

# **THESE**

présentée par

**Ridha DJERBI**

pour obtenir le grade de

**DOCTEUR**

de

**L'UNIVERSITE JOSEPH FOURIER  
- GRENOBLE I -**

Sujet :

**EFFET HALL ANORMAL DU COMPOSE  
A FERMIONS LOURDS  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  SOUS PRESSION.  
RESISTIVITE, EFFET HALL ET MAGNETORESISTANCE  
DE SES ALLIAGES AVEC LE LANTHANE**

Soutenue le 10 février 1989 devant la commission d'examen :

Président	<b>B. Coqblin</b>
Examineurs	<b>J. Pierre</b>
	<b>A. Meyer</b>
	<b>P. Haen</b>
	<b>J.M. Mignot</b>



## REMERCIEMENTS

Le travail décrit dans ce mémoire a été effectué au Centre de Recherches sur les Très Basses Températures du CNRS à Grenoble. Je remercie très chaleureusement Monsieur Jacques Flouquet, directeur du CRTBT, de m'avoir accueilli dans son laboratoire.

J'exprime ma profonde gratitude à Monsieur Bernard Coqblin pour l'honneur qu'il m'a fait en présidant cette commission d'examen.

J'adresse mes chaleureux remerciements à Messieurs Pierre Haen et Jean-Michel Mignot qui ont défini le sujet et orienté mon étude tout au long de son développement. Je leur suis fort reconnaissant et redevable pour leur disponibilité, leur dynamisme et leur amitié, qui ont rendu très agréable mon travail au CRTBT.

Je remercie très sincèrement Madame Françoise Lapierre pour l'intérêt qu'elle a manifesté pour ce travail et pour l'aide qu'elle m'a apportée.

Enfin je remercie Madame Patricia Poirier qui a su déchiffrer et donner forme à ce manuscrit avec efficacité et gentillesse.



## TABLE DES MATIERES

<b>INTRODUCTION</b> .....	<b>1</b>
<b>CHAPITRE I. FERMIONS LOURDS</b> .....	<b>5</b>
I-1 INTRODUCTION .....	7
I-2 EFFET KONDO.....	9
I-3 RESEAU KONDO.....	11
I-4 PROPRIETES DES SYSTEMES A FERMIONS LOURDS .....	13
I-4-1 Chaleur spécifique .....	13
I-4-2 Susceptibilité magnétique .....	17
I-4-3 Résistivité électrique .....	18
I-4-4 Effet Hall.....	20
I-4-4-1 Systèmes ferromagnétiques .....	21
I-4-4-2 Origine de l'effet Hall extraordinaire .....	22
I-4-4-3 Réseaux Kondo et composés à fermions lourds ou à valence intermédiaire .....	23
<b>CHAPITRE II. RAPPELS SUR LES PROPRIETES MAGNETIQUES ET DE TRANSPORT DU COMPOSE <math>CeRu_2Si_2</math> ET SUR LES PROPRIETES MAGNETIQUES DES SOLUTIONS SOLIDES <math>Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2</math></b> .....	<b>27</b>
II-1 STRUCTURE CRISTALLINE .....	29
II-2 CHALEUR SPECIFIQUE.....	30
II-3 PROPRIETES MAGNETIQUES .....	31
II-3-1 Susceptibilité magnétique .....	31
II-3-2 Aimantation .....	32
II-3-2 Corrélations antiferromagnétiques .....	32
II-4 PROPRIETES DE TRANSPORT.....	33
II-4-1 Résistivité électrique.....	33
II-4-2 Magnétorésistance.....	34
II-4-3 Pouvoir thermoélectrique.....	36
II-4-4 Effet Hall.....	37
II-5 EFFETS DE LA PRESSION .....	39
II-5-1 Aimantation .....	39
II-5-2 Susceptibilité.....	39
II-5-3 Résistivité et magnétorésistance .....	41

II-6 RAPPELS SUR LES PROPRIETES MAGNETIQUES DES	
ALLIAGES $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ .....	45
II-6-1 Introduction.....	45
II-6-2 Propriétés magnétiques.....	46
II-7 OBJET DU PRESENT TRAVAIL.....	52
<b>CHAPITRE III. TECHNIQUES EXPERIMENTALES.....</b>	<b>53</b>
III-1 METHODES DE MESURES ELECTRIQUES .....	55
III-1-1 Dimensions des échantillons.....	55
III-1-2 Méthode de Van der Pauw .....	55
III-1-3 Précision de la mesure.....	57
III-2 CRYOSTAT A TEMPERATURE VARIABLE DE 1,5 K à 300 K	
.....	59
III-3 CELLULE DE PRESSION.....	67
III-4 CRYOSTAT A DILUTION $^3He$ - $^4He$ .....	70
<b>CHAPITRE IV. EFFET HALL SOUS PRESSION DU COMPOSE <math>CeRu_2Si_2</math></b>	<b>73</b>
IV-1 RESISTIVITE DE HALL A 4,2 K.....	75
IV-2 ETUDE DE $R_H(T)$ EN FONCTION DE LA PRESSION.....	77
IV-2-1 Résultats expérimentaux.....	77
IV-2-2 Comparaison avec les autres mesures sous pression .....	81
IV-2-3 Comparaison avec les modèles existants.....	83
<b>CHAPITRE V. RESISTIVITE ELECTRIQUE, EFFET HALL ET MAGNETO-</b>	
<b>RESISTANCE DES ALLIAGES <math>Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2</math> .....</b>	<b>89</b>
V-1 RESISTIVITE ELECTRIQUE .....	91
V-1-1 Description des résultats expérimentaux.....	91
V-1-2 Discussion de la variation de la résistivité au-dessus de $T_N$ .	
Valeur de $T_K$ .....	97
V-1-3 Discussion de la résistivité au-dessous de $T_N$ .....	100
V-1-4 Comparaison avec d'autres systèmes.....	103
V-2 COEFFICIENT DE HALL DES SYSTEMES $(Ce,M)Ru_2Si_2$	
AVEC $M = Y$ ou $La$ .....	106
V-2-1-Alliages $Ce_{1-y}Y_yRu_2Si_2$ .....	106
V-2-2 Alliages $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ : résultats expérimentaux.....	108
V-2-3 Alliages $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ : discussion.....	111
V-2-4 Comparaison avec le système $(Ce,La)Cu_6$ .....	116





# **INTRODUCTION**



Depuis une dizaine d'années, les systèmes dits "de fermions lourds" ont fait l'objet de nombreuses études théoriques et expérimentales [1-4]. Cet intérêt s'explique en premier lieu par la supraconductivité anormale mise en évidence dans certains d'entre eux, mais celle-ci n'est en fait qu'une des conséquences de la structure électronique très particulière existant dans la phase normale.

Ces matériaux sont des composés intermétalliques dont l'un des constituants est un élément de terre rare ou un actinide (le plus souvent Ce ou U) possédant une couche 4f ou 5f partiellement remplie. Ces systèmes présentent des propriétés anormales à basse température. Ils sont caractérisés notamment par une grande chaleur spécifique électronique. Le coefficient de Sommerfeld  $\gamma$  (coefficient du terme linéaire de la chaleur spécifique) atteint des valeurs de deux à trois ordres de grandeurs plus élevées que dans les métaux ordinaires. Ceci est attribué à la forte densité d'états au niveau de Fermi, ce qui suggère une masse effective électronique de l'ordre de  $10^2$  à  $10^3$  fois la masse de l'électron. L'existence des quasiparticules lourdes fortement renormalisées a été confirmée par des résultats d'effet de Haas-van Alphen sur plusieurs de ces composés [5,6].

Cette masse effective importante provient d'une part de l'hybridation de la bande 4f (ou 5f) avec les électrons de conduction et d'autre part des interactions entre quasiparticules. Trois grands types de comportements ont été observés à très basse température parmi les membres de cette famille : on trouve des composés ordonnés magnétiquement (généralement antiferromagnétiques) comme  $\text{CeAl}_2$ ,  $\text{U}_2\text{Zn}_{17}$  et  $\text{UCd}_{11}$ , non ordonnés comme  $\text{CeCu}_6$  et  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , ou même supraconducteurs comme  $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$  et  $\text{UPt}_3$ . En fait, cette classification recouvre une réalité beaucoup plus complexe avec des phénomènes mettant en jeu l'anisotropie, la dégénérescence, les corrélations magnétiques à courte portée, etc... Ces effets jouent un rôle essentiel dans les propriétés physiques des composés réels.

Parmi les composés à fermions lourds, le composé  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , dont le coefficient  $\gamma$  vaut  $350 \text{ mJ/mole.K}^2$ , se caractérise par l'absence de transition supraconductrice et d'ordre magnétique à longue portée au-dessus de 20 mK. Une des particularités remarquables de ce composé est l'existence à basse température d'une transition métamagnétique vers 8 T dont l'origine microscopique demeure inexpliquée. Il est clair cependant que la présence de corrélations antiferromagnétiques en bas champ, telles qu'elles ont été observées par des mesures de neutrons, joue un rôle essentiel.

Les propriétés magnétiques et de transport des composés à fermions lourds sont en général très sensibles à l'application d'une pression (hydrostatique ou "chimique" par substitution du cérium par le lanthane ou l'yttrium). Ceci est particulièrement vrai de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , qui présente un coefficient de Grüneisen de  $180 \text{ Mbar}^{-1}$ . Le but de ce travail est l'étude des effets frontières entre l'apparition et l'absence de l'ordre magnétique dans les systèmes  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$ , où la substitution du cérium par du lanthane fait apparaître un ordre antiferromagnétique à longue portée. Pour cela, nous avons poursuivi l'étude des propriétés de transport de ce système, à champ nul de la température ambiante jusqu'à celle de l'hélium pompé (dans certains cas jusqu'à 20 mK) et, en général à basse température, sous champ magnétique appliqué pouvant atteindre 8 T. Ce travail se compose essentiellement de deux parties :

- Etude de l'effet Hall sous pression du composé  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ ,
- Etude de la résistivité électrique, de l'effet Hall et de la magnétorésistance des alliages  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2$  sur toute la plage de concentration  $0 \leq x \leq 1$ .

Dans le chapitre I de ce mémoire, nous présentons les propriétés spécifiques des systèmes à fermions lourds en soulignant les relations qui existent avec l'effet Kondo. Le chapitre II est consacré au rappel des principales propriétés du composé  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  et des propriétés magnétiques des solutions solides  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$ .

La description et la discussion des résultats de notre travail font l'objet des trois chapitres suivants :

Au chapitre III, nous présentons les techniques expérimentales et notamment le cryostat à température variable que nous avons construit. Le chapitre IV est consacré à l'étude de l'effet Hall sous pression du composé  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ . Enfin, le chapitre V est réservé à l'étude des propriétés de magnéto-transport du système  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$ .

# **CHAPITRE I**

## **FERMIONS LOURDS**



## I-1 INTRODUCTION

Dans un métal, l'énergie caractéristique du système d'électrons de conduction est donnée par la température de Fermi  $T_F$  qui est une mesure de la largeur de bande et vaut de l'ordre de  $10^4$  K pour un métal ordinaire. Dans les systèmes de fermions lourds, les énergies caractéristiques sont au contraire de l'ordre du Kelvin. Une telle différence traduit l'existence de fortes corrélations au sein du liquide de Fermi. Cette situation est à rapprocher de celle des impuretés Kondo dans les matrices métalliques (cf. I-2). Elle en diffère cependant à très basse température par l'apparition d'effets de cohérence associés à l'arrangement périodique des atomes magnétiques dans le cristal.

La dépendance thermique des propriétés de transport ainsi que des propriétés thermodynamiques est alors gouvernée généralement par deux températures caractéristiques, la température de Kondo,  $T_K$  et la température de cohérence,  $T^*$ ; cette dernière est inférieure à  $T_K$ . Lorsque  $T$  est supérieure ou égale à  $T^*$ , les électrons  $f$  se comportent comme un ensemble de moments magnétiques indépendants qui diffusent les électrons de conduction de manière incohérente. Ceci a été étudié depuis longtemps dans le contexte de la formation des moments locaux dans les métaux, de l'effet Kondo et des effets de champ cristallin. Si  $T < T^*$ , la résistivité des systèmes de fermions lourds décroît fortement quand la température diminue, alors que pour un ensemble d'impuretés indépendantes, on attend plutôt une croissance monotone jusqu'à un plateau correspondant à la limite unitaire.

Les propriétés à haute température de ces systèmes dépendent essentiellement du caractère localisé des électrons  $f$ . Les distances interatomiques entre atomes de terres rares sont trop importantes pour qu'une bande d'électrons  $f$  itinérants puisse se former par recouvrement direct des orbitales des sites voisins. Toutefois, la proximité du niveau  $4f$  par rapport au niveau de Fermi peut donner lieu à une instabilité de cette couche par suite de l'hybridation des états  $f$  et des états de la bande de conduction. Le couplage entre les électrons  $f$  et la bande de conduction est traité par l'hamiltonien d'échange  $\mathcal{H}_{s-f}$ . Au niveau de Fermi, une résonance étroite apparaît, caractérisée par une grande densité d'états, et dont la largeur détermine l'échelle d'énergie à basse température.

Il existe une très grande diversité de propriétés dans les composés à fermions lourds, parmi lesquels on retrouve des représentants de trois grands comportements métalliques [7] :

1) des supraconducteurs :

UBe <sub>13</sub>	T <sub>c</sub> = 0,9 K	UPt <sub>3</sub>	T <sub>c</sub> = 0,5 K
URu <sub>2</sub> Si <sub>2</sub>	T <sub>c</sub> = 1,5 K	CeCu <sub>2</sub> Si <sub>2</sub>	T <sub>c</sub> = 0,6 K

2) des systèmes ordonnés magnétiquement, généralement antiferromagnétiques, avec parfois des structures modulées (SM) :

UAgCu <sub>4</sub>	T <sub>N</sub> = 18,15 K	UCd <sub>11</sub>	T <sub>N</sub> = 5 K
URu <sub>2</sub> Si <sub>2</sub>	T <sub>N</sub> = 17 K	NpBe <sub>13</sub>	T <sub>N</sub> = 3,4 K
UCu <sub>5</sub>	T <sub>N</sub> = 15,2 K	CeAl <sub>2</sub>	T <sub>N</sub> = 3,8 K (SM)
U <sub>2</sub> Zn <sub>17</sub>	T <sub>N</sub> = 9,7 K	CePb <sub>3</sub>	T <sub>N</sub> = 1,1 K (SM)

3) Quelques composés "normaux" présentent un état fondamental liquide de Fermi sans phase supraconductrice ni ordre magnétique au-dessus de quelques mK ; c'est le cas de CeCu<sub>6</sub> et CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>.

Des mesures de diffusion inélastique de neutrons ont révélé l'existence de corrélations antiferromagnétiques à courte portée dans UPt<sub>3</sub> [8], CeCu<sub>6</sub> [9-11] et CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> [11-13].

Dans certains des composés ci-dessus, réputés non magnétiques à 0 K, on a observé récemment un ordre magnétique statique (ou quasistatique) par des expériences de relaxation muons-spins (CeAl<sub>3</sub>, CeCu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> [14], UPt<sub>3</sub> [15]) ou par diffraction neutronique (UPt<sub>3</sub> [8]); les moments magnétiques sont extrêmement petits, de l'ordre de quelques 10<sup>-2</sup> μ<sub>B</sub>, et cet effet d'ordre n'apparaît que sur un petit nombre de propriétés : dans le cas de CeAl<sub>3</sub> la résistivité d'un monocristal [16a], et la RMN [16b] ; cette dernière également dans CeCu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> [16c]. La magnétorésistance de ce dernier présente une légère anomalie [16d] qu'explique après coup le diagramme (H,T) de la RMN ; celle de CeAl<sub>3</sub> présente un maximum qui détermine également un diagramme (H,T) [16e].

Enfin, on aura noté le cas de URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> dans lequel la supraconductivité apparaît après un ordre magnétique ; bien que là encore le moment soit très faible, certaines propriétés physiques présentent des anomalies bien marquées à la température d'ordre (en raison de l'ouverture d'un gap).

Une difficulté majeure dans la recherche d'un modèle microscopique des systèmes à fermions lourds vient de l'existence simultanée au voisinage du niveau de Fermi

d'états  $f$  corrélés et d'états  $d$  itinérants. Les deux réservoirs interagissent en outre par un terme d'hybridation. Diverses approches ont été tentées, les unes dérivées des théories du magnétisme itinérant (fluctuations de spins, paramagnons), d'autres au contraire, basées sur la description ionique classique de la couche  $4f$  et introduisant les effets de délocalisation à partir d'un terme d'hybridation analogue à celui de l'hamiltonien d'Anderson. Dans ce qui suit, nous adopterons le plus souvent cette dernière approche qui semble mieux adaptée à la description des composés de cérium.

## I-2 EFFET KONDO

L'étude d'impuretés magnétiques diluées dans une matrice métallique a commencé dans les années 30 lorsque fut découvert un comportement anormal de la variation thermique de la résistivité de certains alliages à basse température. En effet, plusieurs équipes ont observé expérimentalement un minimum de la résistivité électrique suivi d'une remontée logarithmique ( $\rho \sim -\ln T$ ) pour  $T < T_{\min}$ .

En 1964, Kondo [17] a montré pour la première fois que cette dernière est la conséquence de la diffusion avec reversement de spin des électrons de conduction par les moments magnétiques localisés. Ce résultat a été obtenu par un traitement perturbatif au second ordre dans l'approximation de Born du mécanisme de diffusion sur l'impureté décrit par l'hamiltonien  $\mathcal{H}_{s-f} = -\Gamma \vec{S} \cdot \vec{s}$

où  $\vec{s}$  : spin de l'électron de conduction  
 $\vec{S}$  : spin de l'impureté  
 $\Gamma$  : constante de couplage d'échange

Cependant, pour un couplage antiferromagnétique ( $\Gamma < 0$ ), cette théorie perturbative diverge à une température caractéristique appelée température de Kondo,  $T_K$ , qui s'écrit :

$$T_K \sim \frac{1}{N(E_F)} \exp \left[ - \frac{1}{N(E_F)\Gamma} \right]$$

où  $N(E_F)$  est la densité d'états des électrons de conduction au niveau de Fermi.

Cette divergence est la conséquence de l'apparition, à basse température, d'une résonance étroite de largeur  $T_K$  dans la densité d'états au niveau de Fermi (fig. I-1), qui correspond au passage progressif du régime de faible interaction entre les électrons de

conduction et les impuretés magnétiques à  $T \gg T_K$  vers un régime de forte interaction (couplage fort) lorsque  $T \lesssim T_K$ . Pour une impureté de spin  $S = 1/2$ , sans structure orbitale, ce couplage fort correspond à la disparition progressive du magnétisme du fait de l'écrantage de l'impureté par les électrons de conduction. Un singulet non magnétique est alors formé avec une énergie de l'ordre de  $k_B T_K$ .

Pour  $T \ll T_K$ , le problème peut être ramené à une description phénoménologique du type liquide de Fermi [18]. On remplace une impureté magnétique couplée à des électrons indépendants par un singulet non magnétique induisant des interactions entre électrons dans la bande de conduction. La résistivité électrique  $\rho(T)$  ne suit plus une loi logarithmique, mais varie de façon quadratique en température

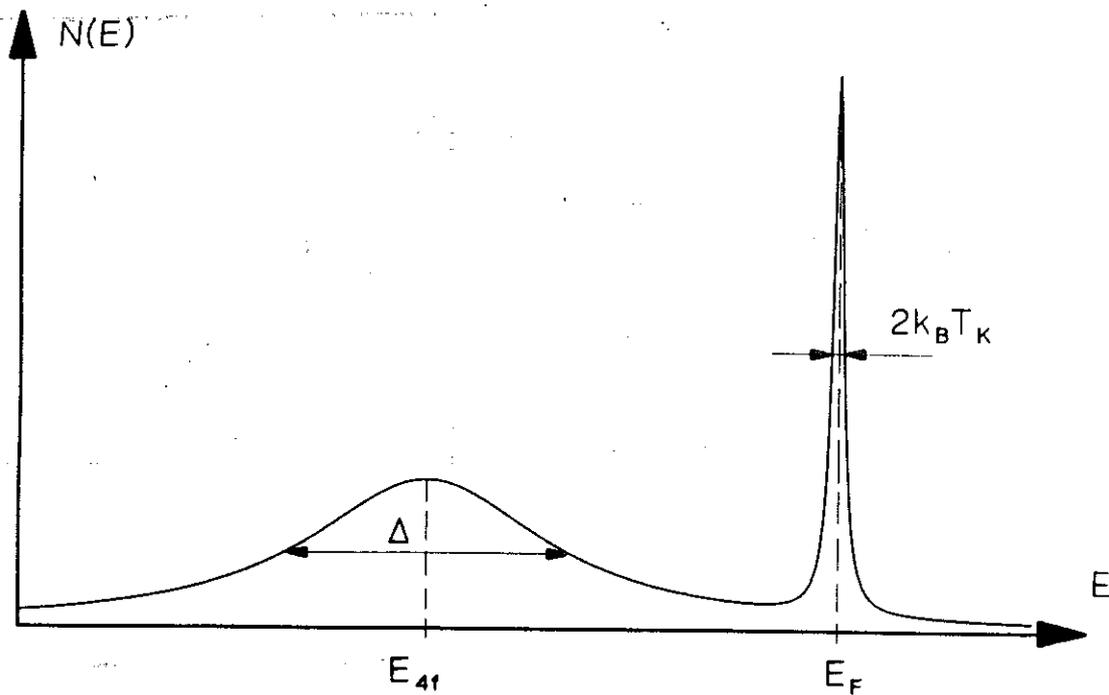
$$\rho(T) = \rho_0 \left[ 1 - C \left( \frac{T}{T_K} \right)^2 \right]$$

où  $\rho_0$  est la résistivité résiduelle et  $C$  est une constante. La solution complète du problème pour un spin  $1/2$  a été obtenue numériquement par Wilson [19], puis de manière analytique [20] au moyen de l'Ansatz de Bethe. Actuellement, outre le passage au cas du réseau qui sera discuté ci-dessous, les principaux problèmes encore en suspens sont :

a) le traitement de la structure atomique réelle de la terre rare avec la hiérarchie des différents couplages :  $S > 1/2$ , couplage spin-orbite, champ cristallin de symétrie quelconque, couplage hyperfin.

b) l'étude des effets liés à la dégénérescence de l'état fondamental de la terre rare à l'approche du régime valence intermédiaire.

c) le cas particulier des terres rares comme le thulium, qui sont susceptibles de fluctuer entre deux configurations magnétiques.



*Fig. I-1 : Schématisation de la densité d'états pour le problème Kondo à basse température. Le pic de largeur  $\Delta$  représente le niveau lié virtuel  $4f$ . La résonance Kondo se manifeste par un pic de largeur  $2k_B T_K$  au niveau de Fermi (d'après [21]).*

### I-3 RESEAU KONDO

Considérons maintenant, un système Kondo concentré où les "impuretés" magnétiques sont disposées de façon périodique sur un réseau. Les propriétés à basse température de ce système sont dominées par la compétition entre l'effet Kondo à une impureté et le couplage intersite des moments magnétiques localisés. Dans les métaux, cette interaction vient principalement du mécanisme R.K.K.Y. dû aux oscillations de la densité des électrons de conduction. L'intensité autour de l'impureté de cette interaction indirecte R.K.K.Y. est caractérisée par l'énergie  $E_{R.K.K.Y.} \approx \Gamma^2 N(E_F)$ .

La constante  $\Gamma$  dépend de l'hybridation  $V_{s-f}$  des états  $f$  et  $sd$  et de la position relative du niveau  $f$  par rapport au niveau Fermi

$$\Gamma \approx \frac{V_{s-f}^2}{E_F - E_f}$$

Cette expression a été obtenue par Schrieffer et Wolff [22] à partir du modèle asymétrique d'Anderson avec  $V_{s-f}$  et  $E_F - E_f \ll U$ , où  $U$  est l'énergie d'interaction coulombienne de deux électrons de spins opposés.

Dans la majorité des composés intermétalliques à base de terres rares, le niveau  $f$  est nettement au-dessous du niveau de Fermi et la constante  $\Gamma$  est extrêmement faible. Dans ce cas, l'énergie de Kondo, qui est proportionnelle à  $\exp(-1/N(E_F)\Gamma)$ , est négligeable par rapport à l'énergie R.K.K.Y. ; ainsi, la formation du singulet est bloquée par l'apparition d'une transition magnétique à  $T \sim T_{R.K.K.Y.}$  qui gèle le processus de diffusion avec renversement de spin. Un ordre magnétique peut s'établir dont la nature dépend de la valeur de  $\Gamma$  et probablement aussi de nombreux autres facteurs tels que la surface de Fermi et l'anisotropie.

Pour obtenir un réseau Kondo non magnétique, il faut au contraire que le niveau  $f$  soit suffisamment proche du niveau de Fermi, pour augmenter la valeur de la constante d'échange  $\Gamma$ .

La compétition entre effet Kondo et interactions peut expliquer qualitativement les deux types d'états fondamentaux rencontrés expérimentalement dans les systèmes à fermions lourds non supraconducteurs :

- cas ordonné ( $CeAl_2$ ,  $CePb_3$ ) caractérisé par des manifestations "résiduelles" de l'effet Kondo dans la phase ordonnée (moments réduits,  $\gamma$  résiduel élevé, structures modulées),
- cas non ordonné, caractérisé par des manifestations "résiduelles" des interactions : (interactions à courte distance ( $CeCu_6$ ), ordre avec des moments extrêmement faibles ( $CeAl_3$ )).

Au-delà du régime précédent caractérisé par des fluctuations du moment magnétique, l'hybridation des électrons  $4f$  avec les électrons de conduction peut entraîner une fluctuation de la charge (occupation de la couche  $4f$ ). Le système fluctue alors entre deux configurations  $4f^n$  et  $4f^{n-1}$ . On parlera de systèmes à valence intermédiaire ( $CeSn_3$ ,  $CeBe_{13}$ ).

Les propriétés magnétiques et de transport des systèmes Kondo et à valence intermédiaire sont en général très sensibles à l'application d'une pression hydrostatique ;

en effet, celle-ci tend à augmenter l'hybridation entre états localisés et délocalisés, et par conséquent, à accroître la température caractéristique du système. Nous verrons par la suite comment on peut mettre à profit cette propriété. Il faut également noter le rôle très important de la dégénérescence (effet du champ cristallin) dans le mécanisme de la transition magnétique-non magnétique. Le premier modèle de réseau Kondo, décrivant la compétition entre l'interaction R.K.K.Y. et l'effet Kondo, a été introduit par Doniach [23] en utilisant l'approximation de champ moyen. Il a été amélioré ensuite [24-26] par différents auteurs (traitement par la technique de la renormalisation, prise en compte de la dégénérescence, effet de paire d'impuretés). Cependant, la compréhension de ce phénomène reste encore qualitative.

Les résultats expérimentaux montrent que, dans les réseaux Kondo non magnétiques, il existe deux échelles d'énergie [27] :

- une température élevée de Kondo  $T_K$  reliée à celle de l'impureté isolée,
- une température  $T^*$  ("température de cohérence") au-dessous de laquelle il y a diffusion cohérente des électrons sur les centres magnétiques. Ce régime est celui où se manifestent les propriétés du type liquide de Fermi.

## I-4 PROPRIÉTÉS DES SYSTÈMES À FERMIONS LOURDS

Nous allons décrire de façon plus détaillée quelques-uns des aspects les plus marquants qui caractérisent expérimentalement les systèmes à fermions lourds.

### I-4-1 Chaleur spécifique

Dans un composé métallique non magnétique, la chaleur spécifique est la somme de deux contributions, l'une d'origine électronique, l'autre due aux phonons. À suffisamment basse température, elle peut s'écrire sous la forme :

$$C = \gamma T + \beta T^3$$

Le coefficient  $\beta$  est donné par :

$$\beta = \frac{12}{5} \pi^4 N k_B \frac{1}{\theta_D^3}$$

où  $N$  est le nombre d'atomes dans l'échantillon mesuré et  $\theta_D$  température de Debye.

Le coefficient de Sommerfeld  $\gamma$  est donné par :

$$\gamma = \frac{2}{3} k_B^2 \pi^2 N^*(E_F)$$

avec  $N^*(E_F) = N(E_F) (1+\lambda)$ , où  $N(E_F)$  est la densité d'états au niveau de Fermi,  $(1+\lambda)$  est le facteur de renforcement dû aux interactions avec les phonons. La valeur typique de  $\gamma$  pour un métal ordinaire est de l'ordre de  $1 \text{ mJ.mole}^{-1}.\text{K}^{-2}$ .

Les figures I-2a et I-2b représentent la variation de  $C/T$  en fonction de la température  $T$  des composés à fermions lourds  $\text{CeAl}_3$  [28] et  $\text{CeCu}_6$  [29]. La quantité  $C/T$  augmente fortement lorsque la température décroît et tend vers une valeur très grande pour  $T \rightarrow 0$ . Ce comportement pourrait être expliqué, au moins qualitativement, par le modèle Kondo à une impureté (voir § I-2). Cependant, à très basse température, nous observons des valeurs de  $\gamma$  énormes :  $1500 \text{ mJ/mole K}^2$  pour le composé  $\text{CeAl}_3$  et  $1600 \text{ mJ/mole K}^2$  pour le composé  $\text{CeCu}_6$ . On notera que dans le cas de  $\text{CeAl}_3$ , l'existence d'un ordre (situé au voisinage de 1 à 2 K, selon les propriétés étudiées [14a, 16a, 16b]) ne semble pas affecter la variation de  $C$ . De plus, on voit que dans ce composé,  $C/T$ , à  $P = 0$ , passe par un maximum vers une température de 400 mK [30] qui a été assimilée à la température de cohérence  $T^*$ .

La figure I-3 représente  $C/T$  en fonction de  $T^2$  pour les composés ordonnés magnétiquement  $\text{U}_2\text{Zn}_{17}$  et  $\text{UCd}_{11}$  [7]. On distingue facilement l'anomalie magnétique centrée à la température d'ordre.

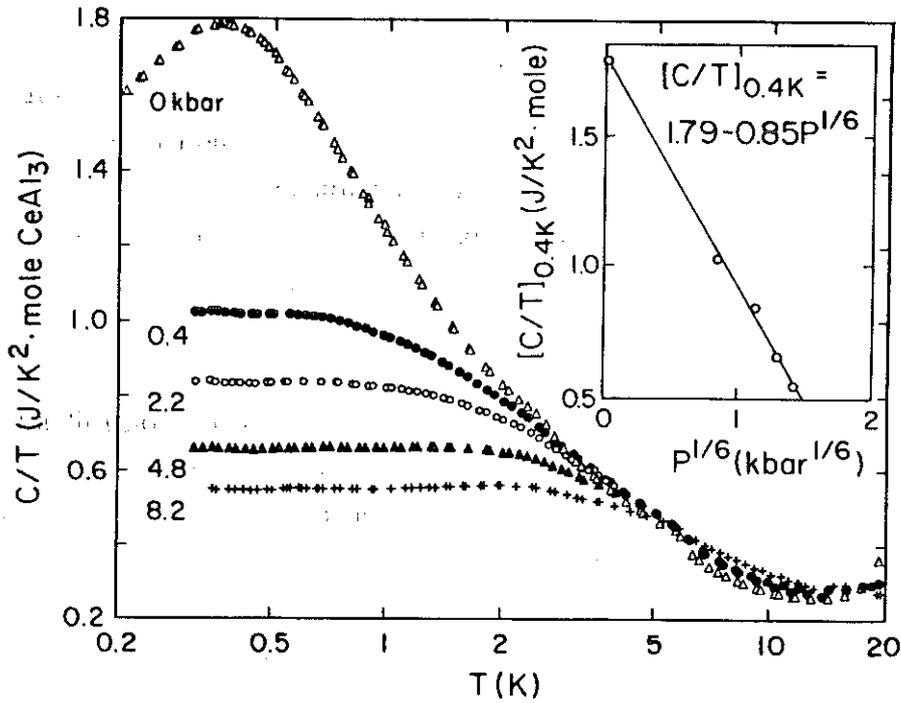


Fig. 1-2a : Chaleur spécifique sous pression du composé  $CeAl_3$  en diagramme  $C/T$  fonction de  $\log T$ , d'après [28].

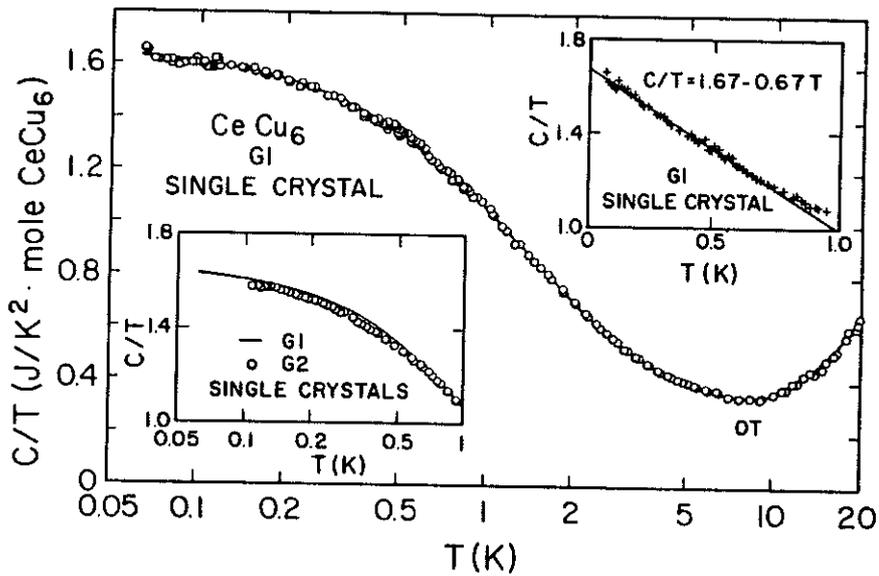


Fig. 1-2b : Chaleur spécifique du composé  $CeCu_6$  en diagramme  $C/T$  fonction de  $\log T$ , d'après [29].

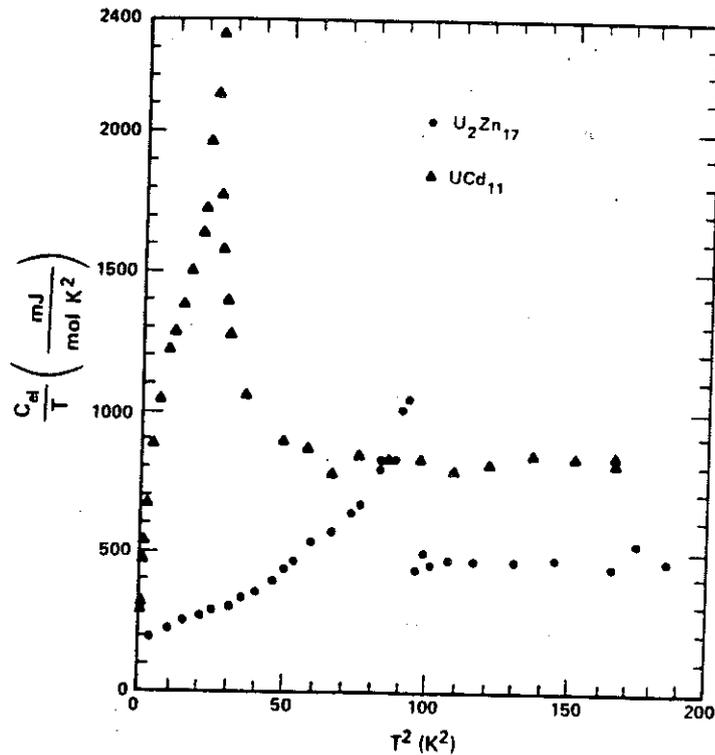


Fig. I-3 :  $C_d/T$  en fonction de  $T^2$  des composés ordonnés  $U_2Zn_{17}$  et  $UCd_{11}$  [7].

Dans le tableau ci-après, nous donnons quelques exemples de composés possédant un  $\gamma$  élevé.

Composés	Nature de l'état fondamental	$\gamma(0)$ (mJ/mole $K^2$ )	$\chi(0)$ $10^{-3}$ uem/mole	Références
CeAl <sub>3</sub>	Mag	1600	30-40	[30]
CeCu <sub>6</sub>	N Mag	1600	27	[29]
CeCu <sub>2</sub> Si <sub>2</sub>	Mag et Supra	1100	7	[32]
CeRu <sub>2</sub> Si <sub>2</sub>	N Mag	360	35	[33] [34]
CeAl <sub>2</sub>	A.F. modulé	150	40-60	[35] [36]
UBe <sub>13</sub>	Supra	1100	15	[37]
UCd <sub>11</sub>	A.F.	840	38	[7]
$U_2Zn_{17}$	A.F.	530	12	[7]
UPt <sub>3</sub>	Mag et Supra	450	7	[38]
NpBe <sub>13</sub>	A.F.	900	56	[7]

Dans le cas des terres rares, la contribution magnétique dans la chaleur spécifique est due aux électrons occupant des orbitales 4f hybridées avec la bande de conduction. Elle représente le terme le plus intéressant puisqu'il donne directement accès aux propriétés de l'état fondamental du composé étudié.

Dans les composés Kondo non ordonnés, l'entropie du niveau fondamental dégénéré  $N$  fois doit se trouver résorbée par la formation d'un état singulet fondamental au-dessous de la température de Kondo. Il apparaît dans la chaleur spécifique vers  $T \approx T_K/2$  un maximum arrondi dépendant fortement de la dégénérescence. Cette contribution a été calculée par Rajan [39] dans un modèle de Coqblin Schrieffer. Elle dépend en outre de la dégénérescence ( $S > 1/2$ ).

Dans certains composés comme  $UPt_3$  par exemple [38], on observe un terme  $T^3 \text{Log}(T)$  dans la chaleur spécifique. Ceci a été attribué aux fluctuations de spins.

#### I-4-2 Susceptibilité magnétique

La forte localisation des électrons 4f permet d'interpréter les propriétés magnétiques à haute température par un modèle de moments magnétiques localisés. Ainsi la susceptibilité magnétique  $\chi$  suit, dans les composés à fermions lourds à base de cérium, une loi de Curie-Weiss à haute température. Ce comportement de Curie-Weiss, peut être modifié à plus basse température par les effets du champ cristallin, lequel joue un rôle très important. Les figures I-4a et I-4c représentent à titre d'exemple la variation thermique de l'inverse de la susceptibilité en fonction de la température des composés  $CeAl_3$  [40] et  $CeCu_6$  [29].

Lorsque la température tend vers zéro, la susceptibilité est finie mais présente une valeur très élevée.  $\chi_0$  est de l'ordre de  $10$  à  $100 \times 10^{-3}$  uem/mole alors qu'elle ne vaut que  $10^{-5}$  uem/mole environ pour un métal ordinaire. Comme dans la chaleur spécifique, la valeur géante de  $\chi_0$  suggère une description de ces systèmes par un modèle de liquide de Fermi avec des quasiparticules fortement renormalisées.

A basse température, la susceptibilité des composés à fermions lourds peut présenter un départ quadratique en température. Si l'on considère la relation de Maxwell :

$$[\partial(C/T)/\partial H]_T = (\partial^2 M / \partial T^2)_H$$

le coefficient de ce terme quadratique doit être positif ou négatif selon que la chaleur spécifique augmente ou diminue sous champ magnétique. Un terme en  $T^2$  positif a été observé dans la susceptibilité  $\text{CeAl}_3$ , au-dessous d'un maximum situé vers 0,8 K [30] (figure I-4b) ; notons qu'ici, comme dans la chaleur spécifique, aucune anomalie n'a encore été détectée au voisinage de la "température d'ordre" (1 à 2 K) ; par contre, le maximum de  $\chi$  coïncide assez bien avec la température (0,7 K) au-dessous de laquelle les corrélations observées par des expériences de relaxation muons-spins deviennent cohérentes [14a]. Dans le cas de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ ,  $\chi/c$  passe par un maximum vers 10 K [34] et une variation en  $T^2$  positive vient d'être observée au-dessous de  $\approx 5$  K (non mentionnée en réf. 34). Dans le cas de  $\text{CeCu}_6$ , les auteurs de la réf. 29 concluent, à partir des mesures de chaleur spécifique sous champ magnétique ( cf. fig. I-2b), que  $\chi(T)$  doit présenter une variation en  $T^2$  négative à très basse température ( figure I-4d).

Cependant, dans de nombreux systèmes, ce régime en  $T^2$  est occulté par des remontées de type Curie attribuées à des sites particuliers où le cérium se comporte comme une impureté à faible  $T_K$  [41].

Dans le cas des composés ordonnés magnétiquement et à basse température, le moment ordonné peut être inférieur à la valeur attendue pour l'état fondamental de champ cristallin par suite de la compétition avec l'effet Kondo.

### I-4-3 Résistivité électrique

Dans un alliage métallique à base de terres rares, la résistivité électrique a pour expression dans le domaine paramagnétique :  $\rho = \rho_0 + \rho_{ph} + \rho_m$  où  $\rho_0$  est la résistivité résiduelle provenant des défauts du réseau cristallin et des impuretés non magnétiques,  $\rho_{ph}$  est la résistivité due à la diffusion des électrons par les phonons qui est une fonction croissante de la température dont la variation est approximativement linéaire au-dessus de la température de Debye, et  $\rho_m$  est la résistivité due aux moments magnétiques localisés qui correspond, dans un régime paramagnétique, à une résistivité de désordre de spins due à la diffusion des électrons par les moments paramagnétiques.

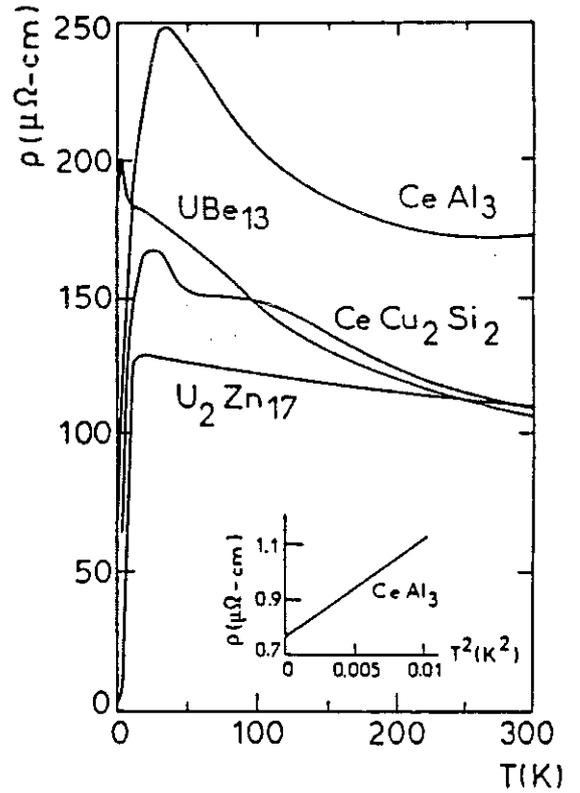
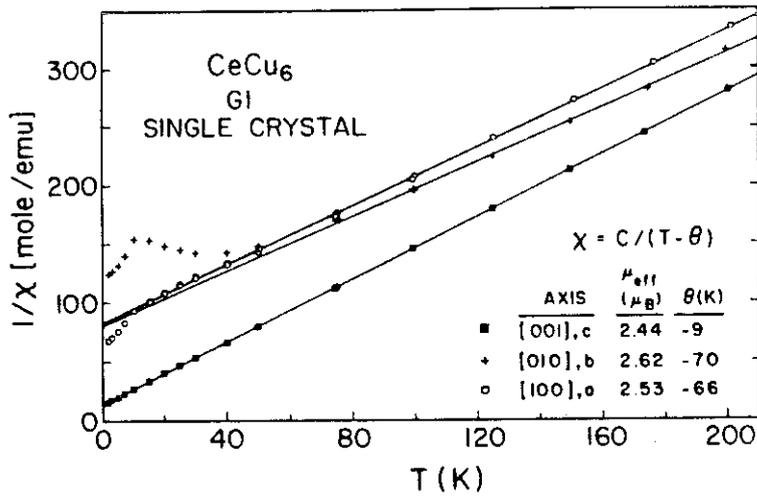
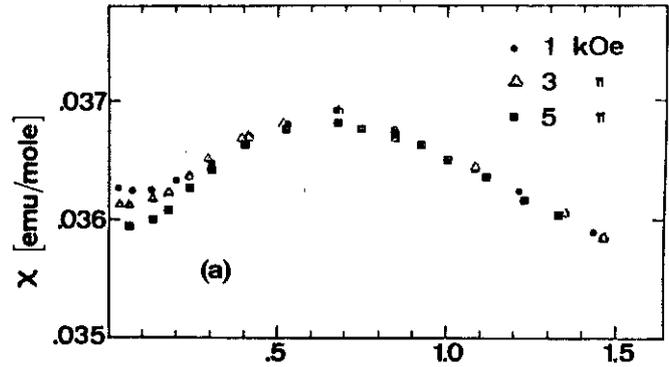
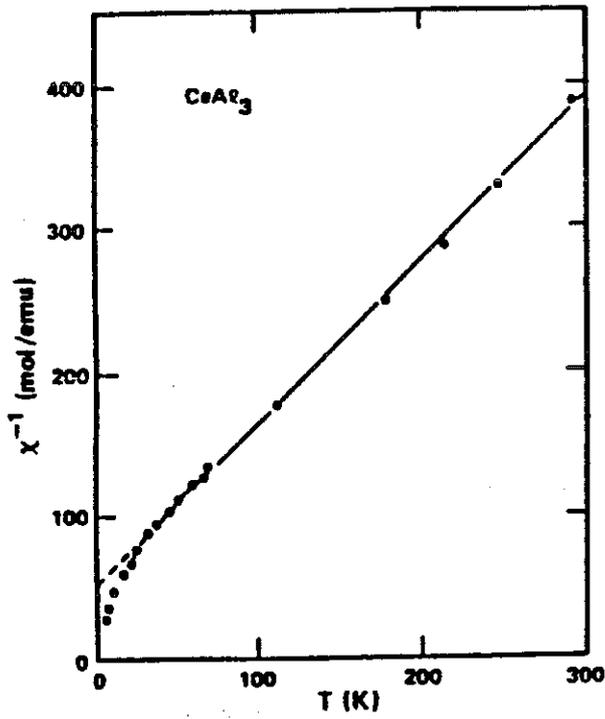


Fig. I-4 (en haut): Susceptibilité de  $CeAl_3$ , à haute et basse température, d'après [40] et [30], respectivement ; (en bas, à gauche): Susceptibilité de  $CeCu_6$ , d'après [29].

Fig. I-5 (en bas, à droite) : Résistivité électrique de quelques composés à fermions lourds, d'après [1].

Dans un réseau Kondo, à suffisamment haute température, la diffusion due aux moments magnétiques localisés est incohérente, et on a un régime d'impuretés magnétiques indépendantes. Ce régime (en  $-\log T$ , avec éventuellement des effets de champ cristallin) n'est pas toujours facile à observer car il est difficile d'estimer et de retrancher  $\rho_{ph}$ .

A basse température, la diffusion devient cohérente et la résistivité décroît vers une valeur résiduelle qui peut dépendre fortement de la pureté du cristal (comme dans le cas de  $CePd_3$ ). Dans la majorité des composés à fermions lourds un régime en  $\rho = \rho_0 + AT^2$  est observé au-dessous d'une température caractéristique  $T^*$  (qui, dans le cas de  $CeAl_3$ , coïncide avec le maximum observé dans  $C/T$ ). Une telle dépendance quadratique de la résistivité est caractéristique des interactions électron-électron dans un liquide de Fermi.

#### I-4-4 Effet Hall

Dans un métal non magnétique, la résistivité de Hall est définie comme étant le rapport du champ électrique de Hall par la densité de courant longitudinal :

$$\rho_H = \frac{E_H}{J_x} = R_0 H \quad (1)$$

où  $\rho_H$  est la résistivité de Hall et  $R_0$  le coefficient de Hall, appelé aussi parfois "constante" de Hall (fig. I-6). Dans le modèle simple d'électrons libres,  $R_0$  vaut  $1/nec$  (en C.G.S.) où  $c$  est la vitesse de la lumière,  $e$  la charge de l'électron et  $n$  le nombre d'électrons de conduction. Si la conduction se fait par deux types de porteurs, par exemple des électrons et des trous, avec des densités respectives  $n_e$  et  $n_p$ , le coefficient de Hall s'écrit :

$$R_H = \frac{e}{c\sigma^2} (n_e \mu_e^2 - n_p \mu_p^2)$$

où  $\sigma$  est la conductivité électrique du métal et  $\mu_e$ ,  $\mu_p$  sont respectivement les mobilités des électrons et des trous.

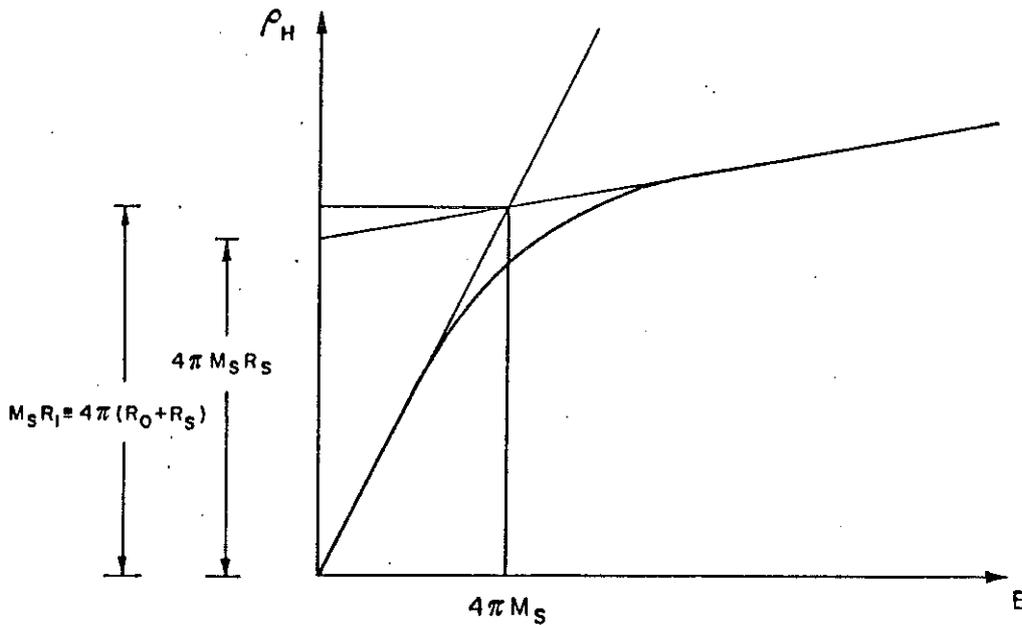


Fig. I-6 : Tension de Hall d'un système ferromagnétique d'après Hurd [42].

La non-validité de la relation (1) dans les métaux ferromagnétiques est apparue à peine 10 ans après la découverte de Hall vers 1880. On s'est ensuite rendu compte, en même temps que progressait l'étude du magnétisme, que dans un matériau magnétique, les électrons de conduction sont soumis non seulement au champ extérieur, mais aussi au champ magnétique interne dû à l'existence de moments magnétiques. Mais ce n'est que beaucoup plus tard [43] que le terme additif dû à ce champ interne fut appelé effet Hall extraordinaire, et que fut établie la relation (2) ci-après. Parallèlement, cet effet a été observé dans des matériaux paramagnétiques, et par la suite, dans les alliages dilués contenant des impuretés magnétiques. Il a fait l'objet de nombreuses études théoriques. Nous allons examiner différents cas

#### I-4-4-1 Systèmes ferromagnétiques

L'effet Hall des systèmes ferromagnétiques est couramment analysé à partir de la relation phénoménologique :

$$\rho_H = R_0 B + 4 \pi R_S M \quad (2)$$

où  $R_0$  est l'effet Hall ordinaire,  
 $R_S$  est l'effet Hall extraordinaire,  
 $B$  est l'induction magnétique dans le métal,  
 $M$  est l'aimantation de l'échantillon.

En écrivant  $B = H_{\text{int}} + 4 \pi M$ , la relation (2) devient :

$$\rho_H = R_0 H_{\text{int}} + R_1 M$$

avec

$$R_1 = 4 \pi (R_0 + R_s)$$

Comme on a d'autre part  $H_{\text{int}} = H_{\text{app}} + H_{\text{dés}} = H_{\text{app}} - 4 \pi N M$  où  $N$  est le coefficient de champ démagnétisant qui dépend de la géométrie de l'échantillon, l'équation (1) peut aussi s'écrire :

$$\rho_H = R_0 [H_{\text{app}} + 4 \pi (1-N)M] + 4 \pi R_s M.$$

On peut procéder de deux manières pour extraire la résistivité de Hall extraordinaire. La première consiste à extrapoler la partie au-dessus de la saturation des isothermes mesurées  $\rho_H (H_{\text{app}})$  vers  $B = 0$ , donc à écrire :  $H_{\text{app}} + 4 \pi M + H_{\text{dés}} = 0$ , soit :  $H_{\text{app}} = -4 \pi (1-N) M_{\text{sat}}$  (fig. I-6). Cette façon de faire dépend du comportement de  $\rho_H$  au-dessus de la saturation, qui n'est pas forcément linéaire; et par conséquent cette méthode d'extrapolation est bien souvent peu fiable. Par contre, lorsque l'effet extraordinaire est grand, il est pratiquement toujours possible d'observer un coude prononcé pour  $H_{\text{app}} = -H_{\text{dés}} = 4 \pi N M_{\text{sat}}$ . Si l'aimantation du cristal est connue, on en déduit le coefficient du champ démagnétisant de l'échantillon. Lorsque la température est supérieure à la température d'ordre (dans le régime paramagnétique), l'aimantation est proportionnelle au champ magnétique appliqué et  $\rho_H$  s'écrit :

$$\rho_H = \{R_0 + [R_s + R_0 (1-N)] 4 \pi \chi^*\} H_{\text{app}} \quad (3)$$

où  $\chi^* = \chi / (1 + 4 \pi N \chi)$  est la susceptibilité effective qui tient compte du champ démagnétisant,  $\chi$  étant la susceptibilité magnétique.

Si  $R_0$  et  $R_s$  sont indépendants de la température, cette équation prédit une dépendance linéaire de la quantité  $(\rho_H / H_{\text{app}})$  en fonction de la susceptibilité effective.

#### *1-4-4-2 Origine de l'effet Hall extraordinaire*

L'interaction spin-orbite des électrons polarisés par le champ extérieur et la diffusion asymétrique sont à l'origine de l'effet Hall extraordinaire. L'introduction d'une interaction d'échange entre le spin de l'ion magnétique et le spin de l'électron de conduction ( $\mathcal{H}_{s-f} = -\Gamma \vec{S} \cdot \vec{s}$ ) permet de comprendre un grand nombre de propriétés de

ces systèmes (effet Kondo, interactions R.K.K.Y.). Cependant, particulièrement dans les terres rares où le moment orbital n'est pas bloqué, l'interaction entre ions magnétiques et l'électron de conduction ne se résume pas à cette seule interaction d'échange entre spins, mais fait apparaître d'autres contributions où intervient notamment l'état orbital aussi bien de l'ion magnétique que de l'électron de conduction. Les principaux mécanismes de la diffusion asymétrique à l'origine de l'effet Hall extraordinaire sont la diffusion gauche ("skew scattering") et la diffusion avec saut latéral ("side-jump").

La diffusion gauche est caractérisée par des probabilités de diffusion différentes de l'électron incident, vers la gauche où vers la droite, ces directions étant les directions + et - sur l'axe perpendiculaire au moment magnétique et à la direction incidente. La formulation de la diffusion avec saut latéral ("side jump") des électrons de conduction a été donnée par Berger [44]. Un électron de conduction considéré comme un paquet d'onde subit un retard lors de sa collision avec un centre diffuseur ; si l'on tient compte du couplage spin-orbite de l'électron, le déphasage du paquet d'onde est différent suivant qu'il est diffusé à droite ou à gauche du centre diffuseur et il en résulte un saut latéral, c'est-à-dire que le centre de masse du paquet d'onde est déplacé d'un certain  $\Delta r$  par rapport à la direction de propagation. La formulation du mécanisme de saut latéral reste un problème délicat et la distinction expérimentale entre effet de diffusion gauche et saut latéral n'est toujours pas évidente [45].

Fert et collaborateurs ont effectué de nombreuses études de ces effets dans des alliages d'impuretés 3d et de terres rares diluées (dans l'or en particulier) [46].

#### *I-4-4-3 Réseaux Kondo et composés à fermions lourds ou à valence intermédiaire*

Fert [47] a interprété l'effet Hall d'alliages dilués de cérium, par un modèle dans lequel il attribue le terme extraordinaire à la diffusion gauche. Celle-ci est traitée en utilisant l'hamiltonien de Coqblin-Schrieffer [48]. Ce calcul, qui n'est valable qu'au-dessus de  $T_K$ , reproduit assez bien les variations en  $H/T$  du coefficient et de la tension de Hall extraordinaires d'un alliage La-3,4%Ce, dans la limite  $g\mu_B H \ll k_B T$ .

Plus récemment, Coleman, Anderson et Ramakrishnan (CAR) [49] ont essayé d'interpréter l'effet Hall extraordinaire (de type diffusion gauche) dans les composés Kondo ou de valence intermédiaire par un calcul faisant appel à un niveau résonnant dans un liquide de Fermi, qui est valable en principe dans deux limites de températures  $T \gg T_K$  et  $T \ll T_K$ .

Par la suite, Fert, Levy et Hamzic [50] ont effectué un calcul dans lequel ils combinent les deux approches des réf. 47 et 49, calcul qu'eux-mêmes et collaborateurs ont appliqué aux cas d'un certain nombre de composés [50a,51,52]. Ils ont considéré que la constante de Hall expérimentale est la somme d'un terme de diffusion gauche  $R_H(T)$  et d'un terme résiduel attribué à l'effet Hall ordinaire et à la diffusion gauche résiduelle par les défauts et les impuretés du réseau cristallin (Fig.I-7, à gauche). La constante de Hall obtenue est donnée maintenant par une expression générale de la forme :

$$R_H = \gamma \tilde{\chi}(T) \rho(T) + R_0 \quad (4)$$

où  $\tilde{\chi}(T)$  est la susceptibilité réduite :  $\tilde{\chi}(T) = [3 k_B / (g \mu_B)^2 j(j+1)] \chi$   
et  $\rho(T)$  est la résistivité due à la diffusion résonnante.

Le coefficient  $\gamma$  prend deux valeurs différentes selon la gamme de température (fig. I-7, à droite)

pour  $T \gg T_K$  :  $\gamma = \gamma_1 = (-5/7) g \mu_B k_B^{-1} \sin \delta_2 \cos \delta_2$

et pour  $T_{coh} \lesssim T \lesssim T_K$  :  $\gamma = \gamma_2 = -\frac{5\pi}{2I} g \mu_B k_B^{-1} \frac{\sin(2\delta_3 - \delta_2) \sin \delta_2}{\sin^2 \delta_3}$

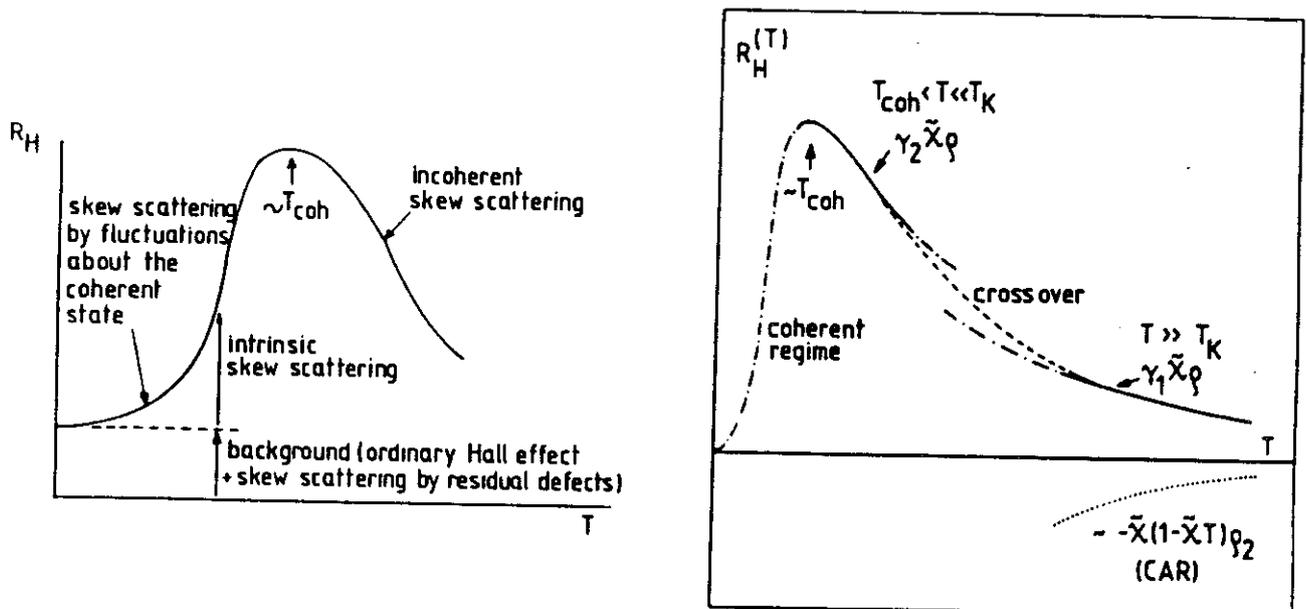


Fig. I-7 (à gauche) : Schéma d'interprétation de l'effet Hall dans les systèmes à fermions lourds ; (à droite) : Variation calculée du coefficient de Hall ; (d'après [50a]).

