

THESE

présentée par

Stefan HOLTMEIER

Pour obtenir le titre de Docteur
de l'Université Joseph Fourier - Grenoble I
Specialité Physique

EFFETS MAGNETOVOLUMIQUES DANS DES COMPOSES A FERMIONS LOURDS CeRu_2Si_2 , CeCu_6 ET CeNiSn

Soutenue le 15 septembre 1994 devant la commission d'examen :

Président	P. Morin
Examineurs	B. Coqblin
	P. Pfeuty
	A. de Visser
	P. Haen
	J. Flouquet

Thèse préparée au sein du centre de recherches sur les très basses températures
- Centre National de la Recherche Scientifique -

Je tiens, pour commencer, à exprimer ma vive reconnaissance à Monsieur P. Monceau, directeur du CRTBT, de m'avoir accueilli dans son laboratoire.

Ensuite, je voudrais témoigner ma profonde gratitude à Monsieur P. Haen, directeur de la thèse. Sa bienveillance et son dévouement furent des atouts majeurs pour le bon déroulement de mes recherches et pour l'aboutissement de ce travail.

Sont aussi priés de recevoir mes remerciements, Messieurs P. Morin, B. Coqblin, P. Pfeuty, J. Flouquet et A. de Visser, de m'avoir accordé l'honneur de faire partie du jury.

Monsieur A. de Visser, avec Monsieur A. Lacerda, m'a de plus instruit aux techniques de mesure de dilatation thermique et de magnétostriction. Il m'a offert, à deux reprises, la possibilité de travailler dans son laboratoire à Amsterdam avec un financement de la Communauté Européenne. Je lui en suis redevable.

J'en sais, par ailleurs, infiniment gré

à Monsieur K. Matho, pour les nombreuses et profitables discussions que nous avons eues ensemble,

à Messieurs Y. Isikawa, P. Lejay et E. Walker qui ont préparé les cristaux que j'ai étudiés,

à Monsieur C. Paulsen pour ses mesures d'aimantation de haute précision à mon intention,

à Monsieur J. J. Konig pour m'avoir aidé à effectuer des mesures en champs intenses et à Monsieur L. Perli pour avoir consacré un temps précieux à faire en urgence des pièces pour la cellule de mesure.

Il est légitime d'avouer, en somme, que l'esprit d'ouverture et d'indulgence qui anime tous les membres du CRTBT a largement contribué à la réussite de mon travail. Je fus et resterai sensible à cet égard.

Enfin, j'adresse un ultime témoignage de reconnaissance au Commissariat des Communautés Européennes qui a financé cette thèse dans le cadre du programme BRITE / EURAM.

AVANT PROPOS

Le présent travail s'insère dans une étude plus large des propriétés physiques et en particulier des transitions qu'ils présentent à très basse température, des composés à fermions lourds CeRu_2Si_2 , CeCu_6 et CeNiSn . Cette étude a été entreprise en collaboration avec d'autres chercheurs du laboratoire et du DRF au CENG.

Les premiers travaux effectués sur CeRu_2Si_2 et CeCu_6 remontent à près d'une dizaine d'années. L'étude de leur propriétés magnétovolumiques, bien que plus récente, a déjà fait l'objet de la thèse de A. Lacerda [1990] qui, avec A. de Visser, a construit la cellule de mesure. Notre travail expérimental a consisté tout d'abord à étudier un alliage $\text{Ce}_{0,985}\text{Y}_{0,015}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ afin de compléter l'étude de A. Lacerda qui portait sur CeRu_2Si_2 et sur un alliage $\text{Ce}_{0,95}\text{La}_{0,05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$. Puis nous avons effectué un travail important sur CeCu_6 , en partie à Amsterdam avec A. de Visser. Par contre, notre étude des propriétés magnétovolumiques de CeNiSn est entièrement nouvelle.

Au risque de moins bien faire ressortir notre contribution, nous avons donc choisi de traiter de chacun de ces trois composés dans trois grandes parties principales, divisées chacune en au moins trois sections : rappels des propriétés, résultats de nos mesures et discussion.

En raison de l'abondant travail déjà effectué à Grenoble et ailleurs, les rappels sont assez conséquents, surtout en ce qui concerne CeRu_2Si_2 et CeCu_6 . La section "résultats" commence chaque fois par une rubrique "caractéristiques de l'échantillon étudié" où sont donnés des résultats parfois très récents de mesures effectuées par d'autres chercheurs (et non encore publiés comme dans le cas de CeNiSn). Mais nous avons estimé cela très utile pour situer le cristal par rapport à ceux étudiés précédemment ou dans d'autres laboratoires. De plus, en ce qui concerne nos résultats sur $\text{Ce}_{0,985}\text{Y}_{0,015}\text{Ru}_2\text{Si}_2$, ils étaient indissociables de ceux obtenus par A. Lacerda sur CeRu_2Si_2 et $\text{Ce}_{0,95}\text{La}_{0,05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ et nous les avons présentés et discutés tout ensemble.

Ces trois parties principales sont précédées d'une introduction générale aux systèmes de fermions lourds, et d'une description des appareillages de mesure utilisés. Le mémoire se termine par une conclusion générale et la liste globale des références bibliographiques.

TABLE DES MATIERES

PREMIERE PARTIE : INTRODUCTION GENERALE	7
I.1. Introduction.....	9
I.2. Effet Kondo.....	12
I.3. Réseau Kondo	14
I.4. Fermions Lourds.....	16
I.5. Propriétés Volumiques.....	19
I.5.1. Dilatation thermique et paramètre de Grüneisen.....	19
I.5.2. Effets magnétovolumiques dans les composés à fermions lourds.....	20
DEUXIEME PARTIE : TECHNIQUES EXPERIMENTALES	23
II.1. Cellule capacitive.....	25
II.2. Système de détection.....	27
II.3. Mesure de la dilatation thermique.....	28
II.4. Magnétostriction.....	32
II.5. Calcul de l'effet volumique.....	33
II.6. Cryostat ^4He	33
II.7. Cryostat à dilution.....	34
TROISIEME PARTIE : LE COMPOSE CeRu_2Si_2.....	35
III.1. Description des propriétés de CeRu_2Si_2	37
III.1.1. Historique.....	37
III.1.2. Structure cristalline de CeRu_2Si_2	38
III.1.3. Les propriétés de fermions lourds de CeRu_2Si_2	39
III.1.3.a. Au-dessus de 100 K.....	39
III.1.3.b. Région 10 - 100 K.....	40
III.1.3.c. Région 1 - 10 K.....	42
III.1.3.d. Région $T < 1$ K.....	44
III.1.4. La transition pseudométamagnétique de CeRu_2Si_2	45
III.1.5. La loi d'échelle dans CeRu_2Si_2	49
III.1.6. Les systèmes $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$ et $\text{Ce}_{1-y}\text{Y}_y\text{Ru}_2\text{Si}_2$	50
III.1.6.a. Généralités.....	50
III.1.6.b. Propriétés magnétiques des systèmes $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$ et $\text{Ce}_{1-y}\text{Y}_y\text{Ru}_2\text{Si}_2$	51
III.1.6.c. Diagramme de phase magnétique.....	56
III.1.6.d. Effet de la pression	56
III.1.7. Les effets magnétovolumiques dans CeRu_2Si_2	59

III.2. Mesure de la dilatation thermique et de la magnétostriction de $\text{Ce}_{0,985}\text{Y}_{0,015}\text{Ru}_2\text{Si}_2$	65
III.2.1. Caractéristiques du cristal étudié : propriétés magnétiques.....	65
III.2.2. Dilatation thermique et magnétostriction de $\text{Ce}_{0,985}\text{Y}_{0,015}\text{Ru}_2\text{Si}_2$: résultats expérimentaux.....	67
III.2.2.a Dilatation thermique.....	67
III.2.2.b Magnétostriction.....	68
III.2.3. Analyse des résultats : application de la loi d'échelle.....	71
III.2.3.a Thermodynamique du régime liquide de Fermi.....	71
III.2.3.b. Discussion.....	74
III.2.4. Analyse des résultats : comparaison du pic de la magnétostriction différentielle à la transition pseudométamagnétique avec celui de la susceptibilité différentielle.....	76
III.2.4.a. Variations thermiques des amplitudes et largeurs des pics de λ' et χ_M à B^*	76
III.2.4.b. Discussion.....	79
III.2.5. Analyse des résultats : le maximum à T_m	82
III.2.6. Comparaison avec UPt_3	89
III.3. Discussion sur l'origine de la transition pseudométamagnétique de CeRu_2Si_2	94
III.3.1. Modèles théoriques.....	94
III.3.2. Une explication possible de la transition pseudométamagnétique de CeRu_2Si_2	97
III.3.3. Conclusion.....	104
 QUATRIEME PARTIE : LE COMPOSE CeCu_6	105
IV.1. Description des propriétés de CeCu_6	107
IV.1.1. Structure cristalline.....	107
IV.1.2. Susceptibilité magnétique.....	108
IV.1.3. Aimantation.....	109
IV.1.4. Chaleur spécifique.....	110
IV.1.5. Propriétés de transport.....	111
IV.1.5.a. Résistivité électrique.....	111
IV.1.5.b. Conductivité thermique.....	112
IV.1.5.c. Pouvoir thermoélectrique.....	112
IV.1.5.d. Magnétorésistance.....	113
IV.1.6. Diffusion de neutrons.....	114
IV.1.7. Effets d'alliage.....	115
IV.1.8. Dilatation thermique.....	115

IV.2. Etude de la dilatation thermique et de la magnétostriction de CeCu_6 a très basse température.....	119
IV.2.1. Dilatation thermique.....	119
IV.2.2. Magnétostriction a très basse température.....	127
IV.2.3. Aimantation a très basse température.....	133
IV.2.4. Discussion.....	136
IV.2.5 Comparaison finale entre CeCu_6 et CeRu_2Si_2	140
CINQUIEME PARTIE : LE COMPOSE CeNiSn.....	141
V.1. Description des propriétés de CeNiSn	143
V.1.1. Structure cristalline.....	143
V.1.2. Susceptibilité magnétique.....	145
V.1.3. Propriétés de transport.....	146
V.1.4. Chaleur spécifique.....	148
V.1.5. Diffusion des neutrons.....	149
V.1.6. Effet du champ magnétique.....	149
V.1.6.a. Aimantation.....	149
V.1.6.b. Magnéto-résistance.....	150
V.1.6.c. Chaleur spécifique.....	150
V.1.7. Autres propriétés.....	151
V.1.7.a. Effets de pression.....	151
V.1.7.b. Effets d'alliage.....	151
V.2. Etude de la dilatation thermique et de la magnétostriction d'un monocristal de CeNiSn	152
V.2.1. Caractéristiques du cristal étudié.....	152
V.2.2. Résultats et Analyse : Dilatation thermique.....	158
V.2.2.a. Partie haute température ($T \geq 15 \text{ K}$) Résultats et analyse.....	158
V.2.2.b. Parties basse et très basse température ($T \leq 15 \text{ K}$) Résultats.....	161
V.2.2.c. Comparaison avec d'autres expériences.....	166
V.2.2.d. Analyse des résultats de dilatation thermique à basse et très basse température.....	167
V.2.2.e. Discussion critique des résultats à très basse température.....	170
V.2.3. Résultats et Analyse : Magnétostriction.....	173
V.2.4. Discussion.....	180
V.3 Conclusion.....	185
SIXIEME PARTIE : CONCLUSIONS GENERALES.....	187
SEPTIEME PARTIE : REFERENCES.....	193

I.1. INTRODUCTION

Le magnétisme des métaux provient essentiellement des électrons des couches d et f partiellement remplies. Dans les métaux de transition, les électrons des couches 3d, 4d ou 5d participent à la bande de conduction, car ces couches sont larges, comparées aux couches 4f des lanthanides et 5f des actinides, qui présentent une faible extension spatiale, et entrent peu en contact avec la bande de conduction.

Le choix entre ces deux états fondamentaux dépend donc en premier lieu des propriétés physiques de la couche considérée. Ainsi, la couche 4f des terres rares a tendance à garder son moment magnétique, et, dans leur majorité, ces éléments présentent des moments magnétiques localisés. Si l'on tient compte du fait que ce moment sera celui d'une couche presque remplie et non celui d'une couche presque vide, on peut reclasser ces éléments et ceux de transition dans une table quasi-périodique, comme cela a été fait par Smith et Kmetko [1983] (figure I.1). On voit dans ce tableau une ligne de séparation entre les métaux magnétiques et les métaux normaux. Les éléments situés sur cette ligne et leurs alliages montrent une grande variété de propriétés physiques qui ne s'expliquent pas au moyen des théories conventionnelles. Ils sont caractérisés par des densités d'états élevées, des effets volumiques importants, comme la transformation martensitique et l'effet invar dans des composés 3d ou la transition α - γ dans le fer, le cérium et l'uranium.

	empty shell	partially filled shell														full shell
		<i>Magnetic Moments</i>														
4f	La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu	
5f	Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr	
3d	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn					
4d	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd					
5d	Ba	Lu	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg					
		<i>Bonding</i>														

Figure I.1 : Classement des éléments de transition possédant des couches d et f. La ligne hachurée représente l'instabilité magnétique qui sépare les éléments ordonnés des métaux normaux [Smith 1983].

Les composés à fermions lourds sont des intermétalliques contenant en général les éléments Ce ou U. Leur couche 4f (5f dans le cas de U) ne contient qu'un électron. Les distances entre ces éléments sont supérieures à la limite de Hill [1970, 1971], de l'ordre de 3,5Å, au-dessous de laquelle les orbitales f se recouvrent directement. Dans ce qui suit nous discuterons le cas des composés de cérium, où les électrons s, p, d participent à la bande de conduction alors que l'électron 4f reste dans sa couche, qui est d'une extension spatiale relativement faible (0.5Å). A haute température, ces composés se comportent comme des systèmes de moments magnétiques (Ce³⁺) quasi - indépendants, alors qu'à basse température les interactions entre les électrons 4f et la bande de conduction deviennent importantes.

La description théorique la plus générale d'une impureté magnétique dans une matrice métallique est l'hamiltonien d'Anderson :

$$\mathcal{H} = \sum_{k,\sigma} \epsilon_k n_{k\sigma} + \sum_{\sigma} E_f n_{f\sigma} + \frac{U}{2} n_{f\uparrow} n_{f\downarrow} + \sum_{k,\sigma} (V_{kf} c_{k\sigma}^{\dagger} d_{f\sigma} + \text{c.c.}) \quad (\text{I.1})$$

avec $n_{k\sigma} = c_{k\sigma}^{\dagger} c_{k\sigma}$; $n_{f\sigma} = d_{f\sigma}^{\dagger} d_{f\sigma}$

Les opérateurs ($c^{\dagger}$, c) et ($d^{\dagger}$, d) décrivent la création et l'annihilation d'un électron de conduction de vecteur d'onde k et de spin σ et d'un électron de la couche 4f (ou bien 5f, 3d, ...) de spin σ . Le premier terme de l'hamiltonien décrit la bande de conduction dont l'énergie de Fermi est E_F , le second un niveau 4f localisé sur le site d'une impureté caractérisé par l'énergie E_f , le troisième l'interaction de Coulomb U qui sépare les deux composantes de spin des électrons 4f et le quatrième l'hybridation entre l'électron 4f et les électrons de conduction. L'hybridation provoque l'élargissement du niveau 4f. Mais c'est l'interaction électrostatique qui introduit une forte corrélation entre les spins des électrons.

Les paramètres essentiels sont l'énergie d'hybridation V_{kf} , l'énergie $E_F - E_f$ qui sépare la couche 4f et le niveau de Fermi et la répulsion Coulombienne U entre deux électrons de la couche 4f. L'hamiltonien d'Anderson ne peut être résolu qu'approximativement pour certains rapports entre ces derniers paramètres. Une discussion détaillée de ce problème a été donnée par exemple par Fulde [1988a, b]. Comme on peut le voir sur la figure I.2, on distingue des régimes différents selon le rapport entre ces grandeurs.

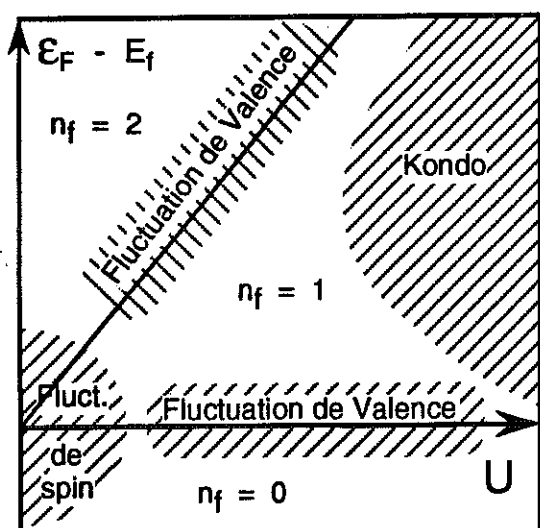


Figure 1.2 : Mise en évidence des différents régimes du modèle d'Anderson, décrivant une impureté dans une matrice métallique [Lavagna 1983].

C'est en particulier le cas du cérium, où, grâce à la faible extension spatiale de la couche 4f, le potentiel électrostatique entre deux électrons de cette couche est très grand alors que l'hybridation avec les électrons de conduction est très faible ($U \gg V_{kf}$, $E_F - E_f$). L'hamiltonien d'Anderson est alors réduit à celui du problème de l'effet Kondo [Schrieffer 1966], qui traite le problème localisation - délocalisation comme un effet de corrélation de spins. En fait, bien des propriétés des composés de Ce et d'U peuvent être comprises par l'effet Kondo, tant du point de vue expérimental que théorique. Pourtant, d'autres approximations peuvent s'appliquer aux fermions lourds, comme la théorie des fluctuations de spin. Cette dernière, qui a comme origine la description du magnétisme itinérant de la couche 3d, a été développée pour l' ^3He et a été appliquée avec quelque succès à des composés d'uranium (voir chap. III.2.6).

Les énergies importantes dans les systèmes de fermions lourds sont données dans le tableau I.1 (ci-dessous).

Répulsion Coulombienne	U	~ 10	eV
Largeur de la bande de conduction	$2D$	~ 6	eV
Energie des électrons 4f	$E_F - E_f$	~ 2	eV
Couplage LS	E_{ls}	~ 1	eV
Largeur du niveau 4f	Δ	~ 0.5	eV
Energie d'hybridation	V_{kf}	~ 0.1	eV
Séparation dans le champ cristallin	Δ_{cf}	$\sim 10^{-2}$	eV
Température de Kondo	T_K	$\sim 10^{-3}$	eV

Tableau I.1 : Ordre de grandeur des énergies caractéristiques dans les systèmes de fermions lourds [Thalmeier 1991].

I.2. EFFET KONDO

L'étude d'impuretés magnétiques diluées dans une matrice métallique a commencé dès 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 un minimum dans la résistivité, suivi d'une remontée logarithmique ($\rho \sim -\ln T$) pour $T < T_{\min}$.

En 1964, Kondo a montré pour la première fois que cette dernière est la conséquence de la diffusion avec renversement du 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

$$\mathcal{H}_{kf} = -J \vec{S} \cdot \vec{s} \quad (I.2)$$

avec $\vec{s}$: spin de l'électron de conduction

$\vec{S}$: spin de l'impureté

J : constante de couplage d'échange : $J \approx \frac{V_{kf}^2}{E_F - E_f}$

Cependant, pour un couplage antiferromagnétique ($J < 0$), cette théorie conduit à une divergence pour une température caractéristique appelée température de Kondo, T_K , qui s'écrit :

$$T_K \sim \frac{1}{N(E_F)} \exp \left[-\frac{1}{N(E_F)J} \right] \quad (I.3)$$

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 (figure I.3), qui correspond au passage progressif d'un 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 $T \leq T_K$. 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. Il se forme alors un état fondamental singulet non magnétique, d'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 [Nozières 1974]. On remplace une impureté magnétique couplée à des électrons indépendants par un singulet non magnétique induisant des interactions entre électrons de la bande de conduction. La résistivité électrique ne suit plus une loi logarithmique, mais varie de façon quadratique en température. La solution complète du problème pour un spin $1/2$ a été obtenue numériquement par Wilson [1975], puis de manière analytique [Tsvelick 1983] au moyen de l'Ansatz de Bethe.

L'effet Kondo pour un spin $J > 1/2$, comme c'est le cas du Ce^{3+} ($J = 5/2$), est décrit par le modèle de Coqblin-Schrieffer [1969]. Une conséquence de ce modèle est l'existence d'un maximum arrondi dans la chaleur spécifique vers $T \approx T_K/2$ qui dépend fortement de la dégénérescence du multiplet J [Rajan 1983]. Dans la plupart des systèmes de fermions lourds, grâce au fort couplage spin-orbite, le multiplet $J = 5/2$ est scindé par l'effet du champ cristallin électrique, soit en un doublet et un quadruplet, soit en trois doublets de Kramers, selon que le composé est cubique ou non. L'état fondamental est en général un doublet, et l'effet Kondo sur ce doublet, doublement dégénéré, est donc comparable à celui d'une impureté de spin $S = 1/2$.

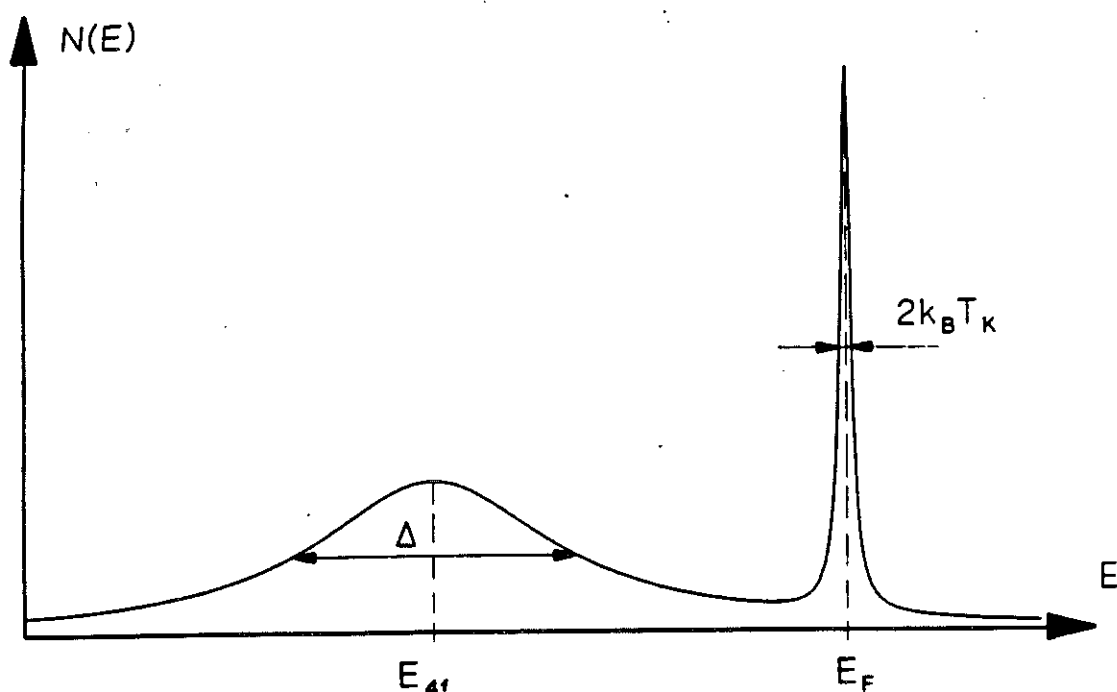


Figure I.3 : Schématisation de la densité d'états dans l'effet Kondo. Le pic de largeur $\Delta \sim V_{kf}^2 N(E_F)$ représente le niveau lié virtuel $4f$. La résonance Kondo se manifeste par un pic de largeur $2k_B T_K$ au niveau de Fermi [Lacroix 1982].

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 provient principalement du mécanisme R.K.K.Y. dû aux oscillations de la densité des électrons de conduction [Kasuya 1956, Ruderman 1954, Yoshida 1957]. L'intensité autour de l'impureté de cette interaction indirecte R.K.K.Y. est caractérisée par l'énergie [Schrieffer 1966] :

$$T_{R.K.K.Y.} \approx J^2 N(E_F) \quad (I.4)$$

L'interaction R.K.K.Y. peut être ferromagnétique ou antiferromagnétique. Dans le cas de deux impuretés, elle varie avec la distance r entre les moments magnétiques localisés proportionnellement à $\cos(k_F r)/r^3$, où k_F est le vecteur d'onde des électrons de conduction au niveau de Fermi. En général, c'est un ordre antiferromagnétique qui est observé dans les systèmes de fermions lourds.

Il existe donc une compétition entre l'effet Kondo, qui tend à compenser le moment magnétique, et l'interaction R.K.K.Y., qui tend à établir un ordre antiferromagnétique entre deux moments magnétiques localisés¹. Les deux interactions dépendent de la constante de couplage J d'une façon différente (éq. I.3/4) comme on le voit sur la figure I.4. On y distingue deux cas extrêmes : pour une constante de couplage J faible, les moments du Ce sont localisés et il y a ordre antiferromagnétique ; pour une valeur de J très forte, les électrons 4f participent davantage à la bande de conduction. Il apparaît ainsi de véritables fluctuations de charge : on parle alors de composés de valence intermédiaire. Entre les deux extrêmes il existe une valeur critique de J , au-dessous de laquelle l'état fondamental est ordonné magnétiquement. Les systèmes de fermions lourds sont situés dans cette région, qui est aussi appelée région d'instabilité magnétique. Cependant leur état fondamental est ordonné ou non :

¹Le premier modèle de réseau Kondo, décrivant la compétition entre l'interaction R.K.K.Y. et l'effet Kondo, a été introduit par Doniach [1977] en utilisant l'approximation de champ moyen. Il a été amélioré ensuite par différents auteurs [Jullien 1977, Lacroix 1982, Lavagna 1983] (traitement par la technique de la renormalisation, prise en compte de la dégénérescence, effet de paire d'impuretés). Cependant, l'interprétation de ce phénomène reste encore qualitative.

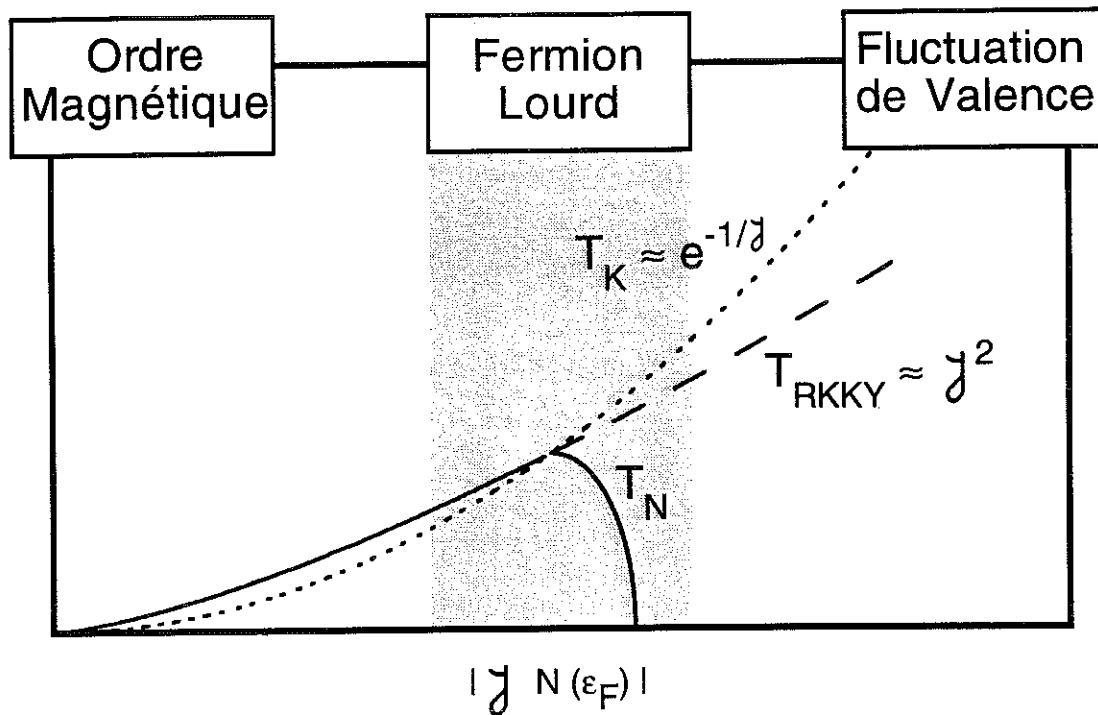


Figure I.4 : Diagramme de Doniach montrant la variation de la température Kondo (T_K), de celle qui caractérise l'interaction R.K.K.Y. (T_{RKKY}) et de la température d'ordre T_N , en fonction de $|J N(\epsilon_F)|$. Les systèmes de fermions lourds sont situés autour de l'instabilité magnétique.

- Le cas ordonné (CeAl_2 , CePb_3) est caractérisé par des manifestations "résiduelles" de l'effet Kondo dans la phase ordonnée : moments réduits, γ résiduel élevé, structures modulées;

- Le cas non ordonné est caractérisé par des manifestations "résiduelles" des interactions : corrélations antiferromagnétiques à courte distance (CeCu_6 , CeRu_2Si_2), ordre avec des moments extrêmement faibles (UPt_3 , URu_2Si_2).

La constante de couplage J est extrêmement sensible à 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 (T_K) du système. En général, dans les systèmes de fermions lourds, le fait d'allier avec de faibles proportions de dopants ou bien d'appliquer un peu de pression suffisent pour induire la transition magnétique $\leftrightarrow$ non-magnétique. Nous verrons dans ce travail comment on peut mettre à profit cette propriété.

I.4. FERMIONS LOURDS

Une grande partie des propriétés physiques des systèmes de fermions lourds peut donc être comprise qualitativement par cette compétition entre effet Kondo et interactions R.K.K.Y.. Mais à basse température, une nouvelle échelle d'énergie T^* apparaît, typiquement de l'ordre de $T_K/10$ [Jaccard 1987].

Au-dessous de T^* , le système entre dans un état de diffusion cohérente suivant le théorème de Bloch. Selon la théorie des liquides de Fermi le système se comporte comme un métal normal mais avec des quasiparticules très lourdes dans des bandes d'une largeur correspondant à T_K : on observe une variation thermique linéaire de la chaleur spécifique : $C = \gamma T$, où le terme linéaire $\gamma = 2/3 k_B^2 \pi^2 N(E_F)$ est de l'ordre de $1 \text{ J.mole}^{-1} \cdot \text{K}^{-2}$ et $N(E_F) \sim m^*$ est d'un facteur 10^3 plus élevé que dans les métaux normaux (figure I.5). On trouve également une susceptibilité $\chi(T)$ avec une limite de Pauli $\chi(T \rightarrow 0)$ très élevée et avec un rapport de Wilson χ/γ compris entre 1, valeur pour un gaz d'électrons libres et 2, celle pour une impureté Kondo de spin $1/2$ [Wilson 1975]. La résistivité suit une loi quadratique $\rho(T) = \rho_0 + AT^2$, où $A \sim N(E_F)^2$ est anormalement élevé, de façon comparable à γ . L'observation la plus directe des quasiparticules lourdes s'effectue par des mesures d'effet de Haas van Alphen [Onuki 1987a, Reinders 1987, Lonzarich 1988, Julian 1994].

Il n'existe pas encore de description microscopique satisfaisante de l'état fondamental "liquide de Fermi". La complexité de ce problème se manifeste par exemple dans le fait que dans un réseau Kondo, il n'y a pas assez d'électrons de conduction pour écranter le moment $4f$ [Nozières 1985]. Les électrons $4f$ hybridés provenant des autres atomes doivent donc remplir ce rôle afin de former un état fondamental singulet. De même, l'écrantage du moment magnétique d'un doublet fondamental $\pm 5/2$ ne peut pas provenir de la diffusion spin-flip avec un électron de conduction possédant une contribution orbitale $L < 3$. Il s'agit donc d'un problème à N corps pour lequel les approximations à un site, comme l'effet Kondo, ne sont plus suffisantes. Par suite, une distinction nette entre l'effet Kondo et l'interaction R.K.K.Y. n'est plus possible et T^* est déterminée par les deux effets. Une discussion sur les dernières approximations relatives à ce problème sera donnée au chapitre III.3.1.

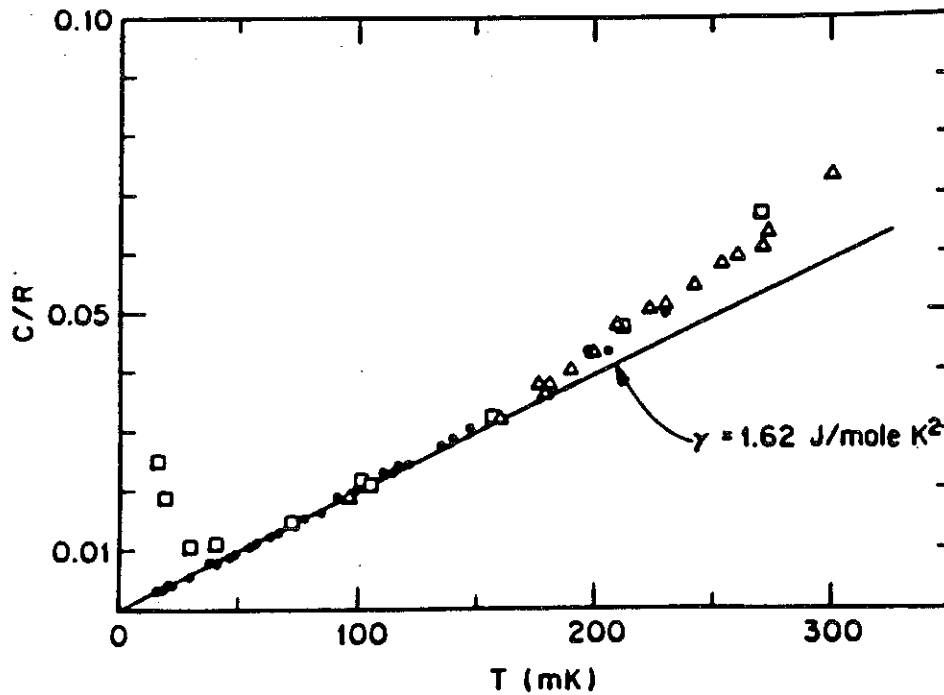


Figure I.5 : Le premier fermion lourd : Chaleur spécifique de CeAl_3 à champ nul (Δ) et 10kOe ($\square$) [Andres 1975].

