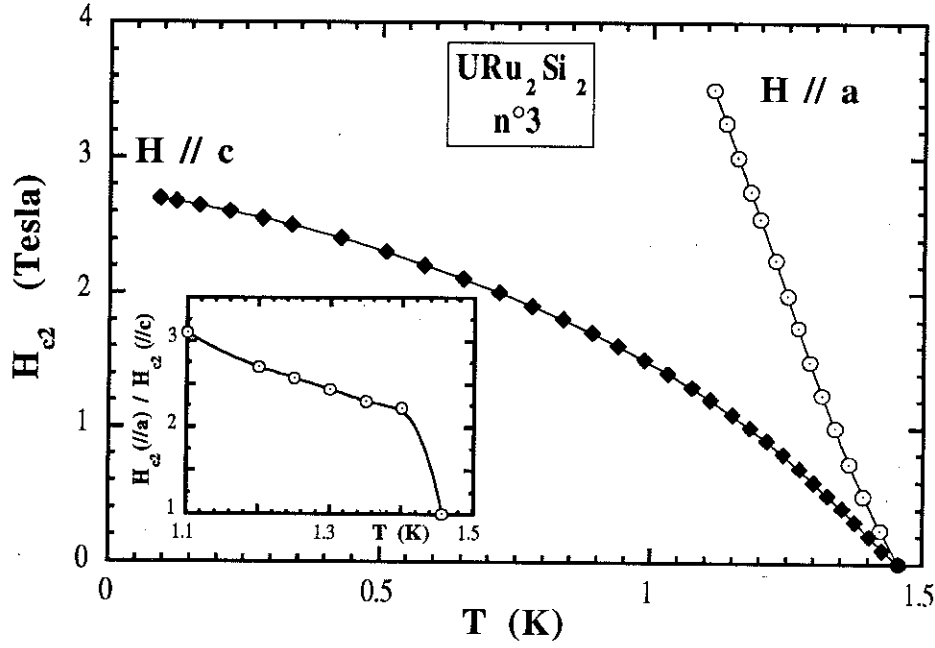


Figure 5.7: Diagramme de phase (échantillon n°3) et rapport des champs critiques (insert). Le rapport $H_{c2}(//a) / H_{c2}(//c)$ varie fortement avec la température.

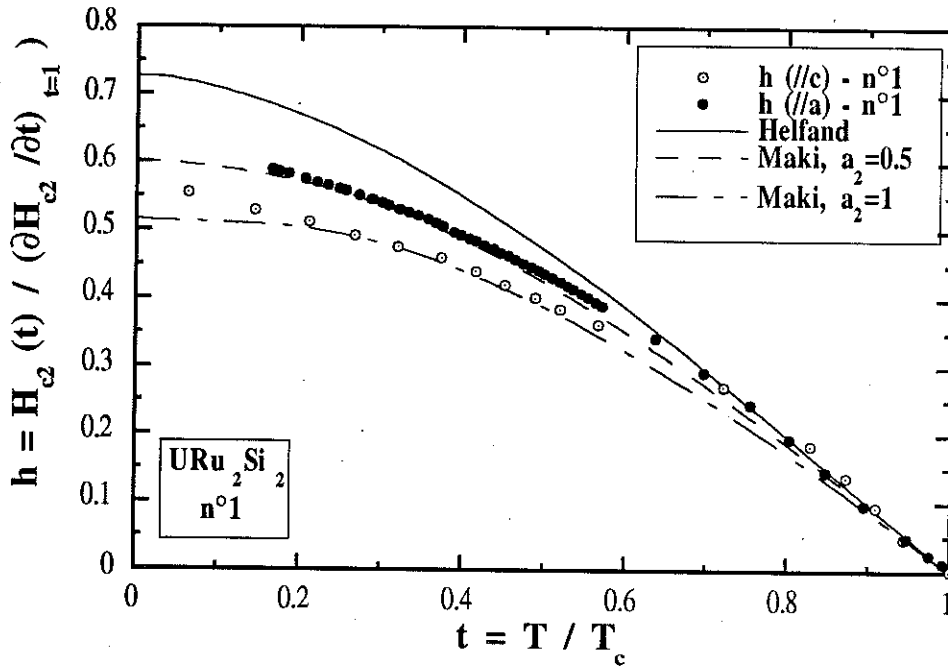


Figure 5.8: $H_{c2}(T)$ exprimé en unités réduites ($t = T/T_c$ et $h = H_{c2}/(\partial H_{c2}/\partial t)|_{t=1}$) pour les orientations $H//a$ (n°1) et $H//c$ (n°1 et n°3). Sa variation thermique et comparée aux modèles de Helfand et Wertheimer [Helfand66] (supraconducteur isotrope) et Maki [Maki64] (limitation de Pauli).

La courbure initiale de $H_{c2}(T)$ déjà mentionnée domine le rapport $R_{Hc2} = H_{c2,||a} / H_{c2,||c}$ près de T_c . Pour une même température réduite $t \approx 0.9$, les deux échantillons n°2 et n°3 montrent une importante différence du rapport d'anisotropie: $R_{Hc2,n°3} / R_{Hc2,n°2} = 1.4$. La variation angulaire des courbes $H_{c2}(\Theta)$ peut être décrite par une équation de type 'anisotropie des masses effectives' (équation III.3.1) où le coefficient ε^2 est considéré comme paramètre libre pour les ajustements des courbes. Selon le modèle de masses effectives, qui consiste en une considération d'une surface de Fermi anisotrope, le paramètre ε^2 s'écrit comme

$$\varepsilon^2 = \left(\langle v_{\perp}^2 \rangle_F / \langle v_{||c}^2 \rangle_F \right)^2 = \left(H_{c2}(90^\circ) / H_{c2}(0^\circ) \right)^2$$

où $\langle v_{\perp}^2 \rangle_F$ et $\langle v_{||c}^2 \rangle_F$ représentent les vitesses de Fermi. La variation thermique du rapport d'anisotropie ε^2 est énumérée dans le tableau T.V.3. Les courbes sont bien décrites par cette dépendance angulaire du $H_{c2}(\Theta)$ (formule III.3.1). Toutefois la formule III.3.1 base sur l'hypothèse que les vitesses de Fermi sont constantes et ainsi leur rapport ε^2 doit être constant aussi. Mais les ajustements des courbes (tableau T.V.3) montrent que ε^2 varie avec la température, ce qui est en contradiction au modèle appliqué. En particulier, une limitation de Pauli du champ critique $H_{c2}(T)$ suivant une direction préférentielle n'est pas incluse dans ce modèle simple (la situation est similaire au cas de UPt₃).

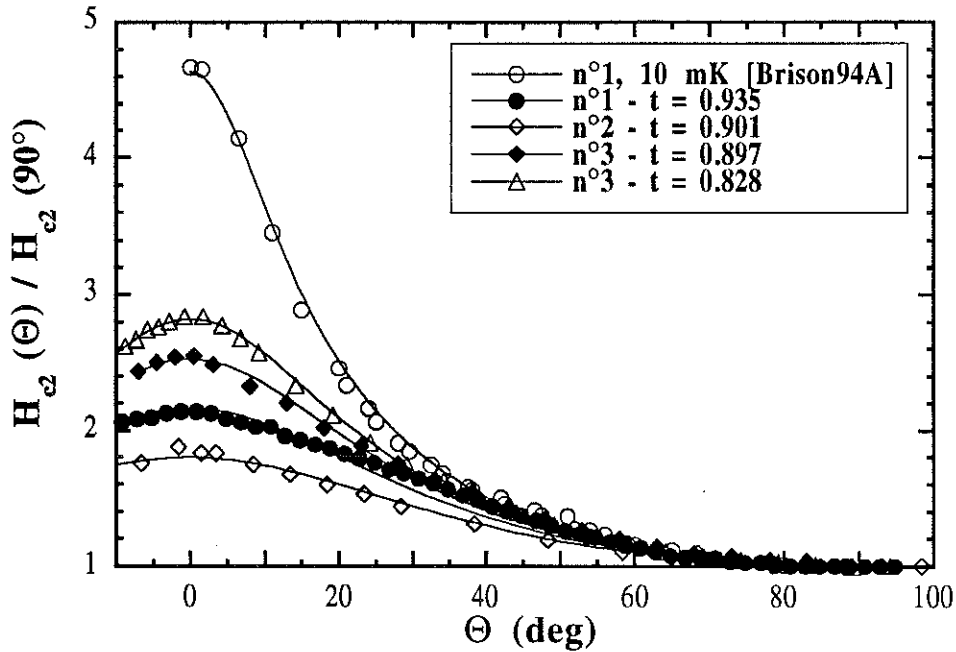


Figure 5.9: Le $H_{c2}(\Theta)/H_{c2}(90^\circ)$, entre $H_{||c}$ et $H_{\perp c}$, reflète l'augmentation d'anisotropie avec la diminution de sa température. Les courbes montrent la variation angulaire qui peut être décrit par un modèle des masses effectives (voir texte).

n°	1	1	2	3	3
$t = T / T_c$	$6 * 10^{-3}$	0.935	0.901	0.897	0.828
ϵ^2	21.46	4.68	3.24	6.38	7.97
$\frac{H_{c2}(\parallel a)}{H_{c2}(\parallel c)}$	4.63	2.16	1.79	2.53	2.83

Tableau T.V.3: Rapport d'anisotropie calculé par un ajustement de l'équation III.3.1 aux mesures

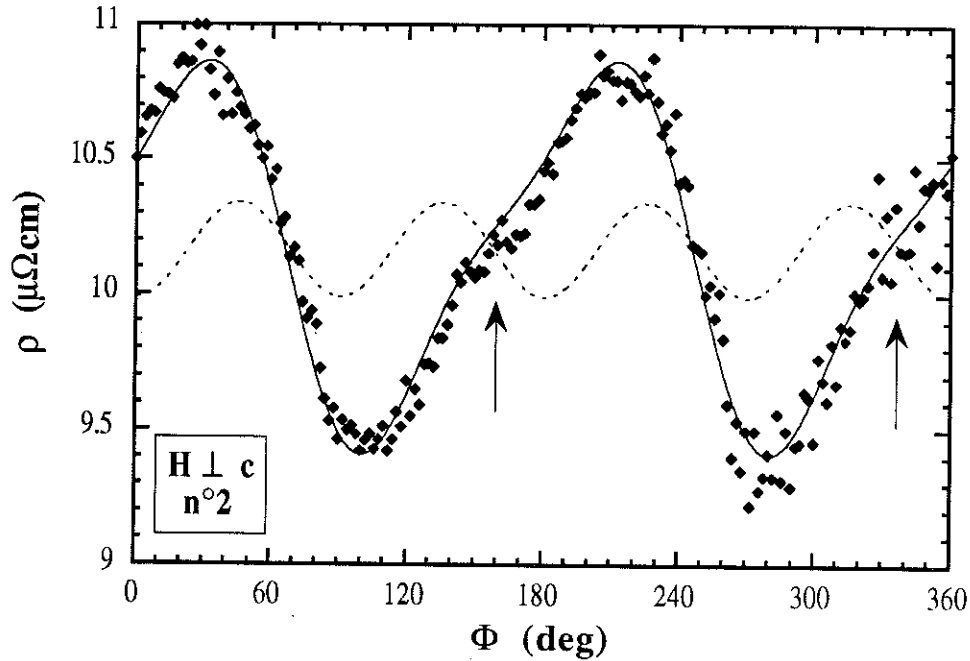


Figure 5.10: Résistivité angulaire selon une rotation du champ magnétique dans le plan tétragonal du cristal n°2 ($T = 1.29$ K, $H = 0.55$ Tesla). La ligne continue représente une synthèse de la courbe après une analyse de Fourier avec une composante d'ordre deux et une composante d'ordre quatre (ligne:- - -).

(b) Le champ critique $H_{c2}(\Phi)$ dans le plan tétragonal

L'étude de Moshchalkov [Moshcha88] a montré que selon leur précision expérimentale aucune anisotropie de symétrie quatre n'était visible dans le comportement angulaire de $H_{c2} \perp c$. Compte tenue du fait, que notre dispositif expérimental possède une meilleure précision, nous avons commencé une nouvelle étude du $H_{c2}(\Phi)$ dans le plan tétragonal d'URu₂Si₂.

La technique de mesure, qui consiste à mesurer des variations angulaires de la résistivité à une température constante, est la même que celle utilisée pour les mesures sur UPt₃.

L'échantillon n°2 montre une variation angulaire du $\rho(\Phi)$ qui est dominée par une modulation d'ordre deux ($T = 1.29$ K et $H = 0.55$ Tesla) (figure 5.10). Semblable au cas d'UPt₃, cette modulation d'ordre deux peut s'interpréter en termes d'un non-alignement des contacts ou d'une rotation du champ magnétique dans un plan qui est légèrement incliné par rapport au plan tétragonal (cp annexe III). Les flèches dans la figure marquent des 'épaules' dans $\rho(\Phi)$ qui indiquent une autre contribution superposée à la résistivité. Une transformation de Fourier de $\rho(\Phi)$ révèle des harmoniques d'ordre deux ($R(2)$) et d'ordre quatre ($R(4)$) prononcées. Comme pour UPt₃, nous avons calculé $H_{c2}(\Phi)$ à partir des mesures de résistivité tout en supprimant la modulation $R(2)$. La figure 5.11 présente le $H_{c2}(\Phi)$ calculé et corrigé des effets d'ordre deux. Comme on s'y attendait après l'analyse des harmoniques, une modulation d'ordre quatre est visible. Nos résultats d'une modulation d'ordre quatre, dont l'amplitude représente moins que 3% de H_{c2} , sont consistant avec l'étude de Moshchalkov *et.al.* qui a déterminé $H_{c2}(\Phi)$ d'être isotrope selon la précision expérimentale de 5%.

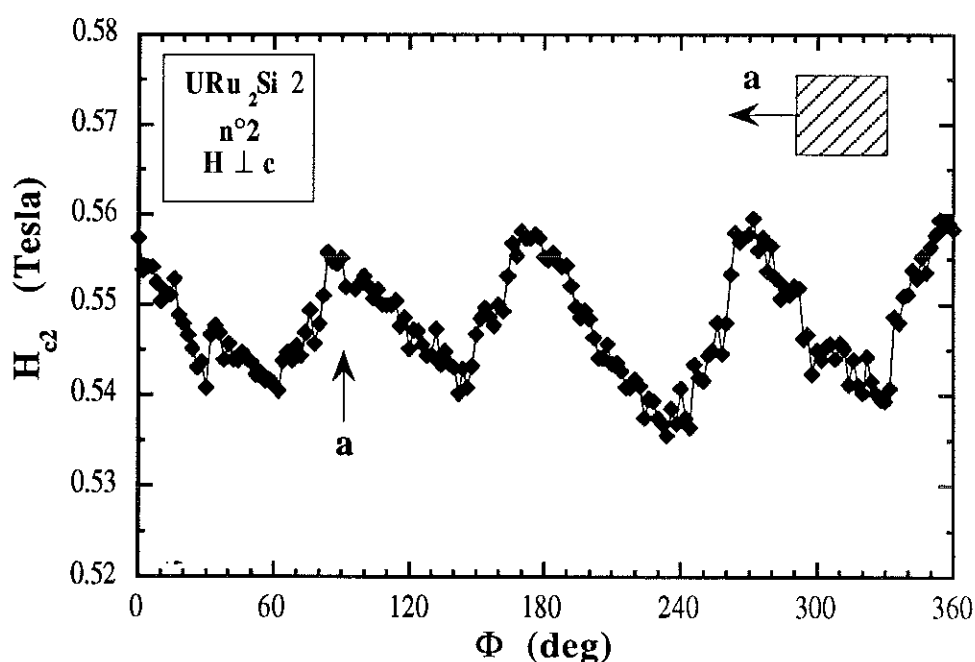


Figure 5.11: $H_{c2}(\Phi)$ calculé à partir des mesures de $\rho(\Phi)$ et corrigé pour la composante $R(2)$ des harmoniques ($T = 1.29$ K, $H = 0.55$ Tsla). L'insert montre la section des échantillons étudiés.

Il est alors possible d'interpréter ce comportement avec le modèle de Burlachkov [Burlach85], ce qui indiquerait qu'effectivement une supraconductivité de type "d" (représentation E_1 du paramètre d'ordre) est réalisée dans le composé URu₂Si₂. Cependant, il est aussi indispensable de considérer la géométrie réelle de l'échantillon étudié (insert dans la figure 5.11). Celui-ci possède une section rectangulaire. Ainsi, la

deuxième explication possible de cette modulation de $H_{c2}(\Phi)$ consiste en une contribution de la supraconductivité de surface qui sera responsable de la modulation d'ordre quatre comme dans le cas des whiskers d' UPt_3 . La forme et la position des maxima et minima de $H_{c2}(\Phi)$ ne permet pas d'en décider définitivement. Toutefois, il est possible de comparer le $H_{c2}(\Phi)$ à un modèle de $H_{c3}(\Phi)$ qui superpose quatre surfaces pour former une section rectangulaire (cp. UPt_3 ; chapitre III.3.1.2). La variation angulaire de $H_{c3}(\Phi)$, calculé et représenté comme ligne continue dans la figure 5.12a, est beaucoup plus prononcé (facteur de 1.65) que l'anisotropie d'ordre quatre de $H_{c2}(\Phi)$ mesurée ($\diamond$: URu_2Si_2). De plus, la variation angulaire de $H_{c2}(\Theta)$ entre le plan basal et l'axe c ne montre aucune trace des effets de surface lorsque le champ magnétique est orienté parallèlement à c (figure 5.9) (cp. monocristaux de UPt_3 , chapitre III.3.2.2). Néanmoins, la possibilité d'une contribution faible des effets de surface ne peut pas être exclue.