Récemment, le terme de la contribution de vitesse anormale dû aux effets de la diffusion avec saut latéral a été calculé pour les systèmes à ions Kondo indépendants [53]. Les résultats de ce calcul montrent que cette contribution à l'effet Hall est certainement négligeable devant celle de la diffusion gauche lorsque  $T \gg T_L \sim T_K$ , mais à basse température,  $T \ll T_L \sim T_K$ , elle devient importante et excède celle de la diffusion gauche ( $T_L$  est ici une température caractéristique liée à l'inverse de la susceptibilité à  $T = 0$ :  $\chi^{-1}(0) = k_B T_L$ ). Cet effet a été invoqué pour expliquer une remontée de  $R_H$  à basse température dans des composés de la série  $CeCu_{5-x}Al_x$  [54a], dans lesquels le désordre fait que la résistivité ne décroît pas à basse température ; un comportement analogue a été observé précédemment dans  $Ce_{1-x}Y_xPd_3$  [54b]. Dans le cas dilué, la diffusion gauche est proportionnelle à la concentration  $c$  des impuretés alors que le terme de vitesse anormale est proportionnel à  $c^2$ .

Dans les composés à fermions lourds, les études expérimentales [34,51,52,54-59] ont montré clairement l'existence de l'effet Hall extraordinaire. Les différents régimes observés en fonction de la température peuvent le plus souvent s'interpréter comme il est indiqué sur la figure I-7a. Les modèles théoriques qui ne considèrent que le terme de diffusion gauche sur des impuretés non corrélées ne sont pas en très bon accord avec les résultats expérimentaux (Fig. I-8). Lorsqu'on compare ces derniers à la formule de la référence 50, on introduit implicitement les effets de cohérence en prenant pour  $\tilde{\chi}(T)$  et  $\rho(T)$  les variations tirées de l'expérience. Ceci explique entre autres que les courbes "théoriques" présentent un maximum comparable à celui observé dans les mesures d'effet Hall. Cependant, ainsi qu'on pouvait s'y attendre, le passage du régime incohérent au régime cohérent n'est pas bien reproduit [34,51], et les comportements à basse température diffèrent notablement. On peut en outre penser que d'autres termes tels que le saut latéral, ainsi que les effets de champ cristallin, s'ajoutent à la diffusion gauche et peuvent jouer un rôle non négligeable dans les propriétés observées.

Les variations de la résistivité de Hall avec le champ sont moins simples à analyser et moins bien expliquées que dans le cas des matériaux ferromagnétiques. Dans les composés ordonnés, au-dessous de la température d'ordre, la résistivité de Hall  $\rho_H$  peut présenter des singularités aux champs correspondant au passage des lignes du diagramme de phases magnétique (cf. TmSe [56], CeAl<sub>2</sub> [57]). Pour certains composés,  $\rho_H$  va jusqu'à changer de signe et devient négatif comme dans le cas d'un métal normal. Ceci a été notamment observé dans les composés trivalents ordonnés CeAl<sub>2</sub> à très basse température [57] (Fig. I-9a) et dans CePb<sub>3</sub> sous pression [58b]. Dans le domaine paramagnétique, le terme extraordinaire de  $\rho_H$  peut cependant être proportionnel à l'aimantation jusqu'à un champ limite au-delà duquel on observe une saturation ou un

maximum de  $\rho_H$ . Cela est observé également dans les composés de valence intermédiaire comme  $\text{CeSn}_3$  [59] (Fig. I-9b).

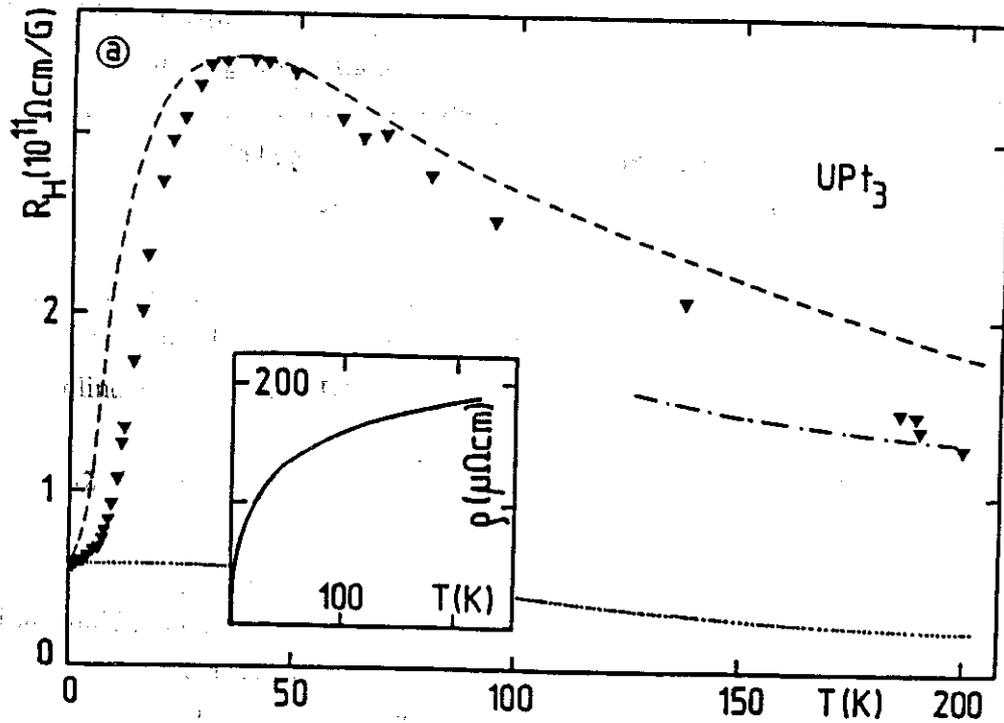


Fig. I-8: Constante de Hall en fonction de la température dans  $\text{UPt}_3$  d'après [51] :  
 ▼ points expérimentaux ; ----- ajustement basé sur la diffusion gauche pour  $\gamma_1 = \gamma_2 = \gamma$  ; - . - . - idem pour  $\gamma' < \gamma$  ; ..... variation du terme résiduel.

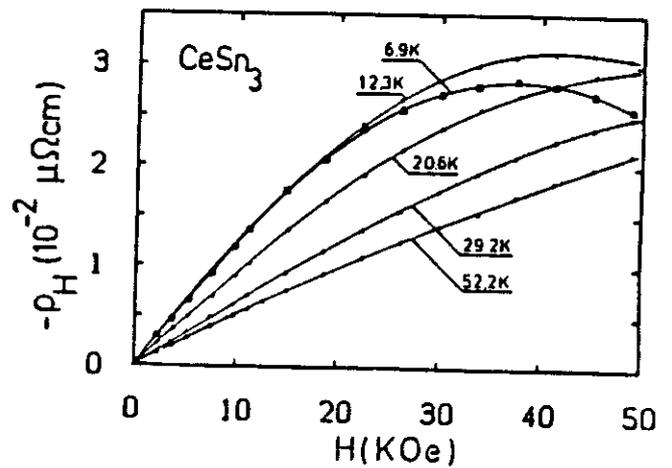
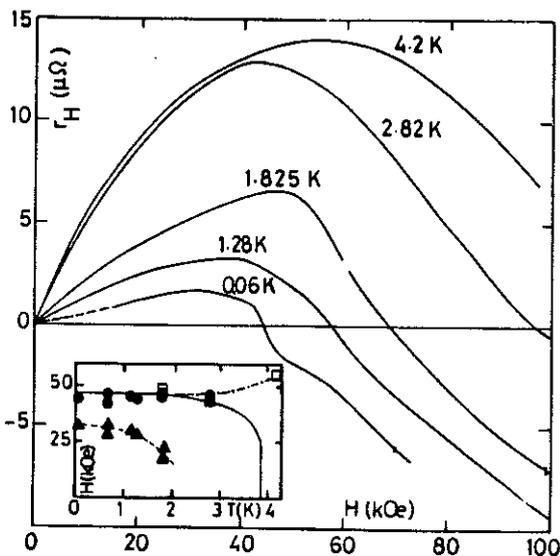


Fig. I-9 : Tension de Hall des composés  $\text{CeAl}_2$  (a) et  $\text{CeSn}_3$  (b), d'après [57] et [59], respectivement.

## CHAPITRE II

**RAPPELS SUR LES PROPRIETES  
MAGNETIQUES ET DE  
TRANSPORT DU COMPOSE  
 $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$   
ET SUR LES PROPRIETES  
MAGNETIQUES DES SOLUTIONS  
SOLIDES  
 $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$**



## II-1 STRUCTURE CRISTALLINE

Le composé  $CeRu_2Si_2$  cristallise dans une structure quadratique centrée de type  $ThCr_2Si_2$ , appartenant au groupe  $I4/mmm$ , qui est une variante ordonnée du type  $BaAl_4$ , dont les sites inéquivalents d'aluminium sont occupés par des atomes Cr et Si. Les premiers échantillons de ce type ont été synthétisés par Ban et Sikirica [60] en 1965. Depuis lors, la plupart des composés isomorphes  $RT_2M_2$  (où R est une terre rare ou un actinide, T un métal de transition ou un métal noble et M un élément des colonnes II-a, III-a ou VI-a du tableau périodique (B, Si, Ge,...)) ont été étudiés, et plus particulièrement ceux qui présentent des propriétés anormales (Ce, Eu, Yb et U). La figure II-1 représente la maille élémentaire de  $CeRu_2Si_2$ .

Ballestraci et Astier [61] ont déterminé pour la première fois les paramètres de maille a et c par diffraction de rayons X (Debye et Scherrer) et trouvé :

$$a = 4.192 \text{ \AA}$$

$$c = 9.87 \text{ \AA}$$

On remarque la valeur élevée du rapport  $c/a$  qui constitue une première indication de l'importance des effets d'anisotropie dans les propriétés de ce composé.

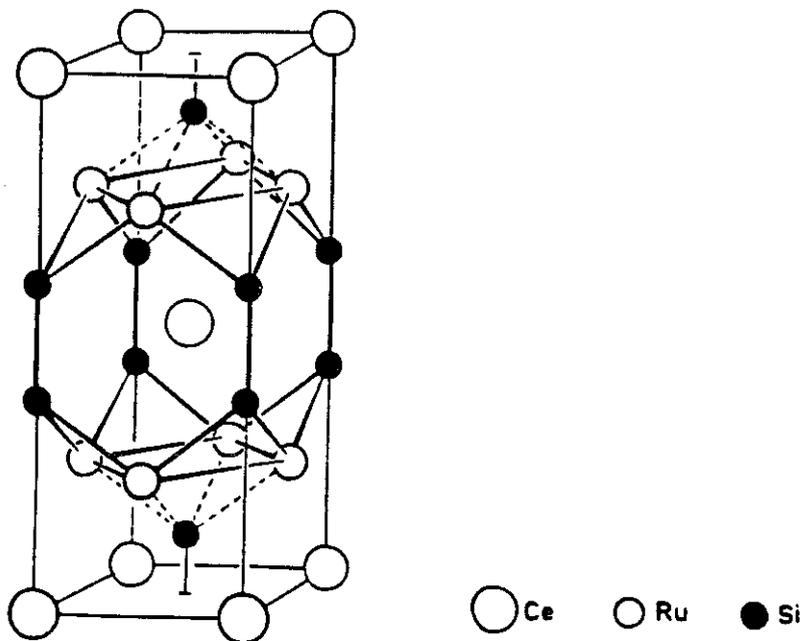


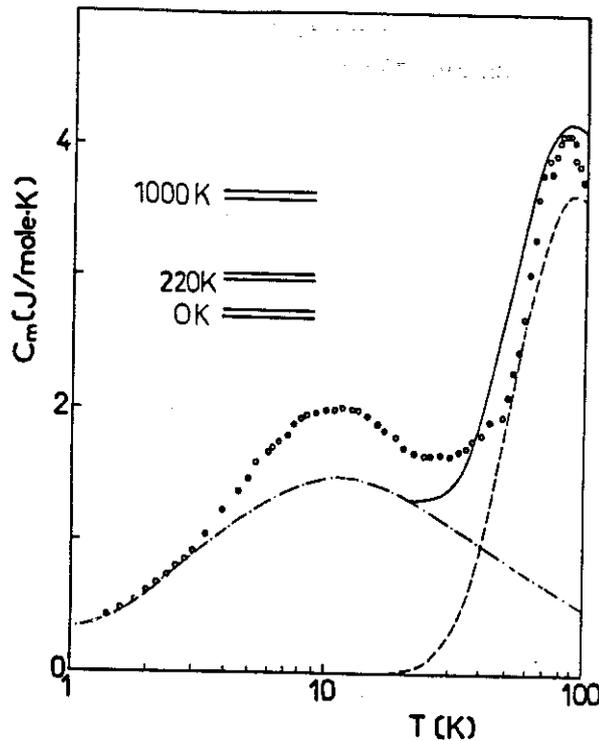
Fig. II-1 - Structure cristalline de  $CeRu_2Si_2$ , d'après [62].

## II-2 CHALEUR SPECIFIQUE

La chaleur spécifique de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  a été mesurée par différents auteurs qui ont obtenu les valeurs suivantes du terme  $\gamma$  à basse température, en  $\text{mJ/mole K}^2$  : 310 [62-65], 385 [66], 350 [67] et 354 [33,68]. Ces valeurs relativement élevées permettent de classer  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  à la frontière des composés à fermions lourds (où  $\gamma$  est plus généralement de l'ordre de  $1 \text{ J/mole K}^2$ ).

La figure II-2 illustre la variation de la contribution magnétique  $C_m(T)$  de la chaleur spécifique de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  en fonction de  $\text{Log } T$  entre 1,5 et 100 K [62,63]. Celle-ci présente deux maxima :

- l'un à 84 K a été interprété comme une anomalie de Schottky apparaissant lorsque le premier doublet excité de champ cristallin est progressivement peuplé à température croissante. L'ajustement de la courbe expérimentale conduit à un écart de 220 K entre ce premier doublet excité et le doublet fondamental,



**Fig. II-2 :** Chaleur spécifique magnétique de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  d'après [62,63] :  
 - - - - - Calcul dans un modèle Kondo ;  
 - - - - - Calcul de l'anomalie de Schottky de champ cristallin ;  
 ———— Courbe calculée totale.

- l'autre à 11 K a été attribué à l'effet Kondo, ce qui conduit à  $T_K \approx 24$  K. Toutefois ce maximum est mal représenté par une loi de type Kondo avec spin 1/2 et peut être attribué à d'autres effets comme nous allons le voir par la suite.

## II-3 PROPRIETES MAGNETIQUES

### II-3-1 Susceptibilité magnétique

La susceptibilité magnétique  $\chi_{//}$  mesurée dans un champ dirigé suivant l'axe  $c$  (fig. II-3) suit, à haute température, une loi de Curie-Weiss avec un moment effectif à 300 K de l'ordre du moment théorique de l'ion libre  $Ce^{3+}$  [34]. La température de Curie  $\theta$  correspondante est pratiquement nulle. On observe une déviation par rapport à cette variation pour les températures inférieures à 70 K. Finalement  $\chi_{//}$  présente un léger maximum à  $T_{max} = 10$  K. Au-dessous de  $\approx 4,2$  K, on s'attend à ce que  $\chi_{//}$  présente une variation en  $T^2$  caractéristique des systèmes à fermions lourds, mais le coefficient de celle-ci est faible et n'est pas donné dans [34] ; il n'a été mesuré que très récemment [68].

A basse température, les propriétés magnétiques de  $CeRu_2Si_2$  sont très anisotropes : la susceptibilité dans le plan de base  $\chi_{\perp}$  ne présente aucune anomalie et varie peu en fonction de la température. A 4,2 K, le rapport d'anisotropie est de l'ordre de 15.

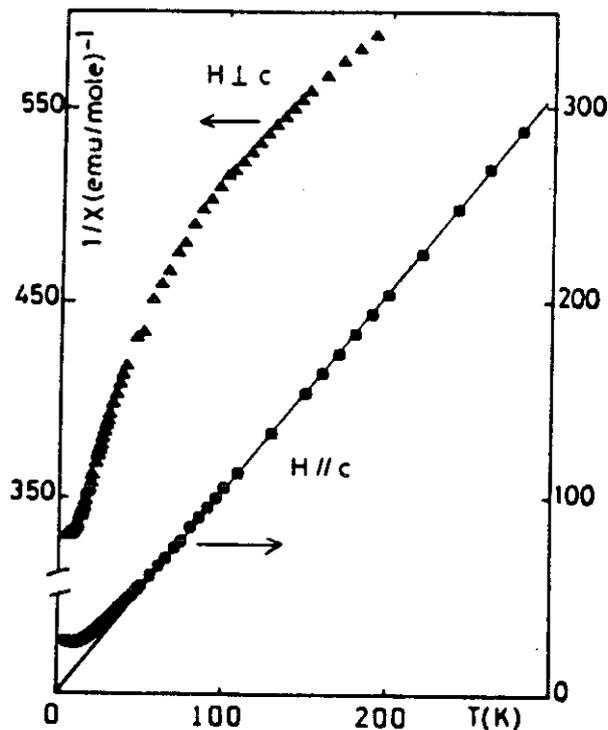


Fig. II-3 : Inverse des susceptibilités  $\chi_{//}$  et  $\chi_{\perp}$  de  $CeRu_2Si_2$  en fonction de la température, d'après [34].

### II-3-2 Aimantation

A 4,2 K, l'aimantation  $M_{//}$  présente une transition du type métamagnétique à  $H_M \approx 8,3$  T [34], lorsque le champ magnétique appliqué est parallèle à l'axe  $c$  de la structure quadratique (fig. II-4). La courbe  $M_{//}$  est rigoureusement réversible : aucune hystérèse en champ n'a pu être mise en évidence [34]. Le maximum de  $\partial M/\partial H$  à  $H = H_M$  est fortement dépendant de la température. Il varie approximativement en  $1/(T + \theta)$  pour  $1,4 \leq T \leq 10$  K, avec une très faible valeur de  $\theta$  (de l'ordre de 1 K).

Cette transition disparaît lorsque le champ magnétique est parallèle au plan de base  $(a,a)$  ; l'aimantation  $M_{\perp}$  est alors beaucoup plus faible et présente une variation pratiquement linéaire en  $H$  (fig. II-4).

### II-3-3 Corrélations antiferromagnétiques

Des mesures par diffusion de neutrons [11-13] ont montré l'apparition de corrélations antiferromagnétiques (AF) au-dessous de 60 à 70 K. Ceci se traduit par la présence dans les spectres en énergie d'une contribution inélastique avec un gain  $\hbar\omega_0 \approx 1,2$  meV. L'intensité correspondante est localisée dans le réseau réciproque autour des vecteurs incommensurables  $k_1 = [0,3 \ 0 \ 0]$  et  $k_2 = [0,3 \ 0,3 \ 0]$ . L'apparition de ces corrélations peut donc être responsable du fait que  $\chi_{//}$  dévie d'une loi de Curie au-dessous de 70 K, ainsi que d'autres effets observés par exemple dans les propriétés de transport (que nous décrivons ci-après). Le point essentiel est que les longueurs de corrélation restent finies lorsque  $T \rightarrow 0$  de sorte que l'ordre à longue distance ne peut s'établir.

Notons aussi que l'existence de ces corrélations jette un doute sur l'interprétation du maximum de chaleur spécifique à 11 K dans un modèle à un impureté, ce qui expliquerait le mauvais ajustement observé sur la figure II-2. Une tentative pour introduire les effets intersites dans un modèle de champ moyen a été présentée dans la référence 62.

Enfin, les neutrons ont montré également [11-13] que ces corrélations disparaissent dans un champ  $H \geq H_M$  pour laisser place à des moments alignés ferromagnétiquement, ce qui explique la transition de type métamagnétique dans  $M_{//}$ . Les mesures de chaleur spécifique sous champ effectuées à Berkeley sur des monocristaux [33,68] montrent que le coefficient  $\gamma$  à  $T = 0$  passe par un maximum à  $H_M$  (du moins

dans un alliage  $Ce_{0,95}La_{0,05}Ru_2Si_2$ , où  $H_M$  est abaissé à une valeur plus accessible à l'expérience).

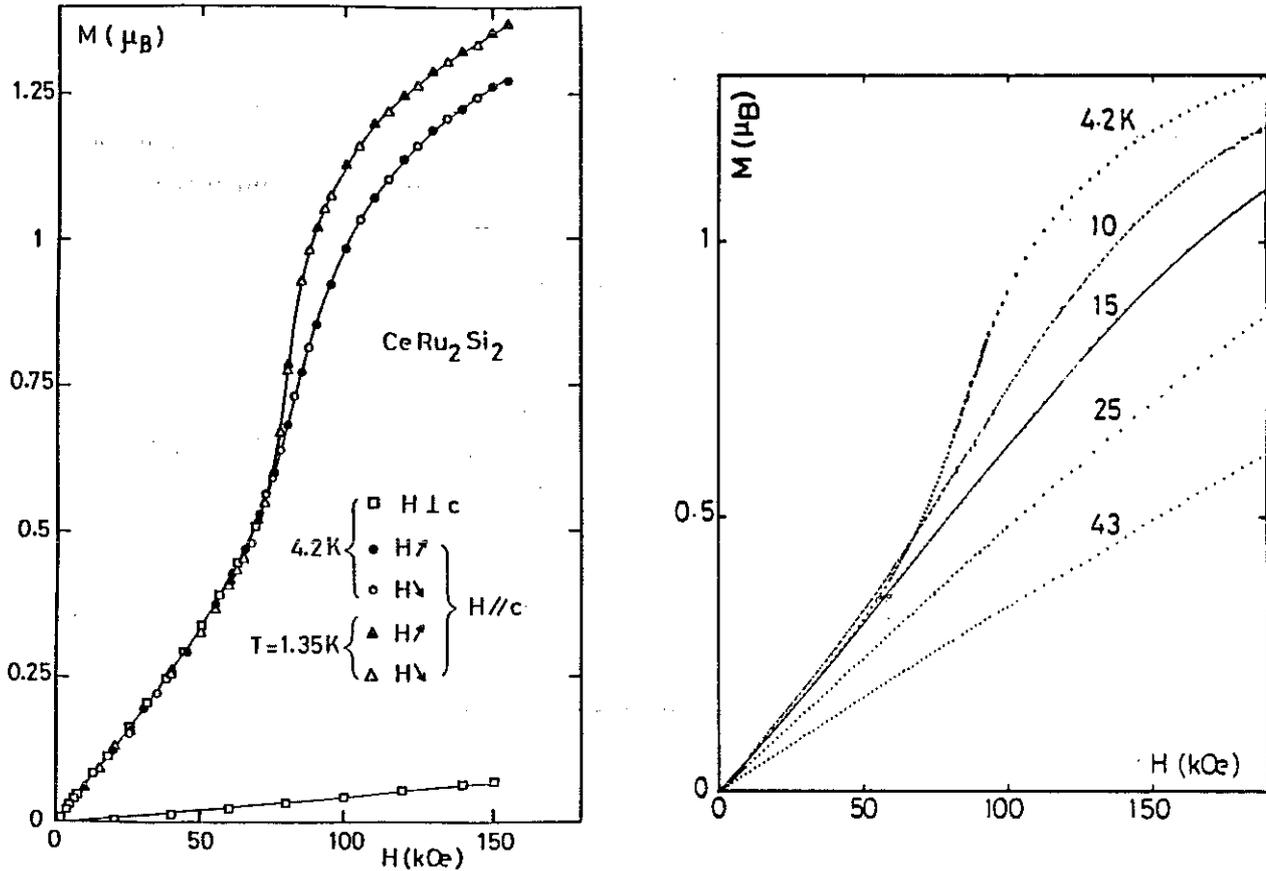


Fig. II-4 : Courbes d'aimantation de  $CeRu_2Si_2$ , d'après [34].

## II-4 PROPRIETES DE TRANSPORT

### II-4-1 Résistivité électrique

La résistivité électrique, pour un courant circulant dans le plan de base ( $i // (a,a)$ ) présente une diminution continue lorsque la température décroît [34]. On observe un changement de régime se produisant vers 20-25 K c'est-à-dire vers la valeur de  $T_K$  obtenue par la chaleur spécifique à basse température. Entre 15 et 1 K, la résistivité chute de façon presque linéaire en  $T$  avec un coefficient  $B \approx 0,8$  à  $1,2 \mu\Omega cm K^{-1}$ . Une variation proche de  $T^2$  est observée au-dessous de 1 K. Cette variation n'est généralement pas rigoureusement quadratique mais plutôt en  $T^n$  avec  $n = 1,7 \pm 0,1$ , et un coefficient  $A$  de l'ordre de  $0,3$  à  $0,7 \mu\Omega cm K^{-2}$ .

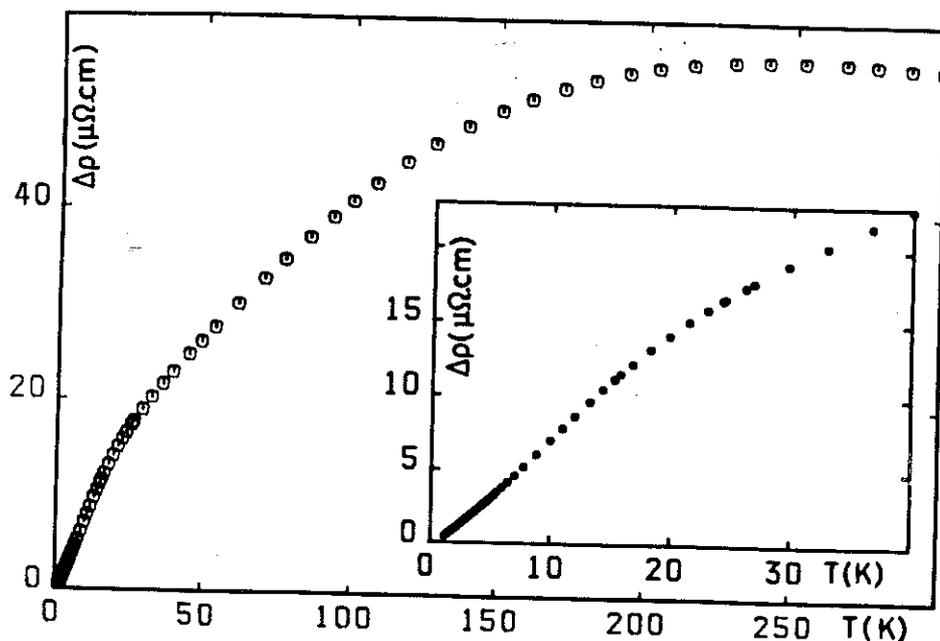


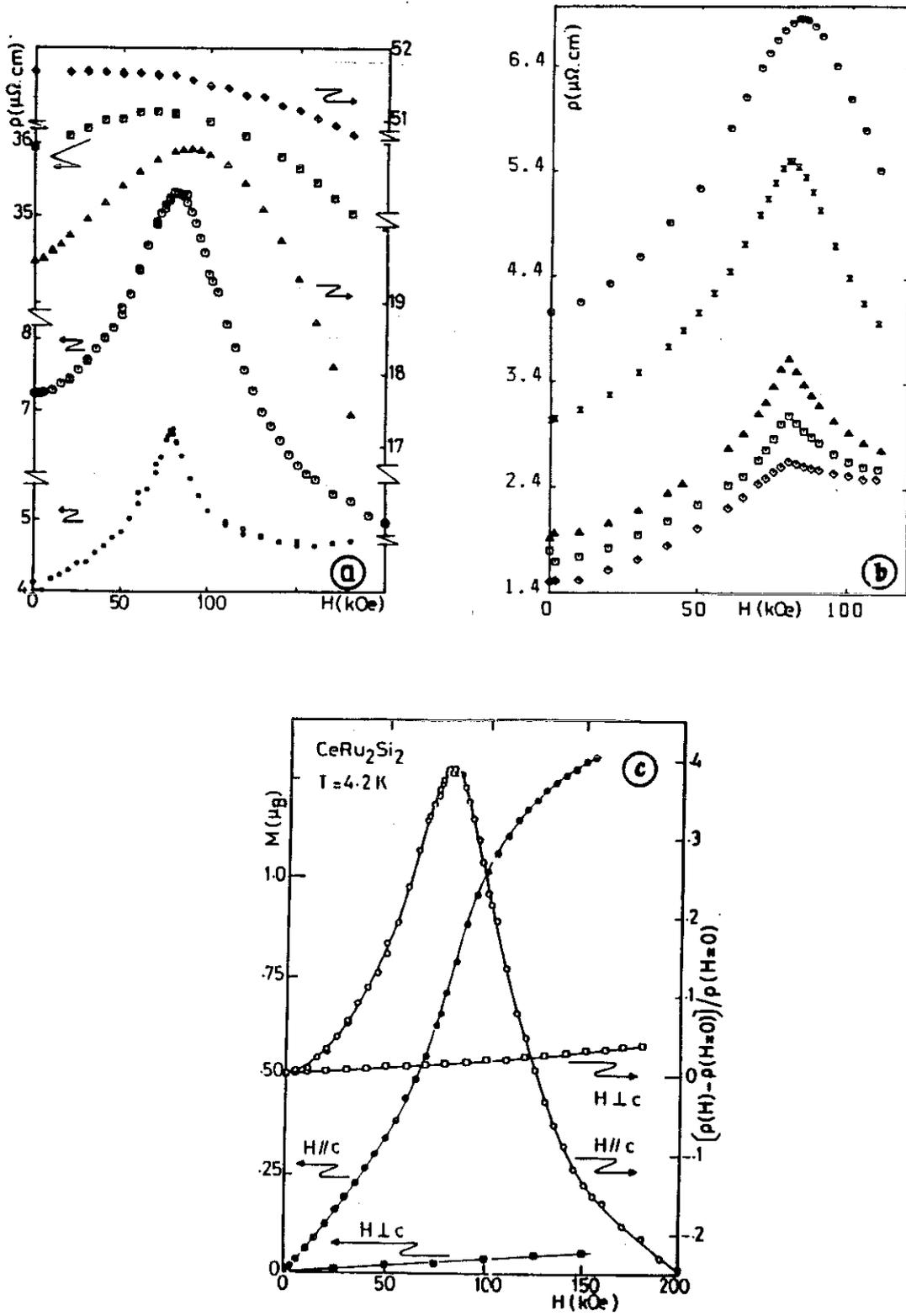
Fig. II-5 : Contribution magnétique à la résistivité de  $CeRu_2Si_2$  après soustraction de la contribution du réseau, d'après [34].

A haute température et après soustraction de la contribution du réseau estimée à partir de la résistivité de  $LaRu_2Si_2$ , un maximum très aplati apparaît vers 220 K (fig. II-5). Celui-ci peut indiquer la présence d'effets de champ cristallin en accord avec le schéma déduit de la chaleur spécifique.

#### II-4-2 Magnétorésistance

A basse température et lorsque le courant électrique est appliqué parallèlement au plan de base (a,a), la magnétorésistance présente une forte contribution positive pour  $H//c$ , suivie d'un maximum à un champ  $H^*$  (fig. II-6) de l'ordre de 8 T.

Au-dessous de 1,5 K, le maximum devient plus aigu. De façon surprenante, la courbe  $\rho(H)$  présente toujours une anomalie prononcée à  $H^*$  quand  $T \rightarrow 0$ , et décroît très peu pour  $H > H^*$  (cf. la courbe à 70 mK de la figure II-6b). Cette contribution peut être attribuée à certains atomes de cérium placés dans des sites distordus mais sensibles aux effets de champ moléculaire et qui semblent sous l'effet du champ transiter d'un état d'impuretés non magnétiques ( $H < H^*$ ) vers celui d'impuretés magnétiques ( $H > H^*$ ). A basse température, le pic de  $\rho(H)$  est de toute évidence associé au saut de l'aimantation à  $H_M$  (comme le montre la figure II-6c où sont représentées la magnétorésistance et l'aimantation à 4,2 K dans les directions parallèle et perpendiculaire à l'axe c). Notons que lorsque la température croît, l'inflexion de  $M(H)$  disparaît vers 15 K (fig. II-4),



**Fig. II-6 :** Magnétorésistance d'un monocristal de  $CeRu_2Si_2$ , d'après [34] :  
 a : de bas en haut : 1,4 K ; 4,2 K ; 15 K ; 40 K et 73 K ;  
 b : de bas en haut : 70 et 700 mK, 1,13 K, 2,7 K et 4,2 K ;  
 c : Aimantation et magnétorésistance d'un monocristal de  $CeRu_2Si_2$  à 4,2 K.

tandis que le maximum de  $\rho(H)$  reste visible beaucoup plus longtemps : il s'atténue progressivement lorsque la température augmente, c'est-à-dire lorsque disparaissent les corrélations AF, pour laisser place à une magnétorésistance négative, caractéristique de moments magnétiques localisés indépendants.  $H^*$  coïncide avec  $H_M$  jusque vers 10 K, où il passe par un maximum, puis décroît lorsque  $T$  augmente [34]. On verra par la suite que lorsque  $i$  est parallèle à l'axe  $c$ , la valeur du champ  $H^*$  pour laquelle  $\rho$  est maximum n'est pas identique à celle obtenue pour  $i$  perpendiculaire à  $c$ , et ceci d'autant plus que la température est plus élevée. Un tel comportement n'est pas en accord avec l'hypothèse d'un "champ de transition"  $H_M$  bien défini par le maximum de  $\rho(H)$  (sauf à très basses températures).

Lorsque le champ magnétique est appliqué perpendiculairement à l'axe  $c$ , le maximum de  $\rho(H)$  disparaît. La résistivité croît faiblement et de façon monotone avec  $H$  (fig. II-6c).

#### II-4-3 Pouvoir thermoélectrique

Le pouvoir thermoélectrique (PTE) a été étudié par Amato à Genève [69]. La figure II-7 montre que dans la gamme de température explorée ( $0,08 < T < 300$  K), le PTE mesuré avec le gradient de température dans le plan de base ( $S \perp c$ ) est grand et positif, et présente trois maxima :

- un maximum étendu entre 200 et 250 K ( $T_1$ ),
- un pic localisé au voisinage de 25 K ( $T_2$ ),
- un autre maximum au-dessous de 1 K ( $T_3$ )

Pour  $S // c$ , la courbe est analogue, mais décalée vers le bas et l'on retrouve les deux températures  $T_1$  et  $T_2$  dans la gamme étudiée.

Le maximum à la température  $T_1$  est à rapprocher de celui observé dans la résistivité magnétique et peut être attribué à la compétition entre le champ cristallin et la diffusion Kondo incohérente, comme le suggère le schéma de niveaux déduit des mesures de chaleur spécifique effectuées à Strasbourg [62,63]. Le bon accord entre la température  $T_2$  du second pic positif et la valeur de la température de Kondo  $T_K$ , extraite de ces mesures en utilisant la théorie à une impureté de Rajan [39] suggère que ce maximum à  $T_2$  correspond à la résonance Kondo de chaque ion malgré le fait que le couplage magnétique est certainement comparable à la température de Kondo. Enfin,  $T_3$  correspond au passage au régime en  $T^2$  de la résistivité.

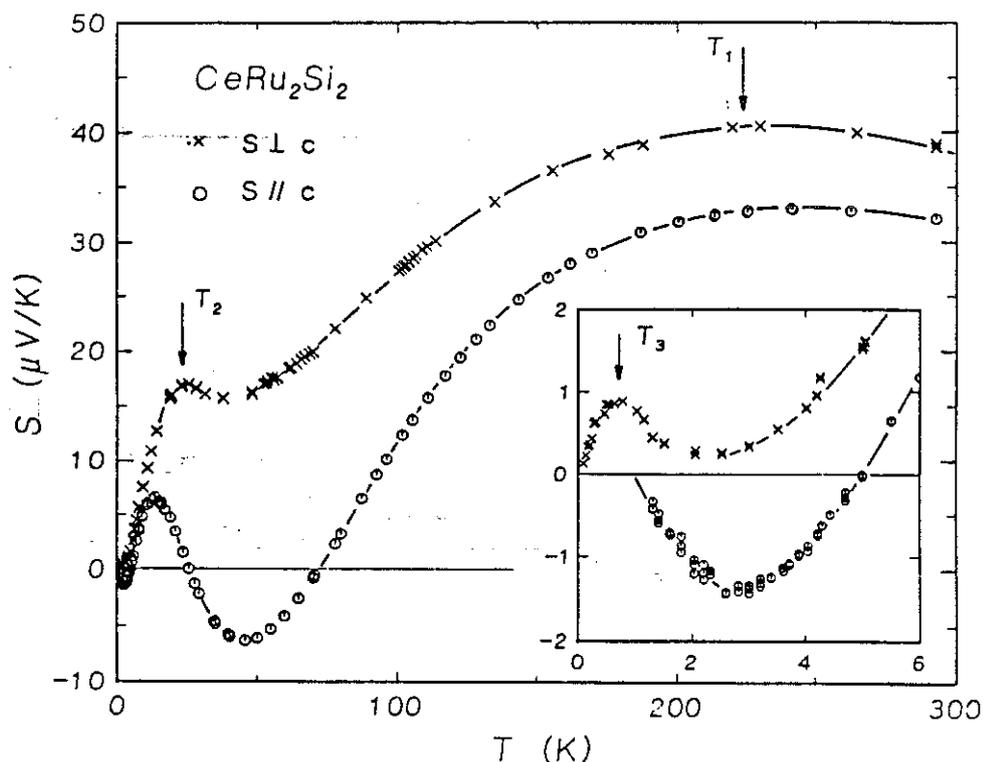
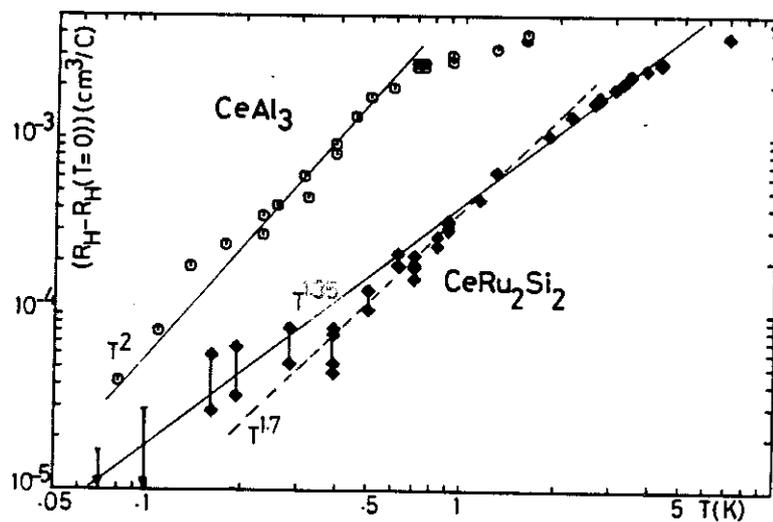
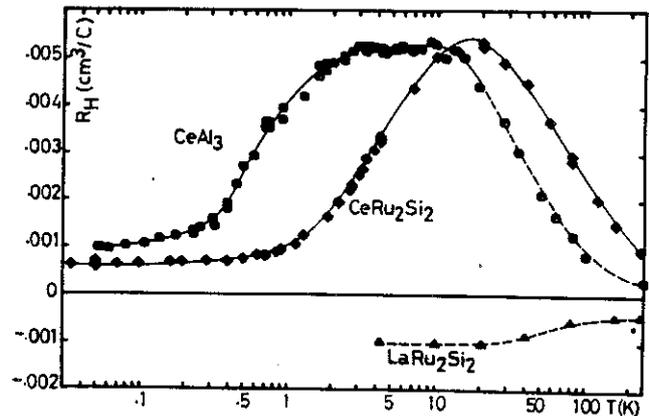
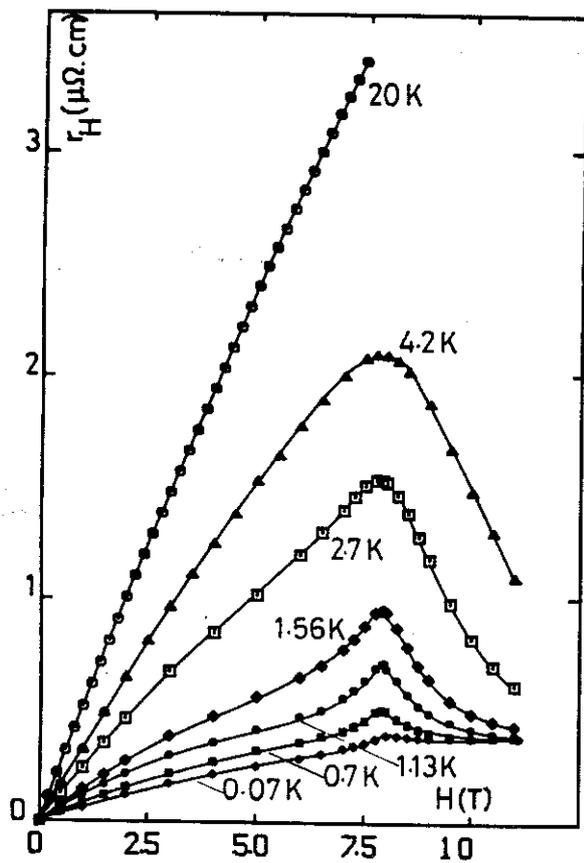


Fig. II-7 : Pouvoir thermoélectrique de  $CeRu_2Si_2$ , d'après [69].

#### II-4-4 Effet Hall

La résistivité de Hall  $\rho_H$  (définie au chapitre I) du composé  $CeRu_2Si_2$  a été trouvée positive dans toute la gamme de température et de champ explorée (70 mK-300 K,  $H \leq 11$  T [34]). La figure II-8 représente  $\rho_H(H)$  pour  $T \leq 20$  K. On voit que lorsqu'elle a été mesurée en champ suffisamment élevé (au-dessous de 4,2 K),  $\rho_H$  présente des caractéristiques analogues à celle de la magnétorésistance.  $\rho_H(H)$  passe par un maximum de plus en plus aigu lorsque  $T$  diminue, maximum qui coïncide là aussi avec le champ  $H_M$  de la transition métamagnétique. Pour  $T \leq 0,7$  K,  $\rho_H(H)$  présente une saturation à haut champ. Au-dessus de 4,2 K,  $\rho_H$  n'a été mesurée que dans un champ  $H \leq 7,5$  T (cf. la courbe à 20 K de la figure II-8). Les fortes valeurs de  $\rho_H(H)$  ainsi que ses variations sont caractéristiques d'un effet Hall extraordinaire positif. La chute de  $\rho_H$  à haut champ indique que cet effet Hall anormal est progressivement réduit dans la phase polarisée, tout en restant positif.

Si l'on considère le coefficient de Hall,  $R_H$ , défini par la pente initiale de  $\rho_H(H)$ , il présente lui-même des valeurs très élevées dues à une contribution d'effet Hall anormal (fig. II-9); il passe par un maximum à 18 K (à rapprocher de la valeur de  $T_K$  déduite des mesures de chaleur spécifique [62,63]). A très basse température on devrait observer une variation en  $T^2$  de  $R_H$ . Dans la référence [34], celle-ci a plutôt été assimilée à une variation en  $T^n$  au-dessous de  $\approx 3$  K, avec  $n = 1,35$  à 1,7 (cf. fig. II-9).



*Fig. II-8 (en haut et à gauche) : Résistivité de Hall de  $CeRu_2Si_2$ , d'après [34].*

*Fig. II-9 : Coefficients de Hall des composés à fermions lourds  $CeAl_3$  et  $CeRu_2Si_2$  et du composé  $LaRu_2Si_2$ , d'après [34]. En haut et à droite, tracé en fonction de  $\log T$  ; (pour  $CeAl_3$ , les points à haute température sont tirés de la réf. 55b). En bas, tracé à très basse température de  $R_H(T) - R_H(0)$ , en échelles log.*

La valeur positive de  $R_H$  ainsi que sa variation en fonction de la température résulte des mécanismes de diffusion des électrons de conduction par les sites de cérium (voir chapitre I). Cependant, comme l'ont montré Haen et coll. [34], l'ajustement de la variation expérimentale de  $R_H$  dans le modèle de Fert et Levy [50] est loin d'être satisfaisant. Ainsi que nous l'avons noté au chapitre I, ces auteurs ont présenté récemment [53] un calcul par lequel ils montrent qu'à basse température les contributions de vitesse anormale dus à la diffusion avec saut latéral (side-jump) sont dominants alors que dans le régime de diffusion incohérente à haute température, les contributions de la diffusion gauche (skew-scattering) l'emportent. Cependant, ce nouveau modèle ne semble pas permettre d'améliorer l'ajustement. Nous discuterons ces points au chapitre IV.

## II-5 EFFETS DE LA PRESSION

### II-5-1 Aimantation

A basse température, l'aimantation de  $CeRu_2Si_2$  a été mesurée sous pression hydrostatique jusqu'à 6 kbar par Voiron et coll. [70].

A 4,2 K, l'aimantation pour  $H//c$  présentent une forte diminution en fonction de la pression : un facteur  $\approx 3$  à 7 T pour seulement 6 kbar (fig. II-10a). La transition métamagnétique à 8,3 T pour  $P = 0$  et  $T = 4,2$  K, n'est pas observée car ces mesures ont été faites jusqu'à  $H = 7$  T seulement, et on n'observe qu'une diminution de la courbure positive de  $M(H)$  lorsque la pression augmente.

Lorsque  $H$  est parallèle au plan de base ( $a,a$ ), l'aimantation décroît toujours en fonction de la pression, mais la variation relative est nettement moins importante que dans l'autre direction.

### II-5-2 Susceptibilité

Pour  $4,2 \leq T \leq 40$  K, la susceptibilité magnétique dépend fortement de la pression comme le montre la figure II-10b. On retrouve la forte diminution de  $\chi_{//}$  à 4,2 K et celle, moins rapide, de  $\chi_{\perp}$ . Le rapport d'anisotropie passe ainsi de 15 à 7 environ. Le maximum de  $\chi_{//}(T)$  montre une augmentation de la température de Kondo avec la pression.

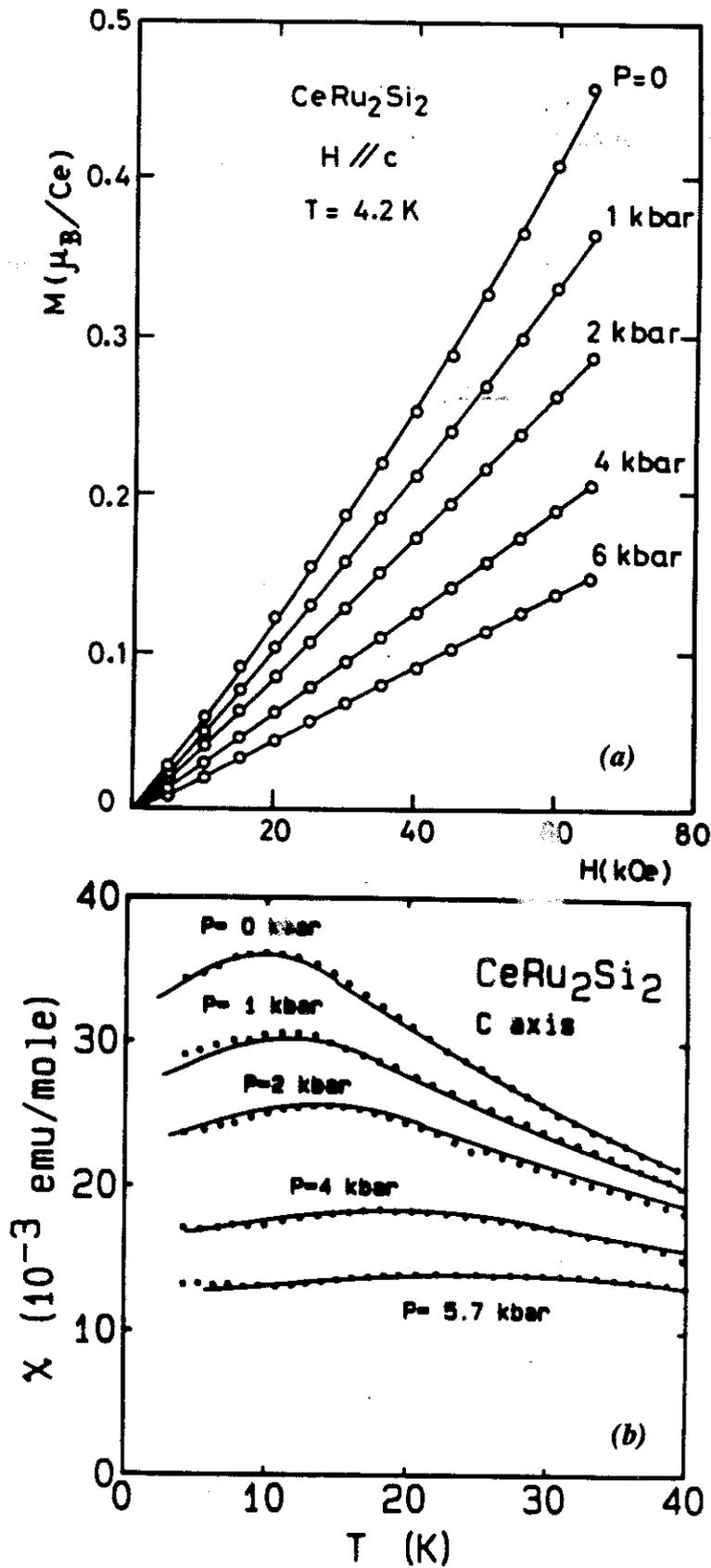


Fig. II-10 : (a) Aimantation et (b) susceptibilité de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  sous pression [70]. Les courbes en trait continu, sur la figure II-10b, sont déduites de la courbe à  $P = 0$  à l'aide de la relation phénoménologique rappelée dans le texte.

De même, la variation de  $\chi_0$  ( $\equiv \chi_{//}$  à  $T = 0$ ) assimilée à  $\chi_{//}$  (4,2 K) peut être attribuée à l'augmentation en fonction de la pression de l'énergie caractéristique du liquide de Fermi avec le rapport

$$\Gamma_\chi = \partial \text{Log} E_\chi / \partial P = 170 \text{ Mbar}^{-1}.$$

On observe une corrélation entre  $\chi_0$  et  $T_{\text{max}}$  :  $\chi_0 \cdot T_{\text{max}} \approx \text{cte}$ , qui suggère une représentation par une relation simple de la forme :

$$\chi/\chi_0(P) = \psi [T/T_s(P)] \text{ avec } T_s(P) \approx 1/\chi_0(P) [70].$$

Ce comportement est illustré par des courbes en trait continu sur la figure II-10b, déduites de la courbe à  $P = 0$  à l'aide de la loi proposée.

Dans ce régime, l'ensemble des résultats en fonction de la pression peut ainsi se décrire à l'aide d'un paramètre unique, par exemple  $T_s(P)$  dont la variation donne un coefficient de Grüneisen de l'ordre 180.

### II-5-3 Résistivité et magnétorésistance

La résistivité électrique du composé  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  a été mesurée entre  $\approx 1,5$  K et l'ambiante et jusqu'à 17 kbars par Thompson et coll. [66] puis par A. Ponchet [71] jusqu'à 20 mK et 7,6 kbars et jusqu'à 1,2 K entre 7,6 et 10,6 kbars.

A haute température, elle augmente légèrement et de façon linéaire en fonction de la pression (fig. II-11 [71]). Ce comportement est également observé dans d'autres systèmes Kondo tels que  $\text{CeIn}_3$  [72] et  $\text{UBe}_{13}$  [73].

A basse température, les courbes se croisent et le changement de régime vers 20-25 K n'est plus visible à partir de 4 kbar. Le coefficient A du terme quadratique (ou assimilé) observé au-dessous de 1 K à pression ambiante chute rapidement lorsque la pression augmente, mais la zone de validité augmente (fig. II-12). Ce coefficient, qui à pression ambiante a une valeur intermédiaire entre celle des systèmes tels que  $\text{CeAl}_3$ ,  $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$  etc..., et celle des systèmes à fluctuations de valence (cf. [34]), chute d'un facteur 12 sous 7,6 kbar. Ces résultats sont en accord avec d'autres obtenus à plus haute pression [66] (fig. II-13).

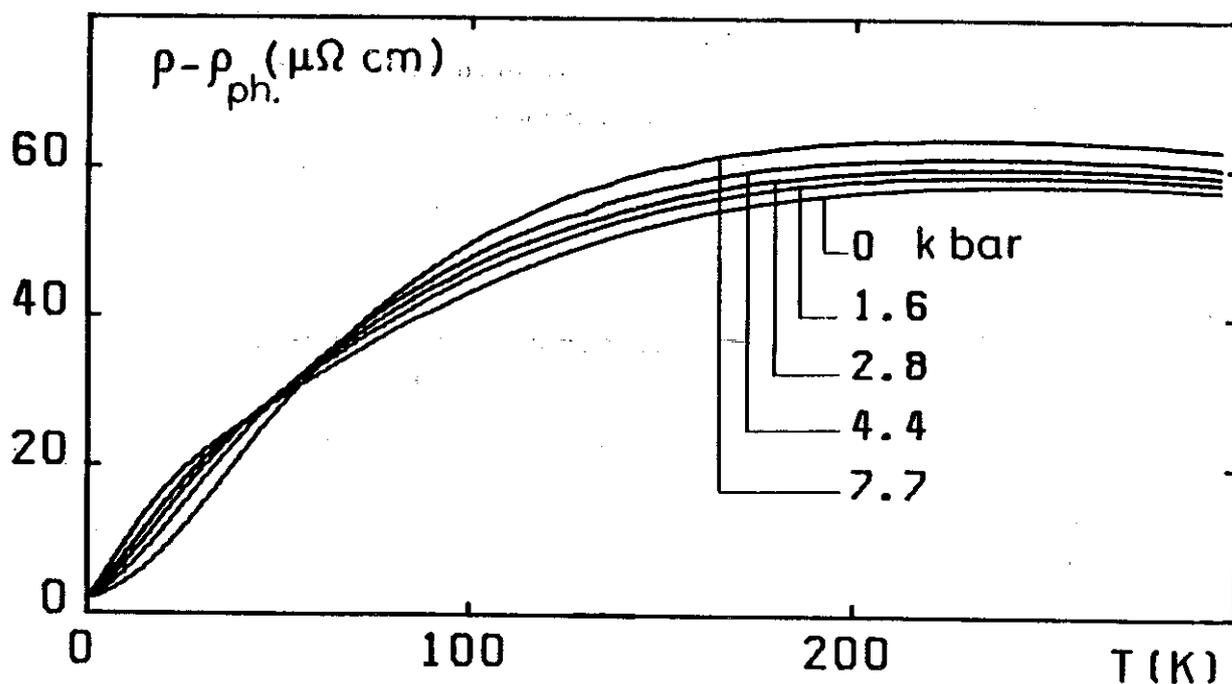


Fig. II-11 : Résistivité de  $CeRu_2Si_2$  sous pression après soustraction du terme électrons-phonons, d'après [71].

La variation relative de  $1/\sqrt{A(P)}$  est tracée sur la figure II-13. On voit qu'elle est linéaire jusque vers 6 kbar; le coefficient ainsi défini

$$\Gamma_A = \partial \text{Log} E_A^* / \partial P = - \frac{\partial \text{Log} A}{2 \partial P}$$

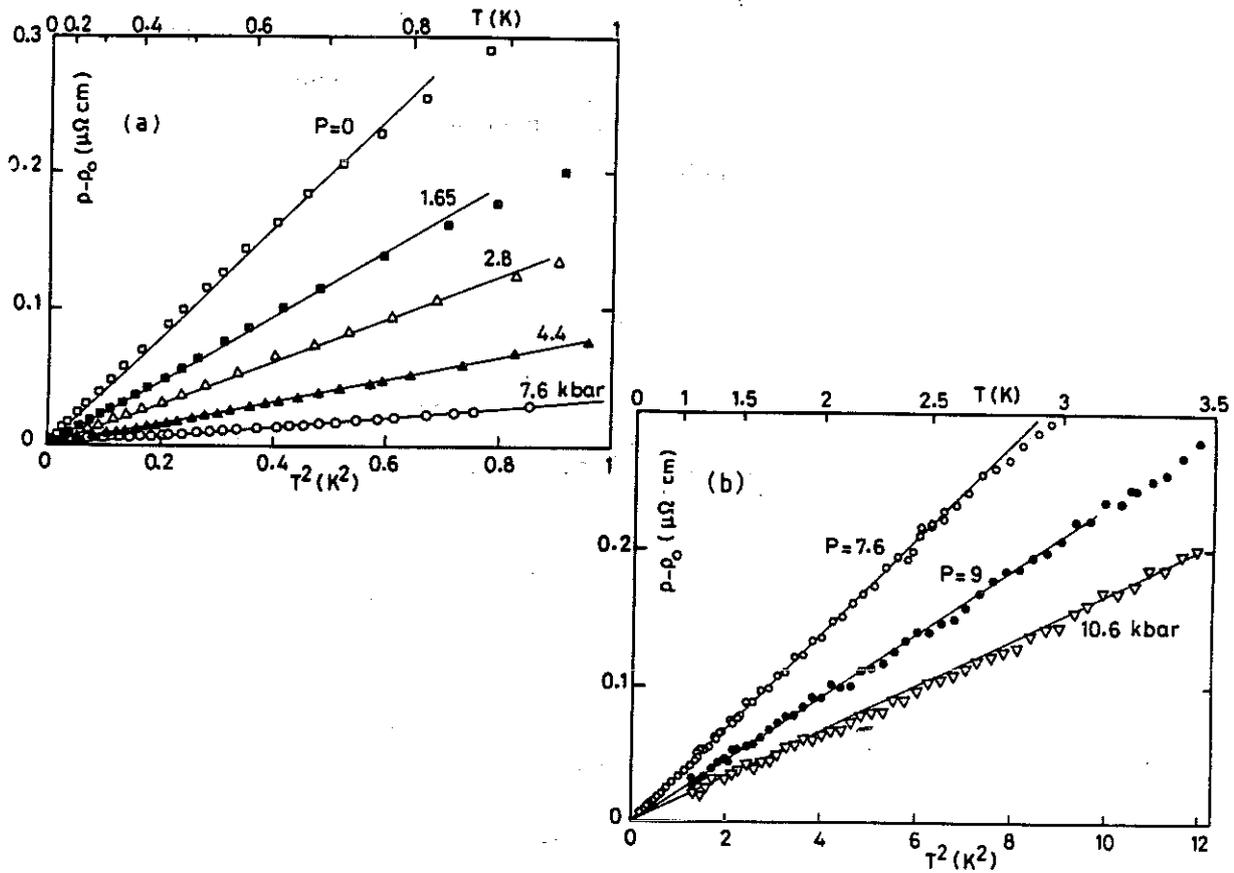
vaut  $171 \text{ Mbar}^{-1}$ , très voisin de  $\Gamma_\chi$ . Pour  $P > 6 \text{ kbar}$ ,  $\Gamma_A$  varie moins rapidement.

La figure II-14 représente les variations de la magnétorésistance sous pression à 4,2 K pour  $H \leq 20 \text{ T}$ . Deux effets principaux sont observés : la diminution de la résistivité à  $H = 0$  et le déplacement du maximum vers les hauts champs, l'allure générale des courbes restant inchangée.