Il existe aussi des interactions entre des quasiparticules. En fait, l'état fondamental "liquide de Fermi" est plutôt rare parmi les systèmes de fermions lourds. On trouve dans ceux-ci une grande variété. A part l'ordre magnétique, qui a été mentionné plus haut, on observe de la supraconductivité, souvent en présence d'ordre antiferromagnétique, et, récemment, des comportements de type semiconducteur. Dans le cas des supraconducteurs il existe de fortes indications pour que les paires de Cooper soient formées à partir des quasiparticules lourdes. Dans le tableau I.2, nous donnons quelques exemples de composés de type fermions lourds.

Dans un système de fermions lourds on peut distinguer trois régimes :

1. $T \gg T_K$: Le système se comporte comme un composé où les moments de Ce^{3+} sont quasi-libres. La susceptibilité suit une loi de Curie-Weiss. On observe souvent des effets de champ cristallin, en particulier dans la variation de la résistivité [Cornut 1972, Hanzawa 1985, Maekawa 1985, 1986, Guessous 1987].
2. $T \sim T_K$: On observe un comportement de type Kondo : maximum dans la chaleur spécifique, forte réduction du moment magnétique ; par contre, puisqu'il s'agit d'un réseau Kondo, la résistivité va cesser de présenter une variation en $-\ln T$ car survient une décroissance, due à un effet de cohérence du

réseau ; on verra en outre une chute de la résistivité dans le cas où un ordre magnétique apparaît.

3. $T \ll T_K$: Comportement "liquide de Fermi" ou un autre état fondamental, dominé par des quasiparticules avec une masse effective de l'ordre de cent fois celle d'un électron libre.

Composés	Nature de l'état fondamental	$\gamma(0)$ (mJ/mole K ²)	$\chi(0)$ 10 ⁻³ uem/mole	Références
CeAl ₃	Mag	1600	30-40	[a]
CeCu ₆	liquide Fermi	1600	27	[b]
CeCu ₂ Si ₂	Mag et Supra	1100	7	[c]
CeRu ₂ Si ₂	liquide Fermi	360	35	[d] [e]
CeAl ₂	A.F. modulé	150	40-60	[f] [g]
CeNiSn	Semicon	50	9	[k]
UBe ₁₃	Supra	1100	15	[h]
UCd ₁₁	A.F.	840	38	[i]
U ₂ Zn ₁₇	A.F.	530	12	[i]
UPt ₃	Mag et Supra	450	7	[j]
NpBe ₁₃	A.F.	900	56	[i]

Tableau I.2 : a : Andres 1975, b : Amato 1987, c : Batlogg 1984, d : Fisher 1991, e : Haen 1987, f : Benoît 1981, g : Bredl 1978, h : Ott 1985, i : Stewart 1984, j : de Visser 1987b, k : Takabatake 1992d.

Pour clore ce chapitre nous donnons encore quelque références, qui traitent des fermions lourds d'une façon générale : [Coles 1987, Fisk 1986 et 1988, Fulde 1988b, Hess 1993, Lee 1986, Varma 1985].

I.5. PROPRIETES VOLUMIQUES

I.5.1. DILATATION THERMIQUE ET PARAMETRE DE GRÜNEISEN

Dans un système où les excitations qui contribuent à l'énergie libre sont caractérisées par une énergie T^* (la température de Debye Θ_D des phonons, l'énergie du gap Δ , la température de Kondo T_K), la dépendance de l'énergie libre vis à vis du volume du système peut être réduite à celle de la température caractéristique. Dans une approche simple on peut exprimer l'énergie libre par une loi d'échelle :

$$F(T,V) = T\Phi\left(\frac{T}{T^*(V)}\right) \quad (I.5)$$

On peut lier la dilatation thermique

$$\alpha_v = -\kappa \frac{\partial^2 F}{\partial V \partial T}, \text{ où } \kappa = -V^{-1} \frac{\partial V}{\partial P} \text{ est la compressibilité isotherme}$$

et la chaleur spécifique :

$$C_v = -T \frac{\partial^2 F}{\partial T^2}$$

par la relation de Grüneisen

$$\Gamma_{\text{eff}} \equiv \frac{V_m \alpha_v(T)}{\kappa C(T)} = - \frac{\partial \ln T^*(V)}{\partial \ln V} \equiv \Gamma_T \quad (I.6)$$

Expérimentalement, on peut déterminer le paramètre de Grüneisen de deux façons différentes. Le paramètre de Grüneisen Γ_{eff} est obtenu à partir de mesures de dilatation thermique et de chaleur spécifique, cependant que Γ_T est obtenu par des expériences sous pression. L'identité entre Γ_{eff} et Γ_T est réalisée seulement si la loi d'échelle (relation I.5) est vérifiée. Dans ce cas, Γ_{eff} ne devrait pas dépendre de la température, ce qui n'est pas toujours observé. Pourtant l'équation I.6 reste une très bonne approximation. Dans la plupart des systèmes, il y a plusieurs contributions à la chaleur spécifique, qui ont chacune un paramètre de Grüneisen différent. Ainsi le paramètre de Grüneisen devient un moyen puissant pour séparer ces contributions [Brommer 1982].

Une relation thermodynamique entre la magnétostriction et l'aimantation peut être obtenue en introduisant, par analogie avec T^* , un champ caractéristique B^* .

$$F(T,V) = T\Phi\left(\frac{T}{T^*(V)}, \frac{B}{B^*(V)}\right) \quad (I.7)$$

Ainsi on obtient [Thalmeier 1986] :

$$\left(\frac{\partial V}{\partial H}\right)_{P,T} = H\kappa\Gamma_B\left(\frac{\partial M}{\partial H}\right)_{P,T} + T\kappa\Gamma_T\left(\frac{\partial M}{\partial T}\right)_{P,H} \quad (I.8)$$

où $\Gamma_B = -\frac{\partial \ln B^*}{\partial \ln V}$ est le paramètre de Grüneisen magnétique.

I.5.2. EFFETS MAGNETOVOLUMIQUES DANS LES COMPOSES A FERMIONS LOURDS

La tendance des électrons de la couche 4f du Ce à se délocaliser se reflète dans des effets volumiques considérables. Par exemple les composés de Ce dans des séries isostructurales ont un volume anormalement plus faible qu'attendu d'après la contraction des lanthanides (figure I.6). Un autre effet est la transition α - γ , qui est observée dans le Ce pur [Röhler 1984]. Au-dessous de 200 K, ou à des pressions supérieures à 8 kbar, le Ce change d'état fondamental. Partant d'une phase avec des moments localisés, il subit une transition de phase de premier ordre pour entrer dans une phase où les électrons sont délocalisés. Le volume diminue de 15%, pendant que la valence varie seulement de 3,05 à 3,2. Une des descriptions théoriques les plus adaptées pour cette transition est le modèle de collapse du réseau Kondo magnétique [Allen 1982, Lavagna 1982], où la réduction du volume résulte de la formation du singulet de Kondo.

Dans les systèmes de fermions lourds, la formation du singulet de Kondo est accompagnée d'une réduction de volume et, par suite, d'une dilatation thermique très grande à basse température (figure I.7.a). Les paramètres de Grüneisen (figure I.7.b) ont aussi des valeurs extrêmement élevées et positives² : $\Gamma \sim 50 - 100$ (à titre de comparaison, $\Gamma_{\text{phonon}} \sim 2$). Comme on peut le voir sur la figure I.6.b, ils augmentent en refroidissant d'une façon continue, sans aucune anomalie, au contraire des coefficients de dilatation

²Dans les phases ordonnées magnétiquement la valeur de Γ peut devenir négative et très élevée en bon accord avec la variation de T_N en fonction de $\bar{J}$ représentée sur la figure I.4.

thermique. En général, l'identité entre Γ_{eff} et Γ_T (éq. I.6) est réalisée dans la limite $T \rightarrow 0$ [de Visser 1990].

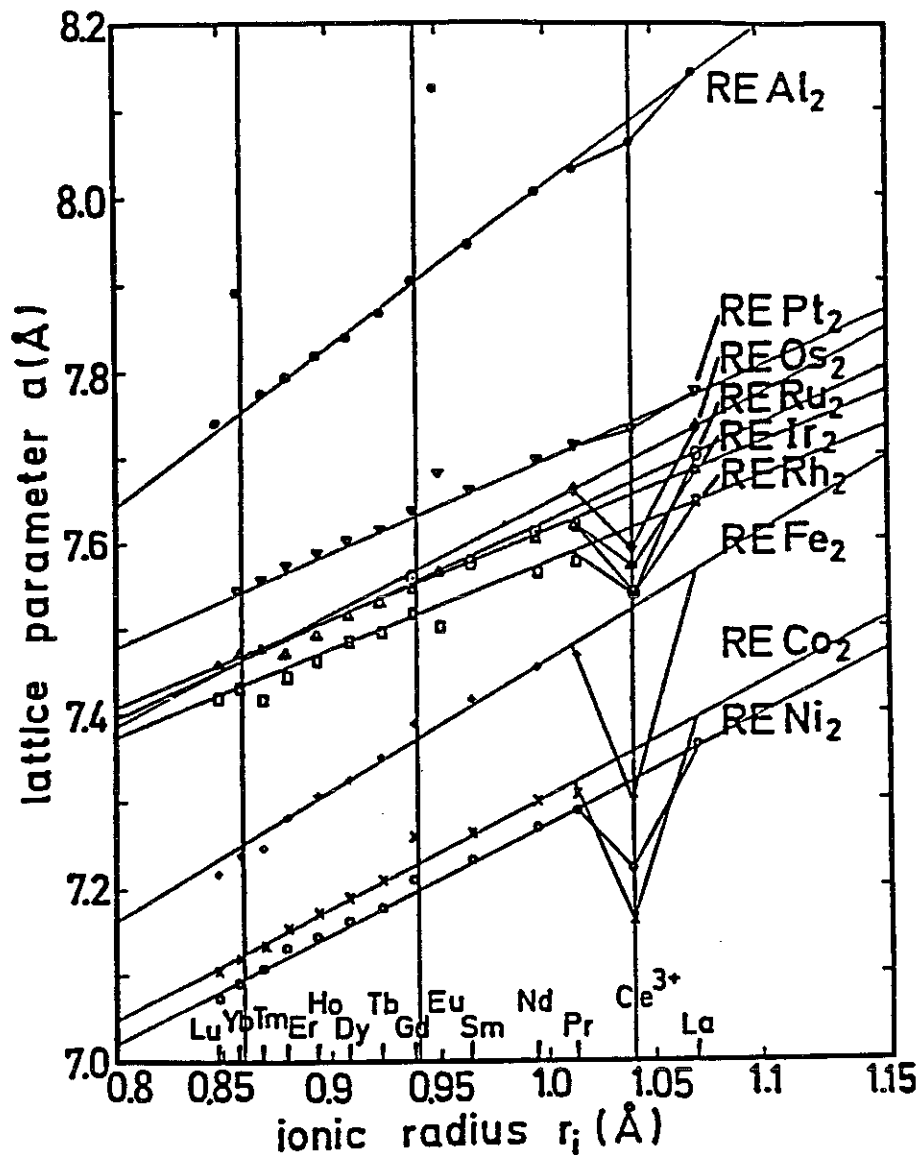


Figure I.6 : Variation du paramètre de réseau en fonction du rayon ionique de quelques composés RM_2 (R = terre rare, M = métal 3d, 4d ou 5d) [Weidner 1985].

Expérimentalement, on a observé que dans les composés à fermions lourds les paramètres de Grüneisen magnétique et thermique ont une valeur comparable. Dans le cadre de la théorie du liquide de Fermi ceci se reflète dans le rapport de Wilson $\chi/\gamma \sim 1$ à 2 qui n'est pas trop différent de celui d'un gaz d'électrons libres [Kaiser 1988 et 1989]. Il est donc évident que les mesures d'effets magnétovolumiques sont d'une importance centrale pour la compréhension des propriétés physiques des systèmes de fermions lourds.

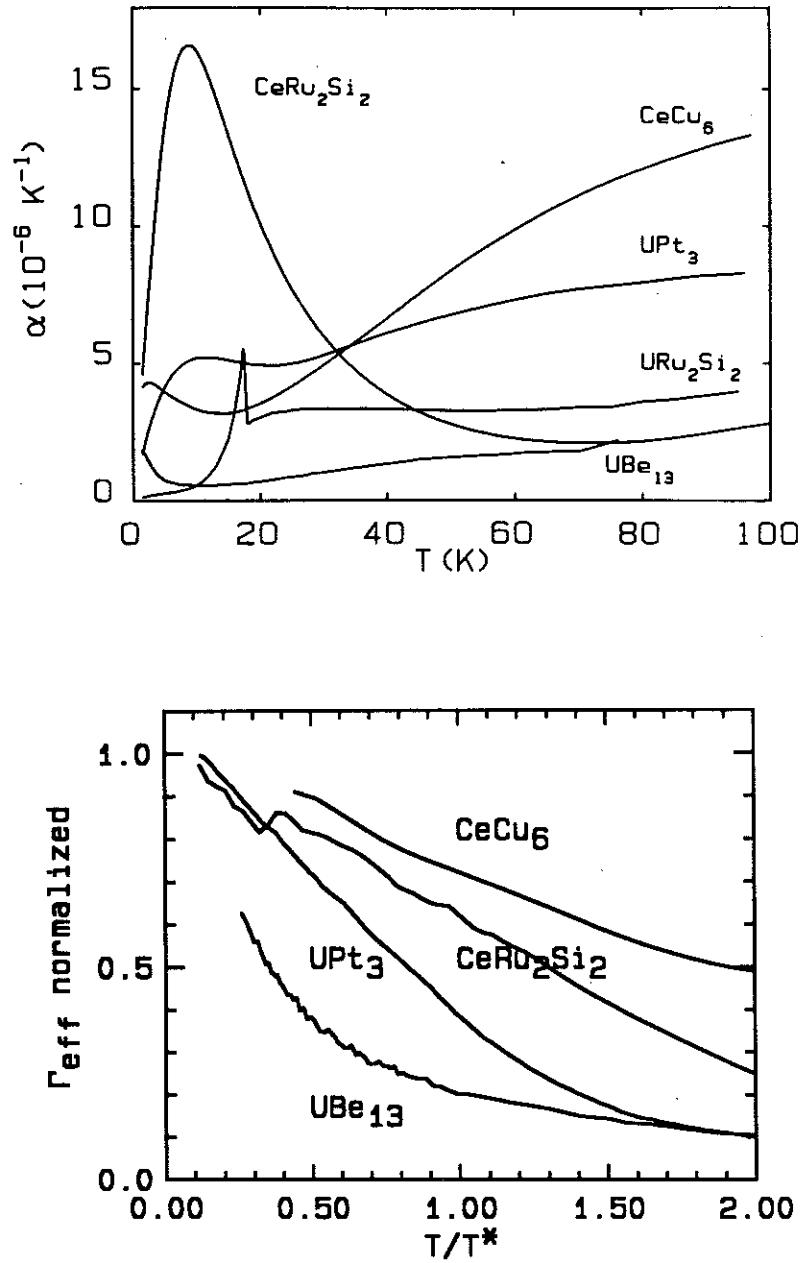


Figure I.7 : Dilatation volumique et paramètre de Grüneisen Γ_{eff} renormalisé de certains composés à fermions lourds, dans la limite $T \rightarrow 0$ [de Visser 1990]. Les valeurs de $\Gamma_{\text{eff}}(T \rightarrow 0)$ sont (à la date à laquelle a été publiée cette figure) : 57 (CeCu_6), 160 (CeRu_2Si_2), 25 (URu_2Si_2), 60 (UBe_{13}) et 71 (UPt_3). La température caractéristique T^* (déterminée par $T^* = 0.68R/\gamma$) s'élève à : 3,4 (CeCu_6), 17,1 (CeRu_2Si_2), 5,1 (UBe_{13}) et 13,1 (UPt_3).

DEUXIEME PARTIE : TECHNIQUES EXPERIMENTALES

II.1. CELLULE CAPACITIVE

La cellule a été réalisée par A. de Visser et A. Lacerda [de Visser 1986, Lacerda 1990a] avec du cuivre très pur, OFHC 5 (Oxygen Free High Conductivity). Sa géométrie a été optimisée pour mesurer des échantillons de 5 mm de longueur. Des échantillons de longueur inférieure peuvent être mesurés en ajoutant une rondelle de cuivre OFHC pour ramener la longueur totale à 5 mm. Cette cellule est représentée schématiquement sur la figure II.1. La plaquette (2) est positionnée par trois tiges (une seule est représentée sur la figure). Une faible pression exercée par la vis (4), via le ressort (9), est nécessaire pour maintenir l'échantillon. On mesure la capacité entre les plaquettes (1) et (2). L'isolation électrique entre (1) et l'anneau de garde (5) est garantie par une feuille de kapton. La capacité de départ est donnée par des feuilles de cuivre positionnées entre les deux anneaux (7) et (5) ; ces feuilles ont une épaisseur de 50 à 210 μm . A température ambiante, la capacité mesurée entre (1) et (2) est de l'ordre de 10 pF. Pour avoir un parallélisme de l'ordre de 1 μm , toutes les parties de la cellule ont été réalisées par électro-érosion.

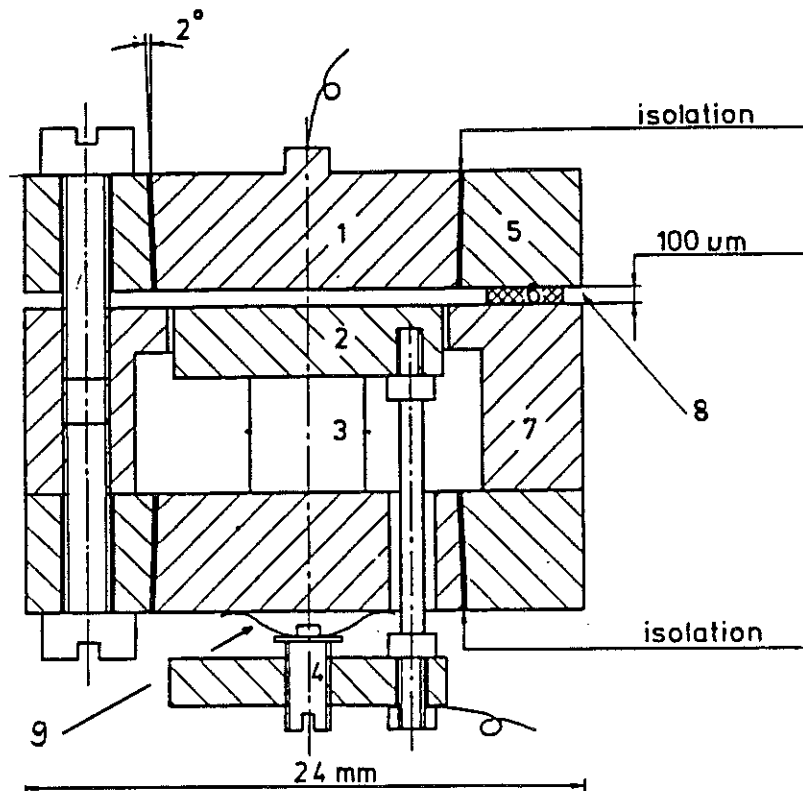


Figure II.1 : Cellule capacitive [de Visser 1986]. (1) : plaquette supérieure ; (2) : plaquette inférieure ; (3) : échantillon ; (4) : vis ; (5) : anneau de garde supérieur ; (6) : feuilles de cuivre ; (7) : anneau de garde latéral ; (8) : distance entre électrodes ; (9) : ressort.

La capacité mesurée est donnée directement par l'écart entre les plaquettes parallèles (1) et (2) suivant la relation :

$$C = \frac{\epsilon A}{d} \quad (\text{II.1})$$

où d est la distance entre (1) et (2), $\epsilon = \epsilon_0 \epsilon_r$ la constante diélectrique du milieu entre (1) et (2) et A la surface des plaquettes (1) et (2). L'influence sur la constante diélectrique, ϵ , du gaz résiduel d'hélium dans le calorimètre où se trouve la cellule sera négligée : $\epsilon = \epsilon_0 \epsilon_r = \epsilon_0$.

La valeur de $\epsilon_0 A$ ($= 993.036 \text{ pF} \cdot \mu\text{m}$) peut être comparée à la valeur trouvée à partir des étalonnages faits à l'ambiante en plaçant des feuilles de cuivre (6) de différentes épaisseurs. La valeur moyenne de $\epsilon_0 A$ obtenue à partir de ces mesures est $1013.7 \text{ pF} \cdot \mu\text{m}$ [Lacerda 1990a].

Comparée au grand nombre de cellules capacitives qui ont été construites, voir par exemple Brändli [1973], cette cellule a les avantages suivants :

1. Sa petite taille de $25 \times 25 \text{ mm}$ permet de la placer même dans de petits cryostats parallèlement ou perpendiculairement au champ magnétique.
2. La bonne conductivité thermique du cuivre permet de descendre jusqu'à de basses températures ($T < 0.1 \text{ K}$).
3. La cellule est mécaniquement très stable.

Une différence de 10% dans la dilatation thermique a été mesurée sur le même échantillon, après l'avoir enlevé, puis remplacé. L'erreur est due à des différences dans la tension du ressort (9) et dans la position des plaques du condensateur.

II.2. SYSTEME DE DETECTION

Pour mesurer la capacité entre les plaquettes (1) et (2), nous avons utilisé la méthode des trois câbles [Thomson 1958] (figure II.2). Selon cette méthode, la masse est placée entre la sortie du détecteur et le diviseur. Le seul effet des capacités parasites entre les plaquettes ou les câbles coaxiaux et la masse sera de réduire l'impédance du détecteur. Le chemin entre les sorties des deux condensateurs et l'entrée du détecteur (en gris sur la figure II.2) est donc extrêmement sensible à des capacités parasites et à leurs variations. Dans notre cellule, ces capacités parasites sont constituées essentiellement par la capacité entre les plaquettes (1) ou (2) et les anneaux de garde (5) et (7) ; elles sont de l'ordre de 200 pF.

Le système de mesure est constitué d'un générateur/détecteur lock-in Barras Provence (fréquence 1 kHz, tension d'excitation 8 V), de son préamplificateur nommé "tête du pont", qui peut être placé à proximité du cryostat, pour réduire le chemin d'extrême sensibilité du circuit, et d'un diviseur inductif à 7 décades. Pour les mesures dans le cryostat à dilution un préamplificateur à froid (transistor FET, Crystallonics 2N6550) a été monté à la sortie du calorimètre, réduisant ainsi le chemin d'extrême sensibilité à quelques dizaines de cm. Pour garantir une valeur stable du condensateur de référence (C_R sur la figure II.2), ce dernier est placé dans l'azote liquide ou dans le bain d'He ; pour les mesures dans le cryostat à dilution, il a été placé à l'intérieur du calorimètre dans la zone de champ compensé ($B = 0$).

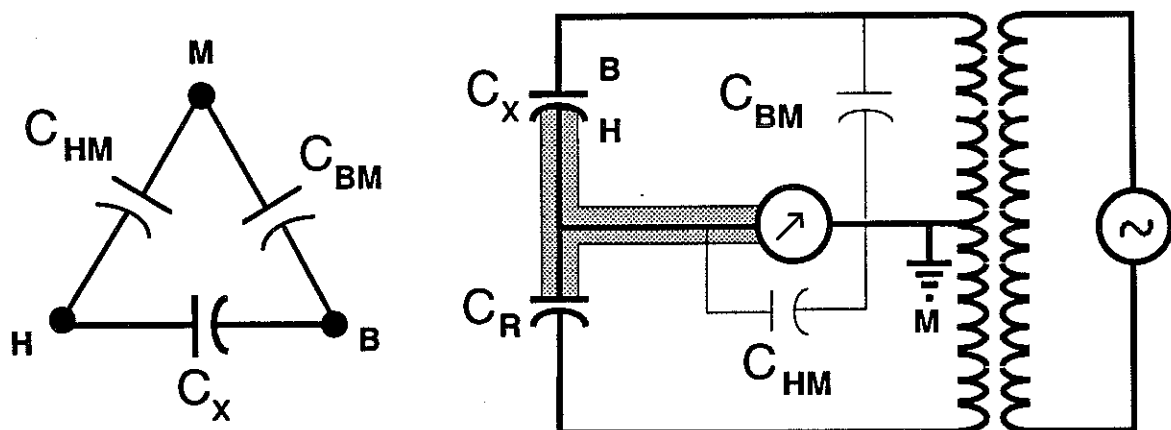


Figure II.2 : Schéma montrant les capacités parasites entre les cotés de haute impédance (H, côté du détecteur) et de basse impédance (B) et la masse (M). Elles ont comme seul effet de réduire l'impédance du détecteur, si la masse est placée entre le diviseur inductif et la sortie du détecteur (Circuit "trois câbles").

Avec cette configuration il était possible d'atteindre des résolutions (limitées par le bruit) correspondant à des variations de longueur de quelques 10^{-2} Å à très basse température ($T < 1$ K) et inférieures à 10^{-1} Å à 4,2 K.

II.3. MESURE DE LA DILATATION THERMIQUE

La variation de longueur de l'échantillon est obtenue en faisant varier la température pas à pas. Ce faisant, il faut tenir compte de l'effet de la cellule et de celui de la plaquette de cuivre, si l'échantillon n'a pas 5 mm de longueur. Le coefficient α de l'échantillon s'obtient de la façon suivante :

$$\alpha = \frac{1}{L} \left(\frac{\Delta d}{\Delta T} \right)_{\text{cellule} + \text{échantillon}} + \frac{1}{L} \left(\frac{\Delta d}{\Delta T} \right)_{\text{cellule} + \text{Cu}} + \alpha_{\text{Cu}} \quad (\text{II.2})$$

Le terme α_{Cu} correspond à une correction due à la dilatation thermique du cuivre. Celle-ci peut être trouvée dans la littérature [Kroeger 1977]. Le deuxième terme représente la calibration de la cellule obtenue en mesurant la dilatation thermique d'un cube de cuivre OFHC (de 5 mm³). La figure II.3 montre la contribution de la cellule, qui dévie considérablement de la dilatation du cuivre pur et est due à la déformation de la cellule et surtout du ressort (9).

A très basse température ($T < 1$ K), on doit utiliser une modulation thermique : on applique à une résistance de chauffage (RuO_2) collée sur l'échantillon, des impulsions de chaleur à une fréquence contrôlée ($\omega \sim 0,1$ Hz) qui induisent sur un thermomètre (RuO_2) collé sur l'autre côté de l'échantillon une variation oscillante de la température moyenne T_0 . On arrive à une sensibilité de mesure $\Delta L/L$ voisine de 10^{-10} . Cette méthode fonctionne si la conductivité thermique de l'échantillon est suffisamment bonne, pour que l'ensemble constitué par celui-ci et ses accessoires soit en équilibre thermique, c'est à dire que la chaleur envoyée dans l'échantillon par le petit chauffage de modulation, ne se dissipe pas dans toute la cellule à travers les feuilles de kapton qui isolent les électrodes (l'épaisseur de ce kapton est faible, 0.1 mm) avant d'atteindre la face opposée de l'échantillon. Dans le cas de CeNiSn (semiconducteur) et de $\text{Ce}_{0.985}\text{Y}_{0.015}\text{Ru}_2\text{Si}_2$, cette méthode n'a pas pu être appliquée. (De plus, dans le cas de $\text{Ce}_{0.985}\text{Y}_{0.015}\text{Ru}_2\text{Si}_2$, la contribution de la cellule devenait importante en

refroidissant au-dessous de 0,4 K ; à 0,1 K, elle était déjà supérieure d'un facteur de dix à celle de l'échantillon).

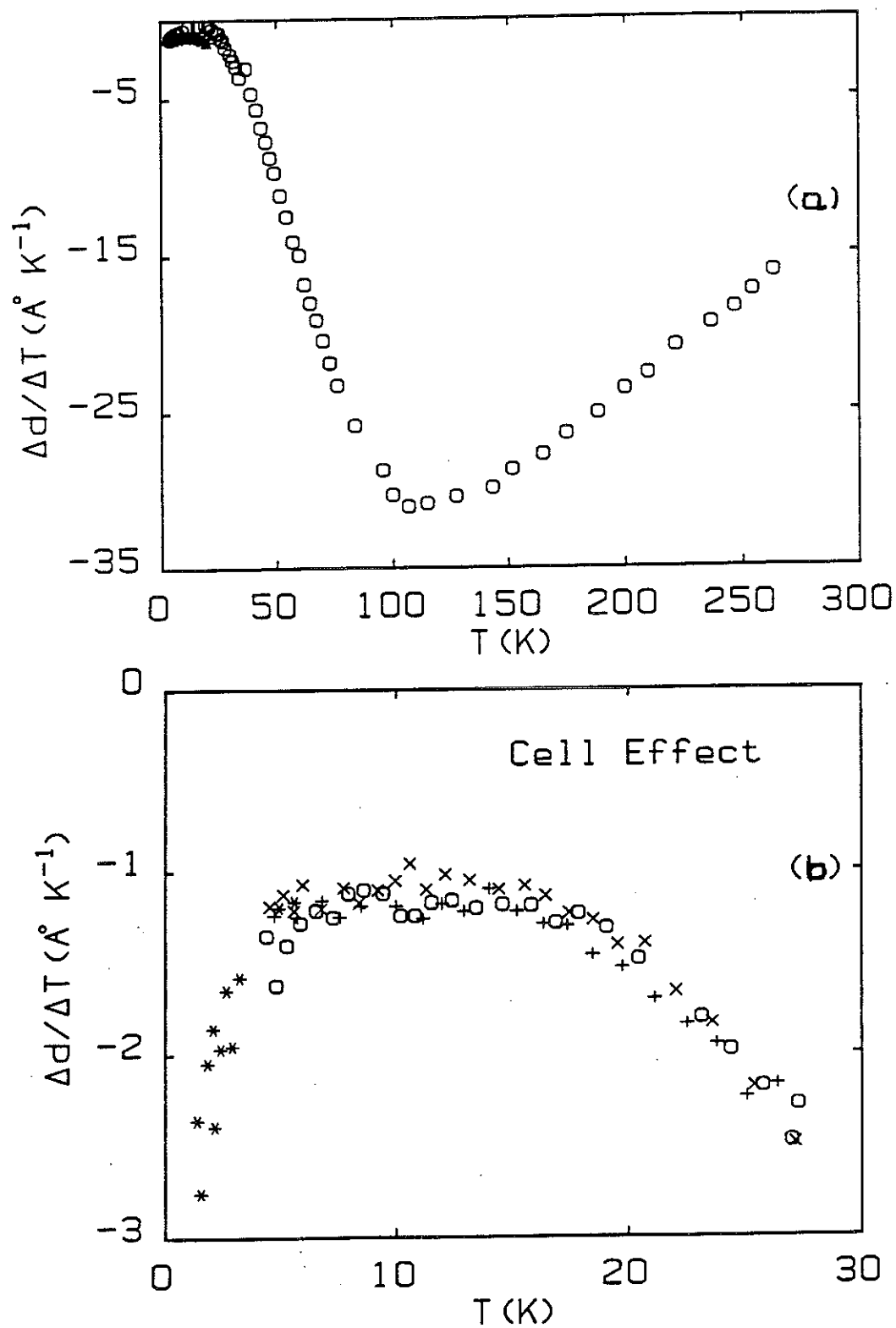


Figure II.3 : Effet de la cellule : (a) courbe globale ; (b) détail à basse température [Lacerda 1990].

Lors d'une mesure de calibration de la cellule avec un bloc de cuivre, on a pu constater que celle-ci commençait à présenter une forte contribution négative au-dessous de 0,4-0,3 K, qui augmentait en refroidissant ($\sim 80 \text{ Å/K}$ à 0,1 K) et semblait diverger dans la limite $T \rightarrow 0$. Une mesure séparée de la capacité de la cellule et du condensateur de référence en mica, a montré que cette divergence provenait largement de la variation de capacité de ce dernier (figure II.4). En plaçant ce condensateur dans le champ magnétique, on a pu observer une forte réduction de la variation thermique de sa capacité, mais il n'a pas été possible de définir une loi de variation en fonction du champ (voir figure II.5). L'origine de ce comportement de type "verre de spin" n'est pas encore claire. Des mesures détaillées, avec un pont General Radio, nous ont montré que la cellule et le condensateur de référence présentent des anomalies typiques d'un effet tunnel dans un système à deux niveaux [Frossati 1977, Phillips 1970, Saint-Paul 1986]. Cet effet se manifeste par une augmentation très rapide de certaines propriétés physiques en refroidissant, typiquement au-dessous de 1 K, et par une relaxation non exponentielle. Cette dernière a augmenté le temps de thermalisation entre deux points de mesure jusqu'à environ 20 min ($T < 0.2\text{K}$). De tels systèmes sont des matériaux amorphes : dans notre cas ce sont l'isolant en kapton entre les plaquettes (1) et (2) et l'anneau de garde (7) dans la cellule d'une part, et le mica du condensateur de référence d'autre part. Ce dernier se comporte comme un cristal avec des défauts qui ont les mêmes propriétés qu'un verre à basse température.