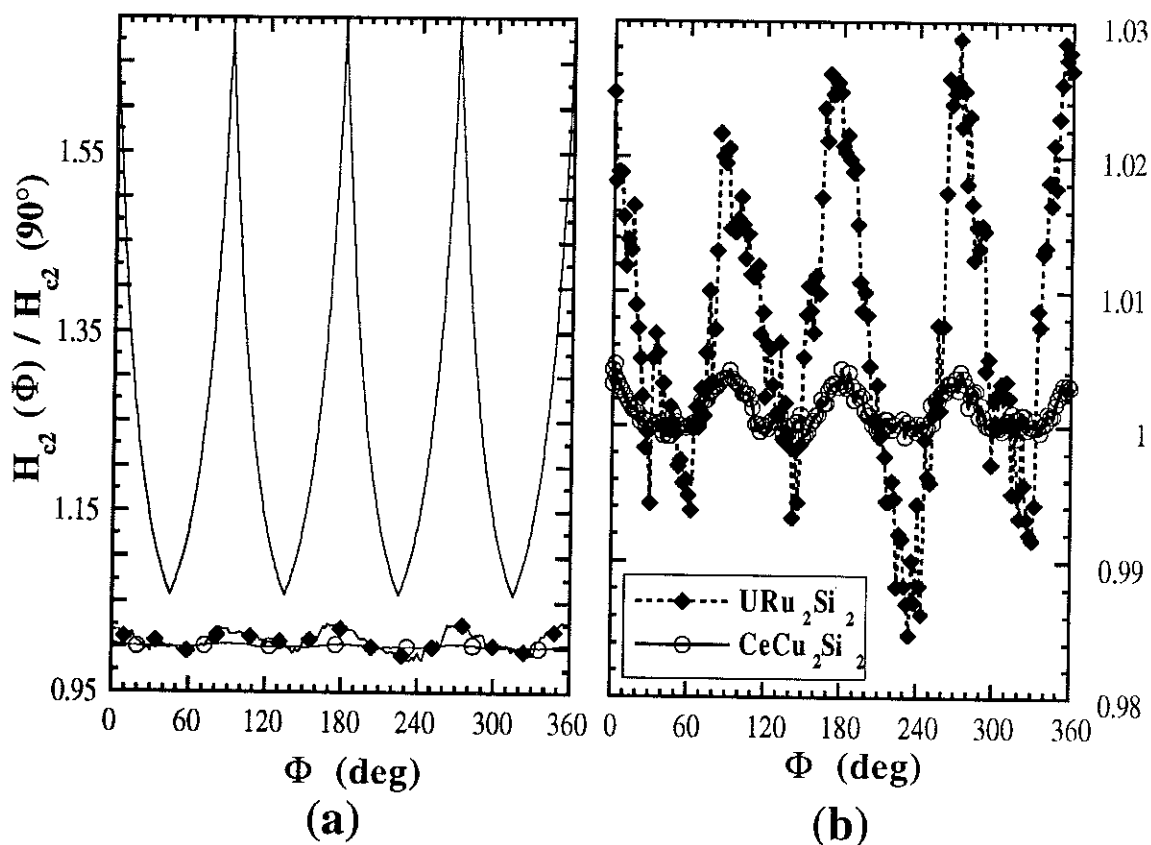


Figure 5.12: Comparaison de l'anisotropie de $H_{c2}(\Phi)$ ayant une périodicité de 90° avec un modèle de supraconductivité de surface (cp. UPt_3). La figure (a) montre l'amplitude relative de l'anisotropie dans URu_2Si_2 ($\diamond$) avec le signal observé pour $CeCu_2Si_2$ ($\circ$) et le modèle de supraconductivité. La figure (b) compare les courbes de URu_2Si_2 ($\diamond$) et de $CeCu_2Si_2$ ($\circ$).

Ainsi, il semble obligatoire de supprimer les effets de surface d'une manière efficace pour pouvoir distinguer entre une supraconductivité non conventionnelle dans URu₂Si₂ et une supraconductivité de surface. Un moyen déjà discuté dans le chapitre II.2 consiste à déposer une couche mince métallique sur la surface, afin de changer les conditions de bord qui mènent au H_{c3}. Nous avons préparé un autre échantillon qui a été coupé à côté de l'échantillon n°3 et qui a subi le même traitement thermique. Sur la zone centrale entre les contacts de tension une couche d'or avec une épaisseur de $\sim 72 \text{ \AA}$ a été déposée par E. Bedin (DRF-MC/ST/CEA). Ceci devrait inhiber le développement de la supraconductivité de surface. Cet échantillon reste à étudier.

En conclusion, nos mesures de H_{c2}(Φ) ont montré pour la première fois qu'une modulation d'ordre quatre est présente dans le champ critique ($H_{\perp c}$) de URu₂Si₂. Pour le moment son origine ne peut être associée avec certitude à une supraconductivité non conventionnelle, car la possibilité des effets de surface persiste. Une étude supplémentaire d'un échantillon doté d'une couche métallique semble urgente afin de distinguer entre les deux effets.

Chapitre VI

Le composé $CeCu_2Si_2$

VI. Le composé CeCu_2Si_2

VI.1 Introduction

Historiquement, CeCu_2Si_2 est le premier supraconducteur à très basses température ($T_c \approx 0.6 \text{ K}$) pour lequel Steglich *al.el.* [Steglich79] ont introduit le concept de "composé à fermions lourds", pour tenir compte du terme de la chaleur spécifique, $\gamma_e T$, élevé. Le composé CeCu_2Si_2 possède une structure tétragonale (figure 6.1) de type ThCr_2Si_2 avec une symétrie de groupe point $I4/mmm$ et des paramètres de maille $a = 4.102 \text{ \AA}$ et $c = 9.223 \text{ \AA}$. Actuellement CeCu_2Si_2 est toujours l'unique composé à base de Cerium qui soit supraconducteur à pression ambiante (étude sous pression hydrostatique: [Thomas93]).

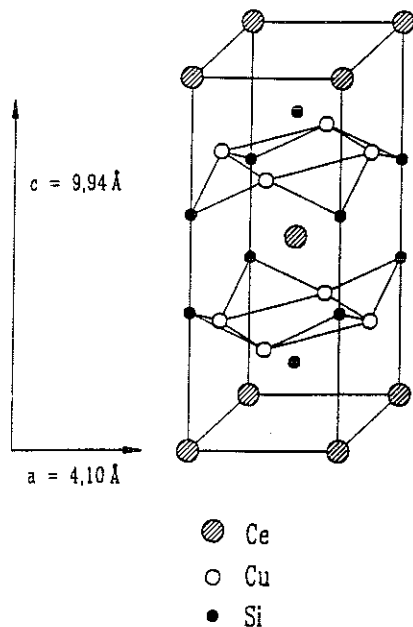


Figure 6.1: Structure de maille de CeCu_2Si_2 qui est de type ThCr_2Si_2 [Thomas93].

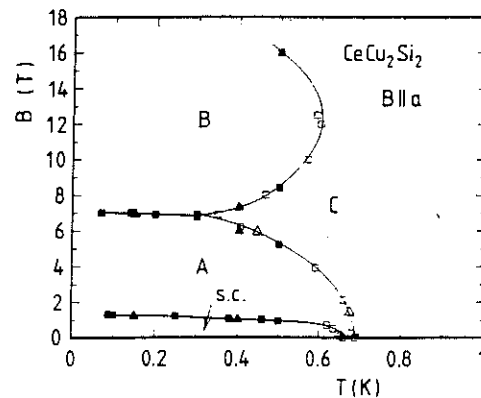


Figure 6.2: Diagramme de phase (B, T) de CeCu_2Si_2 pour $B//a$ qui montre une phase supraconductrice entourée par une phase magnétique complexe [Bruls94].

La supraconductivité de $\text{CeCu}_{2+\delta}\text{Si}_2$ dépend fortement de la concentration δ en Cu. Une déficience d'environ 10% de cuivre ($\delta \approx -0.1$) suffit à supprimer complètement la supraconductivité [Ishikaw83]. Ainsi, la température critique T_c peut varier de 0 à $\sim 0.65 \text{ K}$ (pour $\delta \approx 0$) en fonction de δ à la pression ambiante. Le diagramme de phase est présenté dans la figure 6.2 [Bruls94]. Dans la phase supraconductrice ($T < \sim 0.6 \text{ K}$, $H < \sim 1.5 \text{ Tesla}$) les lignes, $H_{c2}(T)$, présentent des pentes initiales $\partial H_{c2}/\partial T$ très élevées de $\sim -20 \text{ Tesla/K}$. Les pentes des $H_{c2}(T)$ sont inversement proportionnelles aux vitesses de Fermi qui sont très lentes ($\approx 5 \cdot 10^5 \text{ cm/s}$). Ceci avec l'anomalie de C_p indique la

participation des quasi-particules lourdes à la supraconductivité ($m^* \approx 300 m_e$). De plus, les lignes de phases seaturent très rapidement au-dessous de $T \approx 0.5$ K et le $H_{c2}(0)$ est d'un facteur deux plus petit que la valeur calculée selon une approche standard ($H_{c2}(0) \approx -0.7T_c \partial H_{c2}/\partial T$) [Rauchsc85]. Ceci montre qu'un mécanisme supplémentaire à la limitation orbitale du $H_{c2}(T)$ est présent. Rauchschalbe *et.al.* [Rauchsc85] ont montré que le diagramme de phase peut s'expliquer par une limitation de Pauli du champ critique. Comme pour les composés UPt_3 et URu_2Si_2 , le composé $CeCu_2Si_2$ est un candidat possible pour une supraconductivité non conventionnelle. Des mesures de RMN, faites par Asayama *et.al.* [Asayama88], ont montré que la relaxation spin-réseau nucléaire T_1^{-1} ne décroît pas d'une façon exponentielle suivant les prédictions de la théorie BCS dans l'état supraconducteur, mais varie en T^3 . Un paramètre d'ordre de type "p" ou "d" montre des lignes et / ou des points où le gap s'annule sur la surface de Fermi ce qui se traduit par des lois de puissances de la température des différentes propriétés physiques comme la chaleur spécifique, la conduction thermique, l'atténuation ultrasonore et la RMN [revue Ott87]. Le Knight shift, complémentaire à T_1^{-1} , présente une décroissance dans l'état supraconducteur par rapport à l'état normal qui est une indication d'un paramètre d'ordre de parité paire. Comme une limitation de Pauli des champs critiques, selon Rauchschwalbe *et.al.* [Rauchsc85], n'est pas possible pour une supraconductivité de type "p", l'ensemble des résultats est interprété comme une évidence pour une supraconductivité de type "d" avec une parité paire du paramètre d'ordre.

Les autres phases du diagramme de phase (figure 6.2) ont été étudiées par RMN [Nakamur88], relaxation de spin des muons (μ^+SR) [Uemura89], l'effet de Haas - van Alphen [Hunt90], dilatation thermique et atténuation ultrasonore [Wolf93, Bruls94]. La phase 'A', existant pour des champs inférieurs à 7 Tesla, est interprétée comme une phase de densité de spin, de densité de charge ou comme phase verre de spin qui entoure complètement la phase supraconductrice, mais qui ne coexiste pas avec la supraconductivité pour des champ magnétiques $H < 1$ Tesla.

En résumé, la supraconductivité de $CeCu_2Si_2$ est supposée de type "d" avec une parité paire, elle ne coexiste pas avec un ordre magnétique comme dans les systèmes UPt_3 et URu_2Si_2 .

Suivant l'approche de Burlachkov [Burlach85] et similaire au cas de URu_2Si_2 , il serait possible de mettre en évidence directement une supraconductivité non conventionnelle au moyen de l'observation d'une modulation de symétrie quatre dans la variation angulaire de $H_{c2}(\Phi)$ dans le plan tétragonal. Dans ce but, nous avons étudié la variation angulaire des champs critiques $H_{c2}(\Theta, \Phi, T)$ d'un échantillon de $CeCu_2Si_2$, qui a été élaboré par W. Assmus à Frankfurt.

VI.2 Anisotropie des champs critiques

L'échantillon (#5, tirage W.Assmus 16/9/92, morceau Y2) que nous avons étudié présente la composition nominale CeCu_2Si_2 ($\delta \approx 1$) [Thomas93] avec un T_c de 615.8 mK. La courbe de résistivité à la transition supraconductrice (insert de figure 6.3) montre une largeur de transition $\Delta T_c = 7.1$ mK (10% - 90% de ρ_n) et un élargissement au pied de la transition. La résistivité résiduelle de cet échantillon s'extrapole à $\rho_0 \approx 20 \mu\Omega\text{cm}$ qui est plus élevée que ρ_0 dans UPt_3 et URu_2Si_2 . La forme de la transition ne change pas sous application d'un champ magnétique. Le diagramme de phase des $H_{c2}(T)$ (figure 6.3), déterminé selon les températures à mi-valeur de ρ_n , est faiblement anisotrope à bas champ avec des pentes initiales très élevées de -25.75 Tesla/K ($H//c$) et -21.72 Tesla/K ($H//a$) en accord avec les mesures de Rauchschwalbe *et.al.* [Rauchsc85]. L'anisotropie des pentes initiales vaut 1.2. L'élargissement de la transition disparaît successivement avec l'application du champ magnétique et sa présence n'interfère pas avec la détermination des champ critique, car seule la zone linéaire de $\rho(T)$ dans la transition est utilisée pendant la mesure (voir annexe I.5).

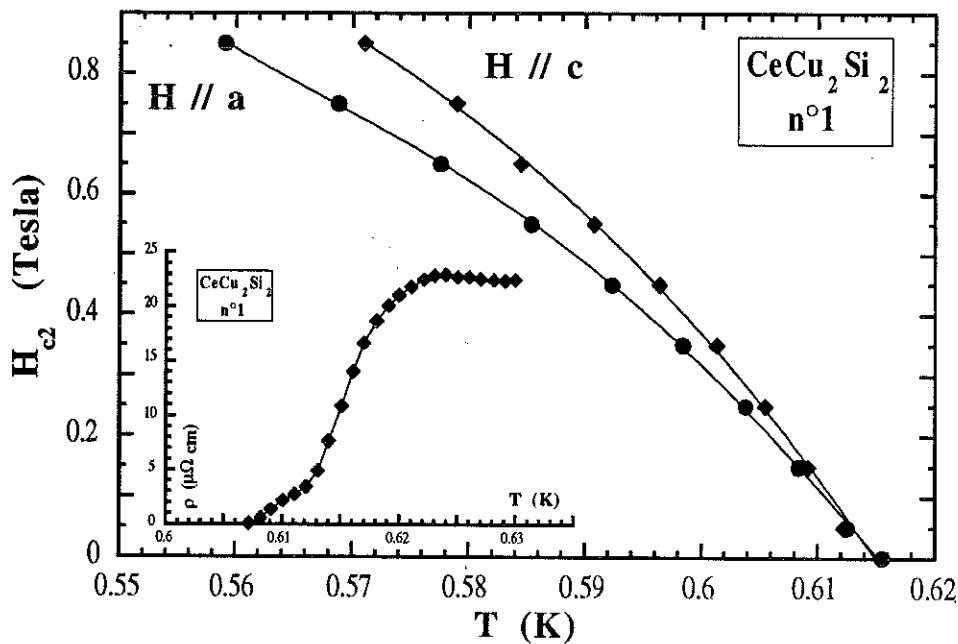


Figure 6.3: $H_{c2}(T)$ selon $H//c$ et $H//a$ selon l'échantillon n°1 de CeCu_2Si_2 . L'insert montre la transition supraconductrice mesurée par résistivité à champ nul.

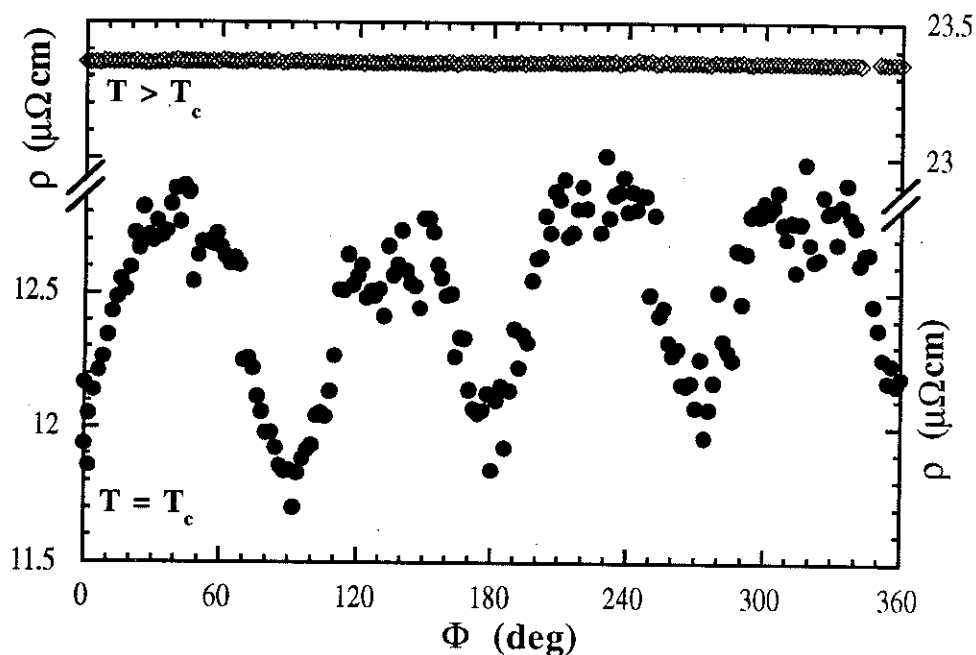


Figure 6.5: Magnétorésistance angulaire $\rho(\Phi)$ selon une rotation du champ magnétique dans le plan tétragonal pour l'état normal ($T > T_c$, 620 mK et 0.75 Tesla) et pour l'état supraconducteur ($\bullet$: 566 mK et 0.75 Tesla).

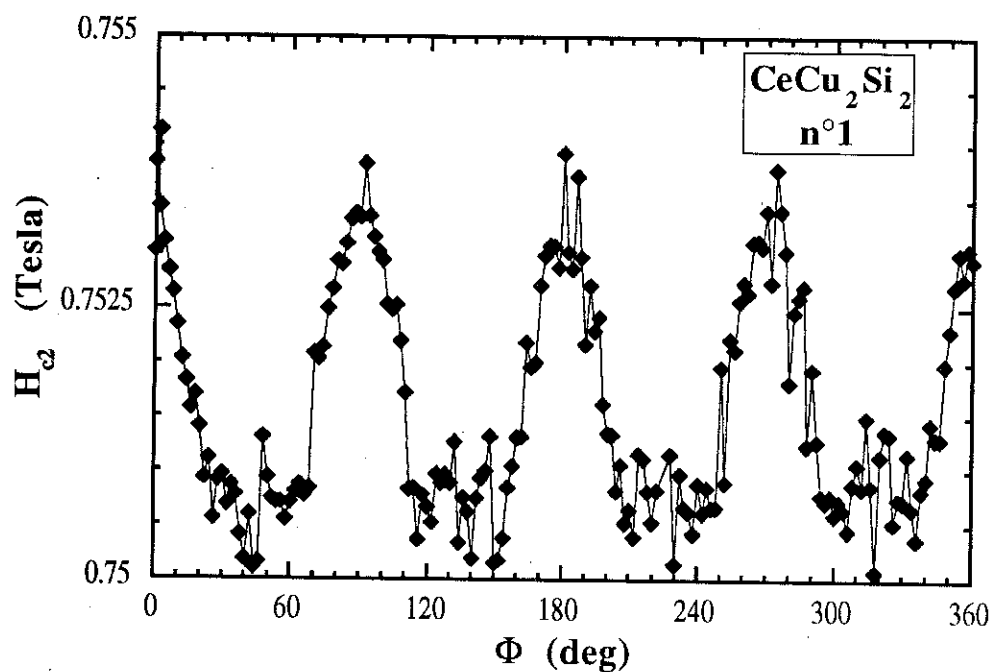


Figure 6.6: $H_{c2}(\Phi)$ de CeCu_2Si_2 (n°1) calculé selon la mesure de $\rho(\Phi)$ ($T = 620 \text{ mK}$ et $H = 0.75 \text{ Tesla}$) et corrigé pour une modulation $R(2)$ (après une analyse de Fourier).