Le premier effet traduit simplement la réduction sous pression du coefficient du terme quadratique de la résistivité. Quant au maximum, il dépend fortement de la pression, passant de 8 à 18 T à moins de 6 kbar. Le coefficient

$$\Gamma_{HM} = \partial \text{Log} H_M / \partial P$$

est égal à  $170 \text{ Mbar}^{-1}$ , valeur comparable à celles de  $\Gamma_A$  et  $\Gamma_\chi$  obtenues précédemment.



Figs. II-12 : Evolution de la résistivité de  $CeRu_2Si_2$  sous pression, d'après [71].

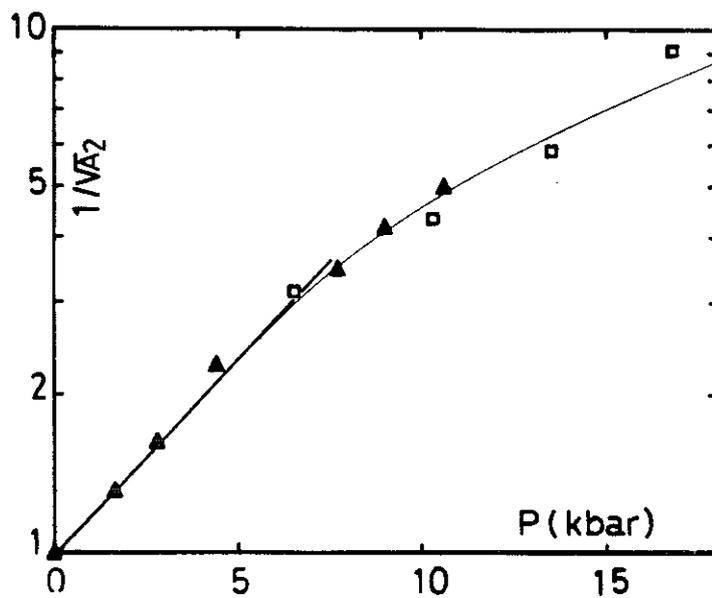


Fig. II-13 : Variation relative de  $1/\sqrt{A}$  (terme quadratique de la résistivité) de  $CeRu_2Si_2$ , en fonction de la pression, d'après [71]. Les valeurs à haute pression ( $\square$ ) sont tirées de la réf. 66.

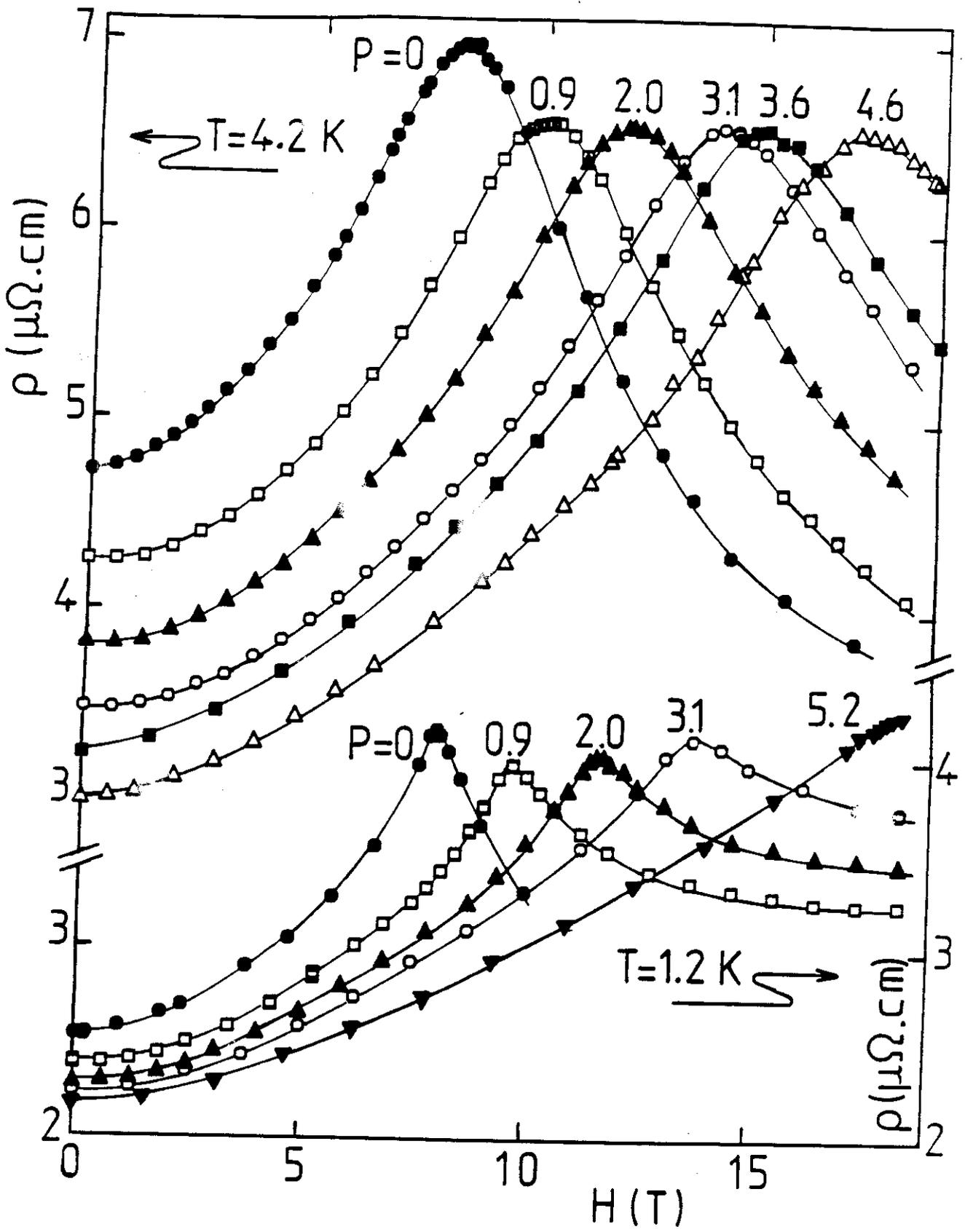


Fig. II-14 : Magnétorésistance sous pression de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , d'après [71c].

## II-6 RAPPELS SUR LES PROPRIETES MAGNETIQUES DES ALLIAGES $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$

### II-6-1 Introduction

Les réseaux Kondo et, de façon plus générale, tous les composés de terres rares anormaux sont très sensibles aux effets de volume dus soit à l'application d'une pression extérieure (pression hydrostatique), soit à des effets d'alliage (pression chimique). L'effet de dilution du cérium par des éléments non magnétiques dans des composés à fermions lourds a été largement utilisé pour mieux comprendre leurs propriétés physiques.

Lorsque la structure cristallographique est conservée, on peut considérer que la modification du paramètre de maille crée une pression chimique locale, positive ou négative selon la nature de l'élément substitué. Ceci produit des effets importants sur l'interaction effective d'échange s-f et par conséquent sur la température de Kondo. D'autre part, les interactions d'échange intersite de type R.K.K.Y. sont diminuées par dilution, ce qui influe sur la compétition entre magnétisme et effet Kondo. Enfin, à basse température, le régime cohérent peut être fortement affecté par l'introduction de désordre sur le sous-réseau de cérium. Il faut cependant remarquer que la variation du paramètre de maille n'est pas toujours l'effet dominant : dans certains systèmes, le résultat observé est même de signe contraire à celui que prédirait un argument naïf en termes de pression chimique. Ceci peut traduire des modifications dans la structure de bande électronique ou résulter, dans les systèmes anisotropes, de variations différentes des paramètres (rapport  $c/a$  dans les composés hexagonaux ou quadratiques).

Les effets de pression chimique sur le composé  $CeRu_2Si_2$  peuvent être étudiés dans les séries  $(Ce,M)Ru_2Si_2$  avec  $M = Y$  ou  $La$  (comme cela a été entrepris à Strasbourg [62-65]). Ces systèmes sont isomorphes et présentent des volumes atomiques plus grands ( $LaRu_2Si_2$ ) ou plus petits ( $YRu_2Si_2$ ), que  $CeRu_2Si_2$  (fig. II-15). On verra que l'intérêt physique du système  $(Ce,La)Ru_2Si_2$  est qu'il assure une transition continue à partir d'un métal normal, en passant par un régime à une impureté Kondo jusqu'à un état Kondo concentré ou réseau Kondo.

La même méthode a été appliquée à d'autres composés à fermions lourds ; citons par exemple les systèmes  $(Ce,La)Cu_2Si_2$  [74] ou  $(Ce,La)Cu_6$  [75].

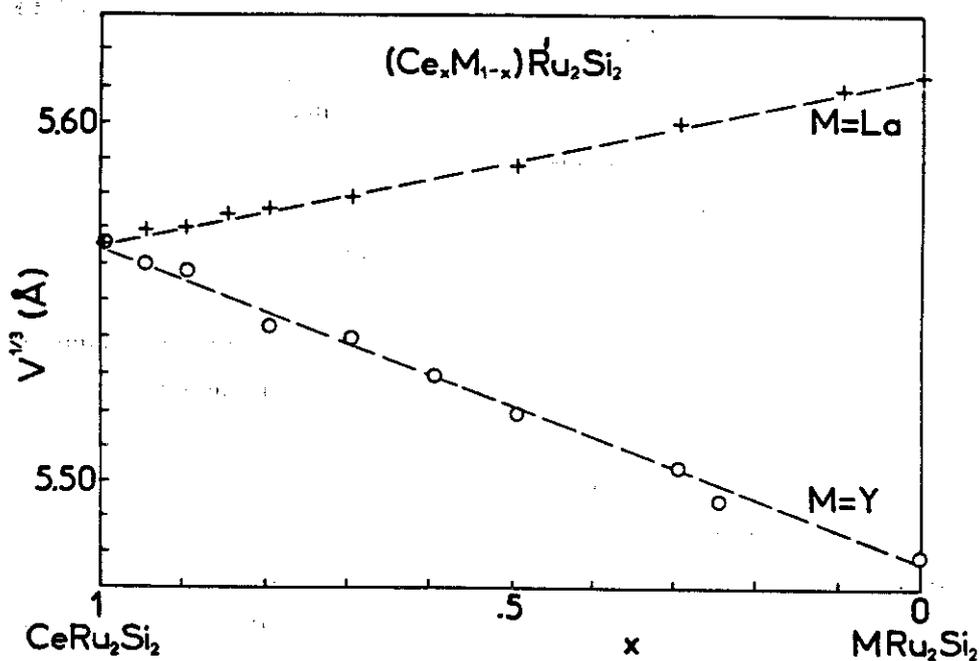
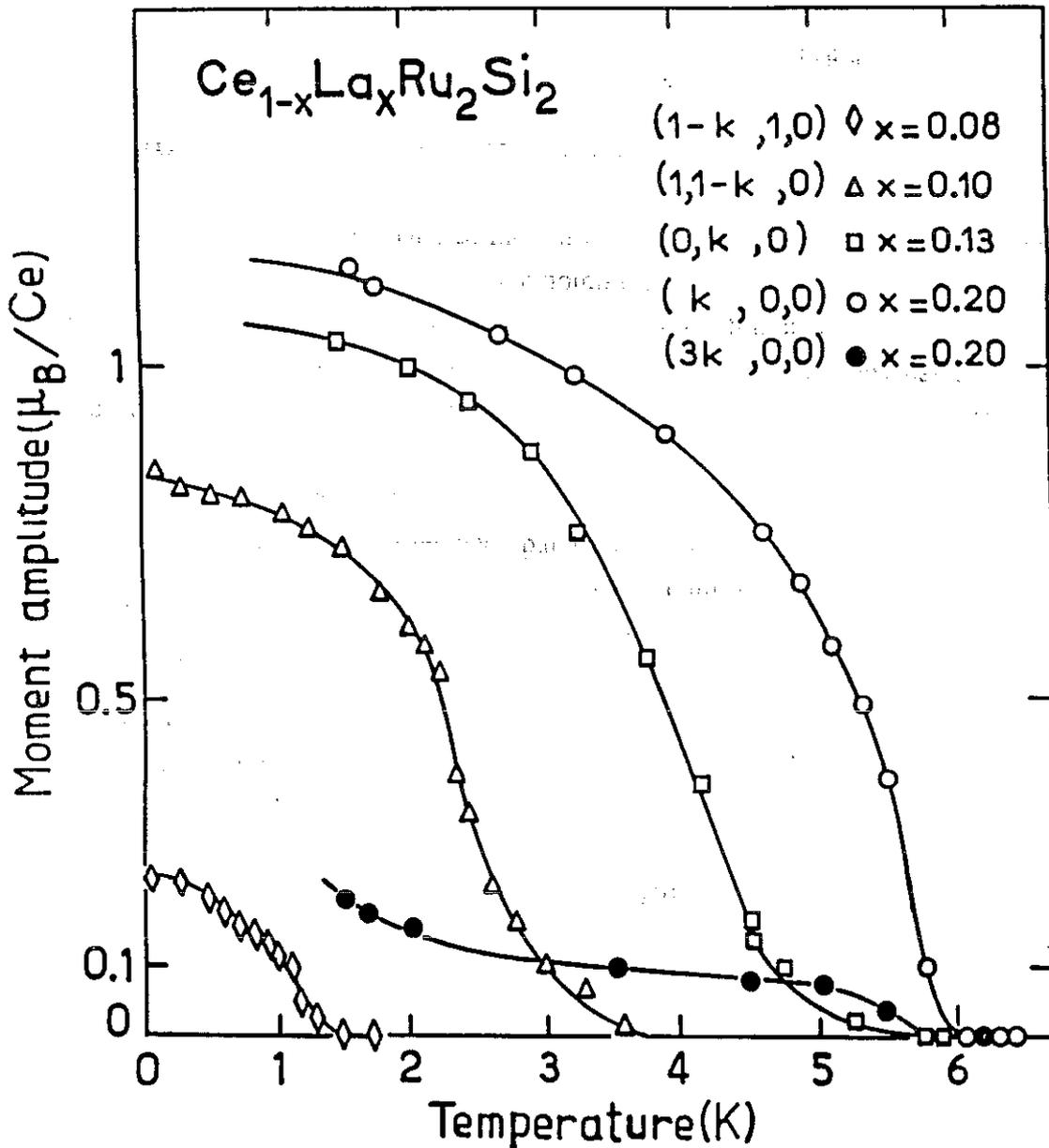


Fig. II-15 : Variation du paramètre de réseau à l'ambiante dans les systèmes  $(Ce,M)Ru_2Si_2$ , avec  $M = La$  et  $Y$ , d'après [62,64].

## II-6-2 Propriétés magnétiques

Une première étude des propriétés magnétiques (susceptibilité, aimantation et chaleur spécifique) des systèmes  $(Ce,La)Ru_2Si_2$  et  $(Ce,Y)Ru_2Si_2$  a été effectuée à Strasbourg sur des échantillons polycristallins. Elle a montré [62-65] que le point d'inflexion dans la courbe  $M(H)$ , observé pour le composé  $CeRu_2Si_2$ , est repoussé vers les bas champs lorsque le lanthane est substitué au cérium et que l'approche à la saturation devient plus rapide. A l'opposé, le point d'inflexion est déplacé vers les hauts champs dans le cas de la substitution par l'yttrium.

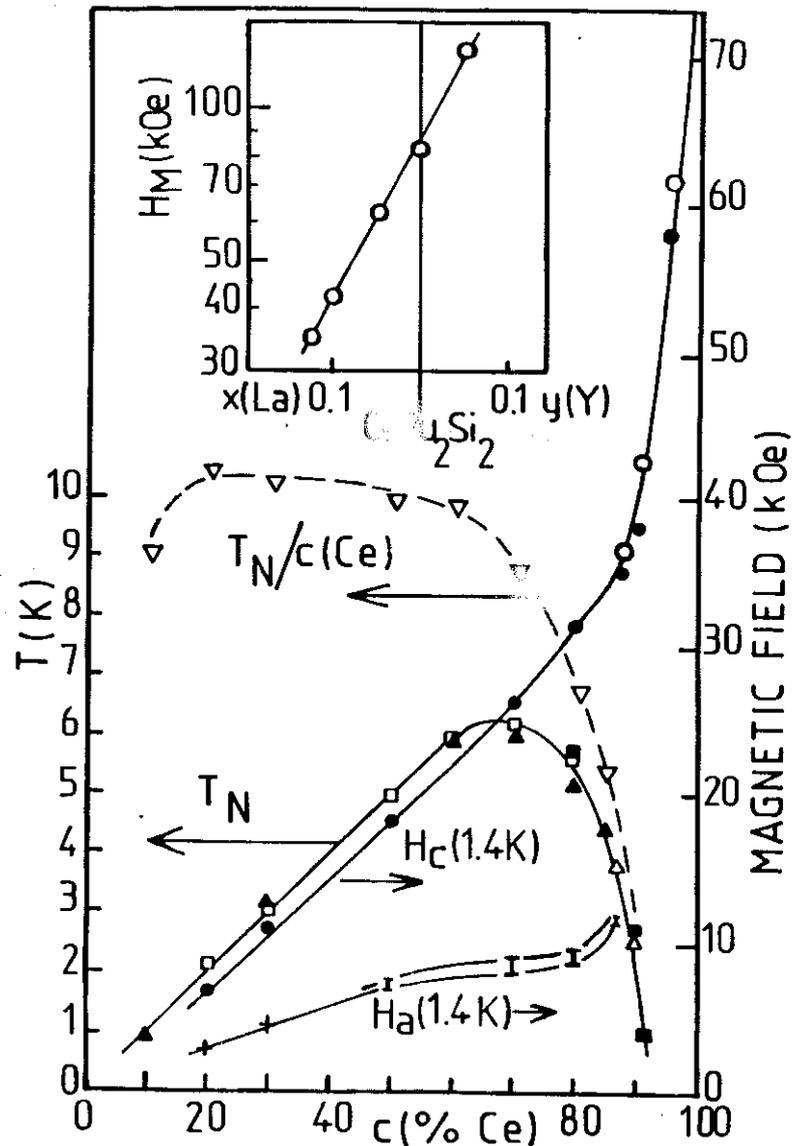
Les mesures de chaleur spécifique effectuées sur des polycristaux [62-65] ont révélé l'existence d'un ordre antiferromagnétique dans le système  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$  pour  $x \geq 0,15$ . Cependant, des mesures de diffraction neutronique effectuées récemment par Quézel et coll. [76] sur des échantillons monocristallins préparés au laboratoire, ont mis en évidence l'apparition d'ordre dès  $x = 0,08$ . Il s'agit d'une structure modulée ; les moments magnétiques sont dirigés selon l'axe  $c$ , et la modulation incommensurable le long de l'axe  $a$ . La figure II-16 représente la variation du moment en fonction de la température pour chacune des concentrations étudiées :  $x = 0,08$  ;  $0,10$  ;  $0,13$  et  $0,20$ .



*Fig. II-16 : Variation des moments magnétiques de quelques composés  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$  en fonction de la température, d'après [76].*

Des mesures d'aimantation et de susceptibilité alternative ont été effectuées [77,78] sur ces monocristaux et sur d'autres préparés par P. Lejay (et M. Schmerber de Strasbourg). Il y a un bon accord entre les valeurs de température d'ordre,  $T_N$ , déduites des mesures de chaleur spécifique [62-65,33,68] et de susceptibilité alternative [78], lorsqu'une anomalie existe à  $T_N$  ( $x \geq 0,13$ ). Par contre, celles déduites des mesures neutroniques, sont toujours légèrement plus élevées que les précédentes. La variation de  $T_N$  rassemblant de l'ensemble de ces résultats, est reportée sur la figure II-17 (tirée de la référence 78). Celle-ci montre que  $T_N$  augmente rapidement à partir de  $\approx 1$  K pour  $x = 0,08$ , atteint un maximum voisin de 6,3 K pour  $x \approx 0,3$ , puis décroît linéairement en fonction de la concentration en lanthane.

Le rapport  $T_N/c$  (valeur de la température d'ordre normalisée à 100 % de cérium) augmente rapidement lui aussi à partir de  $x = 0,08$ , puis reste pratiquement constant pour  $0,2 \leq x \leq 0,7$ . On ne sait pas encore pour quelle concentration l'ordre disparaîtra de ce côté dilué en Ce. D'après les mesures de chaleur spécifique [62,65], un ordre semble encore exister ( $T_N = 0,9$  K) dans le composé  $Ce_{0,1}La_{0,9}Ru_2Si_2$ .



**Fig. II-17 :** Diagramme du système  $(La,Ce)Ru_2Si_2$ , en fonction de la concentration ( $x$  (de La) en haut, de droite à gauche et  $c$  (de Ce) en bas, de gauche à droite) ; : variation de  $T_N$  déduite de la chaleur spécifique: ( $\blacktriangle$  [62] et  $\triangle$  [33]), de la diffraction neutronique: ( $\blacksquare$  [76]) et de la susceptibilité alternative: ( $\square$  [78]); variation de  $T_N/c$  ( $\nabla$ ); variation de  $H_c$  à 1,4 K ( $\bullet$ ), de  $H_M$  à 4,2 K ( $\circ$ ) et de  $H_a$  à 1,4 K ( $+$  et  $I$ ); l'encart montre que la variation de  $\log H_M$  à 4,2 K est linéaire en fonction de faibles concentrations de La et d'Y; (d'après [78]).

Différentes courbes d'aimantation  $M(H/c)$  mesurées sur des monocristaux dans l'état paramagnétique sont représentées sur la figure II-18. Pour  $x \leq 0,13$  les courbes montrent une transition pseudo-métamagnétique analogue à celle du composé non allié.

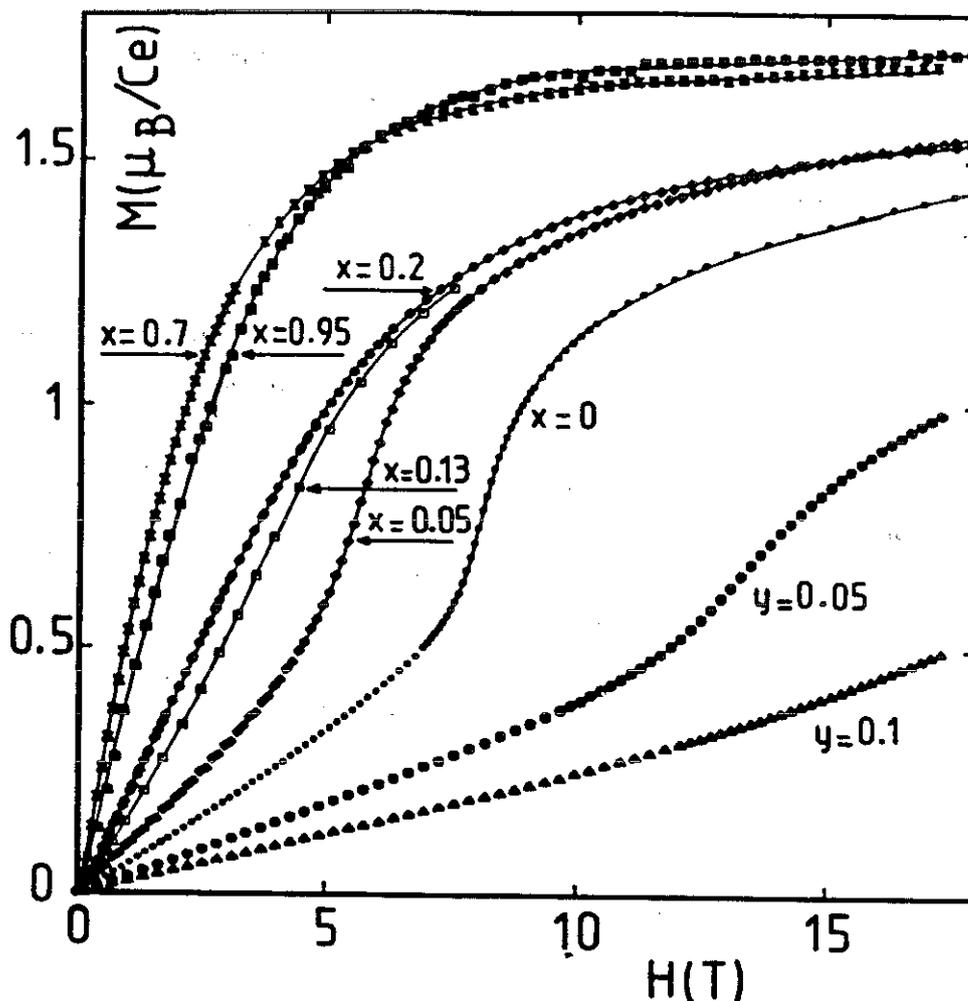


Fig. II-18 : Courbes d'aimantation de  $Ce_{1-y}Y_yRu_2Si_2$  et  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$  dans la phase paramagnétique pour  $H/c$ , d'après [77].

$y = 0,1$	$T = 4,2 K$	$x = 0,2$	$T = 6 K$
$y = 0,05, x = 0 \text{ et } 0,05$	$T = 1,4 K$	$x = 0,7 \text{ et } 0,95$	$T = 4,2 K$
$x = 0,13$	$T = 4,2 K$		

Le champ  $H_M$  (dédit de la dérivée de  $M(H)$  par rapport à  $H$ ) décroît exponentiellement de 13 T pour  $y = 0,05$  à 3,5 T pour  $x = 0,13$  (encart de la fig. II-17) de la même manière que la température de Kondo déduite de la chaleur spécifique [62-65] ou celle déduite des mesures sous pression [70,71a,b]. Il est intéressant de noter que cette transition disparaît pour les alliages ordonnés de concentration  $x \geq 0,2$ , pour lesquels les courbes  $M(H)$  sont de type Brillouin au dessus de  $T_N$ .

Dans la phase ordonnée, les courbes d'aimantation relevées à  $T < T_N$  présentent deux sauts successifs à  $H_a$  et  $H_c$  (fig. II-19). Au-dessus de  $H_c$ , le système est selon toute vraisemblance dans un état paramagnétique polarisé. La structure magnétique dans la phase intermédiaire ( $H_a < H < H_c$ ) n'est pas encore déterminée. La variation en température de  $H_c$  est différente de celle de  $H_M$  :  $H_c$  croît au refroidissement comme il est habituel dans les antiferromagnétiques. La variation de  $M(H)$  présente des effets d'hystérèse autour de  $H_a$  et entre  $H_a$  et  $H_c$ .

Les valeurs de  $H_M$ ,  $H_c$  et  $H_a$  sont regroupées dans le tableau II-1.

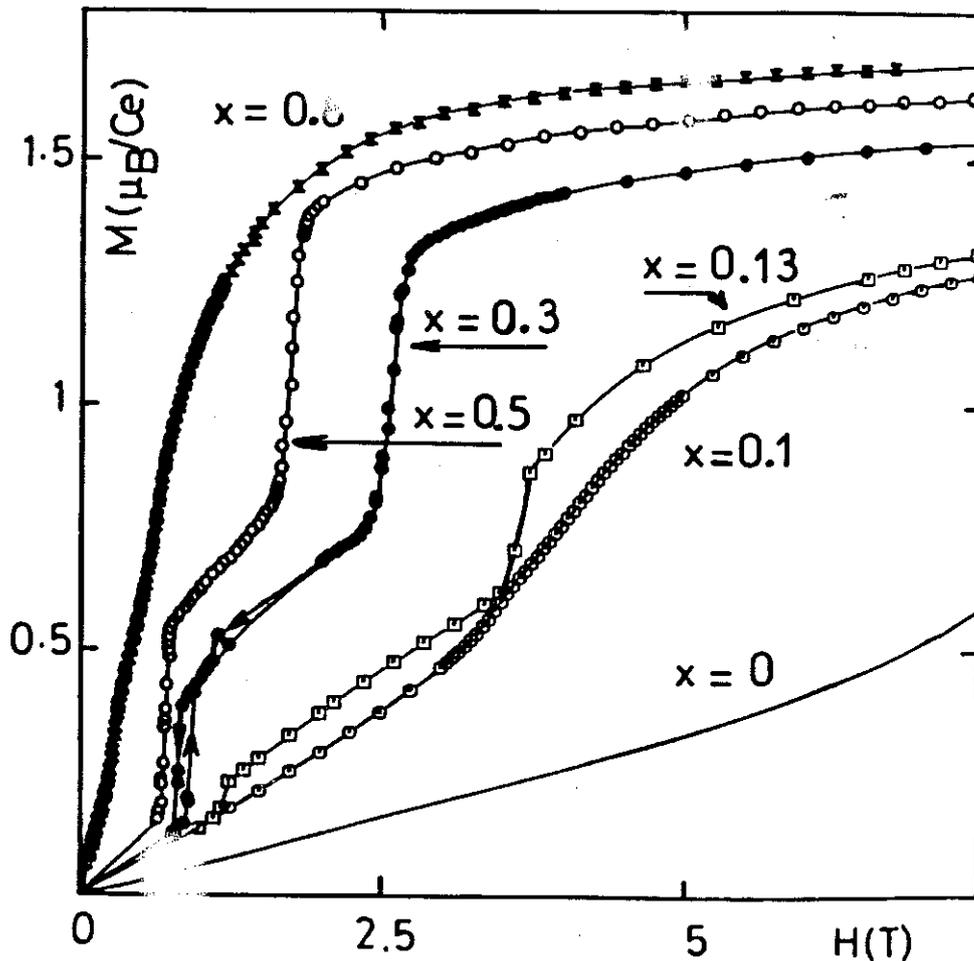


Fig. II-19 : Courbes d'aimantation d'alliages  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$  au-dessous de  $T_N$  ( $\approx 1,4$  K) pour  $H \leq 7,5$  T.

La variation de l'aimantation en champ fort des composés monocristallins semble suivre une loi  $M_{//} = M_{//}^{sat} (1 - \frac{A_H}{H})$  ce qui, en négligeant la contribution de Van Vleck  $\chi_{VV}$ , donne une aimantation à saturation  $M_{//}^{sat} \approx (1,8 \pm 0,1) \mu_B/at.Ce$ . Ceci conduit à la conclusion que l'état fondamental de ces systèmes est un doublet  $a | \pm 5/2 \rangle - b | \mp 3/2 \rangle$  avec  $a \approx 0,96$  [62,77,78], lorsque l'axe de quantification est pris suivant l'axe c.

H//c	$T_N(K)$	$H_M(T)$		$H_a(T) (1,4 K)$	
		4,2 K	1,4 K	$H_{\nearrow}$	$H_{\searrow}$
$Ce_{0,95}Y_{0,05}Ru_2Si_2$	—	13	13	—	—
$CeRu_2Si_2$	—	8,3	7,9	—	—
$Ce_{0,95}La_{0,05}Ru_2Si_2$	—	6,1	5,7	—	—
$Ce_{0,90}La_{0,10}$	2,5-2,7	4,25	$H_c(T)$ 3,5	~ 1,2	
$Ce_{0,87}La_{0,13}$	3,8-4,1	3,5	3,65	1,19	1,18
$Ce_{0,80}La_{0,20}$	5,6-5,75	$H_c(T)$ 2,5	3,15	0,945	0,82
$Ce_{0,70}La_{0,30}$	6,2	2,27	2,6	0,91	0,83
$Ce_{0,60}La_{0,40}$	5,9				
$Ce_{0,50}La_{0,50}$	4,95	1,25	1,73	0,7	
$Ce_{0,30}La_{0,70}$	3,2	—	1,08	0,44	
$Ce_{0,20}La_{0,80}$	2,1	—	0,65	0,26	
$Ce_{0,10}La_{0,90}$	0,9	—			
$Ce_{0,05}La_{0,95}$					

**Tableau II-1 :** Valeurs de  $T_N$  et des champs magnétiques caractéristiques des alliages  $(Ce,Y)Ru_2Si_2$  et  $(Ce,La)Ru_2Si_2$ , d'après [77,78]. (Les doubles valeurs de  $T_N$  sont celles déduites, d'une part, des mesures de chaleur spécifique ou de  $\chi_{ac}$ , d'autre part, des mesures de diffraction de neutrons).

## II-7 OBJET DU PRESENT TRAVAIL

Dans une première étape, nous nous sommes intéressés aux variations de l'effet Hall sous pression dans le composé  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , avec pour objectif de compléter l'étude de ce composé sous pression et de tester plus avant les modèles récents sur l'effet Hall extraordinaire. Sachant que l'anisotropie joue un grand rôle dans les propriétés magnétiques, nous avons également entrepris des mesures de magnétorésistance sur des monocristaux avec le courant selon l'axe  $c$  afin de compléter celles effectués précédemment avec le courant dans le plan de base.

L'étude des propriétés de transport du système  $(\text{Ce},\text{La})\text{Ru}_2\text{Si}_2$  n'avait été qu'amorcée par P. Lehmann qui a présenté dans sa thèse [62] quelques courbes de résistivité montrant un effet Kondo dans les alliages assez dilués en Ce (ainsi que la magnétorésistance et la tension de Hall à 4,2 K des alliages à 5% de La et d'Y). D'autre part, quelques mesures d'effet Hall avaient été entreprises par l'équipe de A. Fert à Orsay sur des monocristaux  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  avec  $x = 0,05$  et  $0,1$  et des alliages  $\text{Ce}_{1-x}\text{Y}_y\text{Ru}_2\text{Si}_2$  polycristallins avec  $y = 0,1$  et  $0,2$ . Afin de mieux cerner le passage de l'état non magnétique à l'état ordonné et d'étudier l'effet Kondo dans le système  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$ , il paraissait nécessaire d'effectuer des mesures systématiques de propriétés de transport dans toute la gamme de concentration, en liaison avec l'étude de leurs propriétés magnétiques qui était poursuivie parallèlement par Haen et coll. [77,78].

## **CHAPITRE III**

# **TECHNIQUES EXPERIMENTALES**



### III-1 METHODES DE MESURES ELECTRIQUES

#### III-1-1 Dimensions des échantillons

Les mesures décrites dans ce mémoire ont été effectuées sur des échantillons monocristallins très petits. Pour un certain nombre d'alliages, nous avons pu disposer de barrettes typiquement de l'ordre de 2 mm de longueur, 0,5 mm de largeur et de quelques dixièmes de millimètres d'épaisseur. Ces barrettes ont été obtenues par clivage et découpées par électroérosion, ou à la scie à fil, à partir des monocristaux préparés par la méthode de Czochralski par P. Lejay. Nous les avons utilisées pour les mesures de résistivité et de magnétorésistance, par la méthode à 4 fils classique. Par contre, les mesures d'effet Hall ont été effectuées par la méthode de Van der Pauw décrite ci-dessous, sur des plaquettes de quelques dixièmes de millimètre d'épaisseur. Pour un certain nombre d'alliages, nous avons effectué toutes les mesures par cette dernière méthode, car nous ne disposions que de plaquettes monocristallines, de dimensions généralement inférieures au millimètre, extraites de polycristaux préparés au four à arc à Grenoble ou à Strasbourg. Les contacts électriques ont été réalisés à l'indium au fer à ultrasons par P. Haen.

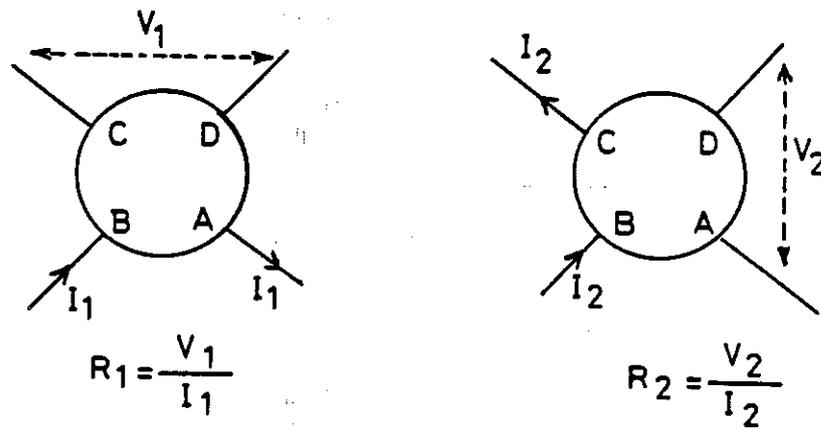
#### III-1-2 Méthode de Van der Pauw [79]

Elle s'applique en principe à des échantillons lamellaires mais elle reste valable dès lors que la forme des lignes de courant est constante sur toute l'épaisseur de l'échantillon. On réalise 4 contacts électriques à la périphérie de l'échantillon et on effectue deux mesures de résistances ( $R_1$  et  $R_2$ ) avant et après la permutation d'un fil de courant et d'un fil de tension (fig. III-1). La résistivité électrique est alors directement obtenue par la formule :

$$\rho = \frac{\pi d}{\log 2} \cdot \frac{R_1 + R_2}{2} f\left(\frac{R_1}{R_2}\right)$$

où  $d$  est l'épaisseur de l'échantillon et  
 $f$  est une fonction implicite donnée par :

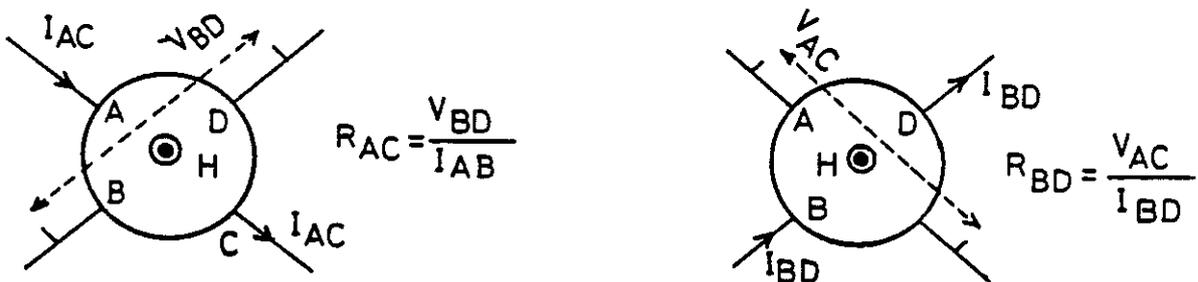
$$\operatorname{ch} \left[ \frac{(x-1) \log 2}{(x+1) f(x)} \right] = \frac{1}{2} \exp \left[ \frac{\log 2}{f(x)} \right]$$



*Fig. III-1 : Schéma de principe de la mesure d'une résistance électrique par la méthode de Van der Pauw.*

où  $x = R_1/R_2$  est indépendant de la température pour un échantillon parfaitement homogène. En pratique, on observe des variations de  $x$  pouvant aller jusqu'à 10 % entre 4,2 K et les très basses températures. Les mesures d'effet Hall sont faites avec le champ magnétique est perpendiculaire aux lignes de courant dans l'échantillon (fig. III-2). La résistance de Hall est donnée par :

$$2 r_H = |R_{AC} - R_{BD}|$$



*Fig. III-2 : Schéma de mesure de la résistance de Hall par la méthode de Van der Pauw*

On notera que cette façon de procéder évite d'inverser le champ magnétique. En effet, dans la méthode classique de mesure de l'effet Hall (sur un barreau, cf. fig. III-3), il est nécessaire soit d'inverser le champ magnétique, soit de "retourner" l'échantillon

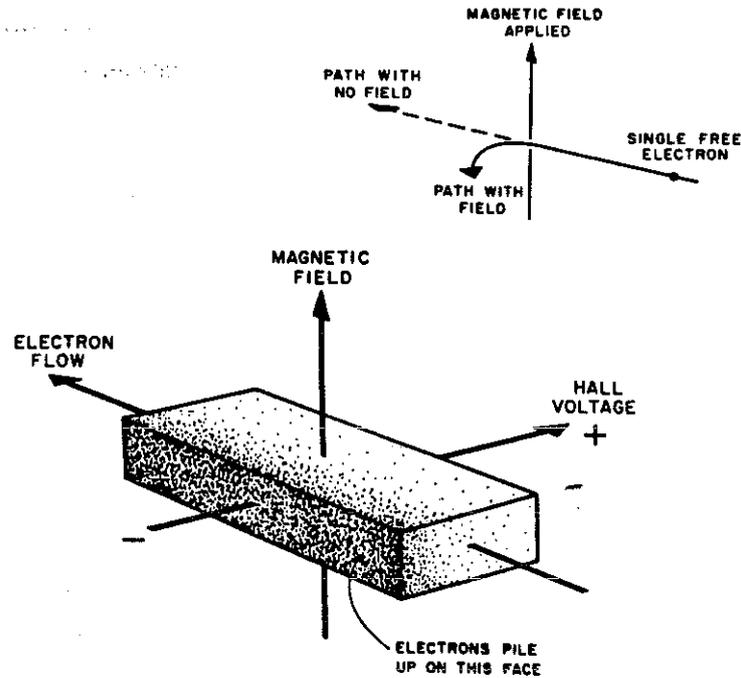


Fig. III-3 : Schéma classique donnant le signe de la tension de Hall (d'après [42]).

pour chaque valeur du champ, afin de tenir compte, dans la tension mesurée, d'un terme parasite de magnétorésistance provenant du fait que les contacts de tension de Hall ne sont pas parfaitement alignés. Ce terme existe également dans la méthode de Van der Pauw, la permutation des fils de courant et de tension indiquée sur la figure III-2 équivaut à "retourner" l'échantillon. Le signe de l'effet Hall se détermine de la même façon que dans le cas classique de la figure III-3.

### III-1-3 Précision de la mesure

Ces mesures électriques sont faites au moyen d'un pont en courant alternatif à basse fréquence [15 ou 32 Hz] spécialement conçu au laboratoire [80] pour les faibles résistances (fig. III-4). Pour des résistances à mesurer de l'ordre du  $m\Omega$ , on arrive à une résolution de quelques  $10^{-4}$  pour des courants de mesure de l'ordre de  $100 \mu A$ , à

condition de placer une partie du circuit de détection à la température de l'hélium liquide. Cette complication ne se justifie en général que pour les mesures à  $T < 1$  K (risque d'échauffement par le courant de mesure, valeurs de  $\Delta\rho(T)/\rho_0$  faibles).

On notera qu'à épaisseur d'échantillon égale, la méthode classique est presque 10 fois plus sensible que la méthode de Van der Pauw. En effet, supposons un échantillon classique d'épaisseur 0,2 mm, de largeur 0,5 mm, où les contacts de tension sont distants de 1 mm. Pour une résistivité de  $1 \mu\Omega \text{ cm}$ , on obtient une résistance  $R = 1 \times 0,1 / (5 \times 2 \times 10^{-4}) = 100 \mu\Omega$ . Pour la même épaisseur  $d = 0,2$  mm, en supposant que  $R_1 = R_2$  soit  $f(R_1/R_2) = 1$ , on mesurera par la méthode de Van der Pauw  $R_1 = R_2 = \rho \log 2 / (\pi d) \approx 11 \mu\Omega$ . En général, on a  $R_1 \neq R_2$  ( $R_1 > R_2$  par convention), et on perd en précision sur la plus faible des deux valeurs. Il faut toujours tenter de garder un rapport  $R_1/R_2$  aussi faible que possible (inférieur à quelques unités).

Par la méthode de Van der Pauw, la valeur absolue de  $\rho$  ne dépend que de la mesure de l'épaisseur  $d$  qui peut être assez précise si les échantillons sont bien taillés et les contacts adhérents sur toute l'épaisseur. Par contre, dans la méthode classique, on ajoute une incertitude sur la mesure de la largeur de l'échantillon et surtout une autre sur la mesure de la distance entre les contacts de tension. En effet, ceux-ci ont forcément une largeur importante comparée à la distance typique de 1 mm qui les sépare.

Enfin, si les contacts sont réalisés à l'indium, on observera un "saut" dans la courbe  $R(T)$  au passage de la température critique  $T_c$  ( $\sim 3,4$  K) de l'indium ou dans la courbe  $R(H)$  au-dessous de  $T_c$  lorsque l'on franchit le champ critique  $H_c < 0,1$  T de l'indium. Une correction des valeurs expérimentales est alors nécessaire pour éliminer ces discontinuités. On notera que tels "sauts" peuvent être également observés sur  $R_1$  et  $R_2$  dans les mesures par la méthode de Van der Pauw, mais avec des signes opposés, si bien qu'ils se compensent en général parfaitement dans le calcul de  $\rho$ , et que la variation de cette dernière est continue au passage de  $T_c$  ou de  $H_c$ .

Dans bien des cas, nous avons déterminé les valeurs absolues de  $\rho$  par la méthode de Van der Pauw et normalisé sur celles-ci les mesures faites par la méthode classique. Nous estimons que l'incertitude sur les valeurs absolues de  $\rho$  et  $R_H$  demeure cependant de l'ordre de 10 %, voire davantage pour certains échantillons auxquels on n'avait pu donner une épaisseur constante.

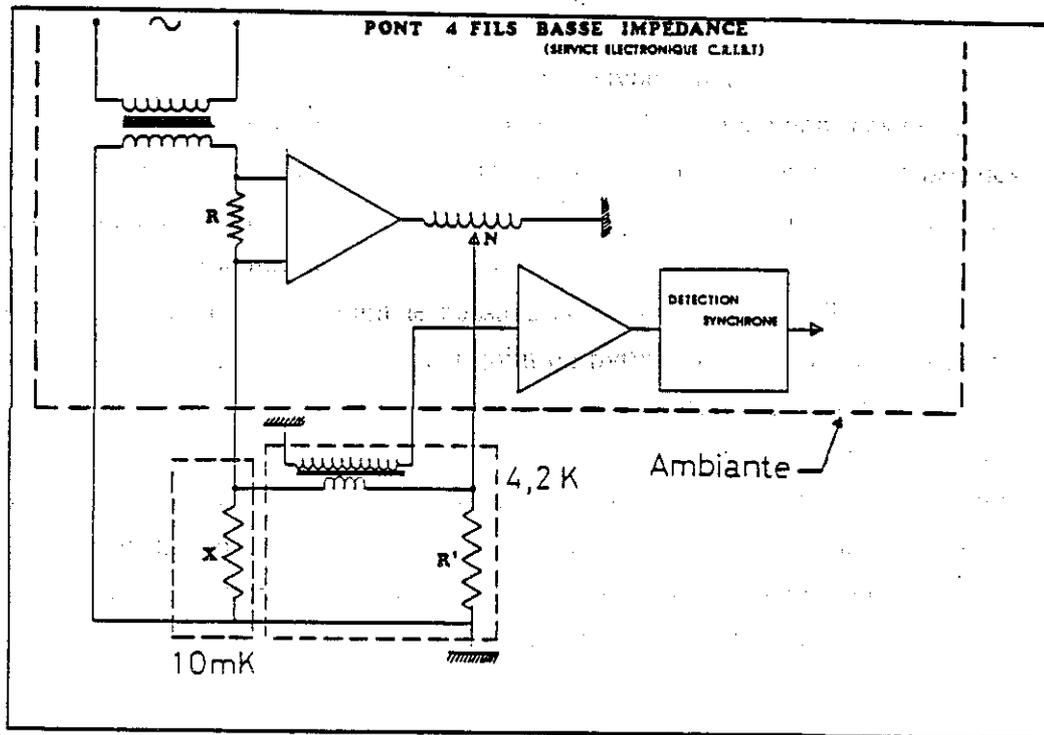


Fig. III-4 : Schéma de principe d'un pont à 4 fils pour mesures de basses impédances.

### III-2 CRYOSTAT A TEMPERATURE VARIABLE DE 1,5 K A 300 K

La première partie de ce travail a consisté à construire un cryostat destiné aux mesures de transport sous champ magnétique, en particulier aux mesures de magnétorésistance et d'effet Hall sous pression dans une gamme de température variant de 1,5 à 300 K. Ce cryostat (fig. III-5) qui se présente sous une forme classique est constitué de deux dewars concentriques en acier inox (azote et hélium liquide). Ces deux vases ont été construits au laboratoire, comme d'ailleurs la majorité des éléments du cryostat. Le vide du vase d'azote contient du "superisolant".

L'ensemble est supporté par un montage antivibratoire constitué d'un bloc de béton posé sur des amortisseurs prévus pour couper les hautes fréquences. Tous les tuyaux arrivant au cryostat comportent des liaisons souples afin de réduire les vibrations transmises par l'environnement (groupe de pompage notamment).

Afin de pouvoir effectuer des mesures de magnétorésistance ou d'effet Hall sous très haute pression et à température variable, il était nécessaire d'équiper l'appareil d'une

bobine supraconductrice d'assez grand diamètre intérieur : celui-ci est de 70 mm. Cette bobine est capable de produire un champ magnétique de 8 T. Elle est immergée directement dans le bain d'hélium et suspendue à la bride inférieure du vase d'hélium par l'intermédiaire de trois tiges en acier inox. Celles-ci supportent des disques de cuivre faisant office d'écrans à radiation et contribuant à limiter les mouvements de convection dans le gaz.

Par l'intermédiaire de 8 fils de cuivre torsadés (de diamètre 3,5 mm) par pôle, la bobine est alimentée par un générateur de courant de 100 A conçu au laboratoire. Ces fils sont thermalisés sur chaque écran.

Afin de contrôler le niveau d'hélium dans le vase et surtout d'éviter d'alimenter la bobine lorsque le vase est vide, nous avons installé trois jauges de niveau : deux sondes fixes (résistances de carbone Allen-Bradley de 470  $\Omega$ ), placée l'une à 5 cm au-dessus de la bobine, l'autre au même niveau que le haut de la "boule", et une jauge d'hélium continue à fil supraconducteur en NbTi.

La consommation d'hélium est de l'ordre de 0,5 litre/heure dans le cas où le courant est nul dans la bobine supraconductrice. Lorsque le courant débité dans la bobine est de 75 ampères, la consommation est de l'ordre de 0,6 litre/heure à pression atmosphérique. Compte-tenu de ces pertes et du débit de la pompe utilisée, la température limite atteinte par pompage sur ce cryostat est d'environ 1,5 K.

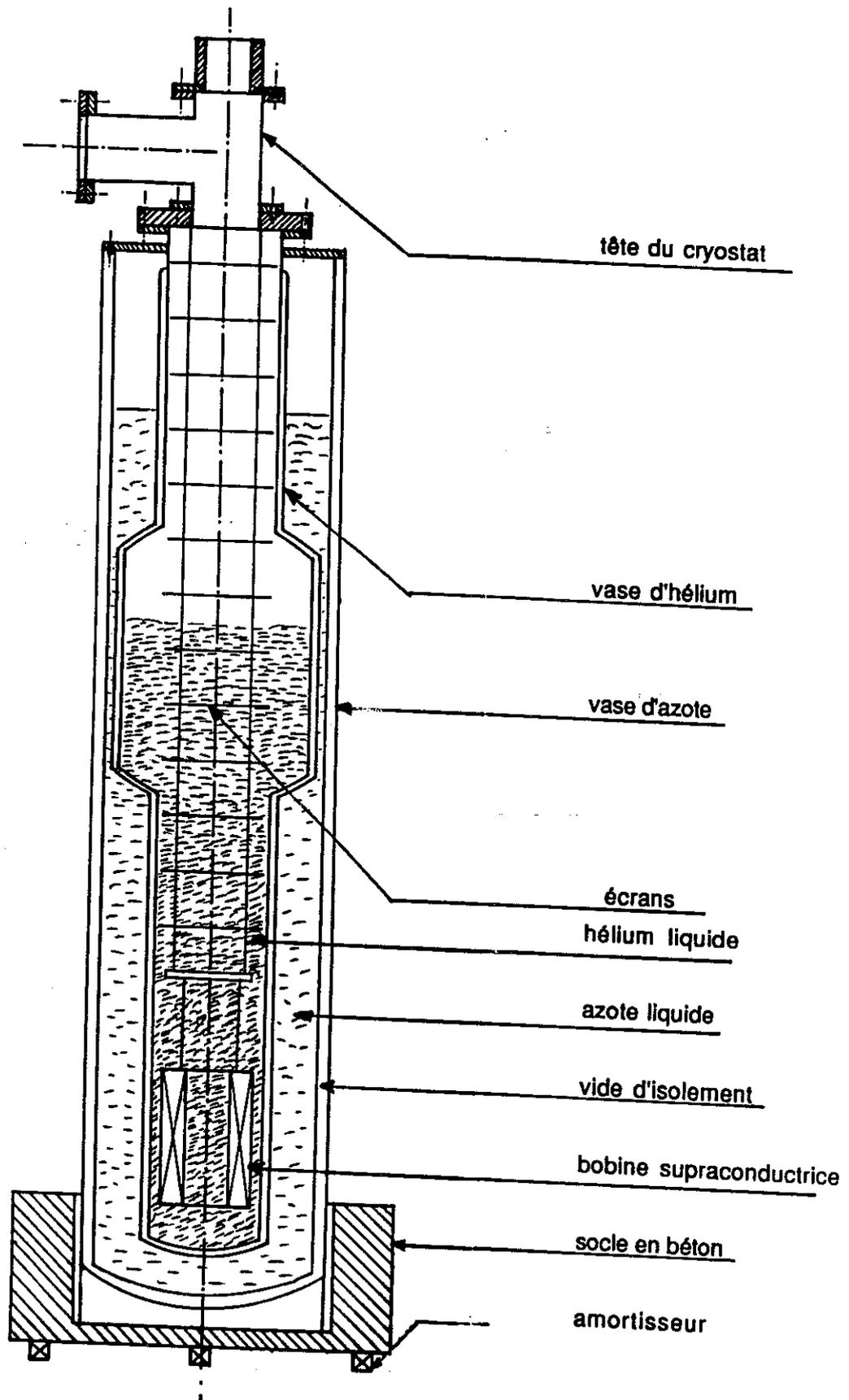
Une canne de mesure adiabatique vient s'insérer dans le cryostat d'hélium (figures. III-6 et III-7). Le principe adopté est celui d'une double enceinte plongeant dans le liquide. Celle-ci est suspendue à deux tubes de pompage entourés, à leur partie supérieure, par un gros tube d'inox (60 mm de diamètre) fermé en haut par un fond bombé. Ce tube-enveloppe traverse la bride supérieure de la "tête" du vase d'hélium par un presse-étoupe à double joint torique dans lequel il peut coulisser verticalement afin de permettre le centrage précis des échantillons dans la bobine supraconductrice. A leur partie supérieure, les tubes de pompage traversent le fond bombé par soudure et supportent chacun une vanne permettant d'isoler les enceintes ou "calorimètres". Deux pièges à radiations sont installés juste au-dessus de la bride supérieure du calorimètre extérieur.

Les fils de mesure (fils de cuivre de 7/100 de diamètre, torsadés soigneusement, soit deux par deux pour les mesures classiques, soit quatre par quatre pour les mesures en Van der Pauw, et protégés par une gaine de téflon) pénètrent dans le tube de pompage

du calorimètre extérieur par des connecteurs hermétiques de type Jaeger. Afin d'absorber l'énergie transmise par ces fils, nous les avons soudés sur des masses thermiques vissées au-dessous de la bride du calorimètre extérieur. L'étanchéité des fils de mesure pénétrant dans le petit calorimètre intérieur est assurée par des "passages Stycast". Ces fils sont soudés sur une masse thermique et aboutissent à des connecteurs à quatre broches fixés au-dessus du raccord trois pièces prévu pour adapter soit la bombe de pression, soit un simple porte-échantillon (auquel cas les échantillons peuvent être au nombre de trois à chaque expérience).

Le calorimètre intérieur est en cuivre et contient du gaz d'échange (He). Il peut être isolé du bain d'hélium liquide par le vide qui règne dans l'espace qui le sépare du deuxième calorimètre en inox. L'étanchéité des deux calorimètres est obtenue grâce à des joints d'indium enduits de graisse Apiezon.

Les changements de température sont réalisés au moyen d'un enroulement chauffant en constantan dont la résistance vaut  $100 \Omega$ . Cet enroulement est fixé avec du Stycast sur l'enceinte intérieure. Nous avons pris soin de répartir la résistance de chauffage sur toute la surface latérale du petit calorimètre pour éviter une surchauffe locale. Un condensateur en céramique collé au Stycast sur un collier, lequel est fixé sur le petit calorimètre, sert de sonde pour l'asservissement de température sous champ magnétique. Cette régulation est assurée par un pont de régulation capacitif qui a été mis au point par le service électronique du laboratoire [80]. Suite aux différentes mesures que nous avons effectuées, nous avons constaté que la variation du condensateur en fonction de la température est bien reproductible comme le montre la figure III-8 (mesures effectuées à plusieurs mois d'intervalle et séparées par plusieurs cyclages thermiques jusqu'à la température ambiante). Ce résultat est intéressant car il nous permet d'atteindre directement la température qui nous intéresse, en affichant la valeur de consigne du condensateur. On pourrait aussi envisager d'effectuer des balayages de température, à champ fixe.



*Fig . III-5: Schéma du cryostat sans la canne de mesure*

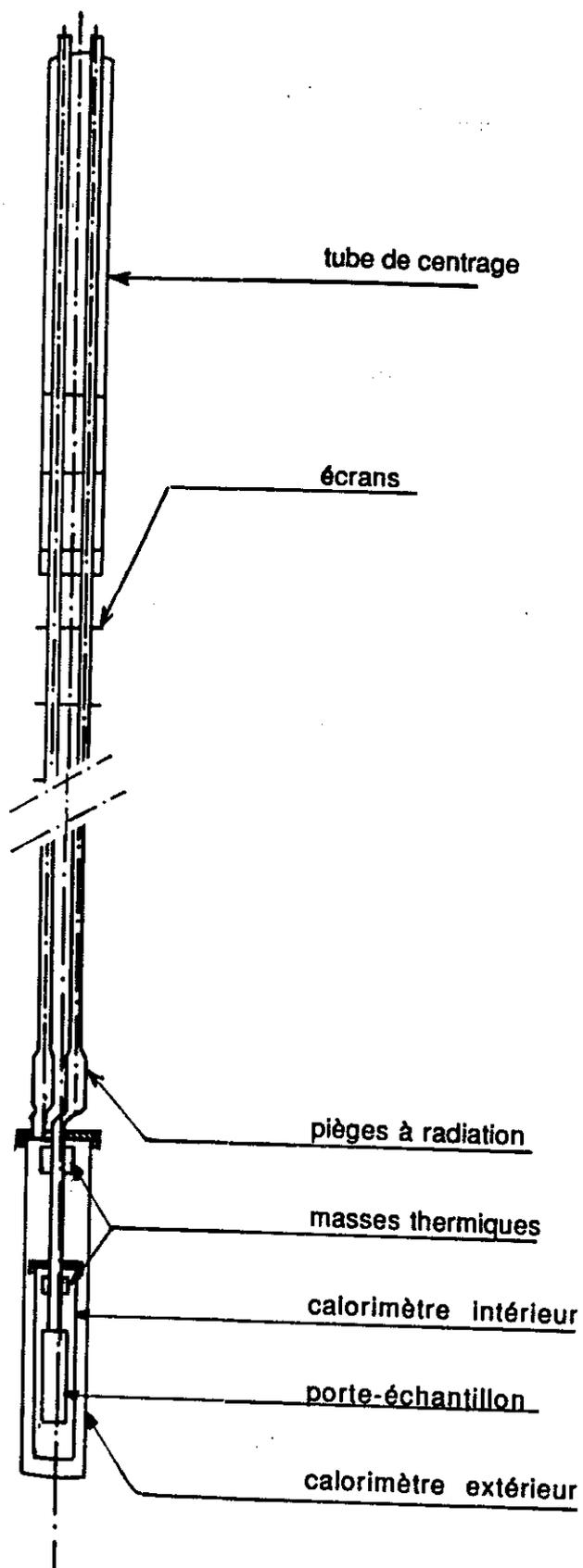
Cependant, pour déterminer la température des échantillons avec plus de précision, il demeure préférable d'utiliser des thermomètres étalonnés présentant de bonnes garanties de reproductibilité. Ce sont, pour des températures inférieures à 50 K, une résistance de germanium et, au-dessus de 50 K, une résistance de platine. Elles sont glissées dans les logements cylindriques en cuivre placés le plus près possible des échantillons afin de minimiser les écarts de température entre tous ces éléments (pour le cas où la conduction par le gaz d'échange à l'intérieur du petit calorimètre ne serait pas suffisante). Ces résistances sont mesurées à l'aide d'un pont automatique (Siemensmètre) du laboratoire[80].

Ces résistances étant sensibles au champ magnétique, contrairement à la sonde capacitive, nous avons effectué les mesures de manière isotherme en procédant comme suit :

- 1) Stabilisation de la température en champ nul au voisinage de la valeur souhaitée par affichage de la valeur correspondante de la capacité. A l'équilibre, mesure de la température à l'aide de la résistance appropriée (Ge ou Pt).

- 2) Excursion en champ en maintenant l'asservissement sur la capacité. Les mesures effectuées dans ces conditions sont supposées isothermes (cela permet accessoirement de mesurer la magnétorésistance des sondes résistives en vue d'une utilisation ultérieure).