Dans le but d'éliminer tous les matériaux non cristallins, afin de réduire les effets parasites, on a construit un condensateur de référence avec une plaquette de saphir cristallin de $\varnothing = 6 \text{ mm}$, métallisée sur chaque face par une couche de titane de 100 Å , puis par un dépôt d'or de 2000 Å . Ce cristal a été placé dans un boîtier métallique entre deux enclumes dorées, et tenu par des ressorts. Pourtant, l'effet vitreux indésirable n'a pas été complètement éliminé. Des chercheurs du laboratoire ont constaté que l'évaporation de métaux sur du saphir (à 400 °C) peut induire des défauts dans ce cristal. De tels défauts peuvent avoir provoqué l'anomalie qui subsistait à basse température avec ce condensateur de référence. Il reste finalement à constater que les problèmes provenant des matériaux amorphes à basses températures ne sont pas faciles à surmonter. Dans notre cas il nous fallait limiter les mesures de dilatation thermique à des températures supérieures à environ 0,3 K, où les corrections de l'effet de la cellule étaient encore du même ordre de grandeur que l'effet provenant de l'échantillon.

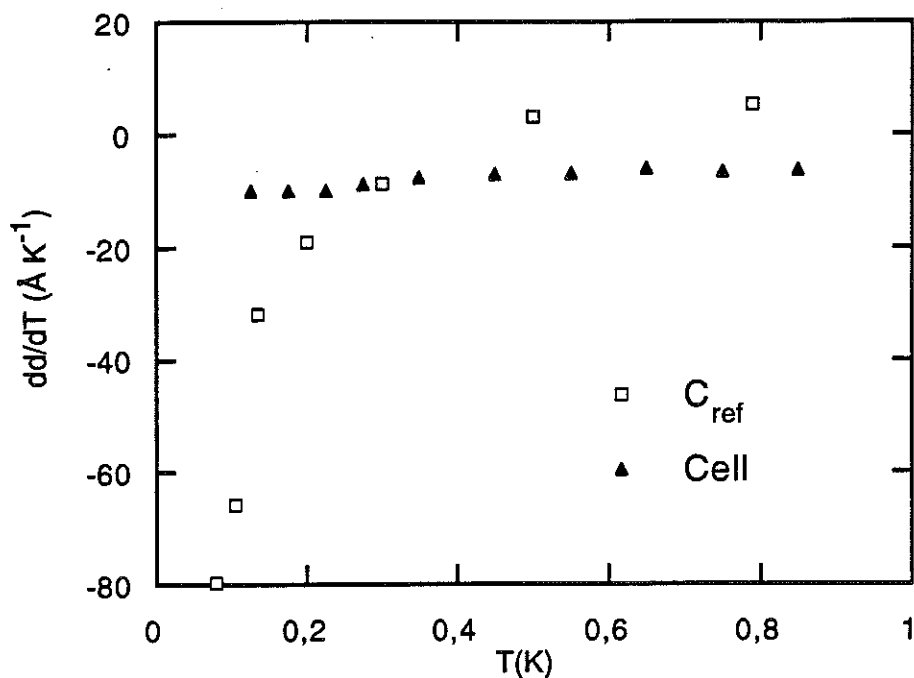


Figure II.4 : Contribution de la cellule comportant un échantillon de cuivre, comparée à celle d'un condensateur de référence en mica, mesurées avec un pont General Radio.

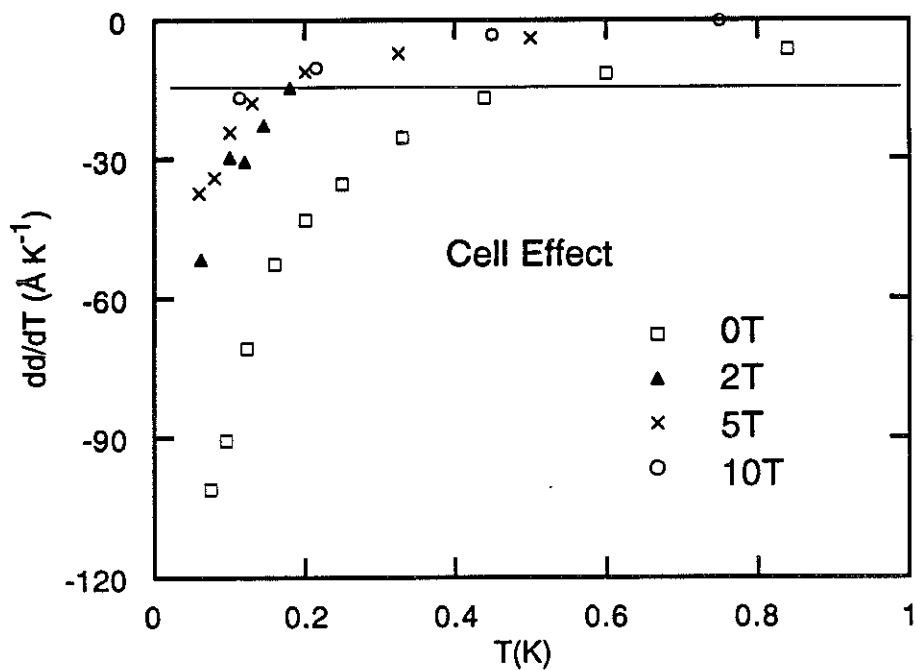


Figure II.5 : Effet de la cellule à très basse température sous différents champs magnétiques (le condensateur de référence a été placé dans le champ). La ligne continue correspond à la dilatation obtenue avec une modulation thermique de l'échantillon de cuivre placé dans la cellule.

Des essais comparables ont été entrepris par certains groupes, notamment de construire les cellules en silicium monocristallin ; les plaquettes de capacité étaient métallisées à l'or. De telles cellules ont l'inconvénient d'avoir une mauvaise conductivité thermique et de conduire à des erreurs de température considérables. Pour faire des mesures à très basse température ($T < 0,3$ K), sans appliquer de modulation thermique, il faut utiliser une cellule absolue, où l'échantillon est découplé thermiquement de la cellule et peut être thermalisé par une combinaison chauffage/interrupteur thermique [Lang 1992].

Nos mesures jettent un certain doute sur les mérites de l'amplificateur à froid, comparés à ses inconvénients, si l'on ne se sert pas de la modulation thermique. Le problème majeur posé par l'utilisation d'un amplificateur à froid provient donc du condensateur de référence, surtout s'il s'agit de détecter des variations $\Delta C/C$ de l'ordre de 10^{-6} . Même le bain d'hélium du cryostat est soumis à des variations thermiques qui peuvent provoquer de fortes variations de la capacité de ce condensateur de référence.

Les mesures de dilatation thermique ont été automatisées entre 1,5 et 300 K, permettant ainsi des variations de température automatiques, ce qui est surtout utile à haute température ($T > 50$ K) où le temps de thermalisation atteint environ 1/2 h par point de mesure.

II.4. MAGNETOSTRICTION

La magnétostriction à température constante a été mesurée en balayant le champ magnétique en continu. L'enregistrement des balayages sous champ était automatique. Dans le cryostat ^4He , la température de la cellule était stabilisée au moyen d'un régulateur piloté par un condensateur de céramique (de capacité supposée indépendante du champ). Dans le cryostat à dilution, on règle la température à partir d'un thermomètre de germanium placé dans la zone de champ compensée. L'effet de la cellule était négligeable ($\Delta L/L(4,2\text{K}, 8\text{T}) < 10^{-8}$).

II.5. CALCUL DE L'EFFET VOLUMIQUE

La cellule mesure la dilatation linéaire. L'effet volumique est la somme de la dilatation selon les trois directions :

$$\alpha_v = \alpha_x + \alpha_y + \alpha_z; \quad \alpha_i = \frac{1}{L} \frac{dL}{dT}, \quad i = x, y, z$$

$$\lambda'_v = \lambda'_x + \lambda'_y + \lambda'_z; \quad \lambda'_i = \frac{1}{L} \frac{dL}{dB} \quad \text{ou bien} \quad \lambda = \frac{\Delta L}{L}$$

II.6. CRYOSTAT ^4He

Il nous permet de réaliser les expériences dans la gamme de température $1,5 \text{ K} < T < 300 \text{ K}$. Le cryostat possède une bobine supraconductrice ($\varnothing 60 \text{ mm}$) de champ magnétique maximum proche de 9 T à l'He pompé, d'homogénéité 10^{-3} dans une région sphérique de diamètre $2,5 \text{ cm}$. La canne de mesure est un système à double enceinte avec deux thermomètres : une résistance de platine pour $T > 50 \text{ K}$ (107Ω à l'ambiante) et une résistance "Carbon-Glass" (9Ω à l'ambiante) pour $T < 50 \text{ K}$, dont la magnétorésistance est représentée sur la figure 6. Un chauffage se trouve sur l'enceinte intérieure. On régule par une résistance Allen Bradley à champ nul ou avec un condensateur pour les mesures de magnétostriction. La pression dans l'enceinte extérieure est de l'ordre de $0,1 \text{ mbar}$ et dans l'enceinte intérieure de 1 mbar .

II.7. CRYOSTAT A DILUTION

Pour mesurer la magnétostriction et la dilatation thermique sous champ à très basse température ($0,1 \text{ K} < T < 1 \text{ K}$), on a utilisé une canne à dilution (dite "dilulette") dans un cryostat équipé d'une bobine supraconductrice de 14 T. (11,85 T à 4,2 K). La diluette ne comporte pas de boîte à 1 K et la condensation s'effectue à une température plus élevée en utilisant un mélange sous pression à l'aide d'un compresseur. Un échangeur placé dans le haut du calorimètre remplace la boîte à 1 K. La température de l'évaporateur est voisine de 1 K, au lieu de 700 mK pour un cryostat à dilution standard. Il faut environ 4 heures pour passer de la température ambiante à la température minimale, d'environ 35 mK. La boîte de mélange se trouve dans une zone de champ magnétique nul créée par une bobine de compensation. La cellule de mesure est placée dans le centre du champ à l'extrémité d'un doigt froid de 25 cm de long, lui-même fixé à la boîte de mélange. La température est stabilisée au moyen d'un régulateur PID (ORPX) utilisant un thermomètre de Germanium lié à la boîte de mélange dans la zone compensée. A 100 mK, on a mesuré un gradient de température de 10 mK entre la boîte de mélange et la cellule.

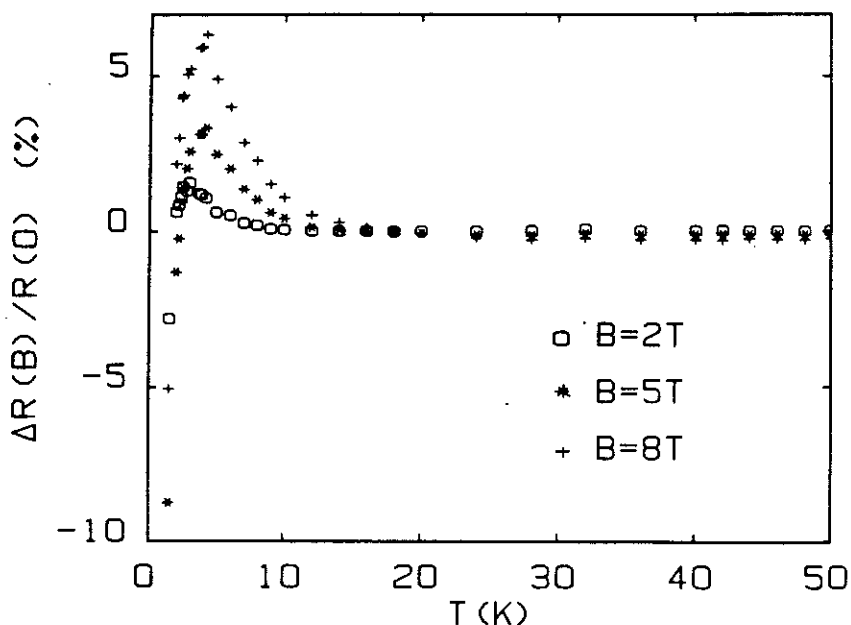


Figure II.6 : Magnétorésistance de la résistance "Carbon Glass" en fonction de la température, sous différents champs appliqués [Lacerda 1990]

**TROISIEME PARTIE :
LE COMPOSE
 CeRu_2Si_2**

III.1. DESCRIPTION DES PROPRIETES DE CeRu_2Si_2

III.1.1. HISTORIQUE

La première mesure de la susceptibilité de CeRu_2Si_2 fut réalisée sur un polycristal [Gupta 1983]. Après soustraction de la susceptibilité de LaRu_2Si_2 (qui présentait un comportement paramagnétique, et une forte remontée d'impuretés à basse température) celle de CeRu_2Si_2 montrait l'existence d'une saturation ou d'un maximum très plat vers 10 K. (Avec les cristaux préparés au C.R.T.B.T., une telle soustraction devient sans objet car la susceptibilité de LaRu_2Si_2 est alors négligeable). La valeur importante du coefficient de Sommerfeld ($\gamma = 350 \text{ mJ.mole}^{-1}.\text{K}^{-2}$) trouvé lors de mesures de chaleur spécifique [Besnus 1985, Steglich 1985, Thompson 1985a] permit de classer le composé parmi les systèmes à fermions lourds.

Depuis la découverte d'un point d'inflexion dans l'aimantation d'un polycristal réduit en poudre [Besnus 1985], qualifié ensuite de transition pseudo-métamagnétique, à partir de mesures sur un monocristal [Haen 1987], l'intérêt pour ce composé n'a cessé de croître. La découverte d'un comportement analogue dans le composé à fermions lourds UPt_3 [Frings 1983, de Visser 1987a], composé pourtant très différent de CeRu_2Si_2 par ailleurs, confirmait que l'on était en présence d'un effet nouveau dans les systèmes de fermions lourds. Dès lors, les recherches se sont intensifiées y compris sur d'autres systèmes de fermions lourds, dans le but d'observer le pseudo-métamagnétisme.

Puis vinrent la découverte de la loi d'échelle [Puech 1987, Voiron 1988, Mignot 1988, Lacerda 1989b] et des corrélations antiferromagnétiques incommensurables à faible portée [Rossat-Mignod 1988]. Nous allons à présent passer de la chronologie à une description détaillée des différentes propriétés, interprétations et théories existantes.

III.1.2. STRUCTURE CRISTALLINE DE CeRu_2Si_2

CeRu_2Si_2 cristallise dans la structure tétragonale ThCr_2Si_2 [Ballestracci 1978] du groupe de symétrie D_{4h} ($I4/mmm$)¹. La cellule élémentaire contient deux formules chimiques. Les paramètres de maille sont $a = 4,1$ et $c = 10,2$ Å, le rapport c/a est donc de 2,5. Les ions Ce sont rangés en réseaux carrés le long de l'axe c , suivant la séquence ababa... (figure III.1)

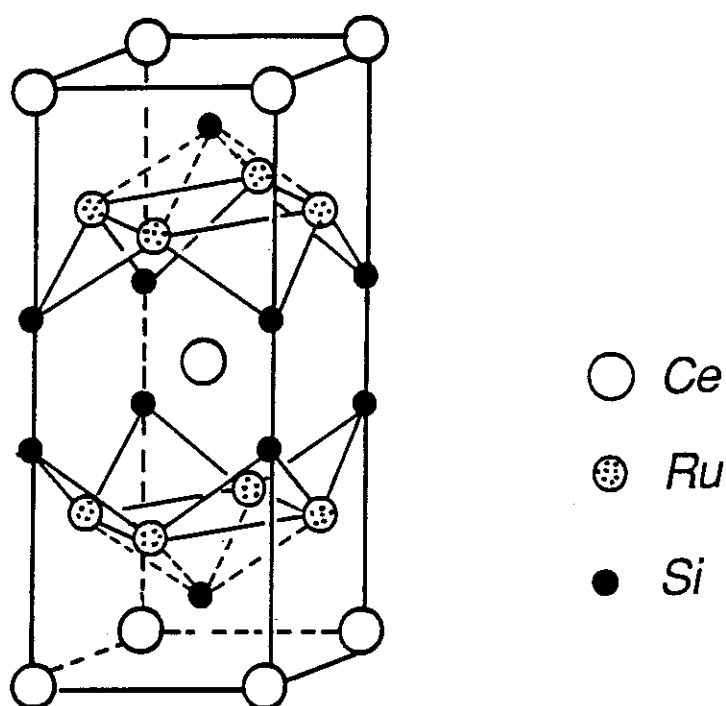


Figure III.1 : Structure cristalline de CeRu_2Si_2 [Lehmann 1987].

Le plan b se déduit du plan a par translation d'une demi grande diagonale. Le paramètre de maille c est la distance entre deux plans a. La plus petite distance entre des ions Ce du plan a et du plan b est d'environ 5,7 Å.

¹Des centaines des composés du type RM_2B_2 , (où R : terre rare ou actinide, M : métal de transition, B : élément du groupe IIIa, IVa, Va, VIa) ont été étudiés [Ban 1965, Parthé 1969].

III.1.3. LES PROPRIETES DE FERMIONS LOURDS DE CeRu₂Si₂

Nous allons présenter les principales propriétés de CeRu₂Si₂ dans différentes gammes de température, qui se caractérisent chacune par un état particulier.

III.1.3.a. Au-dessus de 100 K

Dans ce domaine de températures, CeRu₂Si₂ présente un comportement de moments Ce³⁺ pratiquement sans interactions, localisés et presque isotropes. Pour $B \parallel c$, la susceptibilité magnétique (figure III.2.a) obéit à une loi de Curie-Weiss $\chi(T) = \mu_{\text{eff}}^2 / (T - \Theta)$, avec une température de Curie Θ voisine de zéro et un moment effectif $\mu_{\text{eff}} = 2,79 \mu_B$. Pour $B \parallel a$, la susceptibilité est beaucoup plus faible ; on peut aussi l'assimiler à une courbe de Curie-Weiss, avec un moment de $2,53 \mu_B$, mais avec une valeur de Θ très élevée (≈ 450 K) [Haen 1987]. En comparaison, le moment magnétique de l'ion Ce³⁺ libre est de $2,54 \mu_B$.

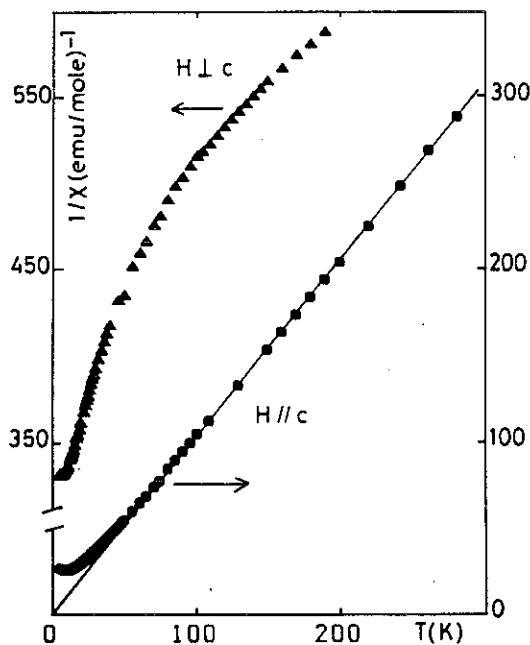


Figure III.2.a : Inverse des susceptibilités $\chi // c$ et $\chi \perp c$ de CeRu₂Si₂ en fonction de la température, [Haen 1987].

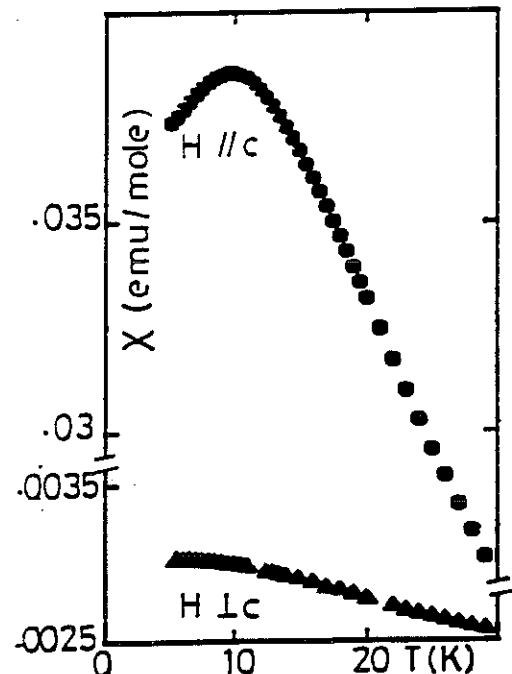


Figure III.2.b : Variations de $\chi // c$ et $\chi \perp c$ à basse température [Haen 1987]. On remarque un maximum de $\chi // c$ à 10 K.

A une température d'environ 220 K, on observe un maximum (ou, du moins, une saturation) de la résistivité électrique [Haen 1987, Djerbi 1988, 1989] (figure III.3) et un maximum du pouvoir thermoélectrique [Amato 1988, 1989] (figure III.4). Cette anomalie, qui ne se manifeste que dans les phénomènes de transport, est attribuée à un effet de champ cristallin (voir plus loin l'interprétation de la chaleur spécifique).

III.1.3.b. Région 10-100K

Ce domaine de température est caractérisé par l'apparition d'une diffusion Kondo anisotrope de type spin-flip et de corrélations antiferromagnétiques (qui seront décrites plus loin).

La susceptibilité magnétique selon l'axe c (que nous noterons $\chi_{||}$ ou χ_c) n'obéit plus à la loi Curie-Weiss définie plus haut, mais augmente à présent de façon nettement plus rapide quand la température descend au-dessous de 70 K (figure III.5). On observe une augmentation de la température de Curie : entre 35 et 60 K on peut assimiler $\chi_{||}$ à une loi Curie-Weiss avec $\Theta = 12$ K et un moment effectif de $2,97 \mu_B$. Cela peut être attribué, soit à l'apparition de

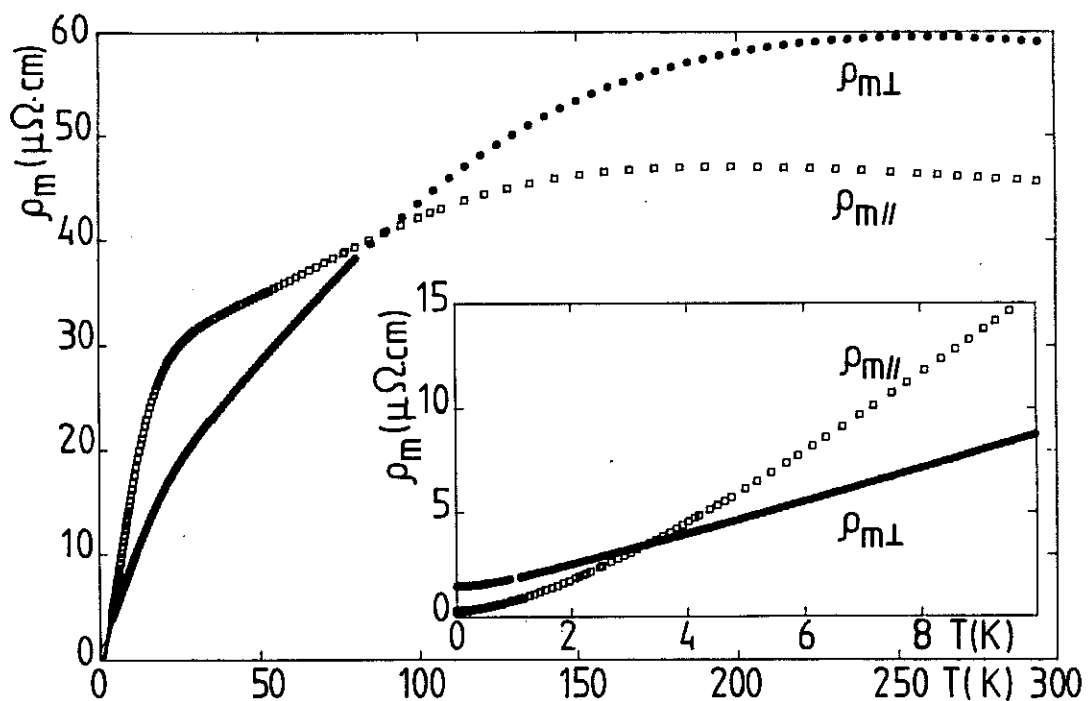


Figure III.3 : Contribution magnétique à la résistivité électrique de CeRu_2Si_2 dans le plan (a,a) et selon l'axe c , après soustraction de celle de LaRu_2Si_2 [Lapierre 1991]. Au-dessous d'environ 10 K, ρ varie linéairement avec T avant d'entrer dans un régime de liquide de Fermi (variation en AT^2) pour $T < 1\text{K}$.

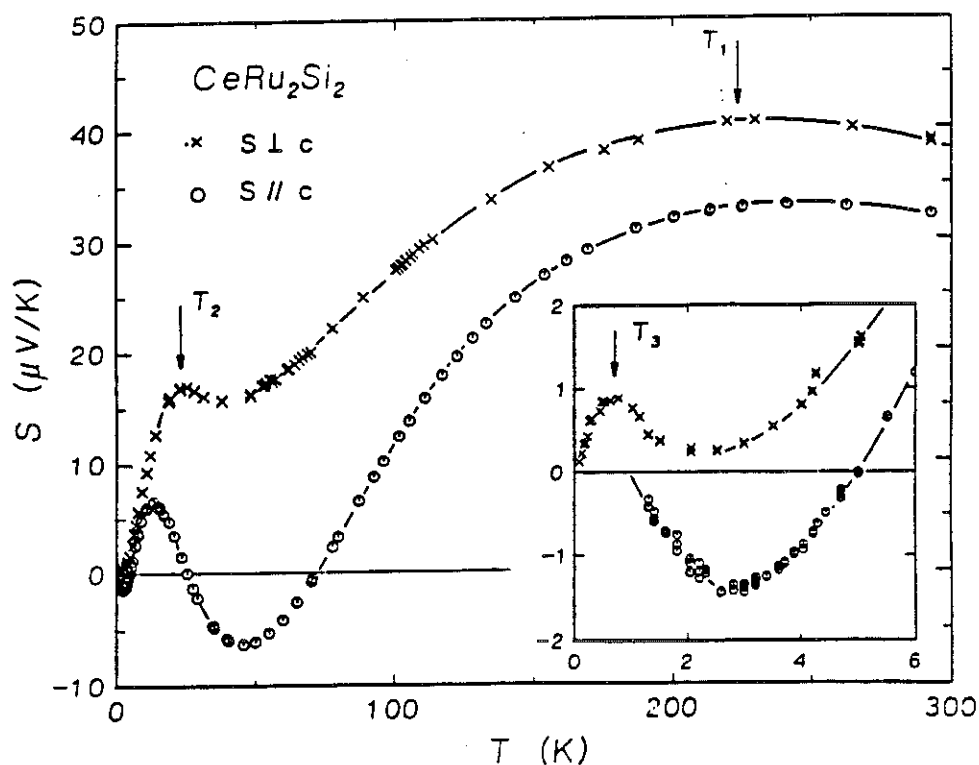
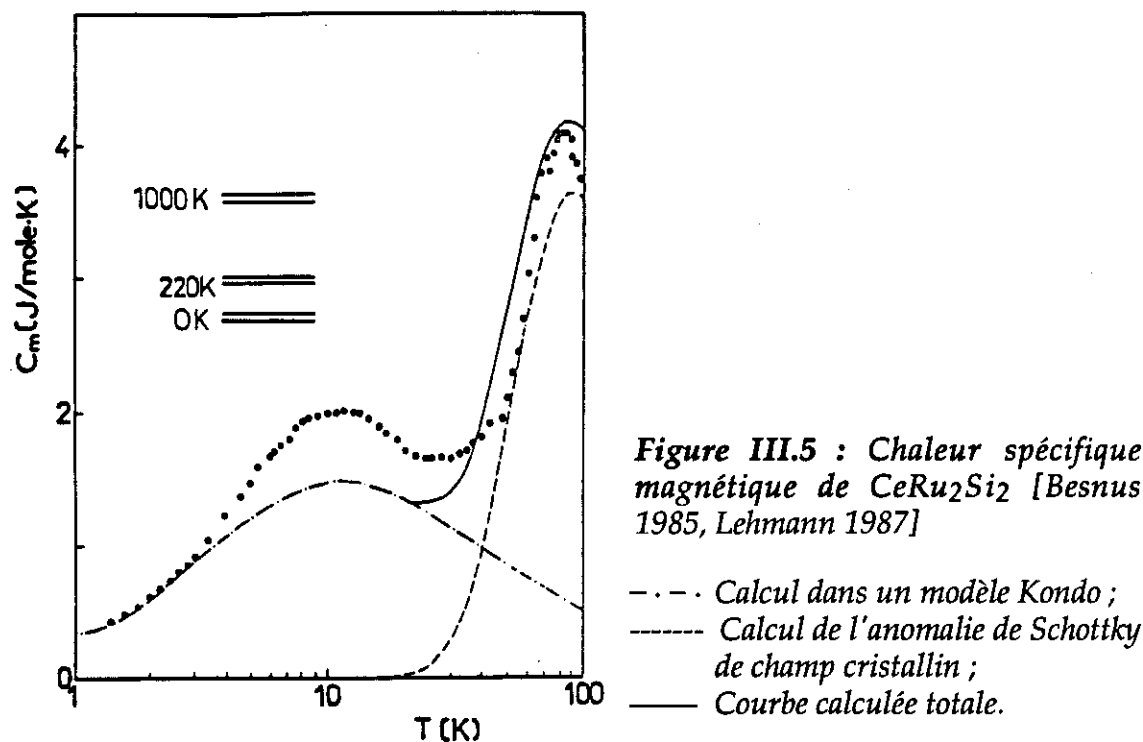


Figure III.4 : Pouvoir thermoélectrique de CeRu_2Si_2 mesuré avec le flux de chaleur dirigé parallèlement ou perpendiculairement à l'axe c [Amato 1988, 1989] ;
 T_1 : maximum résultant d'un effet de champ cristallin, T_2 : maximum relié à la température de Kondo à un site ; T_3 : maximum relié à l'ordre magnétique ou au régime de liquide de Fermi.

corrélations magnétiques, soit à l'effet Kondo. Le moment selon l'axe a est presque la moitié de celui parallèle à l'axe c . La susceptibilité suivant l'axe c passe par un léger maximum à la température $T_m = 10$ K ; à cette température, le rapport $\chi_{\parallel} / \chi_{\perp} (= \chi_c / \chi_a)$ atteint une valeur de 15 à 20, suivant les cristaux [Haen 1987, 1992]. Des mesures plus récentes montrent que $\chi_{\perp c}$ présente également un léger maximum vers 10 K qui, ici, semble caché par une très légère remontée d'impuretés, bien que non mesurable sur LaRu_2Si_2 [Haen 1992].

La contribution magnétique à la chaleur spécifique (figure III.5), que l'on obtient par soustraction de celle de LaRu_2Si_2 , présente un maximum à 84 K. Celui-ci a été interprété comme une anomalie de Schottky avec une séparation entre le niveau fondamental et le premier niveau excité de champ cristallin² de 220 K [Besnus 1985, Lehmann 1987].

² Le champ cristallin électrique scinde les six niveaux de Ce ($J=5/2$) en trois doublets de Kramers avec les énergies 0 - 220 - 1000 K et les fonctions d'onde suivantes $|0\rangle = a|\pm 5/2\rangle + b|\pm 3/2\rangle$ et $|1\rangle$ et $|2\rangle : |\pm 1/2\rangle$ ou $b|\pm 5/2\rangle + a|\pm 3/2\rangle$, avec $a = 0,96$ et $a^2 + b^2 = 1$.



III.1.3.c. Région 1-10 K

Vers 10 K apparaît un faible maximum dans la susceptibilité magnétique (figure III.2.b, [Haen 1987]), et un maximum bien marqué de la chaleur spécifique [Besnus 1985, Lehmann 1987, Fisher 1991] (figure III.5) et du coefficient de dilatation thermique [Lacerda 1989a, 1990].

Le maximum de chaleur spécifique peut être décrit avec une bonne approximation par un modèle d'effet Kondo à un site avec une résonance Lorentzienne au niveau de Fermi : $\rho(\epsilon) = \Delta/\pi * 1/(\epsilon^2 + \Delta^2)$ [Schotte 1975]. Dans le composé pur, on obtient ainsi une température de Kondo $\Delta/k_B = T_K \approx 24$ K. Cependant, la totalité de la courbe n'est pas très bien reproduite (figure III.5). Une autre indication de l'existence d'une température de Kondo à un site provient du pouvoir thermoélectrique [Amato 1988, 1989], où un maximum de $S(T)$ relativement indépendant du champ magnétique est observé vers 20 K (figure III.4).

La résistivité électrique ne montre ni minimum ni remontée logarithmique du type système Kondo dilué ou effet Kondo d'un réseau dans l'état fondamental, mais simplement un léger épaulement vers 24 K, puis une décroissance rapide au-dessous de 20 K (figure III.3).