Nous avons mesuré le $H_{c2}(\Theta)$ entre le plan tétragonal et l'axe c à une température $T = 0.595 \text{ K}$ ($t = T / T_c = 0.966$). La mesure est montrée dans la figure 6.4. La formule III.3.1 décrit convenablement la variation angulaire de $H_{c2}(\Theta)$ avec un paramètre $\varepsilon^2 = 0.665$ qui reflète l'anisotropie des pentes initiales (~ 1.2). Mais comme pour UPt_3 et URu_2Si_2 , aussi pour CeCu_2Si_2 le modèle simple des masses effectives est seulement approprié dans la région du diagramme de phase linéaire en température près de T_c . A plus basses températures l'effet de limitation du champ critique due au paramagnétisme de Pauli est considérable et change le rapport $\varepsilon^2 = H_{c2,||c} / H_{c2,||a}$.

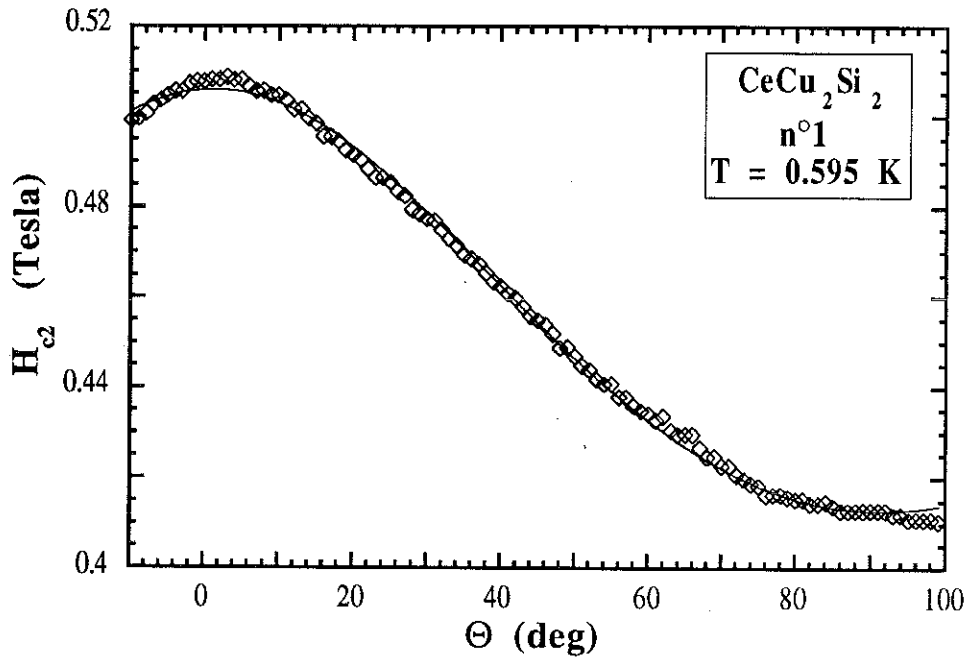


Figure 6.4: $H_{c2}(\Theta)$ mesuré à la température $T = 0.595 \text{ K}$. L'ajustement présenté par la ligne (—) correspond à la formule III.3.1 (modèle des masses effectives anisotropes).

En ce qui concerne la variation angulaire du champ critique dans le plan tétragonal, nous avons étudié la résistivité $\rho(\Phi)$ dans l'état normal et à la transition supraconductrice à différentes températures (595 mK et 566 mK). La figure 6.5 montre la résistivité dans l'état normal ($T = 620 \text{ mK}$ et $H = 0.75 \text{ Tesla}$) en comparaison avec $\rho(\Phi)$ mesurée à la transition supraconductrice ($T = 566 \text{ mK}$ et $H = 0.75 \text{ Tesla}$). La modulation observée avec périodicité de 90° est une propriété de la phase supraconductrice, car la résistivité dans l'état normal du plan tétragonal est isotrope. Comme pour UPt_3 et URu_2Si_2 il est possible (après une analyse de Fourier) de soustraire les composantes d'ordre deux et de calculer le $H_{c2}(T)$ à partir de la mesure de $\rho(\Phi)$, comme représenté dans la figure 6.6. Des maxima peuvent être observés chaque fois que le champ magnétique est orienté parallèlement à deux surfaces de l'échantillon (cp. géométrie de la section dans l'insert de la figure 6.6). Similaire aux études de URu_2Si_2 et de UPt_3 , nous avons comparé les

résultats au même modèle de supraconductivité de surface qui considère une section rectangulaire de l'échantillon (chapitre V.4b). L'amplitude de la modulation de $H_{c2}(\Phi)$ est dix fois plus petit que celle observée dans URu_2Si_2 (figure 5.12b) et la variation angulaire est plus homogène et pratiquement pas visible en comparaison avec le $H_{c3}(\Phi)$ calculé (figure 5.12a, ligne continue). Toutefois, comme cet échantillon de $CeCu_2Si_2$ possède une section rectangulaire et même si la variation angulaire entre l'axe c et le plan basal ne montre pas d'influence des effets de surfaces, celles-ci ne peuvent pas être exclues définitivement. De plus, la mesure du champ critique dans le plan tétragonal à $H = 0.41$ Tesla montre le même comportement angulaire, mais l'amplitude relative des pics $|\Delta H / H|$ est deux fois plus grande, ce qui ressemble au comportement du H_{c3} dans les whiskers de UPt_3 . Les valeurs sont mentionnées dans le tableau T.VI.1. Néanmoins, la variation angulaire de $H_{c2}(\Phi)$ ne possède pas des pics si prononcés comparés à ceux observés pour les whiskers de UPt_3 , donc nos mesures peuvent aussi bien indiquer qu'un paramètre d'ordre de type "d" est réalisé.

T (mK)	t	H_{c2} (Tesla)	ΔH_{c2} (mTesla)	$ \Delta H_{c2} / H_{c2} $
595	0.966	0.41	≈ 3	0.73 %
566	0.919	0.75	≈ 2.8	0.37 %

Tableau T.VI.1: Variation thermique de l'anisotropie d'ordre quatre de $H_{c2}(T)$

A l'égard de l'anisotropie du $H_{c2}(\Phi)$ dans le plan tétragonal aucune conclusion définitive en faveur d'une supraconductivité non conventionnelle ne peut être prise actuellement, malgré cette première observation d'une modulation de symétrie quatre. Comme pour URu_2Si_2 , il est encore possible que cette modulation avec périodicité de 90° de $H_{c2}(\Phi)$ est liée aux effets de surface. Des mesures à plus forts champs doivent être menées pour suivre le comportement thermique de cette modulation qui semble disparaître sous champ magnétique comme pour les whiskers de UPt_3 (ce qui sera contraire aux prédictions d'une supraconductivité de surface). Une évidence directe de la présence des effets de surface serait leur suppression par un dépôt métallique à surface de l'échantillon comme nous l'avons suggéré également pour URu_2Si_2 .

Chapitre VII

Conclusion

VII. Conclusion

Les composés à fermions lourds étudiés, UPt_3 , URu_2Si_2 et CeCu_2Si_2 , sont considérés comme des candidats à l'existence d'une supraconductivité non conventionnelle. Entre autre, cette supraconductivité non conventionnelle devrait se traduire par une variation angulaire du deuxième champ critique $H_{c2}(\Theta, \Phi, T)$. L'étude présentée dans cette thèse a porté sur la mesure de la variation angulaire de $H_{c2}(\Theta, \Phi, T)$ dans ces trois composés.

Afin d'étudier l'anisotropie de $H_{c2}(\Theta, \Phi, T)$ à très basses températures ($T < 4.5 \text{ K}$) et en fonction de l'orientation du champ magnétique par rapport au système cristallographique, nous avons construit et mis au point un nouveau dispositif expérimental. Le dispositif expérimental consiste en un ensemble de trois bobines supraconductrices dont les axes forment un référentiel cartésien et dans lequel s'insère un réfrigérateur à dilution miniaturisé. L'échantillon à étudier est fixé au point froid de la dilution et positionné au centre des bobines de champ magnétique. Une alimentation séparée de chaque bobine permet d'orienter la résultante du champ ($H_{\text{max}} = 0.85 \text{ Tesla}$) dans toutes les directions spatiales avec une grande précision angulaire de 0.1° .

Les propriétés supraconductrices observées lors des mesures des composés UPt_3 , URu_2Si_2 et CeCu_2Si_2 ont pu être séparées en en deux catégories:

- effets d'une supraconductivité de surface et
- effets d'une supraconductivité non conventionnelle intrinsèque.

Le composé UPt_3

En ce qui concerne le composé UPt_3 , nous avons montré que la variation angulaire des champs critiques mesurés pour les whiskers, n°1 et n°2, est fortement influencée par la géométrie réelle des échantillons. Notamment, nous avons pu décrire la variation $H_{c3}(\Theta)$ entre le plan basal et l'axe c par une supraconductivité de surface dans le cadre d'un modèle qui considère une surface de Fermi anisotrope avec des masses effectives de quasi-particules différentes suivant les axes a et c ($m_{//c} \neq m_{\perp c}$). De même la variation angulaire $H_{c3}(\Phi)$ dans le plan hexagonal, qui présente des pics très pointus tous les 60° , s'exprime bien dans ce modèle. La géométrie réelle des whiskers, dont la section possède une symétrie d'ordre six, domine la variation angulaire du champ critique $H_{c3}(\Phi)$. Toutefois, la disparition des effets de surface sous champ magnétique ne peut pas être interprétée par les modèles de supraconductivité de surface classiques.

Afin de distinguer les effets de surfaces des effets intrinsèques d'une supraconductivité non conventionnelle, nous nous sommes concentrés sur l'étude de monocristaux de section rectangulaire.

Les résultats obtenus permettent d'éliminer les effets de surfaces résiduels. Ils mettent en évidence une variation angulaire $H_{c2}(\Phi)$ intrinsèque, qui confirme l'existence d'une supraconductivité non conventionnelle ayant un paramètre d'ordre à plusieurs composantes. Ils se résument en trois points essentiels:

- (1) *La discontinuité de pente du $H_{c2}(T)$ à la température T^* est présente pour toutes les orientations du champ magnétique dans le plan basal.*
- (2) *Le $H_{c2}(T)$ présente une anisotropie suivant les directions $H//a$ et $H//a^*$ avec une périodicité de 60° dans le plan basal.*
- (3) *L'anisotropie entre $H//a$ et $H//a^*$ est renversée en fonction de la température au moment du passage de la phase A (haute température $T > T^*$, faible champ) à la phase C (basse température $T < T^*$, haut champ).*

En particulier, l'observation du renversement de signe de cette anisotropie dans le $H_{c2}(\Phi)$ à T^* (point (3)) présente une évidence directe et *entièrement nouvelle* que le paramètre d'ordre change entre les phases A et C du diagramme de phase. Ces nouveaux résultats permettent d'exclure certains des modèles théoriques proposés pour la supraconductivité de UPT_3 , notamment tous les modèles qui prédisent une isotropie de $H_{c2}(\Phi)$. Les modèles théoriques proposés d'une part par Ozaki et Machida [Ozaki92] et d'autre part par Mineev [Mineev94] sont partiellement en accord avec le $H_{c2}(\Phi)$ observé. Leurs modèles se basent sur des paramètres d'ordre non conventionnels (1D-REP) de parité impaire (chapitres III.1.2, III.3.2.3). Le changement d'anisotropie entre la phase A et la phase C peut être expliqué par un changement de paramètre d'ordre à T^* . La symétrie hexagonale de la surface de Fermi, qui est prise en compte dans le modèle de Mineev, décrit bien l'anisotropie de $H_{c2}(\Phi)$ dans la phase C, mais le comportement thermique dans la phase A n'est pas reproduit. Dans ce modèle l'origine du point tétracritique reste accidentelle. En ce qui concerne le modèle d'Ozaki et de Machida qui prédit le point tétracritique du diagramme de phase à partir d'un couplage entre antiferromagnétisme et supraconductivité, il ne peut pas rendre compte d'une anisotropie de $H_{c2}(\Phi)$ dans la phase C.

L'anisotropie de $H_{c2}(T)$ entre le plan basal et l'axe c s'inverse à $T_{cr} \approx T_c / 2$ et le diagramme de phase présente des lignes de phases ($H//c$ et $H//a$) qui se croisent à T_{cr} .

Un renforcement de $H_{c2}(T)$ pour $H//a$ par rapport au cas d'une supraconductivité isotrope est observé qui peut être expliqué par considération d'une surface de fermi hexagonale. Le croisement des lignes de phases se décrit en terme d'une limitation de Pauli unidirectionnelle de $H_{c2}(T)$ pour $H//c$ selon un modèle de Choi et Sauls [Choi91] qui considère un paramètre d'ordre non conventionnel de représentation 1D où 2D avec une parité impaire. Aussi la variation angulaire de $H_{c2}(\Theta)$ ne s'exprime plus en termes d'un modèle simple (masses effectives anisotropes) en-dessous de $T \approx 400$ mK et indique la présence d'un autre mécanisme dans le H_{c2} que la limitation orbitale.

Les composés URu₂Si₂ et CeCu₂Si₂

En ce qui concerne URu₂Si₂, les propriétés supraconductrices (T_c , ΔT_c) dépendent fortement du traitement thermique où mécanique [Schmidt93] infligée aux échantillons. Un recuit après coupe par électro-érosion améliore considérablement la largeur de transition (facteur trois!). Nos mesures de $H_{c2}(\Phi)$ ont montré pour la première fois qu'une modulation d'ordre quatre est présente dans le champ critique ($H \perp c$) de URu₂Si₂. Pour le moment son origine ne peut pas être associée avec certitude à une supraconductivité non conventionnelle, car la possibilité des effets de surface persiste. Une étude supplémentaire d'un échantillon doté d'une couche métallique semble urgent afin de distinguer entre les deux effets. Un échantillon a été muni d'une couche mince d'or et les mesure de $\rho(\Phi)$ sont en préparation actuellement. En ce qui concerne le diagramme de phases, tous les deux lignes de phases $H//c$ et $H//a$ semblent subir la limitation de Pauli. Toutefois, l'anisotropie est considérable (~ 5 à basses températures) et $H_{c2}(T)$ pour $H//c$ montre une limitation plus forte que pour $H//a$ la suppression préférentielle selon la direction $H//c$ n'est pas considérée dans les modèles classiques, mais dernièrement le modèle de Brison *et.al.* [Brison94B] qui considère l'antiferromagnétisme selon une approche de type BCS semble prometteur [Buzdin94].

A l'égard de l'anisotropie du $H_{c2}(\Phi)$, observée dans le plan tétragonal du composé CeCu₂Si₂, une conclusion définitive en faveur d'une supraconductivité non conventionnelle ne peut pas être établi malgré notre première observation d'une modulation de symétrie quatre. Comme pour URu₂Si₂, il est encore possible que cette modulation avec périodicité de 90° de $H_{c2}(\Phi)$ soit (partiellement ou totalement) liée aux effets de surface. Des mesures à plus forts champs doivent être menées pour suivre le comportement thermique de cette modulation qui semble disparaître sous champ magnétique comme pour les whiskers de UPt₃. Ici aussi, il faudrait tenter de supprimer les effets de surface (si ce sont des effets de surface) par un dépôt métallique à surface de l'échantillon comme nous l'avons suggéré également pour URu₂Si₂ et étudier la modulation restante.

Résumé et perspectives

L'étude de la dépendance angulaire du deuxième champ critique dans les supraconducteurs UPt_3 , URu_2Si_2 et CeCu_2Si_2 s'est montrée très riche en phénomènes nouveaux:

La contribution de la supraconductivité de surface lié à la géométrie dans les mesures de résistivité a été mise en évidence pour les whiskers de UPt_3 . Un changement de la géométrie a permis de détecter pour la première fois une modulation intrinsèque d'ordre six de $H_{c2}(\Phi)$ due à un paramètre d'ordre non conventionnel. Ceci montre clairement que le paramètre d'ordre supraconducteur réalisé dans UPt_3 possède plusieurs composantes.

En ce qui concerne nos mesures des composés URu_2Si_2 et CeCu_2Si_2 , ils présentent une modulation de $H_{c2}(\Phi)$ de symétrie quatre qui n'avait jamais été observé jusqu'à présent. En premier vue une interprétation selon un paramètre d'ordre de type "d" se propose, mais des efforts supplémentaires sont nécessaires afin d'avoir la certitude que les effets de surface ne sont pas présents dans ces faibles modulations du $H_{c2}(\Phi)$. Par exemple, un dépôt d'une couche métallique sur la surface devrait inhiber les effets de géométrie.

Nos résultats ont apporté des informations nouvelles et très précieuses pour l'orientations des modèles théoriques. Néanmoins, il reste quelques questions ouvertes (nouvelles et anciennes):

- En ce qui concerne la supraconductivité de surface, la suppression progressive de $H_{c3}(T)$ sous champ magnétique dans UPt_3 (et peut-être aussi dans CeCu_2Si_2) n'est pas explicable en termes des modèles existants et pose des questions sur la nature du H_{c3} . Une étude approfondie de la variation thermique sous champ magnétique sera nécessaire pour une comparaison quantitative avec les modèles théoriques.
- Il semble indispensable de supprimer les effets de surface d'une manière fiable (dépôt d'une couche métallique où magnétique?) afin d'avoir directement accès aux propriétés intrinsèques des phases supraconductrices de URu_2Si_2 et CeCu_2Si_2 .
- La supraconductivité non conventionnelle dans UPt_3 garde toujours le secret de ses origines. Une étude sous pression hydrostatique de l'anisotropie dans le plan basal pourra aider à les comprendre. Le modèle de Mineev prédit la suppression du renversement d'anisotropie sous pression hydrostatique, par contre dans le modèle de Ozaki et Machida une suppression les moments antiferromagnétiques supprimera complètement l'anisotropie de $H_{c2}(\Phi)$. Ainsi, une distinction en faveur d'une des approches sera possible.