- 3) Après retour en champ nul, vérification des valeurs de la résistance thermomètre.



*Fig. III-6 : Schéma de la canne de mesure*

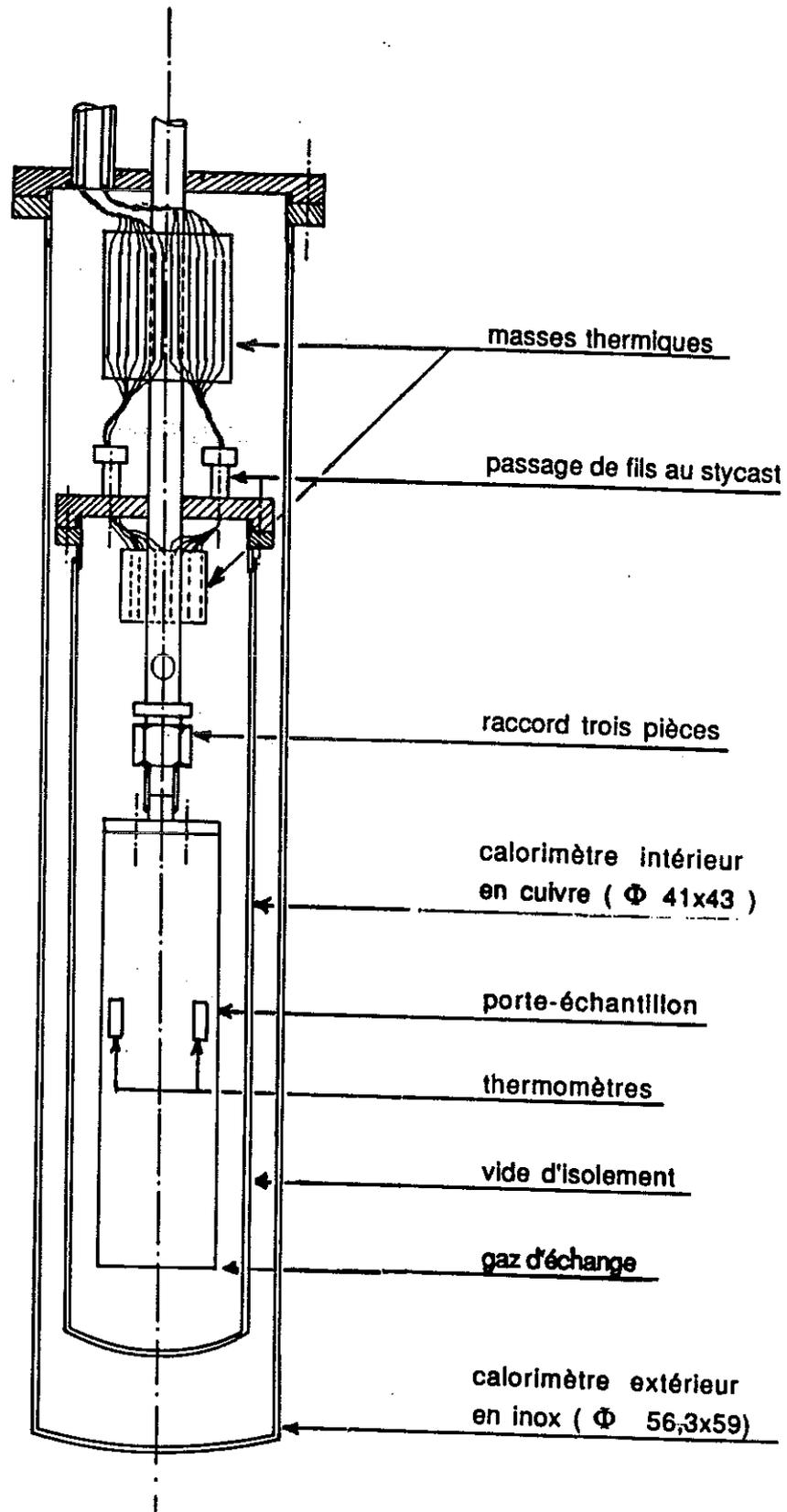
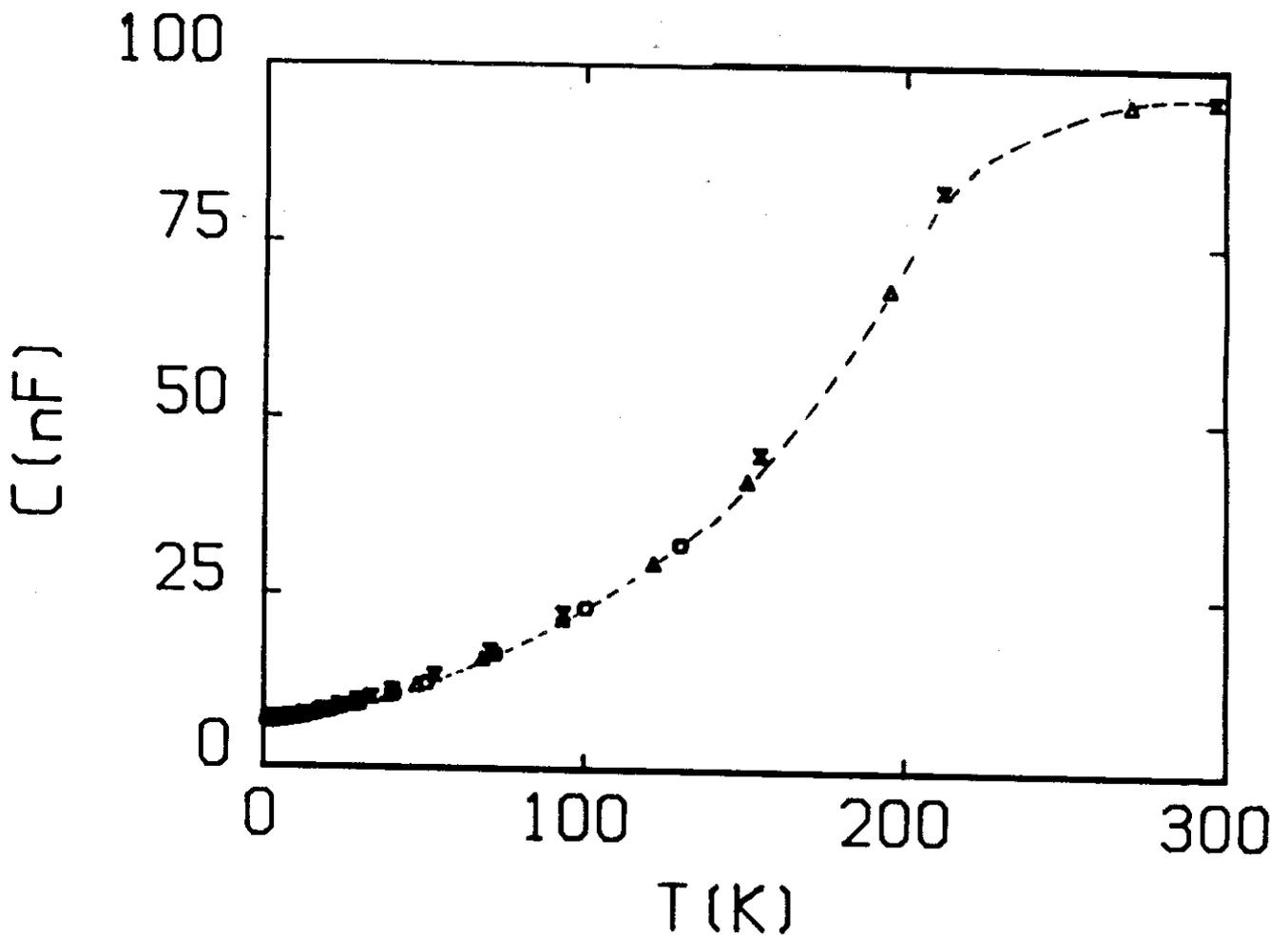


Fig. III-7 : Schéma de la partie inférieure de la canne de mesure.

On notera que la puissance maximale fournie par le régulateur (10 W) est suffisante pour obtenir des températures voisines de l'ambiante sans entraîner une consommation notable d'hélium. Ceci a été rendu possible en minimisant les échanges par conduction entre le liquide et le calorimètre intérieur : le tube de pompage de ce dernier est long et de faible diamètre dans sa partie entre les deux calorimètres, ainsi que les fils de mesure. En contrepartie, pour réguler la température de ce calorimètre (entre 4,2 et environ 9 K), il est nécessaire de maintenir du gaz d'échange dans l'enceinte qui l'entoure, car l'apport de froid par conduction le long du tube de pompage et des fils de mesure n'est pas suffisant.



*Fig. III-8 : Variation de la capacité du condensateur en fonction de la température. Les trois symboles ( $\Delta$ ,  $\circ$ ,  $\times$ ) indiquent trois mesures différentes.*

### III-3 CELLULE DE PRESSION

C'est une enceinte en cuivre beryllium frettée de type "clamp" (fig. III-9) qui a été construite par M. Konczykowski et J.M. Mignot en 1985 et calculée pour des pressions maximales de 15 kbar à 300 K. Le choix d'un alliage de CuBe permet de réaliser des mesures sous champ magnétique. La pression est appliquée par l'intermédiaire de deux pistons opposés. Le piston inférieur, appelé obturateur, est fixe. Il est constitué de CuBe et percé d'un trou central permettant le passage des fils de mesure. Il comporte un passage étanche constitué d'un cône et d'un joint en pyrophyllite. Le piston supérieur mobile a été usiné dans une variété non magnétique de carbure de tungstène (C-314 Ugicarb). L'étanchéité entre les pistons et le cylindre est assurée par des joints en cuivre beryllium recouverts d'une mince couche d'indium ; le rôle de cette dernière est d'assurer l'étanchéité aux basses pressions. La cavité cylindrique contenant l'échantillon et le manomètre est remplie d'éther de pétrole et d'huile de transformateur mélangés en proportions égales. Ce mélange se solidifie entre 150 et 200 K dans la gamme de pression utilisée.

L'échantillon et le manomètre sont posés chacun sur un disque en laiton recouvert d'une feuille de kapton ; ces disques sont superposés dans l'axe de l'obturateur. Ils portent à leur périphérie, fixées à l'araldite, une série de fines tiges de cuivre isolées qui les traversent de part en part. Ces tiges servent de relais entre les fils de cuivre entrant dans la bombe par le passage étanche en pyrophyllite et les fils de mesure (en or ou en platine) soudés à l'indium sur l'échantillon et le manomètre. Ce dernier est un monocristal d'InSb dont la résistivité en fonction de la pression et de la température est reproductible [81] et a été déterminée préalablement dans une enceinte à hélium gazeux [82]. La mesure de sa résistance permet de calculer la pression à toute température. Entre 300 et 0 K, la pression présente une diminution de l'ordre de 4 kbar, conséquence de la différence de contraction thermique entre le milieu transmetteur et le CuBe. On observe une diminution rapide jusque vers 200 K, température de solidification du milieu utilisé, puis la pression devient pratiquement constante au-dessous de 50 K (fig. III-10). L'utilisation du manomètre InSb étalonné en pression et en température compense cet inconvénient en permettant de calculer la pression exacte à chaque température.

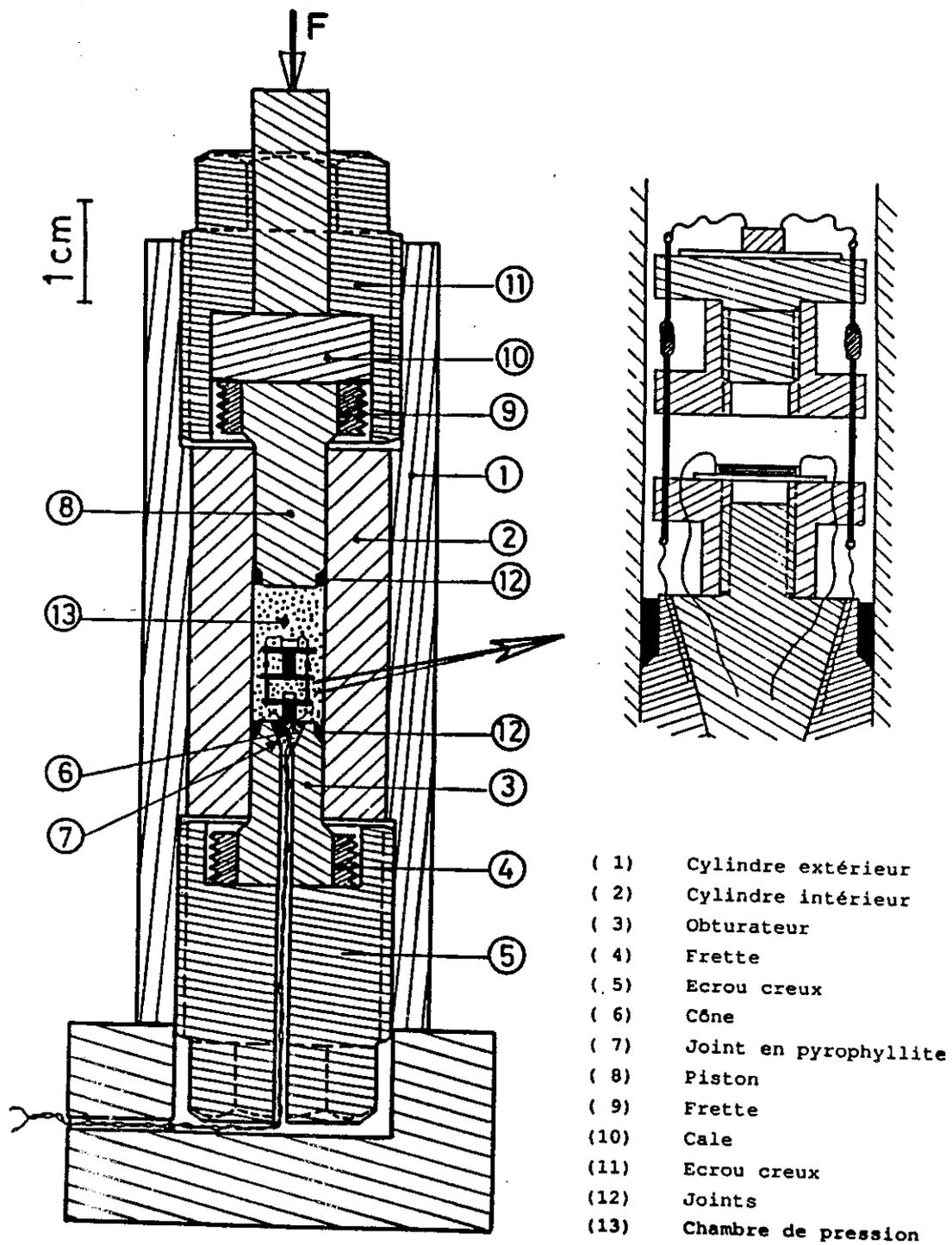


Fig. III-9 : Système à pistons-cylindre utilisé, d'après [71].

La technique de production de hautes pressions qui vient d'être décrite présente divers avantages :

- production de pressions quasi-hydrostatiques,
- utilisation d'échantillons de forme quelconque et de dimensions raisonnables,
- faible encombrement,
- facilité de mise en oeuvre,...

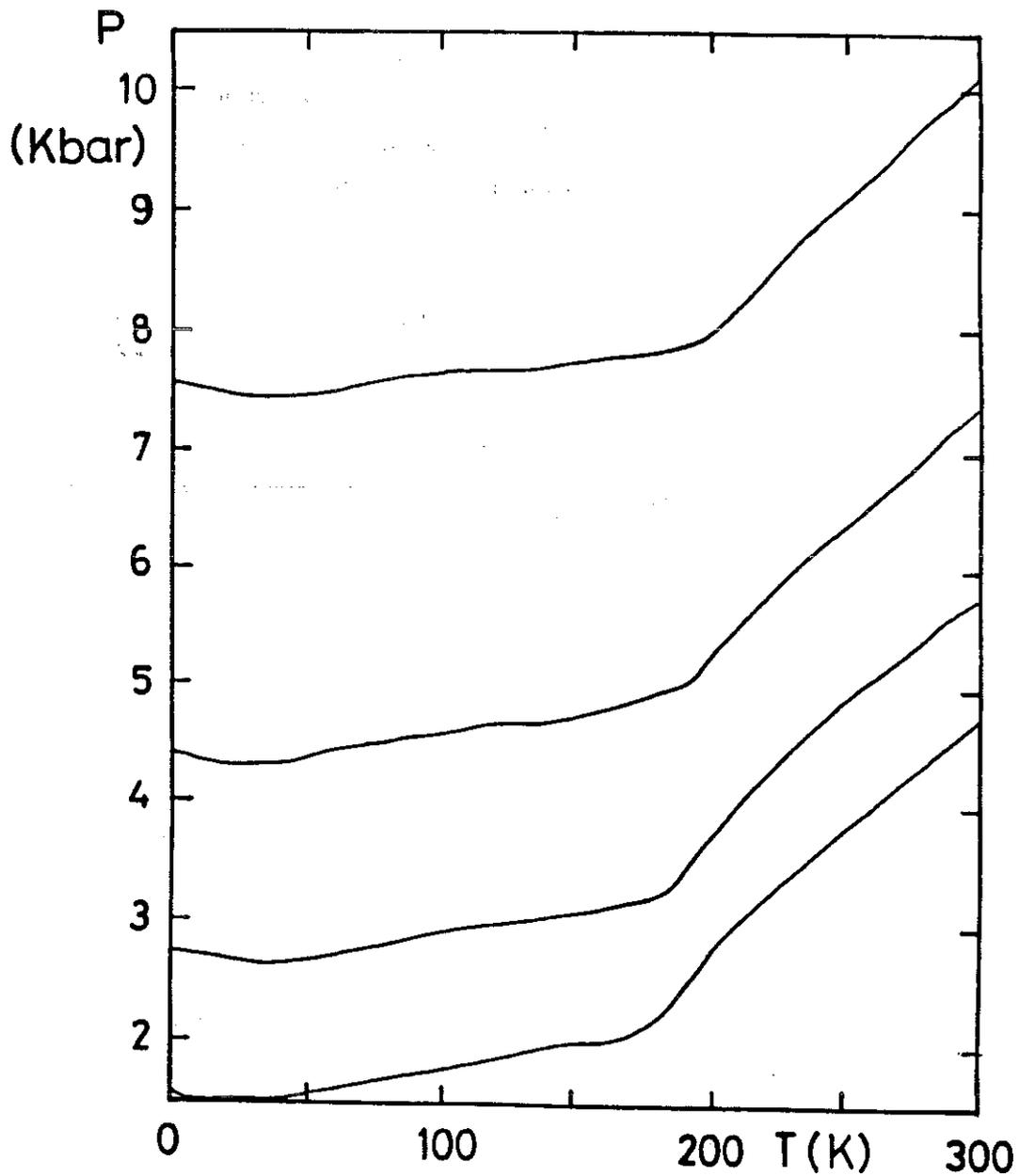


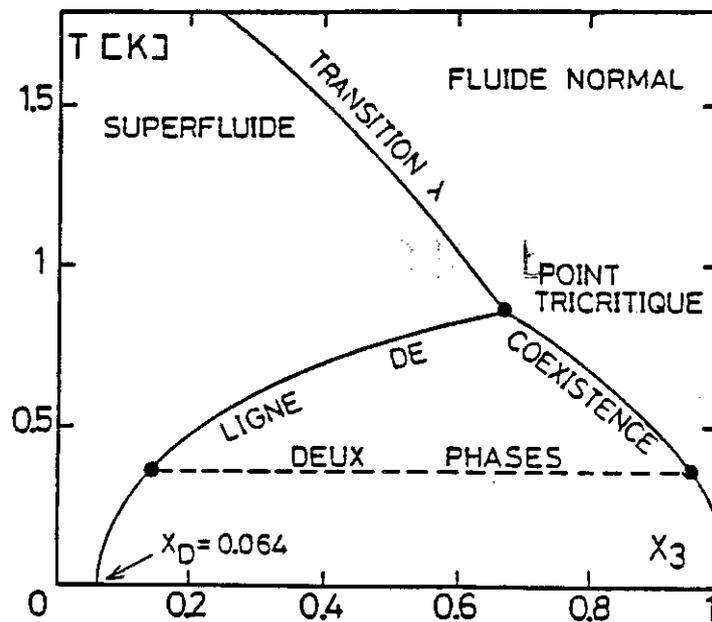
Fig. III-10 : Variation de la pression au cours du refroidissement, d'après [71].

### III-4 CRYOSTAT A DILUTION $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$

Le principe d'un cryostat à dilution repose sur les propriétés thermodynamiques du mélange de deux isotopes de l'hélium :  $^4\text{He}$  et  $^3\text{He}$ . Au-dessous d'une température critique  $T_c = 0,86$  K, la solution  $^3\text{He} + ^4\text{He}$  se sépare en deux phases :

- une phase riche en  $^3\text{He}$  ou "phase concentrée" (la moins dense),
- une phase pauvre en  $^3\text{He}$  ou "phase diluée" (la plus dense).

Le diagramme de phase du mélange  $^3\text{He} - ^4\text{He}$  est représenté sur la figure III-11.



*Fig. III-11 : Diagramme de phase du mélange  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  à basse température.*

Le passage de l'  $^3\text{He}$  de la phase concentrée à la phase diluée est analogue à une évaporation. Elle absorbe de la chaleur car il existe une différence d'enthalpie importante entre les deux phases. Le phénomène de dilution est produit dans un volume étanche de quelques dizaines de  $\text{cm}^3$  ("boîte à mélange") qui constitue le point du froid du dispositif. Une circulation continue d'  $^3\text{He}$  est obtenue par distillation de la phase diluée dans une seconde boîte (évaporateur) reliée à la précédente, qu'on maintient à une température de 0,6 à 0,8 K. L'  $^3\text{He}$  s'évapore préférentiellement du fait que sa tension vapeur est supérieure à celle de l'  $^4\text{He}$ . La circulation se fait bien évidemment en circuit fermé, et l'  $^3\text{He}$  est repompé à l'ambiante, puis réinjecté dans la boîte à mélange après s'être d'abord thermalisé à une température de 1,2 à 1,5 K sur une boîte d'  $^4\text{He}$  pompé, puis refroidi dans une série d'échangeurs au contact du mélange dilué froid sortant de la boîte

à mélange. La figure III-12 représente schématiquement les principaux éléments d'un appareil à dilution dans lequel seul l' $^3\text{He}$  circule en permanence.

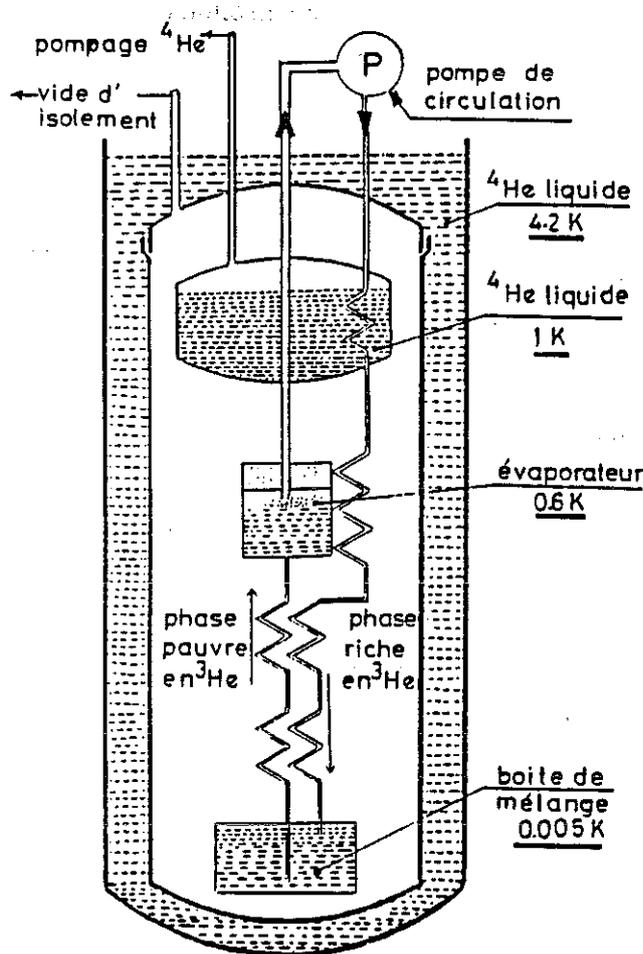
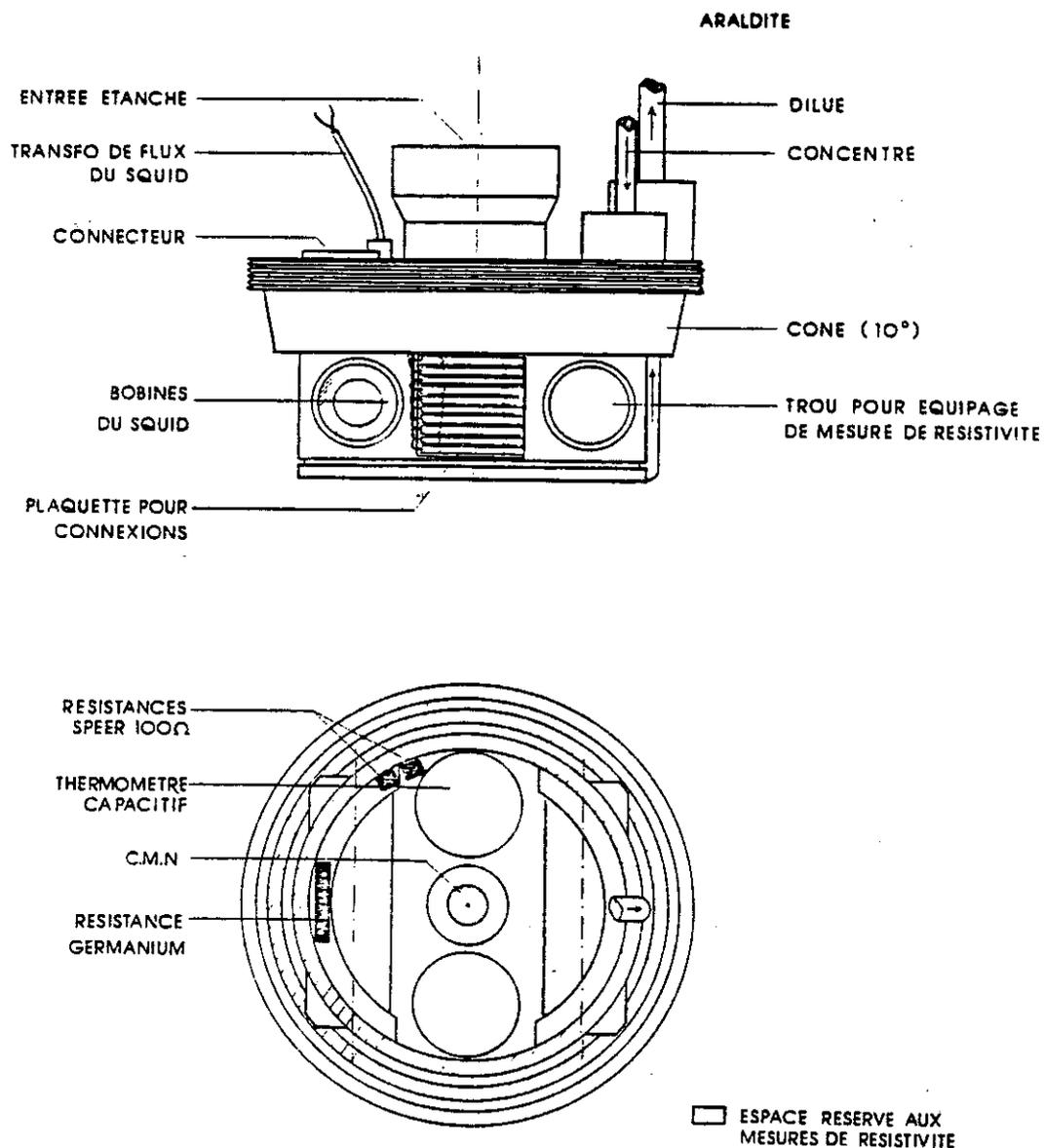


Fig. III-12 : Schéma de principe d'un appareil à dilution.

La réfrigération par dilution permet d'obtenir des températures minimales de l'ordre de 2 à 3 mK en régime continu pour les cryostats les plus performants [83].

Le cryostat avec lequel nous avons réalisé nos mesures a été construit par A. Berger, P. Haen et J.M. Mignot [84]. Cet appareil n'est pas destiné à atteindre des températures extrêmes, mais plutôt à répondre à un certain nombre de besoins expérimentaux en utilisant des solutions éprouvées par ailleurs. La température minimale atteinte est de 15 mK. Les échantillons sont placés directement dans la boîte à mélange de forme cylindrique entièrement fabriquée en résine époxy (Araldite) polymérisée à chaud (fig. III-13). La température est mesurée à l'aide de deux sondes étalonnées qui sont placées dans la boîte pour minimiser les écarts de température entre échantillons et

thermomètres. Pour  $T < 500$  mK, nous avons utilisé une résistance de carbone (Speer  $100 \Omega$  usinée) et pour  $500 \text{ mK} \leq T \leq 4,2$  K, une résistance de germanium. Une autre sonde de carbone étalonnée sert à piloter la régulation de température qui délivre un courant dans une résistance de chauffage en fil de constantan placée elle aussi dans la boîte à mélange.



**Fig. III-13 :** Schéma détaillé de la boîte à mélange ouverte, d'après [84].

## CHAPITRE IV

# EFFET HALL SOUS PRESSION DU COMPOSE $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$



Dans ce chapitre consacré à l'effet Hall du composé  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  sous pression, nous présentons d'abord des résultats de résistivité de Hall en fonction du champ magnétique à température fixe ( $T = 4,2 \text{ K}$ ), suivis d'une étude en température (entre  $1,5 \text{ K}$  et l'ambiante) de la constante de Hall  $R_H$ . L'échantillon monocristallin d'épaisseur  $0,12 \text{ mm}$  est celui étudié précédemment [34] à  $P = 0$  et dont nous avons rappelé les propriétés au chapitre II. Il a été comprimé de zéro à une dizaine de kilobar dans le système à piston cylindre décrit au chapitre III. Le champ magnétique ( $H \leq 8 \text{ T}$ ) était dirigé selon l'axe facile  $c$  et le courant électrique appliqué dans le plan de base  $(a,a)$ . Le coefficient de Hall  $R_H(T)$  a été déduit de la pente initiale de la résistivité de Hall  $\rho_H(H)$ . Cette dernière n'a donc pas nécessairement été mesurée dans toute la gamme de champ à chaque température. Nous n'avons mesuré  $\rho_H(H)$  à différentes pressions et jusqu'à  $8 \text{ T}$  qu'à une seule température,  $T = 4,2 \text{ K}$ , en complément des mesures à  $P = 0$  de la réf. [34] et de celles inédites effectuées précédemment au SNCI dans le cadre de la thèse d'A. Ponchet.

#### IV-1 RESISTIVITE DE HALL A 4,2 K DE $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ SOUS PRESSION

La figure IV-1 montre la variation de la résistivité de Hall en fonction du champ appliqué, à  $4,2 \text{ K}$ , pour différentes pressions. A  $P = 0$ ,  $\rho_H(H)$  présente, comme la magnétorésistance, un maximum prononcé au champ critique  $H_M \approx 8,3 \text{ T}$ , suivi d'une rapide décroissance. La pente initiale de  $\rho_H(H)$  décroît rapidement lorsque  $P$  augmente.

Comme le montre la courbe à  $1,9 \text{ kbar}$ , on constate que pour les faibles pressions, le maximum de  $\rho_H(H)$  se décale vers les hauts champs lorsque  $P$  augmente, suivant en cela celui observé dans la magnétorésistance (voir § II-5-3). La variation de  $\rho_H(H)$  à  $4,6 \text{ kbar}$  n'a pas encore été mesurée en champ intense, mais on peut s'attendre à ce qu'elle possède un maximum vers  $18 \text{ T}$ , toujours à l'instar de la magnétorésistance (cf. la figure II-14). Ceci serait en accord avec des mesures effectuées précédemment [62] sur le composé  $\text{Ce}_{0,95}\text{Y}_{0,05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ , qui ont montré qu'à  $4,2 \text{ K}$  sa tension de Hall, ainsi que sa magnétorésistance, présentent un maximum autour de  $15 \text{ T}$  ( $5 \%$  d'yttrium seraient ainsi équivalents à une pression d'environ  $4 \text{ kbar}$  ; mais nous reviendrons sur ce point au chapitre V (§ V-2-1), où l'on verra les limites d'une telle comparaison).

En revanche, pour  $P \geq 7 \text{ kbar}$ , le maximum de  $\rho_H(H)$  se déplace plutôt vers les bas champs (cf. l'échelle agrandie du bas de la figure IV-1), ce qui suggère le passage à un régime différent. Ce maximum se situe autour de  $4,5 \text{ T}$  pour une pression de  $10,2 \text{ kbar}$ .

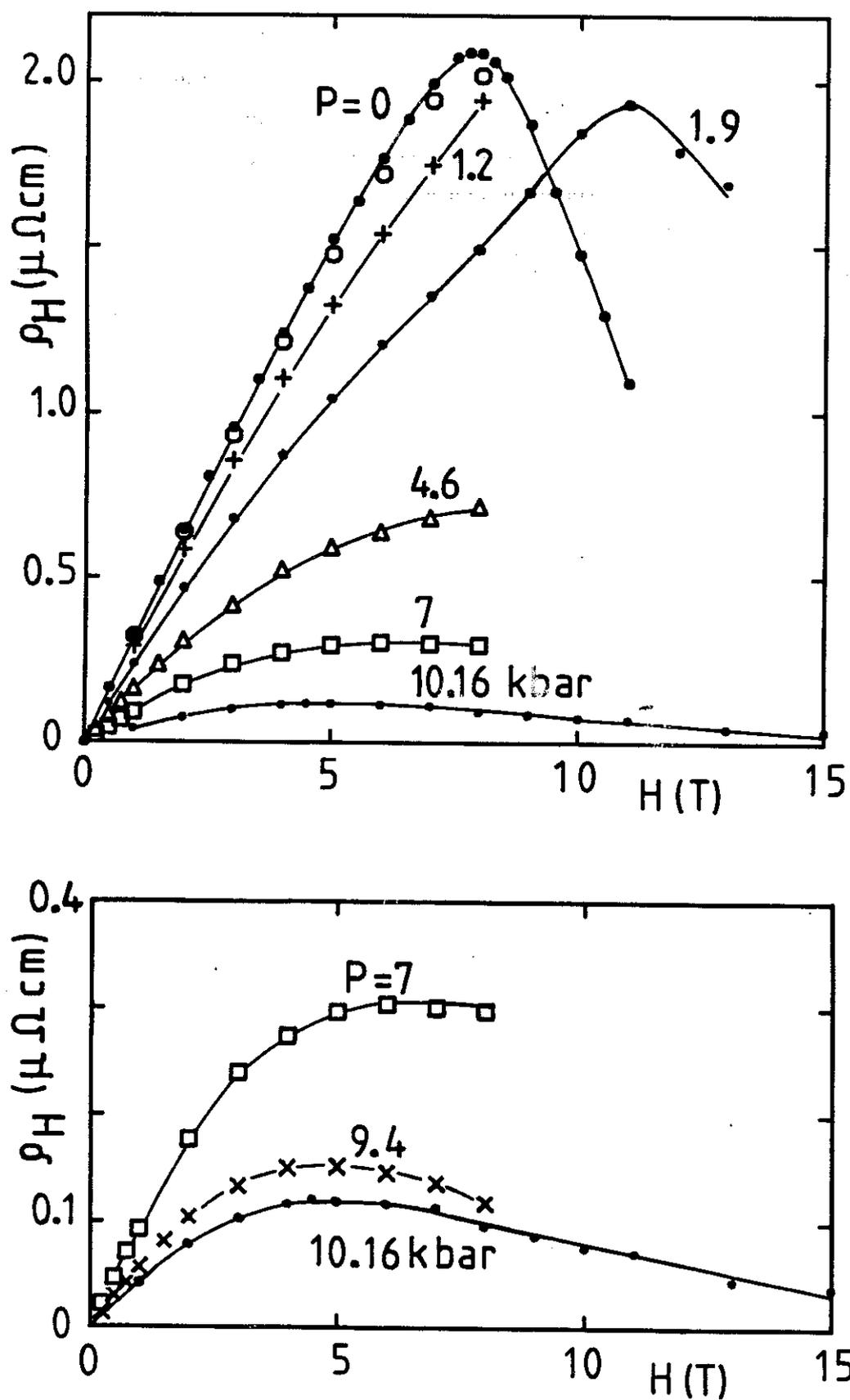


Fig. IV-1 : Variation de la tension de Hall de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  sous pression à  $4,2\text{ K}$ . La courbe à  $P = 0$  est tirée de la référence [34]. Les courbes à  $1,91\text{ kbar}$  et à  $10,16\text{ kbar}$  ont été mesurées par A. Ponchet.

Cette dernière courbe rappelle celles à 6,9 et 12,3 K relatives au composé de valence intermédiaire  $CeSn_3$  (fig. I-9, § I-4-4-3). On peut remarquer que le coefficient de Grüneisen ( $\Omega = -1/2 \partial \ln A / \partial \ln V$ ) déduit du terme  $AT^2$  de la résistivité sous pression [71], présente un changement de pente en fonction de  $P$  au-delà de 5 kbar (fig. II-13), ce qui pourrait de même indiquer le passage du régime de fermions lourds à celui de valence intermédiaire. Dans cette gamme de pression ( $P \geq 7,9$  kbar), la magnétorésistance n'a été mesurée que jusqu'à 8 T et aucun maximum n'a été observé [71].

## IV-2 ETUDE DE $R_H(T)$ DE $CeRu_2Si_2$ EN FONCTION DE LA PRESSION

### IV-2-1 Résultats expérimentaux

La figure IV-2 représente la variation thermique du coefficient de Hall,  $R_H$ , du composé  $CeRu_2Si_2$  à différentes pressions entre 0 et 9,4 kbar. La température est portée sur une échelle logarithmique. Nos résultats à pression ambiante sont en complet accord avec ceux de la référence [34], qui montrent que  $R_H$  est positif, présente un maximum vers  $T_{max} = 18$  K et tend vers une résiduelle pour  $T \rightarrow 0$ .

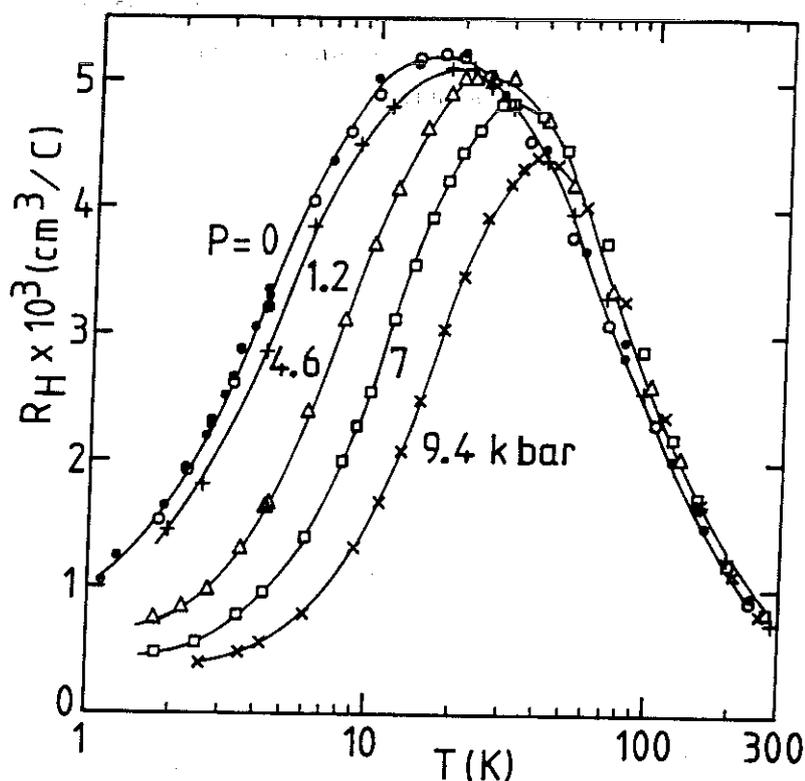


Fig. IV-2 : Variation du coefficient de Hall de  $CeRu_2Si_2$  avec la température, sous différentes pressions. De la gauche vers la droite :  $P = 0$  ( $\circ$  : nos mesures;  $\bullet$  : réf. 34),  $P = 1,2$  ( $+$ ),  $P = 4,6$  ( $\Delta$ ),  $P = 7$  ( $\square$ ) et  $P = 9,4$  kbar ( $\times$ ).

Avec la pression, l'allure générale des courbes  $R_H(T,P)$  ne change pas :  $R_H$  demeure positif et de valeur élevée. Cependant, sa valeur diminue fortement à basse température, tandis que le maximum passe de  $5,2 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^3/\text{Cb}$  à 18 K ( $P = 0$ ) à  $4,2 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^3/\text{Cb}$  à 37,2 K ( $P = 9,4 \text{ kbar}$ ). A haute température,  $R_H(T)$  est peu dépendant de la pression et toutes les courbes se rejoignent. Notons que la résistivité électrique varie peu également en fonction de la pression à haute température.

L'augmentation de  $T_{\text{max}}$  semble linéaire en fonction de la pression jusqu'à 5 kbar mais s'accélère à haute pression comme le montre la figure IV-3. Cette figure montre également que la valeur du maximum,  $R_{H\text{max}}$  décroît plus vite que linéairement.

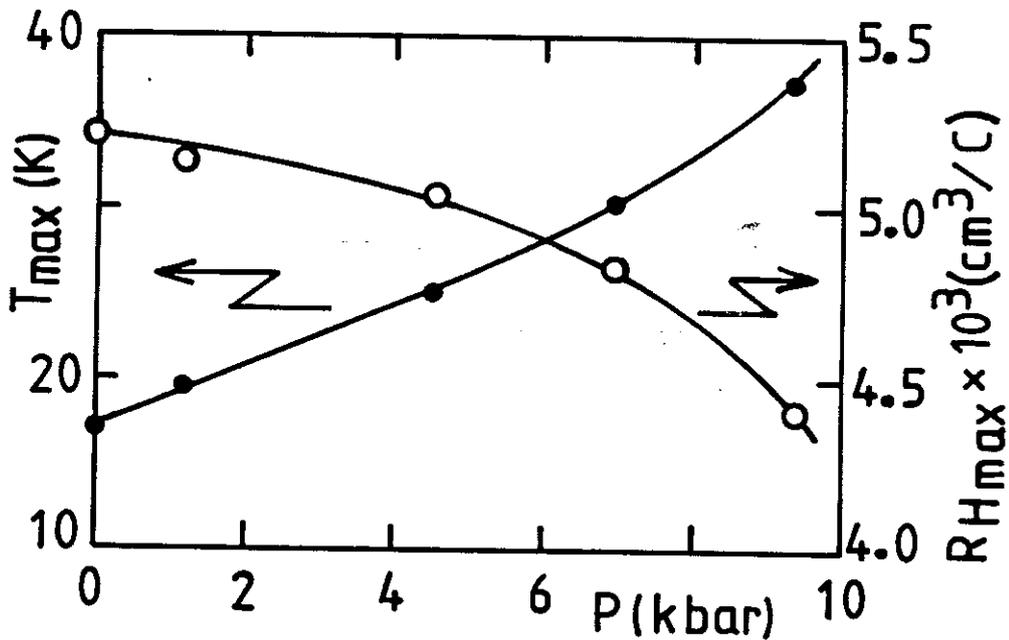


Fig. IV-3 : Variation de  $T_{\text{max}}$  (●) et de  $R_H(T_{\text{max}})$  (○) en fonction de la pression.

Ainsi que nous l'avons rappelé au chapitre II, un régime quadratique  $A^*T^2$  devrait être observé à pression ambiante à très basse température, dans le régime cohérent. Cependant, dans la référence [34], la variation de  $R_H$  a été décrite comme variant en  $A^*T^n$ , avec  $n = 1,35$  à  $1,7$  au-dessous d'environ 3 K. Le tracé en  $T^2$  de la figure IV-4 montre en fait que cette variation de  $R_H$  peut se décomposer en deux régimes en  $T^2$ , un premier au-dessous de 1 à 1,5 K, et un autre entre  $\approx 2,2$  et 3,5 K, de pente  $A^*$  nettement plus faible que le précédent. Ce double régime en  $T^2$  semble avoir disparu dans les tracés de  $R_H$  pour  $P \geq 4,6 \text{ kbar}$ . Le nombre de points de la courbe à 1,2 kbar est insuffisant pour que l'on puisse y observer une quelconque cassure. Il serait intéressant d'effectuer des mesures à des pressions intermédiaires entre 0 et 4,6 kbar afin

de vérifier pour quelle valeur de  $P$  et à quelle température le double régime en  $T^2$  disparaît (en tout état de cause, pour  $P \geq 4,6$  kbar, cette température devrait être inférieure à 1,5 K, si elle existe). Quoiqu'il en soit, on observe une extension significative avec la pression de la zone de validité du régime en  $T^2$ , alors que le coefficient  $A^*$  décroît, effet très analogue à celui observé dans le régime en  $T^2$  de la résistivité. On notera que cette dernière est décrite aussi [34], à pression ambiante, comme variant en  $AT^{1,7}$  plutôt que  $AT^2$  au-dessous d'environ 1 K, puis qu'un régime en  $AT^2$  bien établi est observé sous pression [71]. Enfin, on remarque que la gamme de température dans laquelle  $R_H$  varie en  $T^2$  est toujours plus étendue, vers les hautes températures, que celle où  $\rho$  varie en  $T^2$ . On peut dire alors que dans la gamme de température, où  $\rho$  varie en  $T$ ,  $R_H$  est proportionnel à  $\rho^2$ .

Il est intéressant de considérer la variation en fonction de  $P$  de la valeur résiduelle du coefficient de Hall,  $R_H(0) = R_H(T \rightarrow 0)$ . Pour  $P = 0$ ,  $R_H$  a été mesuré jusqu'à 70 mK, et la résiduelle parfaitement déterminée [34]. Par contre, à partir du tracé de la figure IV-4, on ne peut que déterminer  $R_H(0)$  par extrapolation, pour les pressions considérées. Nous avons porté ces valeurs extrapolées sur la figure IV-5, et, pour  $P = 0$ , la valeur extrapolée à partir du régime en  $T^2$  "haute température" (observé entre  $\approx 2,2$  et 3,5 K), ainsi que la valeur de  $R_H(0)$  du régime "très basse température" [34].

En se limitant aux valeurs extrapolées à partir du régime en  $T^2$  haute température, on pourrait affirmer que,  $R_H(0)$  décroît de façon pratiquement exponentielle. Par contre, on voit que la vraie valeur de  $R_H(0)$  à  $P = 0$  est presque égale à la valeur extrapolée pour 4,6 kbar. Ainsi, en oubliant celle extrapolée pour 1,2 kbar, qui mériterait d'être vérifiée (et en supposant un résultat identique pour les autres pressions comprises entre 0 et 4,6 kbar), on pourrait dire que  $R_H(0)$  est pratiquement indépendante de  $P$  entre 0 et environ 4,6 kbar, puis diminue lentement quand  $P$  augmente (d'un facteur proche de 2, cependant, entre 4,6 et 9 kbar). Cela ne peut pourtant se comparer à ce qui a été observé dans la résistivité sous pression, à savoir, comme nous l'avons rappelé au §II-5-3, que la résiduelle ne dépend pas de la pression, à quelques pourcent près.

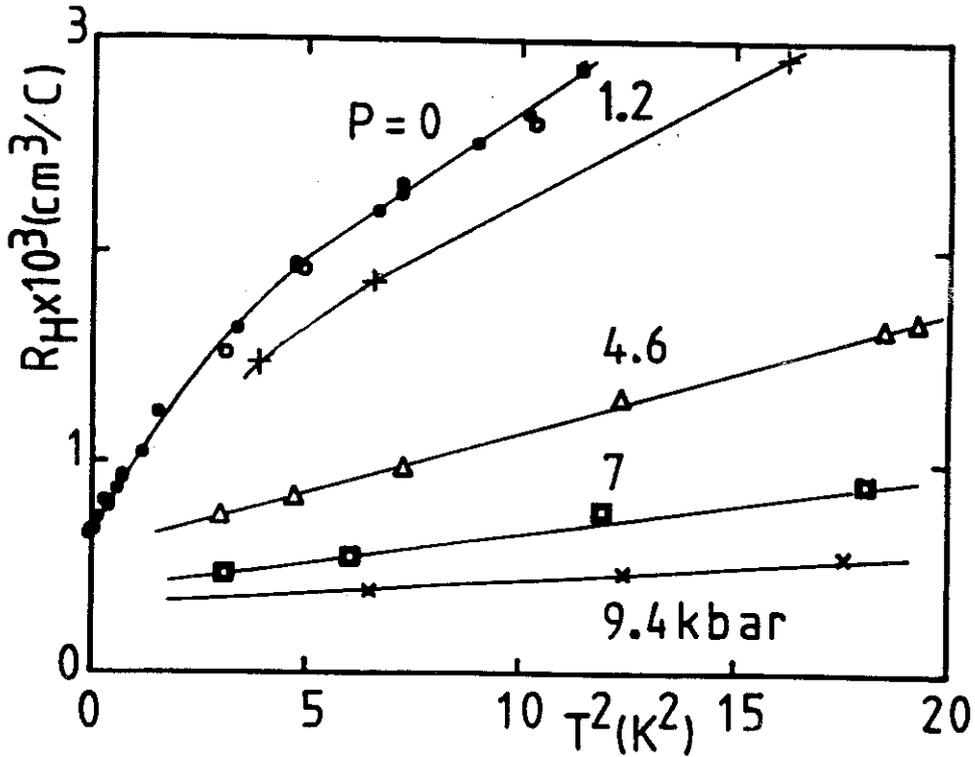


Fig. IV-4 : Tracé de  $R_H$  de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  à basse température, en fonction de  $T^2$  pour les pressions appliquées suivantes, de haut en bas :  $P = 0$  ; 1,2 ; 4,6 ; 7 et 9,4 kbar.

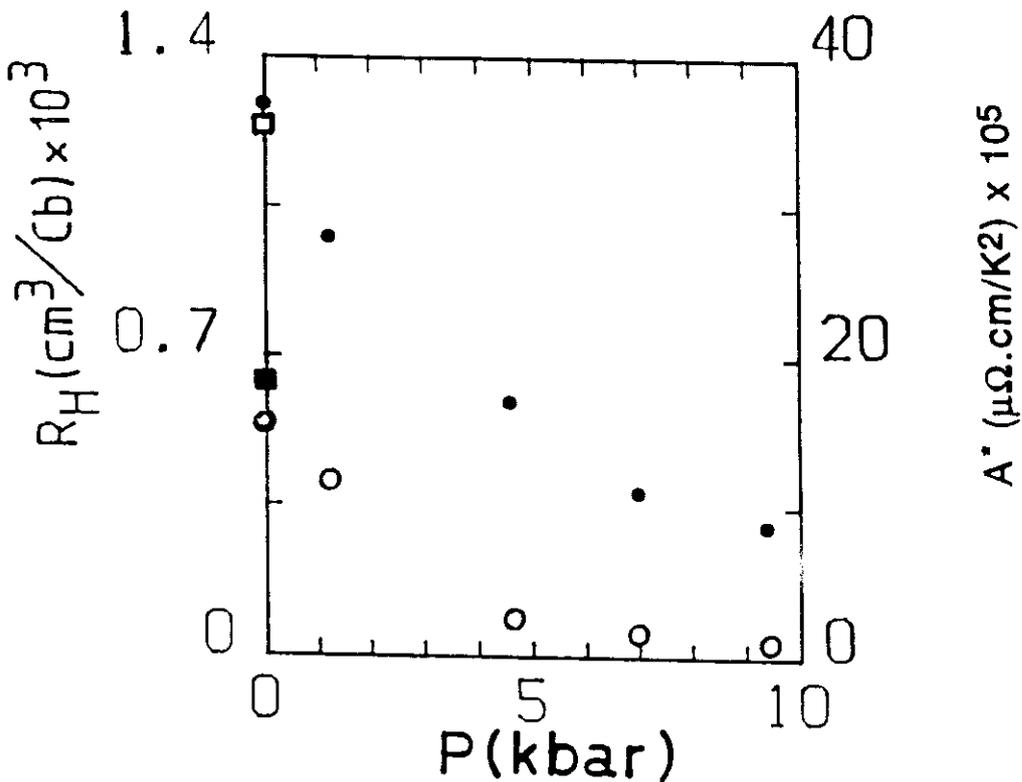


Fig. IV-5 : variation des valeurs résiduelles  $R_H(0)$  et des pentes  $A^*$  des tracés en  $T^2$  de la fig. IV-4, en fonction de la pression.  $\bullet$  : valeurs de  $R_H(0)$  estimées à  $T = 0$  par extrapolation ; (pour  $P = 0$  et 1,2 kbar, il s'agit de l'extrapolation du régime en  $T^2$  "haute température") ;  $\blacksquare$  :  $R_H(0)$  à  $P = 0$  du régime en  $T^2$  "basse température". Valeurs de  $A^*$  ( $\circ$  : régime "haute température" ;  $\square$  : régime "basse température").

### IV-2-2 Comparaison avec les autres mesures sous pression

La température à laquelle se produit le maximum de  $R_H(T)$  à pression ambiante,  $T_{\max} \approx 18$  K, est aussi celle autour de laquelle apparaissent des anomalies de transport, notamment dans la résistivité électrique [34,66] (rupture de pente vers 20-25 K) et dans le pouvoir thermoélectrique [69]. Ces anomalies ont été attribuées à la diffusion Kondo, en accord avec la température de Kondo estimée à 24 K d'après les mesures de chaleur spécifique [62-65]. L'augmentation de  $T_{\max}$  avec  $P$  est donc en accord qualitatif avec une augmentation de  $T_K$  sous pression comme cela a été vu précédemment par des mesures de susceptibilité [70] et de résistivité [71].

Le problème est que pour de l'effet Kondo au sens strict (à un ion), il n'y a sans doute pas de maximum de  $R_H$  au voisinage de  $T_K$  (voir au chapitre suivant les alliages avec le lanthane, pour les concentrations  $x \geq 0,20$ ). La cohérence joue donc un rôle essentiel. Mais d'autre part, la température de cohérence, que l'on peut estimer par exemple à partir de la température  $T^*$  au-dessous de laquelle  $\rho$  varie en  $T^2$  à  $P = 0$ , est seulement de l'ordre de 1 K. Ces difficultés pour définir sans ambiguïté les différents régimes (cohérent/incohérent) ont été soulignées par Penney et coll. [85] dans le cas de  $CeCu_6$ .

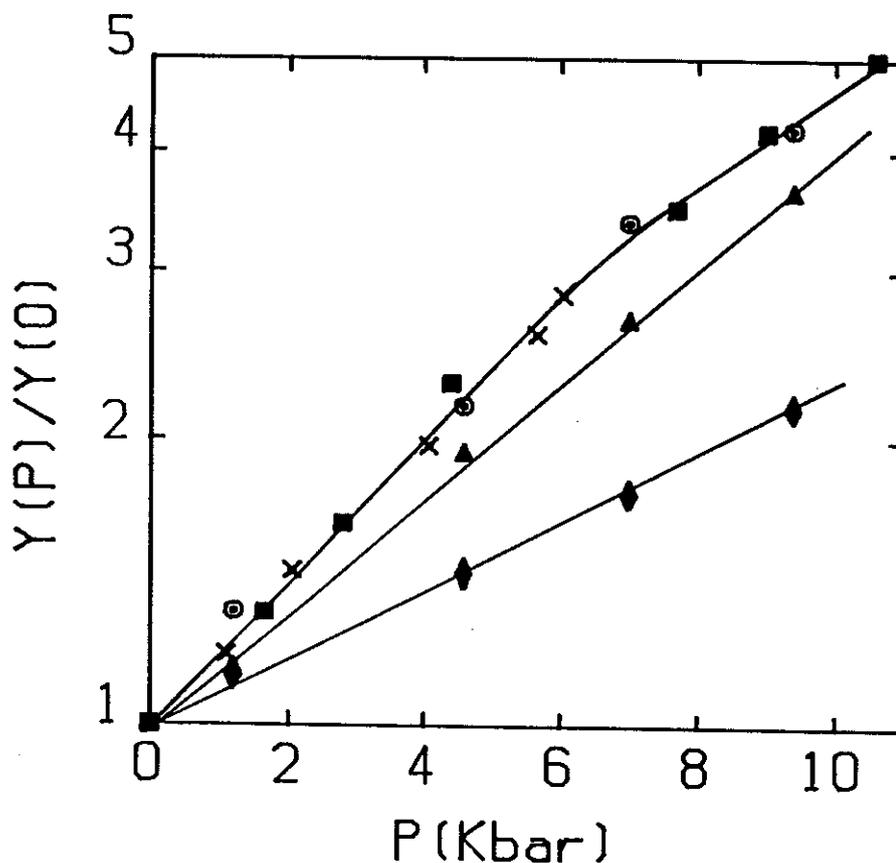
De façon phénoménologique, on peut cependant comparer les variations relatives de  $T_{\max}$  et des autres caractéristiques de  $R_H$  en fonction de la pression à celle des autres paramètres considérés comme proportionnels à  $T_K$  lors d'études précédentes :

- température du maximum de la susceptibilité,  $\chi(T)$  [70] ;
- susceptibilité à  $T = 0$ ,  $\chi_0$  [70] ;
- racine carrée de l'inverse du coefficient du terme en  $T^2$  de la résistivité à très basse température,  $1/\sqrt{A}$  [71] ;
- champ du maximum de magnétorésistance à 4,2 K,  $H^*$  [71]

qui toutes conduisent à  $\Gamma \equiv \partial \text{Log } x / \partial P$  de l'ordre de  $170 \text{ Mbar}^{-1}$  [70,71].

Dans le cas de l'effet Hall, les caractéristiques, à basse température, de  $R_H$  à  $P = 0$  sont doubles, comme nous l'avons vu plus haut. Si l'on considère le tracé de  $R_H(0)$ , de la fig. IV-5, on voit de suite que l'absence supposée de variation de cette résiduelle entre  $P = 0$  et 4,6 kbar, ne peut conduire à une valeur de  $\Gamma$  significative. Nous pouvons, par contre, prendre comme référence à  $P = 0$ , la pseudo-valeur  $R_H(0)$  extrapolée de la variation entre 2,2 et 3,5 K ; il paraît alors logique de prendre la valeur de  $A^*$  correspondante (bien que cette dernière soit pratiquement deux fois plus faible que celle du régime très basse température). Nous avons tracé sur la figure IV-6 les variations relatives de ces deux quantités et celles  $T_{\max}$  de  $R_H$ , et reporté celles de  $\chi_0$ , la

susceptibilité à  $T \rightarrow 0$  [70], et du coefficient  $1/\sqrt{A}$  de la résistivité [71]. La variation relative de  $T_{\max}$  conduit à une valeur de  $\Gamma$  qui est seulement de  $85 \text{ Mbar}^{-1}$ . Nous n'avons pas tracé celle de  $R_H(T_{\max})$  qui est d'un ordre de grandeur beaucoup plus faible.



**Fig. IV-6 :** Variations relatives en fonction de la pression de  $\chi_0$  (x, d'après [70]),  $1/\sqrt{A}$  (■, d'après [71]) et des paramètres que nous avons mesurés :  $T_{\max}$  (◆),  $1/\sqrt{A^*}$  (▲) et  $R_H(0)$  (⊙) ; (voir texte pour les définitions de ces deux derniers).

De même, la variation relative de la racine carrée du coefficient  $A^*$  du terme en  $T^2$  de l'effet Hall est sensiblement plus faible que celle du coefficient  $A$  de la résistivité électrique, le coefficient  $\Gamma_{A^*} = -(\partial \text{Log} A^* / 2 \partial P)$  n'excédant pas  $140 \text{ Mbar}^{-1}$ . Néanmoins, ce chiffre très élevé reste du même ordre de grandeur que ceux obtenus précédemment, ce qui montre que l'effet Hall est également dominé par les fluctuations de spins des quasiparticules lourdes.

Notons qu'en choisissant comme référence à  $P = 0$  le coefficient  $A^*$  de la variation en  $T^2$  de très basse température, le tracé ne s'améliore pas, mais au contraire se dégrade : il présente un coude à 1,2 kbar ; ensuite  $\Gamma_{A^*}$  reste le même que précédemment entre 1,2 et 9,4 kbar (en raison de l'échelle log). Cela justifie à posteriori le choix de  $A^*$  de haute température comme référence à  $P = 0$ .