On a détecté par diffusion neutronique des corrélations à faible portée entre les ions Ce au-dessous de 70 K. [Rossat-Mignod 1988, Regnault 1990a, Jacoud 1991]. Ces expériences ont montré deux contributions importantes (figure III.6.a). La première est une contribution quasiélastique, indépendante du vecteur de diffusion, où la largeur de diffusion, $\Gamma_{ss} \approx 2 \text{ meV}$, a été interprétée comme étant la température de Kondo à un site, d'où $T_K = 23 \text{ K}$.

Deuxièmement, il existe une contribution inélastique avec deux vecteurs de diffusion dans le plan (a,a) incommensurables, soit $(k_1, 0, 0)$ et $(k_1, k_1, 0)$ avec $k_1 = 0,31$. L'énergie transmise est centrée autour de $\hbar\omega_{is} \approx 1,2 \text{ meV}$ (14 K) avec une largeur $\Gamma_{is} \approx 0,8 \text{ meV}$. Cette contribution est interprétée comme résultant de corrélations antiferromagnétiques. La longueur de corrélation dans le plan (a,a) augmente rapidement au-dessous de 10 K et se sature vers 5-6 K à une valeur de $12 \text{ \AA}$, soit 3 distances interatomiques (figure III.6.b). Selon l'axe c, axe selon lequel pointent les moments magnétiques, la longueur de corrélation demeure restreinte à une longueur de maille ($10 \text{ \AA}$). Ces corrélations sont expérimentalement séparables jusqu'à 35 K et peuvent être observées jusque vers 70 K.

On observe donc dans CeRu_2Si_2 , comme dans d'autres composés Kondo, une compétition entre un effet Kondo à un site et des interactions intersite RKKY. A partir des expériences de diffusion neutronique, on peut dire que cette compétition conduit à une absence d'ordre magnétique à longue distance.

Toutefois, des expériences récentes de rotation de muons [Amato 1993] montrent l'apparition d'un moment ordonné de $10^{-3} \mu_B$ sur les atomes de Ce, qui coexiste avec les fluctuations antiferromagnétiques au-dessous de 1,5 à 2 K ;

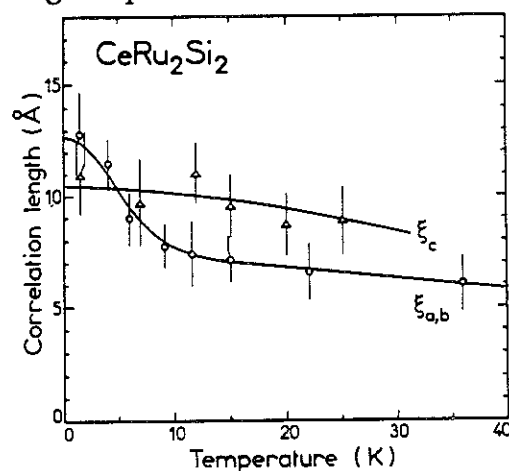
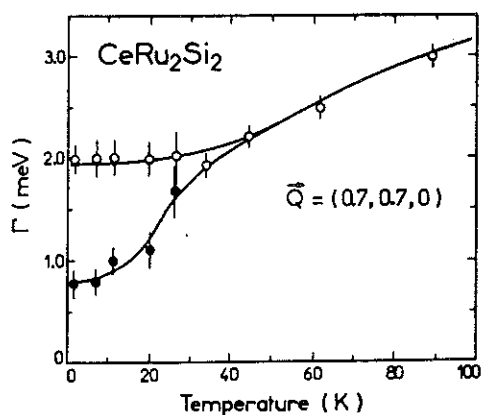


Figure III.6.a : Variation avec la température de la largeur inélastique, Γ_{is} , centrée autour de $1,2 \text{ meV}$ (o) et de la largeur quasiélastique, Γ_{ss} (●). [Regnault 1990a].

Figure III.6.b : Longueurs de corrélations mesurées dans le plan (a,a) et selon l'axe c en fonction de la température [Regnault 1990a, Jacoud 1991].

au-dessous de cette température, la longueur de corrélation entre les ions Ce augmente rapidement à 150 Å. Aucune anomalie n'a pu être observée jusqu'ici dans les propriétés thermodynamiques et de transport à cette température, à l'exception peut-être du pouvoir thermoélectrique et de l'effet Hall ; c'est ainsi qu'un minimum de $S(T)$ (figure III.4) et un changement de pente dans le tracé du coefficient de Hall en fonction de T^2 [Djerbi 1989, 1992] observés vers 2 K pourraient être attribués à cet ordre vu par interaction muons-spins.

III.1.3.d. $T < 1$ K

Jusqu'aux plus basses températures mesurées (≈ 20 mK), il n'y a pas d'indication d'apparition de supraconductivité ou d'ordre magnétique à longue distance. Ce n'est qu'au-dessous de 1 K ($\approx T_m/10$) que l'on peut observer les lois de puissance de la théorie du liquide de Fermi. La résistivité suit approximativement la loi³ $\rho = \rho_0 + AT^2$.

Le coefficient de Sommerfeld, γ , augmente au refroidissement jusqu'à la valeur de $350 \text{ mJ.K}^{-2}.\text{mole}^{-1}$ et se sature au-dessous de 1 K (figure III.7). L'existence de quasiparticules lourdes se manifeste par une loi de Korringa dans les expériences de RMN [Kitaoka 1985], mais elle a surtout été mise en évidence par des expériences d'effet de Haas van Alphen [Lonzarich 1988, Onuki 1992, Aoki 1993, Julian 1994].

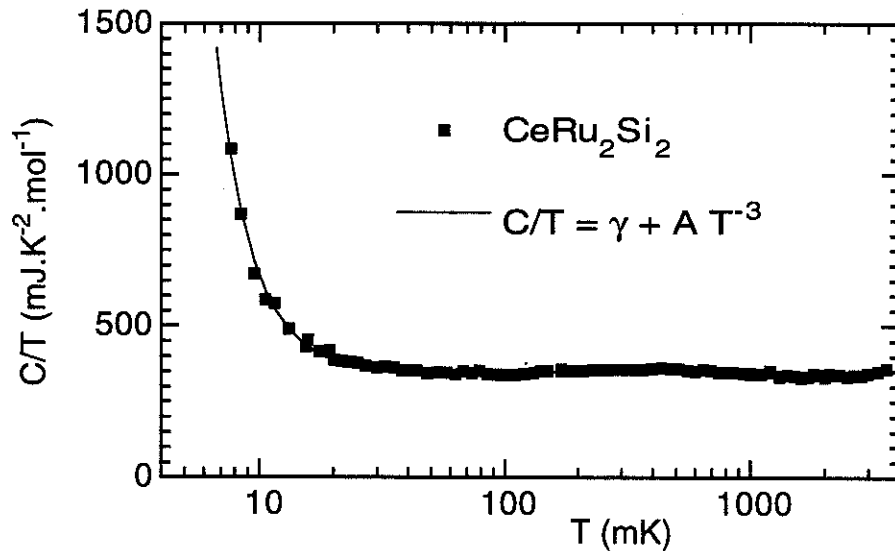


Figure III.7 : Chaleur spécifique d'un monocristal de CeRu_2Si_2 mesuré par J.P. Brison. Le terme $\approx T^{-3}$ est dû à l'interaction hyperfine.

³L'exposant a souvent été trouvé égal à 1.7 ± 0.1 [Haen 1987] ; des mesures plus récentes montrent qu'en réalité une variation en T^2 n'existe qu'au-dessous de 0,4 K [Kambe 1994].

III.1.4. LA TRANSITION PSEUDO-METAMAGNETIQUE DE CeRu_2Si_2

Lorsqu'on applique un champ magnétique parallèlement à l'axe tétragonal c , on observe un point d'inflexion dans l'aimantation $M(H)$ (figure III.8), donc un pic aigu dans la susceptibilité différentielle dM/dH pour un champ critique B^* voisin de 8 T (qui s'abaisse à 7,7 T pour T tendant vers 0)⁴. La magnétostriction différentielle λ' présente un pic plus aigu encore (voir plus loin, figure III.31). Au champ B^* , le coefficient de Sommerfeld γ passe par un large maximum supérieur de 60 % à sa valeur à champ nul de $350 \text{ mJ.K}^{-2}.\text{mole}^{-1}$ [Lacerda 1990, Paulsen 1990a] et descend à $80 \text{ mJ.K}^{-2}.\text{mole}^{-1}$ pour 20 T [van der Meulen 1991] (figure III.9.a) ; une augmentation de la masse effective a été trouvée dans les expériences d'effet de Haas van Alphen. Le rapport de Wilson χ/γ passe également par un maximum à B^* . On voit en outre des anomalies à B^* dans la magnétorésistance [Haen 1987] (figures III.9.b et III.9.c), le pouvoir thermoélectrique, la conductivité thermique [Amato 1988, 1989] (figures III.9.d et III.9.e), la tension de Hall [Haen 1987, Djerbi 1989], les constantes élastiques [Bruls 1990, Weber 1991] et la réflexion de micro-ondes [Hampel 1994].

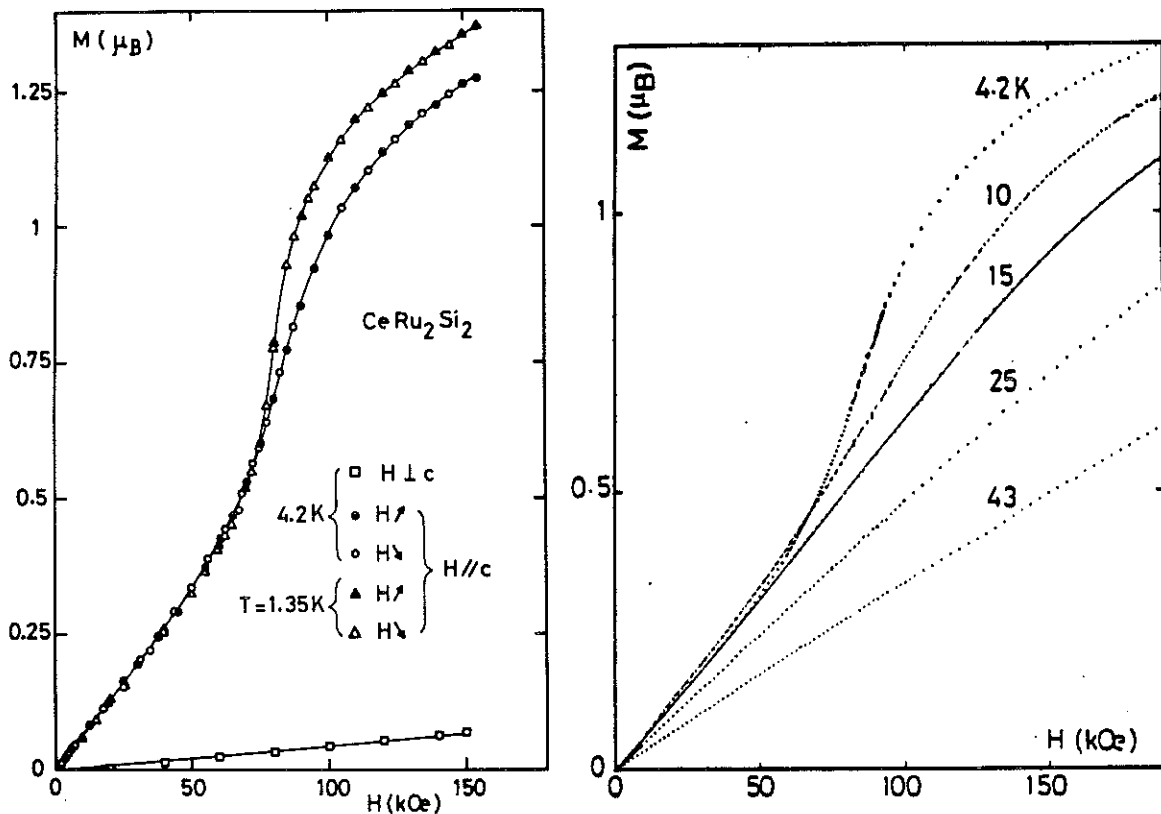


Figure III.8 : Courbes d'aimantation de CeRu_2Si_2 [Haen 1987].

⁴Aucune transition ne se produit pour le champ magnétique appliqué parallèlement à l'axe a ; dans ce cas on observe une aimantation faible et linéaire avec le champ (Fig. III.8).

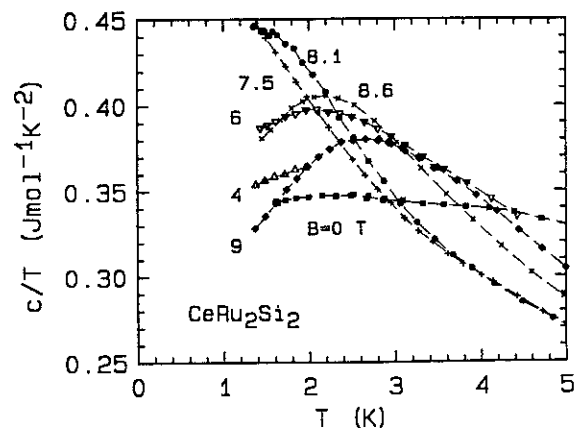
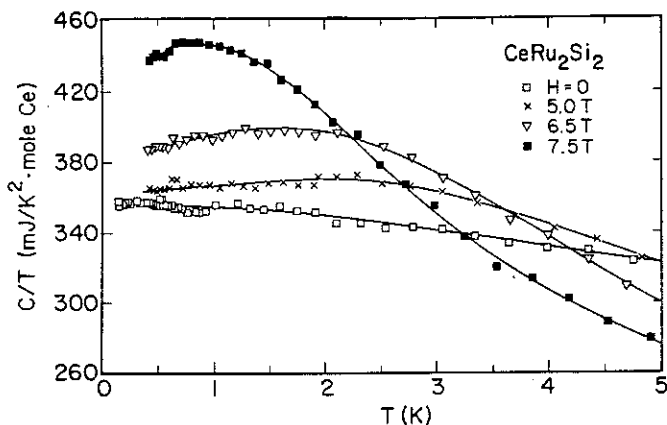
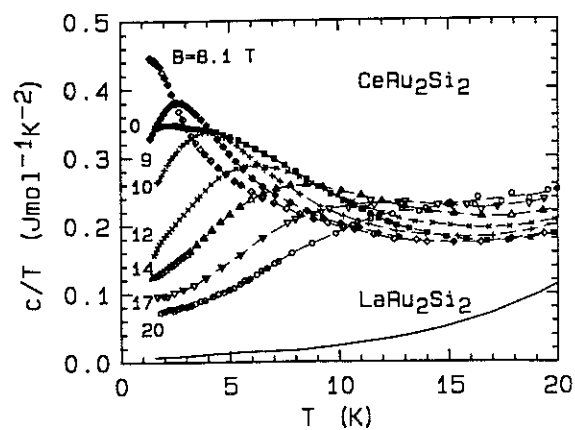
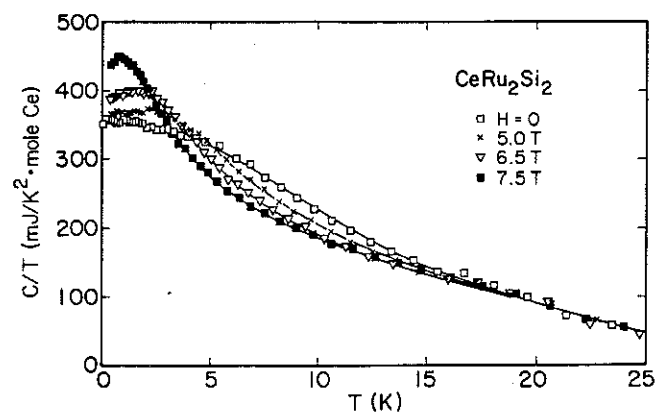


Figure III.9.a: Chaleur spécifique C/T de CeRu_2Si_2 sous champ magnétique. À gauche [Fisher 1991] à droite [van der Meulen 1991].

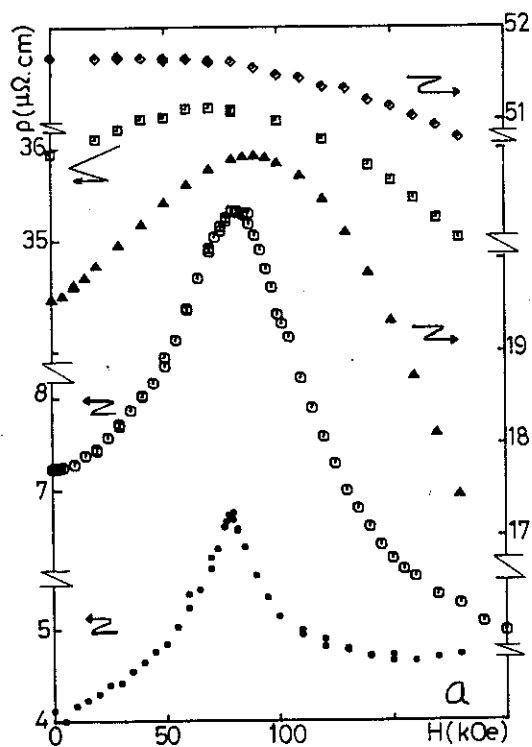


Figure III.9.b : Magnétorésistance d'un monocrystal de CeRu_2Si_2 ; de bas en haut : 1,4 K ; 4,2 K ; 15 K ; 40 K et 73 K ;

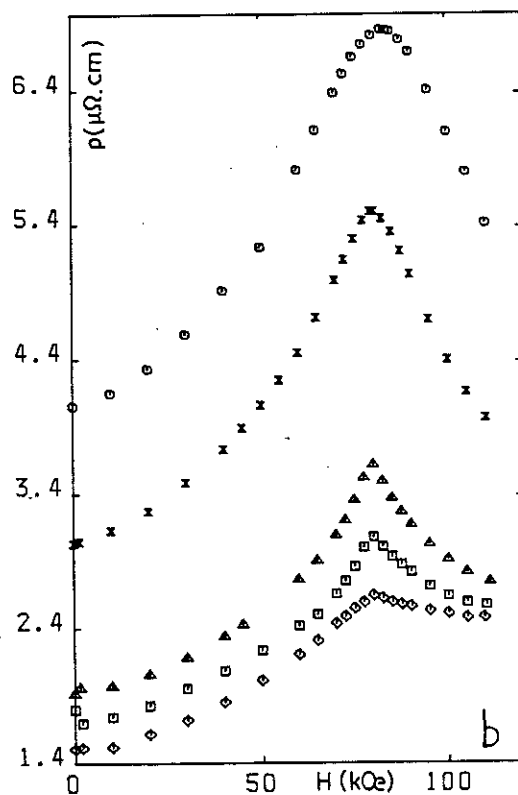


Figure III.9.c : Autre monocrystal : de bas en haut : 70 et 700 mK ; 1,13 K ; 2,7 K et 4,2 K [Haen 1987].

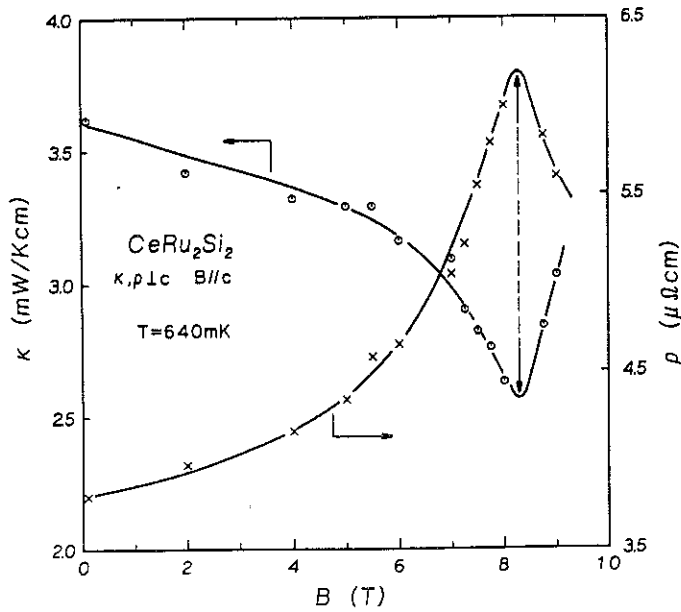


Figure III.9.d : Conductivité thermique et résistivité électrique sous champ magnétique [Amato 1989].

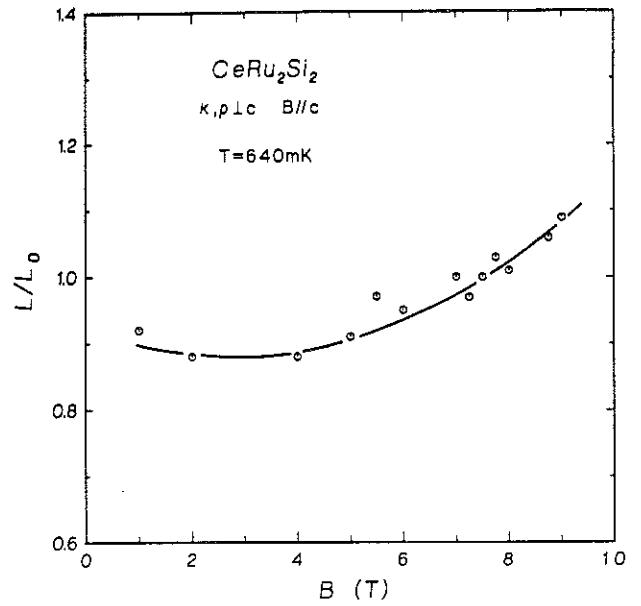


Figure III.9.e : Nombre de Lorentz sous champ magnétique [Amato 1989].

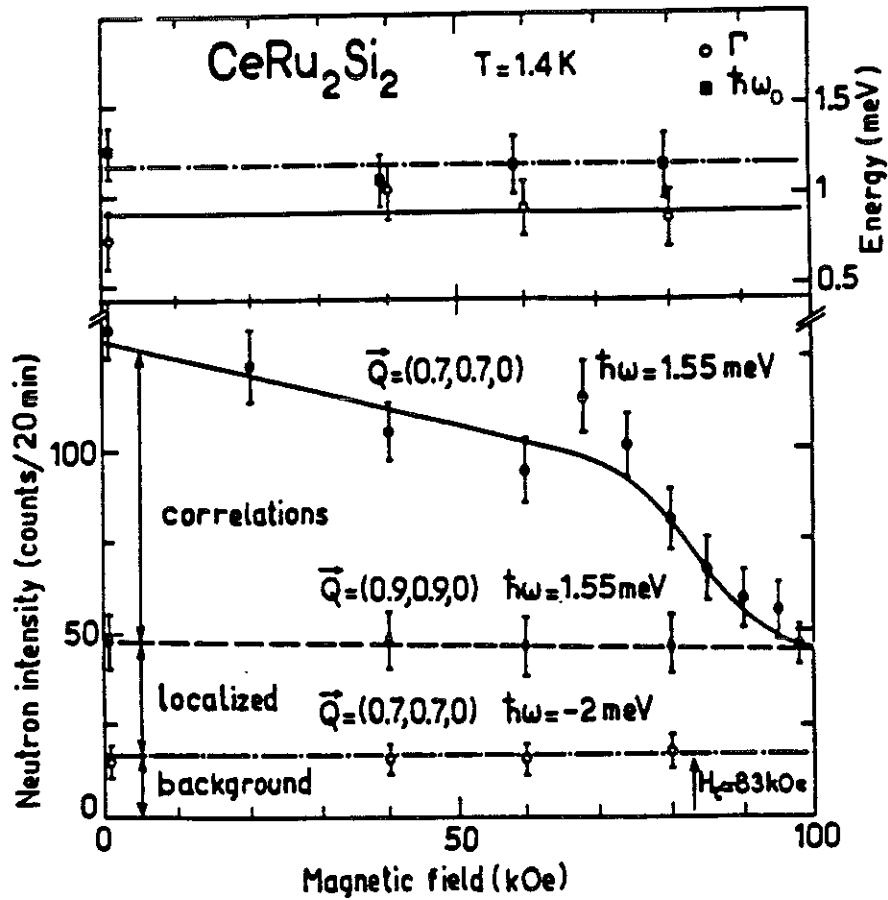


Figure III.10 : Variation en fonction du champ magnétique de l'intensité de la raie inélastique de diffusion de neutrons $Q = (0,7,0,7,0)$ à $1,4\text{ K}$ et de la raie quasiélastique $Q = (0,9,0,9,0)$ [Rossat-Mignod 1988, Jacoud 1991]

Des expériences de diffusion de neutrons montrent que les corrélations antiferromagnétiques à courte distance sont détruites aux alentours de B^* [Rossat-Mignod 1988] (figure III.10). Il s'agit donc du passage d'un état non ordonné, du moins à longue distance, à un état polarisé en champ magnétique appliqué. Aucune hystérésis n'a pu être observée jusqu'à présent. On verra que même dans le cristal le plus pur de CeRu_2Si_2 aucune divergence de la susceptibilité ne peut être observée pour $T \rightarrow 0$. Il n'existe donc aucune indication qu'à $T = 0$ puisse avoir lieu une transition de premier ordre analogue à celle qui caractérise le vrai métamagnétisme dans les systèmes ordonnés [Wohlfarth 1962]. On ne peut pas non plus prouver qu'il y ait un rapport quelconque avec l'ordre magnétique faible observé au-dessous de 2 K, puisqu'on a observé la transition pseudométamagnétique jusqu'à environ 20 K ; celle-ci subsiste en tant qu'anomalie dans la magnétorésistance jusqu'à environ 70 K (figure III.9.b).

Le maximum de la dilatation thermique, qui, à champ nul, est positif, et se situe exactement à $T_m = 9$ K (pour tous les effets magnétovolumiques voir aussi le chapitre III.1.7), se déplace vers les basses températures lorsque cette dilatation est mesurée sous un champ constant appliqué le long l'axe c , ceci jusqu'au champ B^* . Au-dessus de B^* , la dilatation thermique devient négative à basse température et passe par un minimum dont la température cette fois augmente avec le champ appliqué. La valeur de T_m est minimale à B^* , mais jusqu'à présent il n'a pas été montré qu'elle devient exactement nulle à ce champ B^* . Si à champ nul, le maximum à T_m , de même que le maximum de susceptibilité, peuvent être considérés comme liés à la température de fluctuation (ou T_K), on peut penser qu'il n'en est plus de même sous champ magnétique, car les expériences neutroniques montrent que T_K est indépendant du champ magnétique.

La transition pseudo-métamagnétique est accompagnée par une dilatation volumique exceptionnelle parmi les systèmes de fermions lourds. Le cristal se dilate uniformément selon toutes les directions, d'approximativement 1/1000 de son volume. Le même comportement a été trouvé qualitativement et quantitativement à la transition pseudo-métamagnétique de UPt_3 (à $B^* = 20$ T).

En champ intense ($B > 12$ T), on trouve un bon accord entre les mesures de chaleur spécifique et l'approximation à un site (van der Meulen 1991). L'état fondamental de CeRu_2Si_2 n'est donc pas déterminé seulement par la diffusion Kondo à un site mais aussi par les interactions intersites, qui sont éliminées par le champ magnétique.

III.1.5. LA LOI D'ECHELLE DANS CeRu₂Si₂

Des expériences sous pression ont montré de fortes variations des propriétés magnétiques (figure III.11), mais aussi une quasi-indépendance du produit $B^*\chi(B=0)$ en fonction de la pression [Voiron 1988]. Cette invariance rappelle la propriété de la résonance Kondo à un site au niveau de Fermi, où le produit $\gamma T_K \approx R \ln 2$ est également indépendant de la pression [Andrei 1983]. Une hypothèse raisonnable [Puech 1988] est que les propriétés à basse température peuvent être entièrement décrites par une relation entre les grandeurs T_m et B^* caractérisant le système, relation du type :

$$F(B, T, P) = F\left(\frac{B}{B^*(P)}, \frac{T}{T_m(P)}\right)$$

B^* et T_m ont des paramètres de Grüneisen thermique, Γ_T , et magnétique, Γ_B , d'une valeur commune d'environ 170-180. Cette loi indique que le système est déterminé par une seule échelle d'énergie (voir aussi le chapitre I.5) et a été vérifiée à des pressions jusqu'à 6 kbar par des mesures de résistivité et de magnétorésistance sous pression [Thompson 1985b, Ponchet 1987, Mignot 1988, 1990, Haen 1993, Payer 1993].

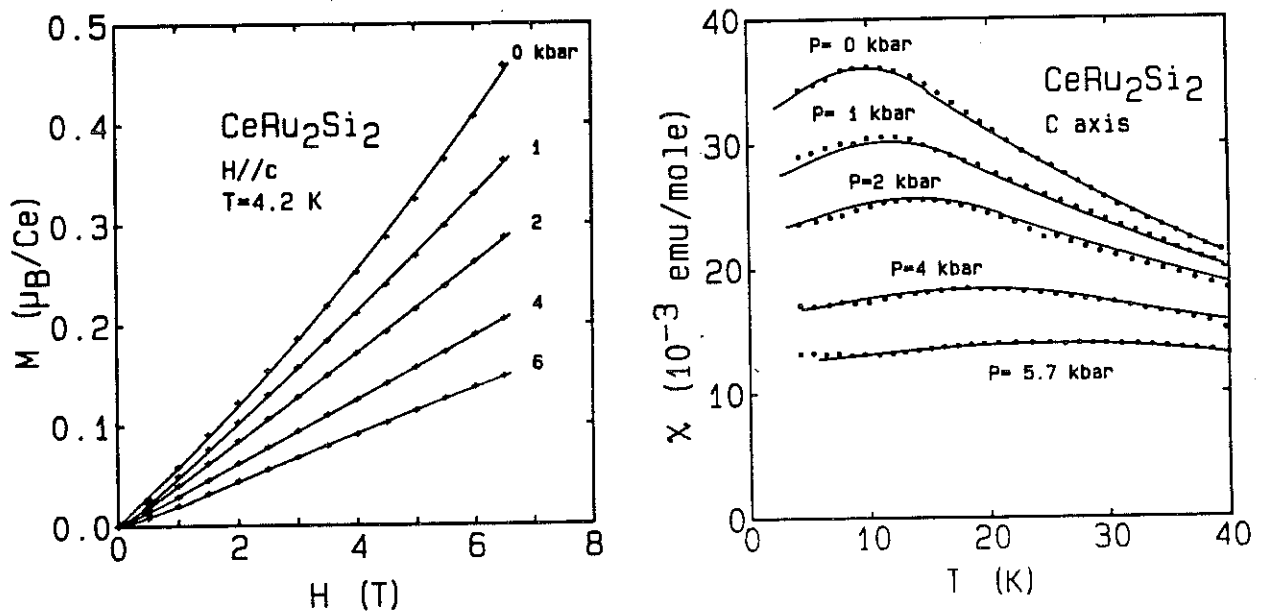


Figure III.11 : Aimantation et susceptibilité de CeRu₂Si₂ sous pression [Voiron 1988]. Les courbes en trait continu, sur la figure de droite, sont déduites de la courbe à $P = 0$ au moyen de la loi d'échelle.

III.1.6. LES SYSTEMES $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$ ET $\text{Ce}_{1-y}\text{Y}_y\text{Ru}_2\text{Si}_2$

III.1.6.a. Généralités

On peut changer le volume du réseau cristallin en remplaçant des atomes de Ce par leurs équivalents non magnétiques La ou Y. La substitution par Y diminue le volume, tandis que celle par La l'augmente et induit ainsi une "pression chimique négative" (figure III.12).

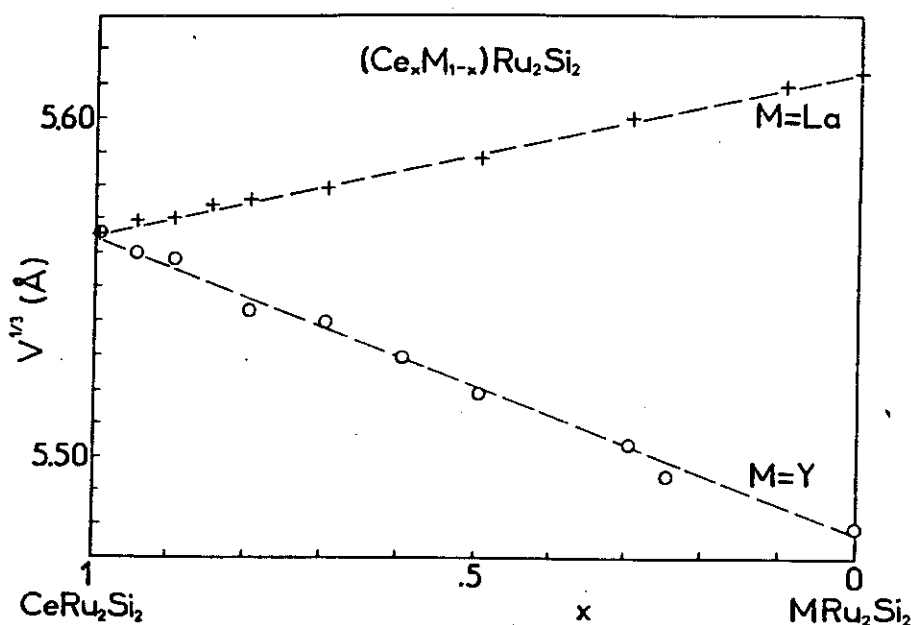


Figure III.12 : Variation du paramètre de réseau à l'ambiante dans les systèmes $(\text{Ce}_x\text{M}_{1-x})\text{Ru}_2\text{Si}_2$, avec $M = \text{La}$ et Y [Besnus 1987, Lehmann 1987].