Chapitre VIII

Références

VIII. Références

- [Abrikos65] A.A. Abrikosov
Sov.Phys. JETP**20**(2), 480-488 (1965)
- [Abrikos88] A.A. Abrikosov
"Fundamentals of the theory of metals "
Elsevier Science Publishers B.V., Amsterdam, Oxford, New York,
Tokyo, 1988
- [Adenwal92] S. Adenwalla, J.B. Ketterson, S.W. Lin, M. Levy, B.K. Sarma
J. Alloys Comp. **181**, 153-159 (1992)
- [Aeppli88] G. Aeppli, E. Bucher, C. Broholm, J.K. Kjems, J. Baumann, J.
Hufnagel
Phys. Rev. Lett. **60**(7), 615-618 (1988)
- [Aeppli89] G. Aeppli, D. Bishop, C. Broholm, E. Bucher, K. Siemensmeyer,
M. Steiner, N. Stüsser
Phys. Rev. Lett. **63**(6), 676-679 (1989)
- [Asayama88] K. Asayama, Y. Kitaoka, Y. Kohori
J. Magn. Magn. Mat. **76&77**, 499-454 (1988)
- [Barash92] Y.S. Barash, A.V. Galaktionov
Zh. Eksp. Teor. Fiz. **101**, 1689-1697 (1992) (Sov. Phys. JETP
74(5), 900-904 (1992))
- [Barbara88] B. Barbara, D. Gignoux, C. Vettier
"Lectures on Modern Magnetism "
Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1988
- [Behnia90A] K.Behnia
Thèse Université Paris VI, 1989
- [Behnia90B] K. Behnia, L. Taillefer, J. Flouquet
J. Appl. Phys. **67**(9), 5200-5202 (1990)
- [Blount85] E. Blount
Phys. Rev. B**22**, 2935 (1985)
- [Blount90] E.I. Blount, C.M. Varma, G. Aeppli
Phys. Rev. Lett. **64**(25), 3074-3077 (1990)
- [Bogenbe93] B. Bogenberger, H. von Löhneysen, T. Trappmann, L. Taillefer
Physica B**186-188**, 248-250 (1993)
- [BonMard64] G. Bon Mardion, B.B. Goodman, A. Lacaze
Phys. Lett. **8**(1), 15-17 (1964)

- [Brison94A] J.P. Brison, N. Keller, P. Lejay, A. Huxley, L. Schmidt, S. Buzdin, N. Bernhoeft, V.P. Mineev, A.N. Stepanov, J. Flouquet, D. Jaccard, S. Julian, G. Lonzarich
à paraître dans *Physica B* (1994)
- [Brison94B] J.P. Brison, P. Lejay, A. Buzdin, J. Flouquet
à paraître (1994)
- [Brison94C] J.P. Brison, N. Keller, P. Lejay, J.L. Tholence, A. Huxlay, N. Bernhoeft, A. Buzdin, B. Fåk, J. Flouquet, L. Schmidt, A. Stepanov, R.A. Fischer, N. Phillips, C. Vettier
J. Low Temp. Phys. **95**(1/2), 145-152 (1994)
- [Broholm87] C.L. Broholm, J.K. Kjems, W.J.L. Buyers, P. Matthews, T.T.M. Palstra, A.A. Menovsky, A.L. Giorgi
Phys.Rev.Lett. **57**, 1467 (1987)
- [Broholm88] C.L. Broholm
Thèse Université Copenhagen, Danmark (1988)
- [Broholm90] C.L. Broholm, G. Aeppli, R.N. Kleinman, D.R. Harshman, D.J. Bishop, E. Bucher, D.Ll. Williams, E.J. Ansaldo, R.H. Heffner
Phys. Rev. Lett. **65**, 2062-2065 (1990)
- [Bruls90] G.J.C.L. Bruls, D. Weber, B. Wolf, B. Lüthi, A.A. Menovsky, A. de Visser, J.J.M. Franse
preprint LT-19 (1990)
- [Bruls94] G. Bruls, B. Wolf, D. Finsterbusch, P. Thalmeier, I. Kouroudis, W. Sun, W. Assmus, B. Lüthi, M. Lang, K. Gloos, F. Steglich, R. Modler
Phys. Rev. Lett. **72**(11), 1754-1757 (1994)
- [Burger64] J.P. Burger, G. Deutscher, E. Guyon, A. Martinet
Solid State Comm. **2**, 101-103 (1964)
- [Burlach85] L.I. Burlachkov
Zh. Eksp. Teor. Fiz. **89**, 1382-1388 (1985) (*Sov. Phys. JETP* **62**(4), 800-803 (1985))
- [Buzdin94] A. Buzdin
communication personnelle (1994)
- [Chen93] D.C. Chen, A. Garg
Phys. Rev. Lett. **70**(11), 1689-1692 (1993)
- [Choi91] C.H. Choi, J.A. Sauls
Phys. Rev. Lett. **66**(4), 484-487 (1991)

- [Choi93] C.H. Choi, J.A. Sauls
Phys. Rev. B**48**(18), 13684-13690 (1993)
- [Clogsto62] A.M. Clogston
Phys. Rev. Lett. **9**(6), 266-267 (1962)
- [Cordier85] G. Cordier, B.E. Czech, H. Schäfer, P. Woll
J. of Less Comm. Met. **110**, 327 (1985)
- [deGenne66] P.G. de Gennes
"Superconductivity of metals and alloys "
W.A. Benjamin Inc., New York, Amsterdam, 1966
- [deLong90] L.E. DeLong, D. Togliatti, G.W. Lehman, W.K. Kwok, G.W. Crabtree, K.G. Vandervoort, D.G. Hinks
Physica B**163**, 499-603 (1990)
- [Deutsch69] G. Deutscher, P.G. de Gennes, p.1030
"Superconductivity "
ed. R.D. Parks, Marcel Dekker Inc., New York, 1969
- [deVisse86] A. deVisser, F.E.Kayzel, A.A. Menovsky, J.J.M. Franse, J. van den Berg, G.J. Nieuwenhuys
Phys. Rev. B**34**, 8168 (1986)
- [deVisse87] A. deVisser, A. Menovsky, J.J.M. Franse
Physica **147B**, 81-160 (1987)
- [Eggebre92] E. Eggebrecht, A. Eggebrecht, N. Grube
"Die Welt der Maya "
Roemer - Pelizeus - Museum, Hildesheim
Verlag Phillip von Zabern, Mainz, 1992
- [Fisher89] R.A. Fisher, S. Kim, B.F. Woodfield, N.E. Phillips, L. Taillefer, K. Hasselbach, J. Flouquet, A.L. Giorgi, J.L. Smith
Phys. Rev. Lett. **62**(12), 1411-1414 (1989)
- [Fisher90] R.A. Fischer, S. Kim, Y. Wu, N.E. Phillips, M.W. McElfresh, M.S. Torikachvili, M.B. Maple
Physica B**163**, 419 (1990)
- [Fisher91] R.A. Fisher, B.F. Woodfield, S. Kim, N.E. Phillips, L. Taillefer, A.L. Giorgi, J.L. Smith
Solid State Comm. **80**(4), 263-266 (1991)
- [Flouquet91] J. Flouquet, J.P. Brison, K. Hasselbach, L. Taillefer, K. Behnia, D. Jaccard, A. de Visser
Physica C**185-189**, 372-378 (1991)

- [Fukase87] T. Fukase, Y. Koike, T. Nakanomyo, Y. Shiokawa, A.A. Menovsky, J.A. Mydosh
Jap. J. of Applied Phys. **26**(3), 1249 (1987)
- [Fulde88] P. Fulde
J. Phys. F: Met. Phys. **18**, 601-639 (1988)
P. Fulde, J. Keller, G. Zwicknagel
"Theory of Heavy Fermion Systems "
Solid State Physics vol.**41**, p.1-150, eds. H. Ehrenreich, D. Turn-bull, Academic Press, 1988
- [Garg94] A. Garg, D.C. Chen
Phys. Rev. B**49**(1), 479-493 (1994)
- [Goldman86] A.I. Goldman, G.S hirane, G. Aeppli, B. Batlogg, E. Bucher
Phys. Rev. B**34**(9), 6564-6566 (1986)
- [Gor'kov87] L.P. Gor'kov
Soc. Sci. Rev. A. Phys. **9**, 1-116 (1987)
- [Gross90] F. Gross
Thèse TU - München, Allemagne (1990)
- [Gross91] F. Gross-Alltag, B.S. Chandrasekhar, D. Einzel, P.J. Hirschfeld, K. Andres
Z. Phys. B - Condens. Mat. **82**, 243-255 (1991)
- [Gygax64] S. Gygax, R.H. Kropschot
Phys. Lett. **9**(2), 91 (1964)
- [Hahn87] T. Hahn ed.
"International Tables for Crystallography "
2nd ed., Vol. A, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht - Pays-Bas (1987)
- [Hasselb89] K. Hasselbach, L. Taillefer, J. Flouquet
Phys. Rev. Lett. **63**(1), 93-96 (1989)
- [Hasselb90] K. Hasselbach, A. Lacerda, K. Behnia, L. Taillefer, J. Flouquet, A. deVisser
J. Low Temp. Phys. **81**(5/6), 299-315 (1990)
- [Hasselb91A] K. Hasselbach
Thèse Université Karlsruhe (TH), Allemagne (1991)
- [Hasselb91B] K. Hasselbach, P. Lejay, J. Flouquet
Phys. Lett. A**156**(6), 313-316 (1991)
- [Hasselb92] K. Hasselbach, J.R. Kirtley, P. Lejay
Phys. Rev. B**46**(9), 5826-5829 (1992)

- [Hayden92] S.M. Hayden, L. Taillefer, C. Vettier, J. Flouquet
Phys. Rev. B**46**(13), 8675-8678 (1992)
- [Helfand66] E. Helfand, N.R. Wertheimer
Phys. Rev. **147**(1), 288-294 (1966)
N.R. Wertheimer, E. Helfand, P.C. Hohenberg
Phys. Rev. **147**(1), 295-302 (1966)
- [Hempste64] C.F. Hempstead, Y.B. Kim
Phys. Rev. Lett. **6**(12), 145-148 (1964)
- [Hess89] D.W. Hess, T.A. Tokuyasu, J.A. Sauls
J. Phys.: Condens. Matter **1**, 8135-8145 (1989)
- [Huff84] S. Huff
"The Mayan Calendar Made Easy"
Area Maya Edition, Merida de Yucatan, Mexico, 1984
- [Hunt90] M. Hunt, P. Meeson, P.A. Probst, P. Reinders, M. Springford, W. Assmus, W. Sun
Physica B**165&166**, 337-338 (1990)
- [Hurault66] J.P. Hurault, Phys. Lett. **20**(6), 587-588 (1966)
- [Hurd74] C.M. Hurd
Adv. Phys. **23**(2), 315-433 (1974)
- [Ishikaw83] M. Ishikawa, H.F. Braun, J.L. Jorda
Phys. Rev. B**27**, 3092 (1983)
- [Jaccard85] D. Jaccard, J. Flouquet, P. Lejay, J.L. Tholence
J. Appl. Phys. **57**(1), 3082-3083 (1985)
- [Joynt88] R. Joynt
Superc. Sci. Technol. **1**, 210-217 (1988)
- [Joynt90] R. Joynt, V.P. Mineev, G.E. Volovik, M.E. Zhitomirsky
Phys. Rev. B**42**(4), 2014-2022 (1990)
- [Joynt92] R. Joynt
J. Magn. Magn. Mat. **108**, 31-34 (1992)
- [Julian92] S.R. Julian, P.A.A. Teunissen, S.A. Wieggers
Phys. Rev. B**46**(15), 9821-9824 (1992)
- [Knetsch92] E.A. Knetsch, J.A. Mydosh, T. Vorenkamp, A.A. Menovsky
J.Magn.Magn.Mater.**108**, 75-76 (1992)
- [Knetsch93] E.A. Knetsch
Thèse Rijksuniversiteit Leiden, Pays-Bas (1993)
- [Kohori88] Y. Kohori, T. Kohara, H. Shibai, Y. Oda, Y. Kitaoka, K. Asayama
J. Phys. Soc. Jpn. **57**(2), 395-397 (1988)

- [Kulik69] I.O. Kulik
Sov. Phys. JETP **28**, 461-468 (1969) (Zh. Teor. Fiz. **55**, 889-903 (1968))
- [Kwok90] W.K. Kwok, L.E. DeLong, G.W. Crabtree, D.G. Hinks, R. Joynt
Phys. Rev. B**41**(16), 11649-11652 (1990)
- [Lee86] P.A. Lee, T.M. Rice, J.W. Serene, L.J. Sham, J.W. Wilkins
Comments Condens. Mat. Phys. **12**, 99 (1984)
- [Leggett75] A.J. Leggett
Rev. Mod. Phys. **47**, 331 (1975)
- [Lin94] S.W. Lin, C. Jin, H. Zhang, J.B. Ketterson, D.M. Lee, D.G. Hinks, M. Levy, B.S. Sarma
Phys. Rev. B**49**(14), 10001-10004 (1994)
- [Machida89] K. Machida, M. Ozaki, T. Ohmi
J. Phys. Soc. Jpn. **58**(11), 4116-4131 (1989)
- [Maki64] K. Maki
Physics **1**(2), 127-143 (1964)
- [Maki66] K. Maki
Phys. Rev. **148**(1), 362-369 (1966)
- [Maple86] M.B. Maple, J.W. Chen, Y. Dalichaouch, T. Kohra, C. Rossel, M.S. Torikachili, M.W. McElfresh, J.D. Thompson
Phys. Rev. Lett. **56**, 185 (1986)
- [Mason90] T.E. Mason, H. Lin, M.F. Collins, W.J.L. Buyers, A.A. Menovsky, J.A. Mydosh
Physica B**163**, 45-48 (1990)
- [Meserve69] R. Meservey, B.B. Schwartz, p.167
"Superconductivity "
ed. R.D. Parks, Marcel Dekker Inc., New York, 1969
- [Mineev90] V.P. Mineev
à paraître 1990
- [Mineev94] V.P. Mineev
à paraître 1994
- [Minenko83] E.V. Minenko
Fiz. Nizk. Temp. **9**, 1036-1045 (1983) (Sov. J. Low Temp. Phys. **9**(10), 535-540 (1983))

- [Morley83] S.G. Morley, G.W. Brainerd
"The ancient Maya "
 4th edition, revised R.J. Sharer, Stanford University Press,
 Stanford California, 1983
- [Moshcha88] V.V. Moshchalkov, F. Aliev, V. Kovachik, M. Zayaljutdinov,
 T.T.M. Palstra, A.A. Menovsky, J.A. Mydosh
 J. Appl. Phys. **63**(8), 3414-3416 (1988)
- [Nakamur88] H. Nakamura, Y. Kitaoka, H. Yamada, K. Asayama, J. Magn.
 Magn. Mater. **76&77**, 517-519 (1988)
- [Norman88] M.R. Norman, R.C. Albers, A.M. Boring, N.E. Christensen
 Solid State Comm. **68**(2), 245-249 (1988)
- [Oguchi85] T. Oguci, A.J. Freeman
 J. Magn. Magn. Mat. **52**, 174-178 (1986)
- [Oguchi87] T. Oguci, A.J. Freeman, G.W. Crabtree
 Phys. Lett. A **117**(8), 428-432 (1986)
- [Ott87] H.R. Ott
 Progr. Low Temp. Phys. **XI**, 217 (1987)
- [Ott92] H.R. Ott
 Int. J. Mod. Phys. B **6**(5&6), 473-496 (1992)
- [Ozaki85] M. Ozaki, K. Machida, T. Ohmi
 Prog. Theor. Phys. **74**(2), 221-235 (1985)
- [Ozaki89] M. Ozaki, K. Machida
 Phys. Rev. B **39**(7), 4145-4163 (1989)
- [Ozaki92] M. Ozaki, K. Machida
 J. Phys. Soc. Jpn. **61**(4), 1277-1286 (1992)
- [Palstra85] T.T.M. Palstra, A.A. Menovsky, J. van den Berg, A.J. Dirkmaat,
 P.H. Kes, G.J. Nieuwenhuys, J.A. Mydosh
 Phys. Rev. Lett. **55**(24), 2727-2730 (1985)
- [Palstra86] T.T.M. Palstra, A.A. Menovsky, J.A. Mydosh
 Phys. Rev. B **33**(1), 6527-6530 (1986)
- [Piquema87] F. Piquemal, J. Flouquet, J.L. Tholence, J.J.M. Franse, A.
 Menovsky
 J. Magn. Magn. Mater. **63&64**, 469-471 (1987)
- [Piquema88] F. Piquemal
 Thèse Université de ParisVII, 1988