Finalement, seule la variation relative de  $R_H(0)$  (en choisissant ce dernier, à  $P=0$ , en accord avec  $A^*$ ) est égale à  $170 \text{ Mbar}^{-1}$ , c'est-à-dire identique à celles de  $1/\sqrt{A}$ . De plus, comme pour cette dernière, la variation relative de  $R_H(0)$  commence à être moins rapide au-delà de 6 à 7 kbar, indiquant, comme nous l'avons rappelé plus haut, le passage possible à un régime de valence intermédiaire. Au-dessous de cette pression, l'accord avec la variation relative des autres paramètres énumérés plus haut :  $T_{\max}(\chi)$ ,  $\chi_0$ , [70] et de la valeur du champ de la transition pseudo-métamagnétique  $H^*$  [71], est également très bon mais ceux-ci n'ont été mesurés que pour  $P \leq 6$  kbar pour les deux premiers et  $P \leq 4,6$  kbar pour le dernier.

#### IV-2-3 Comparaison avec les modèles existants

Les mesures effectuées sur le composé  $LaRu_2Si_2$  [34], montrent que dans celui-ci,  $R_H$  est négatif, comme dans un métal normal (cf. la fig. II-9, § II-4-4). On peut donc interpréter les valeurs positives de  $R_H$  dans  $CeRu_2Si_2$ , sous pression comme à  $P=0$ , comme dues à un effet Hall extraordinaire.

Comme nous l'avons indiqué précédemment (voir chapitre II, § 3-4), Fert et Levy [50] ont présenté un calcul de l'effet Hall dû à la diffusion gauche dans les composés à base de cérium et d'uranium. Ils ont considéré que la constante de Hall expérimentale  $R_H(T)$  est la somme d'un terme de diffusion gauche et d'un terme résiduel attribué à l'effet Hall ordinaire et à la diffusion gauche résiduelle par les défauts et les impuretés du réseau cristallin.

Nous avons discuté au § 1-4-4-3 le résultat de ces calculs selon lesquels, ce terme de diffusion gauche est proportionnel au produit  $\gamma\chi\rho_m$ , où  $\chi$  est la susceptibilité magnétique et  $\rho_m$  devrait être la contribution magnétique à la résistivité, avec cependant deux régimes possibles à haute température, c'est-à-dire des préfacteurs  $\gamma$  différents selon que  $T \gg T_K$  ou  $T \leq T_K$ . Remarquons que la valeur de  $T_K$  considérée ici (de l'ordre de 100 K) est, selon toute vraisemblance, la température de Kondo haute (des niveaux excités de champ cristallin) et non pas celle de basse température relative à l'état fondamental, laquelle, dans les composés Kondo ou de fermions lourds, est généralement de l'ordre de 10 à 1 K, voire moins.

Nous allons comparer nos résultats expérimentaux à ce résultat théorique, ce qui constitue une extension de la comparaison faite par Haen et coll. à la pression atmosphérique [34], que nous avons reproduit sur la figure IV-7a. Dans ce dernier cas, l'ajustement théorique n'est pas en bon accord avec les points expérimentaux : la position

en température du maximum est mal reproduite, de même que la partie de la courbe comprise entre ce maximum et  $\approx 100$  K, qui a été calculée avec un préfacteur permettant de reproduire seulement l'amplitude de ce maximum. De plus, un large trou subsiste entre cette courbe et celle ajustée (avec un préfacteur différent) sur les valeurs expérimentales pour  $T > 150$  K. On notera que les écarts semblent moins grands dans l'ajustement des résultats obtenus sur un polycristal de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  [52], bien qu'ils soient presque identiques à ceux du monocristal (fig. IV-7b).

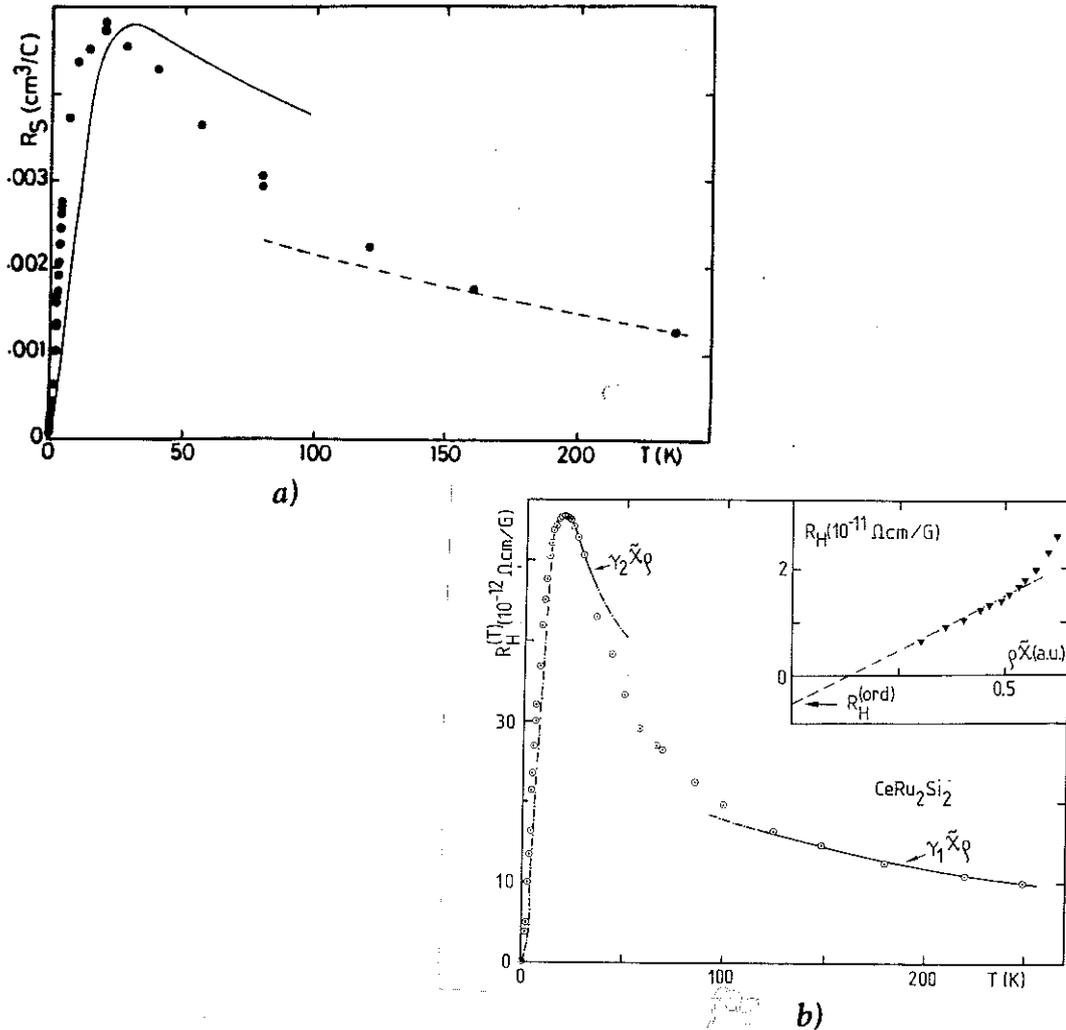


Fig. IV-7 : Ajustement de  $R_H$  de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  : a) monocristal [34] ; b) polycristal [52].

Dans le cas présent, afin d'obtenir la susceptibilité magnétique  $\chi_{//}(T)$  et la résistivité magnétique  $\rho_m(T)$  à la même pression que celle correspondant aux conditions de nos mesures de  $R_H$ , nous avons dû d'abord interpoler à chaque température la résistivité à la pression considérée à partir des courbes expérimentales isothermes  $\rho_T(P)$  déterminées par Ponchet et coll. [71]. Nous avons obtenu ainsi des courbes de résistivité isobares  $\rho_P(T)$ . Ensuite, nous avons utilisé la loi de variation en pression établie pour la

susceptibilité magnétique par Voiron et coll. [70], d'après leurs données expérimentales (voir § II-5-1). On représente ainsi le produit  $\chi_{//}(T) T$  aux différentes pressions par une fonction unique de la variable réduite  $T/T_s(P)$ . Pour simplifier, on approche cette fonction par un polynôme de degré trois. (Notons que, contrairement à ce qui a été observé dans le cas de la susceptibilité magnétique, on ne peut pas décrire l'ensemble des résultats d'effet Hall sous pression à l'aide d'une loi d'échelle du type  $R_H(T,P)/R_{H0}(P) = f(T/T^*(P))$ ).

Le calcul reproduit correctement l'allure générale des courbes. Cependant, la position du maximum se trouve déplacée, pour toutes les pressions, comme à  $P = 0$ . Sur la figure IV-8, nous présentons les résultats pour  $P = 0$  et  $P = 7$  kbars. Notons qu'ici, pour  $P = 0$ , la courbe calculée est la même que celle de basse température de la réf. [34] (courbe en trait plein sur la figure IV-7), à ceci près que la valeur de  $\gamma$  diffère très légèrement ; par contre, nous avons adopté une échelle de température logarithmique.

En fait, la figure IV-8 montre que la contribution anormale  $R_H^*(T) = R_H(T) - R_H(0)$  (nous avons pris ici  $R_H(0) = \text{constante}$ ) varie presque comme  $\rho_m \chi_{//}(T/3)$ . Ce désaccord peut provenir entre autres du fait qu'au-dessus du maximum  $R_H(T)$  suit une loi de Curie-Weiss :  $R_H(T) \sim 1/(T+\theta)$  avec une valeur  $\theta$  négative de l'ordre de  $-60$  K, alors qu'au-dessus de  $\sim 70$  K,  $\chi_{//}$  suit une loi de Curie ( $\theta \approx 0$ ) [34]. On comprend ainsi que l'ajustement de la variation de  $R_H(T)$  d'un polycristal (qui est pratiquement identique à celle du monocristal) effectué par les auteurs de la référence [52], en utilisant la susceptibilité mesurée sur de la poudre [62] paraisse meilleur que le nôtre. Cela tient simplement du fait que  $\chi(T)$  de la poudre ( $= \chi_{//}/3 + 2\chi_{\perp}/3$ ) suit une loi de Curie-Weiss à haute température avec  $\theta \approx -60$  K.

En ce qui concerne la variation de  $R_H$  à basse température (dans le régime de diffusion cohérente), elle n'est pas prise en compte dans les modèles existants qui prévoient seulement une décroissance de  $R_H$ . Et nous avons noté au paragraphe I-4-4-3 que les variations de  $\chi\rho_m$  tirées de l'expérience prennent implicitement en compte les effets de cohérence ; autrement dit, la courbe calculée présente généralement un maximum, situé vers 10 à 30 K, mais dont la position est toujours décalée par rapport à l'expérience.

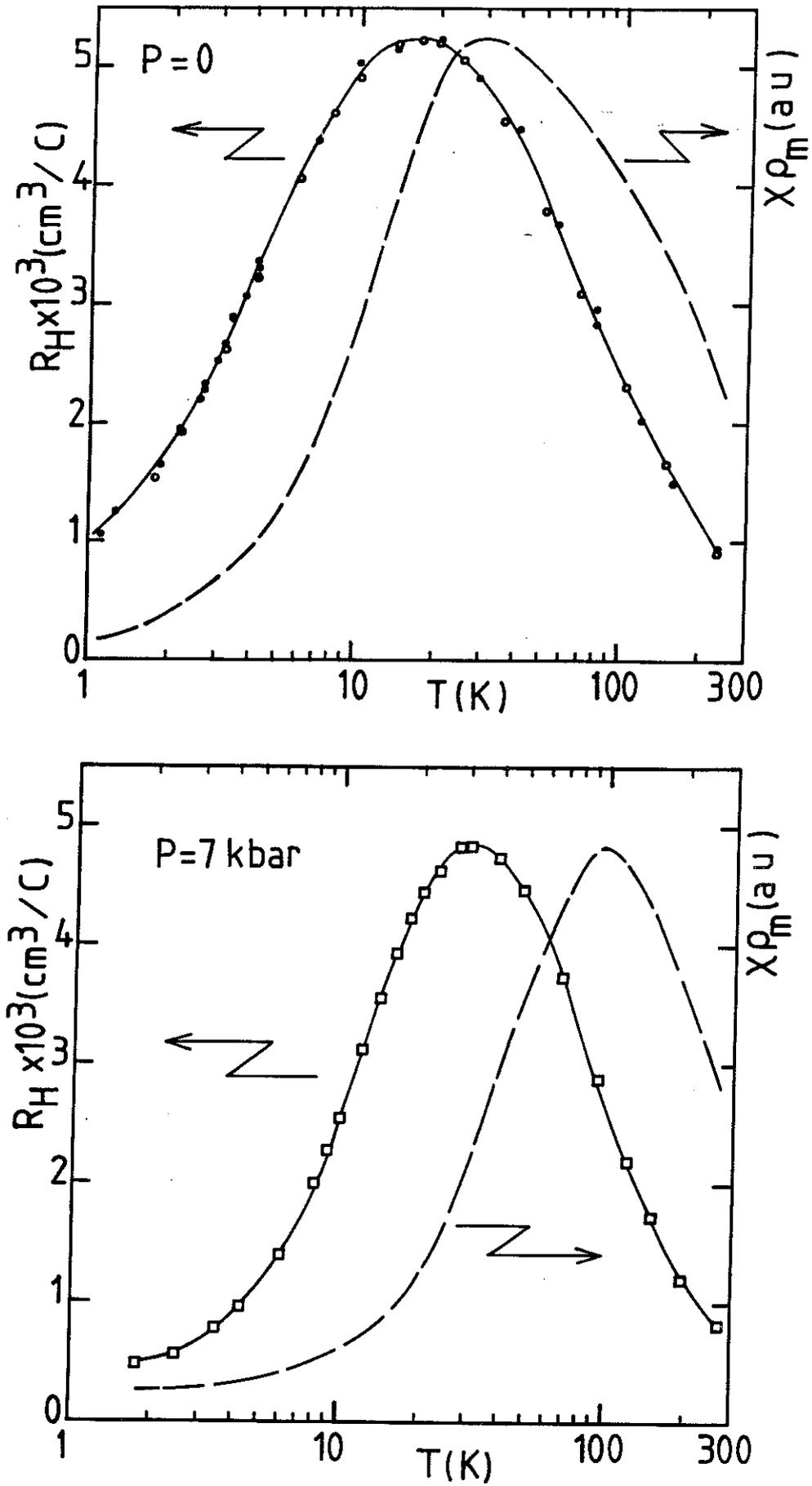


Fig. IV-8 : Comparaison des variations expérimentales de  $R_H(T)$ , à  $P = 0$  kbar et  $P = 7$  kbar, au produit  $\chi\rho_m$ .

Nos observations expérimentales montrent que les modèles théoriques doivent être améliorés pour mieux décrire notamment des systèmes fortement anisotropes, et ceci même dans le régime incohérent à haute température. Si dans le cas présent, un accord semble possible (moyennant un facteur d'échelle de  $1/3$  sur la température), cela ne peut être expliqué théoriquement. Sachant que le modèle de Fert et Levy [50] ne s'applique pas au voisinage de  $T_K$ , on peut aussi se demander dans quelle mesure les écarts constatés ici pourraient provenir de ce que le maximum de  $R_H$  est proche de  $T_K$  (avec toutes les restrictions faites au § précédent sur le fait que ce maximum doit être lié à la cohérence dans le composé). On peut également trouver là une raison pour laquelle la température et la valeur du maximum de  $R_H$  varient moins vite en fonction de la pression que ses autres caractéristiques.

En fait, même si les écarts entre les courbes calculées au moyen de ce modèle et les valeurs expérimentales semblent moins dramatiques dans le cas d'autres composés à fermions lourds, notamment  $CeCu_6$  [50],  $CeAl_3$  [50,52] et  $UPt_3$  [51], un grand désaccord subsiste (voir par exemple la figure I-8 pour  $UPt_3$ ). De plus, il est très difficile de relier les valeurs des deux préfacteurs  $\gamma$  à des quantités physiques. Leur présence, qui, dans le modèle, correspond au passage de  $T \leq T_K$  à  $T \gg T_K$ , aboutit en pratique à un changement de régime au-dessous de 100 à 50 K, voire moins, selon les composés. Cependant, ces températures ne correspondent pas réellement aux valeurs de  $T_K$  estimées pour ceux-ci. Elles peuvent aussi correspondre à celles des écarts entre niveaux de champ cristallin, dont l'existence a été démontrée par ailleurs. Dans le cas de  $CeRu_2Si_2$ , il est également possible que des effets de champ cristallin commencent à jouer un rôle non négligeable dans la valeur et la variation de  $R_H$  aux températures supérieures à celle du maximum.

Il serait donc intéressant de voir si la prise en compte de ces effets de champ cristallin modifie de manière sensible les prédictions de la théorie. Il serait également intéressant de développer plus avant des calculs théoriques en tenant compte des effets de la diffusion avec saut latéral (voir chapitre I, § 4), qui, d'après Levy [53] peuvent jouer un rôle non négligeable et en particulier à très basse température. Nous reviendrons sur tous ces points au cours de la discussion de l'effet Hall des alliages  $(Ce,Y)Ru_2Si_2$  et  $(Ce,La)Ru_2Si_2$ .



## CHAPITRE V

# RESISTIVITE ELECTRIQUE EFFET HALL ET MAGNETORESISTANCE DES ALLIAGES $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$



## V-1 RESISTIVITE ELECTRIQUE

### V-1-1 Description des résultats expérimentaux

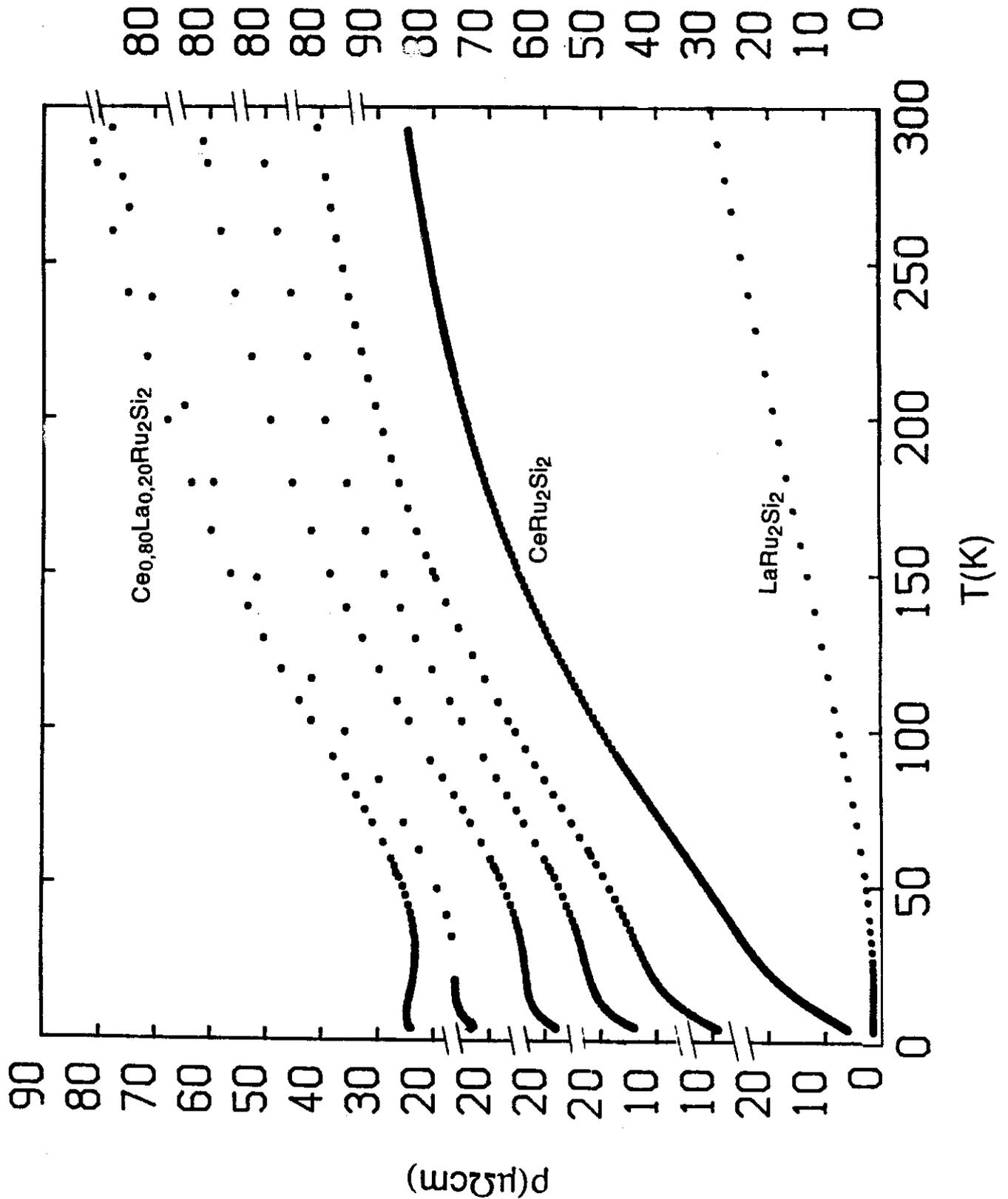
La variation thermique de la résistivité électrique  $\rho(T)$  des alliages du système  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$  est représentée sur les figures V-1a et V-1b. A haute température, l'allure générale des courbes  $\rho(T)$  reste semblable à celle du composé pur et décroît lorsqu'on refroidit entre 300 et 100 K.

Pour des concentrations en lanthane inférieures ou égales à 30 %, la résistivité à 300 K est pratiquement constante, elle vaut  $\approx 85 \pm 5 \mu\Omega \text{ cm}$ . Pour les concentrations supérieures à 30 % de La, la résistivité à l'ambiante,  $\rho(\text{amb})$ , décroît linéairement (fig. V-2) et s'extrapole aux environs de  $25 \mu\Omega \text{ cm}$ , alors que l'expérience donne  $\sim 30 \mu\Omega \text{ cm}$  pour  $LaRu_2Si_2$  ; cependant cette différence est de l'ordre des erreurs sur les dimensions des échantillons, dont la géométrie est souvent irrégulière. Nous avons normalisé ces valeurs de façon que  $\rho(\text{amb})$  soit toujours décroissante, afin de pouvoir soustraire la résistivité de  $LaRu_2Si_2$ , comme on le verra plus loin.

Pour les concentrations  $x \leq 15 \%$ , le comportement de la résistivité demeure semblable à celle du composé pur jusqu'à basse température. Cependant, le changement de régime observé vers 20-25 K dans la courbe de résistivité de ce dernier est repoussé vers les basses températures : il se produit au voisinage de 10-15 K. Dans l'alliage  $Ce_{0,85}La_{0,15}Ru_2Si_2$ , il se produit au voisinage de 10-15 K. Ceci est en accord avec la réduction de la température de Kondo  $T_K$  déduite de la chaleur spécifique [62-65]. Pour les plus fortes concentrations, la résistivité continue de décroître à partir de l'ambiante, mais à partir de  $x = 0,2$ , un minimum de type Kondo apparaît vers 30 K.

A basse température, la résistivité électrique des solutions solides  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$  présente différents types de comportements (figs. V-3a et V-3b) selon la concentration de lanthane. Ceci est particulièrement vrai dans le cas des alliages ordonnés.

On peut observer que, comme celle du composé pur, la résistivité électrique  $\rho(T)$  de l'alliage non ordonné  $Ce_{0,95}La_{0,05}Ru_2Si_2$  varie quasi-linéairement en fonction de la température au-dessous de 10 K puis présente une décroissance quadratique ( $AT^2$ ) au-dessous de 1 K. Chose surprenante, les coefficients A et B sont presque les mêmes que dans  $CeRu_2Si_2$  :  $A = 0,5 \mu\Omega \text{ cmK}^{-2}$  et  $B = 1 \mu\Omega \text{ cmK}^{-1}$ . Nous comparerons plus loin les propriétés de transport de ces deux composés sous champ magnétique.



**Fig. V-1a :** Résistivité électrique des solutions solides  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$ . De bas en haut :  $x = 1$  ;  $x = 0$  ;  $x = 0,05$  ;  $x = 0,10$  ;  $x = 0,13$  ;  $x = 0,15$  et  $x = 0,20$ .

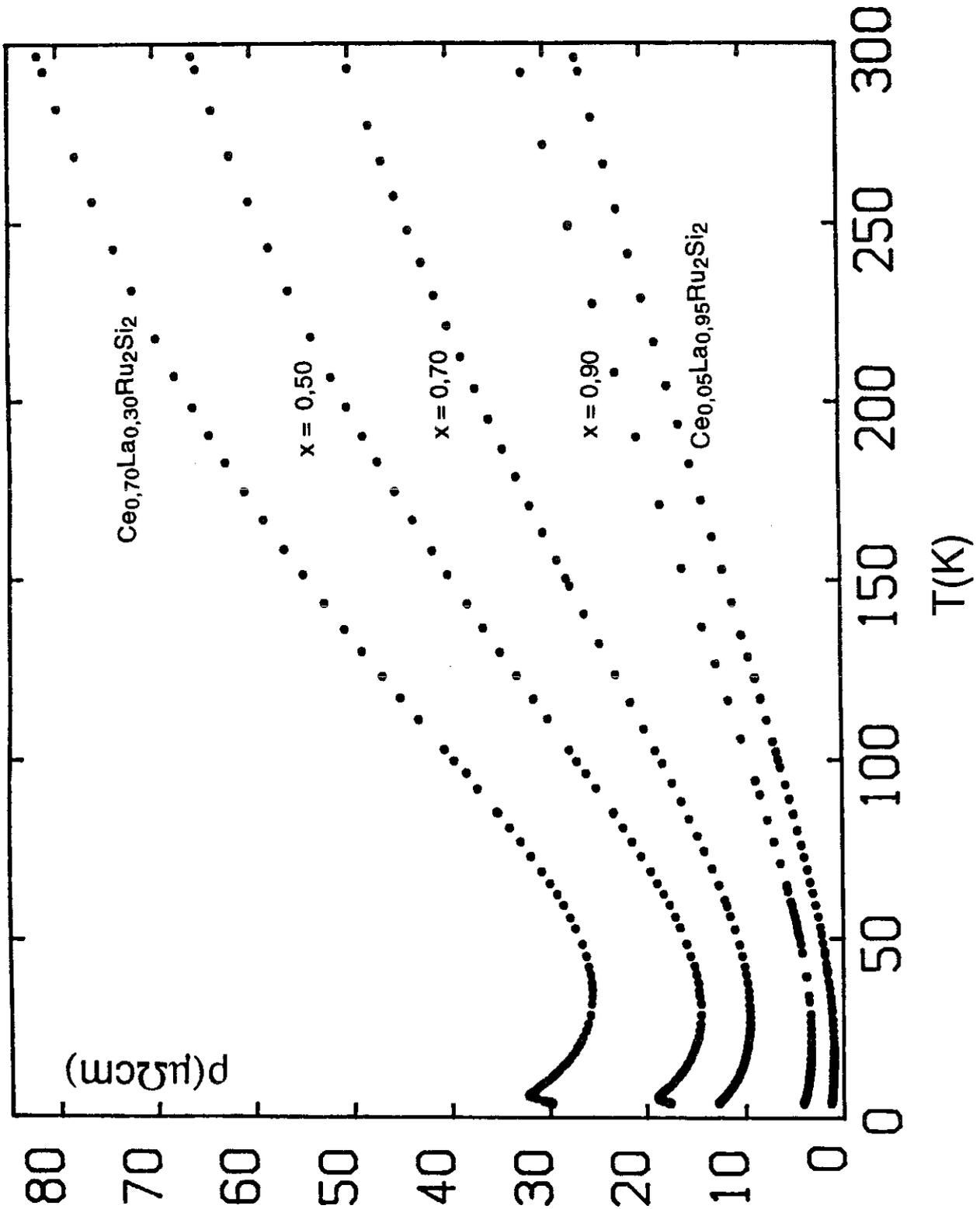
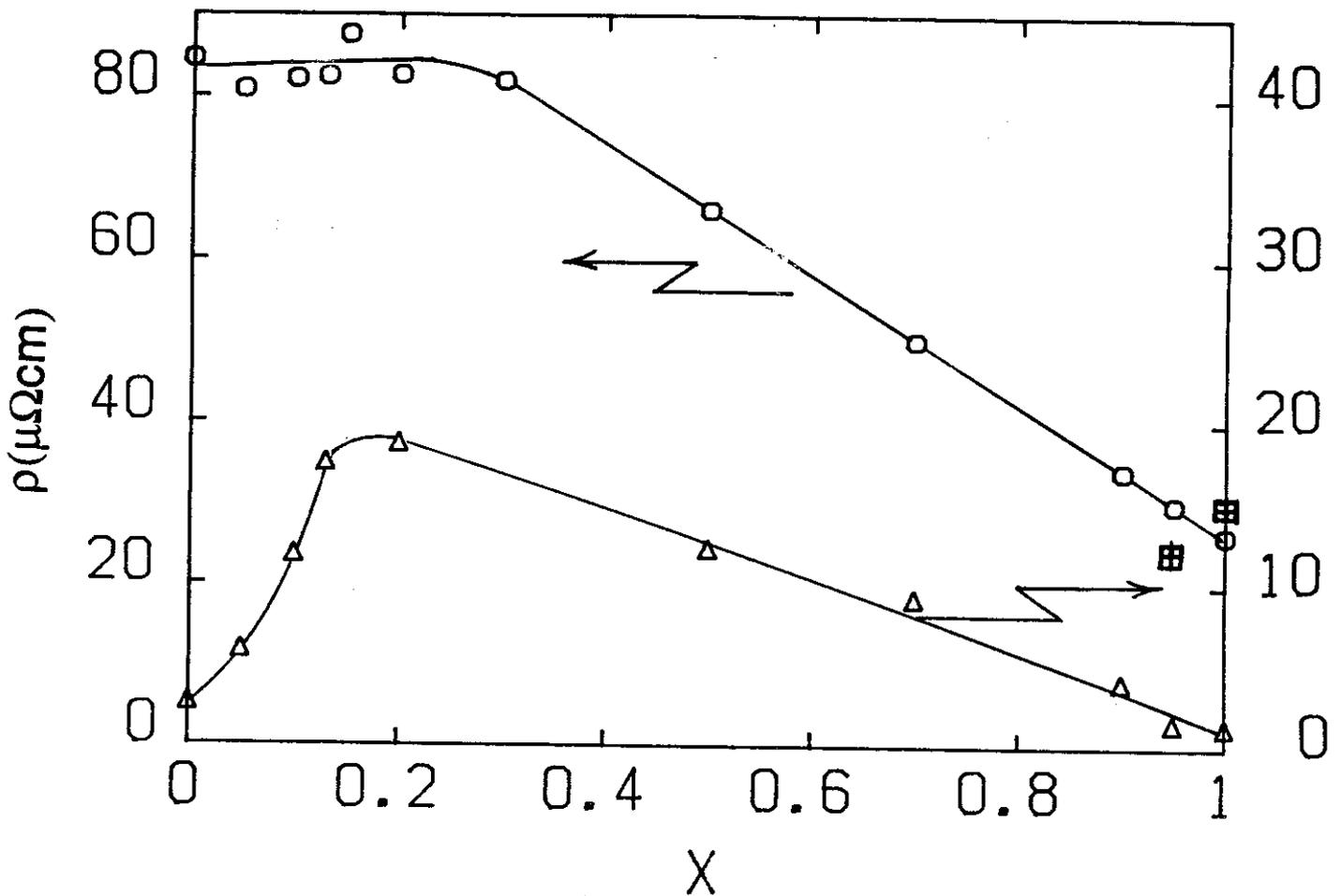


Fig. V-1b : Résistivité électrique des solutions solides  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  (suite). De haut en bas :  $x = 0,30$  ;  $x = 0,50$  ;  $x = 0,70$  ;  $x = 0,90$  et  $x = 0,95$ .

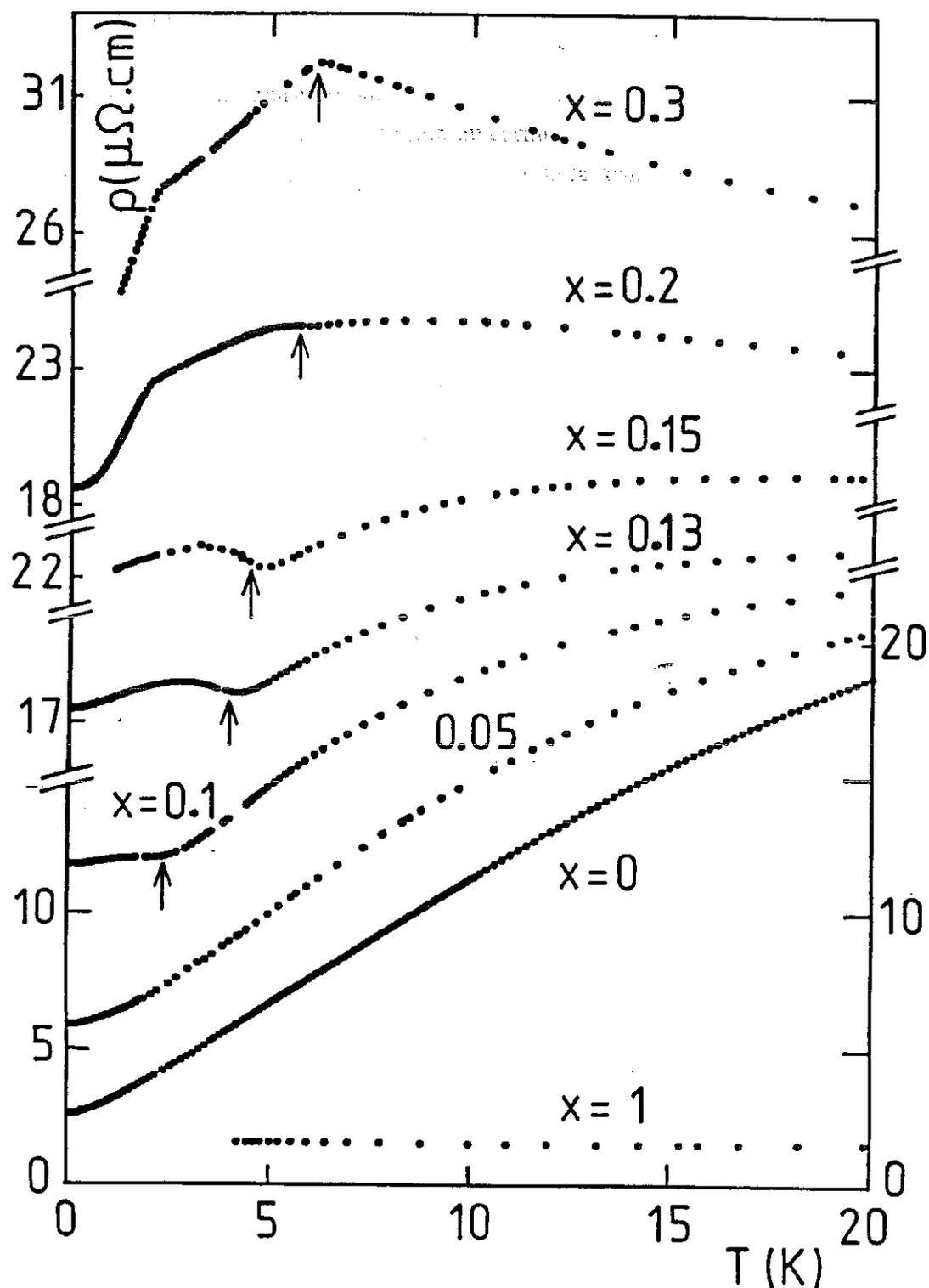


*Fig. V-2 : Variation de la résistivité à l'ambiante (  $\circ$  et  $\boxplus$  ) et de la résiduelle (  $\Delta$  ) dans le système  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$  ; à l'ambiante, les  $\circ$  du côté concentré en La représentent les valeurs expérimentales, tandis que les  $\boxplus$  sont des valeurs normalisées. Pour  $x = 0,15$  et  $0,3$ , la résiduelle est remplacée par la valeur à 1,2 K, température limite de la mesure.*

Pour  $0,10 \leq x \leq 0,15$ ,  $\rho(T)$  continue à décroître au-dessous de 10-15 K, jusqu'à un minimum situé au voisinage de la température d'ordre  $T_N$  ; au-dessous de ce minimum,  $\rho(T)$  présente une légère bosse (fig. V-3a).

Pour  $x \geq 0,30$ , un minimum Kondo apparaît nettement dans les courbes  $\rho(T)$  ; il est suivi d'une remontée logarithmique. Un pic survient juste au-dessus de  $T_N$  puis  $\rho(T)$  décroît dans la phase ordonnée.

Le composé  $Ce_{0,80}La_{0,20}Ru_2Si_2$  représente une situation intermédiaire entre les deux régimes précédents (fig. V-3a).



*Fig. V-3a : Comportement à basse température de la résistivité électrique des alliages  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ . Les flèches verticales représentent la température d'ordre  $T_N$  déduite des mesures de susceptibilité alternative [78] et/ou de chaleur spécifique [62-65,33,68].*

Pour  $0,2 \leq x \leq 0,7$ , la diminution de  $\rho(T)$  au-dessous de  $T_N$  est d'abord relativement lente. Cependant, une rupture de pente apparaît au voisinage d'une température de l'ordre de  $T_N/2 - T_N/3$ , et  $\rho(T)$  décroît ensuite plus rapidement. Ce phénomène se produit pour les concentrations  $x = 0,20$ ,  $x = 0,30$ ,  $x = 0,50$  et  $x = 0,7$ , respectivement à 1,8 K, 2,2 K, 1,8 K et 1 K. L'origine de cette seconde anomalie sera discutée plus loin.

La résistivité des solutons solides  $Ce_{0,10}La_{0,90}Ru_2Si_2$  et  $Ce_{0,05}La_{0,95}Ru_2Si_2$  présente un comportement de type alliage dilué Kondo à basse température. Dans celle de  $Ce_{0,10}La_{0,90}Ru_2Si_2$ , un maximum se produit vers 1 K, c'est-à-dire au voisinage de la

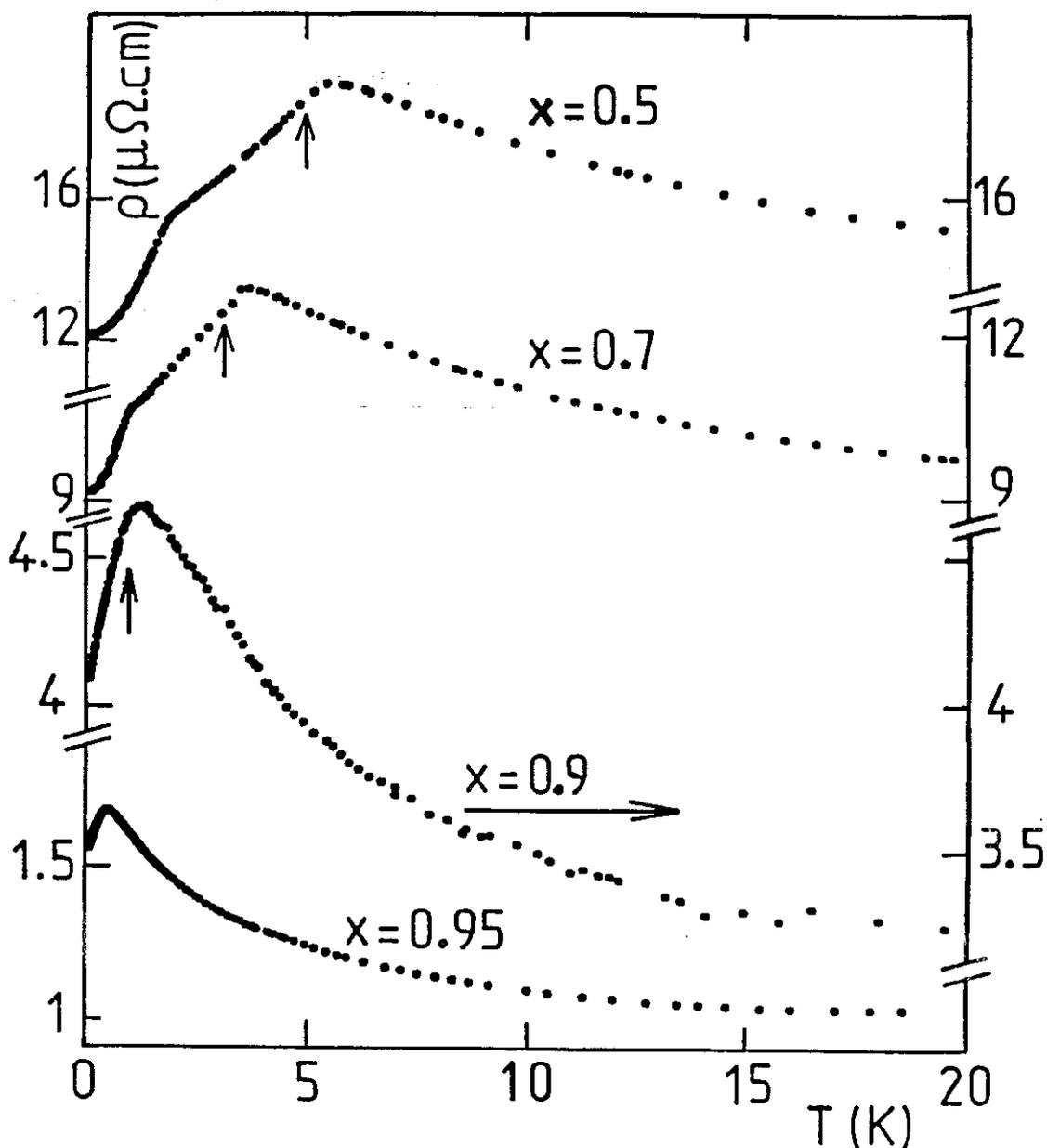


Fig. V-3b : Résistivité des alliages  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$  à basse température (suite).

température de 0,9 K à laquelle un maximum de chaleur spécifique a été observé [62], où l'on peut donc supposer qu'un ordre magnétique s'établit. La résistivité du composé  $Ce_{0,05}La_{0,95}Ru_2Si_2$  montre le même comportement que celle de  $Ce_{0,10}La_{0,90}Ru_2Si_2$ , avec un maximum situé cette fois au voisinage de 500 mK. Dans les deux cas, ce maximum est suivi d'une décroissance rapide lorsque  $T \rightarrow 0$ . L'anomalie à  $T_N/2 - T_N/3$  a disparu. Ceci suggère que l'ordre magnétique, s'il existe, est peut-être de nature différente de celui observé pour  $x \leq 0,8$ . On peut également avoir affaire à des systèmes non ordonnés à longue distance, mais présentant un effet magnétique de type verres de spins. Il serait intéressant d'effectuer d'autres types de mesures pour trancher entre ces différentes possibilités.

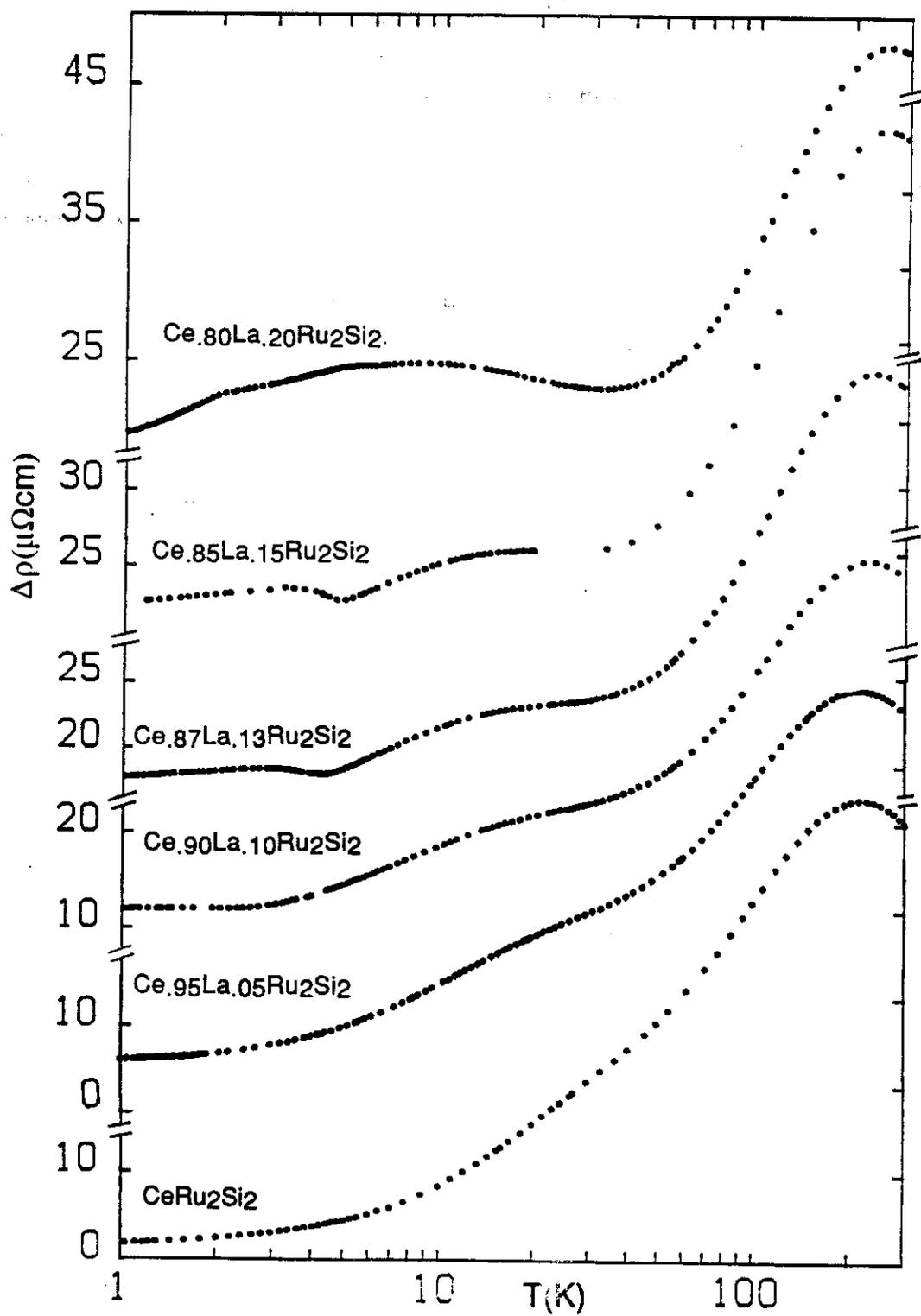
### V-1-2 Discussion de la variation de la résistivité au-dessus de $T_N$ . Valeur de $T_K$

Nous avons soustrait aux courbes  $\rho(T)$  des alliages  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$  la contribution électron-phonon  $\rho_{ph}$ , estimée égale ( $\rho_{totale} - \rho_0$ ) de la matrice métallique  $LaRu_2Si_2$ , ce qui donne  $\rho_m$  due au cérium à une constante additive près :  $\rho_0$  due aux défauts, qui est faible et que l'on peut supposer invariante avec  $T$ . Cette procédure est nécessitée par le fait que  $\rho_0$  des alliages peut différer de (même être éventuellement inférieure à)  $\rho_0$  de la matrice. Comme l'a montré la figure V-2, la valeur à l'ambiante de la résistivité du composé  $LaRu_2Si_2$  mesurée expérimentalement est de l'ordre de  $30 \mu\Omega \text{ cm}$ , c'est-à-dire supérieure à celles des composés  $Ce_{0,10}La_{0,90}Ru_2Si_2$  et  $Ce_{0,05}La_{0,95}Ru_2Si_2$ . Pour ces derniers, nous avons dû choisir des valeurs de  $\rho(\text{amb})$ , normalisées, ainsi qu'une valeur de  $\rho_{ph}$  correspondant à  $\rho(\text{amb})$  extrapolée pour  $LaRu_2Si_2$  qui est de l'ordre de  $25 \mu\Omega \text{ cm}$ .

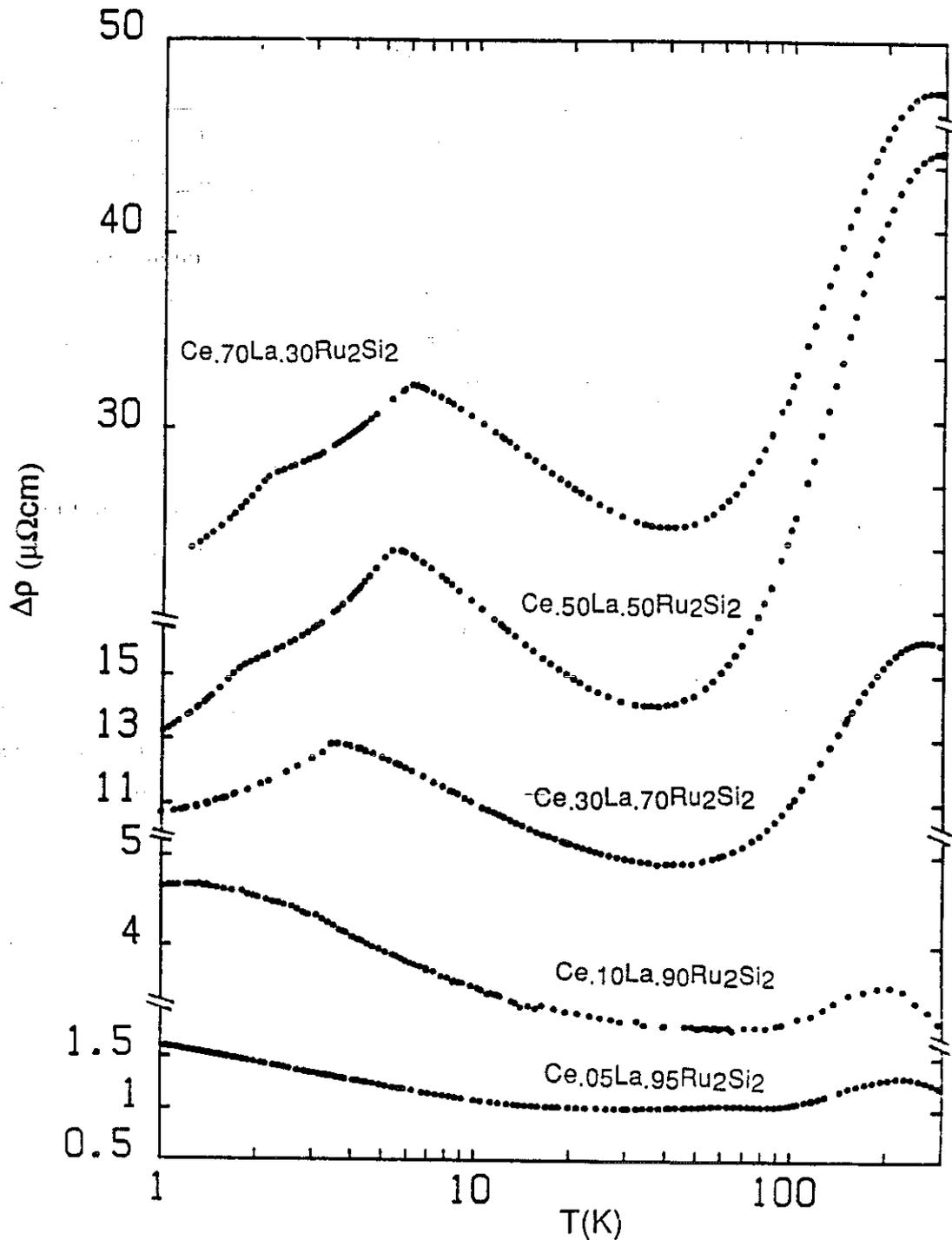
Les figures V-4a et V-4b représentent les variations de  $[\rho(T) - \rho_{ph}(T)]$  pour l'ensemble des alliages, en coordonnées semi-log. Toutes les courbes montrent un maximum vers 200 K suggérant que l'énergie du champ cristallin de 220 K déduite de la chaleur spécifique reste sensiblement inchangée lorsqu'on substitue du lanthane au cérium. Pour  $x \geq 0,2$ , on voit ensuite apparaître un minimum vers 30 K, au-dessous duquel on observe une variation en  $-\text{Log}T$ , jusqu'au voisinage du pic ou du maximum associé à l'ordre. Pour  $x \geq 0,3$ , la pente de la variation logarithmique ( $\partial\rho/\partial\text{Log}T$ ) au-dessous de 30 K (\*) est proportionnelle à la concentration  $c$  de Ce, comme le montre la figure V-5. Normalisée à une impureté, cette pente est égale à  $-0,07 \mu\Omega \text{ cm}/\% \text{ Ce}$ .

---

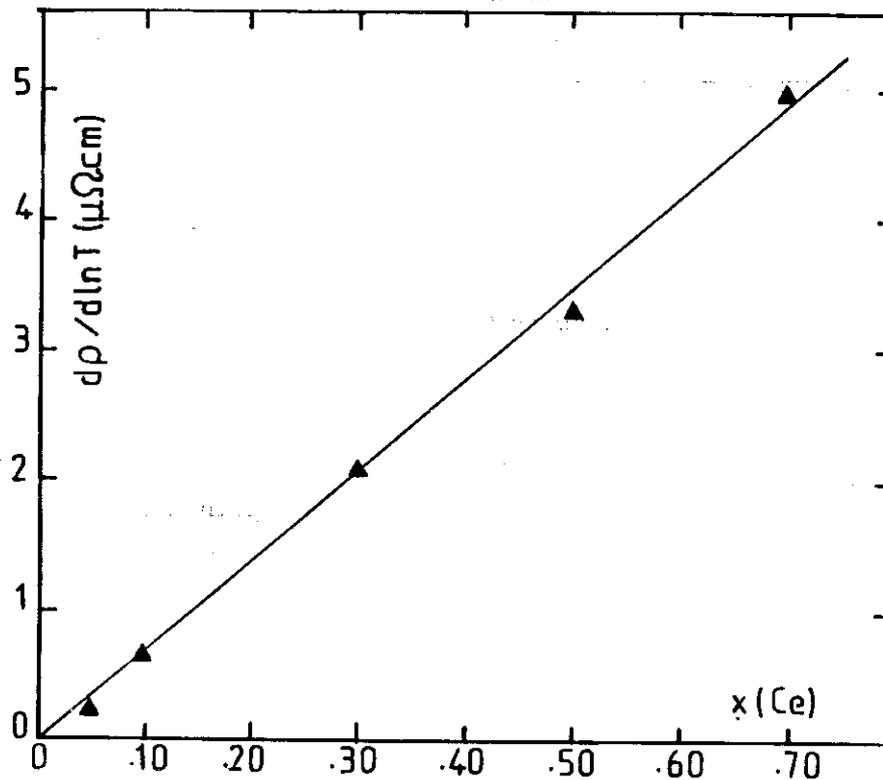
\* On notera qu'elle ne dépend pas de la normalisation adoptée pour  $\rho_{ph}$  car, dans cette région de température,  $\rho(La)$  est très peu dépendante de  $T$ .



*Fig. V-4a : Résistivité des alliages  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  en fonction du logarithme de la température, après soustraction de la contribution des phonons déduite de  $\rho$  de  $\text{LaRu}_2\text{Si}_2$ .*



*Fig. V- 4b : Résistivité des systèmes  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  en fonction du logarithme de la température, après soustraction de la contribution des phonons déduite de la résistivité de  $\text{LaRu}_2\text{Si}_2$  (suite).*



**Fig. V-5 :** Variation de la pente logarithmique de la résistivité en fonction de la concentration de cérium.

Il est difficile, à partir de ces seuls résultats, de déterminer la température de Kondo. On sait d'après les mesures de chaleur spécifique que  $T_K$  décroît lorsque l'on remplace du cérium par du lanthane. Cependant, ces mesures n'ont permis d'estimer  $T_K$  que pour des concentrations en La inférieures à 50 % [62-65]. Le fait que pour  $x \geq 0,3$  ( $c \leq 70$  % de Ce), la pente log soit indépendante de  $c$  pourrait indiquer que  $T_K$  devient indépendant de la concentration tout comme le rapport  $T_N/c$ . Cependant, l'apparition d'un ordre, en ne permettant pas d'accéder à la limite unitaire à  $T = 0$  de la résistivité Kondo, nous empêche du même coup de confirmer ou d'infirmer cette supposition.

### V-1-3 Discussion de la résistivité au-dessous de $T_N$

Pour  $x = 0,10, 0,13$  et  $0,15$ , on peut comparer le comportement de la résistivité électrique à basse température avec celui des composés,  $URu_2Si_2$  [86] (figure V-6) et  $U(Pt_{0,95}Pd_{0,05})_3$  [87] (figure V-7). En effet, la résistivité présente dans le premier cas une nette remontée et dans le second une légère "bosse" juste au-dessous de la température d'ordre  $T_N$ ; chacune est suivie d'une décroissance lorsque  $T$  tend vers 0.

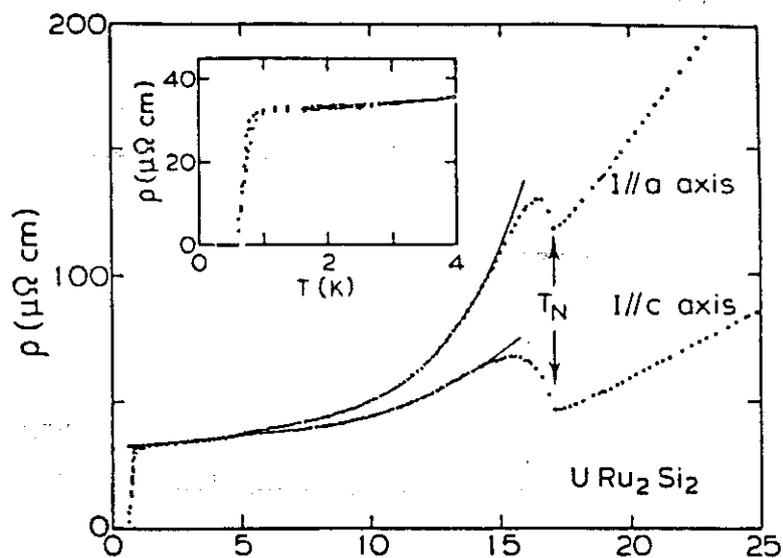


Fig. V-6 : Comportement à basses températures de la résistivité électrique du composé  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  monocristallin, d'après [86].

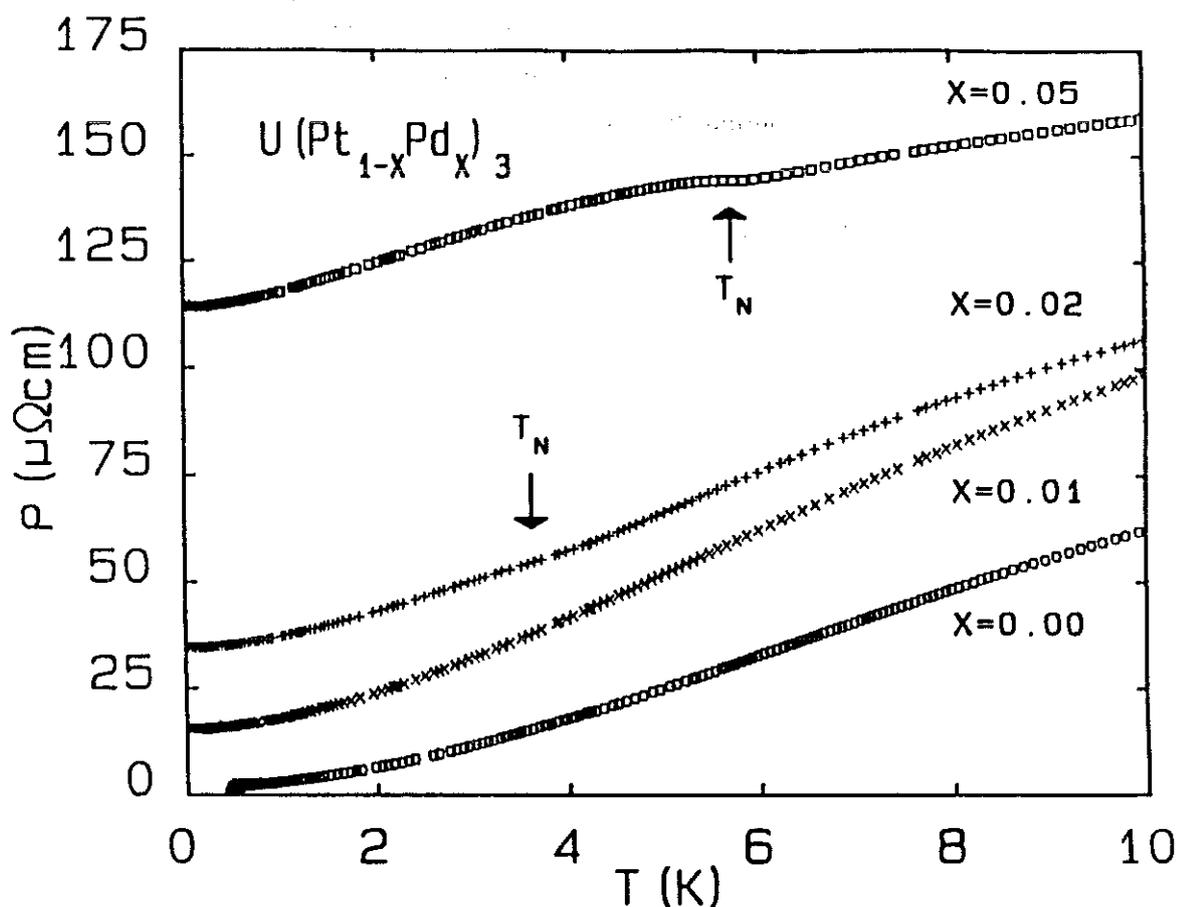


Fig. V-7 : Résistivité électrique en-dessous de 10 K des solutions solides  $\text{U}(\text{Pt}_{1-x}\text{Pd}_x)_3$  d'après [87].