Dans une large étude [Lehmann 1987], il a été montré que les systèmes $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$ et $\text{Ce}_{1-y}\text{Y}_y\text{Ru}_2\text{Si}_2$ obéissent très bien à la loi d'échelle avec un paramètre de Grüneisen constant pour des faibles concentrations d'impuretés, inférieures à 10 % de Y ou 20 % de La (figure III.13). De telles substitutions devraient donc induire principalement des effets de volume⁵.

⁵La variation de la température de Kondo permet de cerner ce domaine comme suit. L'alliage à 20 % d'yttrium n'obéit plus à la loi d'échelle. La température de fluctuation se rapproche de 100 K à cause de sa dépendance exponentielle avec la pression, se situant donc dans le même ordre de grandeur que la température à laquelle apparaissent la levée de dégénérescence due au champ cristallin et les corrélations antiferromagnétiques. Le système passe à un état de fluctuation de valence. Par contre, c'est pour une concentration de 30 % de lanthane que l'on retrouve un écart à la loi d'échelle analogue à celui causé par 20 % d'Y. Cet écart s'explique peut-être par la différence de variation de volume. Mais la pratique expérimentale est sujette à des limites bien plus étroites : pour des concentrations de La supérieures ou égales à 8 %, un ordre antiferromagnétique à longue distance se superpose à l'état fermion lourd fondamental [Quézel 1988]. L'échantillon à 10 % d'Y possède déjà un champ pseudomagnétique B^* de 20 T [Haen1994], qu'il est difficile d'atteindre expérimentalement.

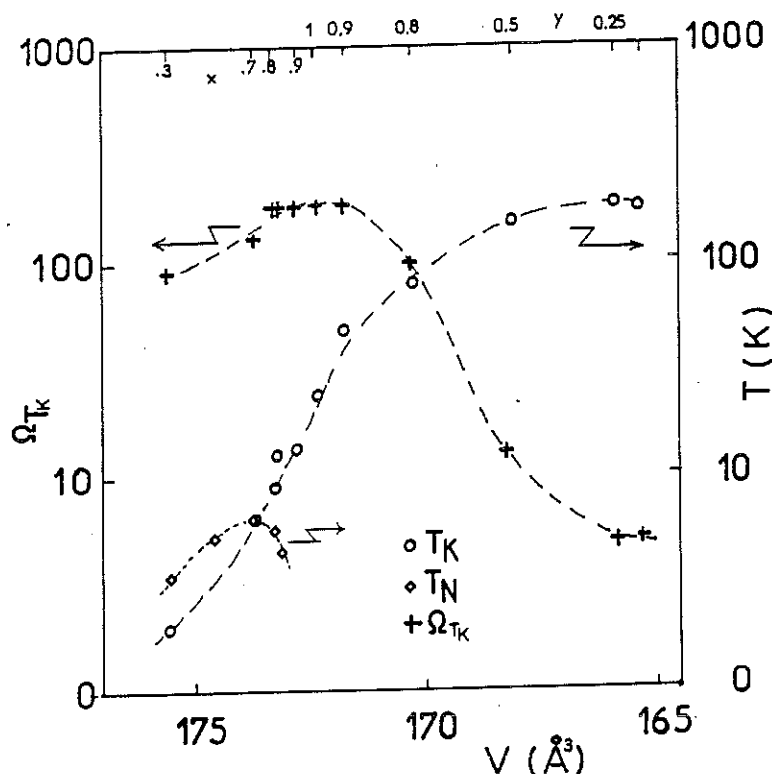


Figure III.13 :
Coefficient de Grüneisen thermique Γ_T , température de Kondo T_K et température de Néel T_N dans les systèmes $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$ et $\text{Ce}_{1-y}\text{Y}_y\text{Ru}_2\text{Si}_2$ [Lehmann 1987]

Les mêmes auteurs ont trouvé, dans les mesures de photoémission, que l'occupation du niveau 4f du Ce varie entre 0,952 pour $\text{Ce}_{0,1}\text{La}_{0,9}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ et 0,825 pour $\text{Y}_{0,1}\text{La}_{0,9}\text{Ru}_2\text{Si}_2$, donc que le terme d'hybridation V_{cf} varie entre 75 et 105 meV (800-1000 K). Ces résultats sont à comparer avec la transition γ - α dans le cérium pur où V_{cf} est 82 meV pour Ce- γ et 105 meV pour Ce- α .

III.1.6.b. Propriétés magnétiques des systèmes $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$ et $\text{Ce}_{1-y}\text{Y}_y\text{Ru}_2\text{Si}_2$

En substituant du lanthane au cérium, le maximum de susceptibilité à T_m se déplace vers les basses températures [Fisher 1991] (figure III.14), tandis qu'il se déplace vers les hautes températures en substituant de l'yttrium [Park 1994a] (figure III.15), comme sous l'effet de la pression. Cela est conforme à une diminution ou une augmentation de la température caractéristique (T_K , ou température de fluctuation).

Des expériences de diffraction neutronique [Quézel 1988] ont montré qu'un ordre à longue distance existe à basse température dès que la concentration $x(\text{La})$ atteint 8 % (figure III.16). Cet ordre ne donne cependant pas lieu à une anomalie dans la susceptibilité (figure III.14) ou dans la chaleur spécifique (figure III.17) tant que la concentration de La reste inférieure à 10 %.

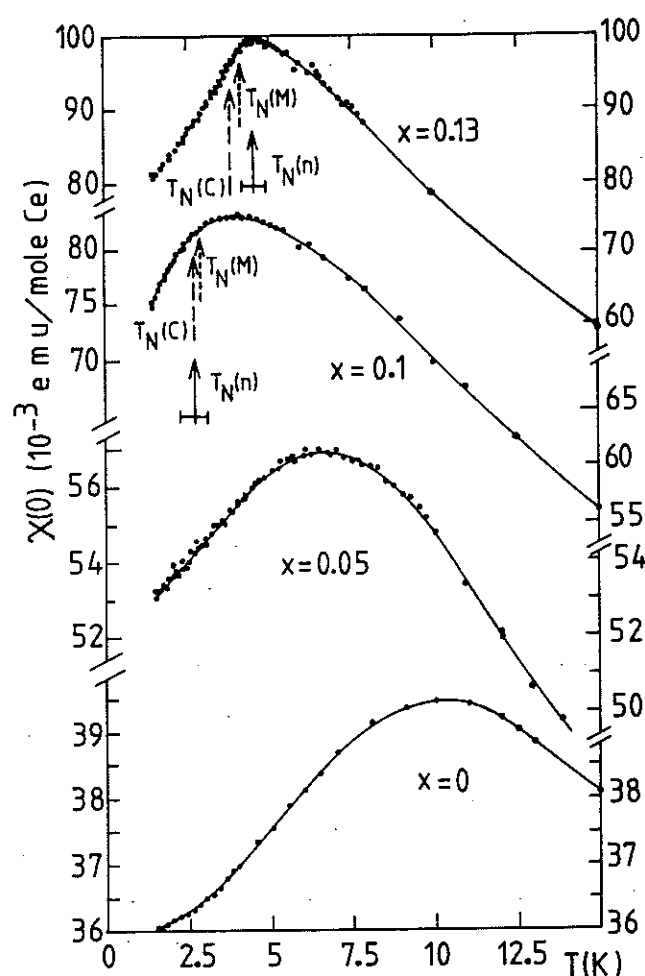


Figure III.14 : Susceptibilité de CeRu_2Si_2 et d'alliages $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$ dans la région du maximum [Fisher 1991].

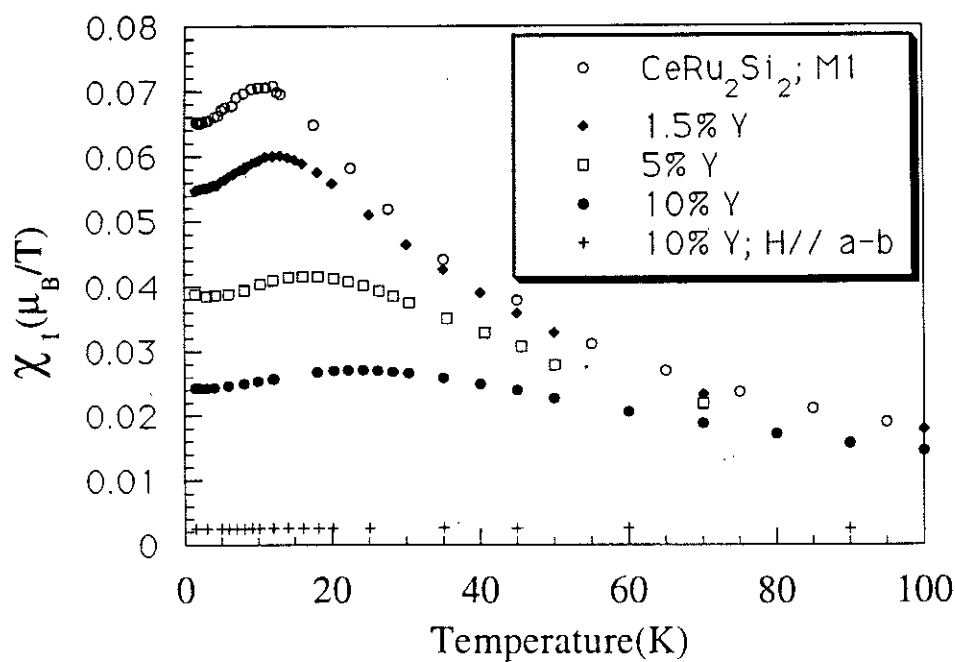


Figure III.15 : Susceptibilité de CeRu_2Si_2 et d'alliages $\text{Ce}_{1-y}\text{Y}_y\text{Ru}_2\text{Si}_2$ montrant le déplacement du maximum vers les hautes températures [Park 1994a].

La figure III.18 représente la résistivité, $\rho(T)$, de quelques alliages $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$. Un minimum de $\rho(T)$, suivi d'une remontée logarithmique, due à l'effet Kondo à une impureté se produit pour $x > 0,2$. L'ordre magnétique se manifeste ensuite par une chute de $\rho(T)$.

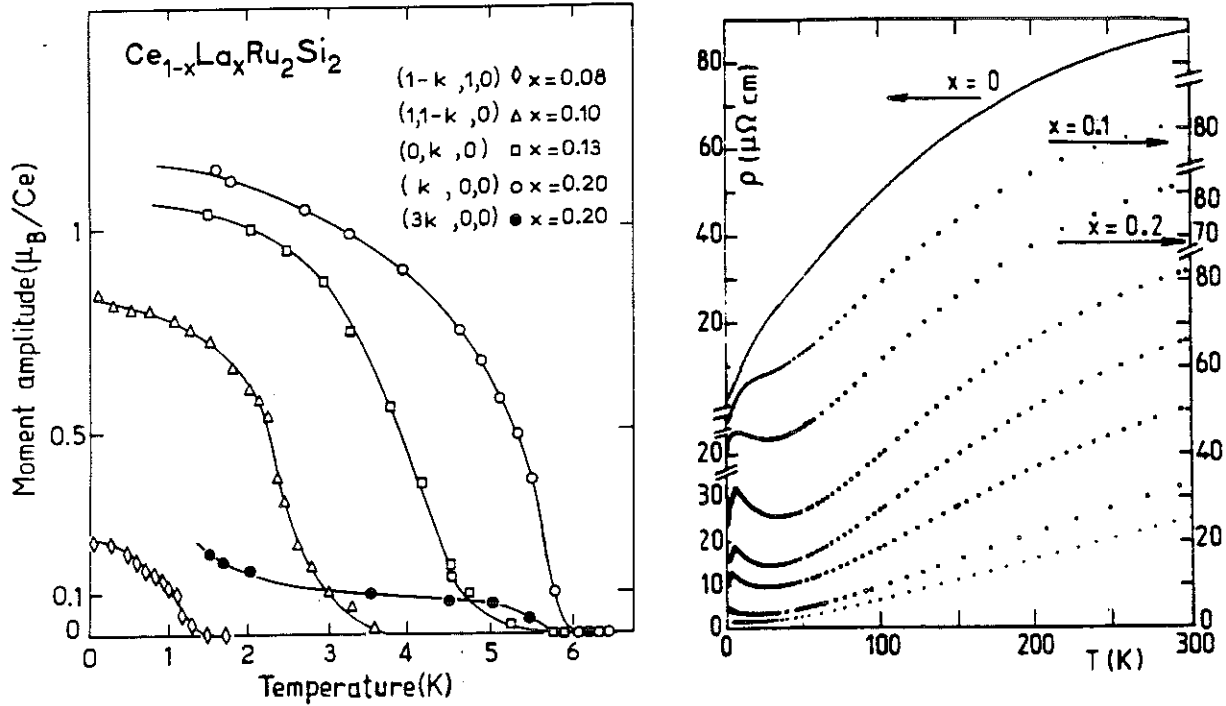


Figure III.16 : Variation thermique du moment magnétique d'alliages $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$ mesuré par diffraction de neutrons [Quézel 1988].

Figure III.18 : Variation de la résistivité de $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$ au-dessous de 300K. De haut en bas $x = 0 ; 0,1 ; 0,2 ; 0,3 ; 0,5 ; 0,7 ; 0,9$ et 1 [Djerbi 1988, 1989].

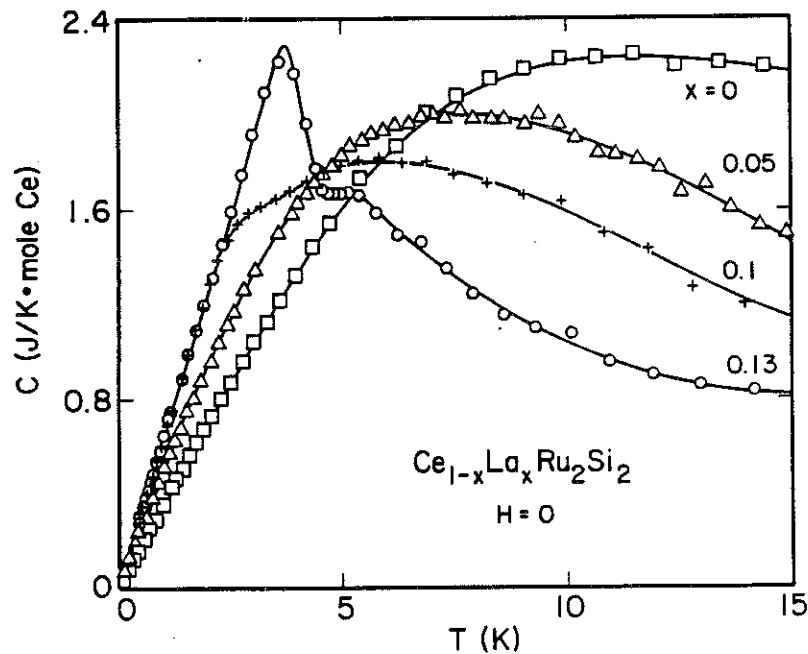


Figure III.17 : Chaleur spécifique à basse température de CeRu_2Si_2 et d'alliages $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$. [Fisher 1991].

Les figures III.19 et III.20 représentent des courbes d'aimantation d'alliages de différentes concentrations en La et Y. On voit aussi sur la figure III.19 les dérivées de quelques unes de ces courbes.

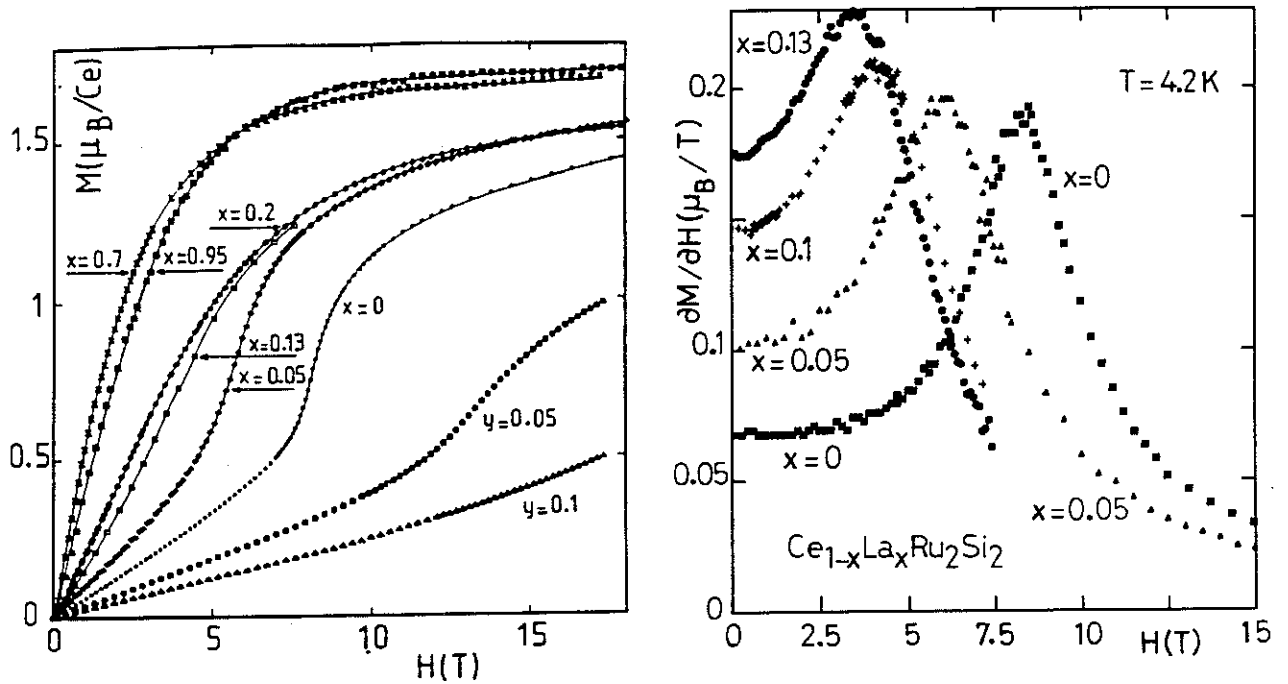


Figure III.19 : à gauche : aimantation de $(\text{Ce}_{1-y}\text{Y}_y)\text{Ru}_2\text{Si}_2$ et $(\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x)\text{Ru}_2\text{Si}_2$ dans la phase paramagnétique pour H/c [Haen 1988a] : $y = 0,1$ à $4,2$ K ; $y = 0,05$, $x = 0$ et $0,05$ à $1,4$ K ; $x = 0,13$ à $4,2$ K ; $x = 0,2$ à 6 K ; $x = 0,7$ et $0,95$ à $4,2$ K ; à droite : dM/dH pour $x = 0 ; 0,5 ; 0,1$ et $0,13$ [Fisher 1991].

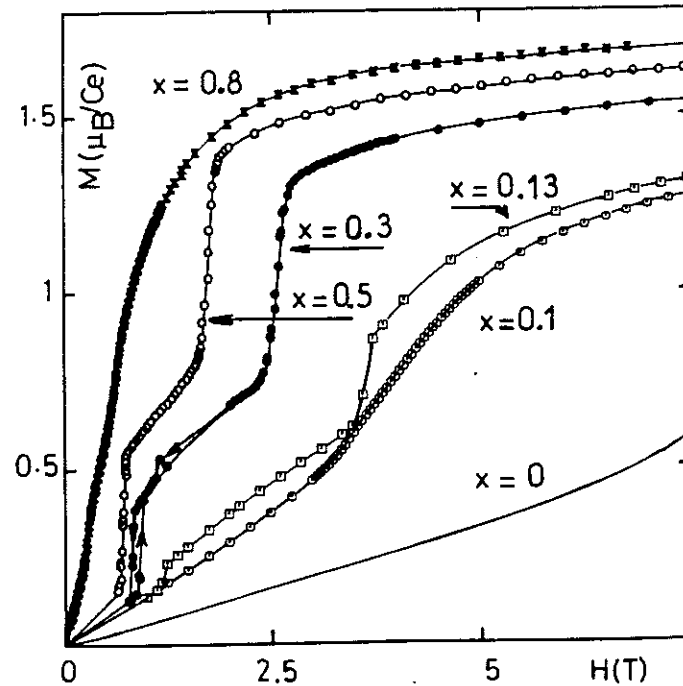


Figure III.20 : Aimantation à $1,4$ K d'alliages $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$ ordonnés, (au-dessous de T_N) [Haen 1988a].

Dans CeRu_2Si_2 , la valeur de l'aimantation à la transition est $0,72 \mu_B/\text{Ce}$. Cette valeur de $M(B^*)$ varie peu avec la température et peut être considérée comme une valeur critique : selon la loi d'échelle elle ne devrait pas varier avec le dopage. Ceci est bien vérifié pour les dopages en La, et pour 1,5 % d'Y ; dans ces cas, la valeur de $M(B^*)$ augmente même légèrement [Haen 1994] ; ensuite, $M(B^*)$ diminue lorsque la concentration d'Y augmente. Dans les alliages riches en La, le moment à saturation est de $1,8 \mu_B/\text{Ce}$.

On voit clairement sur la figure III.20 que les alliages avec une concentration suffisante de La montrent une vraie transition métamagnétique (dans laquelle l'ordre antiferromagnétique est détruit). Cependant, la transition pseudo-métamagnétique peut être observée aussi dans des alliages de concentration supérieure à la valeur critique $x(\text{La}) \geq 8 \%$, non seulement au-dessus de T_N (voir, figure III.19, les courbes pour $x = 0,1$ et $x = 0,13$), mais aussi à $T < T_N$, juste au-dessus de la vraie transition métamagnétique. Cela se voit mieux sur la dérivée des courbes d'aimantation (figure III.21) [Haen 1990, Fisher 1991].

La phase ordonnée possède des particularités. Sur la figure III.16, on voit très bien que le moment magnétique ordonné est réduit (par l'effet Kondo), et augmente en fonction de la concentration de La (en fait, il ne s'agit pas vraiment d'un ordre à longue portée, la longueur de cohérence a été trouvée de quelques centaines d'Å [Jacoud, 1991]).

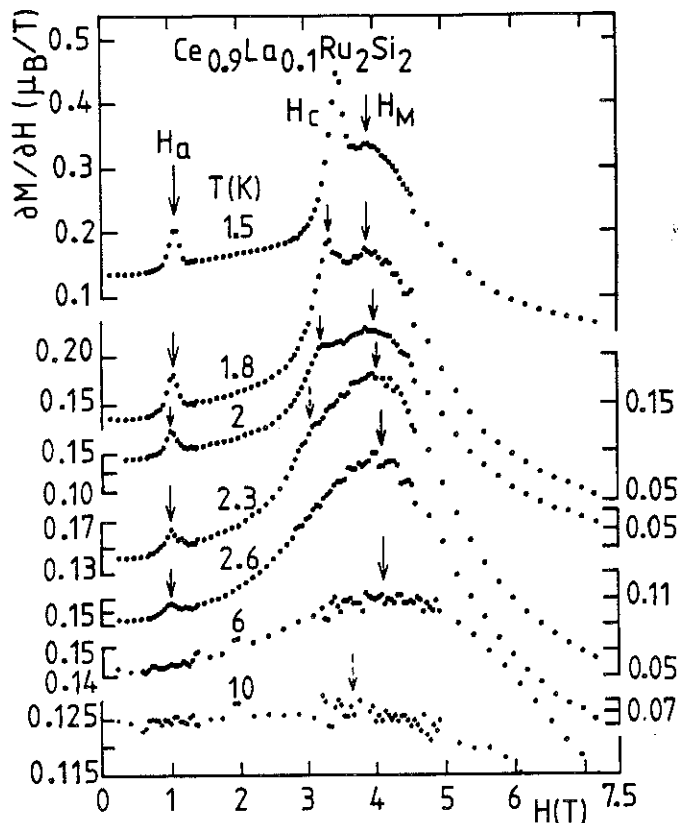


Figure III.21 : Dérivée des courbes d'aimantation à basse température pour le système $\text{Ce}_{0,9}\text{La}_{0,1}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ [Haen 1990, Fisher 1991], montrant l'existence d'un maximum lié à la transition pseudométamagnétique à $T > T_N$, mais aussi à $T < T_N$ alors que les pics à plus bas champ sont caractéristiques de "vraies" transitions métamagnétiques (voir le diagramme de phase, figure III.22).

III.1.6.c. Diagramme de phase magnétique

Celui-ci a été déterminé par des mesures magnétiques et de chaleur spécifique pour les alliages $x(\text{La}) = 0,1$ et $0,13$ [Haen 1990, Fisher 1991]. Dans ces deux alliages, les champs métamagnétiques et pseudométamagnétiques semblent être identiques dans la limite $T \rightarrow 0$ (figure III.22).

Le diagramme de phase a été déterminé en détail par diffraction de neutrons pour l'alliage $x(\text{La}) = 0,2$ [Mignot 1990, 1991, Jacoud 1991] (figure III.23). La phase à champ faible est caractérisée par un vecteur de propagation incommensurable $\mathbf{k} = (0,309, 0, 0)$ qui est aussi observé dans CeRu_2Si_2 comme vecteur de propagation des corrélations à courte distance. La phase à basse température et haut champ (II) est commensurable et se caractérise par le vecteur $\mathbf{k} = (1/3, 1/3, 0)$, tandis que la phase haut champ et haute température (III) est caractérisée par deux vecteurs $\mathbf{k}_1 = (0,309, 0, 0)$ et $\mathbf{k}_2 = (0,309, 0, 309, 0)$; le second est également trouvé dans le composé pur. On peut observer des effets d'hystérésis et on peut supposer qu'il s'agit d'une transition de phase de premier ordre. On notera aussi l'existence, en champ faible, d'une phase à basse température (I^*) qui est thermodynamiquement clairement discernable, mais qui, microscopiquement, ne se distingue pas trop de la phase (I). On suppose que la transition $I \rightarrow I^*$ est une transition d'une structure sinusoïdale vers une structure carrée. La complexité de ce diagramme de phase résulte principalement du fait qu'il s'agit d'un plan d'interactions magnétiques et non d'une seule direction, contrairement au cas des alliages $\text{U}(\text{Pt}_{1-x}\text{Pd}_x)_3$ [Frings 1987], où la phase ordonnée est simple. La structure magnétique en faible champ demeure la même pour toutes les concentrations de La jusqu'à $x = 0,8$ [Mignot 1990]. Les variations de T_N et des différents champs caractéristiques du système $(\text{Ce},\text{La})\text{Ru}_2\text{Si}_2$ sont tracées sur la figure III.24 [Haen 1988b].

III.1.6.d. Effet de la pression

Celui-ci a été mesuré sur l'alliage avec $x(\text{La}) = 0,8$, par diffraction de neutrons [Regnault 1990b, Jacoud 1991] et par mesures d'aimantation [Voiron 1991]. Il a été observé que la température de Néel T_N et le moment magnétique disparaissent au voisinage de 7 kbars, comme le montre la figure III.25.

En conclusion, les alliages $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$ et $\text{Ce}_{1-y}\text{Y}_y\text{Ru}_2\text{Si}_2$ représentent donc tout le spectre de systèmes Kondo : partant d'un système avec des moments magnétiques localisés (plus de 30 % de La), on arrive, via un système de fermions lourds, à un système où les électrons 4f du Ce participent à la bande de conduction comme dans un métal normal (dopage en Y).

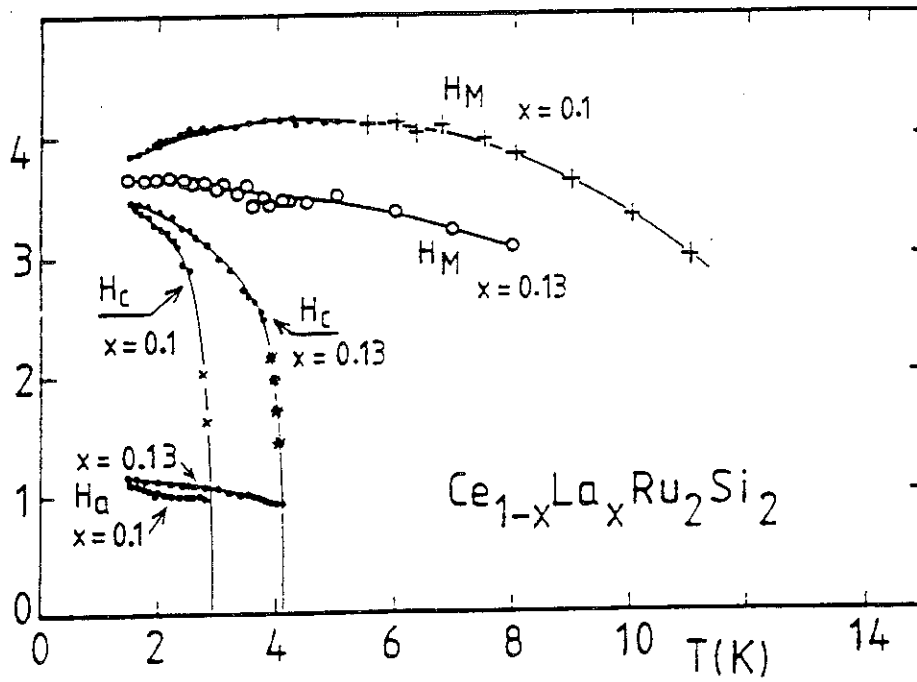


Figure III.22 : Diagramme de phase des alliages avec $x(\text{La}) = 0,1$ et $0,13$ [Fisher 1991, Haen 1990].

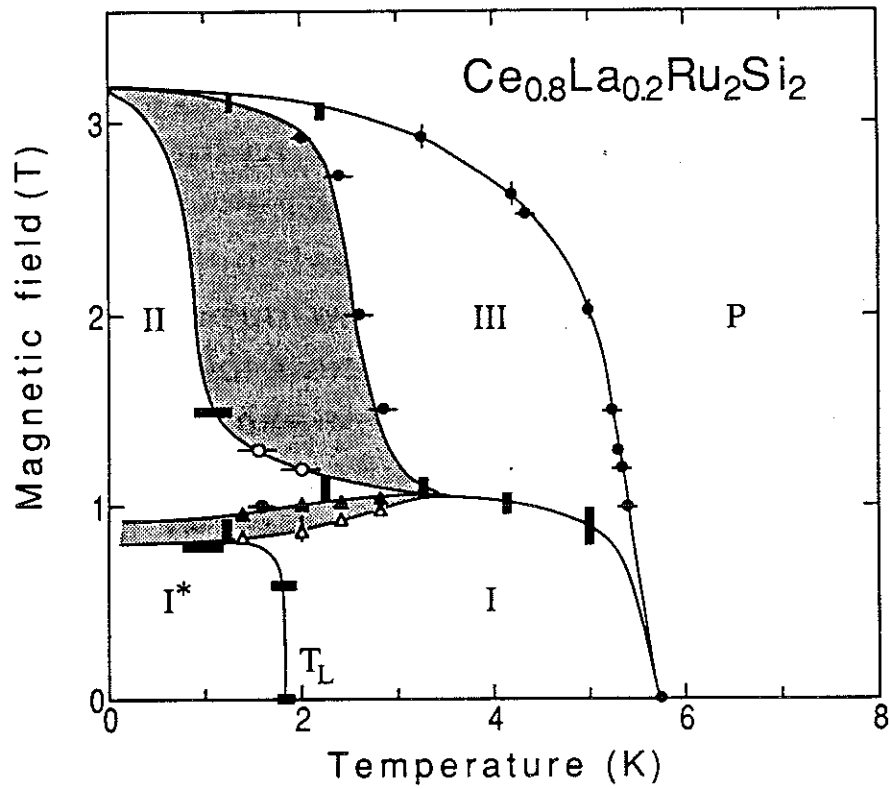


Figure III.23 : Diagramme de phase de $(\text{Ce}_{0,80}\text{La}_{0,20})\text{Ru}_2\text{Si}_2$ [Mignot 1991].

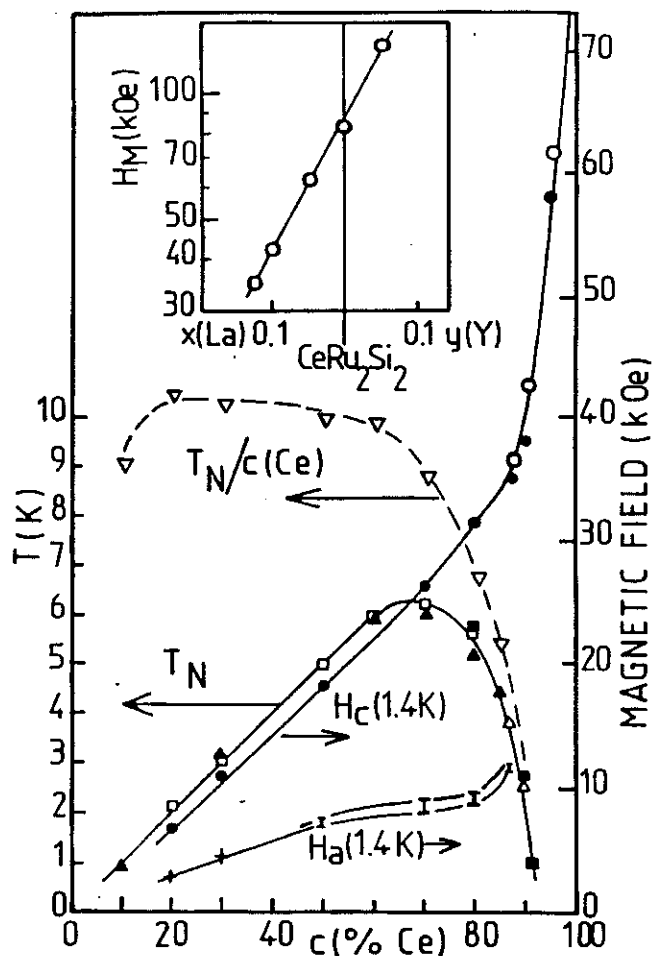


Figure III.24 : Diagramme du système $(\text{La,Ce})\text{Ru}_2\text{Si}_2$ [Haen 1988b] en fonction de la concentration c de Ce, représentant : la variation de T_N déduite de la chaleur spécifique ($\blacktriangle$) [Besnus 1985, Lehmann 1987], ($\triangle$) [Fisher 1988], de la diffraction neutronique ($\blacksquare$) [Quézel 1988] et de la susceptibilité alternative ($\square$) (mesures de F. Lapierre et P. Haen) ; les variations de T_N/c (∇), 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 $\times$). L'encart montre la variation de $\log(H_M)$ à 4,2 K en fonction de faibles concentrations de La et d'Y.