- [Qian87] Y.J. Qian, M.F. Xu, A. Schenstrom, H.P. Baum, J.B. Ketterson, D. Hinks, M. Levy, B.K. Sarma
Solid State Comm. **63**(7), 599-602 (1987)
- [Ramirez91] A.P. Ramirez, T. Sigrist, T.T.M. Palstra, J.D. Garrett, E. Brück, A.A. Menovsky, J.A. Mydosh
Phys. Rev. B **44**, 5392 (1991)
- [Rauchsc85] U. Rauchschwalbe, U. Ahlheim, F. Steglich, D. Rainer, J.J.M. Franse
Z. Phys. B-Condens. Mat. **60**, 379-386 (1985)
- [Rieck91] C.T. Rieck
Thèse Université de Hamburg (RFA), 1991
C.T. Rieck, K. Scharnberg, N. Schopohl
J. Low Temp. Phys. **84**(5/6), 381-464 (1991)
- [SaintJa63] D. Saint-James, P.G. de Gennes
Phys. Lett. **7**(5), 306-308 (1963)
- [Sauls94] J.A. Sauls
J. Low Temp. Phys. **95**(1/2), 153-168 (1994)
- [Schenst89] A. Schenstrom, M.F. Xu, Y. Hong, D. Bein, M. Levy, B.K. Sarma, S. Adenwalla, Z. Zhao, T. Tokuyasu, D.W. Hess, J.B. Ketterson, J.A. Sauls, D.G. Hinks
Phys. Rev. Lett. **62**(3), 332-335 (1989)
- [Schlabi84] W. Schlabititz, J. Baumann, J. Diesing, W. Krause, G. Neumann, C.D. Bredl, U. Ahlheim, H.M. Mayer, U. Rauchschwalbe
IV International Conference on Valence Fluctuations, ICVF, Cologne (1984), non - publié
- [Schlabi86] W. Schlabititz, J. Baumann, B. Pollit, U. Rauchschwalbe, H.M. Mayer, U. Ahlheim, C.D. Bredl
Z. Phys. B **62**, 171 (1986)
- [Schmidt93] L. Schmidt
Thèse Université Joseph-Fourier Grenoble I, France (1993)
- [Shivara86] B.S. Shivaram, T.F. Rosenbaum, D.G. Hinks
Phys. Rev. Lett. **57**(10), 1259-1262 (1986)
- [Shivara89] B.S. Shivaram, J.J. Gannon, D.G. Hinks
Phys. Rev. Lett. **63**(16), 1723-1726 (1989)
- [Smith67] A.C. Smith, J.F. Janak, R.B. Adler
"Electronic conduction in solids "
McGrawHill, New York, 1967

- [Smith69] T.F. Smith, C.W. Chu, M.B. Maple
Cryogenics **9**, 53-56 (1969)
- [Steglich79] F. Steglich, J. Aarts, C.D. Bredl, W. Lieke, D. Meschede, W. Franz, H. Schäfer
Phys. Rev. Lett. **43**(25), 1892-1895 (1979)
- [Steglich90] F. Steglich
"Earlier and Recent Aspects of Superconductivity "
Springer Series in Solid-State Sciences, Vol. 90, Eds.: J.G. Bednorz, K.A. Müller, Springer-Verlag Berlin, Heidelberg 1990
- [Sulpice86] A. Sulpice, P. Gandit, J. Chaussy, J. Flouquet, D. Jaccard, P. Lejay, J.L. Tholence
J. Low Temp. Phys. **62**(1/2), 39-54 (1986)
- [Sundara89] S.K. Sundaram, R. Joynt
Phys. Rev. B **40**(13), 8780-8776 (1989)
- [Sundara91] S.K. Sundaram, R. Joynt
Phys. Rev. Lett. **66**(4), 512-515 (1991)
- [Taillef87] L. Taillefer, R. Newbury, G.G. Lonzarich, Z. Fisk, J.L. Smith
J. Magn. Magn. Mat. **63&64**, 372-376 (1987)
- [Taillef88A] L. Taillefer, G.G. Lonzarich
Phys. Rev. Lett. **60**(15), 1570-1573 (1988)
- [Taillef88B] L. Taillefer, F. Piquemal, J. Flouquet
Physica C **155**, 451-452 (1988)
- [Taillef88C] L. Taillefer, J. Flouquet, W. Joss
J. Magn. Magn. Mater. **76&77**, 218-220 (1988)
- [Taillef90A] L. Taillefer, K. Behnia, K. Hasselbach, J. Flouquet, S.M. Hayden, C. Vettier
J. Magn. Magn. Mater. **90&91**, 623-627 (1990)
- [Taillef90B] L. Taillefer
Physica B **163**, 278-284 (1990)
- [Taillef91] L. Taillefer, J. Flouquet, G. Lonzarich
Physica B **169**, 257-270 (1991)
- [Thalmei91] P. Thalmeier, B. Wolf, D. Weber, G. Bruls, B. Lüthi, A.A. Menovsky
Physica C **175**, 61 (1991)
- [Thomas93] F. Thomas
Thèse - Université Joseph Fourier Grenoble I, France (1993)

- [Tinkham75] M. Tinkham
"Introduction to superconductivity "
 MacGraw-Hill, New York, 1975
- [Tomasch64] W.J. Tomasch, A.S. Joseph
 Phys. Rev. Lett. **12**(6), 148-150 (1964)
- [Toyota76] N. Toyota, H. Nakatsuji, N. Noto, A. Hoshi, N. Kobayshi, Y. Muto, Y. Onodera
 J. Low Temp. Phys. **25**(3/4), 485-499 (1976)
- [Trappma91] T. Trappmann, H. von Löhneysen, L. Taillefer
 Phys. Rev. B **43**(16), 13714-13716 (1991)
- [Ueda85] K. Ueda, T.M. Rice
 Phys. Rev. B **31**(11), 7114-7119 (1985)
- [Uemura89] Y.J. Uemura, W.J. Kossler, X.H. Yu, H.E. Schone, J.R. Kempton, C.E. Stronach, S. Barth, F.N. Gygax, B. Hitti, A. Schank, C. Baines, W.F. Lankford, Y. Onuki, T. Komatsubara
 Phys. Rev. B **39**(7), 4726-4729 (1989)
- [v.Löhne94] H. von Löhneysen
 Physica B **197**, 551-562 (1994)
- [vanDijk93] N.H. vanDijk, A. deVisser, J.J.M. Franse, S. Holtmeier, L. Taillefer, J. Flouquet
 Phys. Rev. B **48**(2), 1299-1302 (1993)
- [VanGeld71] A.P. vanGelder, J.W. Hendriks, P. Wyder
 Phys. Rev. B **4**(9), 2950-2957 (1971)
- [Vincent91] E. Vincent, J. Hammann, L. Taillefer, K. Behnia, N. Keller, J. Flouquet
 J. Phys.: Condens. Matt. **3**, 3517-3525 (1991)
- [Volovik85] G.E. Volovik, L.P. Gor'kov
 Sov. Phys. JETP **61**(4), 843-854 (1985)
- [Wang87] C.S. Wang, M.R. Norman, R.C. Albers, A.M. Boring, W.E. Pickett, H. Krakauer, N.E. Christensen
 Phys. Rev. B **35**(13), 7260-7263 (1987)
- [Wolf93] B. Wolf, G. Bruls, W. Sun, W. Assmus, B. Lüthi, H. Schimanski, K. Gloos, F. Steglich
 Physica B **186-188**, 279-281 (1993)
- [Wüchner93] S. Wüchner, N. Keller, J.L. Tholence, J. Flouquet
 Solid State Comm. **85**(4), 355-360 (1993)

- [Yamafuj66] K. Yamafuji, E. Kusayanagi, F. Irie
Phys. Lett. **21**(1), 11-13 (1966)
- [Yip93] S. Yip, A. Garg
Phys. Rev. B **48**(5), 3304-3308 (1993)
- [Younger80] D.W. Youngner, R.A. Klemm
Phys. Rev. B **21**(9), 3890-3896 (1980)
- [Zhao90] Z. Zhao, J.B. Ketterson, Y. Guan, B.K. Sarma, D.G. Hinks
Physica B **165&166**, 345-346 (1990)

Annexe I

Dispositif expérimental

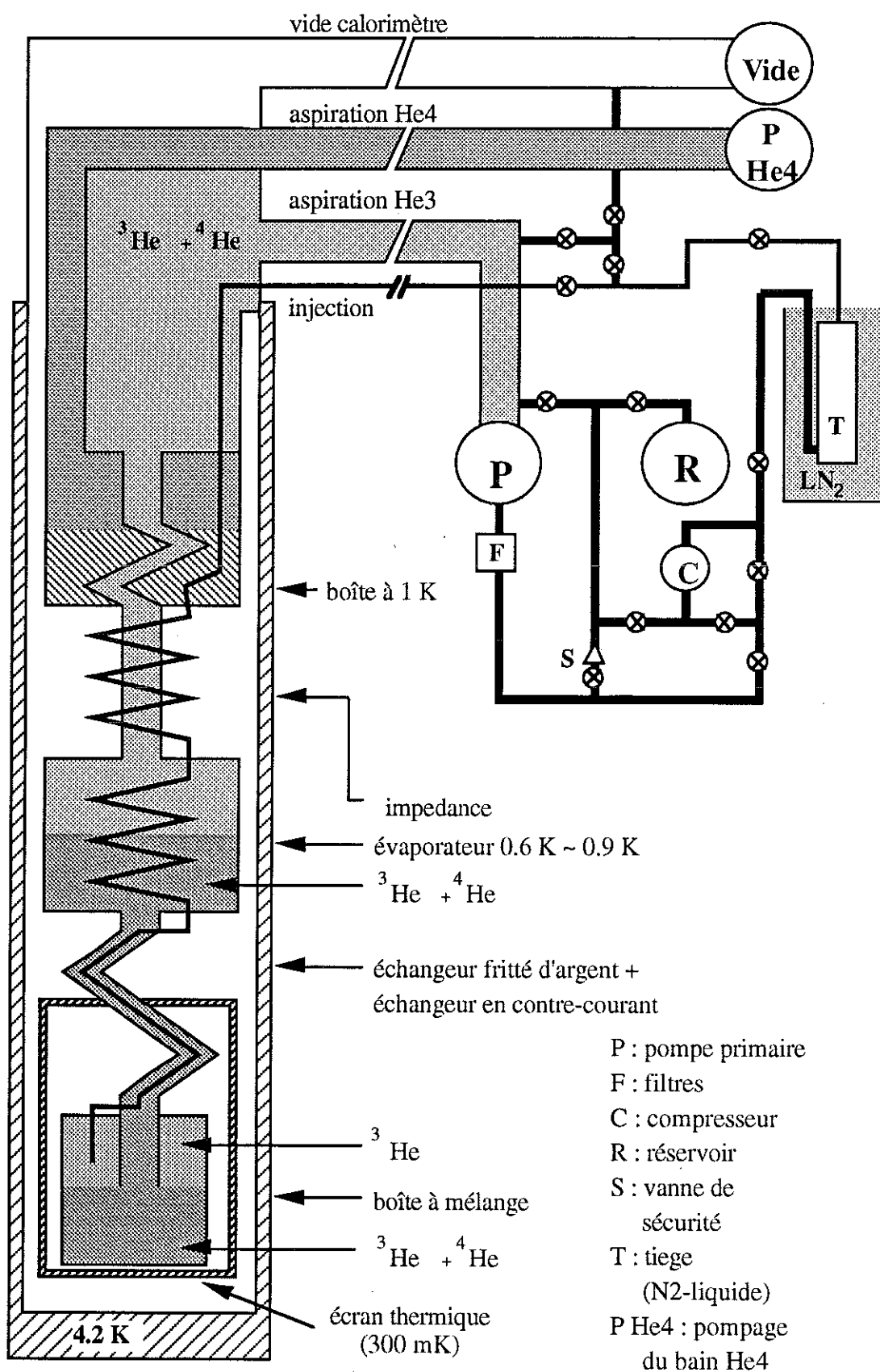


Figure A.I.1: Schéma du réfrigérateur à dilution miniaturisé ($\phi 38$ mm) - "diluette".

Annexe I. Dispositif expérimental

La résistivité et la susceptibilité ont été mesurées en fonction de l'orientation spatiale du champ magnétique par rapport aux axes cristallographiques de l'échantillon. Le dispositif expérimental nécessaire a été construit en cours de cette thèse et se constitue des parties suivantes:

- *un système de refroidissement à très basse température (réfrigérateur à dilution)*
- *un système d'orientation spatiale du champ magnétique*
- *une commande automatisée de toutes les composantes de mesure.*

L'étude angulaire des champs critiques nécessite la détermination de l'orientation des axes cristallographique par rapport aux axes du référentiel des bobines. Suite à la description du dispositif expérimental les méthodes de mesure comme:

- *la détermination de l'orientation d'échantillon*
- *la mesure automatisée du deuxième champ critique*

sont précisées.

(1) Le système de refroidissement

Le système de refroidissement consiste en un réfrigérateur à dilution miniaturisé de diamètre $\phi 38$ mm qui a été développé au CRTBT (figure A.I.1). Le condensation du mélange $^3\text{He} - ^4\text{He}$ injecté, est assuré grâce à un boîte à 1 K (température minimale de $T_{\text{boîte 1K}} \approx 1.69$ K) qui est alimentée directement du bain d' ^4He à travers d'une impédance. Ensuite le liquide d'hélium 3 et d'hélium 4 est refroidi successivement dans l'évaporateur ($T_{\text{évap.}} \approx 0.85$ K), dans un échangeur continu en contre-courant ($T \approx 0.3$ K à la sortie) et dans un échangeur au fritté d'argent avant d'arriver dans la boîte à mélange. Un écran thermique peut être fixé sur une plaque intermédiaire entre les deux échangeurs discrets pour assurer une température de ~ 0.3 K autour de la boîte à mélange. En tout, la partie cryogénique possède une longueur de ≈ 17 cm entre la plaque de thermalisation à 4.2 K et la boîte à mélange avec un diamètre de $\phi 30$ mm. Cette "dilulette" permet une utilisation rapide et facile. Le temps nécessaire pour le refroidissement de 4.2 K vers une température de ≈ 60 mK est de l'ordre de quatre heures. A 100 mK la puissance frigorifique disponible est égale à $17 \mu\text{W}$, ce qui rend une stabilisation de la température difficile à plus basses températures (voir la courbe de puissance figure A.I.2, tracée pour un chauffage de 1.4 mW du bouilleur).

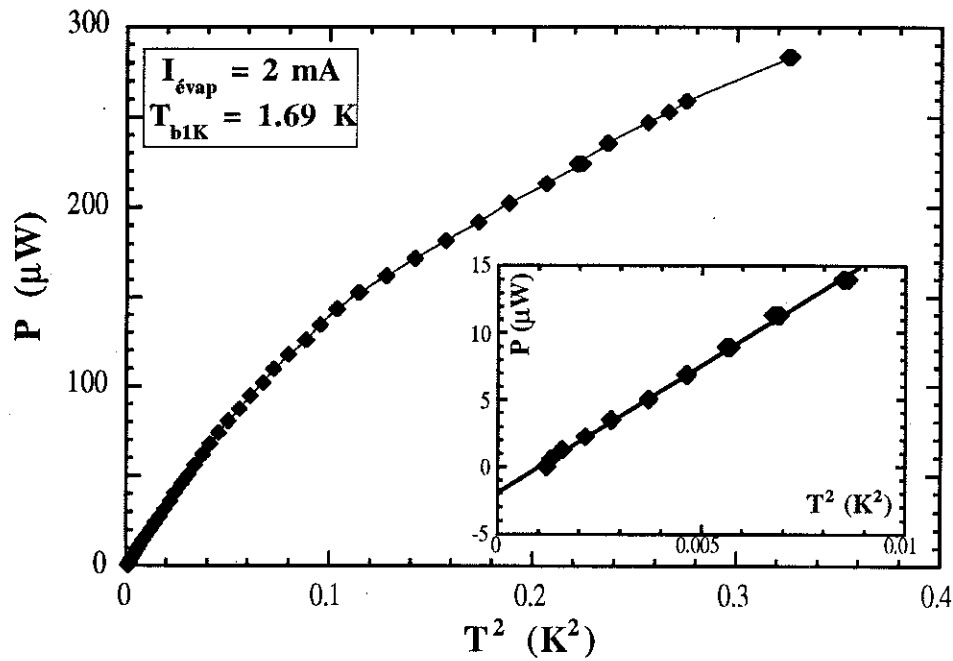


Figure A.I.2: Courbe de puissance pour un chauffage de 1.4 mW du bouilleur.

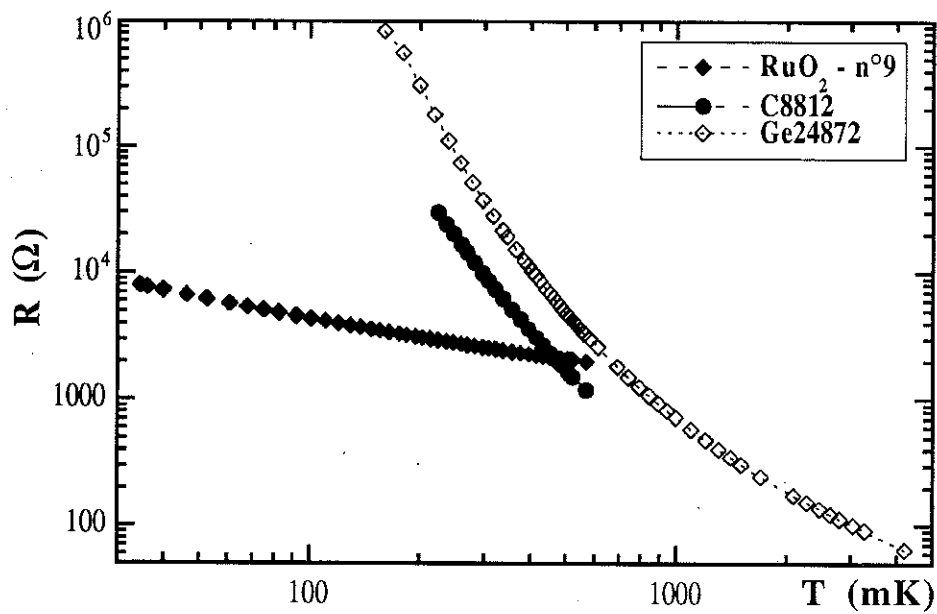


Figure A.I.3: Courbes d'étalonnages pour différents thermomètres utilisés (thermomètre de carbone C8812, de Germanium GE24872 et de Ruthénium-dioxyde $\text{RuO}_2 - n^{\circ 9}$)

On peut estimer l'amenée de chaleur due à la conduction thermique du support en extrapolant la courbe de puissance vers $T = 0$ K. Elle est de l'ordre de $1.7 \mu\text{W}$. D'autre part, la température minimale accessible est estimée à ~ 30 mK (figure A.I.2). La température minimale atteinte pendant les mesures est égale à 28 mK, ce qui confirme l'estimation à partir de la courbe de puissance, déterminée pour des températures plus élevées.

L'expérience physique est montée sur un porte - échantillon en cuivre et placée à 20 cm de distance de la boîte à mélange au centre d'un ensemble de bobines de champ. Le gradient de température mesuré entre la position de l'échantillons et la boîte à mélange est inférieur à 0.5 mK. L'utilisation d'un grand porte - échantillon en cuivre permet le montage de plusieurs dispositifs expérimentaux comme la résistivité en quatre fils, l'inductance mutuelle (χ_{ac}) ou la résistivité sous pression hydrostatique dans une petite bombe de pression.