Dans  $URu_2Si_2$ , cet effet est dû à l'apparition d'une onde de densité de spins qui provoque l'ouverture d'un gap sur une partie de la surface de Fermi, comme le montre la réduction du terme  $\gamma$  de la chaleur spécifique. La variation de  $\rho(T)$  dans cette gamme de température a été décrite par la somme de deux termes : le premier, quadratique, caractéristique du régime liquide de Fermi ; le second faisant intervenir l'énergie du gap ( $\Delta$ ) :

$$\rho(T) = \rho_0 + bT (1 + 2T/\Delta) \exp(-\frac{\Delta}{T}) + cT^2$$

où  $b$  et  $c$  sont des constantes. L'anomalie de  $\rho(T)$  de  $U(Pt_{0,95}Pd_{0,05})_3$  a été attribuée [86] à un effet analogue.

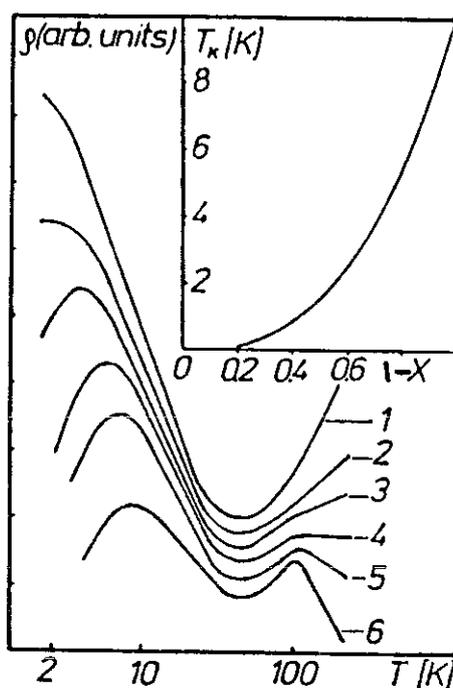
Etant donnée la gamme de température limitée dans laquelle nous observons ce phénomène dans nos composés, il nous est difficile de vérifier si une telle loi est en accord avec les points expérimentaux.

Ainsi que nous l'avons mentionné au chapitre II, la structure magnétique en champ nul des alliages  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$  avec  $x = 0,08, 0,10, 0,13$  et  $0,20$ , a été déterminée récemment par Quézel et coll. [76] par diffraction neutronique sur des monocristaux. Les moments magnétiques sont dirigés selon l'axe  $c$  et présentent une modulation incommensurable le long de l'axe  $a$ . La variation de l'amplitude des moments en fonction de la température a été reproduite sur la figure II-16. Si l'on se reporte à cette figure, on remarque que dans le cas du composé  $Ce_{0,80}La_{0,20}Ru_2Si_2$ , il apparaît un harmonique d'ordre 3 (représenté par les ronds noirs), traduisant le fait que la modulation n'est plus sinusoïdale quand  $T$  décroît. Ce terme présente un accroissement au voisinage de  $1,8$  K, c'est-à-dire près de la température où la résistivité électrique montre la seconde cassure. Par contre, l'harmonique 3 n'a pas été observé dans les trois autres composés ( $x = 0,08, 0,10$  et  $0,13$ ), dont nous avons vu plus haut que la résistivité électrique (mesurée seulement pour les deux derniers) présente un autre type de comportement.

Des mesures récentes de [88] effectuées au réacteur Orphée (LLB Saclay) sur les monocristaux de  $Ce_{0,70}La_{0,30}Ru_2Si_2$ ,  $Ce_{0,50}La_{0,50}Ru_2Si_2$  et  $Ce_{0,20}La_{0,80}Ru_2Si_2$  (précédemment utilisés pour les mesures d'aimantation citées au chapitre II) ont montré que dans ces composés la structure magnétique reste incommensurable avec un vecteur de propagation qui ne varie pratiquement pas en fonction de la concentration. Pour le premier de ces composés ( $x = 0,3$ ), on observe à nouveau le développement de l'harmonique d'ordre 3 au-dessous de  $T_N$ , mais il semble en outre qu'un changement de régime (également décelable sur l'intensité du fondamental) se produise au voisinage de la température où s'observe la cassure de la résistivité ( $\approx 2$  K pour cette concentration).

### V-1-4 Comparaison avec d'autres systèmes

Des mesures de transport ont été faites dans les systèmes  $Ce_{1-x}La_xCu_2Ru_2Si_2$  par Moshchalkov et coll. [74]. La substitution du cérium par le lanthane dans ces composés conduit aussi à un changement de comportement de la résistivité électrique, comme le montre la figure V-8.



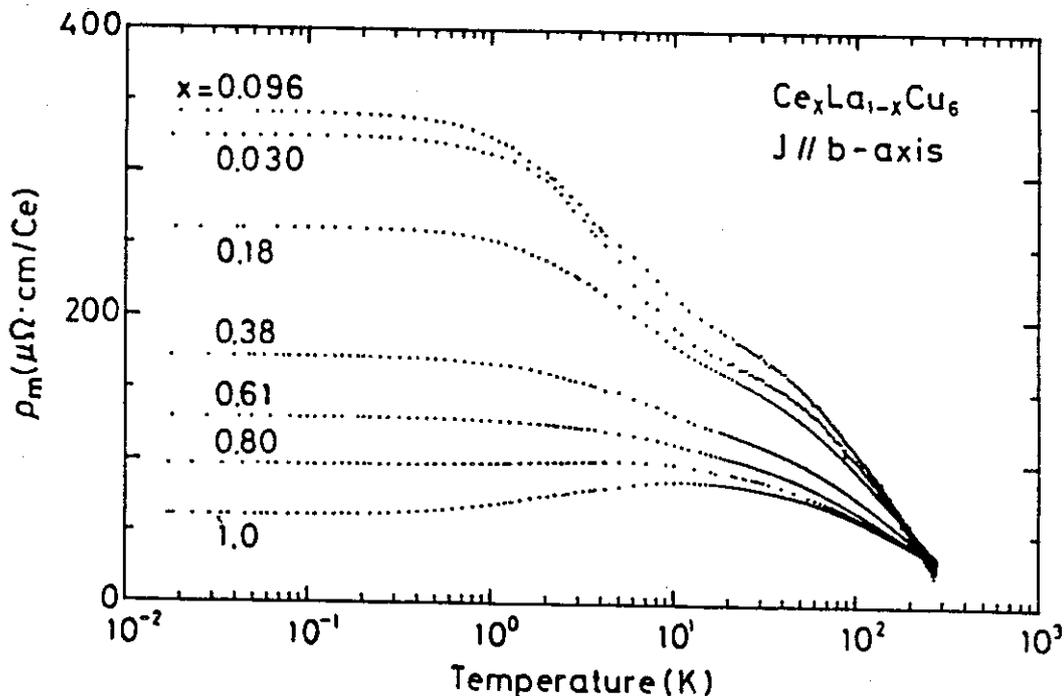
**Fig. V-8 :** Résistivité électrique des alliages du système  $Ce_{1-x}La_xCu_2Si_2$  avec  $x$  : (1) 0,8 ; (2) 0,6 ; (3) 0,5 ; (4) 0,3 ; (5) 0,1 ; (6) 0. L'encart montre la variation de la température Kondo en fonction de la concentration (d'après la réf. [74]).

Le maximum de résistivité de basse température, qui est voisin de 10 K pour le composé pur  $CeCu_2Si_2$ , est repoussé vers les basses températures lorsque la concentration de lanthane augmente. Ce maximum n'est pas relié à une transition magnétique puisque, dans cette gamme de température, la susceptibilité suit une loi paramagnétique. Cependant une transition de nature inconnue, mais vraisemblablement de type verre de spins, apparaît vers quelques kelvin dans les alliages les plus concentrés en lanthane. Le second maximum à haute température ( $T \approx 110$  K) n'est observable qu'aux fortes concentrations de cérium. Il est attribué à la diffusion inélastique Kondo par les niveaux excités de champ cristallin. Les auteurs de la réf. [74] ont cherché à déduire la température de Kondo  $T_K$  de leurs alliages à partir des courbes  $\rho_m(T) = \rho(T) - \rho_{ph}(T)$ . Le résultat obtenu dépend fortement de la concentration (voir l'encart de la figure V-8) et demanderait donc à être confirmé par d'autres types de mesures.

Onuki et coll. [75] ont effectué des mesures de transport sur le système  $Ce_xLa_{1-x}Cu_6$  et notamment des mesures de résistivité (figure V-9a). Dans ce système, contrairement à ce que l'on observe dans  $(Ce,La)Ru_2Si_2$ , les pentes logarithmiques par Ce augmentent linéairement avec la concentration de lanthane. Ceci est vrai pour la pente de haute température, comme pour celle de basse température quand elle existe (les deux étant séparées par un épaulement attribué à l'effet du champ cristallin). Il s'ensuit que la résiduelle par Ce est elle aussi linéaire avec la concentration (fig. V-9b).

Une variation de la résistivité résiduelle en  $c(a + bc)$  a été également observée dans les systèmes  $(Ce,La)InCu_2$  et  $(Ce,Y)InCu_2$  [89] (figure V-10), et analysée en termes de corrélations magnétiques à deux sites.

Dans le système  $(Ce,La)Ru_2Si_2$  au contraire, la résistivité par cérium ne varie pratiquement pas entre 10 et 70 % de Ce, non seulement à l'ambiante, mais aussi à basse température (bien que la limite unitaire ne soit pas atteinte en raison de l'apparition de l'ordre magnétique). Ceci indique que le régime "à une impureté" est moins affecté par les couplages magnétiques dans cette série d'alliages que dans les familles  $(Ce,La)Cu_6$ ,  $(Ce,La)InCu_2$  et  $(Ce,Y)InCu_2$ .



**Fig. V-9a :** Variation de la résistivité magnétique normalisée par atome de cérium en fonction de la température dans le système  $Ce_xLa_{1-x}Cu_6$ , d'après [75] (dans cette figure,  $x$  est la concentration de cérium).

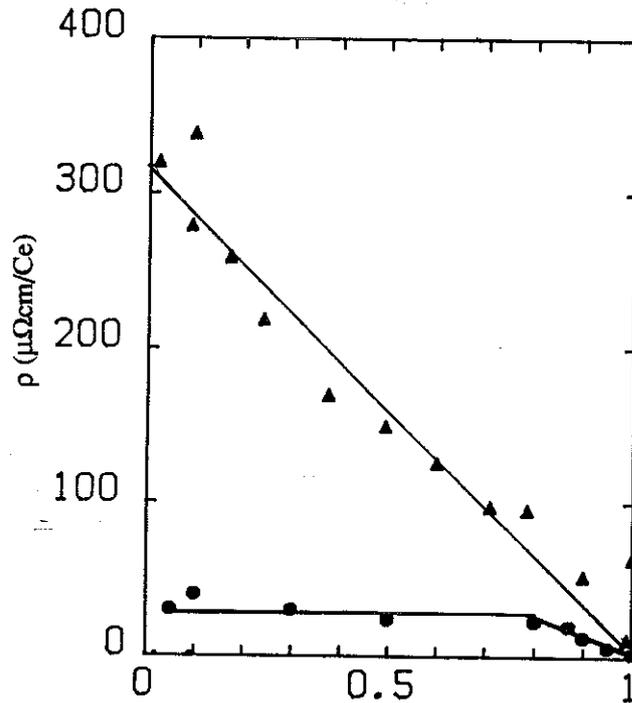


Fig. V-9b : Dépendance de la résistivité résiduelle par atome de cérium en fonction de la concentration de cérium dans les systèmes  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Cu}_6$  ( $\blacktriangle$ ), d'après [75], et  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  ( $\bullet$ ), nos résultats.

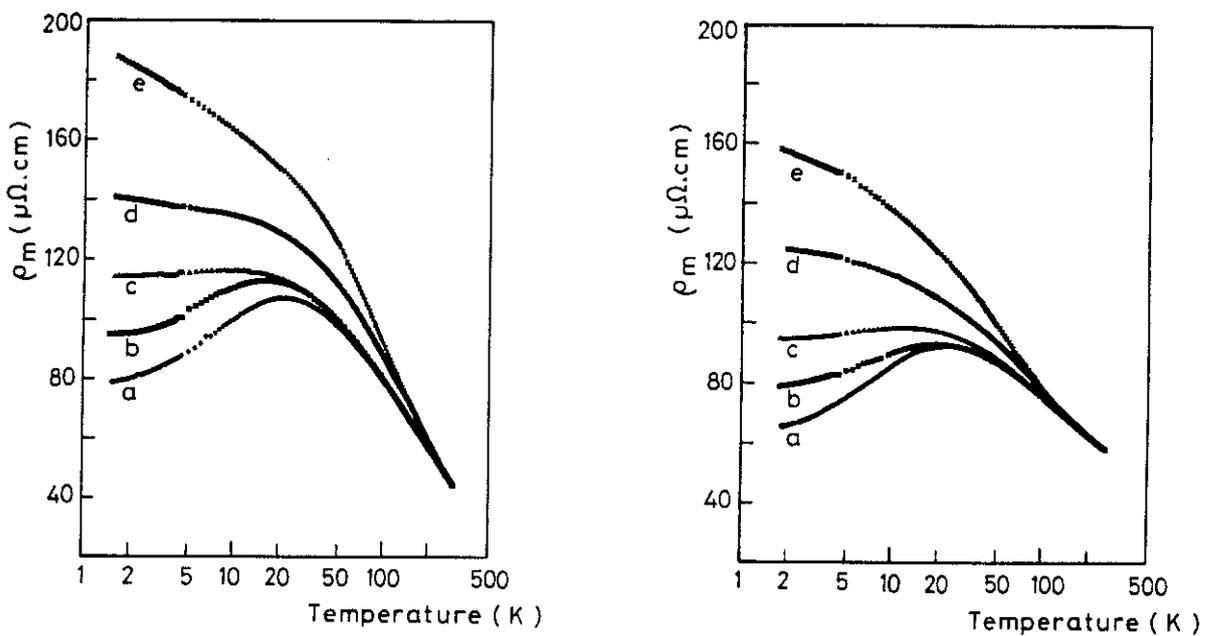


Fig. V-10 : Résistivité des alliages  $\text{La}_{1-x}\text{Ce}_x\text{InCu}_2$  (à gauche), avec : a :  $x = 1$ ; b :  $x = 0,95$  ; c :  $x = 0,75$  ; d :  $x = 0,5$  ; e :  $x = 0,25$  et  $\text{Y}_{1-x}\text{Ce}_x\text{InCu}_2$  (à droite), avec les mêmes concentrations, sauf b :  $x = 0,9$  ; d'après [89].

## V-2 COEFFICIENT DE HALL DES SYSTÈMES $(\text{Ce},\text{M})\text{Ru}_2\text{Si}_2$ AVEC $\text{M} = \text{Y}$ OU $\text{La}$

### V-2-1-Alliages $\text{Ce}_{1-y}\text{Y}_y\text{Ru}_2\text{Si}_2$

La figure V-11 représente la variation avec la température du coefficient de Hall  $R_H$  des composés  $\text{Ce}_{1-y}\text{Y}_y\text{Ru}_2\text{Si}_2$  avec  $y = 0,05$  et  $0,10$  (monocristaux) et  $y = 0,10$  et  $0,20$  (polycristaux). Les mesures sur les échantillons polycristallins ont été réalisées par Fert et coll. La courbe notée  $y = 0$  est celle mesurée sur le monocristal (chapitre IV).

On constate que la substitution de l'yttrium a pour effet principal d'augmenter la température  $T_{\text{max}}$  du maximum tout en réduisant l'amplitude de ce dernier. L'allure générale des résultats est très similaire à celle des courbes sous pression de la figure IV-2, ce qui correspond bien à l'idée d'une "pression chimique" appliquée au composé.

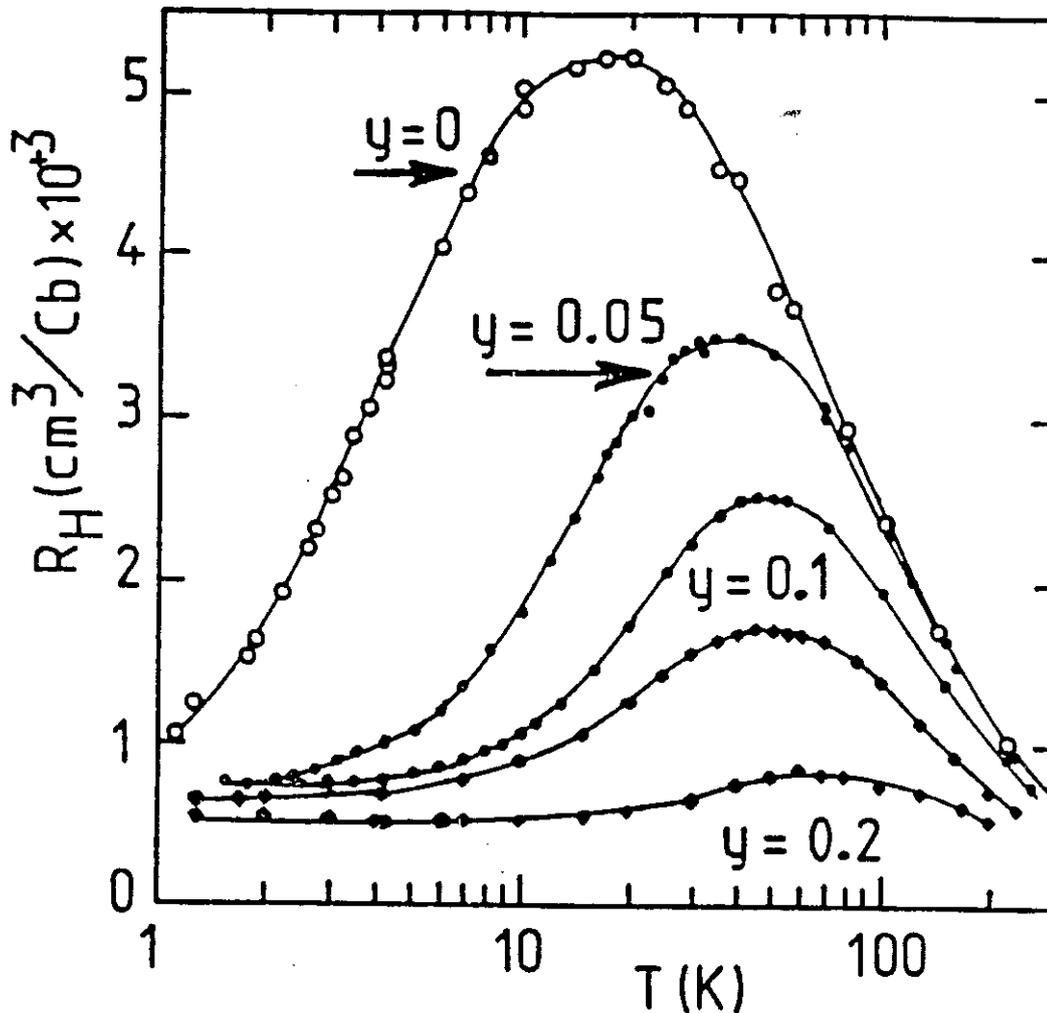


Fig. V-11 : Variation du coefficient de Hall  $R_H(T)$  des composés  $\text{Ce}_{1-x}\text{Y}_y\text{Ru}_2\text{Si}_2$   
les trois courbes du haut : monocristaux ; les deux du bas : polycristaux.

Nous avons regroupé dans le tableau ci-dessous (Tableau V-1) les valeurs expérimentales des températures des maxima ainsi que leurs amplitudes.

**Tableau V-1**

Concentration y d'yttrium	$T_{\max}$ (K)	$10^3 R_H$ (cm <sup>3</sup> /Cb)
0 (mono)	$\approx 18$	5,2
0,05 (mono)	$\approx 40$	3,5
0,10 (mono)	$\approx 50$	2,536
0,10 (poly)	$\approx 50$	1,735
0,20 (poly)	$\approx 70$	0,851

On remarque que pour  $y = 0,1$ , l'amplitude maximale de  $R_H$  est plus faible pour l'échantillon polycristallin que pour le monocristallin, bien que la valeur de  $T_{\max}$  soit sensiblement la même.

L'augmentation de  $T_{\max}$  avec la concentration d'yttrium est en accord qualitatif avec l'augmentation de la température de Kondo  $T_K$  déduite des mesures de chaleur spécifique [62,65]. A haute température, dans le régime de diffusion incohérente, le coefficient de Hall des différents composés est peu sensible à l'effet de substitution et toutes les courbes se rejoignent, comme dans le cas de l'application d'une pression sur le composé pur (chapitre IV).

Il est intéressant de remarquer que l'augmentation d'un facteur  $\approx 2$  de  $T_{\max}$  entre  $y = 0$  et 0,05 est comparable à celle de  $H_M$  (8 T et 15 T [62]) déduite des maxima de magnétorésistance et de tension de Hall. Nous avons vu qu'il n'en allait pas de même dans le cas des mesures sous pression où la variation de  $T_{\max}$  était beaucoup moins rapide que celle des autres paramètres physiques (cf. §-IV-2). Ceci conduirait donc à définir à partir de  $T_{\max}$ , une valeur beaucoup plus grande de la "pression chimique" que celle ( $\approx 4$  kbar) déduite des résultats des mesures des propriétés de transport en grand champ. Notons encore que  $H_M$  est seulement de 13 T d'après les mesures d'aimantation.

On constate ainsi les limites de l'équivalence entre l'application de pression sur le composé pur et l'effet de pression chimique. On verra plus loin (§V-4) que d'autres désaccords existent entre les valeurs de  $H_M$  et les maxima de  $\rho_H(H)$  et de magnétorésistance dans le cas des alliages  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ , dans lesquels on obtient un effet de "pression négative".

A très basse température, le régime quadratique de  $R_H(T)$  s'étend sur une gamme de température plus large à mesure que  $y$  augmente et le coefficient du terme en  $T^2$  est réduit. Ce comportement est le même que dans le composé pur sous pression (voir chapitre IV). Cependant, la dépendance en concentration de la résiduelle  $R_H(T \rightarrow 0)$  est faible, davantage semble-t-il que sous pression.

### V-2-2 Alliages $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ : résultats expérimentaux

Les mesures ont été effectuées sur des échantillons monocristallins (certains étant les mêmes que pour la résistivité) par la méthode de Van der Pauw (voir chapitre III). Le champ magnétique, inférieur ou égal à 2,5 T (pour obtenir la pente initiale de la tension de Hall), était appliqué selon l'axe  $c$  et on a fait varier la température de 1,5 K jusqu'à l'ambiante. Le coefficient  $R_H(T)$  de tous les alliages, représenté sur les figures V-12a et V-12b, est anormalement élevé et positif sur toute cette gamme de température. Cette dernière est portée sur une échelle logarithmique.

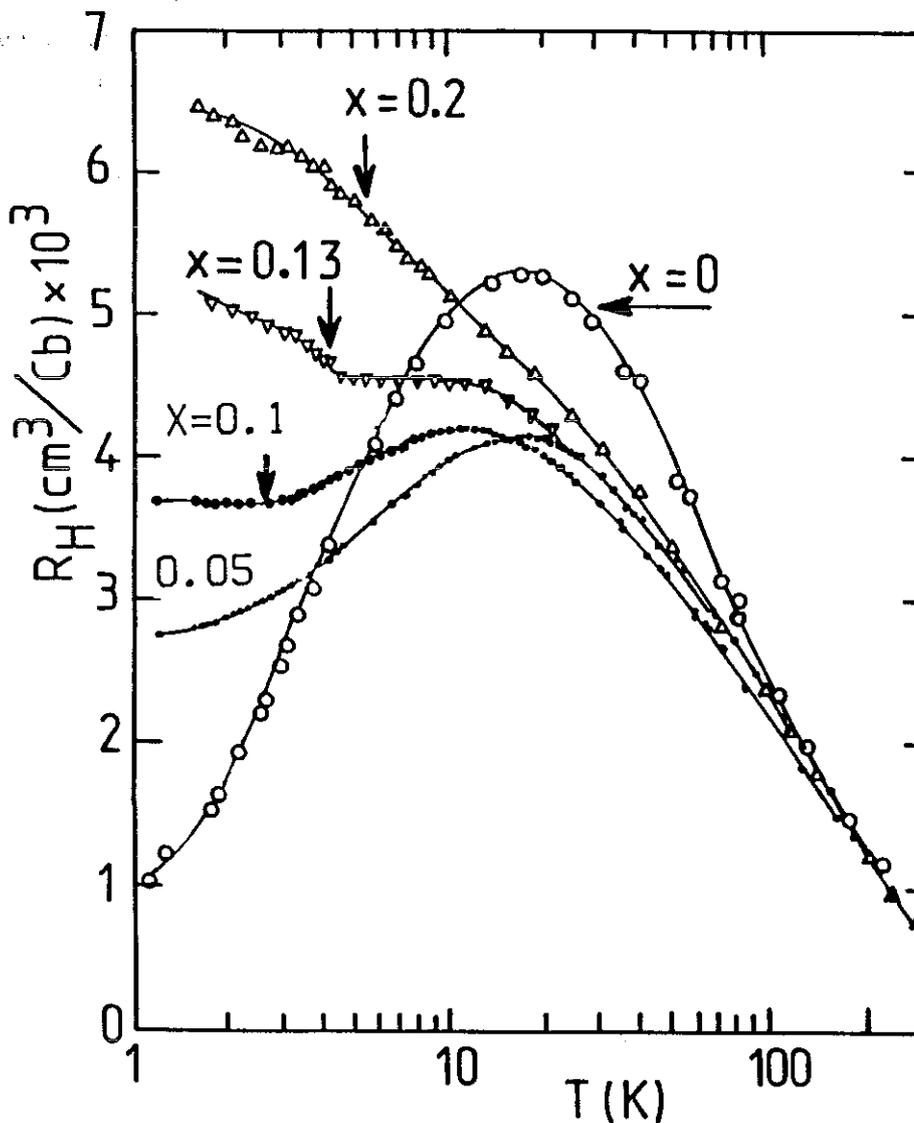
A basse concentration de lanthane ( $x \leq 0,13$ ) nous observons un décalage du maximum de  $R_H$  vers les basses températures : le maximum est observé à  $T_{max} \approx 12$  K pour le composé  $Ce_{0,87}La_{0,13}Ru_2Si_2$ . Ceci est en bon accord avec le déplacement vers les basses températures de l'épaule de la résistivité décrit plus haut (§ V-1-1, figs-V-1a et V-3a) et du maximum de pouvoir thermoélectrique [69], et doit correspondre, d'après les mesures de chaleur spécifique [62-65], à une réduction de  $T_K$ , ainsi que nous l'avons rappelé précédemment. Pour une concentration de 20% de lanthane, ce maximum disparaît, masqué par une très forte augmentation de la résiduelle.

Pour  $x > 0,3$ , nous observons (fig. V-12b) une seconde anomalie au voisinage de 30-50 K. Cette dernière se caractérise par une bosse, dont la position change légèrement en fonction de  $x$ , suivie d'une chute plus rapide vers les hautes températures. Bien qu'elle se manifeste dans la même gamme de température que le maximum trouvé pour  $x = 0$  et les faibles concentrations de La, cette anomalie a probablement une origine physique différente. On pourrait l'attribuer à l'effet du champ cristallin sur le multiplet  $J = 5/2$  du  $Ce^{3+}$ . Cependant, la position de l'anomalie ne correspond pas à la valeur du "splitting" (220 K) tirée de la chaleur spécifique.

A haute température,  $R_H(T)$  diminue continûment quand  $T$  augmente mais reste positif jusqu'à l'ambiante. Au-dessus de 70 K, les courbes sont très voisines pour les faibles concentrations de lanthane ( $0 \leq x \leq 0,2$ ).

Si l'on se tourne vers les basses températures, on remarque que le régime quadratique observé au-dessous de 3 K pour  $R_H$  dans le composé pur (voir chapitre IV) existe également dans l'alliage à 5 % de La, de même que la résistivité des deux composés présente un terme en  $T^2$  au-dessous de 1 K.

Pour les concentrations plus élevées, où apparaît l'ordre magnétique, une anomalie se produit juste au-dessous de la température de Néel. Les valeurs de  $T_N$ , (tirées des mesures de susceptibilité alternative [78], sauf pour  $x = 0,1$  et  $0,13$  et où elles sont déduites de la chaleur spécifique [33,68]), sont indiquées par une flèche verticale sur les figs V-12a et V-12b. Elles se situent dans notre gamme de mesure pour  $0,1 \leq x \leq 0,7$ .



**Fig. V-12a :** Variation du coefficient de Hall  $R_H$  des alliages  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$  en fonction de la température. Les flèches indiquent la température d'ordre d'après les mesures de susceptibilité alternative [78] ou de chaleur spécifique [33,68].

La forme de l'anomalie vers  $T_N$  dépend de la concentration en lanthane. Pour  $x = 0,10$  et  $0,13$ , elle se traduit par une rupture de pente et une remontée de  $R_H$  juste au-dessous de  $T_N$ , alors que pour  $0,3 \leq x \leq 0,7$ , elle est caractérisée par un pic. Ces différents régimes correspondent exactement à ceux qui ont été observés en résistivité (§ V-1-3). Pour le composé  $Ce_{0,80}La_{0,20}Ru_2Si_2$ , l'anomalie autour de  $T_N$  est difficile à observer, car  $R_H$  continue de croître lorsque  $T < T_N$ . La température limitée de notre gamme de mesure ( $\approx 1,5$  K), ainsi que la dispersion des points expérimentaux font que nous n'observons pas d'anomalie à la température ( $T_N/2 - T_N/3$ ) à laquelle se produit une seconde cassure dans la résistivité.

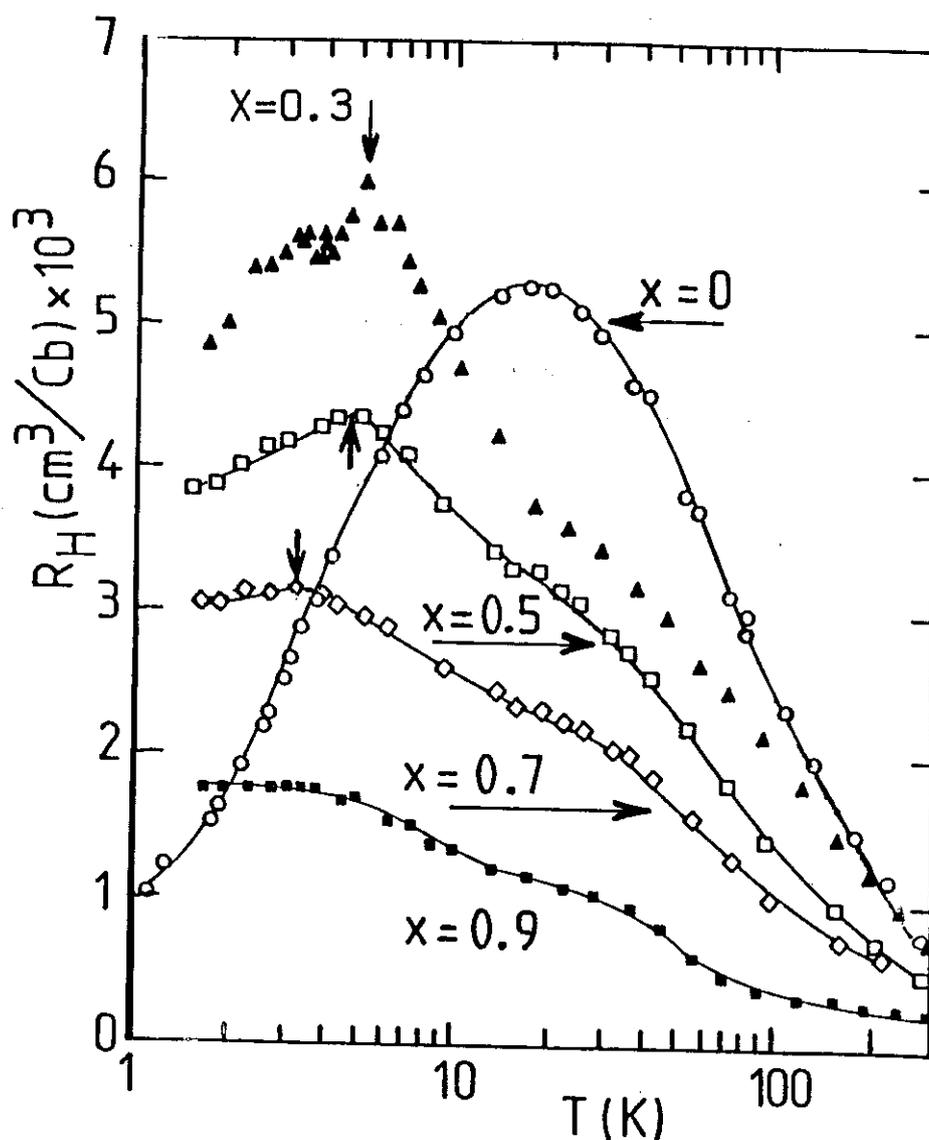


Fig. V-12b : Variation de  $R_H$  en fonction de  $T$  des alliages  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$  (suite).

De plus, la résiduelle n'est pas réellement atteinte ; cependant, on peut estimer que la valeur de  $R_H(1,5\text{ K})$  en est assez proche. La variation de cette dernière est tracée sur la figure V-13, en fonction de la concentration  $c$  de cérium. Elle présente un maximum pour 80 % de cérium de part et d'autre duquel elle diminue rapidement, de façon relativement linéaire entre 10 et 70 % de Ce. On voit que cette variation est sensiblement analogue à celle de la résistivité résiduelle (cf. fig. V-2).

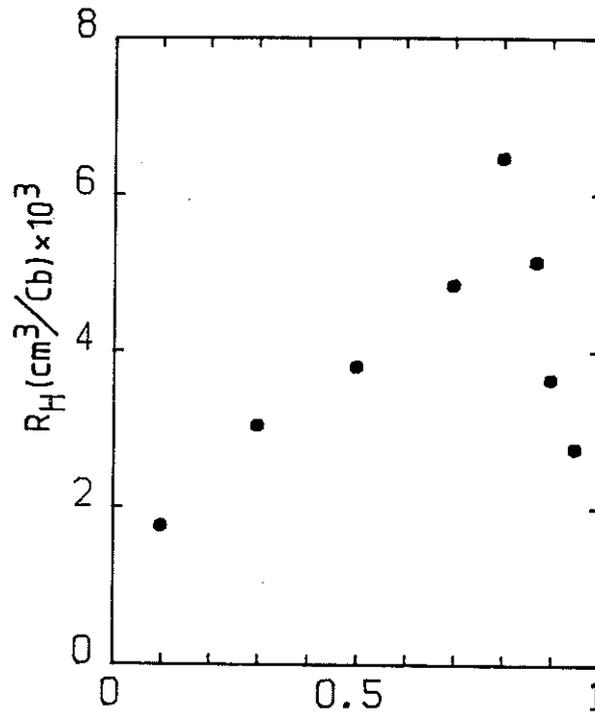


Fig. V-13 : Variation de la "résiduelle" ( $\rho_H$  à  $T \sim 1,5\text{ K}$ ) du coefficient de Hall des alliages  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$ .

### V-2-3 Alliages $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$ : discussion

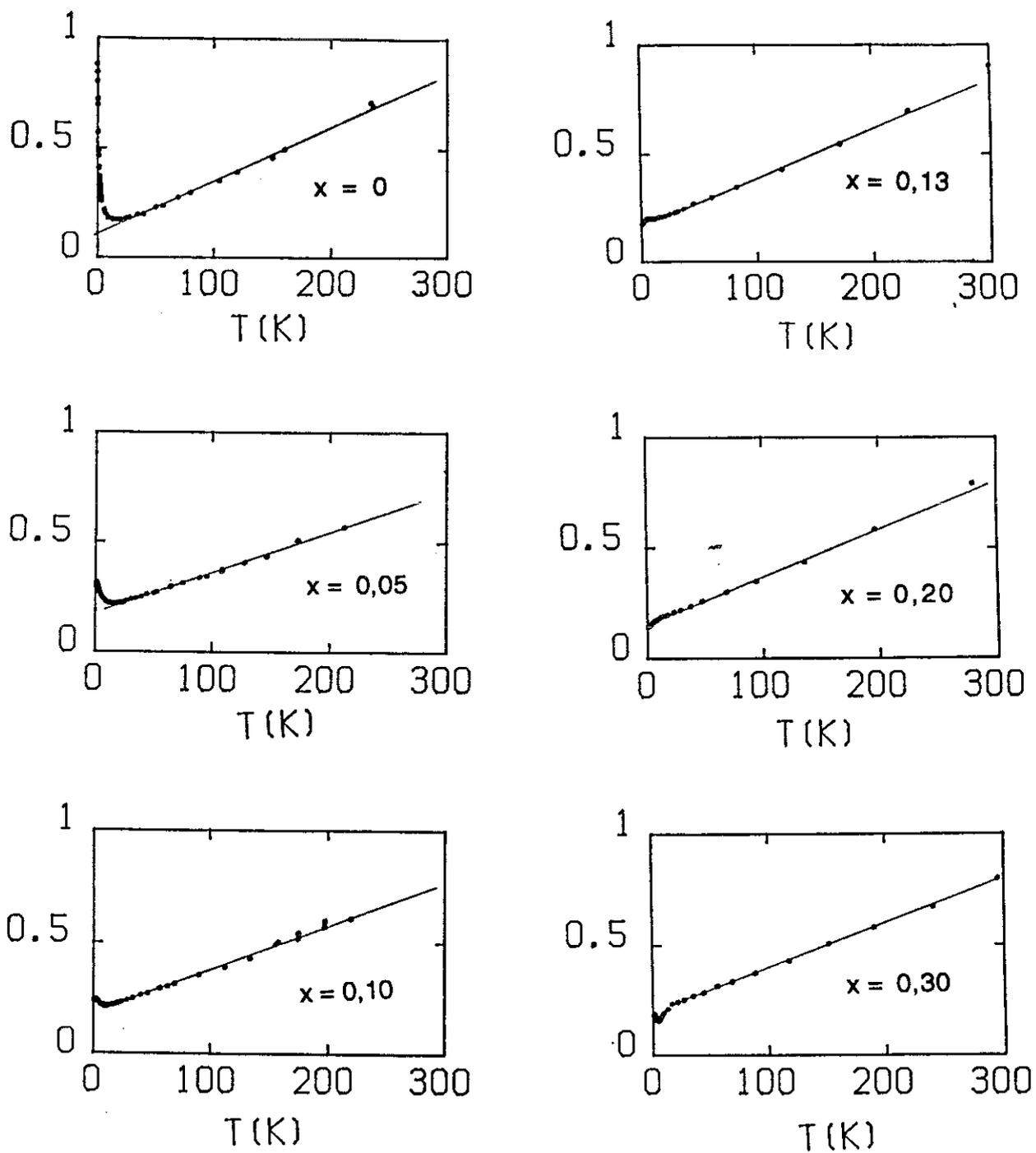
Le comportement du coefficient d'effet Hall à basse température des systèmes  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  est un phénomène complexe mettant en jeu à la fois des effets de cohérence et de couplages magnétiques. On a vu au chapitre I que les modèles actuels ne peuvent pas être appliqués à cette situation. Nous allons donc d'abord nous intéresser au régime de diffusion incohérente à haute température dans lequel on observe expérimentalement un comportement assez uniforme aux différentes concentrations. Dans cette limite, on peut en principe appliquer le modèle de Fert, Levy et collaborateurs [50-52] (§ I-4-4-3) qui prévoit dans l'approximation d'une diffusion asymétrique dominée par le mécanisme de diffusion gauche résonnante, un coefficient de Hall anormal, proportionnel au produit  $\chi\rho_m$  de la susceptibilité par la résistivité d'origine magnétique.

Malheureusement, si la détermination de  $\rho_m$  dans  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  était chose relativement facile, il n'en va pas de même dans le cas des alliages où un terme supplémentaire de diffusion dû au désordre doit être pris en compte. De plus, nous ne disposons pas encore actuellement de résultats complets sur la susceptibilité magnétique des systèmes  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  monocristallins.

Nous nous sommes donc bornés pour l'instant à une analyse phénoménologique en traçant l'inverse du coefficient de Hall anormal  $R^*(T) = R_H(T) - R_0$  en fonction de  $T$ , analogue à celui utilisé d'ordinaire pour représenter la susceptibilité dans le régime paramagnétique (loi de Curie-Weiss). L'estimation de  $R_0$  (coefficient de Hall normal, considéré comme constant) peut se faire à partir du modèle simple d'électrons libres, en supposant un électron de conduction par atome de lanthane ou de cérium. Ce calcul donne une valeur  $R_0$  de  $-0,5 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^3/\text{Cb}$ , compatible avec la valeur mesurée pour le composé  $\text{LaRu}_2\text{Si}_2$  par Haen et coll. [34]. On peut aussi bien déterminer la valeur de  $R_0$  par une extrapolation de  $R_H(T)$  à haute température (cf. la fig. IV-7b [52]). On aboutit à des valeurs de  $R_0$  du même ordre.

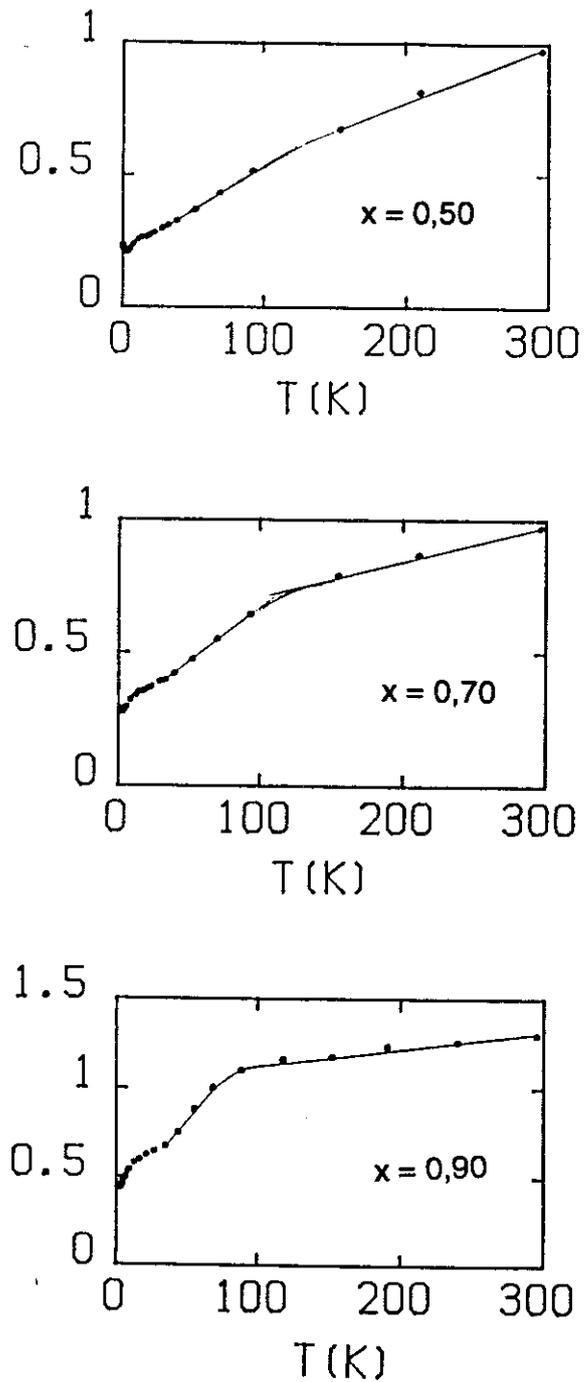
La série des figures V-14 représentent les variations de  $1/R^*$  en fonction de la température pour le système  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$ . Nous constatons que cette variation est linéaire sur une grande gamme de température pour les concentrations  $x$  inférieures à 0,5. Elle s'extrapole à des températures négatives de  $\theta$ , dont la valeur absolue est égale à 43 K pour  $x = 0$ , et comprise entre 70 et 100 K pour les alliages. Dans le cas de la susceptibilité, les premières mesures sur les alliages peu concentrés en La [68] indiquent que  $\chi_{//}$  suit, entre  $\approx 50$  et 250 K, une loi de Curie-Weiss avec  $\theta \sim 0$  comme dans  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ . On peut donc déjà s'attendre, aux faibles valeurs de  $x$ , à un désaccord sur la position des maxima de  $R_H$  et de  $\chi\rho_m$  analogue à celui déjà constaté pour le composé pur.

Pour  $x = 0,7$  et  $0,9$ , nous observons dans les tracés de  $1/(R_H - R_0)$  une nette déviation au-dessous de 100 K correspondant à la "bosse" observée vers 50 K sur la figure V-12b ; la partie basse température s'extrapole respectivement à 60 et 130 K, tandis que celle de haute température s'extrapole vers des valeurs très élevées (440 K pour  $x = 0,7$  et bien davantage pour  $x = 0,9$ ) qui semblent sans signification. Le champ cristallin pourrait être à l'origine de cette anomalie, comme nous l'avons discuté au paragraphe précédent. Il serait donc intéressant de savoir si celle-ci a son équivalent dans les courbes de susceptibilité. A notre connaissance l'effet du champ cristallin sur la variation de  $R_H(T)$  pour un composé à fermions lourds n'a été décrit jusqu'ici que dans le cas de  $\text{CeAl}_2$  [55].



**Fig. V-14 :** Variation en fonction de la température de l'inverse du coefficient  $R_H^*$

$R^*(T) = R_H(T) - R_0$  des alliages  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ .



**Fig. V-14 (suite) :** Variation en fonction de la température de l'inverse du coefficient  $R^*(T) = R_H(T) - R_0$  des alliages  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ .

On notera d'autre part, que l'anomalie précédente se situe dans une région où le modèle de Fert et Levy prévoit le passage d'un régime incohérent de haute température  $\gamma_1 \tilde{\chi} \rho_m$  à un régime incohérent de basse température  $\gamma_2 \tilde{\chi} \rho_m$ , avec  $\gamma_1 \neq \gamma_2$ , lorsque T est de l'ordre de  $T_K$  (cf. fig. I-7). Cependant, étant donné que ce modèle néglige les effets de champ cristallin et ne traite que la diffusion sur le multiplet  $J = 5/2$  de l'ion de cérium, il est pour l'instant impossible de tirer une conclusion définitive.

Si l'on s'intéresse maintenant au régime cohérent, on doit remarquer qu'en plus des effets de pression chimique déjà signalés la substitution a pour conséquence d'augmenter le désordre et de détruire la périodicité du réseau. Le résultat important est que l'effet produit sur la valeur résiduelle de  $R_H$  est très différent avec le lanthane et l'yttrium : dans le système  $(Ce, Y)Ru_2Si_2$ ,  $R_H(T \rightarrow 0)$  varie peu (il diminuait fortement dans  $CeRu_2Si_2$  pur sous pression, mais ici la diminution est à peu près compensée par l'effet de désordre) tandis que dans le système  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ ,  $R_H(T \rightarrow 0)$  passe par un maximum très élevé pour x voisin de 0,2. On voit donc que dans ce dernier cas, l'augmentation de  $R_H$  ne peut être attribuée à la seule présence du site non magnétique occupé par le lanthane mais à l'effet induit sur les cérium voisins : ceux-ci vont se comporter comme des impuretés magnétiques et diffuser les électrons de conduction de manière incohérente avec un fort terme asymétrique. Dans le cas de l'yttrium, au contraire, on s'attend à créer des "impuretés" de cérium à fort  $T_K$ , voire de valence intermédiaire, qui ne joueront qu'un rôle mineur dans les processus de diffusion. Cette interprétation est en accord avec les résultats de résistivité où l'on n'observe pas d'effet Kondo dans les alliages  $(Ce, Y)Ru_2Si_2$  [62] alors que cet effet se trouve renforcé dans le système  $(Ce, La)Ru_2Si_2$  avec persistance du terme en  $-\text{Log}T$  lorsque la température décroît.

En ce qui concerne le mécanisme exact par lequel les cérium magnétiques contribuent au  $R_H$  résiduel, il est possible que la contribution due au "saut latéral" (voir chapitre II) devienne prépondérante à basse température, comparée au terme de diffusion gauche considéré par Fert et collaborateurs. Ceci a été calculé par Lévy [53] et, semble-t-il, observé expérimentalement par Hamzic et coll. [54a]. Rappelons que dans la limite diluée, le terme de saut latéral doit varier comme le carré de la concentration d'impuretés magnétiques. Dans le système  $(Ce, La)Ru_2Si_2$ , la figure V-13 semble montrer une variation linéaire de  $R_H(T \rightarrow 0)$  pour c (de Ce)  $\leq 70$  %. Il semble par contre qu'entre 70 et 100 % de Ce, la variation de  $R_H(T \rightarrow 0)$  soit plus rapide (donnant une sorte de pic au voisinage de la concentration de 80 % de Ce) que celle de la résiduelle de la résistivité (cf. fig. V-2) ; cependant, la comparaison est difficile, compte tenu du petit nombre de

points expérimentaux, de leur dispersion et du fait que l'ordre magnétique empêche, en particulier dans le cas de  $R_H$ , de définir convenablement ces valeurs résiduelles.

Ceci nous conduit à une nouvelle comparaison avec le système  $(La,Ce)Cu_6$  dans lequel, comme on l'a vu plus haut, il n'apparaît pas d'ordre magnétique à basse température.

#### V-2-4 Comparaison avec le système $(Ce,La)Cu_6$

Onuki et coll. [75] ont effectué des mesures d'effet Hall sur des monocristaux d'alliages  $Ce_xLa_{1-x}Cu_6$ . Le coefficient de Hall du composé  $CeCu_6$  présente un maximum positif au voisinage de 10 K, qui coïncide avec le maximum de résistivité, associé à l'apparition progressive d'une diffusion cohérente propre à un réseau Kondo ( $T_{max} \approx T_K$ ). Ensuite,  $R_H(T)$  diminue, change de signe vers 4 K et devient fortement négatif vers 1 K, température limite des mesures. La figure V-15 montre la variation du coefficient de Hall des alliages  $Ce_xLa_{1-x}Cu_6$  en fonction de la température.

Le coefficient de Hall de la matrice métallique  $LaCu_6$  est indépendant de la température et négatif. Il est du même ordre de grandeur que celui du composé  $LaRu_2Si_2$ . A la température ambiante, la contribution additive à l'effet Hall augmente lorsque la concentration de cérium augmente. Les résultats expérimentaux à haute température sont en accord avec le modèle de Fert et Levy [50] basé sur la diffusion gauche. A basse température, dans le système  $Ce_xLa_{1-x}Cu_6$ ,  $R_H$  est très sensible à l'effet d'alliage. La substitution progressive de La détruit les effets de diffusion cohérente et le maximum disparaît rapidement.  $R_H$  (1 K) augmente très vite lorsque la concentration de cérium diminue ( $1 \leq x \leq 0,7$ ), et atteint un maximum positif pour  $x \approx 70$  à 50 % de Ce, avant de baisser à nouveau. Les questions de signe mises à part, ce comportement est assez analogue à celui que nous observons dans notre système.

Cependant, il n'existe pas non plus ici suffisamment de valeurs expérimentales pour définir avec précision la variation de  $R_H(T \rightarrow 0)$  ; mais que ce soit du côté dilué ou du côté concentré en Ce, celle-ci paraît être plus rapide qu'une simple proportionnalité à la concentration, à supposer, toutefois, que la résiduelle soit bien atteinte ; il semble donc y avoir une différence avec le système  $(Ce,La)Ru_2Si_2$ , dans lequel  $R_H(T \rightarrow 0)$  est pratiquement linéaire avec la concentration  $c$  de Ce pour  $c \leq 70$  % (fig. V-13). On a vu (fig. V-10b) qu'en outre, les deux systèmes se différencient par la variation de la résistivité magnétique résiduelle  $\rho_m(0)$  : dans  $(Ce,La)Cu_6$ ,  $\rho_m(0)$  par % de Ce augmente linéairement en fonction de la concentration de Ce, alors que dans  $(Ce,La)Ru_2Si_2$ , cette

quantité est pratiquement indépendante de la concentration au-dessous de 70 % de Ce, comme  $R_H(1,5 \text{ K})$ . Il serait intéressant de préciser ces comparaisons entre les variations de  $\rho_m(0)$  et de  $R_H(T \rightarrow 0)$ , soit à l'intérieur d'un même système, soit entre systèmes différents (nous avons cité à propos de la résistivité les systèmes  $\text{Ce,La)InCu}_2$  et  $(\text{Ce,Y)InCu}_2$ ), par des mesures de  $R_H$  plus nombreuses et à plus basse température.

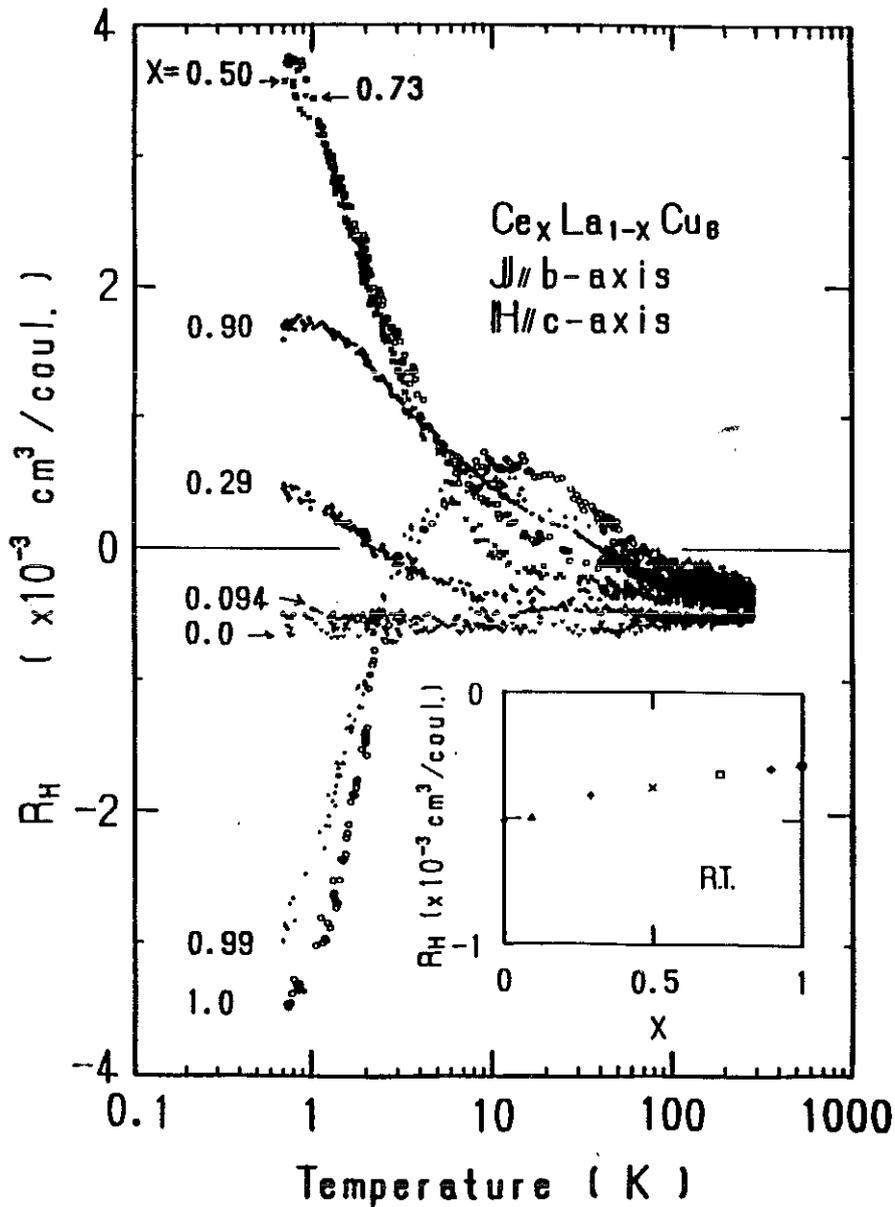


Fig. V-15 : Variation du coefficient de Hall d'alliages du système  $\text{Ce}_x \text{La}_{1-x} \text{Cu}_6$  en fonction de la température, d'après [75].

## V-3 EFFETS DU CHAMP MAGNETIQUE

### V-3-1 Magnéto-résistance

Les résultats rappelés au chapitre II sur la magnéto-résistance  $\rho(H)$  de  $CeRu_2Si_2$  ont été obtenus sur des plaquettes où le courant  $i$  circulait dans le plan de base (a,a). Lorsque le champ est orienté parallèlement à l'axe  $c$ , on observe un maximum de  $\rho(H)$  au champ métamagnétique  $H_M$  tandis que si  $H$  est parallèle au plan de base,  $\rho(H)$  présente une augmentation linéaire et faible (fig. II-6).

On peut se demander comment varie  $\rho(H)$  pour  $i$  parallèle à l'axe  $c$ . Nous avons donc effectué sur  $CeRu_2Si_2$  lui-même quelques mesures de ce type ( $H // i // c$ ), que nous allons décrire ci-après.

Nous avons ensuite effectué une série de mesures de  $\rho(H)$  des alliages du système  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$  à basse température. Dans ce cas, le champ magnétique était toujours appliqué le long de l'axe de facile aimantation et le courant électrique dans le plan de base. Les résultats seront comparés à ceux obtenus par les mesures d'aimantation [77,78]. Enfin, nous rapporterons des mesures de tension de Hall en fonction du champ magnétique, qui seront, elles aussi, comparées aux résultats d'aimantation.

#### *V-3-1-1 Magnéto-résistance de $CeRu_2Si_2$ avec $i // c$*

Les mesures ont été effectuées sur une barrette, taillée dans un monocristal, dont la résistivité a été mesurée par F. Lapierre et P. Haen [90]. Les résultats (fig. V-16) sont un peu différents de ceux obtenus lorsque  $i$  circule dans le plan de base. Il convient de signaler que les mesures réalisées dans cette configuration sont beaucoup plus délicates que pour  $i \perp c$  en raison de la facilité avec laquelle le matériau se clive suivant les plans quadratiques : la pose des contacts électriques devient plus difficile et la présence de fissures au sein de l'échantillon, voire sa rupture, sont toujours à craindre.