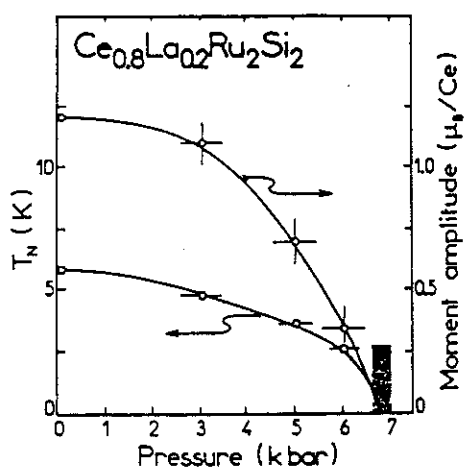


Figure III.25 : Variations de T_N et du moment magnétique avec la pression dans $\text{Ce}_{0.8}\text{La}_{0.2}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ [Regnault 1990b, Jacoud 1991].

III.1.7. LES EFFETS MAGNETOVOLUMIQUES DANS CeRu_2Si_2

La dilatation thermique de CeRu_2Si_2 et la contribution électronique (après soustraction de la dilatation de LaRu_2Si_2) sont représentées sur la figure III.26 [Lacerda 1989a, 1990]. On note que le cristal se dilate uniformément selon les axes a et c de la structure tétragonale avec un rapport entre les deux axes $\alpha_a/\alpha_c \approx 3$; dans le composé à 5% de La, ce rapport vaut 2,5.

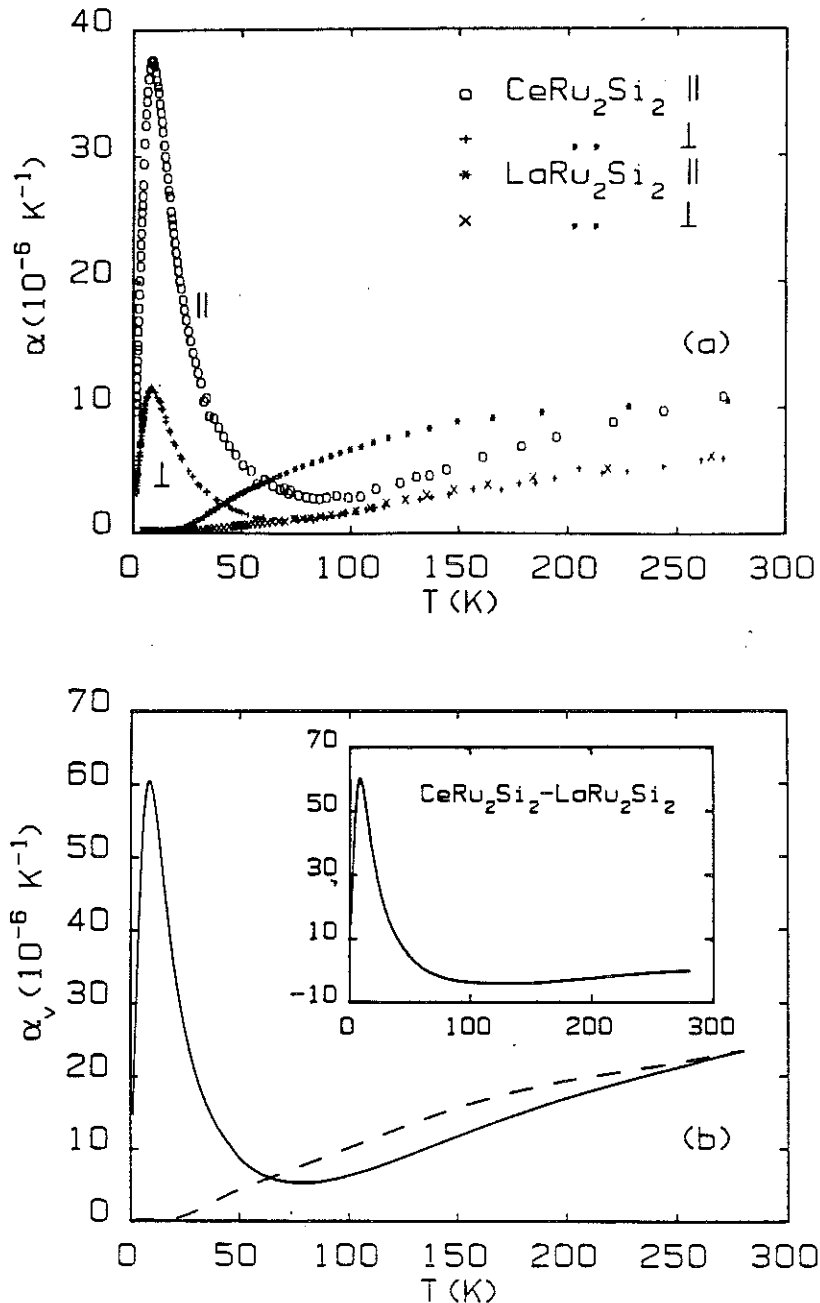


Figure III.26 : en haut , coefficients de dilatation thermique de CeRu_2Si_2 et de LaRu_2Si_2 selon les deux axes quadratiques ; en bas, coefficient de dilatation thermique volumique de CeRu_2Si_2 ; la contribution électronique est tracée en encart [Lacerda 1989a, 1990].

Sur la figure III.26, on observe un faible minimum de α_v autour de 120 K et un très grand maximum à 9 K. Les deux anomalies peuvent, par analogie avec les résultats de chaleur spécifique (figure III.5), être attribuées respectivement, à l'effet Kondo à un site (dans un modèle de résonance [Schotte 1975]) et à l'effet Schottky entre les deux premiers niveaux de champ cristallin [Gopal 1966]. Pour ces deux anomalies, les paramètres de Grüneisen valent respectivement 190 et -5,3.

La variation du paramètre de Grüneisen effectif avec la température est représentée sur la figure III.27. On note que Γ_{eff} augmente encore au-dessous de 9 K, où se produit le maximum de α_v .

Sous champ magnétique, le maximum de α_v à T_m se déplace vers les basses températures pour $B < B^*$. Pour $B > B^*$, α_v devient négatif et présente un minimum qui se déplace vers les hautes températures lorsque l'on augmente le champ appliqué (figure III.28).

A haute température, le paramètre de Grüneisen Γ_{eff} est réduit sous champ magnétique, mais à basse température, il augmente d'autant plus rapidement que le champ magnétique est proche de B^* (figure III.29). Une inversion de signe a lieu exactement à B^* . Dans la limite $T \rightarrow 0$, Γ_{eff} diverge et change de signe, atteignant la valeur gigantesque de ± 1900 (encart de la figure III.29).

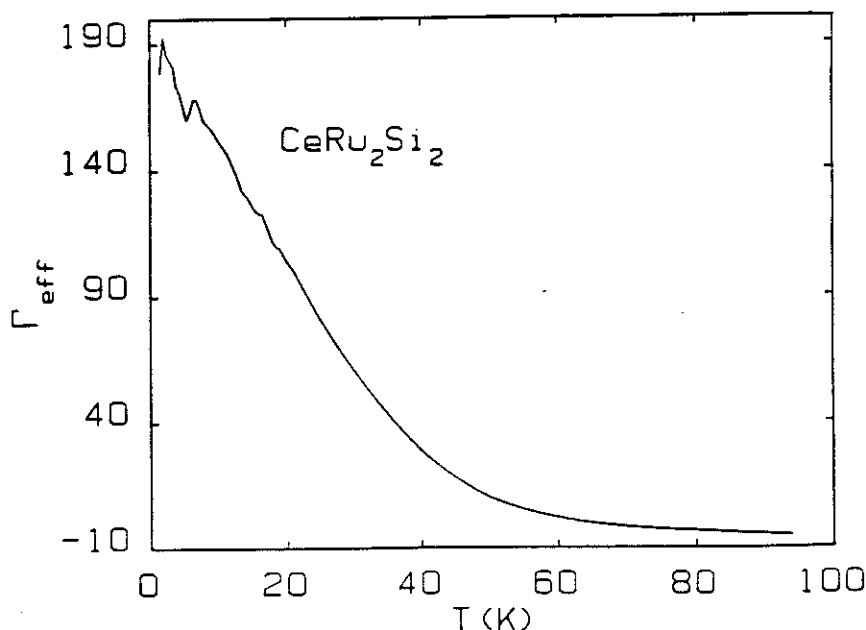


Figure III.27 : Paramètre de Grüneisen effectif dans CeRu_2Si_2 [Lacerda 1989a, 1990].

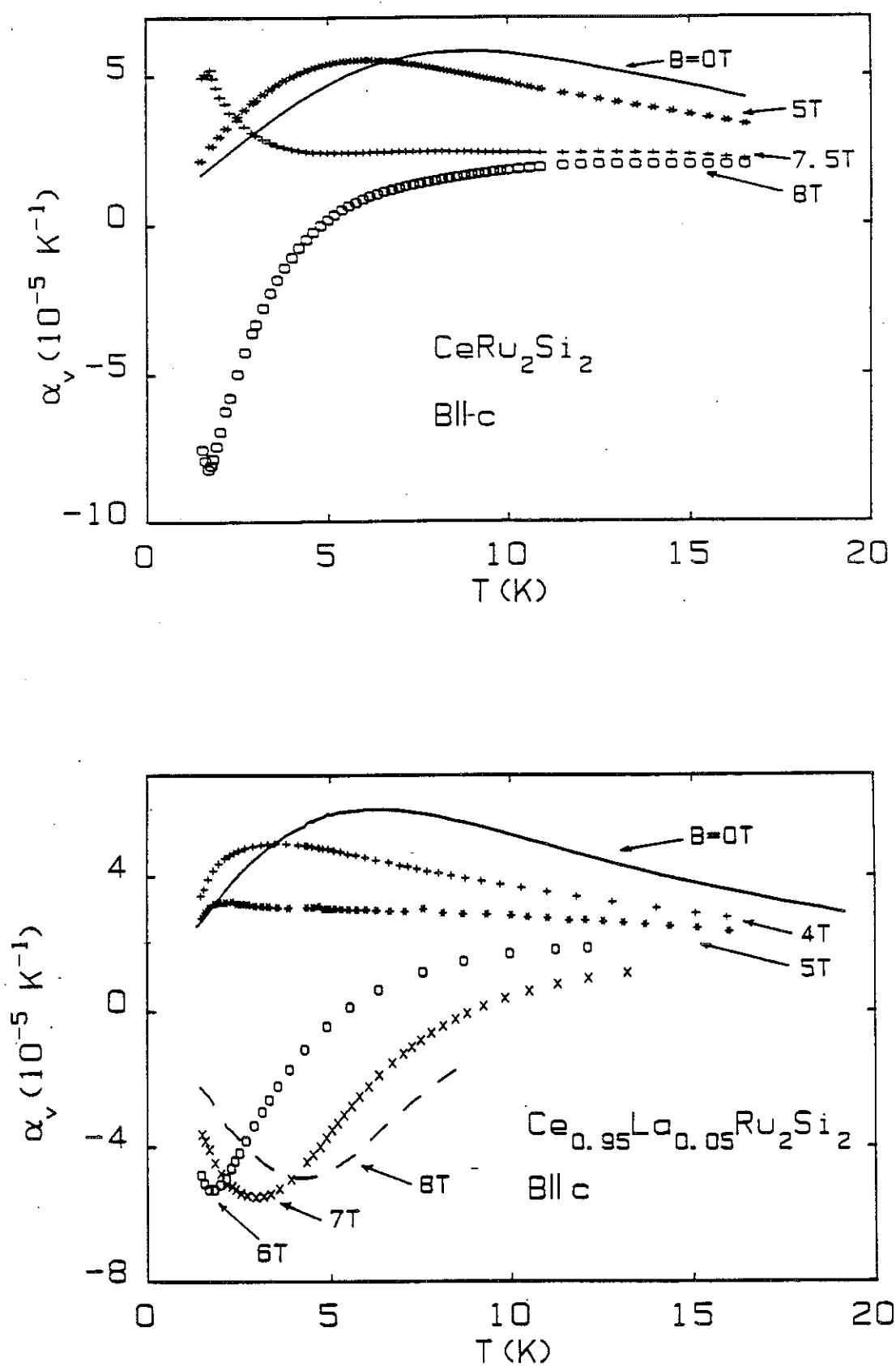


Figure III.28 : Dilatation thermique de CeRu_2Si_2 et de $\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ sous différents champs magnétiques [Lacerda 1990, Paulsen 1990a].

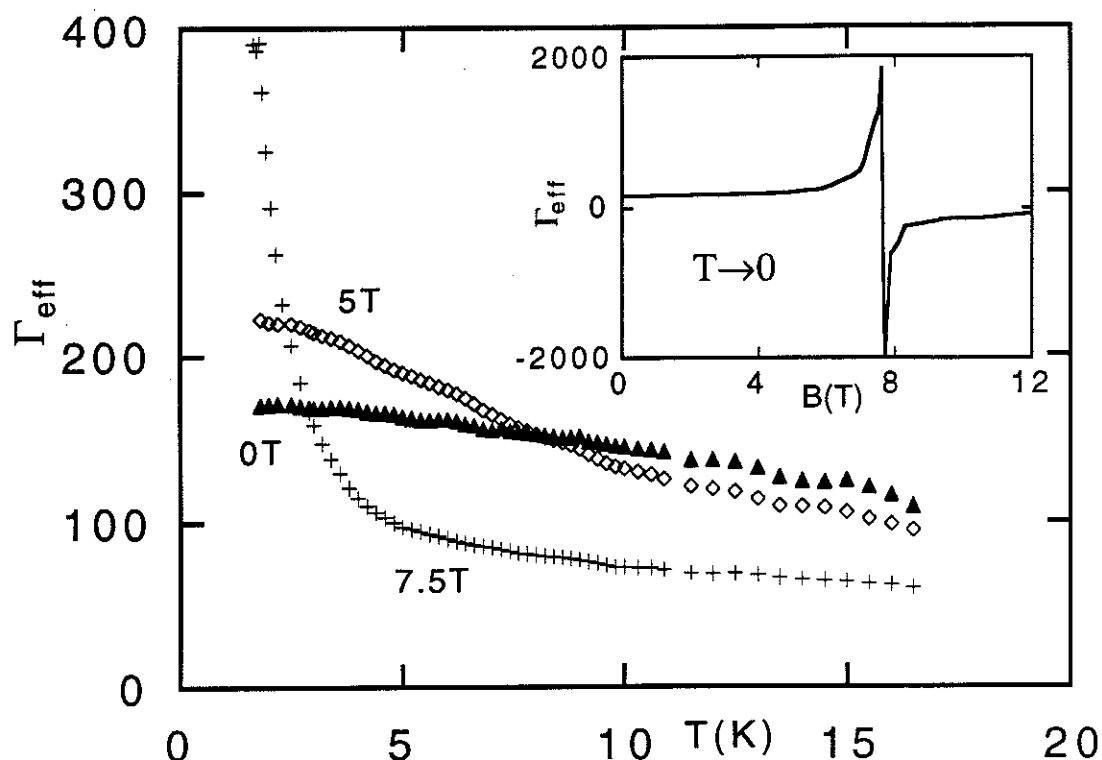


Figure III.29 : Paramètre de Grüneisen effectif de CeRu_2Si_2 sous champ.

En encart, variation sous champ de Γ_{eff} dans la limite $T \rightarrow 0$. (Graphique réalisé avec les données de dilatation thermique [Lacerda 1989b, 1990] et de chaleur spécifique [Fisher 1991]).

La magnétostriction de CeRu_2Si_2 est très grande ($dV/V(B^*) \sim 10^{-3}$) et uniforme selon les deux axes (figure III.30) ; le rapport λ_a/λ_c est égal à 3 comme α_a/α_c . La variation de dV/V avec le champ magnétique est en bon accord avec la loi d'échelle [Puech 1988], qui exige $dV/V = \Gamma_B/V_0 \int_0^{M(H)} H(m) dm$.

A très basse température, λ' présente un pic très aigu (figure III.30) qui, comme l'aimantation, rappelle une transition métamagnétique.

Les composés non-ordonnés de $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$ se comportent comme CeRu_2Si_2 pur où T_m et B^* varient selon la loi d'échelle. On constate que le paramètre de Grüneisen augmente à proximité de l'instabilité magnétique.

Les effets magnétovolumiques ont été étudiés sur le composé ordonné $\text{Ce}_{0,8}\text{La}_{0,2}\text{Ru}_2\text{Si}_2$. A T_N , α change de signe presque symétriquement autour de zéro (figure III.31). On observe également une deuxième transition à plus basse température (qui donne lieu à une seconde chute de résistivité, et a été discutée avec le diagramme de phase). Le paramètre de Grüneisen varie de 150 à 10 K à -150 dans la limite $T \rightarrow 0$ (figure III.32). La magnétostriction dans la phase

ordonnée est beaucoup plus faible que pour les composés non-ordonnés (figure III.33). A plus haute température ($T > T_N$), dV/V devient comparable à celui des autres composés non ordonnés [Lacerda 1988].

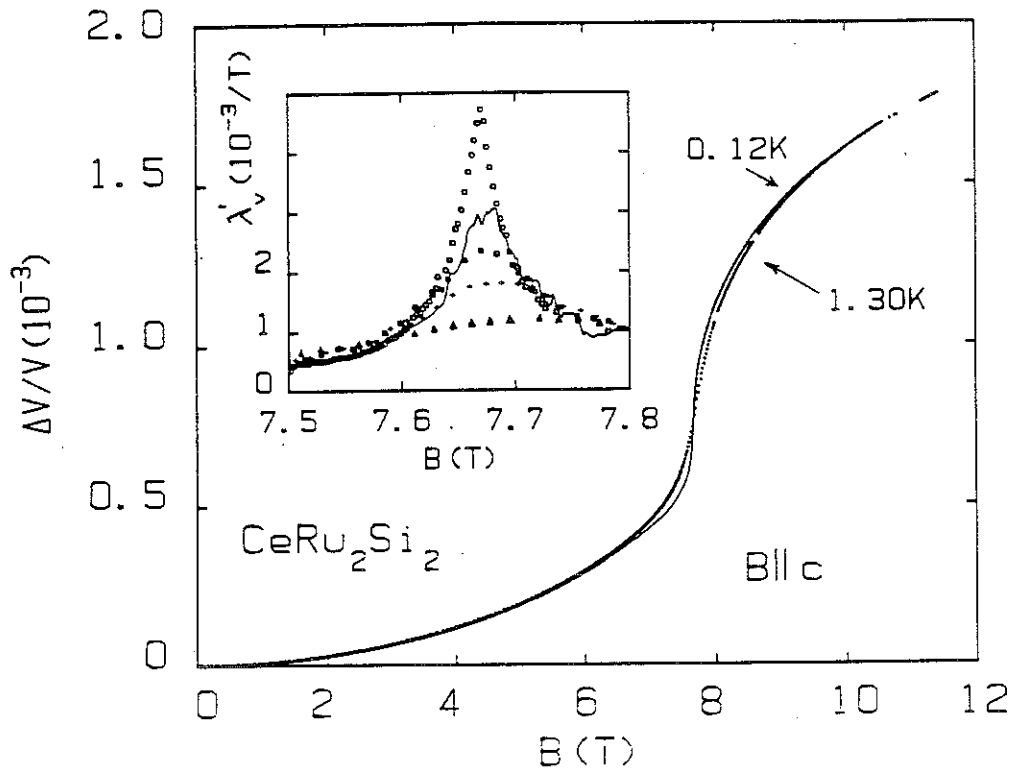


Figure III.30 : Magnétostriction $\lambda_v = dV/V$ dans CeRu_2Si_2 . L'encart représente la magnétostriction différentielle $\lambda'_v = V^{-1}dV/dB$ à 1,3 K ($\blacktriangle$), 0,8 K ($+$), 0,6 K ($\bullet$), 0,34 K ($-$) et 0,12 K ($\circ$) [Lacerda 1990, Paulsen 1990a].

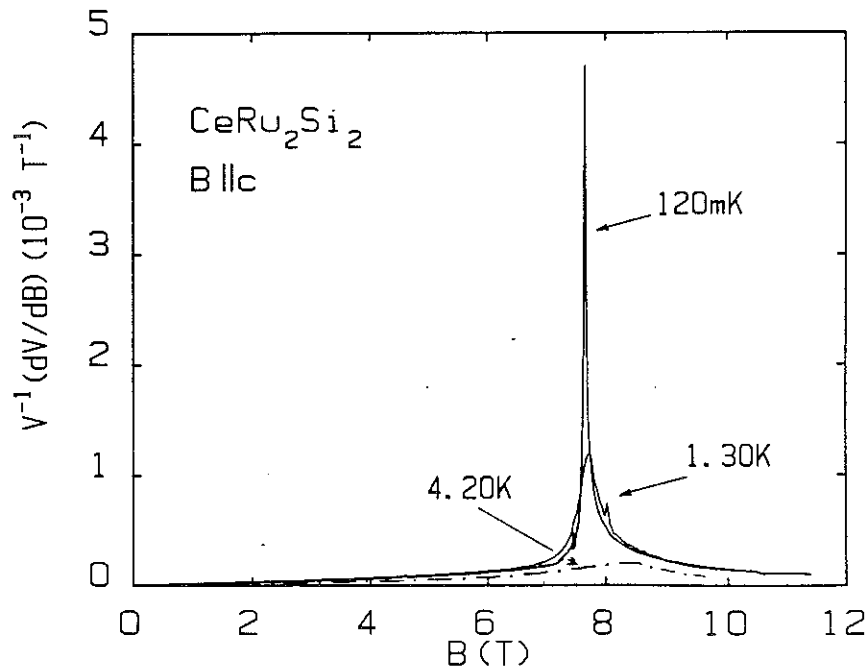


Figure III.31 : Dérivée de la magnétostriction volumique de CeRu_2Si_2 à 4,2 K, 1,3 K et 0,12 K [Lacerda 1990, Paulsen 1990a].

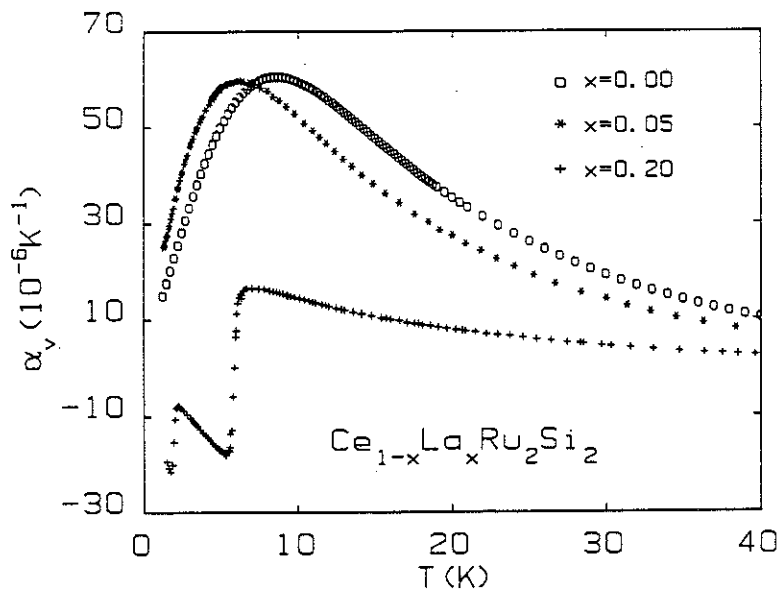


Figure III.32 :
Coefficient de
dilatation thermique
volumique d'alliages
 $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$
pour $x = 0$, $x = 0,05$
et $x = 0,2$ [Lacerda
1990].

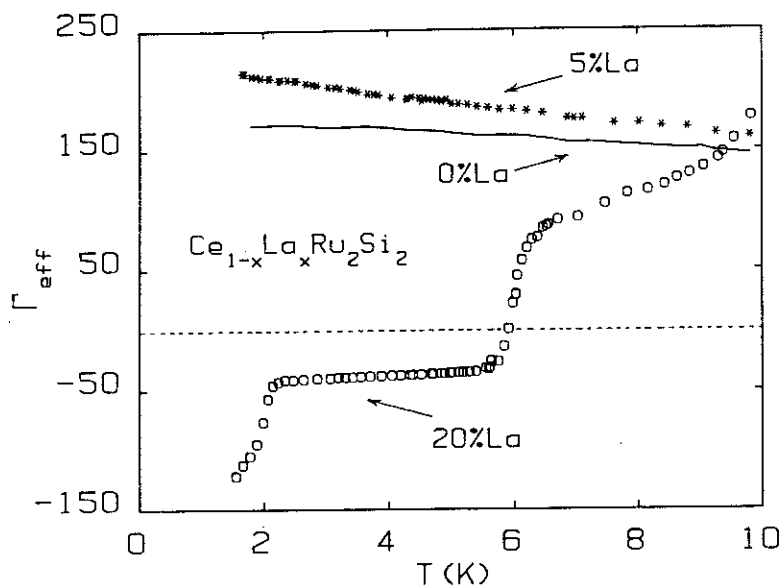


Figure III.33 :
Paramètre de
Grüneisen d'alliages
 $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$
pour $x = 0$, $x = 0,05$
et $x = 0,2$ [Lacerda
1990].

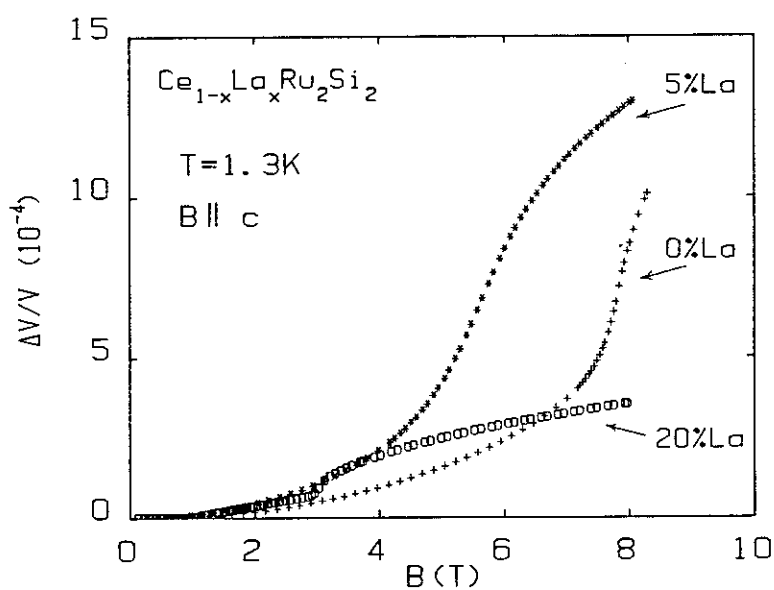


Figure III.34 :
Magnétostriction vo-
luminique λ_v d'alliages
 $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$
pour $x = 0$, $x = 0,05$
et $x = 0,2$ [Lacerda
1990].

III.2. MESURE DE LA DILATATION THERMIQUE ET DE LA MAGNETOSTRICTION DE $\text{Ce}_{0,985}\text{Y}_{0,015}\text{Ru}_2\text{Si}_2$

Notre travail s'inscrivait dans le cadre d'une large étude de la magnétostriction et de la dilatation thermique de trois monocristaux non ordonnés : CeRu_2Si_2 , $\text{Ce}_{0,95}\text{La}_{0,05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ et $\text{Ce}_{0,985}\text{Y}_{0,015}\text{Ru}_2\text{Si}_2$. En effet, comme nous venons de le rappeler, le fait d'allier CeRu_2Si_2 avec La ou Y conduit à de fortes variations du volume et des paramètres caractéristiques du système qu'il était intéressant de considérer. Il faut aussi tenir compte de ce que les impuretés induisent des défauts et des différences par rapport à la structure cristalline idéale. Les deux premiers cristaux ont été étudiés par A. Lacerda [1990]. Nous avons mesuré essentiellement le monocristal de $\text{Ce}_{0,985}\text{Y}_{0,015}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ (quelques mesures complémentaires sur l'alliage au La mises à part).

Dans ce chapitre, nous décrirons rapidement les résultats que nous avons obtenus sur cet alliage à l'yttrium, en les comparants à ceux obtenus par Lacerda sur les deux autres cristaux, puis nous analyserons et nous discuterons longuement l'ensemble de ces résultats, qui ne peuvent être dissociés.

III.2.1. CARACTERISTIQUES DU CRISTAL ETUDIE : PROPRIETES MAGNETIQUES

L'échantillon de $\text{Ce}_{0,985}\text{Y}_{0,015}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ étudié est issu d'un monocristal préparé par P. Lejay par la méthode Czochralski. L'homogénéité et la composition de ce cristal ont été vérifiées par analyse à la microsonde. La découpe selon des axes c et a , respectivement, et le dressage de faces parallèles ont été réalisés par électroérosion. L'échantillon obtenu a presque la forme d'un cube d'environ 4 mm de coté.

L'aimantation et la susceptibilité de ce cristal ont été mesurées au laboratoire Louis Néel. L'aimantation est représentée sur la figure III.35a avec celle des cristaux de CeRu_2Si_2 et de $\text{Ce}_{0,95}\text{La}_{0,05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ étudiés par A. Lacerda. La figure III.35.b représente les dérivées correspondantes. Le maximum de susceptibilité χ (T), de ces trois cristaux, passe de 10 K pour l'échantillon pur à 6 K et 12.5 K, respectivement pour les échantillons 5 % La et 1,5 % Y (figure III.36). A partir des dérivées des courbes d'aimantation, $\partial M / \partial H$, on a déduit les variations du champ pseudométamagnétique B^* en fonction de la température (figure III.37).

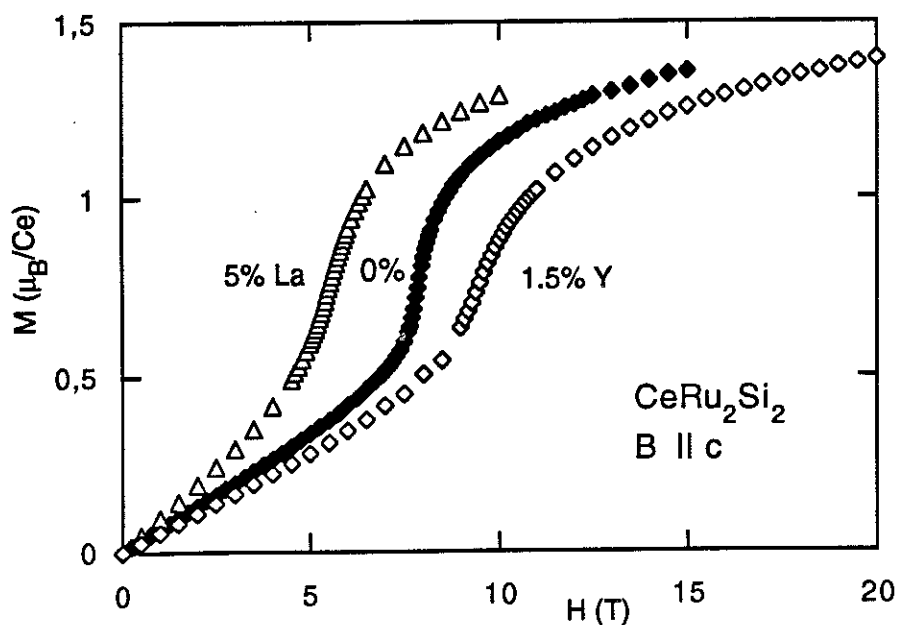


Figure III.35 : Aimantation $M(H)$ de CeRu_2Si_2 (1,3K), $\text{Ce}_{0,95}\text{La}_{0,05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ (1,1K) et $\text{Ce}_{0,985}\text{Y}_{0,015}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ (1,6 K).

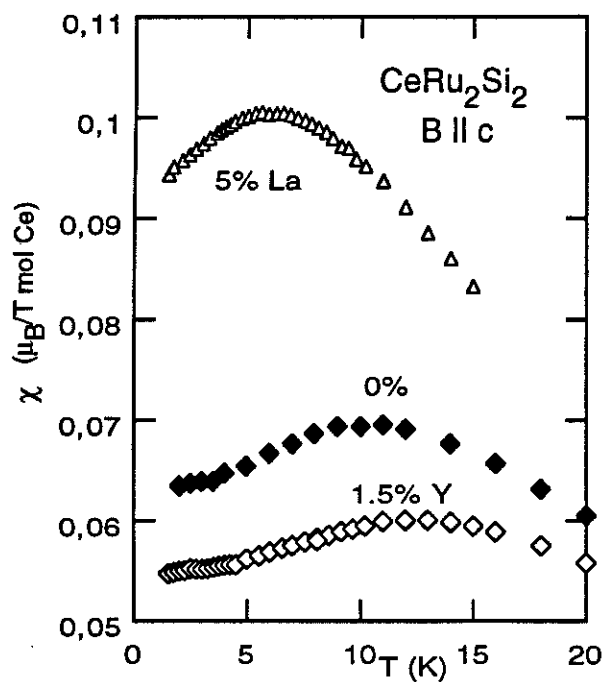


Figure III.36 : Susceptibilité $\chi(T)$ de CeRu_2Si_2 , $\text{Ce}_{0,95}\text{La}_{0,05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ (1,1K) et $\text{Ce}_{0,985}\text{Y}_{0,015}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ (1,6K).