Différents thermomètres ont été utilisés pendant les mesures. Dans la gamme de température de 4.2 K à 300 mK un thermomètre de carbone (C8812) et un thermomètre de germanium (GE24872 - Lake Shore) ont servi. A plus basse température (de 300 mK jusqu'à 20 mK) un thermomètre de Ruthénium-dioxyde (RuO_2 - n°9) a été utilisé. Les courbes d'étalonnages sont représentées pour les trois thermomètres (C8812, GE24872, RuO_2 -n°9) dans la figure A.I.3. Tous les thermomètres sont placés dans une région de champ faible ($H < 0.01$ Tesla). Le thermomètre GE24872 a été écranté du champ magnétique à l'aide d'un écran supraconducteur de plomb. Ainsi les problèmes de magnéto-résistance des thermomètres sous champ magnétique ont pu être évités. Les thermomètres GE24872 et RuO_2 -n°9 ont été étalonnés à partir de thermomètres primaires (susceptibilité paramagnétique du CMN, orientation nucléaire et points fixes (National Bureau of Standards (NBS)) par Dr. J.P.Brison (CRTBT).

(2) Orientation spatiale du champ magnétique

Une orientation spatiales du champ magnétique par rapport à un échantillon demande un dispositif expérimental permettant soit de varier l'orientation de l'échantillon par rapport à une direction fixe du champ (ce qu'il est difficile pour trois degrés de libertés et des rotations de 360°), soit une rotation de la résultante du champ magnétique ($\mathbf{H}$) par rapport à l'échantillon. La deuxième possibilité demande une assemblé de bobines créant un référentiel $\{\mathbf{x}_i\}$ dans lequel est placé l'échantillon avec son référentiel local $\{\mathbf{a}_i\}$. Le référentiel local $\{\mathbf{a}_i\}$ sert du référentiel pour la rotation du champ magnétique.

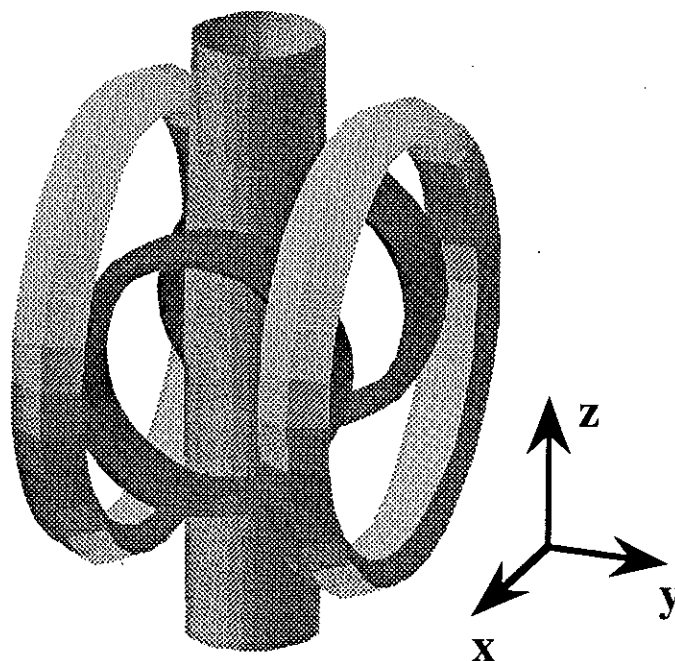


Figure A.I.4: Représentation schématique de l'arrangement des bobines supraconductrices.

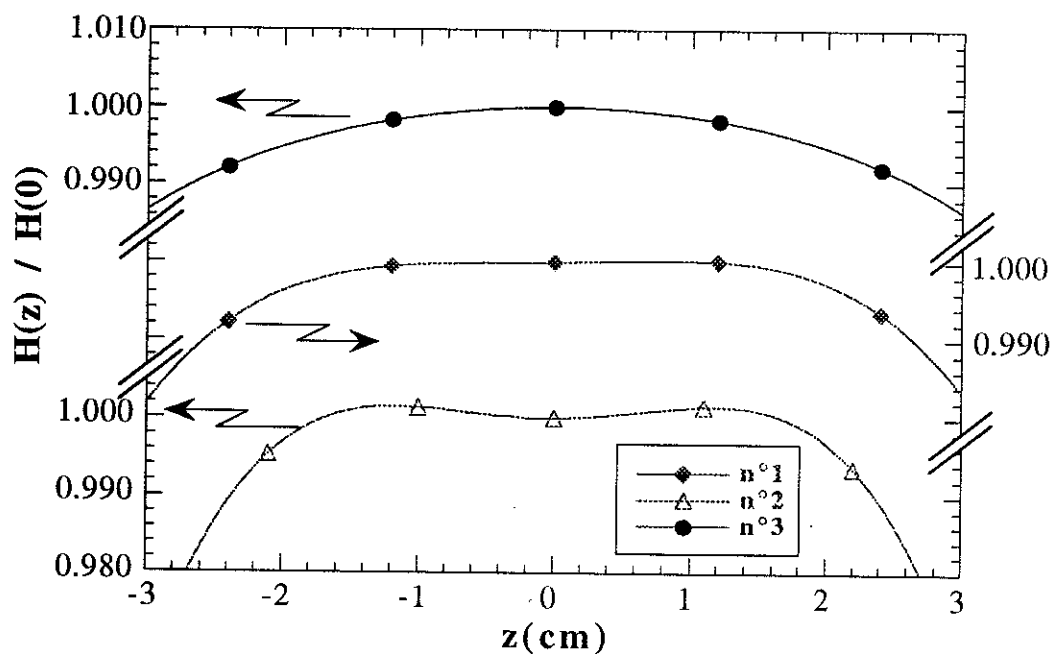


Figure A.I.5: Cartes de champ des deux paires de bobines "Helmholtz" (n°1, n°2) et du solénoïd (n°3).

La deuxième possibilité a été retenue et dans la suite les problèmes du dispositif expérimental, de la rotation du champ magnétique dans le référentiel $\{a_i\}$ (Annexe II), de l'orientation de l'échantillon dans le référentiel $\{x_i\}$ (Annexe I-4) et des propriétés de transport sous champ magnétiques (Annexe II) sont décrits.

La bobine "3 axes"

Le dispositif de rotation du champ consiste en un ensemble de cinq bobines supraconductrices faites au laboratoire de fil supraconducteur SUPERCON de $\phi 0.232\text{mm}$ à 583 filaments, dont deux paires de bobines Helmholtz et un solénoïd. Le tube central disponible pour les expériences a un diamètre de 30 mm (figure A.I.4). La carte du champ calculée pour chaque bobine ($n^{\circ}1$, $n^{\circ}2$, $n^{\circ}3$) qui est représentée dans la figure A.I.5 montre une zone de champ central possédant une homogénéité de $1 \cdot 10^{-3}$ sur ± 10 mm. Ces trois ensembles de bobines sont arrangés d'une façon que les axes principaux forment un référentiel cartésien. Une alimentation individuelle de chaque paire de bobines permet de créer une résultante du champ magnétique, qui peut être orientée dans tous les directions spatiales. L'amplitude maximale du champ est limitée à $|H_{\max}| = 0.85$ T. L'ensemble des trois paires de bobines a été calibré à l'aide de deux sondes à effet Hall. Elles ont été arrangées perpendiculairement l'une par rapport à l'autre, d'une manière à calibrer la rotation du champ magnétique dans tous les sens spatiales d'une façon continue. Le tableau A.I.I contient les valeurs des facteurs de conversion champ—courant pour chaque bobine. L'alimentation de courant est commandée numériquement à l'aide d'un ordinateur Apple IIGs. La résolution en courant de cette alimentation correspond à 0.92 mA/bit sur une gamme de ± 30 A. Les variations correspondantes du champ magnétique sont présentées dans le tableau A.I.I.

La précision angulaire de l'orientation se détermine à

- $|\Delta\phi| < 0.1^\circ$ dans le plan horizontal des bobines $n^{\circ}1$ et $n^{\circ}2$
- $|\Delta\theta| < 0.1^\circ$ suivant la direction verticale (bobine $n^{\circ}3$).

En amplitude la précision du champ magnétique est de l'ordre

- $|\Delta H / H| < 1\%$.

Par rapport à une rotation mécanique de l'échantillon sous champ magnétique, ce dispositif expérimental a plusieurs avantages. D'une part, la rotation de la résultante du champ magnétique est précise à 0.1° et aucun jeu des pièces mécaniques ne fausse

l'orientation exacte du champ par rapport au système cristallographique. D'autre part, une rotation très lente du champ magnétique limite le réchauffement de l'échantillon du aux courants de Foucault.

L'inconvénient de cette méthode consiste dans la perte de l'orientation du système cristallographique de l'échantillon par rapport aux axes du référentiel du champ $\{x_i\}$ en introduisant le cryostat de dilution au centre des bobines.

bobine	H [μ Tesla]	H / I [mTesla / A]
n°1	32 / bit	35.322
n°2	56 / bit	61.314
n°3	34 / bit	36.732

Tableau A.I.I. Résolution numérique en champ de l'alimentation de courant et facteurs de conversion pour chaque bobine.

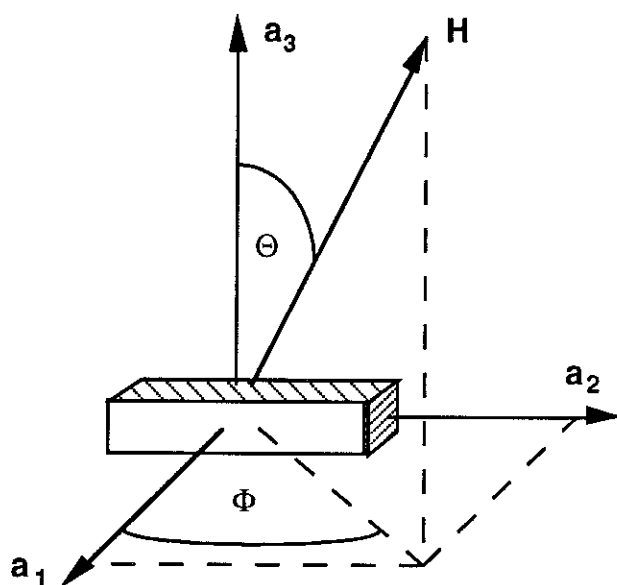


Figure A.I.6: Référentiel locale, dans lequel toutes les rotations du champ magnétique sont considérées ($H = H_0 (\cos\Phi \sin\Theta, \sin\Phi \cos\Theta, \cos\Theta)$).

Le logiciel développé en cours de cette thèse, permet de commander la triple alimentation des bobines pour une application spatiale du champ magnétique. La figure A.I.6 représente le référentiel local $\{a_i\}$ dans lequel le champ magnétique va être varié. Le système $\{a_i\}$ est déterminé dans le référentiel des bobines $\{x_i\}$ à l'aide des trois angles d'Euler (α, β, γ) (cf.figure A.II.1). Dans le système local $\{a_i\}$, le champ magnétique est caractérisé par son amplitude $|H|$ et les angles (Φ, Θ). Ainsi, la direction du champ magnétique dans le système $\{a_i\}$ nécessite une transformation des composantes vers le système de base $\{x_i\}$ des bobines. Cette transformation est

déterminée par les matrices de rotation (P_0 , P_0^I) qui sont décrites dans l'Annexe II. Pour plus de simplicité, les rotations du champ sont toujours entreprises dans le plan (a_1 , a_2) du système local. Suivant le plan de rotation du champ souhaité pendant la mesure, l'orientation du référentiel $\{a_i\}$ par rapport aux axes cristallographiques de l'échantillon est choisie à l'aide des angles d'Euler (α , β , γ).

La bobine "transversale"

L'étude angulaire de H_{c2} sous fort champ magnétique a été possible en remplaçant la bobine "3 axes" par une paire de bobines 'Helmholtz' supraconductrice, dont l'axe du champ est perpendiculaire par rapport à l'axe du cryostat à dilution. Ainsi, une rotation mécanique de la "dilulette" était nécessaire, afin d'étudier l'anisotropie des phases supraconductrices. En utilisant cette méthode de rotation, toutes les avantages de la bobine "3 axes", comme la précision angulaire et stabilité en température sont perdus. Néanmoins la précision angulaire est de l'ordre $\pm 0.5^\circ$ dans le plan (x_1 - x_2), déterminé grâce à un rapporteur géant et un repère fixé sur la canne à dilution. Cette bobine "transversale" permet d'obtenir un champ maximal de 4.3 Tesla (4.21 K) avec une ouverture centrale de $\phi 51$ mm. Le facteur de conversion courant - champ est égale à 0.0438 Tesla / Amp. L'homogénéité du champ magnétique est de 1.6% dans un rayon de 10 mm autour du centre.

(3) Automatisation

Toutes les composantes de mesure sont commandées à l'aide d'un micro-ordinateur APPLE IIGS. La figure A.I.7 représente le schéma de branchement. L'ordinateur est équipée de plusieurs cartes électroniques:

- une carte de liaison sériel (CRTBT) avec huit voies de communication :
 - six voies de commande d'alimentation
 - une voie de commande du régulateur de température (EPSON - PX16)
 - une voie de commande d'un convertisseur analogique—digital (CRTBT)
- une carte "Digimétrie", qui possède huit convertisseurs analogique—digital différentiels:
 - trois voies de lecture de courant (bobine n°1,2,3)
 - deux voies de lectures de tensions fournies par un pont d'inductance mutuelle (Barras Provence, CRTBT)

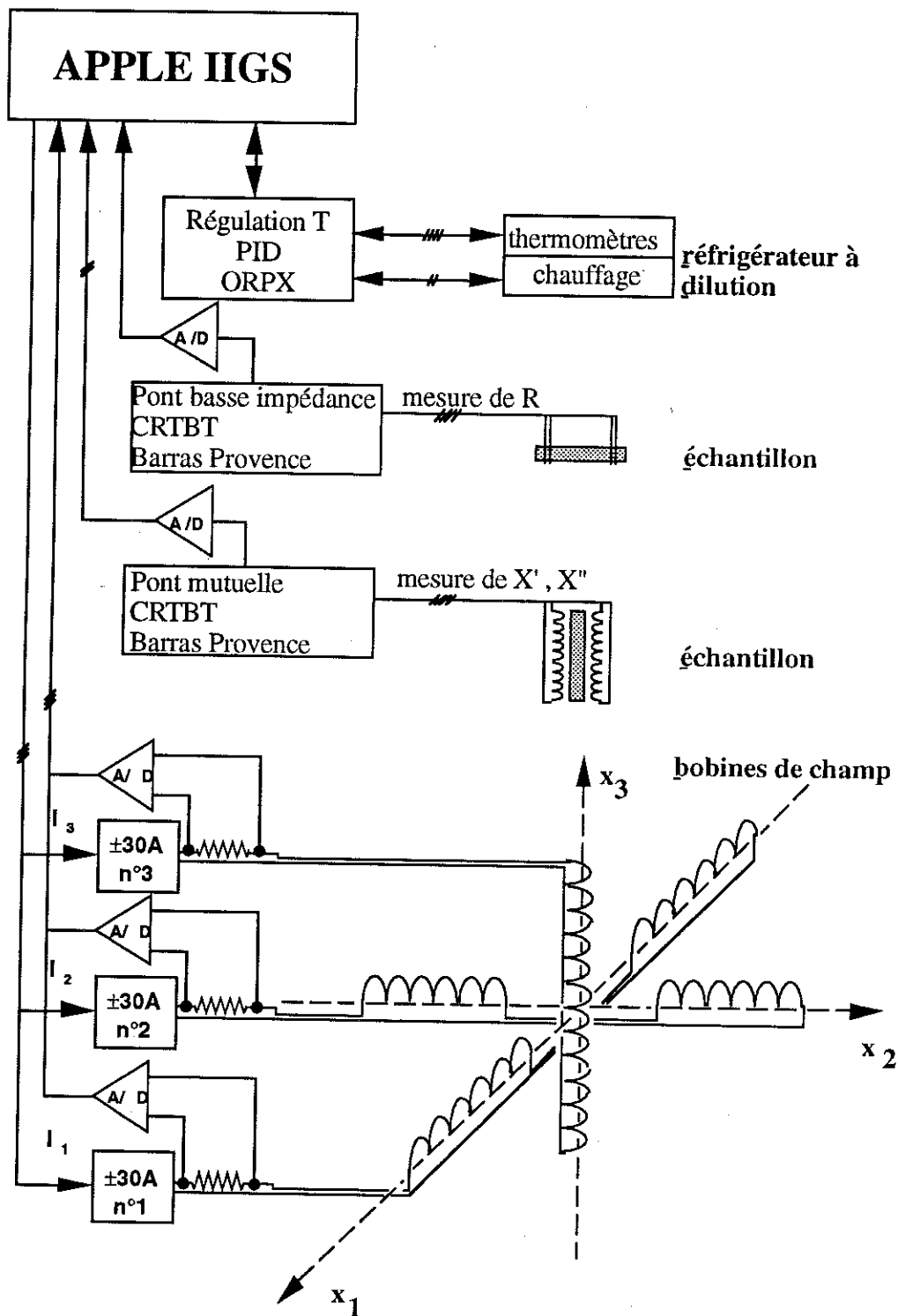


Figure A.I.7: Schéma de branchement entre le micro-ordinateur et les instruments de mesure.

Ces deux cartes électroniques présentent l'interface de l'ordinateur vers les instruments de mesure. Comme déjà mentionné, l'alimentation de courant est commandée à l'aide de la carte de liaison sériel et les trois courants envoyés sont mesurés en utilisant trois voltmètres de la carte Digimétrie. De cette manière il est possible de contrôler l'orientation et l'amplitude du champ magnétique en permanence. Au cours d'une mesure, la température est réglée grâce à un régulateur PID sous forme d'un micro-ordinateur EPSON—PX16 avec l'électronique correspondante (PX—4), qui est commandée en utilisant une liaison sériel. Les tensions, proportionnelles aux signaux mesurés, fournis par le pont basse impédance (mesure de résistivité) et par le pont d'inductance mutuelle (mesure de susceptibilité) sont converties en valeurs numériques à l'aide d'un convertisseur A/D et de deux voltmètres de la carte "digimétrie". Ainsi, tous les paramètres de mesure peuvent être traités numériquement.