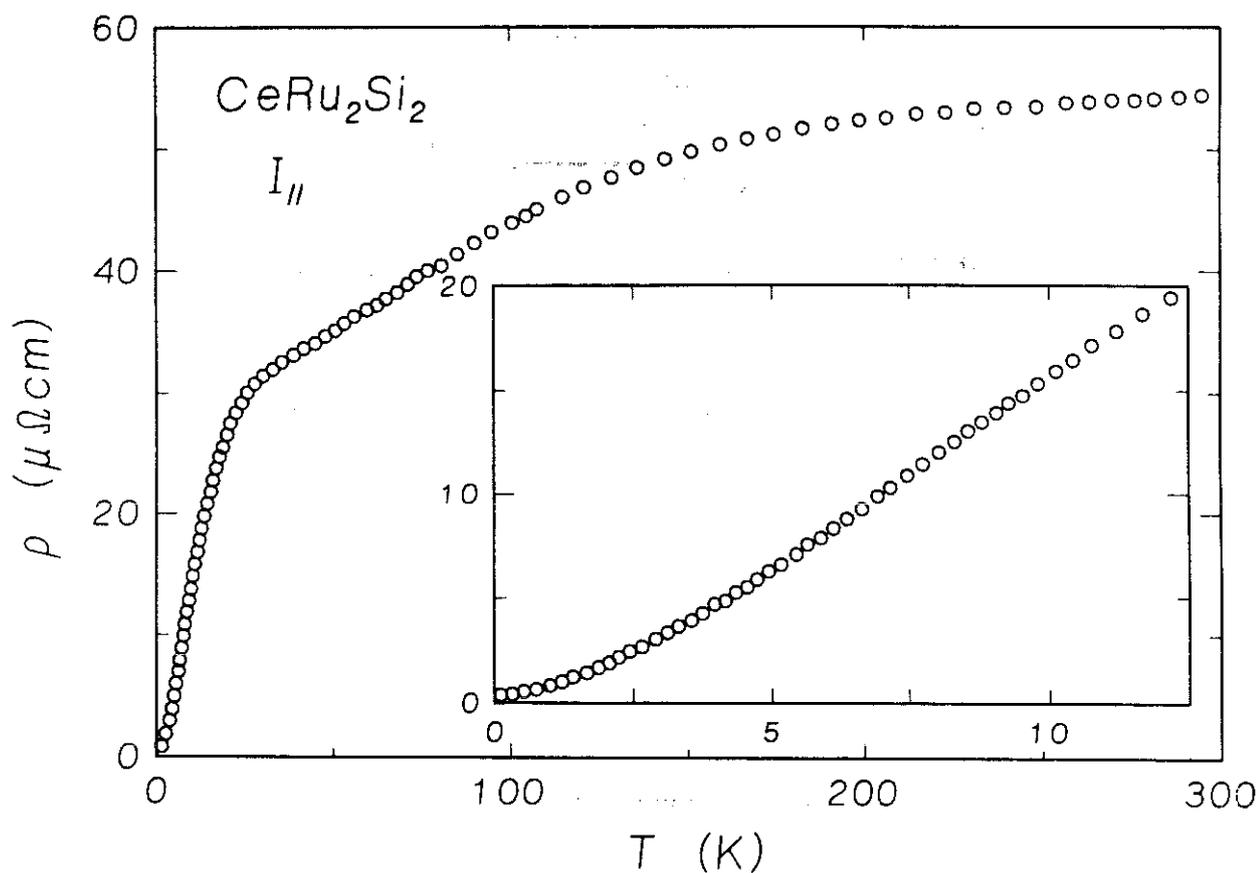


Fig. V-16 : Résistivité de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  pour  $i//c$ , d'après [90].

Les figures V-17a et V-17b représentent les variations de  $\rho(H//i//c)$  de ce cristal à différentes températures. Comme dans le cas  $i//(a,a)$ , on observe un maximum pour un champ  $H^*(\rho_{\max})$ . A 1,7 K, ce dernier est légèrement plus bas que  $H^* - H_M$  mesuré avec  $i//(a,a)$ ; il se déplace rapidement vers des valeurs plus faibles lorsque  $T$  augmente et disparaît pour une température légèrement supérieure à 30 K. La figure V-18 permet de comparer les variations de  $H^*(H//i//c)$  avec celles décrites précédemment [34] pour  $i//(a,a)$ . L'importante différence observée sera discutée plus loin.

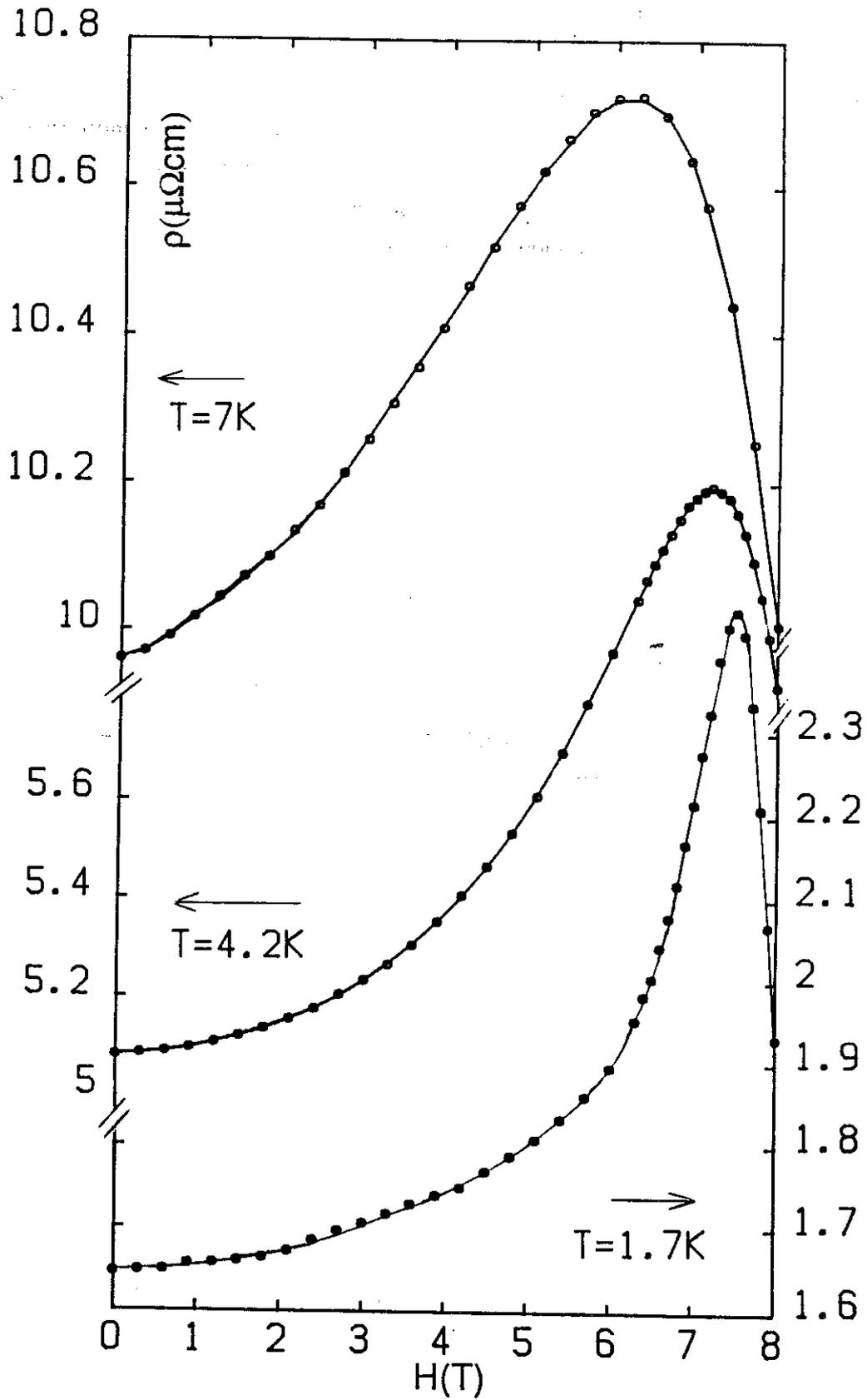


Fig. 17a : Magnétorésistance de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  avec  $H//i/c$ , à différentes températures.

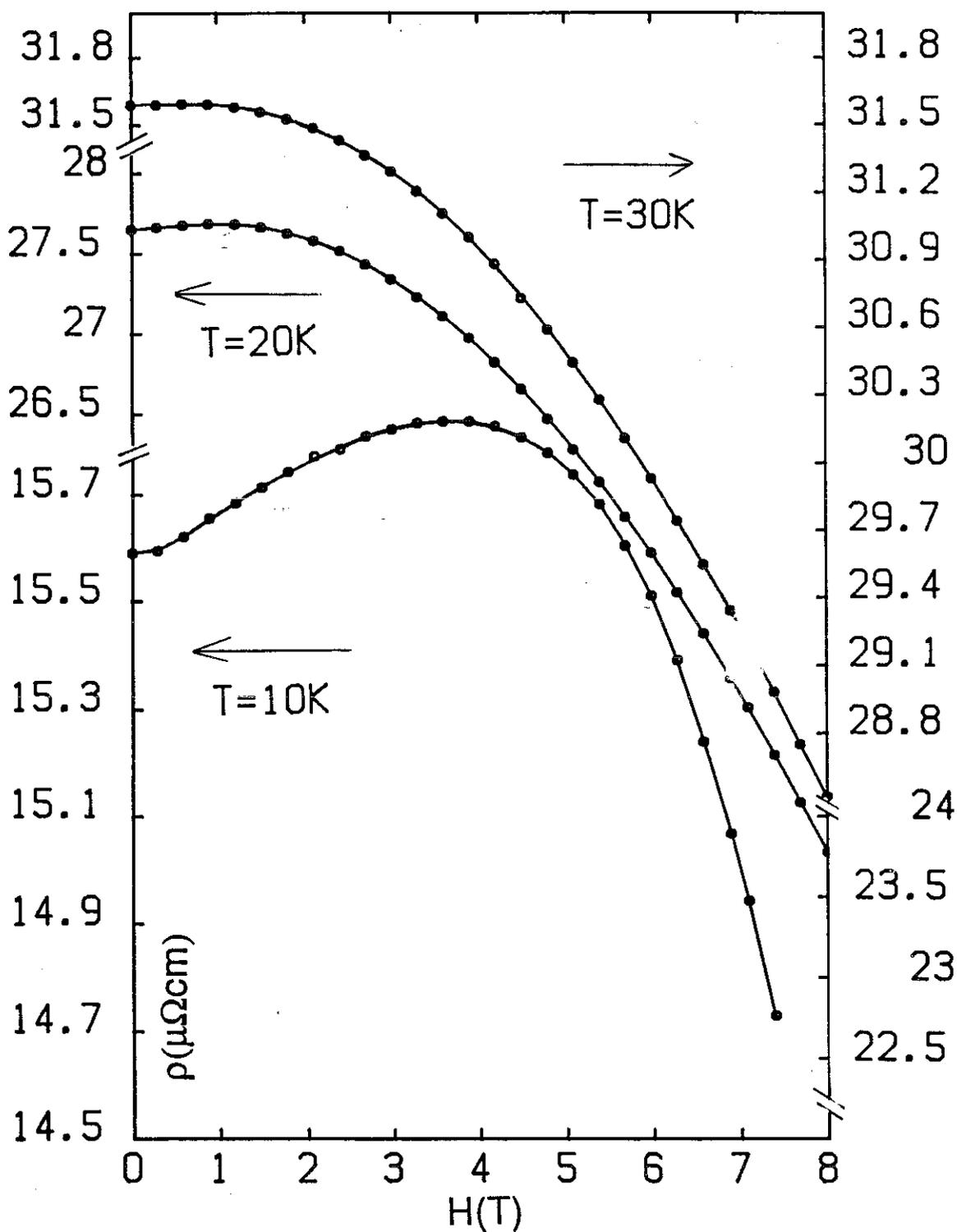
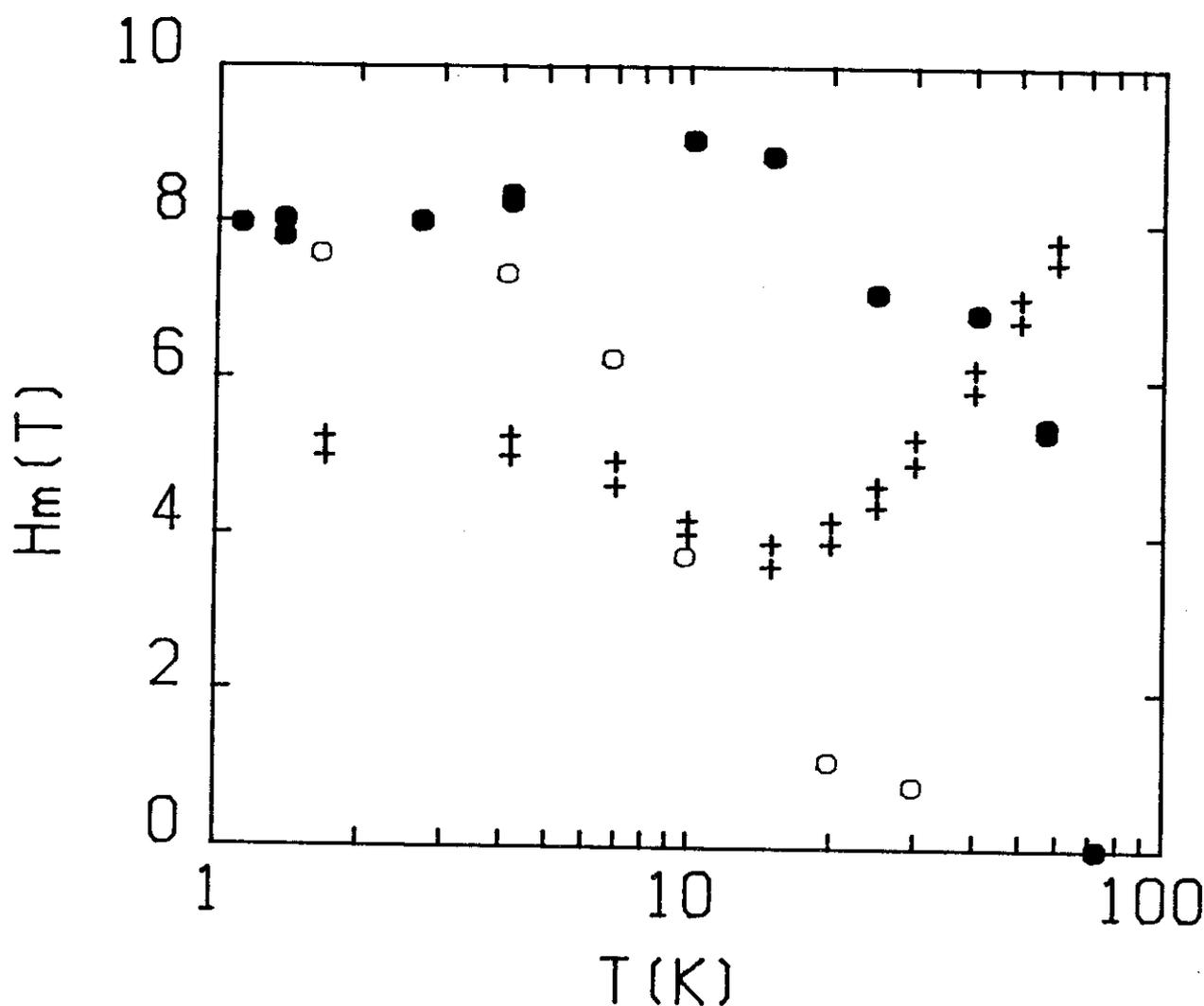


Fig. 17b : Magnétorésistance de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  avec  $H//c$ , (suite).

**V-3-1-2 Magnétorésistance des alliages  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$  avec  $H//c$  et  $i//(a,a)$**

La figure V-19 représente la magnétorésistance du composé  $Ce_{0,95}La_{0,05}Ru_2Si_2$  à différentes températures comprises entre 1,7 et 60 K. Nous observons à basse température, comme dans le cas du composé pur, une contribution positive à bas champ. Cette contribution qui devient de plus en plus faible lorsque la température augmente semble exister au moins jusqu'à 60 K, température à laquelle on n'atteint plus de maximum dans les champs expérimentaux accessibles. Le comportement de  $H(\rho_{max})$  du composé  $Ce_{0,95}La_{0,05}Ru_2Si_2$  est représenté sur la figure V-18 avec celui de  $CeRu_2Si_2$ .



**Fig. V-18 :** Comportement de  $H(\rho_{max})$  du composé  $CeRu_2Si_2$  en fonction de la température, pour  $H//c$  et  $i//(a,a)$  et pour  $H//c/i$  (● et ○, respectivement) et de  $Ce_{0,95}La_{0,05}Ru_2Si_2$  pour  $H//c$  et  $i//(a,a)$  (+).

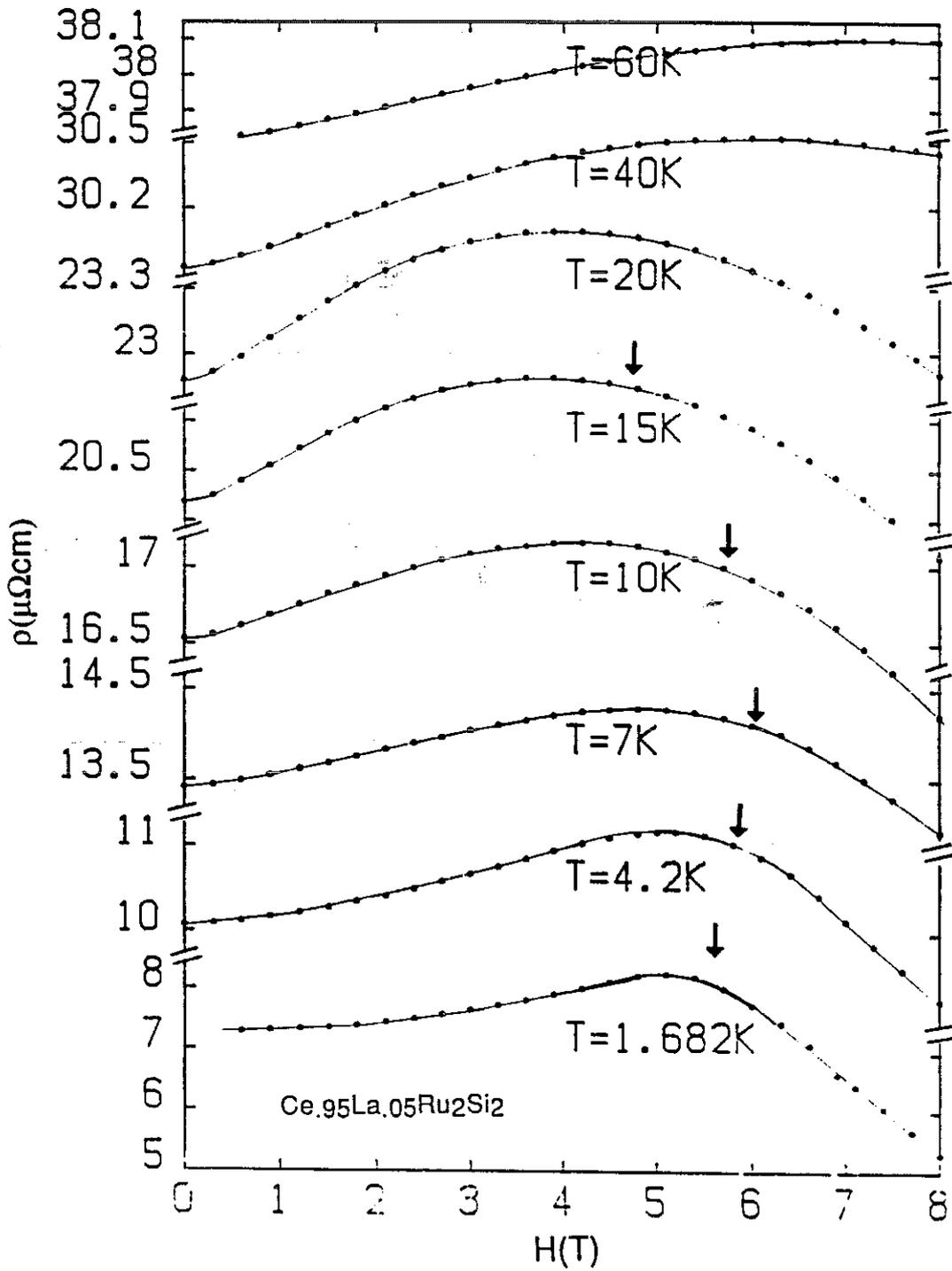


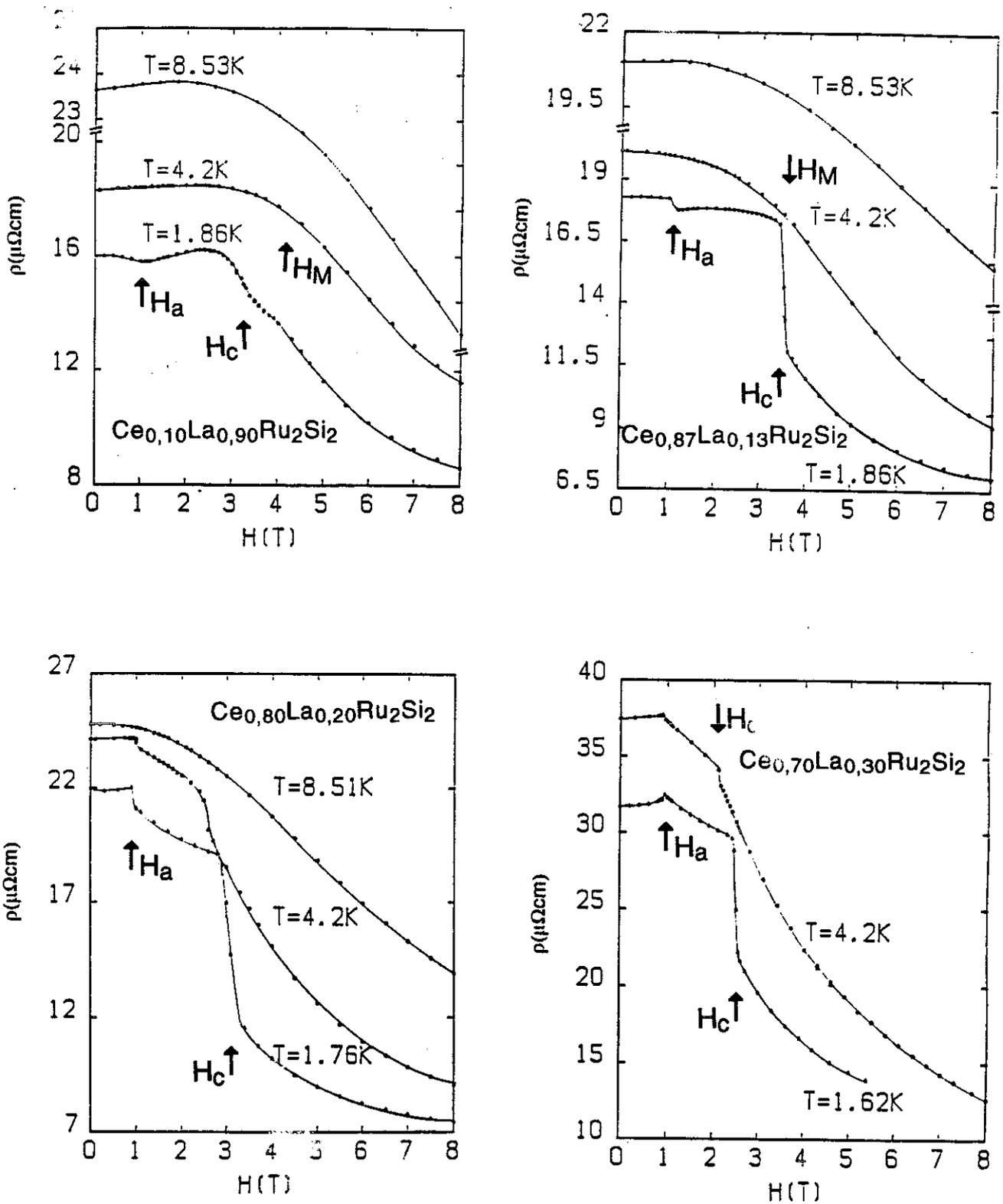
Fig. V-19 : Magnéto-résistance du composé  $\text{Ce}_{0,95}\text{La}_{0,05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  à différentes températures. Les flèches verticales indiquent les valeurs du champ  $H_M$  déduit de la dérivée des courbes d'aimantation.

Les mesures de magnétorésistance du système  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$  pour les plus fortes concentrations de lanthane ( $0,90 \geq x \geq 0,10$ ) sont regroupées dans la figure V-20. Ces courbes  $\rho(H)$  présentent un comportement plus complexe que celles de deux composés cités plus haut. Rappelons que ces systèmes présentent un ordre antiferromagnétique (voir chapitre III), en conséquence de la substitution du cérium par le lanthane. On peut distinguer deux régimes :

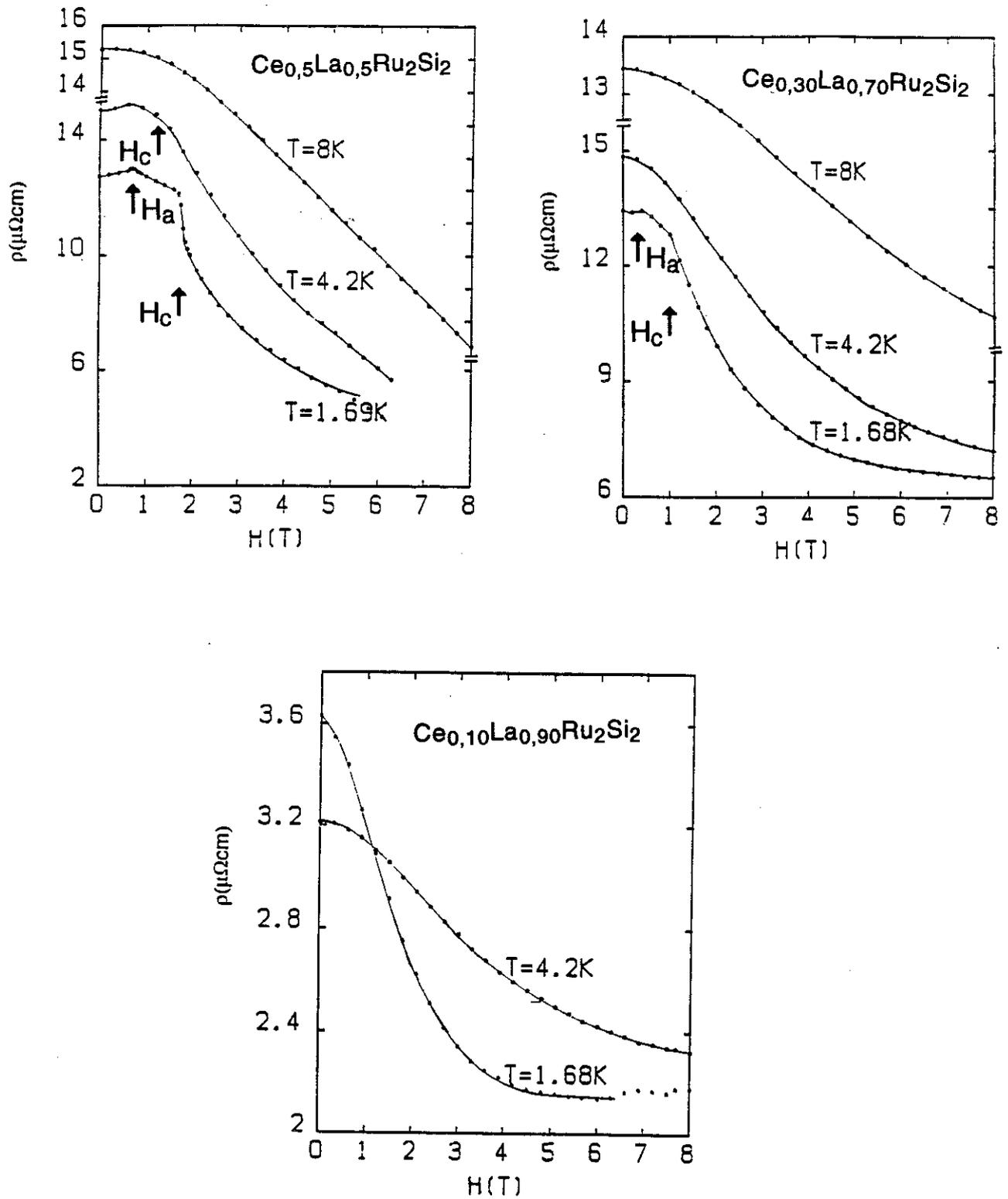
- Dans la phase paramagnétique ( $T > T_N$ ), nous observons d'abord que, pour  $x = 0,1$  et  $x = 0,13$  et lorsque la transition métamagnétique est encore visible (au-dessus de  $T_N$ ), la magnétorésistance présente encore une très faible contribution positive. En revanche,  $H(\rho_{max})$  devient nettement différent de  $H_M$ . En effet,  $H_M$  vaut 3,5 T à 4,2 K pour le composé  $Ce_{0,87}La_{0,13}Ru_2Si_2$  alors que  $H(\rho_{max})$  est voisin de 1 T. Pour  $x > 0,13$ , la contribution positive disparaît et la résistance décroît sur toute la gamme de champ explorée. Ceci confirme l'existence d'une forte diffusion Kondo déjà observée dans les mesures de résistivité électrique du système à  $H = 0$ , en fonction de la température.

- Au-dessous de  $T_N$ , la magnétorésistance de l'ensemble des alliages présente deux nouvelles anomalies caractérisées par une décroissance rapide de  $\rho$  qui correspondent aux transitions métamagnétiques déduites des courbes d'aimantation aux champs  $H_a$  et  $H_c$ . Au champ  $H = H_c$ ,  $\rho(T)$  montre une chute brutale, en particulier pour les concentrations de La  $0,13 \leq x \leq 0,3$ , à la température la plus basse ; l'amplitude de cette chute semble bien reliée à celle du saut d'aimantation (qui est d'autant plus grand que  $T$  est plus basse). A haut champ,  $\rho(H)$  varie lentement pendant que l'aimantation tend vers la saturation.

Nous avons réalisé dans quelques cas des mesures en champ ascendant et en champ descendant, ce qui nous a permis d'observer une hystérèse au-dessous de  $H_c$ , coïncidant avec celle des courbes d'aimantation. Un exemple de ces effets est montré sur la figure V-21 (alliage à 80 % de Ce) où nous avons représenté simultanément les courbes de  $\rho(H)$  et de  $M(H)$  pour faciliter la comparaison.



**Fig. V-20 :** Magnétorésistance des alliages  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  à différentes températures :  $x = 0,1 ; 0,13 ; 0,2$  et  $0,3$ . Les flèches verticales indiquent les valeurs des champs caractéristiques déduits des dérivées des courbes d'aimantation.



**Fig. V-20 (suite) :** Magnétorésistance des alliages  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  à différentes températures : alliages avec  $x = 0,5$  ;  $x = 0,7$  et  $x = 0,9$ .

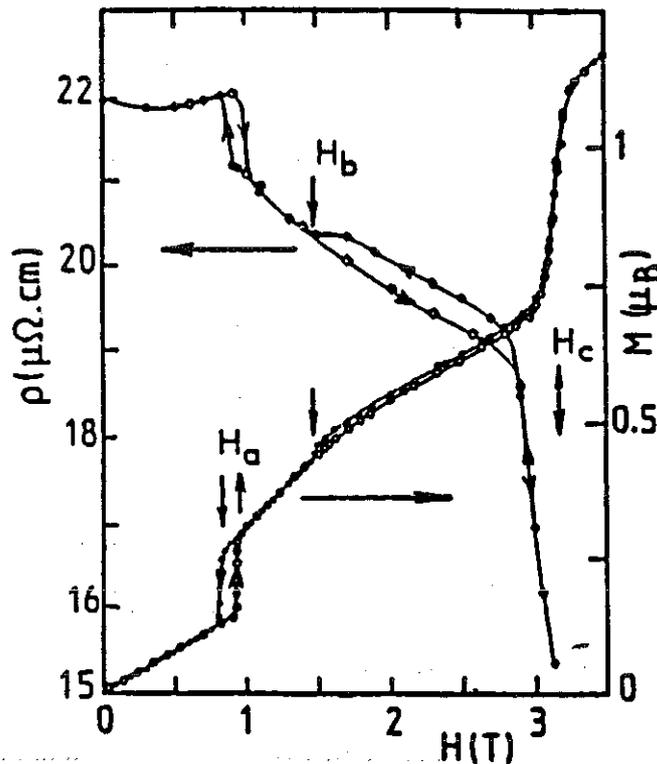
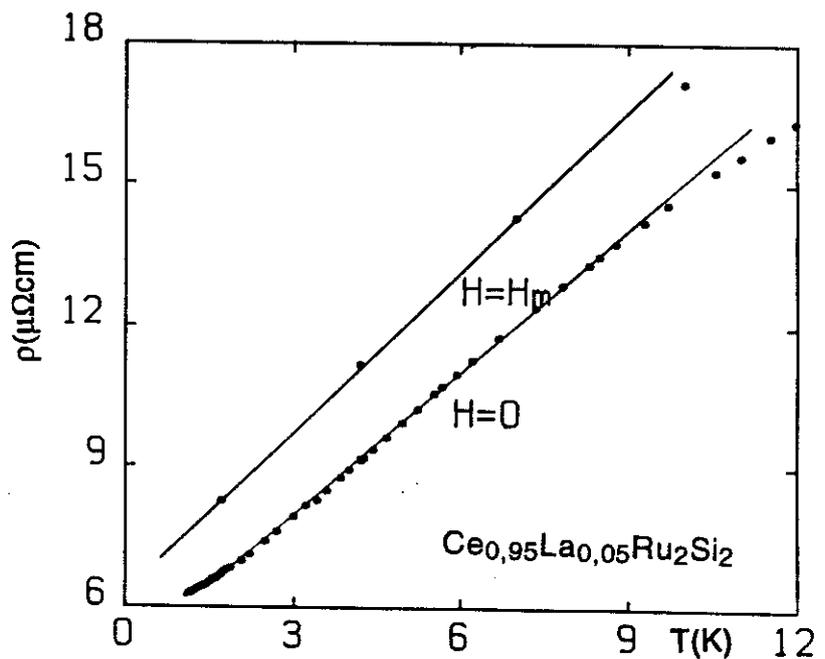
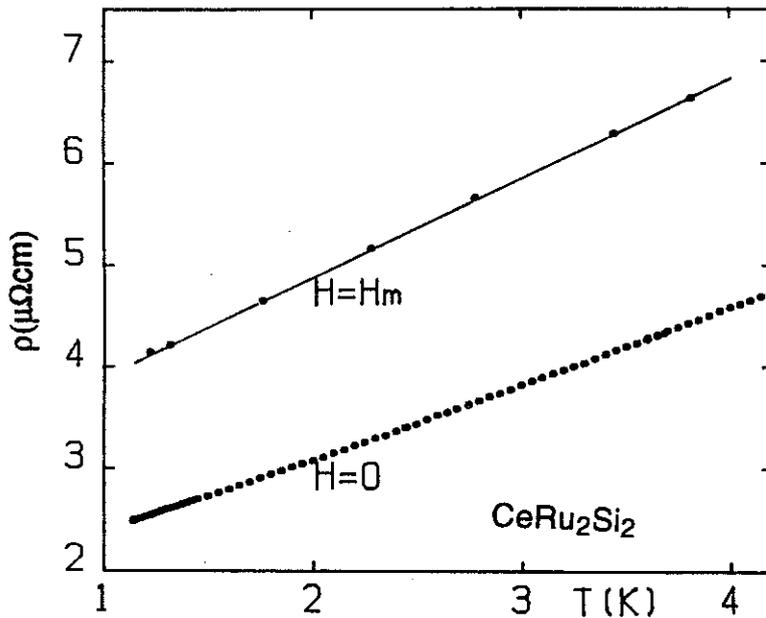


Fig. V-21 : Magnétorésistance et aimantation du composé  $Ce_{0,80}La_{0,20}Ru_2Si_2$  à 1,7 K courbes à champ montant (○) et à champ descendant (●).

### V-3-1-3 Discussion

L'alliage à 5 % de La présente à basse température un comportement très analogue à celui du composé pur. Dans les deux cas, l'accroissement de résistivité sous champ magnétique est directement relié à la courbure positive de  $M(H)$  aboutissant au champ de transition  $H_M$ . Ceci peut indiquer un effet de compétition entre les corrélations AF et le champ appliqué conduisant à un maximum de diffusion au voisinage du métamagnétisme (maximum de la dépendance en  $q$  des corrélations [11-13]). Cependant, on sait, particulièrement dans le cas de l'alliage à 5 % étudié ici, que le terme linéaire de chaleur spécifique  $\gamma$  passe aussi par un maximum à  $H_M$  [33,68]. La densité d'états des quasiparticules lourdes semble donc augmenter lorsqu'on applique le champ, ce qui correspond à un accroissement de la masse effective dans une approximation de bande parabolique. D'autres images seraient également possibles comme par exemple la fermeture d'un pseudogap au voisinage de  $E_F$  sous l'effet du champ [91].

Le changement de densité d'états associé à l'application du champ magnétique peut être directement mis en évidence à partir de nos résultats de transport en examinant l'évolution du terme linéaire  $BT$  de la résistivité à  $H = \text{const.}$  Le parallèle existant entre les variations de ce coefficient et celles du terme  $\gamma$  de chaleur spécifique a déjà été souligné, notamment dans le cas de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  [34,71c]. Les résultats pour ce composé à  $H = 0$  et  $H = H_{\text{max}}$  sont rappelés dans la figure V-22, tandis que la figure V-23 représente le même tracé en utilisant nos résultats pour  $x = 0,05$ .



*Figs. V-22 et V-23 : Evolution de la résistivité à basse température des composés  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  et  $\text{Ce}_{0,95}\text{La}_{0,05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  à  $H = 0$  et  $H = H_M$ .*

On observe nettement dans les deux cas une augmentation de  $B$ , le rapport  $B(H(\rho_{\max}))/B(H=0)$  valant 1,3 et 1,15 respectivement, en accord qualitatif avec les mesures directes de chaleur spécifique sous champ : pour  $x = 0,5$ , l'augmentation de  $\gamma(T \rightarrow 0)$  entre  $H = 0$  et  $H = H_M$  est de 30 % [33,68]. Il est intéressant de noter que cette augmentation est de l'ordre de celle de  $\gamma(T \rightarrow 0)$  entre  $x = 0$  et  $x \approx 0,1$  (apparition de l'ordre magnétique).

Expérimentalement, on peut constater certaines différences entre  $x = 0,05$  et  $x = 0$ . D'abord pour  $T \leq 4,2$  K, l'écart existant entre la position du maximum de  $\rho(H)$  et celle du maximum de  $\partial M/\partial H$  (ce dernier indiqué par les flèches verticales sur la figure V-19), alors que les deux déterminations coïncident dans  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  pur.

Les variations de  $H(\rho_{\max})$  avec la température diffèrent aussi sensiblement dans les deux systèmes (fig. V-18) : dans  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ ,  $H_M$  commençait par augmenter à partir de 2 K, passait par un maximum vers 10 K, puis diminuait continuellement à plus haute température [34]. Ici,  $H(\rho_{\max})$  semble d'abord rester constant, diminue jusqu'à un minimum aux environs de 15 K avant de croître à nouveau jusqu'à 60 K et plus. La comparaison des courbes à 73 K ( $x = 0$ ) et 60 K ( $x = 0,05$ ) est significative : elle montre que dans le premier cas, un terme de magnétorésistance négative prédomine, analogue à celui produit par le gel de la diffusion magnétique en fort champ dans les alliages Kondo (idéalement  $\rho - \rho_0 \propto M^2$ ). Dans l'alliage  $x = 0,05$ , seule les variations de  $H(\rho_{\max})$  situées au-dessous du minimum vers 15 K paraissent reliées à l'existence du champ métamagnétique  $H_M$ . La magnétorésistance positive observée à plus haute température rappelle plutôt celle des métaux normaux. Cette différence entre le composé et l'alliage peut être due à un simple changement d'ordre de grandeur des énergies des fluctuations de spins ou des corrélations intersites entre les deux systèmes. Elle indique en tout cas que l'apparition d'un maximum dans ce régime de température doit être regardé comme le résultat d'une compétition entre des termes ayant des signes de variation contraires plutôt comme le signe d'un véritable champ de transition. Ce point de vue est renforcé par l'observation des courbes en courant longitudinal ( $i//H//c$ ) qui présentent, pour une même direction du champ appliqué, un maximum centré à des valeurs de  $H$  différentes de celles observées pour  $i \perp c$  (fig. V-18). quelques expériences complémentaires sont souhaitables pour confirmer ces résultats.

Dans les alliages plus concentrés ( $x = 0,10$  et  $0,13$ ), où l'on observe aussi une inflexion dans la courbe  $M(H)$ , l'observation d'un maximum de  $\rho(H)$  est limitée vers les basses températures par l'apparition de l'ordre magnétique (voir § suivant). Et il semble que les termes de magnétorésistance négative deviennent prépondérants devant ceux de

magnétorésistance positive à  $T > T_N$ . La courbure positive des courbes  $M(H)$  est également moins prononcée [77,78]. Si l'on relie ces phénomènes aux effets de corrélations magnétiques à courte distance révélés par les études de neutrons, il est raisonnable de penser que l'abaissement de  $T_K$  produit par la substitution du Ce conduit à un régime plus proche de l'ordre magnétique classique des terres rares dans lequel les corrélations chutent très rapidement au-dessus de  $T_N$ . Ainsi les alliages  $x = 0,10$  et  $0,13$  (peut-être aussi  $0,20$ ) représentent un cas intermédiaire où l'ordre prend naissance au sein d'un système de moments sujets à d'importantes fluctuations Kondo (parfois désigné sous le nom d'état mixte [92]) et où, réciproquement des corrélations magnétiques à courte portée peuvent se maintenir bien au-dessous de  $T_N^{\text{exp}}$ . (Dans ce cas,  $T_N^{\text{exp}} < T_N^0$  en l'absence de fluctuations). L'existence de telles corrélations vient d'être observée dans une expérience de diffusion de neutrons sur un alliage à  $x = 0,20$  [93]. Ainsi, on notera que la classique proportionnalité entre  $\rho(H)$  et  $M^2$  (carré de l'aimantation) n'est pas obéie à 7 K dans le composé  $\text{Ce}_{0,80}\text{La}_{0,20}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  (fig. V-24a), tandis qu'elle l'est pour  $\text{Ce}_{0,30}\text{La}_{0,70}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  et  $\text{Ce}_{0,10}\text{La}_{0,90}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  à 4,2 K dans une gamme limitée de champ magnétique (figs. V-24b et V-24c).

Dans la phase ordonnée, le résultat essentiel est le parallèle existant entre les anomalies des courbes d'aimantation et de magnétorésistance. Un comportement analogue à celui observé ici sur  $\rho(H)$  a été trouvé précédemment dans le composé Kondo  $\text{TmS}$  au-dessous de  $T_N$  par Lapiere et coll. [94,56b] (fig. V-25). Le diagramme de phase de ce composé présente lui aussi deux régions antiferromagnétiques (une structure modulée à bas champ qui se transforme en une structure plus simple au voisinage de 2,5 T [95]). La courbe d'aimantation de  $\text{TmS}$  ne présente pas de saut mais simplement un point d'inflexion [95,96].

L'analogie entre les deux systèmes ne doit sans doute pas être poussée trop loin dans la mesure où  $\text{TmS}$  est un composé cubique dont l'anisotropie est beaucoup plus faible que dans nos systèmes. Dans  $\text{CePb}_3$ , autre composé cubique, où il semble qu'il y ait également un changement de phase AF ou une transition de type spin-flop, presque invisible sur les courbes  $M(H)$ , on observe [58] des effets de magnétorésistance importants mais sans hystérésis.

Dans nos alliages, une transition de type spin-flop est pratiquement exclue par l'anisotropie Ising des moments et on doit plutôt penser à l'existence, dans la région intermédiaire  $H_a < H < H_c$ , d'une ou plusieurs autres phases, de structure magnétique différente de celle observée à champ nul. La réponse à ces questions ne peut être apportée que par des mesures de diffraction neutronique.

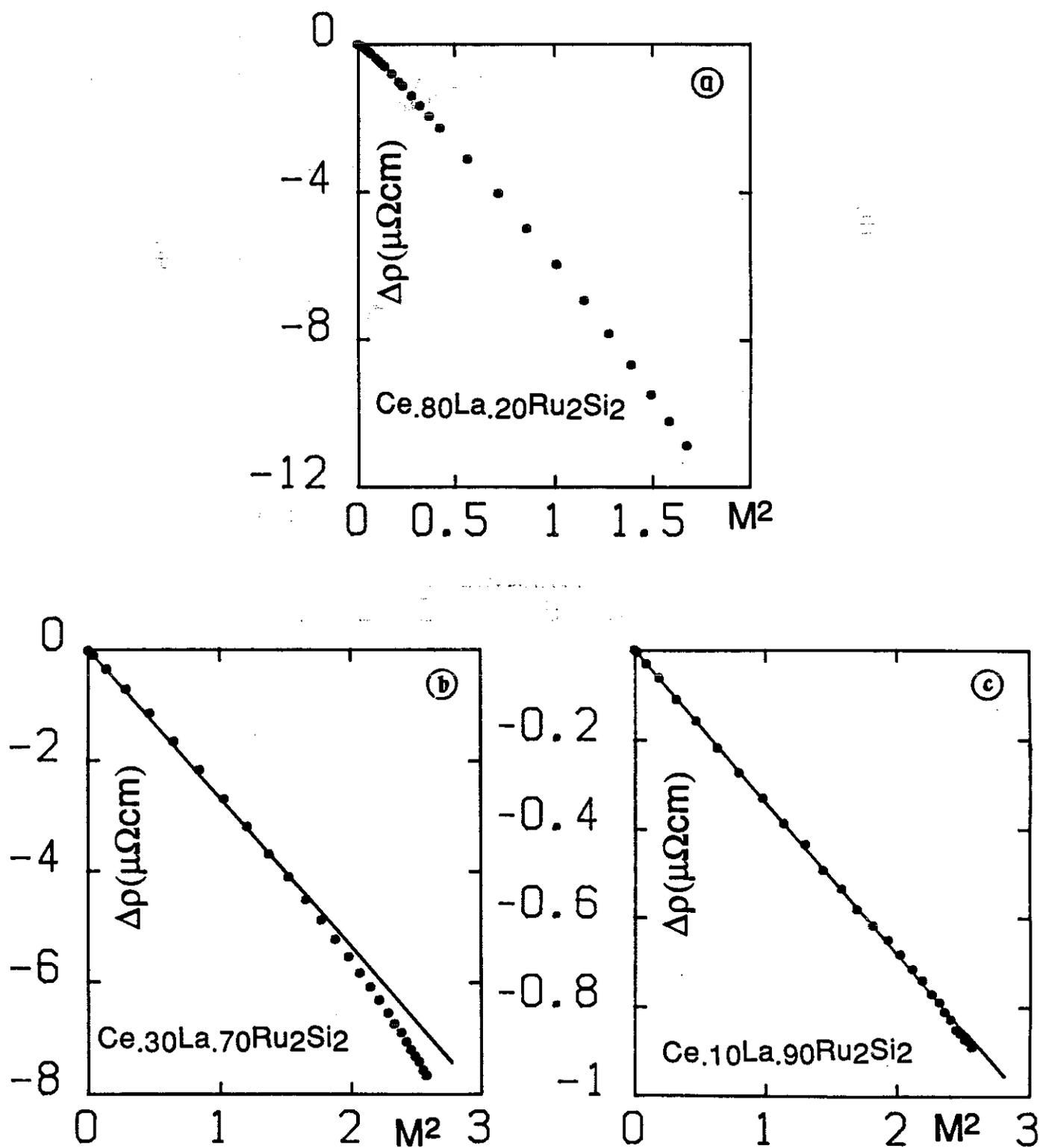


Fig. V-24 : Tracé de  $\rho(H)$  en fonction du carré de l'aimantation a) pour  $\text{Ce}_{0,80}\text{La}_{0,20}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  à 7 K ; b) pour  $\text{Ce}_{0,30}\text{La}_{0,70}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  à 4,2 K ; c) pour  $\text{Ce}_{0,10}\text{La}_{0,90}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  à 4,2 K.

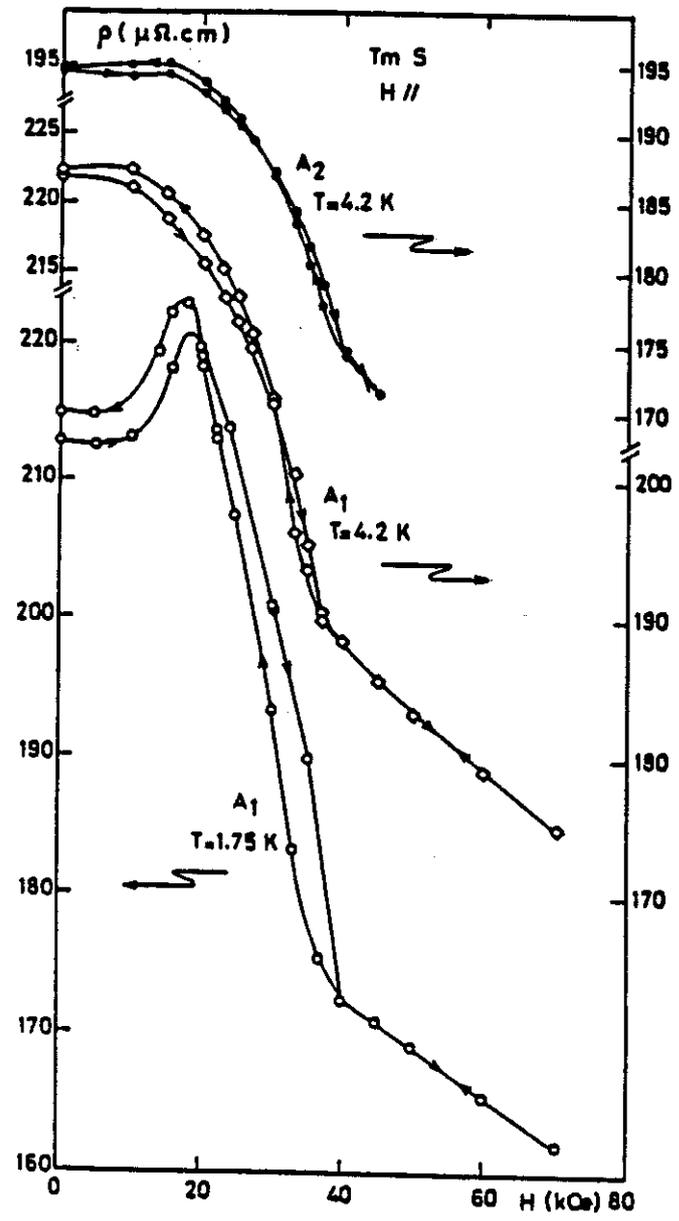


Fig. V-25 : Magnétorésistance du composé  $\text{TmS}$ , d'après [56,94].

### V-3-2 Tension de Hall

Comme nous l'avons mentionné au chapitre I, les variations de la tension de Hall  $v_H$  avec le champ magnétique peuvent apporter des renseignements sur l'état magnétique des matériaux étudiés et on a vu aux chapitres II et IV ce qu'il en est dans le cas de  $CeRu_2Si_2$ . Ces variations de  $v_H$  ne sont souvent intéressantes qu'à basse température et comme d'autre part elles sont longues et délicates à mesurer, nous n'avons relevé des courbes complètes jusqu'à  $\sim 8$  T qu'à quelques températures pour chaque échantillon. Bien que l'expression "tension de Hall" soit couramment utilisée, il est plus intéressant de présenter les résultats sous la forme de résistivité de Hall,  $\rho_H = v_H \cdot d/i$ , qui, en normalisant les résultats par rapport à l'épaisseur  $d$  des échantillons et le courant  $i$ , permet de mieux effectuer des comparaisons.

#### V-3-2-1 Résultats expérimentaux

Les figures V-26 à V-32 montrent les variations de  $\rho_H(H)$  des différents échantillons étudiés. (Les deux premières représentent des résultats obtenus à Orsay).

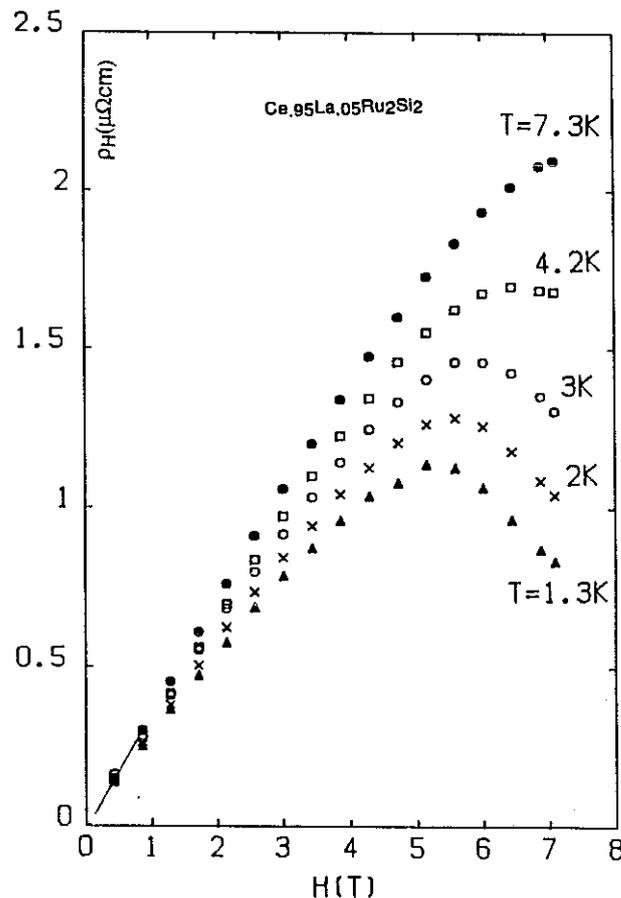


Fig. V-26 : Variation de la résistivité de Hall de l'alliage  $Ce_{0.95}La_{0.05}Ru_2Si_2$  en fonction du champ magnétique.

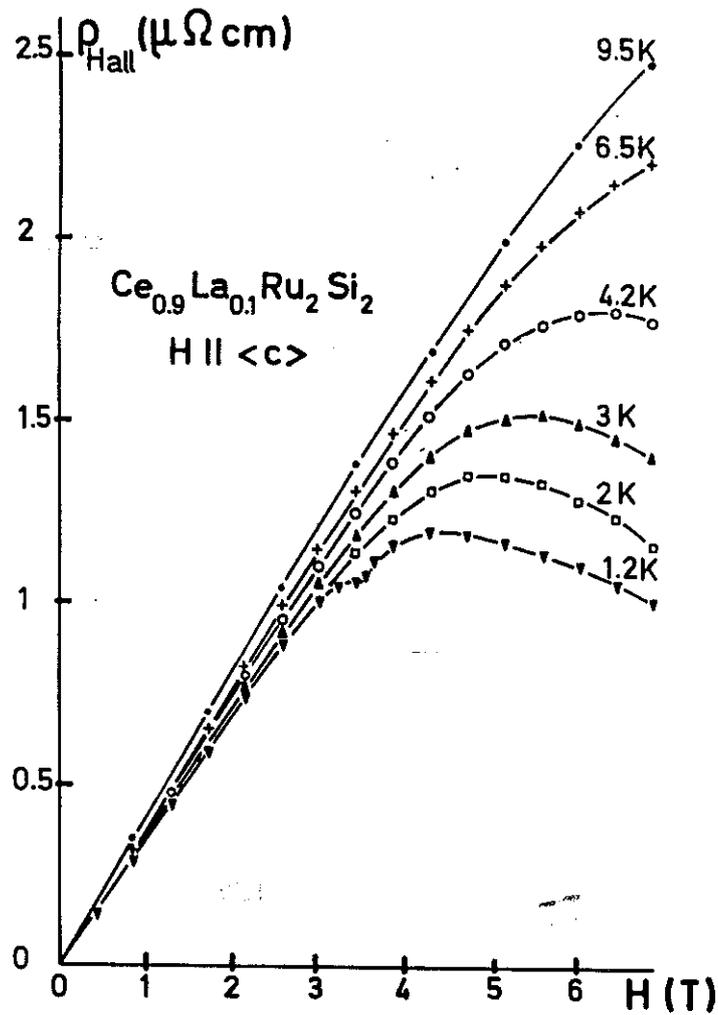


Fig. V-27 : Résistivité de Hall de l'alliage  $\text{Ce}_{0,90}\text{La}_{0,10}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ .

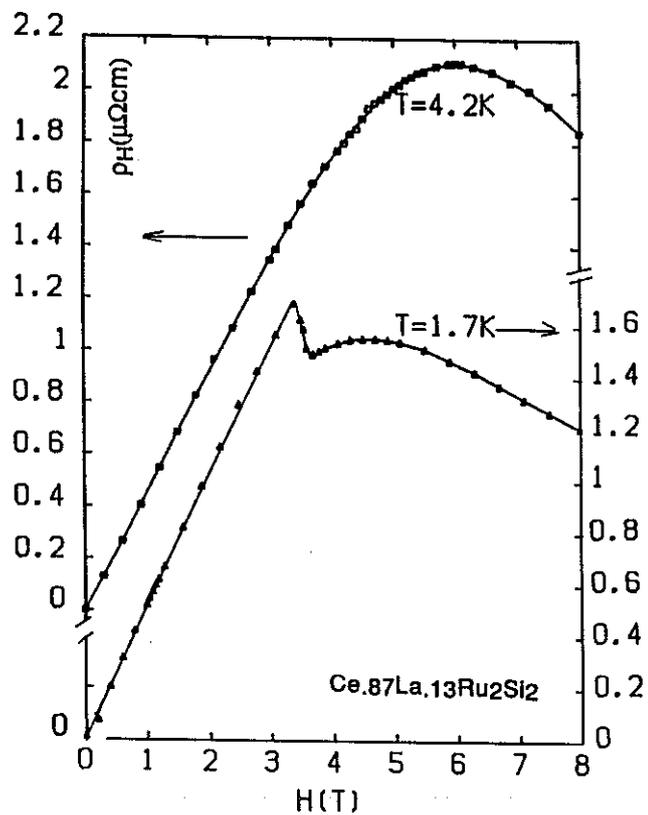


Fig. V-28 : Résistivité de Hall de  $\text{Ce}_{0,87}\text{La}_{0,13}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  à 4,2 K ( $> T_N$ ) et 1,7 K ( $< T_N$ )

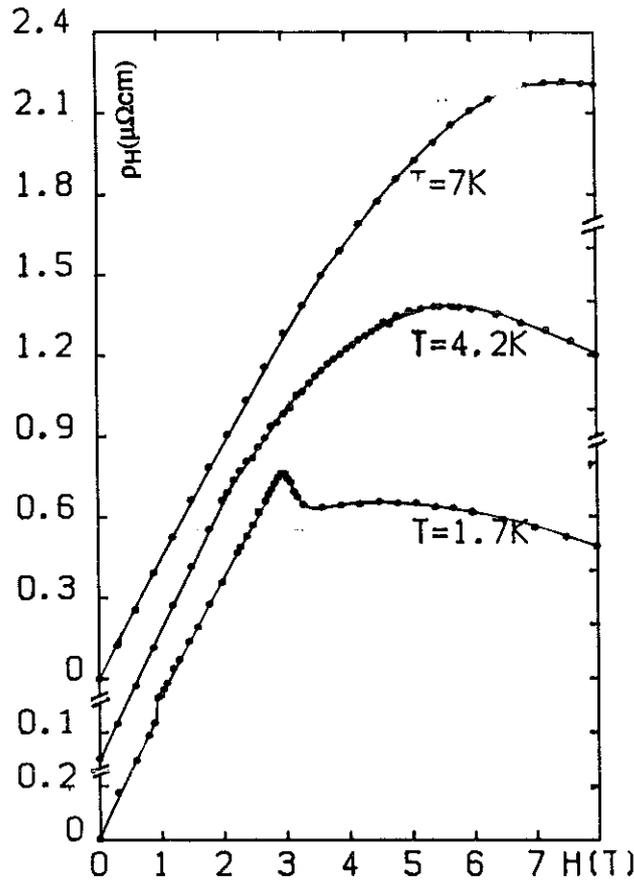


Fig. V-29 : Variation de la résistivité de Hall de l'alliage  $\text{Ce}_{0,80}\text{La}_{0,20}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  à 7 K ( $> T_N$ ), 4,2 K et 1,7 K ( $< T_N$ ) en fonction du champ magnétique.