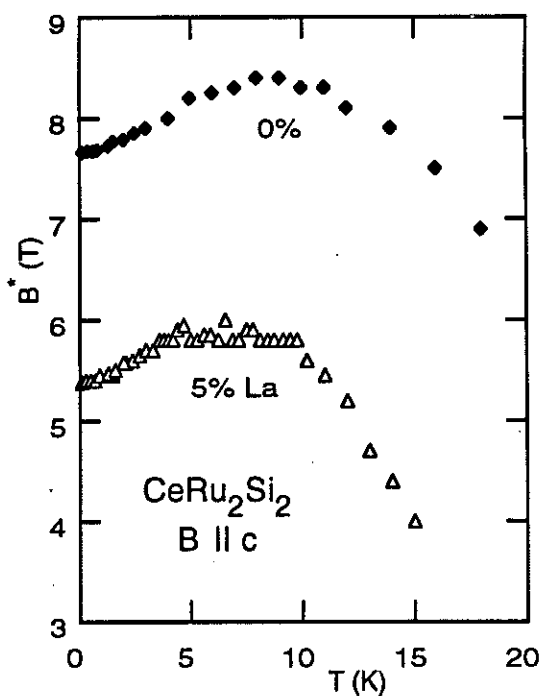


Figure III.37 : Variation thermique du champ pseudo-métamagnétique B^* de CeRu_2Si_2 et $\text{Ce}_{0,95}\text{La}_{0,05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$.

III.2.2. DILATATION THERMIQUE ET MAGNETOSTRICTION DE $\text{Ce}_{0,985}\text{Y}_{0,015}\text{Ru}_2\text{Si}_2$: RESULTATS EXPERIMENTAUX

III.2.2.a Dilatation thermique

Nous avons mesuré le coefficient de dilatation thermique selon les deux axes a et c dans le cryostat haute température, pour des champs magnétiques de 0, 2, 5 et 8 T appliqués suivant l'axe c (figure III.38). Nous avons constaté que le rapport c/a gardait une valeur constante voisine de 3 sur tout le domaine de température balayé, comme dans les expériences précédentes sur CeRu_2Si_2 , tandis que ce rapport est 2,5 dans le cas de $\text{Ce}_{0,95}\text{La}_{0,05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$. Le coefficient de dilatation volumique α_v s'obtient par l'addition $2\alpha_a + \alpha_c$.

En champ nul, le maximum de α_v se situe à $T_m = 10,6$ K, à comparer à $T_m = 9$ K et 6 K, respectivement pour le composé pur et l'alliage à 5% de La. De la même façon que dans ces derniers, T_m se déplace vers les basses températures lorsqu'on mesure la dilatation thermique sous champ magnétique. Dans la gamme de température considérée, α_v n'est pas linéaire avec T . Pour mesurer une telle variation, il a fallu aller à plus basse température, dans le cryostat à dilution.

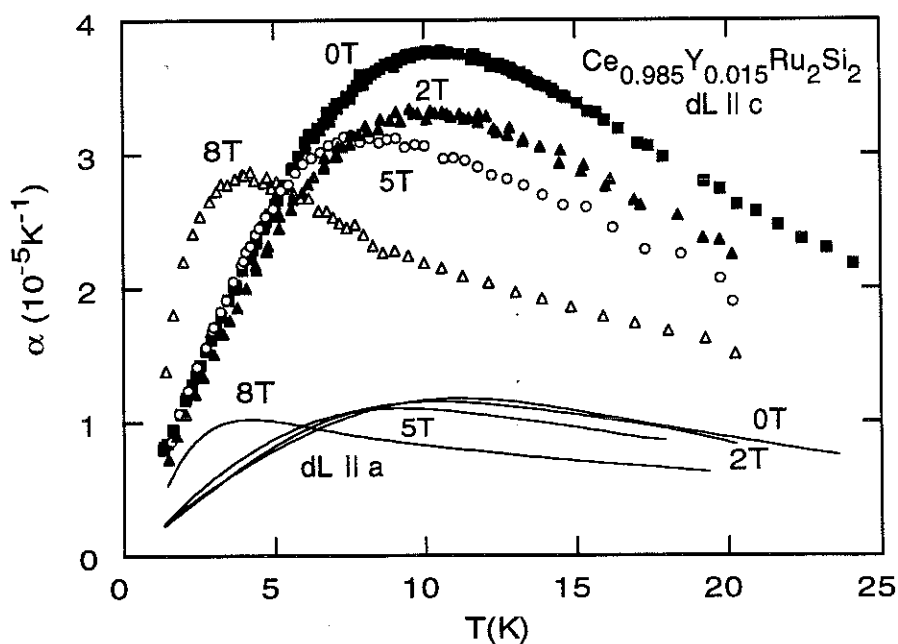


Figure III.38 : Dilatation thermique de $\text{Ce}_{0,985}\text{Y}_{0,015}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ dans le plan (a,a) (courbes continues du bas) et selon l'axe c , pour $B \parallel c$.

La figure III.39 montre des courbes mesurées selon l'axe c jusque vers 0,2 K. Partant de l'hypothèse que le rapport c/a demeure constant et égal à 3 dans cette gamme de température, nous n'avons pas mesuré α_a jusqu'à 0,1 K, mais supposé α_v égal à $\alpha_c + 2\alpha_a$. Un changement de signe de α_v est clairement visible de part et d'autre du champ pseudométamagnétique B^* . On distingue en outre un maximum légèrement au-dessus de 1 K, pour un champ appliqué de 9,25 Tesla, et un minimum à 0,6 K sur la courbe obtenue à 9,5 T.

III.2.2.b Magnétostriction

La magnétostriction volumique $\lambda \equiv dV/V$ de $\text{Ce}_{0,985}\text{Y}_{0,015}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ à 120 mK est représentée sur figure III.40.a ; nous avons tracé sur cette figure, à titre de comparaison, des courbes relatives à CeRu_2Si_2 et $\text{Ce}_{0,95}\text{La}_{0,05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$. Les dérivées de ces courbes, $\lambda' \equiv V^{-1}\partial V/\partial B$, aux alentours de la transition pseudo-métamagnétique sont tracées sur la figure III.40.b, tandis que la figure III.40.c représente, pour mémoire, les pics de susceptibilité différentielle correspondants. Enfin, les figures III.41.a,b,c représentent l'évolution thermique de λ' pour chaque cristal.

On peut constater que, dans les alliages, le pic est considérablement élargi, et sa valeur très réduite par rapport au composé pur. On remarque également que sa largeur dépend fortement de la température. Subsidairement, on voit que B^* augmente légèrement avec T (dans la gamme considérée).

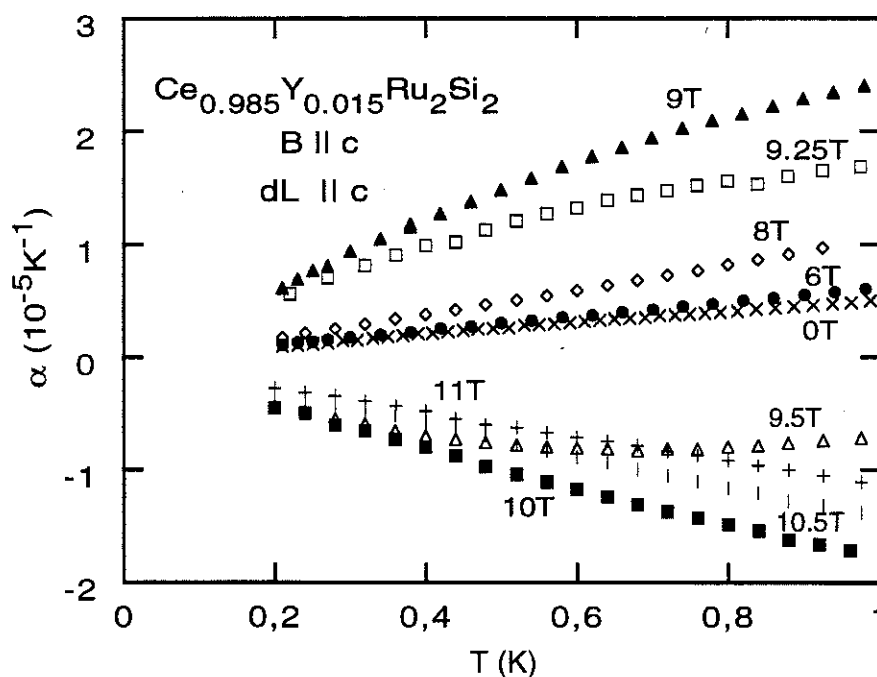


Figure III.39 : Variation de α_v de $\text{Ce}_{0,985}\text{Y}_{0,015}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ à très basse température.

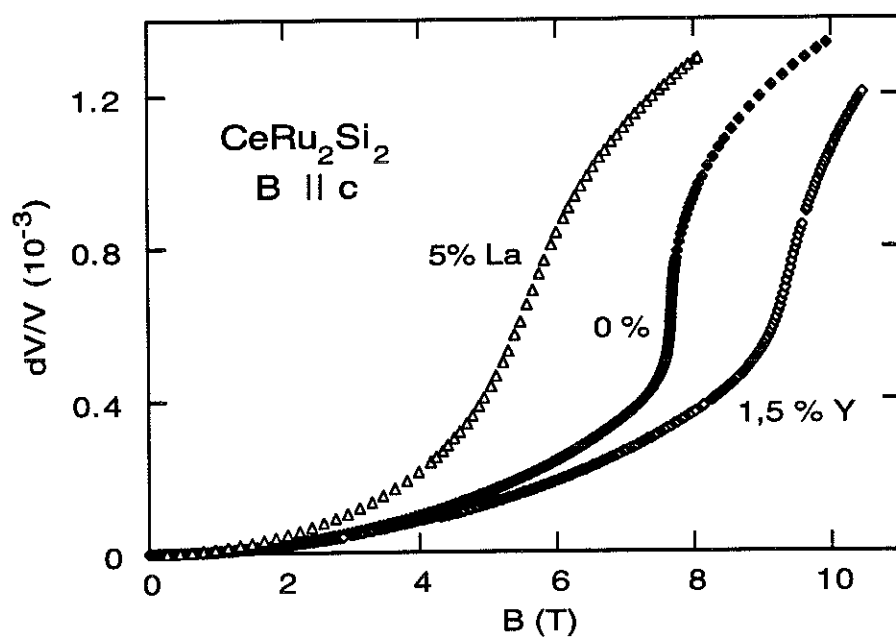


Figure III.40.a : Magnétostriction, $\lambda \equiv dV/V$, de : CeRu_2Si_2 (120 mK), $\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ (1,3 K) et $\text{Ce}_{0.985}\text{Y}_{0.015}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ (120 mK).

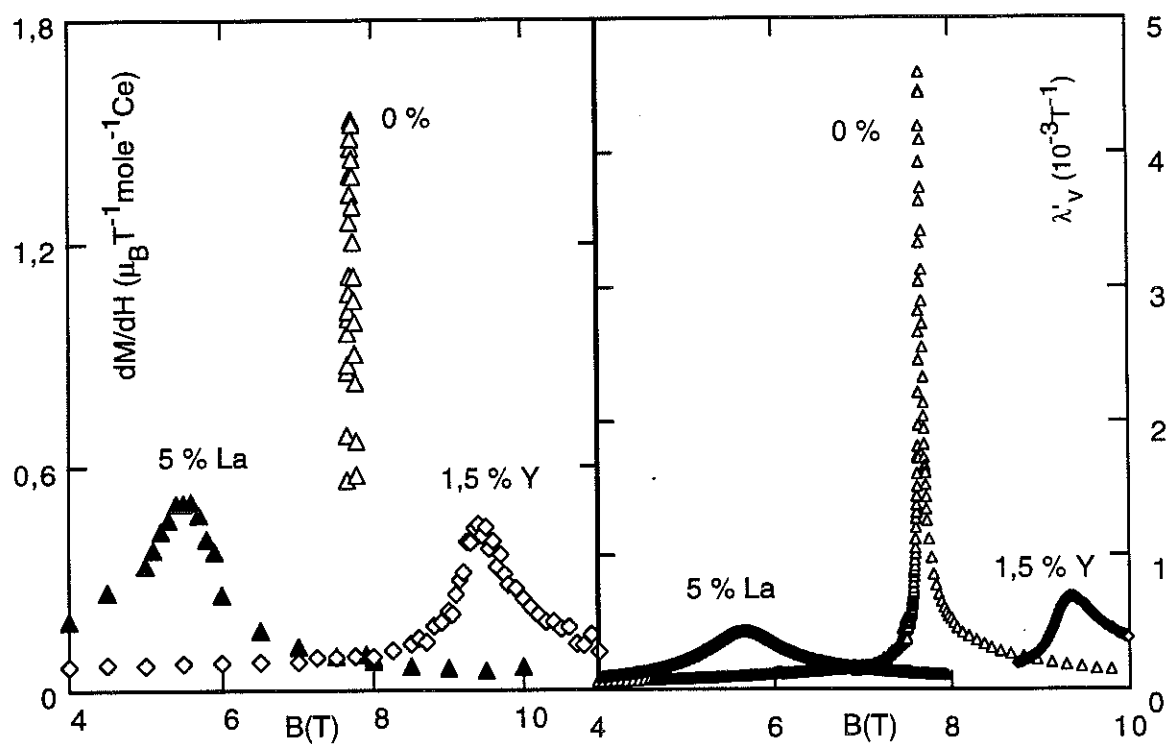


Figure III.40.b,c : Magnétostriction différentielle à 120mK et susceptibilité différentielle de : CeRu_2Si_2 (100 mK), $\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ (150 mK) et $\text{Ce}_{0.985}\text{Y}_{0.015}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ (250 mK).

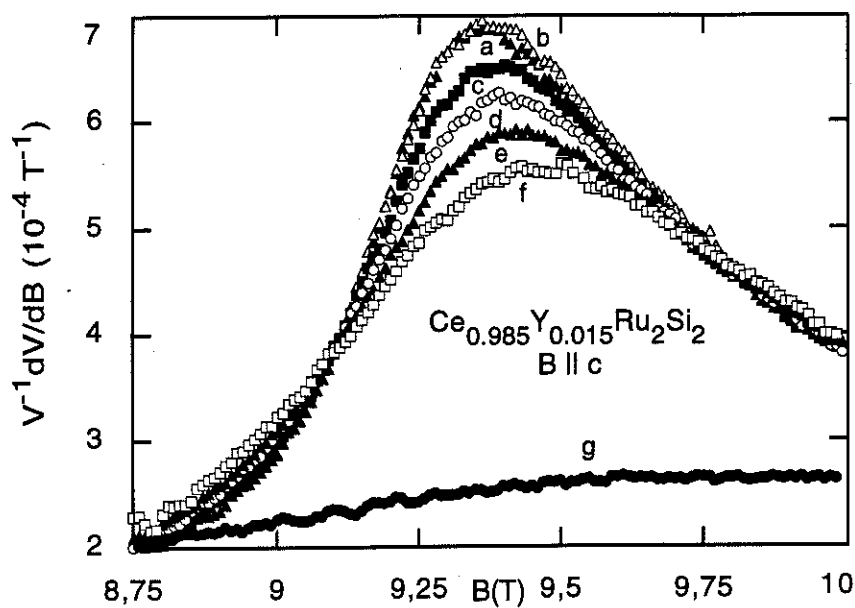


Figure III.41.a :

$$\lambda' \equiv V^{-1} \partial V / \partial B \text{ de}$$

$$\text{Ce}_{0.985}\text{Y}_{0.015}\text{Ru}_2\text{Si}_2$$

$$B^* = 9,36 \text{ T}$$

a	: 100 mK
b	: 300 mK
c	: 500 mK
d	: 700 mK
e	: 900 mK
f	: 1,3 K
g	: 4,2 K

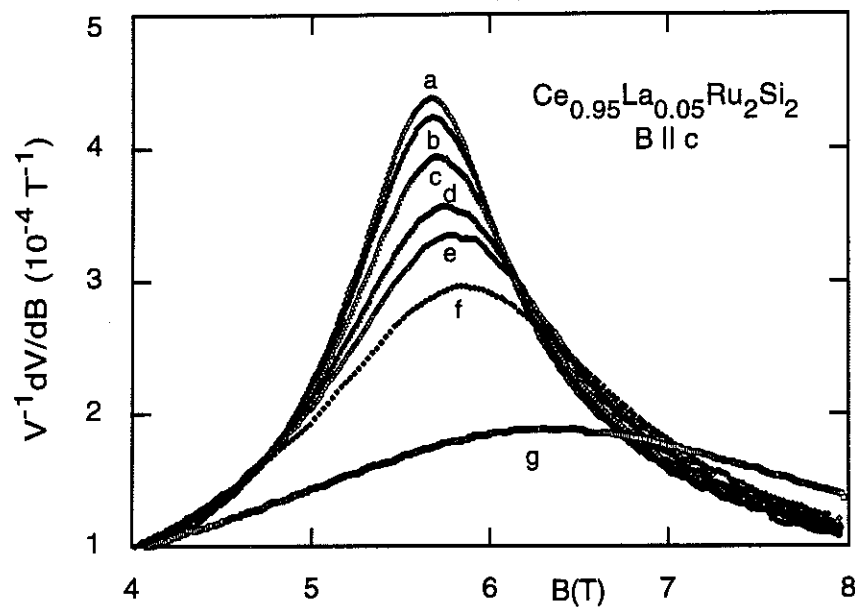


Figure III.41.b :

$$\lambda' \equiv V^{-1} \partial V / \partial B \text{ de}$$

$$\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$$

$$B^* = 5,4 \text{ T}$$

a	: 100 mK
b	: 500 mK
c	: 900 mK
d	: 1,3 K
e	: 1,6 K
f	: 2 K
g	: 4,2 K

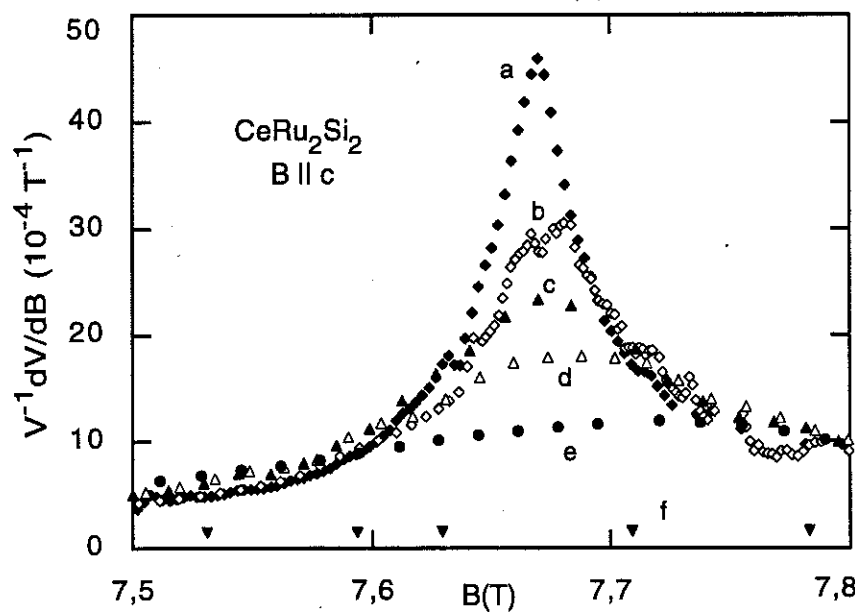


Figure III.41.c :

$$\lambda' \equiv V^{-1} \partial V / \partial B \text{ de}$$

$$\text{CeRu}_2\text{Si}_2$$

$$B^* = 7,67 \text{ T}$$

a	: 120 mK
b	: 340 mK
c	: 600 mK
d	: 800 mK
e	: 1,3 K
f	: 4,2 K

[Lacerda 1990]

III.2.3. ANALYSE DES RESULTATS : APPLICATION DE LA LOI D'ECHELLE

III.2.3.a. Thermodynamique du régime liquide de Fermi

Au moyen de la loi d'échelle, selon laquelle on peut écrire l'entropie

$$S = S \left[\frac{T}{T_S(P)}, \frac{B}{B_S(P)} \right],$$

et de la relation de Maxwell

$$\left(\frac{\partial V}{\partial T} \right)_P = - \left(\frac{\partial S}{\partial P} \right)_T$$

la dilatation thermique peut s'exprimer de la façon suivante :

$$\frac{\partial V}{\partial T} = T \left[\frac{1}{T_S} \left(\frac{\partial T_S}{\partial P} \right) \right] \left(\frac{\partial S}{\partial T} \right) + B \left[\frac{1}{B_S} \left(\frac{\partial B_S}{\partial P} \right) \right] \left(\frac{\partial S}{\partial B} \right)$$

Les termes entre crochets sont reliés aux paramètres de Grüneisen thermique

$$\kappa \Gamma_T = \frac{1}{T_S} \left(\frac{\partial T_S}{\partial P} \right) = \frac{\partial \ln T_S}{\partial \ln V} \left[\frac{1}{V} \left(\frac{\partial V}{\partial P} \right) \right]$$

et magnétique

$$\kappa \Gamma_B = \frac{1}{B_S} \left(\frac{\partial B_S}{\partial P} \right) = \frac{\partial \ln B_S}{\partial \ln V} \left[\frac{1}{V} \left(\frac{\partial V}{\partial P} \right) \right]$$

Dans la limite de validité de la théorie du liquide de Fermi, c'est à dire à très basse température, on a

$$C = \gamma T, \text{ d'où l'entropie } S = \gamma T, \text{ et } \alpha_v = aT.$$

Il est alors possible de trouver une relation entre les dépendances en champ magnétique de γ et α_v . Il en résulte, pour toute valeur de B , l'équation différentielle

$$a(B) = \frac{\kappa}{V_0} \left(\Gamma_T \gamma + \Gamma_B B \frac{d\gamma}{dB} \right),$$

Si l'on suppose $\Gamma_T = \Gamma_B$, cette équation se ramène à

$$a(B) = \frac{\kappa \Gamma}{V_0} \left(\gamma + B \frac{d\gamma}{dB} \right) \quad (\text{III.1})$$

On peut donc en déduire le terme linéaire de la chaleur spécifique, en prenant $\kappa = 0,95 \cdot 10^{-11} \text{ m}^2/\text{N}$, $\Gamma = 150$, et $V_m = 5,19 \cdot 10^{-5} \text{ m}^3/\text{mole}$. La solution

numérique $\gamma(B)$ de l'équation III.1 est tracée sur la figure III.42, en même temps que les variations de $\gamma(B)$ calculées par A. Lacerda dans les cas de CeRu_2Si_2 et $\text{Ce}_{0,95}\text{La}_{0,05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ [Lacerda 1990, Paulsen 1990a].

Dans le cas de $\text{Ce}_{0,985}\text{Y}_{0,015}\text{Ru}_2\text{Si}_2$, γ présente une augmentation à B^* de plus de 60 % par rapport à sa valeur à champ zéro, comparable à celle calculée pour CeRu_2Si_2 , tandis que pour $\text{Ce}_{0,95}\text{La}_{0,05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$, elle n'est que de l'ordre de 30 %.

Cependant, on notera que dans ces deux derniers cas, les variations de $\gamma(B)$ ont été calculées, sachant que l'entropie s'écrit, comme précédemment, $S = \gamma T$, et que l'aimantation, qui a été mesurée au SQUID, s'exprime simplement sous la forme $\Delta M = \beta T^2$, pour $T < 400$ mK, où le coefficient β est positif pour $B < B^*$ et négatif pour $B > B^*$ [Paulsen 1990a, b]. La relation de Maxwell $(\partial M / \partial T)_{P,B} = (\partial S / \partial B)_{P,T}$, conduit alors à :

$$\frac{\partial \gamma}{\partial B} = 2\beta \quad (\text{III.2})$$

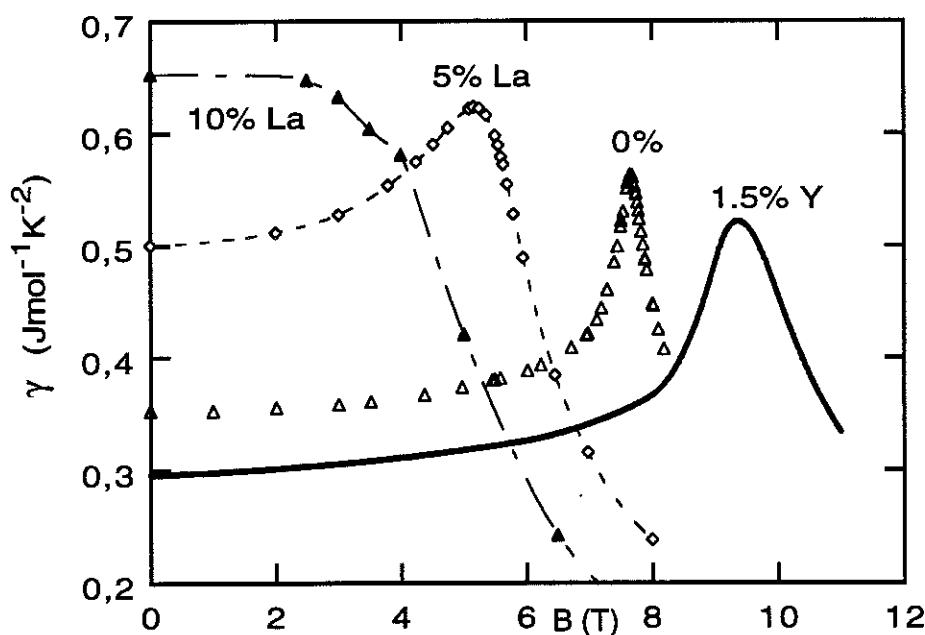


Figure III.42 : Variation du terme linéaire de la chaleur spécifique de $\text{Ce}_{0,985}\text{Y}_{0,015}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ déduite de la loi d'échelle à partir de nos résultats ; variations calculées à partir de $M(T, B=\text{const.})$ pour les composés pur et 5 % La [Paulsen 1990b, Lacerda 1990] ; comparaison avec les résultats de chaleur spécifique (γ compris le composé ordonné 10% La) [Fisher 1991].

Le calcul est plus simple par cette seconde méthode, que par la précédente, et sans doute plus fiable. Les mesures d'aimantation qui ont été effectuées sur le cristal de $\text{Ce}_{0,985}\text{Y}_{0,015}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ ne sont pas assez précises pour permettre d'appliquer la relation (III.2) dans ce cas.

Enfin, la validité de l'équation (III.2) a pu être vérifiée pour les deux autres échantillons directement avec les résultats de chaleur spécifique. Bien que dans le cas de l'échantillon dopé avec 1,5% d'Y, la solution numérique de l'équation différentielle (III.1) semble être raisonnable qualitativement, elle ne peut pas tout à fait remplacer des mesures de chaleur spécifique. Malheureusement, étant donnée la valeur élevée de $B^* = 9,4 \text{ T}$, ces dernières sont difficiles à réaliser et n'ont pas pu être effectuées dans le cadre de ce travail.

A. Lacerda a observé une déviation entre les résultats expérimentaux et la loi d'échelle à un paramètre dans le composé pur aux alentours de B^* . Il reste aussi à remarquer que, dans tous ces calculs, pour les trois échantillons, la variation de la compressibilité isotherme de 40 % à B^* n'a pas été prise en compte. La figure III.43 représente les variations de γ en fonction de B en coordonnées réduites.

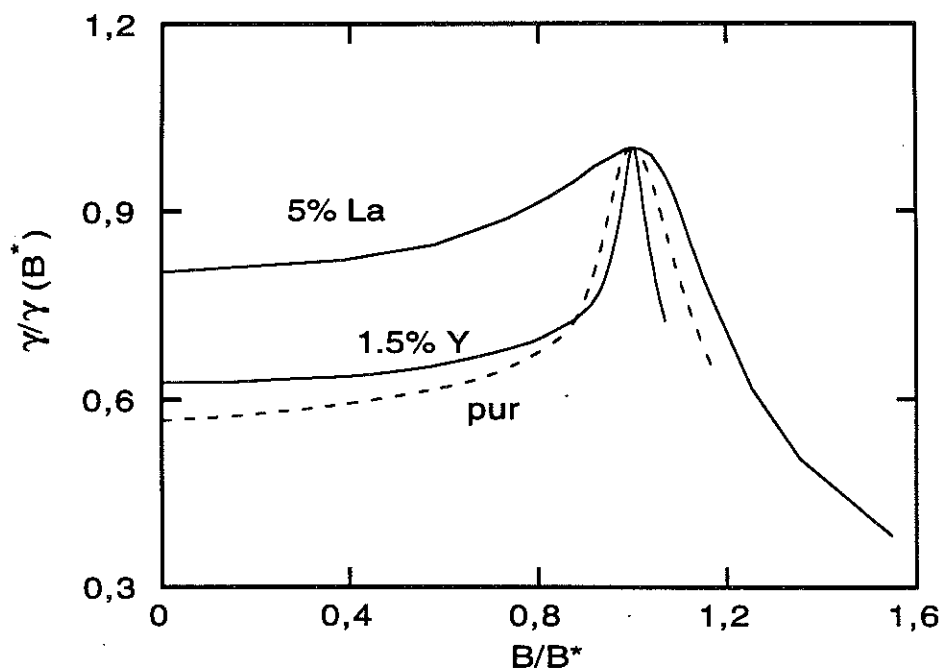


Figure III.43 : Variation du terme linéaire de la chaleur spécifique normalisé, $\gamma(B)/\gamma(B^*)$, en fonction de B/B^* , pour les trois composés non ordonnés.

III.2.3.b. Discussion

Les calculs de variation de $\gamma(B)$ à partir de la loi d'échelle (III.1), sont en accord avec les mesures de chaleur spécifique effectuées sur CeRu_2Si_2 pur et dopé avec 5% La (figure III.42). Ceci est cependant très intrigant, sachant que le produit $\kappa\Gamma$ est considéré comme invariant sous champ, malgré les fortes variations de κ et Γ_{eff} aux alentours de B^* (figure III.29).

Le maximum de γ au champ B^* le plus aigu est celui relatif au composé pur. Comme on pourra le voir au chapitre suivant, cet effet est dû à l'homogénéité de l'échantillon. Par ailleurs, on observe que dans ce composé, γ augmente seulement de 20 % jusqu'à 7 T puis atteint son maximum de 60 % à $B^* = 7,7$ T. Si, dans la région de champ $B < B^*$, on trace γ en fonction de $|(B - B^*) / B^*|^{1/2}$ (figure III.44), on trouve une cassure qui indique un changement de régime pour un champ voisin de 7 T. Un comportement analogue apparaît dans la variation de γ de l'alliage à 1.5% Y, où le maximum est déjà moins net ; cet effet n'est plus observable pour 5% La.

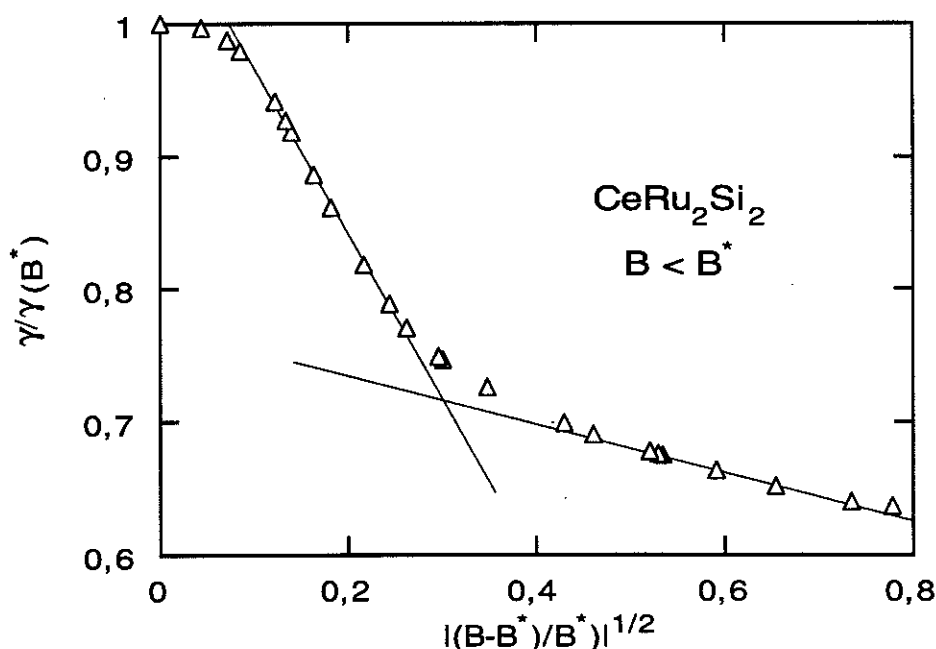


Figure III.44 : Variation du terme linéaire de la chaleur spécifique de CeRu_2Si_2 normalisé par rapport à $\gamma(B^*)$ en fonction de $|(B - B^*)/B^*|^{1/2}$.