Le logiciel développé offre plusieurs modes de fonctionnement (voir schéma A.I.8):

- (1) L'application d'un champ magnétique suivant une direction choisie,
- (2) La mesure de résistivité et de susceptibilité en fonction de la température sous champ magnétique,
- (3) La mesure de résistivité et de susceptibilité en fonction de l'amplitude du champ magnétique à température fixe,
- (4) La mesure de résistivité et de susceptibilité en fonction de l'angle Φ du champ magnétique dans le plan ($\mathbf{a}_1, \mathbf{a}_2$) du référentiel $\{\mathbf{a}_i\}$ à température fixe et
- (5) La régulation d'amplitude du champ magnétique sur une valeur de résistance R_0 et une température T_0 fixe pour chaque angle Φ_i dans la gamme angulaire de $\Phi_0 < \Phi_i < \Phi_1$. L'angle Φ_i est variée suivant $\Phi_i = \Phi_{i-1} + \Delta\Phi$.

(4) Orientation du système cristallographique dans le référentiel des bobines

L'étude des propriétés angulaires des composées anisotropes comme UPt_3 , URu_2Si_2 et CeCu_2Si_2 nécessite la connaissance de l'orientation des axes cristallographiques par rapport au référentiel $\{\mathbf{x}_i\}$ des bobines supraconductrices.

La géométrie expérimentale (position des contacts sur l'échantillon) choisie, implique que le courant est envoyé suivant un axe cristallographique. Pour le cas où l'axe du courant $\mathbf{J}$ est légèrement incliné (angle Θ_0) par rapport au plan $(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2)$, dû à la force de Lorentz ($\mathbf{F}_L = (\mathbf{E} \times \mathbf{B})$),

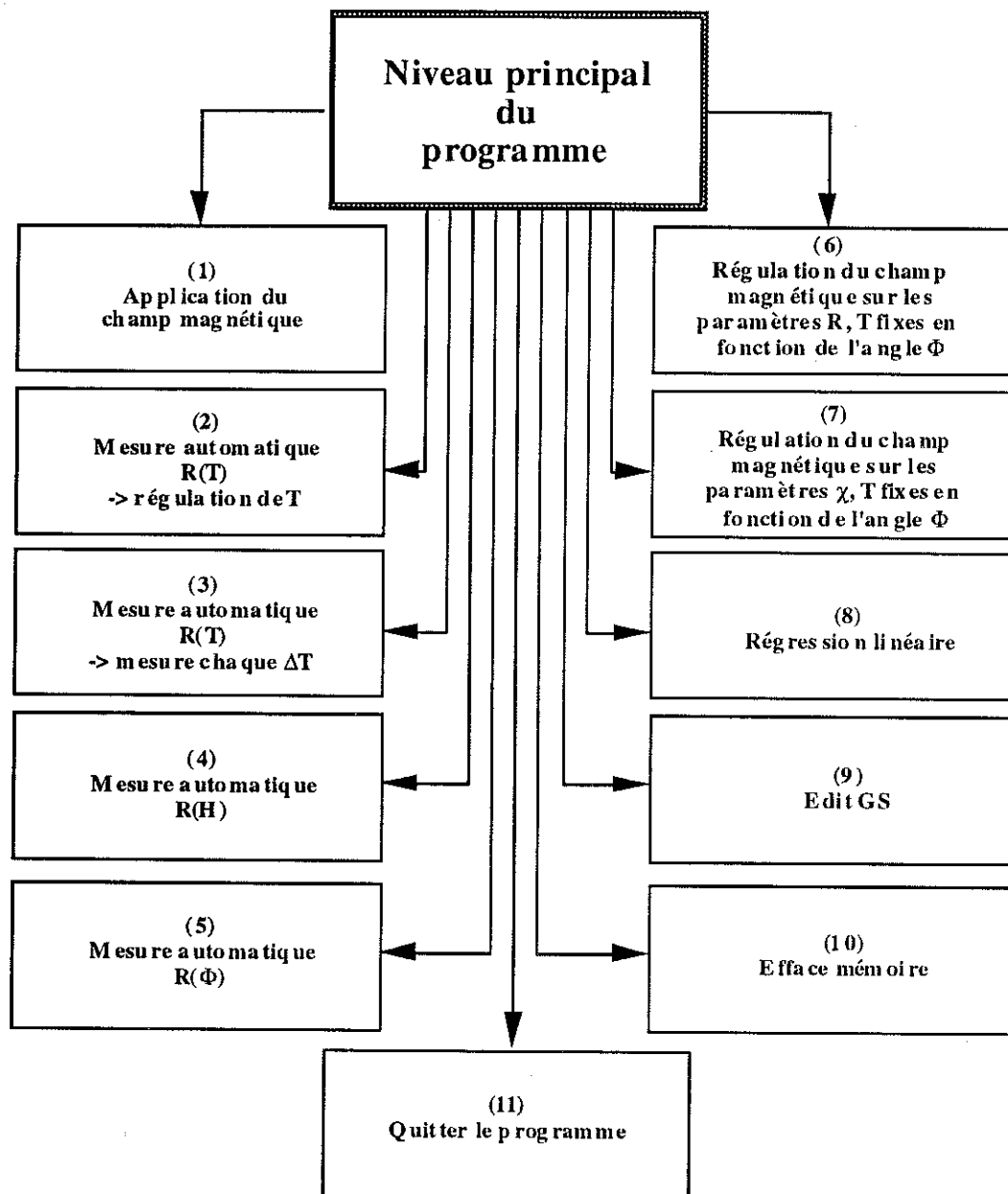


Figure A.I.8: Schéma de fonctionnement du logiciel qui commande l'application du champ et la mesure automatisée.

une rotation du champ magnétique dans le plan ($\mathbf{x}_1$ - $\mathbf{x}_2$) mène à une variation proportionnelle à $\sin^2\Phi$ de la résistivité (figure A.I.9). La dépendance angulaire de la résistivité dans l'état normal est décrit plus en détail dans l'annexe III. Ainsi, l'angle du minimum de résistivité (Φ_0) correspond à l'orientation de $\mathbf{J}$ dans le plan ($\mathbf{x}_1$ - $\mathbf{x}_2$). Ensuite, une deuxième mesure de $\rho(\Theta)$ dans le plan ($\mathbf{J}$, $\mathbf{x}_3$) détermine l'angle Θ_0 . Connaissant la direction de $\mathbf{J}$ dans le référentiel $\{\mathbf{x}_i\}$, l'orientation du système cristallographique est déterminée.

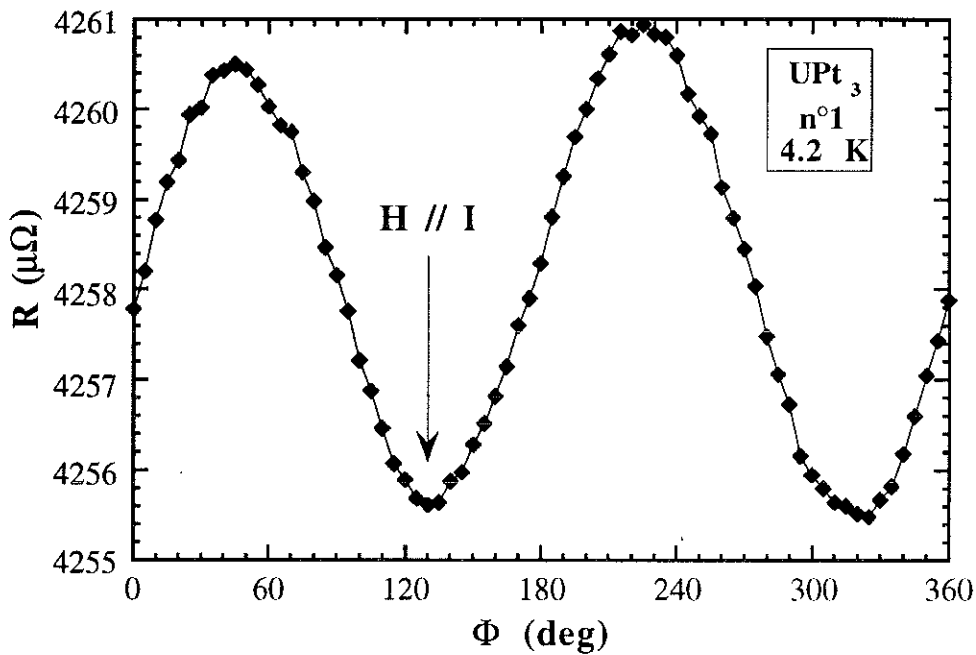


Figure A.I.9: Magnétorésistance angulaire $\rho(\Phi)$ selon la rotation du champ magnétique dans un plan qui contient l'axe du courant.

Une deuxième possibilité de déterminer l'orientation du cristal dans le référentiel $\{\mathbf{x}_i\}$ consiste en la mesure du deuxième champ critique (H_{c2}) en fonction de l'angle pour un supraconducteur anisotrope. Considérant le cas d'UPt₃, qui montre une forte anisotropie de H_{c2} entre le plan hexagonal et l'axe c (cf. chapitre III.0), on constate que la courbe $\rho(T=T_c)$ est décalée vers des températures moins élevées ou plus élevées suivant l'angle Θ du champ magnétique par rapport à l'axe c du cristal (figure A.I.10). De cette manière en gardant la température T_0 constante, on voit qu'une rotation du champ magnétique résulte en une variation de la résistivité où la valeur minimale de la résistivité indique l'orientation ayant le H_{c2} le plus élevé. La figure A.I.11 montre une dépendance angulaire $\rho(\Theta)$ pour le cas d'UPt₃. Ainsi, une fois que le diagramme de phase d'un supraconducteur anisotrope est connu, il est possible de déterminer précisément l'orientation du cristal et son référentiel $\{\mathbf{a}_i\}$ dans le référentiel $\{\mathbf{x}_i\}$.

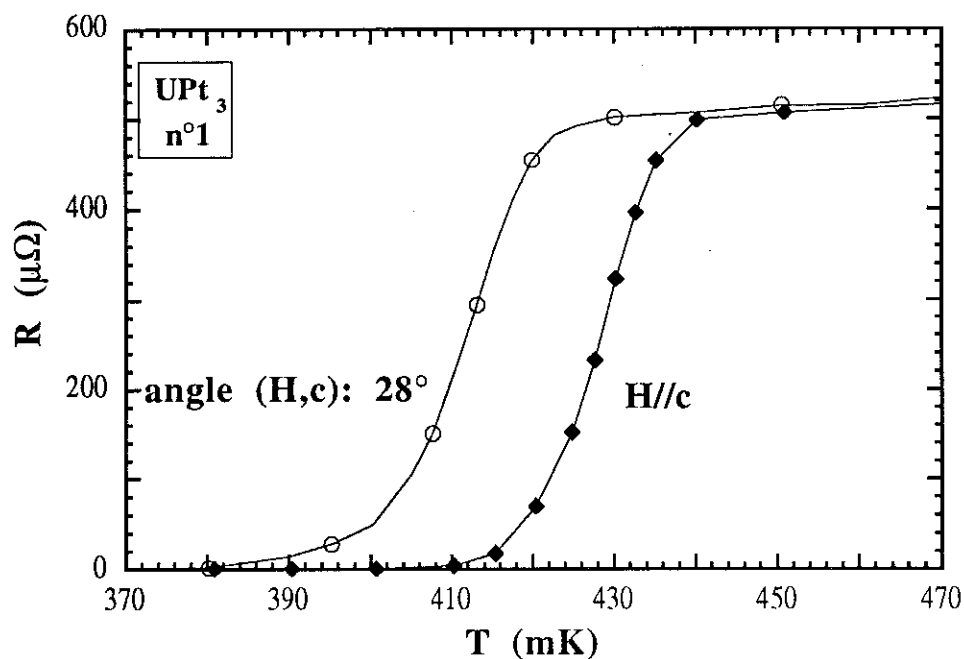


Figure A.I.10: La transition résistive est simplement déplacée en température sous rotation du champ magnétique (0.6 Tesla, selon 0° et 28° de rotation par rapport à l'axe c). La forme de la transition ne change pas et ne subit aucune déformation.

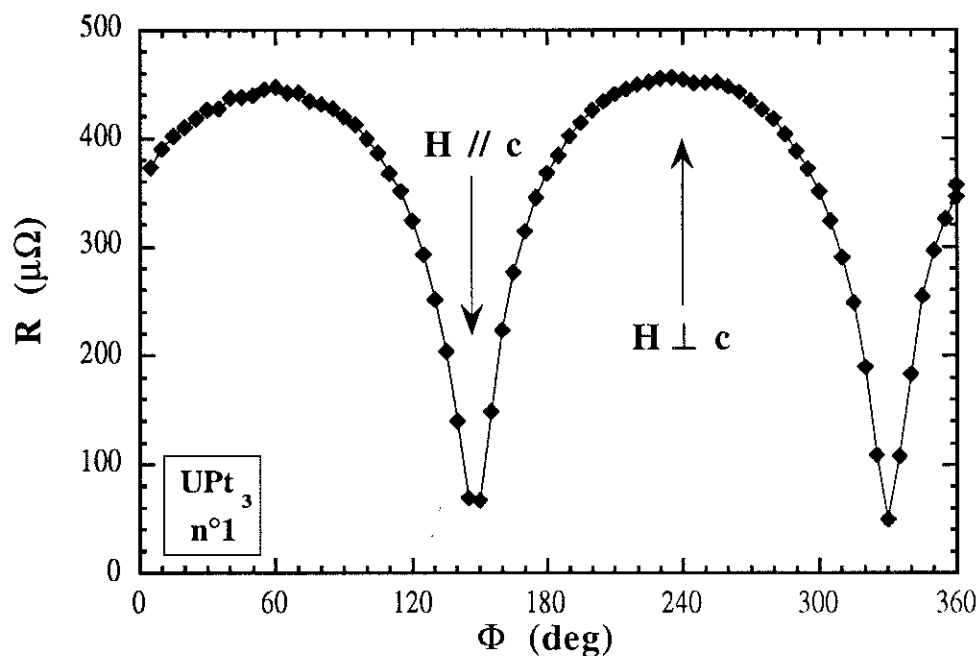


Figure A.I.11: Variation angulaire de la résistivité à la transition supraconductrice pour une rotation du champ magnétique entre le plan basal et l'axe c de UPt_3 ($T = 497.5 \text{ mK}$, whisker $n^\circ 1$).

(5) La mesure automatisée du deuxième champ critique

Le fait que la transition résistive $\rho(T)$ ne change de forme ni en appliquant un champ magnétique ni en changeant l'orientation du champ magnétique, offre la possibilité de mesurer le $H_{c2}(\Theta, \Phi)$ automatiquement en gardant la température T_0 constante. Le deuxième champ critique H_{c2} est défini comme le champ magnétique appliqué H à la température T_c où la résistivité ρ_0 dans la transition supraconductrice $\rho(T)$ correspond à $0.5\rho_n$ (ρ_n : résistivité de l'état normale). En utilisant ce critère comme définition du H_{c2} , pour une température constante T_0 et pour une orientation du champ magnétique $H(\Theta, \Phi)$ fixée, l'amplitude du champ H est ajustée de manière à garder la valeur de résistivité mesurée égale à la valeur $\rho_0 = 0.5 \rho_n$. Ainsi, on obtient les courbes $H_{c2}(\Theta, \Phi, T_0)$.

Annexe II

*Transformation rotatoire du champ
magnétique*

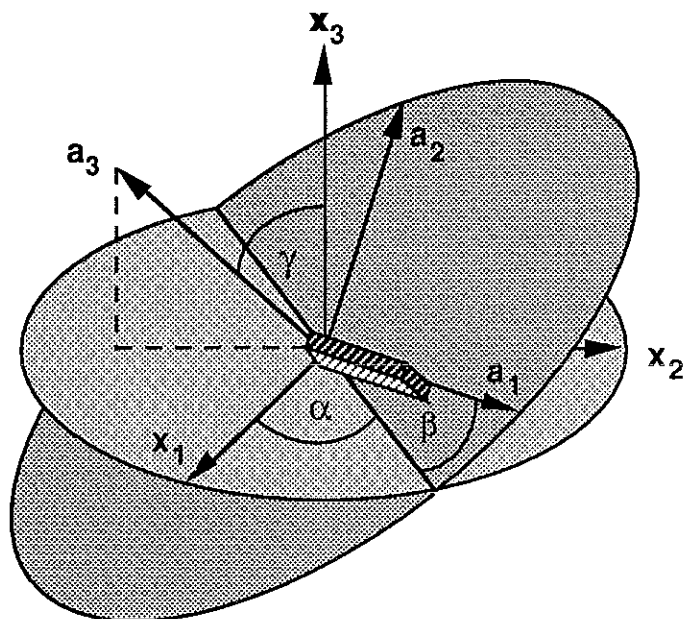


Figure A.II.1: Définition du référentiel local $\{a_i\}$ par rapport au référentiel des bobines $\{x_i\}$ à l'aide des angles d'Euler: α , β et γ .