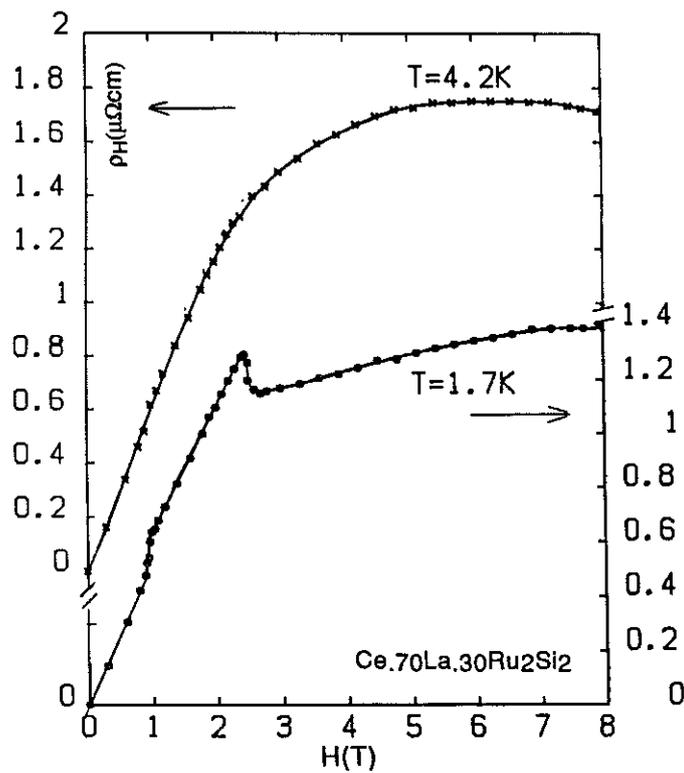


Fig. V-30 : Résistivité de Hall de  $\text{Ce}_{0,70}\text{La}_{0,30}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  à 4,2 K et 1,7 K ( $< T_N$ ).

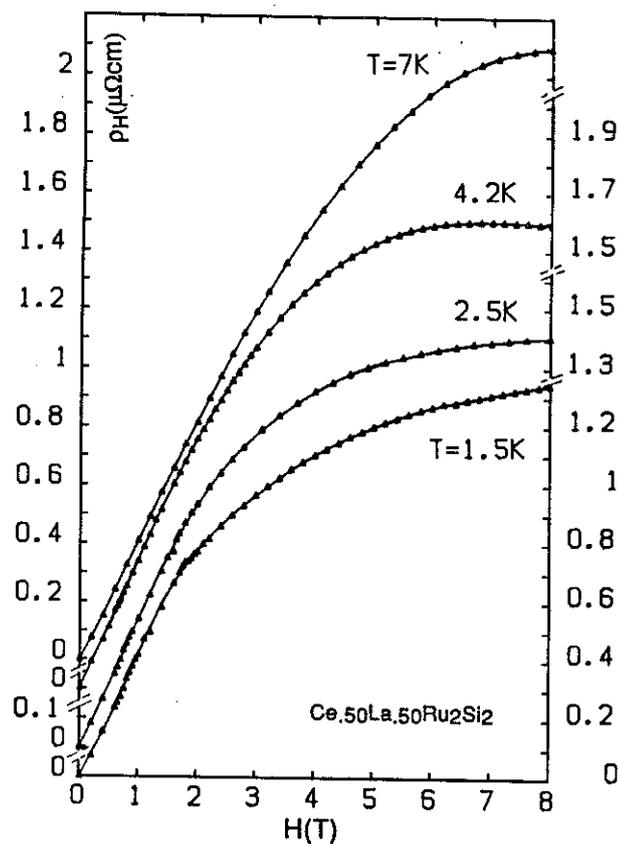


Fig. V-31 : Résistivité de Hall de  $\text{Ce}_{0,50}\text{La}_{0,50}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  à 7 K ( $> T_N$ ), 4,2 K, 2,5 K et 1,5 K ( $< T_N$ )

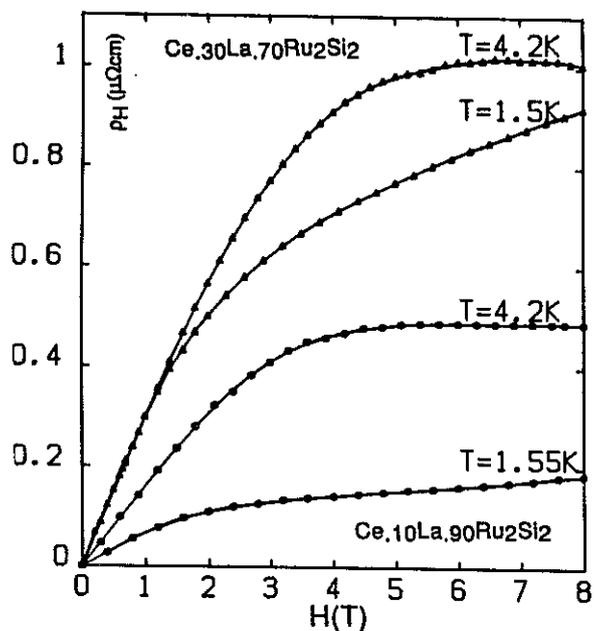


Fig. V-32 : Résistivité de Hall de  $\text{Ce}_{0,30}\text{La}_{0,70}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  et  $\text{Ce}_{0,90}\text{La}_{0,10}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  à 4,2 K et 1,5 K (soit  $T > T_N$ , sauf à 1,5 K pour le premier alliage, où  $T < T_N$ ).

Nous avons regroupé par commodité et  $\text{Ce}_{0,30}\text{La}_{0,70}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  avec  $\text{Ce}_{0,10}\text{La}_{0,90}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  sur la figure V-32. Les valeurs des champs caractéristiques ( $H_M$ ,  $H_a$ ,  $H_c$ , quand ils existent) sont indiqués par des flèches verticales. Comme pour la magnétorésistance (§ 4-1-2), on peut classer les résultats en différentes catégories :

a) Dans l'alliage non ordonné  $\text{Ce}_{0,95}\text{La}_{0,05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  (fig.V.26), les courbes d'aimantation jusqu'à 4,2 K présentent initialement une courbure positive, suivie d'un point d'inflexion à un champ  $H_M$  (indiqué par une flèche sur la figure V-26). On a vu que dans le cas de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ ,  $\rho_H(H)$  passe par un maximum à  $H_M$ . Ici par contre le champ du maximum est d'abord inférieur à  $H_M$  ( $T \leq 3\text{K}$ ), puis il augmente rapidement avec la température et excède déjà  $H_M$  à 4,2 K.

b) Dans les alliages ordonnés ( $x \geq 0,1$ ) au-dessous de leur température de Néel, on voit apparaître des anomalies de  $\rho_H(H)$  aux champs  $H_a$  et  $H_c$ , anomalies d'autant plus visibles que  $T$  est basse devant  $T_N$  : pour les concentrations en lanthane  $x = 0,2$ ,  $x = 0,3$  et  $x = 0,5$  à 1,7 K le champ  $H_a$  est marqué par un saut de  $\rho_H$  (voir détail fig. V-33), tandis qu'à 4,2 K la précision des mesures ne permet pas de le distinguer. De même, à suffisamment basse température, un pic se produit avant  $H_c$  pour certaines concentrations ( $x = 0,13$  à  $x = 0,3$ ), alors qu'à 4,2 K (si l'on est à  $T < T_N$ ), seul un coude souligne  $H_c$  (figs. V-29 et V-30). Pour les concentrations les plus extrêmes ( $x = 0,1$ ,  $x = 0,13$  et  $x = 0,7$ ) on ne distingue pas non plus  $H_a$  tandis que  $H_c$  est plus ou moins marqué. Dans tous les cas les valeurs des champs caractéristiques coïncident avec celles obtenues par aimantation. Ainsi, sur la figure V-34, nous avons représenté à titre d'exemple l'aimantation et la résistivité de Hall à l'hélium pompé pour l'alliage  $\text{Ce}_{0,70}\text{La}_{0,30}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  (analogue de la figure V-22 montrant la magnétorésistance  $\rho(T)$  et  $M(H)$  pour  $\text{Ce}_{0,80}\text{La}_{0,20}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ ). On notera que les effets d'hystérèse observés dans  $M(H)$  et dans  $\rho(H)$  ne sont pas visibles dans la tension de Hall compte tenu de la précision des mesures.

c) En ce qui concerne les alliages précédents au-dessus de  $T_N$ , on observe globalement une croissance monotone de  $\rho_H(H)$  jusqu'à une saturation presque complète en grand champ.

Cependant, les résultats des alliages  $x = 0,1$  pour  $T \geq 3\text{K}$  et  $x = 0,13$  pour  $T = 4,2\text{K}$  montrent un comportement différent, plus proche de celui décrit ci-dessus pour l'échantillon non ordonné  $x = 0,05$  : un maximum apparaît dans les courbes  $\rho_H(H)$ . Ces deux systèmes ont aussi en commun avec le précédent d'avoir, dans la gamme de température considérée (en phase paramagnétique) un point d'inflexion dans

les courbes  $M(H)$  et une magnétorésistance initialement positive. Ces particularités sont sans doute imputables à l'effet des corrélations magnétiques. On observe également comme ci-dessus un important décalage entre  $H_M$  et la position du maximum de  $\rho_H(H)$ , ainsi qu'un rapide déplacement de ce dernier vers les hauts champs quand  $T$  augmente.

Dans la phase ordonnée et jusqu'à 20% de La,  $\rho_H$  présente un maximum au-dessus de  $H_C$ , d'autant plus aigu que  $T$  est basse devant  $T_N$ , tandis que pour les concentrations en La plus fortes (alliages  $Ce_{0,70}La_{0,30}Ru_2Si_2$  à  $Ce_{0,30}La_{0,70}Ru_2Si_2$ ), cet effet est beaucoup moins marqué, voire absent. Il est possible que dans les cas où ce maximum est très net, il corresponde au passage du champ  $H_M$  où les corrélations disparaissent. La persistance d'un champ  $H_M$  au-dessous de  $T_N$  dans ces alliages serait ainsi le prolongement dans la phase ordonnée des effets de corrélations décrits au paragraphe précédent. Ce point de vue est corroboré par des mesures d'aimantation récentes [97] qui semblent montrer que  $H_M$  existe encore juste au-dessus de  $H_C$  pour  $T < T_N$ , les valeurs de  $H_M$  et  $H_C$  ne devenant égales qu'à  $T = 0$ .

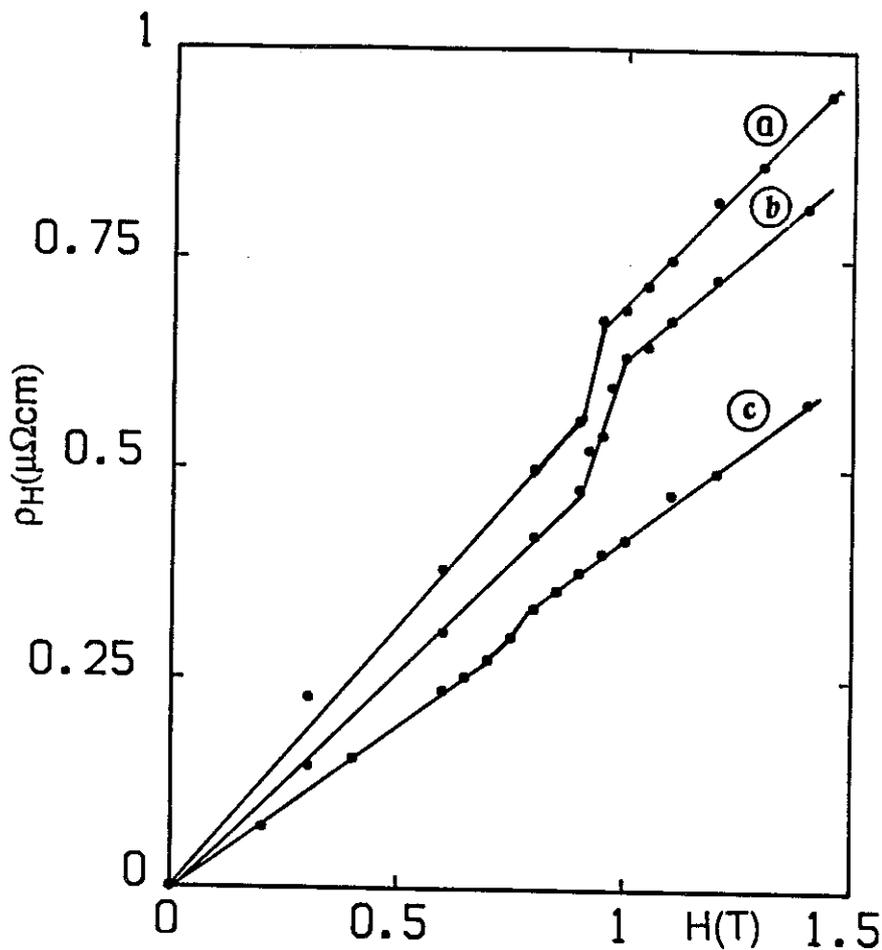


Fig. V-33 : Comportement à bas champ de la tension de Hall à 1,7 K (ou 1,5 K) :  
 (a)  $Ce_{0,80}La_{0,20}Ru_2Si_2$  ; (b)  $Ce_{0,70}La_{0,30}Ru_2Si_2$  ; (c)  $Ce_{0,50}La_{0,50}Ru_2Si_2$ .

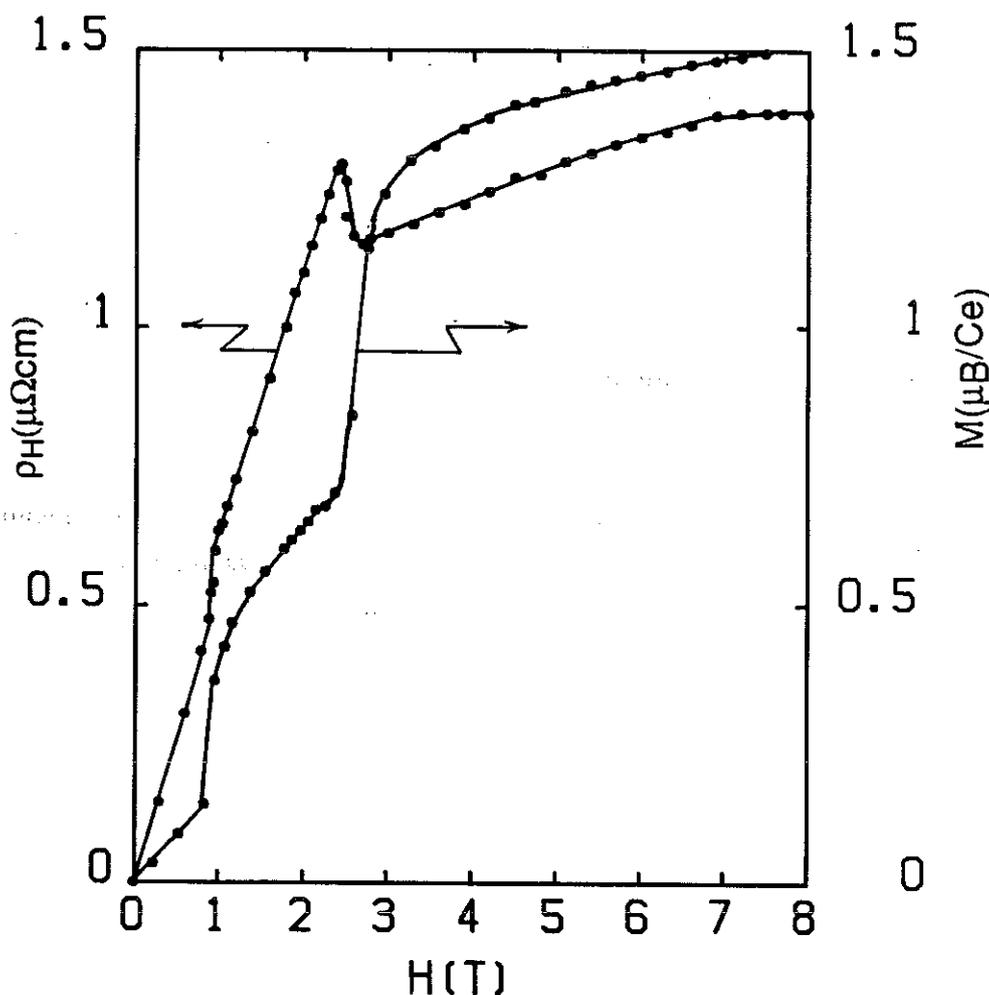
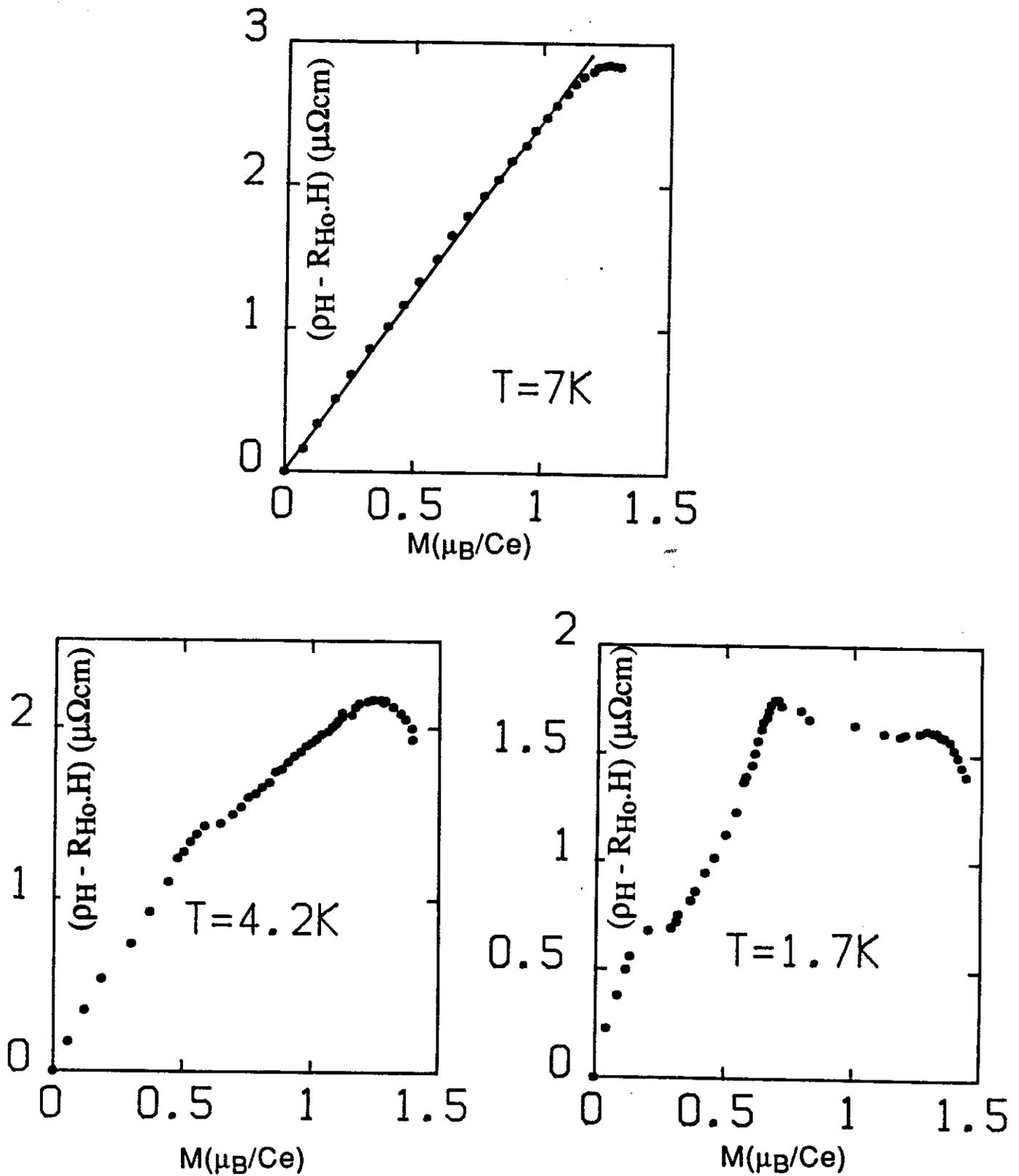


Fig. V-34 : Tension de Hall et aimantation du composé  $Ce_{0,70}La_{0,30}Ru_2Si_2$ .

### V-3-2-2 Relation entre la tension de Hall et l'aimantation

Si l'on se réfère à la relation  $\rho_H = R_0 H_{app} + 4\pi [R_0(1-N) + R_s]M$ , la tension de Hall devrait être une fonction linéaire de l'aimantation si  $R_0$  et  $R_s$  étaient indépendants du champ. Pour vérifier la validité de cette relation, on peut tracer  $\rho_H - R_0 H$  en fonction de l'aimantation  $M$ , en prenant  $R_0$  égal à  $-0,5 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^3/\text{Cb}$  (§ 5-2-3). Nous montrons dans la figure V-35, le cas du composé  $Ce_{0,80}La_{0,20}Ru_2Si_2$ . Il est évident d'après ces courbes que cette relation n'est pas valable à  $T < T_N$  ; cependant à  $T = 7 \text{ K}$ , lorsque  $Ce_{0,80}La_{0,20}Ru_2Si_2$  est dans la phase désordonnée,  $\rho_H - R_0 H$  est assez bien linéaire en  $M$  (bien que la magnétorésistance ne soit pas parfaitement proportionnelle à  $M^2$ ). Les figures V-36a et V-36b montrent le tracé de  $\rho_H$  en fonction de  $M$  pour les alliages de la concentration en La  $x = 0,7$  et  $x = 0,9$  à  $4,2 \text{ K}$  ( $> T_N$ ). On voit que dans ces cas la relation linéaire entre  $\rho_H$  et  $M$  est valable, mais seulement en-dessous d'un certain champ car en général  $\rho_H$  se sature plus vite que  $M$  ou même passe par un maximum. Cela est un effet général dans les composés et alliages de terre rare [56,58,59,97].



**Fig. V-35 :** Tracé de  $\rho_H$  en fonction de l'aimantation  $M$ , pour l'alliage  $\text{Ce}_{0.80}\text{La}_{0.20}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ .

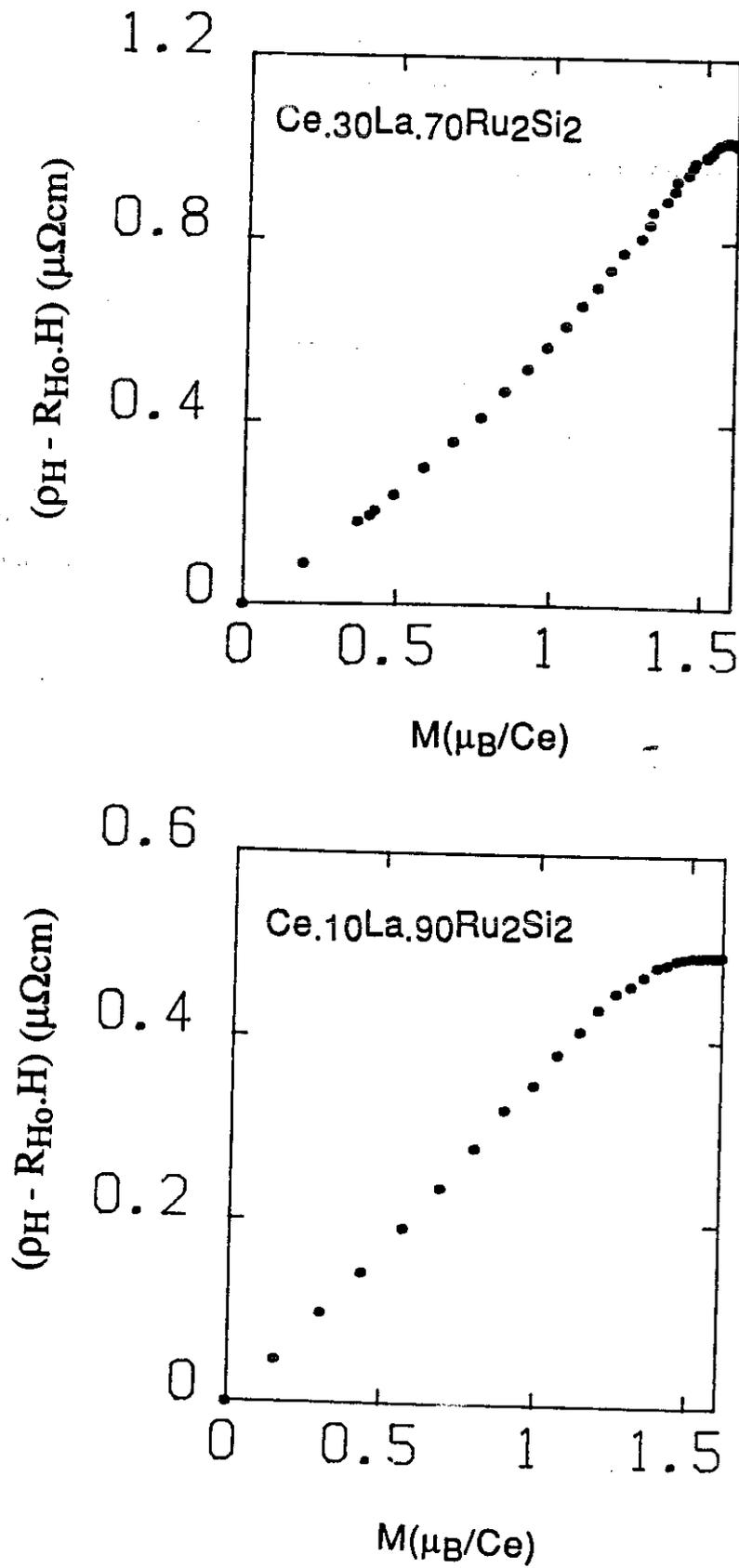


Fig. V-36 : Tracé de  $\rho_H$  en fonction de l'aimantation  $M$ , pour les alliages  $\text{Ce}_{0,30}\text{La}_{0,70}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  et  $\text{Ce}_{0,10}\text{La}_{0,90}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ .



# CONCLUSION



Ce travail se compose d'un ensemble de mesures de transport réalisées sur les alliages de la série  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ .

Dans la première partie, nous nous sommes intéressés à l'effet Hall extraordinaire du composé pur  $CeRu_2Si_2$ . Nous avons d'abord observé que l'application de la pression conserve l'allure générale de la dépendance de  $R_H$  en fonction de  $T$ , mais réduit l'amplitude du maximum et le repousse vers les hautes températures. Au-dessus de ce maximum, dans le régime de diffusion incohérente, l'effet Hall est peu sensible à la pression. En revanche, à basse température, la cohérence s'établit et l'effet Hall dépend fortement de la pression.

Le régime quadratique  $A^*T^2$  observé au-dessous de 3 K à  $P = 0$  kbar, s'étend sur des intervalles de température de plus en plus grands au fur et à mesure que la pression augmente. Le même type de comportement avait déjà été observé sur les mesures de résistivité sous pression sur ce composé. Cependant, la variation relative du coefficient  $A^*$  (effet Hall) est moins rapide que celle de  $A$  (résistivité) : -14 % par kbar au lieu de -17 %. Elle n'en demeure pas moins très forte, même pour un composé de ce type. Ceci suggère que l'effet Hall extraordinaire est dominé lui aussi à basse température par les fluctuations de spins des quasiparticules lourdes.

Assez curieusement, c'est la valeur résiduelle  $R_H(T \rightarrow 0)$  qui suit le plus fidèlement la variation en fonction de  $P$  de la température de fluctuation déduite des mesures de susceptibilité  $\chi_0(P)$ . Si l'on se souvient que la résistivité résiduelle  $\rho_0$  reste pratiquement inchangée sous pression, ce comportement satisfait dans un cas limite, la relation  $R_H \propto \chi\rho_m$  prédite par le modèle de diffusion gauche incohérente de Fert et Levy [50]. Dans le cas général cependant, l'accord n'est pas satisfaisant, notamment à basse température. Il serait intéressant de développer les calculs en tenant compte d'autres effets qui doivent jouer un rôle important dans l'effet Hall extraordinaire tels que :

- la diffusion avec saut latéral,
- l'anisotropie de champ cristallin,
- les phénomènes de cohérence.

Dans la seconde partie du travail, nous avons étudié les effets du remplacement du cérium par le lanthane dans  $CeRu_2Si_2$ . La substitution détruit progressivement les effets de cohérence à basse température. Nous avons observé ce phénomène à la fois sur l'effet Hall extraordinaire et la résistivité électrique. Ces deux propriétés indiquent clairement

l'existence de deux régimes suivant la concentration du lanthane aussi bien à haute température, qu'à basse température :

- tant que la concentration de lanthane reste inférieure à 20 %, la résistivité est semblable à celle du composé non allié, excepté qu'à basse température on peut y discerner l'effet d'une diminution de  $T_K$ , et qu'ensuite, pour  $x \geq 0,1$ , cette variation est interrompue par l'apparition de l'ordre. Dans ce régime (jusqu'à  $x = 0,15$ ),  $\rho(T)$  présente une bosse juste au-dessous de  $T_N$ . Le même comportement a été observé dans les composés  $(UPt_{0,05}Pd_{0,05})_3$  et  $URu_2Si_2$  et a été attribué à une transition d'onde de densité de spins qui s'accompagne de l'ouverture d'un gap sur une partie de la surface de Fermi.

- dès que la concentration de La excède 20 %, la courbe  $\rho(T)$  présente un comportement caractéristique de type "Cornut-Coqblin" (effet Kondo + champ cristallin) ; la variation en  $-\log T$  observée au-dessous de 30 K est suivie, à plus basse température, d'un pic dû à l'ordre magnétique.

Pour  $0,2 \leq x \leq 0,7$ , ce pic, situé à  $T \geq T_N$ , est suivi d'une seconde cassure à plus basse température. L'origine de cette dernière n'est pas bien comprise. Cependant, des mesures de neutrons ont montré le développement de l'harmonique 3, et peut-être même du fondamental, à des températures correspondant à celles de cette seconde anomalie, traduisant que la modulation des moments magnétiques n'est plus sinusoïdale dans cette gamme de température.

Enfin, nos mesures montrent qu'au-dessous de 70 % de cérium, les résistivités, à l'ambiante et "résiduelle", la pente de la variation logarithmique, ainsi que la valeur résiduelle et l'effet Hall extraordinaire, sont proportionnels à la concentration de Ce, comme les autres propriétés du système : température d'ordre et champ critique de la phase ordonnée.

A partir de nos mesures en champ magnétique, nous a mis en évidence que dans l'alliage non ordonné  $Ce_{0,95}La_{0,05}Ru_2Si_2$ , la magnétorésistance à basse température est directement reliée à la courbure positive de  $M(H)$ . Ceci peut indiquer un effet de compétition entre les corrélations antiferromagnétiques et le champ magnétique appliqué.

Nous avons également mis en évidence un changement de la densité d'états des quasiparticules en comparant le terme linéaire  $BT$  de la résistivité à champ fixe dans  $Ce_{0,95}La_{0,05}Ru_2Si_2$  à celui de  $CeRu_2Si_2$ .

Pour les alliages (Ce,La)Ru<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> ordonnés, de concentration en Ce inférieure à 80 %, le résultat essentiel est le parallèle existant entre les anomalies d'aimantation, de magnétorésistance et de tension de Hall dans la phase ordonnée, tandis qu'au-dessus de T<sub>N</sub>, on observe une magnétorésistance négative conforme à celle attendue dans le cas d'un effet Kondo.

Pour les alliages ordonnés proches de la concentration critique, les dépendances en champ de part et d'autre de T<sub>N</sub> indiquent un comportement complexe. L'effet du champ extérieur s'exerce sur des moments qui sont, soit ordonnés selon une structure modulée (transitions de phase négatives à H<sub>a</sub> et H<sub>c</sub>), soit couplés à courte portée ("métamagnétisme" à H<sub>M</sub>). La suggestion faite par Haen et coll. [68] à partir de mesures d'aimantation, d'une possible coexistence des deux effets dans une gamme limitée de température et de concentration ouvre des perspectives intéressantes à condition de rester attentif aux effets d'inhomogénéité qui peuvent exister dans les alliages. L'étude microscopique aux neutrons, tant structurale (longueurs de corrélations) que dynamique (spectre des fluctuations) qui vient de débiter, devrait constituer un complément naturel aux mesures de transport électrique réalisées dans le cadre du présent travail.



## REFERENCES



- [1] Z. Fisk, H.R. Ott, T.M. Rice et J.L. Smith, *Nature*, **320** (1986) 124.
- [2] Z. Fisk, D.W. Hess, C.J. Pethick, D. Pineš, J.L. Smith, J.D. Thompson et J.O. Willis, *Science*, **239** (1988) 33.
- [3] B.R. Coles, *Contemp. Phys.*, **28** (1987) 143.
- [4] P. Fulde, *J. Phys. F : Met. Phys.*, **18** (1988) 601.
- [5] Y. Ōnuki, M. Nishihara, Y. Fujimura, T. Yamazaki et T. Komatsubara, *J.M.M.M.*, **63 & 64** (1987) 317.
- [6] P.H.P. Reinders, M. Springford, P.T. Coleridge, R. Boulet et D. Ravot, *J.M.M.M.*, **63 & 64** (1987) 297.
- [7] G.R. Stewart, *Rev. Mod. Phys.*, **56** (1984) 755.
- [8] G. Aeppli, E. Bucher, C. Broholm, J.K. Kjems, J. Baumann et J. Hufnagl, *Phys. Rev. Lett.*, **60** (1988) 615.
- [9] L.P. Regnault, W.A.C. Erkelens, J. Rossat-Mignod, J. Flouquet, E. Walker, D. Jacoud, A. Amato et B. Hennion, *J.M.M.M.*, **63 & 64** (1987) 289
- [10] L.P. Regnault, W.A.C. Erkelens, J. Rossat-Mignod, J.L. Jacoud, J. Flouquet, J.M. Mignot, E. Walker, D. Jaccard, A. Amato et C. Vettier, *J. de Physique*, **49 Colloque** (1988) C8-773.
- [11] J. Rossat-Mignod, L.P. Regnault, J.L. Jacoud, C. Vettier, P. Lejay, J. Flouquet, E. Walker, D. Jaccard et A. Amato, *J.M.M.M.* **76 & 77** (1988) 376.
- [12] L.P. Regnault, W.A.C. Erkelens, J. Rossat-Mignod, P. Lejay et J. Flouquet, *Phys. Rev. B*, **38** (1988) 4481.
- [13] J.L. Jacoud, L.P. Regnault, J. Rossat-Mignod, C. Vettier, P. Lejay et J. Flouquet, *Physica*, **156 & 157 B** (1989) 818.
- [14] a) S. Barth, H.R. Ott, F.N. Gyax, B. Hitti, E. Lippelt, A. Schenck, C. Baines, B. van den Brandt, T. Konter et S. Mango, *Phys. Rev. Lett.*, **59** (1987) 2991.  
b) Y.J. Uemura, W.J. Kossler, X.H. Yu, E.A. Schone, J.R. Kempton, C.E Stronach, S. Barth, F.N. Gyax, B. Hitti, A. Schenck, C. Baines, W.F Langford, Y. Onuki et T. Komatsubara, *Phys. Rev. B*. **39** (1989) 4726.
- [15] P.W. Cooke, R.H. Heffner, R.L. Huston, M.E. Schilloci, J.L. Smith, J.O. Willis, D.E. Mac Laughlin, C. Boekema, R.L. Lichti, A.B. Benison et J. Oostens, *Hyperfine Interactions*, **31** (1986) 425.
- [16] a) D. Jaccard, R. Cijin, J. L. Jorda et J. Flouquet, *Jap. J. Appl. Phys.*, **26**, Suppl. 26-c (1987) 517.  
b) H. Nakamura, Y. Kitaoka, K. Asayama et J. Flouquet, *J. Phys. Soc. Jap.*, **57** (1987) 2644 et *J. M.M.M.*, **76 & 77** (1988) 465.  
c) H. Nakamura, Y. Kitaoka, H. Yamada et K. Asayama, *J.M.M.M.*, **76 & 77** (1988) 517.  
d) U. Rauchschwalbe, *Physica*, **147B** (1987) 1.

- [16] e) D. Jaccard, R. Cibin, A. Bezinge, J. Sierro, K. Matho et J. Flouquet, *J.M.M.M.*, **76 & 77** (1988) 255 ; D. Jaccard, J. Sierro, J.P. Brison et J. Flouquet, *J. de Physique*, **49** Colloque (1988) C8-741.
- [17] J. Kondo, *Progr. Theor. Phys.*, **27** (1964) 772.
- [18] P. Nozières, *J. Low Temp. Phys.*, **17** (1974) 31.
- [19] K.G. Wilson, *Rev. Mod. Phys.*, **47** (1975) 773.
- [20] A.M. Tsvetick et B. Wiegmann, *Adv. Phys.*, **32** (1983) 453.
- [21] C. Lacroix, *J. Appl. Phys.*, **53** (1982) 2131.
- [22] J.R. Schrieffer et P.A. Wolff, *Phys. Rev. B*, **149** (1966) 491.
- [23] S. Doniach, *Physica*, **91B** (1977) 231.
- [24] R. Jullien, J.N. Fields et S. Doniach, *Phys. Rev. Lett.*, **38** (1977) 1500.
- [25] C. Lacroix et M. Cyrot, *J.M.M.M.*, **15-18** (1980) 65.
- [26] M. Lavagna, C. Lacroix et M. Cyrot, *J. Phys.F : Met. Phys.*, **13** (1983) 1007.
- [27] C. Lacroix, *J.M.M.M.*, **63 & 64** (1987) 239.
- [28] N.E. Phillips, R.A. Fisher, S.E. Lacy, C. Marcenat, J.A. Olsen, J. Flouquet, A. Amato, D. Jaccard, Z. Fisk, A.L. Giorgi, J.L. Smith et G.R. Stewart, dans "Theoretical and Experimental Aspects of Valence Fluctuations and Heavy Fermions", édité par L.C. Gupta and S.K. Malik (Plenum, N. Y., 1987) p. 141.
- [29] A. Amato, D. Jaccard, J. Flouquet, F. Lapierre, J.L. Tholence, R.A. Fisher, S.E. Lacy, J.A. Olsen et N.E. Phillips, *J. Low Temp. Phys.*, **68** (1987) 371.
- [30] K. Andres, J.E. Graebner et H.R. Ott, *Phys. Rev. Lett.*, **35** (1975) 1979.
- [31] F. Steglich, J. Aarts, C.D. Bredl, G. Cordier, F.R. de Boer, W. Lieke et U. Rauchschwalbe, dans "Supraconductivity in d and f-band metals", édité par W. Buckel et W. Weber (Kernforschungszentrum, Karlsruhe, 1982) p. 145.
- [32] B. Batlogg, J.P. Remeika, A.S. Cooper et Z. Fisk, *J. Appl. Phys.*, **55** (1984) 2001.
- [33] R.A. Fisher, N.E. Phillips, C. Marcenat, J. Flouquet, P. Haen, P. Lejay et J.M. Mignot, *J. de Physique*, **49** Colloque (1988) C8-759.
- [34] P. Haen, J. Flouquet, F. Lapierre, P. Lejay et G. Remenyi, *J. Low Temp. Phys.*, **67** (1987) 391.
- [35] A. Benoit, J.X. Boucherle, J. Flouquet, F. Holtzberg, J. Schweizer et C. Vettier, dans "Valence Fluctuations in Solids" édité par L.M. Falicov, W. Hanke et M.B. Maple (North-Holland, Amsterdam, 1981) p. 197.
- [36] C.D. Bredl et F. Steglich, *J.M.M.M.*, **7** (1978) 286.
- [37] H.R. Ott, *Physica*, **130B** (1985), 163.
- [38] A. de Visser, A. Menovsky et J.J.M. Franse, *J.M.M.M.* **63 & 64** (1987) 365.
- [39] V.T. Rajan, *Phys. Rev. Lett.*, **51** (1983) 308.
- [40] K.H.J. Buschow et J.F. Fast, *Z. Phys. Chem.*, **50** (1966) 1.

- [41] A. Stunault, Thèse, Université Joseph Fourier, Grenoble (1988).
- [42] C.M. Hurd "The Hall effect in metal and allöys" édité par K. Mendelssohn et X.D. Timmerhaus (Plenum Press, New York, 1972).
- [43] E. M. Pugh, N. Rostocker et A. Schindler, *Phys. Rev.*, **80** (1950) 688.
- [44] L. Berger, *Phys. Rev. B*, **2** (1970) 2126.
- [45] P. Nozières et C. Lewiner, *J. de Physique*, **34** (1973) 901.
- [46] A. Fert, A. Friederich et A. Hamzić, *J.M.M.M.*, **24** (1981) 231;  
A. Fert et A. Friederich, *Phys. Rev. B*, **13** (1976) 397.
- [47] A. Fert, *J. Phys. F : Met. Phys.*, **3** (1973) 2126.
- [48] B. Coqblin et J.R. Schrieffer, *Phys. Rev.*, **185** (1969) 847.
- [49] T.V. Ramakrishnan, P. Coleman et P.W. Anderson, *J.M.M.M.*, **47 & 48** (1985) 493 ; P. Coleman, P.W. Anderson et T.V. Ramakrishnan, *Phys. Rev.Lett.*, **55** (1985) 414.
- [50] a) A. Fert et P.M. Levy, *Phys. Rev. B*, **36** (1987) 1907.  
b) A. Fert, A. Hamzić et P.M. Levy, *J.M.M.M.*, **63 & 64** (1987) 535.
- [51] M. Hadzić-Leroux, A. Hamzić, A. Fert, P. Haen, F. Lapierre et O. Laborde, *Europhys. Lett.*, **1** (1986) 579.
- [52] F. Lapierre, P. Haen, A. Briggs, A. Hamzić, A. Fert et J.P. Kappler, *J.M.M.M.*, **63 & 64** (1987) 338.
- [53] a) P.M. Levy et A. Fert, *Europhys. Lett.*, **5** (1988) 463.  
b) P.M. Levy, *Phys. Rev. B*, **38** (1988) 6779.
- [54] a) A. Hamzić, A. Fert, J.M. Broto, M. Miljak, E. Bauer et E. Gratz, *J. de Physique*, **49** Colloque (1988) C8-777.  
b) A. Fert, P. Pureur, A. Hamzić et J.P. Kappler, *Phys. Rev. B*, **32** (1988) 7003.
- [55] a) M. Christen et M. Godet, *Phys. Lett.*, **63A** (1977) 125.  
b) M. Christen, Thèse, Université de Genève (1979).
- [56] a) A. Berger, E. Bucher, P. Haen, F. Holtzberg, F. Lapierre, T. Penney et R. Tournier, dans "Valence Instabilities and Related Narrow Band Phenomena", édité par R.D. Parks (Plenum Press, New York, 1977) p. 491 ; P. Haen, F. Lapierre, J.-M. Mignot et R. Tournier, *J.M.M.M.*, **15-18** (1980) 909.  
b) F. Lapierre, Thèse d'Etat, Grenoble (1980).
- [57] F. Lapierre, P. Haen, A. Briggs et M. Sera, *J.M.M.M.*, **63 & 64** (1987) 76.
- [58] a) U. Welp, P. Haen, G. Bruls, G. Remenyi, J. Flouquet, P. Morin, A. Briggs, G. Cors et M. Karkut, *J.M.M.M.*, **63 & 64** (1987) 28.  
b) U. Welp, Thèse, Université de Constance (1988).
- [59] E. Cattaneo, *Z. Phys. B, Condensed Matter.*, **64** (1986) 305.
- [60] Z. Ban et M. Sikirica, *Acta Cryst.*, **18** (1965) 594.
- [61] R. Ballestracci et G. Astier, *C.R. Acad. Sci., Ser. B*, **286** (1978) 281.

- [62] P. Lehmann, Thèse, Université Louis Pasteur, Strasbourg (1987).
- [63] M.J. Besnus, J.P. Kappler, P. Lehmann et A. Meyer, *Solid State Commun.*, **55** (1985) 779.
- [64] M.J. Besnus, P. Lehmann et A. Meyer, *J.M.M.M.*, **63 & 64** (1987) 323.
- [65] P. Lehmann, M.J. Besnus, J.P. Kappler et A. Meyer, dans "Theoretical and Experimental Aspects of Valence Fluctuations and Heavy Fermions", édité par L.C. Gupta et S.K. Malik (Plenum Press, New York, 1987) p. 425.
- [66] J.D. Thompson, J.O. Willis, C. Godart, D.E. Mac Lauglin et L.C. Gupta, *Solid State Commun.*, **56** (1985) 169.
- [67] F. Steglich, U. Rauchschwallble, U. Gottwick, H.M. Mayer, G. Sparn, N. Grewe, U. Poppe et J.J.M. Franse, *J. Appl. Phys.*, **57** (1985) 3054.
- [68] R.A. Fisher, P. Haen et coll., à paraître.
- [69] A. Amato, D. Jaccard, J. Sierro, F. Lapierre, P. Haen, P. Lejay et J. Flouquet, *J.M.M.M.* **76 & 77** (1988) 263 ; A. Amato, Thèse, Université de Genève (1988).
- [70] J. Voiron, J.-M. Mignot, P. Lejay, P. Haen et J. Flouquet, *J. de Physique*, **49** (1988) 1555.
- [71] a) A. Ponchet, Thèse, Université Joseph Fourier, Grenoble (1987).  
b) J.-M. Mignot, J. Flouquet, P. Haen, F. Lapierre, L. Puech et J. Voiron, *J.M.M.M.*, **76 & 77** (1988) 97.  
c) J.-M. Mignot, A. Ponchet, P. Haen, F. Lapierre et J. Flouquet, à paraître.
- [72] J.-M. Mignot et J. Wittig, dans "Valence Instabilities" édité par P. Wachter et H. Boppart (North-Holland, Amsterdam, 1982) p. 203.
- [73] J.D. Thompson, M.W. McElfresh, J.O. Willis, Z. Fisk, J.L. Smith et M.B. Maple, *Phys. Rev. B*, **35** (1987) 48.
- [74] V.V. Moshchalkov et N.B. Brandt, *Sov. Phys. Usp.*, **29** (1986) 725.
- [75] Y. Ōnuki et T. Komatsubara, *J.M.M.M.*, **63 & 64** (1987) 281.
- [76] S. Quézel, P. Burlet, J.L. Jacoud, L.P. Regnault, J. Rossat-Mignod, P. Lejay et J. Flouquet, *J.M.M.M.* **76 & 77** (1988)
- [77] P. Haen, F. Lapierre, J.P. Kappler, P. Lejay, J. Flouquet et A. Meyer, *J.M.M.M.*, **76 & 77** (1988) 143.
- [78] P. Haen, J.P. Kappler, F. Lapierre, P. Lehmann, P. Lejay, J. Flouquet et A. Meyer, *J. de Physique*, **49** colloque (1988) C8-757.
- [79] L.J. Van der Pauw, *Philips Res. Rep.*, **13** (1958) 1  
et *Philips Tech. Rev.*, **20** (1958) 220.
- [80] Pont de mesure de faibles résistances, Pont de capacité et Siemensmètre, conçus au C.R.T.B.T. et commercialisés par Barras-Provence.

- [81] M. Konczykowski, M. Baj, E. Szafarkiewicz, L. Konczewicz and S. Porowski, dans "High Pressure and Low Temperature Physics", édité par C.V. Chu and J.A. Wollam (Plenum, New York, 1978), p. 523.
- [82] M. Konczykowski, Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses, Communication personnelle.
- [83] G. Frossatti, *J. de Physique*, **39** colloque (1978) C6-1578.
- [84] J.-M. Mignot, Thèse d'Etat, Grenoble (1980).
- [85] T. Penney, F.P. Milliken, S. von Molnar, F. Holtzberg et Z. Fisk, *Phys. Rev. B*, **34** (1986) 5959.
- [86] T.T.M. Palstra, A.A. Menovsky et J.A. Mydosh, *Phys. Rev.B* **33** (1985) 6527.
- [87] A. de Visser, P. Haen, T. Vorenkamp, M. van Sprang et A.A. Menovsky, *J.M.M.M.*, **76 & 77** (1988) .
- [88] J.-M. Mignot, J.L. Jacoud et L.P. Regnault, non publié.
- [89] A. Najib, J. Pierre, M.J. Besnus, P. Haen, A.P. Murani et E. Siaud, *Z. Phys. B - Cond. Matt.* **73** (1988) 49 ; A. Najib, Thèse, Grenoble (1988).
- [90] F. Lapierre et P. Haen, non publié.
- [91] J. Flouquet, P. Haen, C. Marcenat, P. Lejay, A. Amato, D. Jaccard et E. Walker, *J.M.M.M.*, **52** (1985) 85. ; C. Marcenat, Thèse, Grenoble (1986).
- [92] M. Lavagna, C. Lacroix et M. Cyrot, *J. Phys. F* **12** (1982) 745.
- [93] J.L. Jacoud et J.-M. Mignot, communication personnelle.
- [94] P. Haen, F. Holtzberg, F. Lapierre, T. Penney et R. Tournier, dans "Valence Instabilities and Related Narrow Band Phenomena", édité par R.D. Parks (Plenum Press, New York, 1977) p. 495.
- [95] Y. Lassailly, Thèse d'Etat, Grenoble (1985).
- [96] G. Chouteau, F. Holtzberg, J.-M. Mignot, O. Peña et R. Tournier, dans "Valence Instabilities and Related Narrow Band Phenomena", édité par R.D. Parks (Plenum Press, New York, 1977) p.483 ; O. Peña, Thèse d'Etat, Grenoble (1979).
- [97] H. Bioud, Thèse de 3<sup>e</sup> cycle, Grenoble (1986).



AUTORISATION DE SOUTENANCE

DOCTORAT 3ème CYCLE, DOCTORAT INGENIEUR,  
DOCTORAT DE L'UNIVERSITE JOSEPH FOURIER - GRENOBLE 1

Vu les dispositions de l'Arrêté du 16 avril 1974,

Vu les dispositions de l'Arrêté du 5 juillet 1984,

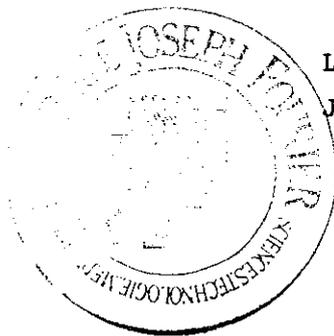
Vu les rapports de M<sup>rs</sup> ... Bernard ... Coqblin .....

M<sup>rs</sup> ... Jacques ... Pierre .....

M ... DJERBI ... Ridha ..... est autorisé(e)  
à présenter une thèse en vue de l'obtention du ... doctorat ... de .....  
... l'université ... Joseph Fourier - Grenoble I .....

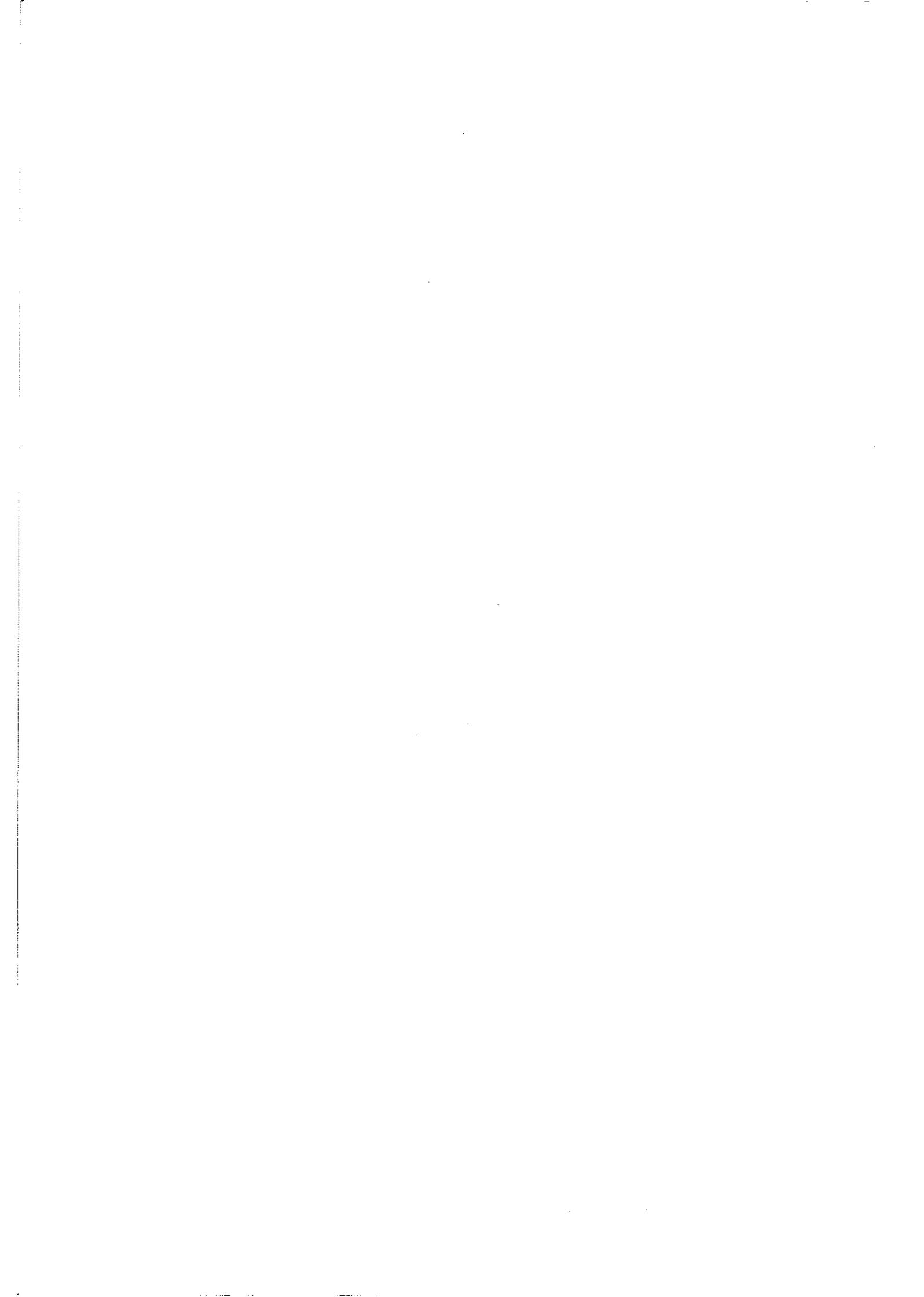
- 2 FEV. 1989

Grenoble, le .....



Le Président de l'Université  
Joseph Fourier - Grenoble I

  
L'Administrateur Provisoire,  
Michel SOUTIF



## ABSTRACT

This work is a contribution to the study of the anomalous magnetism of the alloys  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ , from the "heavy-fermion" regime occurring in pure  $CeRu_2Si_2$  to the independent-impurity Kondo-type phenomena observed at high Ce dilution. It is based on a series of electrical-transport measurements performed on single crystals : resistivity  $\rho[T]$  ( $0.02 \leq T \leq 300$  K), Hall constant  $R_H[T]$  ( $1.5 \leq T \leq 300$ K), magnetoresistance  $\rho[H]$  and Hall voltage  $v_H[H]$  between 0 et 8 T ( $1.5 \leq T \leq 7$  K).

$CeRu_2Si_2$  exhibits an anomalous Hall effect, due to asymmetries in the scattering of conduction electrons on the magnetic sites, which is characterized by large positive values of  $R_H$ . By applying hydrostatic pressures up to 10 kbar, we have observed a decrease of the  $T^2$  term in the Fermi-liquid regime and a shift of the maximum in  $R_H[T]$  to higher temperatures. This behavior is compared to effects previously observed on the electrical resistivity and the magnetic susceptibility in the same pressure range, and discussed in relation to current theories.

By destroying coherence effects at low temperatures, lanthanum substitution produces a strong increase of  $R_H[T \rightarrow 0]$ . It further lowers the characteristic temperature of spin fluctuations and increases the range of intersite interactions, thereby allowing a modulated antiferromagnetic structure to develop for  $x \sim 0.08$  and above. The ordering is reflected on the  $\rho[T]$  curves by the occurrence of anomalies near  $T_N$  whose characteristics vary as a function of concentration. For  $0.2 \leq x \leq 0.7$ , an additional change of slope around 2 K is observed which may be related to an enhancement of the 3<sup>rd</sup> harmonic of the modulation of the magnetic moments.

In the dilute state, the cerium ions essentially behave like independent Kondo impurities, with a logarithmic variation of  $\rho[T]$  between  $\sim 30$  K and  $T_N$ . The coefficient of this term is proportional to the Ce concentration (1-x), and so are the ordering temperature and the low-temperature Hall constant. Surprisingly, this holds true almost up to 70% cerium.

The magnetoresistance results emphasize the analogy between the metamagnetic phenomena occurring in the pure compound and the alloys with low lanthanum concentrations (up to 5%): a positive maximum in  $\rho[H]$  corresponding to the transition observed in the magnetization, implying an increase of the effective mass between  $H = 0$  and  $H_M$ . At higher concentrations, one observes the appearance in the ordered phase of abrupt changes in the magnetoresistance and the Hall voltage, which traduce the existence of a magnetic phase diagram with two distinct transition fields  $H_a$  and  $H_c$ .

### KEYWORDS

Cerium compounds	Heavy fermions	Kondo effect	Resistivity
Magnetoresistance	Hall effect	Pressure	Metamagnetism



## RESUME

Ce travail est une contribution à l'étude du magnétisme anormal des alliages  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ , depuis le régime "fermions lourds" existant dans  $CeRu_2Si_2$  pur jusqu'aux phénomènes de type effet Kondo d'impuretés indépendantes observés dans les alliages fortement dilués en cérium. Il repose sur un ensemble de mesures de transport électrique réalisées sur monocristaux : résistivité  $\rho[T]$  ( $0,02 \leq T \leq 300$  K), constante de Hall  $R_H[T]$  ( $1,5 \leq T \leq 300$  K), magnétorésistance  $\rho[H]$  et tension de Hall  $v_H[H]$  entre 0 et 8 T ( $1,5 \leq T \leq 7$  K).

$CeRu_2Si_2$  présente un effet Hall anormal, dû aux asymétries de diffusion des électrons de conduction sur les sites magnétiques, qui se caractérise par des valeurs positives élevées de  $R_H$ . En appliquant des pressions hydrostatiques jusqu'à 10 kbar, nous avons constaté une décroissance du terme en  $T^2$  dans le régime liquide de Fermi et un déplacement du maximum de  $R_H[T]$  vers les hautes températures. Ce comportement est comparé aux effets observés antérieurement sur la résistivité et la susceptibilité dans la même gamme de pression, et discuté dans le cadre des modèles existants.

La substitution du lanthane au cérium, en détruisant les effets de cohérence à basse température, induit une très forte augmentation de  $R_H[T \rightarrow 0]$ . Elle a également pour effet d'abaisser la température caractéristique des fluctuations de spins et d'augmenter la portée des interactions magnétiques intersites, permettant ainsi le développement d'une structure antiferromagnétique modulée à partir de  $x \sim 0,08$ . L'apparition de l'ordre se traduit sur les courbes  $\rho[T]$  par la présence, au voisinage de  $T_N$ , d'anomalies dont la nature varie suivant la concentration. Pour  $0,2 \leq x \leq 0,7$ , on observe en outre un changement de pente aux environs de 2 K qui peut être relié à une augmentation de l'harmonique 3 de la modulation des moments magnétiques.

A l'état dilué, les ions de cérium se comportent essentiellement comme des impuretés Kondo indépendantes avec une variation logarithmique de  $\rho[T]$  entre  $\sim 30$  K et  $T_N$ . Le coefficient de ce terme est proportionnel à la concentration  $(1-x)$  de Ce, de même que la température d'ordre et la constante de Hall à basse température. Il est surprenant de constater que ceci reste vrai jusqu'à près de 70% de cerium.

Les résultats de magnétorésistance soulignent l'analogie entre les phénomènes de métamagnétisme se produisant dans le composé pur et les alliages peu concentrés en La (jusqu'à  $x \sim 5\%$ ) : maximum positif de  $\rho[H]$  correspondant à la transition observée en aimantation, impliquant une augmentation de la masse effective entre  $H=0$  et  $H_M$ . Aux plus fortes concentrations, on voit apparaître dans la phase ordonnée des sauts de magnétorésistance et de tension de Hall traduisant l'existence d'un diagramme de phases magnétique avec deux champs de transition distincts  $H_a$  et  $H_c$ .

### MOTS CLES

Composés de cérium  
Magnétorésistance

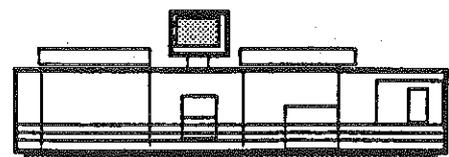
Fermions lourds  
Effet Hall

Effet Kondo  
Pression

Résistivité  
Métamagnétisme



Grenoble, novembre 1993



Impression et finition réalisées sur Rank Xerox 5090,  
au Service Reprographie du CNRS.