Annexe II. Transformation rotatoire du champ magnétique

La rotation d'un champ magnétique dans un référentiel $\{a_i\}=\{a_1, a_2, a_3\}$ est décrite par les angles Θ et Φ : $H' = H_0 (\cos\phi \sin\theta, \sin\phi \sin\theta, \cos\theta)$. Ce référentiel $\{a_i\}$ est défini dans le référentiel des bobines $\{x_i\}=\{x_1, x_2, x_3\}$ à l'aide des angles d'Euler (α, β, γ) (cf. figure A.II.1). Une simple transformation

$$\mathbf{H} = \mathbf{P}_\theta \mathbf{H}' \quad (\text{AII.1})$$

décrit la variation des trois composantes du champ dans le référentiel $\{x_i\}$. La matrice de transformation $\mathbf{P}_\theta$ s'exprime comme

$$\mathbf{P}_\theta = \begin{pmatrix} \cos\alpha \cos\beta - \sin\alpha \cos\gamma \sin\beta & -\cos\alpha \sin\beta - \sin\alpha \cos\gamma \cos\beta & \sin\alpha \sin\gamma \\ \sin\alpha \cos\beta + \cos\alpha \cos\gamma \sin\beta & -\sin\alpha \sin\beta + \cos\alpha \cos\gamma \cos\beta & -\cos\alpha \sin\gamma \\ \sin\gamma \sin\beta & \sin\gamma \cos\beta & \cos\gamma \end{pmatrix}$$

En sens inverse, il est possible de transformer les composantes du champ magnétique $\{H_i\}$ dans le référentiel $\{a_i\}$ à l'aide de l'inverse de (AII.1):

$$\mathbf{H}' = \mathbf{P}_\theta^{-1} \mathbf{H} \quad (\text{AII.2})$$

L'inverse de la matrice $\mathbf{P}_\theta$ s'écrit comme:

$$\mathbf{P}_\theta^{-1} = \begin{pmatrix} \cos\alpha \cos\beta - \sin\alpha \cos\gamma \sin\beta & \sin\alpha \cos\beta + \cos\alpha \cos\gamma \sin\beta & \sin\gamma \sin\beta \\ -\cos\alpha \sin\beta - \sin\alpha \cos\gamma \cos\beta & -\sin\alpha \sin\beta + \cos\alpha \cos\gamma \cos\beta & \sin\gamma \cos\beta \\ \sin\alpha \sin\gamma & -\cos\alpha \sin\gamma & \cos\gamma \end{pmatrix}$$

Annexe III

***Propriétés de transport des métaux
anisotropes soumis à un champ
magnétique***

Annexe III. Propriétés de transport des métaux anisotropes soumis à un champ magnétique

La mesure de la résistivité sous champ magnétique est décrite par la relation AIII.1 entre champ électrique $\mathbf{E}$ et densité de courant $\mathbf{J}$, dont $\rho_{ik}(\mathbf{B}) = \rho_{ik}(B_1, B_2, B_3)$ représente le tenseur de résistivité qui dépend du champ magnétique externe $\mathbf{B}$ [Hurd74].

$$E_i = \rho_{ik}(\mathbf{B}) J_k \quad (\text{AIII.1})$$

La mesure du champ électrique $\mathbf{E}$ en utilisant une densité de courant $\mathbf{J}$ constante permet de déterminer le tenseur de résistivité ρ_{ik} . Cette relation est valable dans le cas de l'absence des gradients thermiques. En supposant de faibles valeurs absolues du champ magnétique $|\mathbf{B}|$, il est possible de développer $\rho_{ik}(\mathbf{B})$ en série de Taylor:

$$\rho_{ik}(\mathbf{B}) = \rho_{ik}^{(0)} + R_{ikp}^{(1)} B_p + R_{ikpq}^{(2)} B_p B_q + \dots \quad (\text{AIII.2})$$

avec les coefficients $\rho_{ik}^{(0)}, R_{ikp}^{(1)}, R_{ikpq}^{(2)}$ de Taylor ("galvanomagnetic coefficients"):

- résistivité: $\rho_{ik}^{(0)} = \rho_{ik}$
- effet Hall: $R_{ikp}^{(1)} = \left(\frac{\partial \rho_{ik}(\mathbf{B})}{\partial B_p} \right)_{\mathbf{B}=0}$
- magnéto-résistance: $R_{ikpq}^{(2)} = \left(\frac{\partial^2 \rho_{ik}(\mathbf{B})}{\partial B_p \partial B_q} \right)_{\mathbf{B}=0}$

Le tenseur de résistivité reflète des contraintes imposés par les différentes symétries du système:

- La relation d'Onsager sur la symétrie par renversement du temps, impose $\rho_{ik}(\mathbf{B}) = \rho_{ik}(-\mathbf{B})$ pour les coefficients du tenseur de résistivité.
- La symétrie cristalline impose qu'une opération de symétrie d'un groupe point ne change pas les propriétés physiques du métal considéré.

Le tableau AIII.I représente les restrictions imposées par la symétrie cristalline et la relation d'Onsager aux coefficients des tenseurs galvano-magnétiques [Smith67, Hurd74].

ORTHORHOMBIC	$\rho_{ik}^{(0)}$ $k \rightarrow$ 3 $R_{ikp}^{(1)}$ $p \rightarrow$ 3 $R_{ikpq}^{(2)}$ $pq \rightarrow$ 12
(All point groups)	
Ga, α -U	
RHOMBOHEDRAL	 $k \rightarrow$ 2 $p \rightarrow$ 2 $pq \rightarrow$ 8
(3m, $\bar{3}m$ groups)	
α -As, Bi, α -Hg, Sb, α -Sm	
TETRAGONAL	 $k \rightarrow$ 2 $p \rightarrow$ 2 $pq \rightarrow$ 7
(422, 4mm, $\bar{4}2m$, 4/mmm groups)	
In, β -Sn	
HEXAGONAL	 $k \rightarrow$ 2 $p \rightarrow$ 2 $pq \rightarrow$ 6
(622, 6mm, $\bar{6}m2$, 6/mmm groups)	
α -Be, Cd α -Co, α -Dy, α -Er, α -Gd, α -Hf, α -Ho, α -La, Lu, Mg, α -Nd, Os, α -Pr, Re, Ru, α -Sc, α -Tb, α -Ti, α -Tl, α -Tm, α -Y, α -Yb, Zn, α -Zr.	

Tableau T.A.III.1: Selon la symétrie cristalline (orthorhombique, tétragonale, hexagonale,...) et due à la relation d'Onsager certaines des coefficients des tenseurs galvano-magnétiques subissent des restrictions (• — •: coefficients égaux, o — •: coefficients égaux mais avec signe inverse, zone hachurée: $R_{1212}^{(2)} = \frac{1}{2}(R_{1111}^{(2)} - R_{1122}^{(2)})$) [Hurd74].

Considérant une expérience réelle, il y a aussi la symétrie du montage qui impose des contraintes sur la contribution des différents coefficients des tenseurs "galvano-magnétiques". En utilisant le développement en fonction du champ $\mathbf{B}$ du tenseur de résistivité $\rho_{ik}(\mathbf{B})$ (AIII.2), le champ électrique (AIII.1) s'écrit comme:

$$E_i = \rho_{ik}^{(0)} J_k + R_{ikp}^{(1)} B_p J_k + R_{ikpq}^{(2)} B_p B_q J_k + \dots \quad (\text{AIII.3})$$

Notamment, il y a les contraintes suivantes:

- la direction du courant par rapport au système cristallographique: J_k
- la composante du champ électrique E_i mesurée par rapport au système cristallographique et
- l'orientation du champ magnétique B_p

Ainsi, la résistivité mesurée s'exprime comme:

$$|\rho| = |\mathbf{J}|^{-2} \left(\rho_{ik}^{(0)} J_i J_k + R_{ikp}^{(1)} J_i J_k B_p + R_{ikpq}^{(2)} J_i J_k B_p B_q + \dots \right) \quad (\text{AIII.4})$$

où la direction des prises de tension est imposée par les J_i .

Le positionnement des contacts électriques a une influence déterminante sur la dépendance angulaire de la résistivité mesurée. Dans la suite, trois arrangements différents des contacts sont considérés pour démontrer les changements de la variation angulaire de la résistivité dans le cas d'un cristal d'URu₂Si₂. La

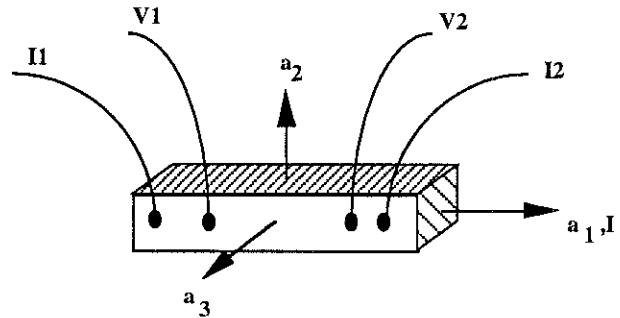


Figure A.III.1: Cas idéal du positionnement des contacts électriques.

structure cristalline d'URu₂Si₂ est tétragonale I4/mmm. La figure A.III.1 montre la géométrie du système pour le cas idéal. Les axes cristallins sont orientées parallèlement aux axes du référentiel local $\{\mathbf{a}_i\}$. La rotation du champ magnétique dans le référentiel $\{\mathbf{a}_i\}$ est décrit par $\mathbf{B} = B_0 (\cos\phi \sin\theta, \sin\phi \sin\theta, \cos\theta)$.

(A) Le cas idéal

Les prises de tension et les amenées de courant sont orientées suivant l'axe $\mathbf{a}_1$. Donc la densité de courant s'exprime comme $\mathbf{J} = (J_0, 0, 0)$. La résistivité $|\rho|$ (c.f. AIII.4) est donnée par:

$$|\rho| = |J_0|^{-2} \left(\rho_{11}^{(0)} J_0^2 + R_{11p}^{(1)} J_0^2 B_p + R_{11pq}^{(2)} J_0^2 B_p B_q + \dots \right)$$

La symétrie cristalline et les relations d'Onsager imposent que (cf. tableau T.A.III.1)

$$R_{111}^{(1)} = R_{112}^{(1)} = R_{113}^{(1)} = R_{11pq}^{(2)} = 0 \quad (p \neq q).$$

Ainsi, la résistivité varie en fonction de $\sin^2(\phi)$ ou $\cos^2(\phi)$ avec une périodicité de π :

$$|\rho| = \rho_{11}^{(0)} + R_{11pp}^{(2)} J_0^2 B_p^2. \quad (\text{AIII.5})$$

(B) Inclinaison du courant dans le plan ($\mathbf{a}_1$ - $\mathbf{a}_2$) (cf. figure A.III.2)

Considérant le cas où le courant est incliné par rapport à l'axe $\mathbf{a}_1$ dans le plan ($\mathbf{a}_1, \mathbf{a}_2$): $\mathbf{J} = (J_0 \cos \epsilon, J_0 \sin \epsilon, 0)$. Avec la position des prises de tension suivant l'axe $\mathbf{a}_1$, la résistivité s'écrit:

$$\rho = \frac{\mathbf{E} \cdot \mathbf{J} // \mathbf{a}_1}{|\mathbf{J}|^2}$$

Ainsi on calcule

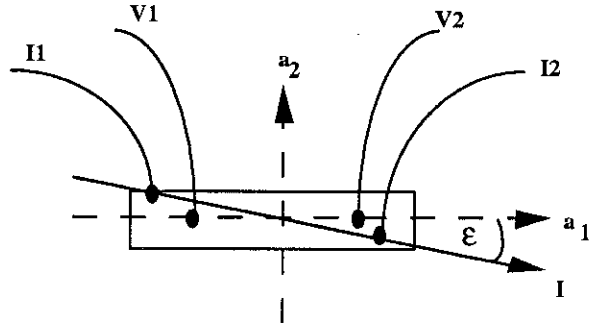


Figure A.III.2: La direction du courant est inclinée par rapport à l'axe $\mathbf{a}_1$.

$$|\rho| = |J_0|^{-2} \left(\rho_{1k}^{(0)} J_k J_0 \cos \epsilon + R_{1kp}^{(1)} J_k J_0 \cos \epsilon B_p + R_{1kpq}^{(2)} J_k J_0 \cos \epsilon B_p B_q + \dots \right)$$

Suivant le tableau T.A.III.1, seuls les coefficients $\rho_{11}^{(0)}$, $R_{123}^{(1)}$, $R_{11pp}^{(2)}$ et $R_{1212}^{(2)}$ sont différents de zéro. La résistivité s'exprime comme:

$$|\rho| = \rho_{11}^{(0)} \cos^2 \epsilon + R_{123}^{(1)} \sin 2\epsilon B_3 + R_{11pp}^{(2)} \cos^2 \epsilon B_p^2 + R_{1212}^{(2)} \sin 2\epsilon B_1 B_2 + \dots$$

En fonction du plan de rotation du champ magnétique, une résistance de Hall ($R_{123}^{(1)} \sin 2\epsilon$) et une composante de magnéto-résistance ($R_{11pp}^{(2)} \cos^2 \epsilon$ et $R_{1212}^{(2)} \sin 2\epsilon$) peuvent apparaître. Dans le cas général ces deux composantes seront superposées.

(C) Inclinaison du courant dans le plan $a_1 - a_3$ (figure A.III.3)

La troisième possibilité considère une inclinaison du courant dans le plan (a_1, a_3):

$\mathbf{J} = (J_0 \cos \epsilon, 0, J_0 \sin \epsilon)$. Comme dans le cas (B) on peut développer la résistivité ρ en série de Taylor (AIII.2) en utilisant les coefficients non nuls $\rho_{11}^{(0)}$,

$R_{132}^{(1)}$, $R_{11pp}^{(2)}$ et $R_{1331}^{(2)}$:

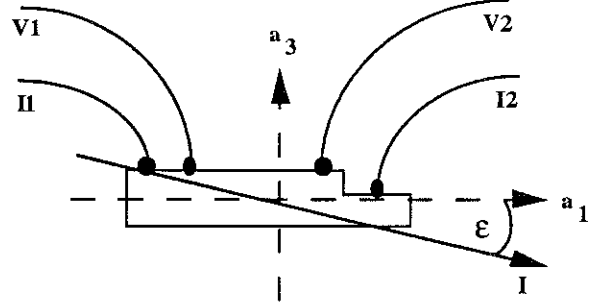


Figure A.III.3: Inclinaison du courant dans le plan a_1, a_3 .

$$|\rho| = \rho_{11}^{(0)} \cos^2 \epsilon + \frac{1}{2} R_{132}^{(1)} \sin 2\epsilon B_2 + R_{11pp}^{(2)} \cos^2 \epsilon B_p^2 + \frac{1}{2} R_{1331}^{(2)} \sin 2\epsilon B_3 B_1 + \dots \quad (\text{AIII.6})$$

En général, on obtient une superposition des composantes de la magnéto-résistance (périodicité 2π) et de l'effet Hall (périodicité π). Expérimentalement, le cas (C) a été observé lors des mesures de calibrage en utilisant un échantillon d' URu_2Si_2 (figure A.III.4). Une analyse de Fourier des données montre la présence d'un terme en $\sin(2\phi)$ et en $\sin(4\phi)$ (c.f. figure A.III.5) conformément à l'équation AIII.6. Entre autre, une composante en fonction de $\sin(4\phi)$ est visible.

Dans la suite, la mesure angulaire de la magnéto-résistance à 4.2 K en fonction du champ magnétique a été utilisée comme critère de sélection. Un échantillon, dont la dépendance angulaire de la magnéto-résistance $R(\phi)$ présente un terme en $\sin \phi$, crée des difficultés considérable en ce qui concerne la détermination des effets angulaires intrinsèques à partir des effets angulaires dus au montage. Seuls les échantillons, dont les contacts ont été placés d'une façon régulière qui n'impose pas des composantes en $\sin \phi$ dans le $R(\phi)$ ont été mesurés.

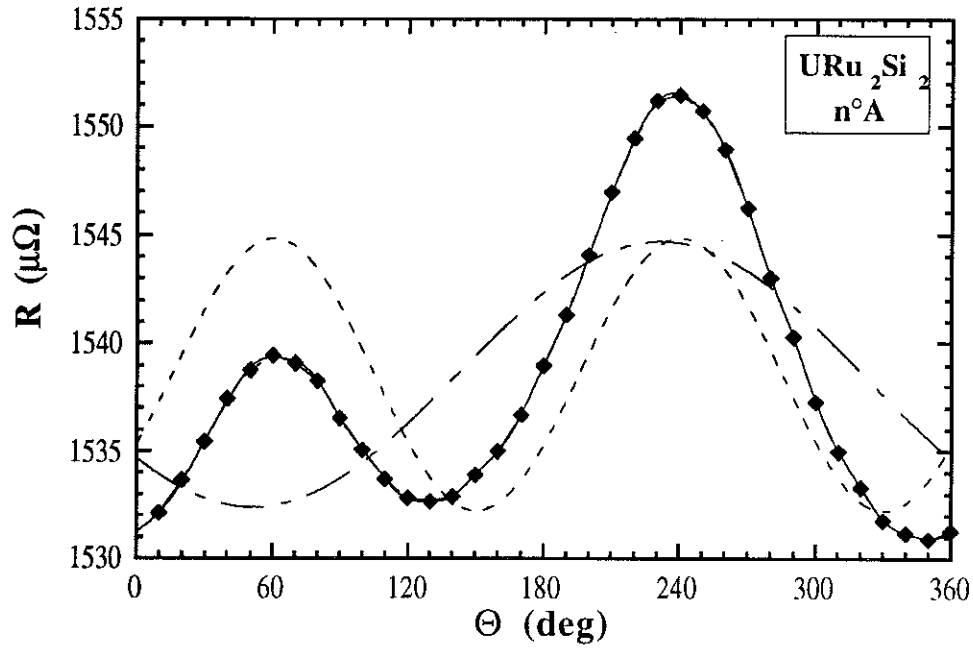


Figure A.III.4: Magnéto-résistance angulaire mesurée dans l'état normale ($\text{URu}_2\text{Si}_2 - n^\circ\text{A}$) à 4.2 K et 0.85 Tesla.

Les composantes de symétrie π (ligne: - - -) et 2π (ligne: — - —), déterminé par une analyse de Fourier, suffisent à exprimer la variation angulaire de $R(\Theta)$ mesurée (ligne: —).

Annexe IV

Publications

Annexe IV. Publications

Quelques parties de ce travail de thèse font l'objet d'une publication comme contribution à des conférences:

J.P. Brison, N. Keller, P. Lejay, A.D. Huxley, L. Schmidt, S. Buzdin, N. Bernhoeft, V.P. Mineev, A.N. Stepanov, J. Flouquet, D. Jaccard, S. Julian, G. Lonzarich
"Very low temperature properties of Heavy Fermion Materials "
 Proc. SCES San Diego 1993, à paraître dans Physica B 1994

J.P. Brison, N. Keller, P. Lejay, J.L. Tholence, A.D. Huxley, N. Bernhoeft, A. Buzdin, B. Fåk, J. Flouquet, L. Schmidt, A.N. Stepanov, R.A. Fischer, N. Phillips, C. Vettier
"Magnetism and Superconductivity in Heavy Fermion Systems "
 J. Low Temp. Phys. **95**(1/2), 145-152 (1994)

N. Keller, J.L. Tholence, A.D. Huxley, J. Flouquet
"Phase diagram and angular dependence of the upper critical field H_{c2} of the heavy fermion superconductor UPt_3 "
 à paraître dans Proceedings M²S HTSC - Grenoble (Physica B).

Les résultats fondamentaux concernant la supraconductivité intrinsèque dans UPt_3 et la supraconductivité de surface des whiskers de UPt_3 font l'objet de:

N. Keller, J.L. Tholence, A.D. Huxley, J. Flouquet
"Angular Dependence of the Upper Critical Field of the Heavy Fermion Superconductor UPt_3 "
 envoyée pour publication dans Phys. Rev. Lett.