Sur la figure III.42, nous avons tracé les variations expérimentales de $\gamma(B)$ d'un autre échantillon de la série Ce_{1-x}La_xRu₂Si₂, à savoir Ce_{0,9}La_{0,1}Ru₂Si₂, qui est ordonné. Comme on peut le voir sur cette figure, le maximum à B^* a disparu dans cet alliage. Intéressons nous seulement à $\gamma(x)$ à champ nul, où x est la concentration en La : on voit que γ est maximal pour l'échantillon avec 10% La, c'est à dire lorsque x est voisin de la valeur critique de 8% au dessus de laquelle l'ordre à longue portée s'établit. La valeur de ce maximum est de 650 mJ.K⁻².mole⁻¹. (Pour des concentrations de La plus grandes, la valeur de γ dans l'état ordonné diminue). Une valeur de γ du même ordre de grandeur que la précédente a été trouvée dans des alliages ordonnés de systèmes tels que CeRu₂(Si_{1-x}Ge_x)₂ [Kim 1990] et Ce(Ru_{2-x}Rh_x)Si₂ [Lloret 1987], pour x proche de la concentration critique correspondante

Il semble donc logique d'imaginer que cette valeur de 650 mJ.K⁻².mole⁻¹ est une valeur critique, autrement dit, qu'il existe, dans le système CeRu₂Si₂ et ses alliages, une masse critique au-dessus de laquelle l'ordre à longue portée s'établit.

Le maximum $\gamma(B^*)$ du composé non ordonné avec 5% La est proche de cette valeur de 650 mJ.K⁻².mole⁻¹. Cependant, on n'est pas là en présence d'une valeur critique, puisque la valeur maximale de γ à B^* diminue quand on passe à CeRu₂Si₂, puis à Ce_{0,985}Y_{0,015}Ru₂Si₂. Mais on peut imaginer cette fois qu'il existe peut être quelque chose comme un critère de Stoner où le produit entre la densité d'états au niveau de Fermi et l'énergie d'échange $N(\epsilon_F)\mathcal{J}$ atteint une valeur critique telle que la transition pseudo-métamagnétique se produise.

Enfin, le produit $\gamma(B^*)B^*$ n'est pas le même pour les trois échantillons, contrairement au produit à champ nul $\gamma(0)B^*$. Cela laisse supposer que $\gamma(B^*)$ ne devrait pas varier sous pression de la même façon que $\gamma(0)$.

III.2.4. ANALYSE DES RESULTATS : COMPARAISON DU PIC DE LA MAGNETOSTRICTION DIFFERENTIELLE A LA TRANSITION PSEUDOMETAMAGNETIQUE AVEC CELUI DE LA SUSCEPTIBILITE DIFFERENTIELLE

III.2.4.a. Variations thermiques des amplitudes et largeurs des pics de λ' et χ_M à B^* .

L'inverse du maximum de la dérivée de la magnétostriction au champ pseudo-métamagnétique, $1/\lambda'(B^*)$ est reporté, pour $T < 2$ K, sur la figure III.45, et la valeur de l'inverse du pic de susceptibilité $1/\chi_M = [(dM/dB)^{-1}]_{B=B^*}$ est tracé, pour $T < 4,2$ K, sur la figure III.46. Dans le cas de CeRu_2Si_2 , $1/\chi_M$ présente un comportement de type Curie-Weiss avec $\Theta \approx 0,1$ K. On constate une saturation de $1/\chi_M$ au-dessous de $\approx 0,3$ K. Dans les alliages, $1/\chi_M$ tend vers une saturation dès $\approx 0,5$ K et sa valeur est environ dans un rapport 4 avec celle de CeRu_2Si_2 . Les valeurs de $1/\lambda'(B^*)$ ont été tracées en échelles log de façon à bien montrer la différence entre le composé pur et les alliages. La tendance à la saturation de $1/\lambda'(B^*)$ de CeRu_2Si_2 n'est pas aussi nette que celle de $1/\chi_M$. D'ailleurs, la valeur de $\lambda'(B^*)$ est 10 fois plus élevée dans CeRu_2Si_2 que dans les alliages. Des corrections de facteur de champ démagnétisant n'ont amené aucun effet visible ($< 1\%$) sur les résultats.

On peut obtenir λ' à partir des données de la susceptibilité dM/dH à partir de l'équation I.8. Au champ B^* , $dM/dT = 0$ et le dernier terme de cette équation disparaît. On obtient donc

$$\lambda'(B^*) = \frac{B^* \kappa \Gamma}{V_0} \chi(B^*); \quad \chi_M = \chi(B^*) = \left(\frac{dM}{dB} \right)_{T, B=B^*} \quad (\text{III.3})$$

Dans le cas de CeRu_2Si_2 , avec $\chi(B^*) = 1,5 \mu_B/T$ pour $T \rightarrow 0$, on obtient $\lambda' = 1,8 \cdot 10^{-3} \text{ T}^{-1}$, valeur visiblement inférieure à la valeur mesurée $\lambda' = 5 \cdot 10^{-3} \text{ T}^{-1}$. Par contre, pour les deux alliages on trouve un bon accord entre les valeurs de λ' mesurées et calculées à partir de l'équation III.3 :

$$\begin{aligned} \text{pour } 5\% \text{ La : } & \chi(B^*) = 0,42 \mu_B/T, \quad \lambda'_{\text{calc.}} = 0,4 \cdot 10^{-3} \text{ T}^{-1}, \quad \lambda'_{\text{mes.}} = 0,44 \cdot 10^{-3}; \\ \text{pour } 1,5\% \text{ Y : } & \chi(B^*) = 0,5 \mu_B/T, \quad \lambda'_{\text{calc.}} = 0,65 \cdot 10^{-3} \text{ T}^{-1}, \quad \lambda'_{\text{mes.}} = 0,7 \cdot 10^{-3}. \end{aligned}$$

La largeur de la transition a été prise à 75% (et non de façon classique à 50 %) de la hauteur du pic. Cette définition s'imposait dans le cas de l'alliage 1,5% Y, car nous étions limité par la valeur maximale du champ de mesure.

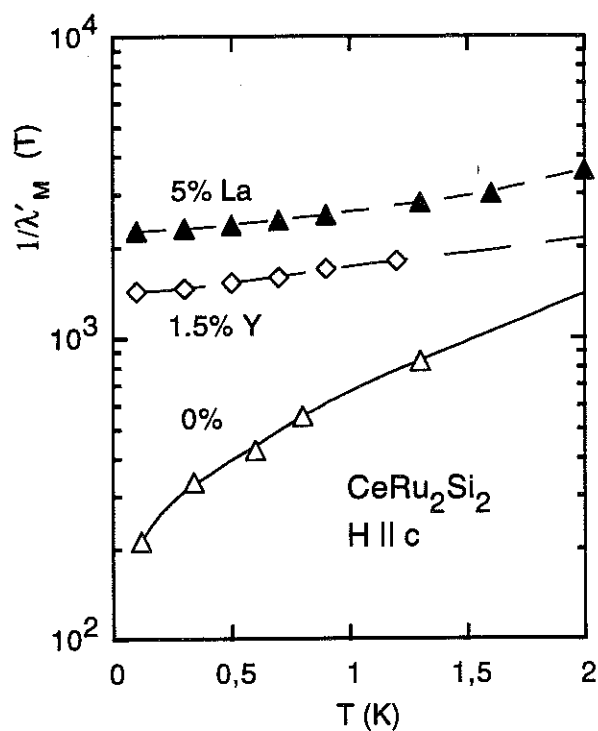


Figure III.45 : Variation de $1/\lambda'_M$, inverse du maximum de la magnétostriction différentielle au champ pseudo-métamagnétique, en fonction de la température.

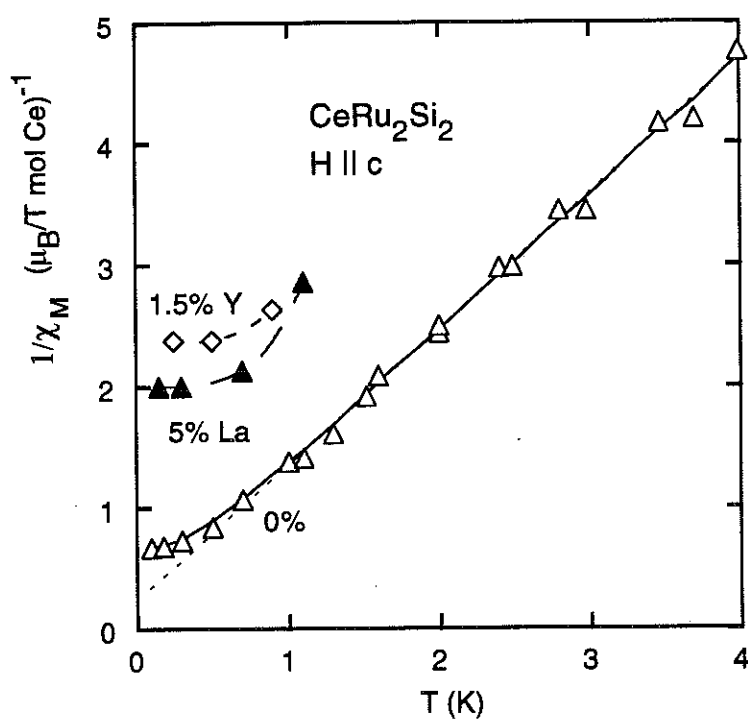


Figure III.46 : Variation de $1/\chi_M$, inverse du maximum de la susceptibilité différentielle au champ pseudo-métamagnétique, en fonction de la température.

Les largeurs normalisées, $\Delta B/B^*$, des pics de $\lambda'(B)$ et de $\chi_M(B)$ à B^* sont reportées en échelle logarithmique sur la figure III.47. Dans les alliages, les largeurs obtenues par l'une ou autre mesure sont identiques et beaucoup plus élevées que dans CeRu_2Si_2 . Par contre, dans ce dernier, la largeur obtenue par les mesures d'aimantation se sature à des températures visiblement plus élevées que celle déduite des mesures de magnétostriction.

Pour tracer les largeurs de la transition dans la limite $T \rightarrow 0$ en fonction de la concentration, on trouve au moins deux degrés de liberté : faut-il renormaliser $\Delta B/B^*$, en tenant compte du fait que le champ pseudo-métamagnétique varie sous pression selon la loi d'échelle ? Ou bien faut-il tenir compte de l'effet volumique, qui, à concentration égale, est deux fois plus grand pour l'alliage avec Y qu'avec La ? (voir la figure III.12).

Avec ces deux degrés de liberté, on trouve que la largeur normalisée $\Delta B/B^*$ varie linéairement avec la concentration des dopants (figure III.48.a), alors que la largeur de la transition, ΔB , varie linéairement avec la concentration corrigée de l'effet volumique relatif de chaque dopant (figure III.48.b).

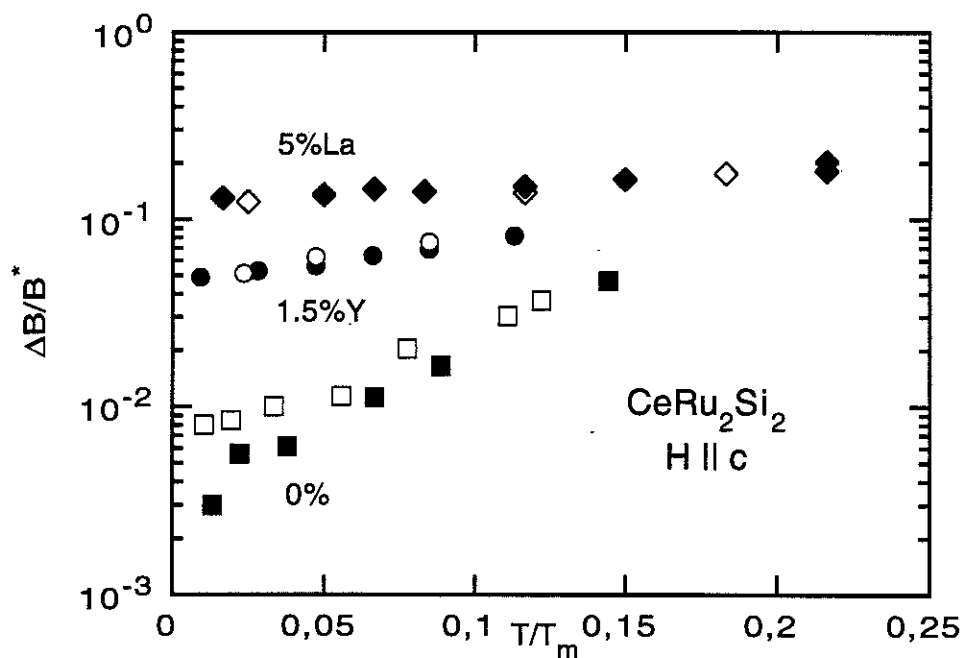


Figure III.47 : Variation en fonction de la température, dans une échelle normalisée, de la largeur du pic de la transition pseudo-métamagnétique, mesurée à 75% du maximum, sur $\chi_M(B)$ (symboles ouverts) et sur $\lambda'(B)$ (symboles pleins).

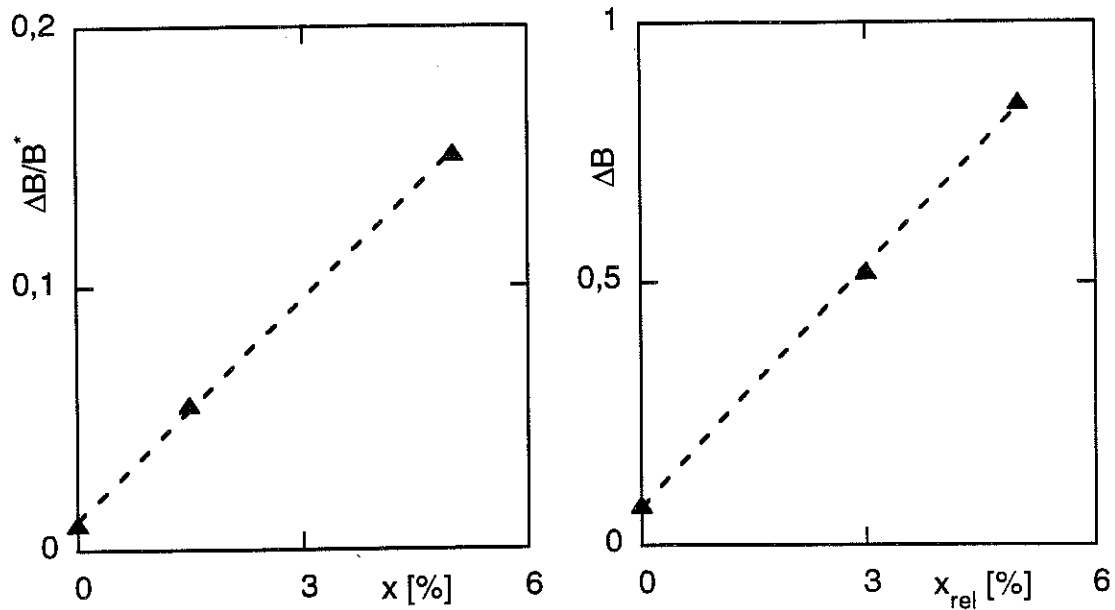


Figure III.48 : Largeur de la transition pseudo-métamagnétique dans la limite $T \rightarrow 0$; à gauche : $\Delta B/B^*$ en fonction de la concentration des alliages ; à droite : ΔB en fonction de la concentration corrigée de l'effet volumique.

III.2.4.b. Discussion

Un calcul effectué par Puech peut expliquer en partie l'élargissement des pics de dM/dH ou de $d\lambda/dB$, soit avec le dopage, soit en fonction de l'élévation de température. Il est basé sur l'idée que cet élargissement peut résulter, dans le composé pur, de fluctuations volumiques locales et, dans les alliages, de fluctuations de concentration locales, entraînant des variations locales du champ pseudo-métamagnétique.

Dans un premier modèle [Paulsen 1990a], la largeur de transition a été considérée comme résultant de variations volumiques locales induites par des impuretés. On considère que dans un volume élémentaire constitué d'un nombre d'atomes N_c , le champ critique B^* est localement modifié suivant la loi d'échelle $B^*(x) = \exp(\Gamma x)$, où Γ est le paramètre de Grüneisen, et x la concentration d'impuretés. Il en résulte une distribution locale de champs B^*_{loc} autour de la valeur moyenne B^* et une largeur ΔB . A partir des valeurs expérimentales de B^* et ΔB , il est possible de calculer N_c pour l'alliage à 5% La, si l'on considère que les fluctuations volumiques locales sont de l'ordre de $(x(1-x)/N_c)^{1/2}$: à 400 mK on obtient $N_c = 400$.

Pour CeRu_2Si_2 pur, $N_c = 10^6$, ce qui représente un cube d'environ 100 distances interatomiques de côté. Ce résultat est surprenant du fait que la

longueur de corrélation antiferromagnétique est au maximum de trois distances interatomiques. Remarquons que les neutrons sondent principalement les électrons 4f profonds et pas ceux de la surface de Fermi [Jacoud 1991]. Ce découplage, qui semble être un problème général dans les systèmes étudiés ici, a été traité théoriquement [Miyake 1991] et sera discuté au chapitre III.3. L'existence d'une deuxième longueur caractéristique, notamment celle de la cohérence, n'est donc pas exclue.

On peut calculer également une variation de ΔB en fonction de la température [Puech 1991]. En supposant un spectre de phonons gaussien obéissant à la théorie de Debye, pour $T \ll \Theta_D = 100$ K, la largeur de la transition dépend de la température en T^4 . Une telle dépendance n'a pas été trouvée sur les largeurs ΔB mesurées. Le même auteur a remarqué qu'un paramètre de Grüneisen de l'ordre de 200 renforce l'effet volumique des phonons d'un facteur de 10^{16} par rapport aux métaux normaux. Ainsi, on pourra s'attendre à un effet des phonons à $T = 0$ qui empêche finalement une divergence de χ .

Il n'existe pas de réponse claire à la question de savoir s'il y a un rapport entre le libre parcours moyen des électrons, exprimé par la résistivité résiduelle, et la largeur de la transition pseudo-métamagnétique. La résistivité résiduelle de CeRu_2Si_2 pur a été trouvée relativement élevée lors des premières mesures ($\rho_0 \sim 1$ à $2 \mu\Omega.\text{cm}$) [Haen 1987] ; elle est plus basse d'après les mesures effectuées récemment sur des parties adjacentes au cristal étudié ici. La dilution par le lanthane fait varier ρ_0 en moyenne de $1 \mu\Omega.\text{cm}/\%\text{La}$, tandis qu'avec de l'yttrium on trouve en moyenne $3 \mu\Omega.\text{cm}/\%\text{Y}$. La résiduelle des deux alliages 1,5% Y et 5% La est donc pratiquement la même : $6 \mu\Omega.\text{cm}$. Par suite, ΔB ne dépend pas de ρ_0 de manière simple.

En conclusion, les résultats concernant la largeur de la transition pseudo-métamagnétique des trois échantillons CeRu_2Si_2 , 1,5% Y et 5% La ne permettent pas de faire des conclusions définitives sur l'influence des impuretés. La question principale qui se pose est de savoir si l'aspect itinérant du système, c'est à dire l'extension de la fonction d'onde des quasiparticules lourdes, ou bien l'aspect localisé, c'est à dire la modulation volumique qui agit sur les propriétés électroniques de chaque site, est dominant. De toute façon, il reste encore trop de degrés de liberté par rapport au nombre restreint d'échantillons mesurés, et sans doute aurait-on besoin de résultats portant sur des échantillons de concentrations différentes (plus faibles que celles étudiées ici) pour déterminer la variable principale dont dépend ΔB .

L'autre question, qui est de déterminer s'il existe une "vraie" divergence de χ' à B^* dans CeRu₂Si₂, semble dépendre, partiellement en tous cas, de la qualité de l'échantillon. En effet, dans les mesures effectuées auparavant sur d'autres cristaux [Bruls 1990], la susceptibilité se saturait à des températures nettement supérieures à celles observées sur le cristal étudié ici. Toutefois, nous avons observé des différences importantes dans l'aimantation et dans la magnétostriction de ce cristal, non seulement dans les dérivées par rapport au champ, χ' et λ' , mais aussi dans les largeurs de ces pics. Paradoxalement, les largeurs les plus grandes sont observées dans l'aimantation, alors qu'entre les deux mesures, l'échantillon a subi un recuit d'une semaine à 850 °C sous un vide de 10⁻⁶ torr. Il serait donc nécessaire d'effectuer de nouvelles mesures après avoir fait subir à l'échantillon un autre recuit (sous ultravide et à plus haute température), ou bien sur un nouvel échantillon⁶.

Cela permettrait de calculer χ_p à partir de l'équation

$$\chi_p - \chi_v = \frac{V}{K} (\lambda'_v)^2_{P,T}$$

comme cela a été fait à des températures plus élevées (figure III.49).

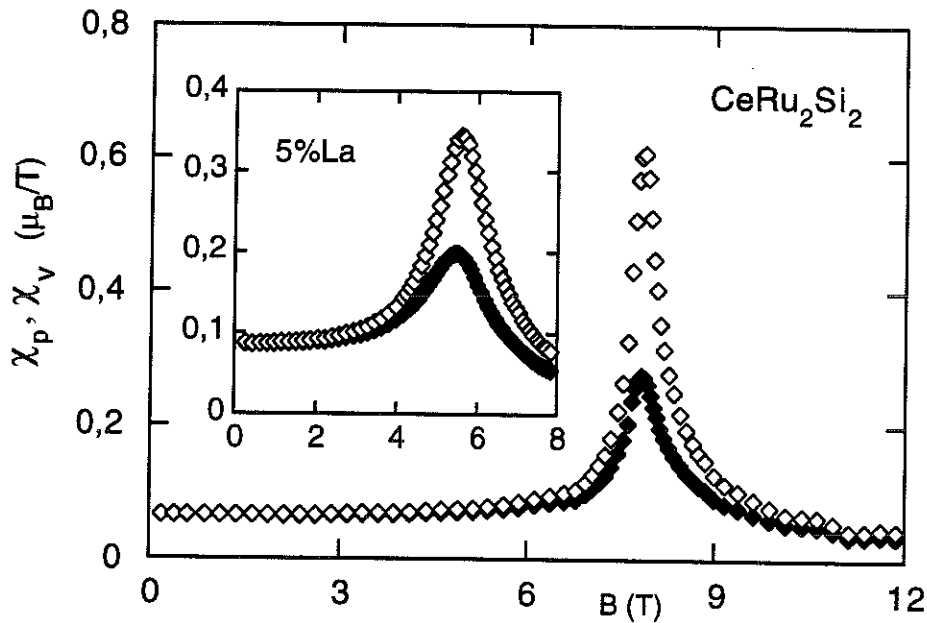


Figure III.49 : Susceptibilité à pression constante χ_p ($\diamond$) et à volume constant χ_v ($\blacklozenge$) dans CeRu₂Si₂ et Ce_{0.95}La_{0.05}Ru₂Si₂ à 1,4 K. [Lacerda 1990, Paulsen 1990a].

⁶ Des mesures faits par ailleurs [Sakakibara 1994] montrent sur deux échantillons de rapports de résistivité respectifs 100 (comme le nôtre) et 400 une saturation de $\chi(B^*)$ à la même valeur de 1,7 μ_B/T (contre 1,5 μ_B/T dans notre cas) ce qui semble montrer que la limite intrinsèque est atteinte.

$$T_m(B) = T_c \sqrt{1 - \frac{B}{B_c}} \quad \text{III.5}$$

avec $T_c = 22,9$ K et $B_c = 21,7$ T, pour $B < B_c$. Les données manquent pour effectuer une analyse plus détaillée, en raison du fait que le champ pseudo-métamagnétique est très élevé. Ce composé sera discuté plus en détail au prochain paragraphe.

Comme on le voit sur la figure III.52, T_m , la température des extremums de α_v , délimite, par analogie avec une phase thermodynamique, une région dans le plan $B - T$. Dans ce qui suit, nous allons discuter dans quelle mesure T_m caractérise l'état du système.

A champ nul, le maximum de α_v , à $T_m = 10$ K coïncide avec un maximum très élargi dans la chaleur spécifique [Fisher 1991] (figure III.17), ce qui se traduit par un paramètre de Grüneisen très élevé qui augmente continûment au refroidissement (figure III.33). Ce comportement est observé également sur l'alliage $\text{Ce}_{0,95}\text{La}_{0,05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ (figure III.33). Il est typique d'un système de fermions lourds. Comme on l'a vu au chapitre III.1, le maximum de chaleur spécifique peut être approximé grossièrement par une résonance à un site avec une température de Kondo, $T_K \approx 24$ K. Naïvement, on pourrait supposer que T_K varie sous champ avec T_m . Mais il n'existe aucune indication

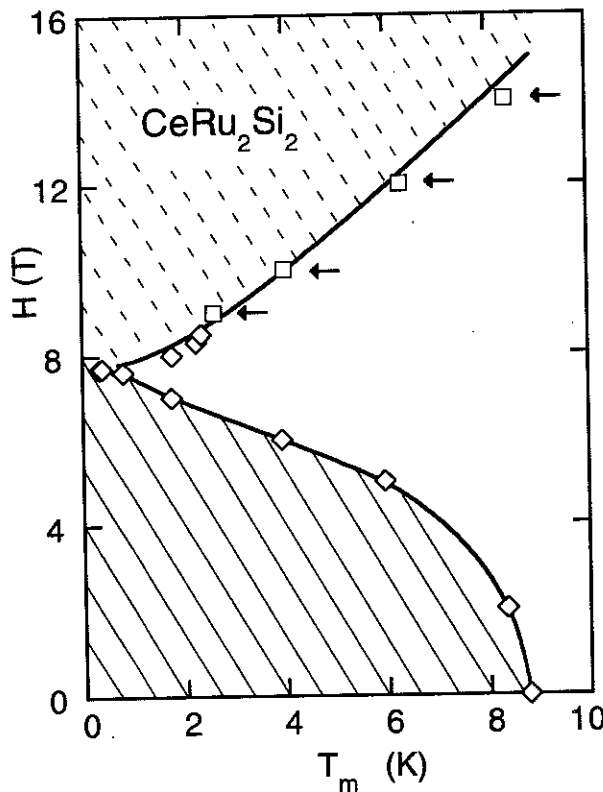


Figure III.52 : Pseudo-diagramme de phase de CeRu_2Si_2 construit à partir des valeurs de T_m en fonction du champ magnétique appliqué suivant l'axe c ; les points marqués d'une flèche représentent les maximums de C/T [van der Meulen 1991].

que cela soit le cas. Au contraire, ni la largeur quasiélastique Γ_{ss} de la diffusion des neutrons, ni le maximum de la chaleur spécifique ou bien du pouvoir thermoélectrique ne donnent une indication, que T_K varie sous champ (du moins jusqu'à 8 T) en dehors des limites de résolution (de 10 %). Ce fait se reflète dans l'observation que le paramètre de Grüneisen sous champ constant n'augmente plus d'une façon continue comme à champ nul (figure III.27). Pour les deux champs de 5 et 7,5 T, où nous possédons des mesures de chaleur spécifique [Fisher 1991] et de dilatation thermique (figure III.28), il est possible de calculer le paramètre de Grüneisen effectif (figure III.29). On remarque un régime à relativement haute température où Γ_{eff} est réduit sous champ. Au dessous d'une certaine température limite, T_Γ , Γ_{eff} augmente brusquement si $B < B^*$. Dans la limite $T \rightarrow 0$, Γ_{eff} diverge à B^* , en changeant de signe (encart de la figure III.29). On remarque aussi que l'invariance de la température de Kondo est en contradiction avec les modèles de collapse de réseau Kondo magnétique, qui exigent des variations de T_K considérables.

La température du maximum de susceptibilité $\chi(T, B = \text{const})$, se comporte comme celle de α_v : elle décroît sous champ, pour $B < B^*$; pour $B > B^*$, $\chi(T)$ demeure bien entendu positive, mais la température de son maximum augmente. A la transition pseudométamagnétique, cette température passe par un minimum. (figure III.53).

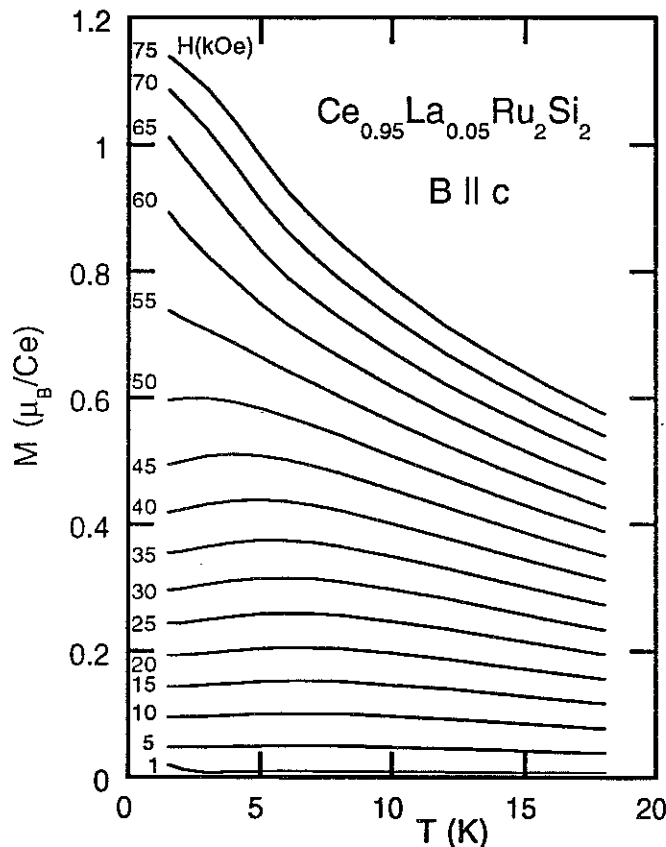


Figure III.53 : Variation thermique de $M(T, B = \text{const.})$ de $\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ (figure inédite de F. Lapierre).

Pour des champs supérieurs à 4 T, des maximums apparaissent en C/T [Fisher 1991, van der Meulen 1991] (figure III.9.a). Leur température passe par un minimum profond comme celui de α et χ . Au-dessous de B^* , le maximum en C/T est centré à des températures inférieures aux T_m de la dilatation thermique. Au-dessus de B^* ils coïncident avec T_m et comme on peut le voir sur la figure III.54, ils prolongent parfaitement la courbe pour des champs intenses jusqu'à 14 T [van der Meulen 1991]. Au-dessus de 14 T les maximums de C/T ne sont plus clairement discernables.

T_m se manifeste aussi dans les mesures de vitesse du son [Weber 1991], où l'on observe un minimum dans la vitesse longitudinale c_{33} (Fig.III.55), accompagné par un maximum dans le coefficient d'absorption α_{33} . Le minimum en c_{33} apparaît pour des champs supérieurs à 6 T (losanges sur la figure III.54) et coïncide très bien avec les extremums de dilatation thermique. Pour des champs inférieurs à 6 T, on peut relier la position de T_m à un maximum prononcé de α_{33} (losanges fléchés sur la figure III.54). Il est intéressant de noter que α_{33} présente un autre maximum centré à des températures plus élevées. A champ nul, les deux contributions se superposent et forment un plateau (figure III.55), alors que sous champ elles sont séparées.

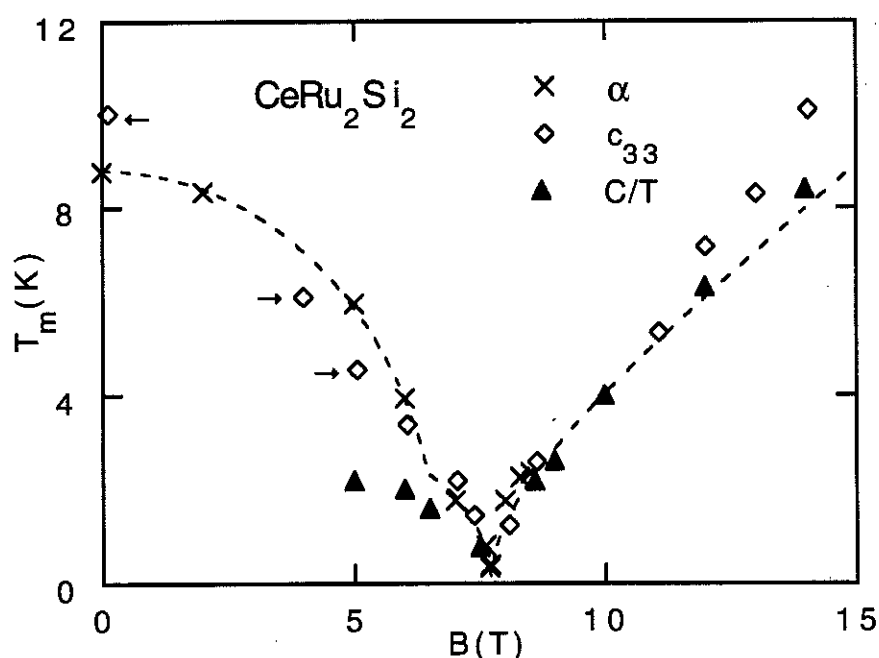


Figure III.54 : Températures du maximum de α , de C/T [Fisher 1991, van der Meulen 1991], de la vitesse du son longitudinale c_{33} [Weber 1991] ; les losanges fléchés sont des températures obtenues par des mesures d'absorption ultrasonore.

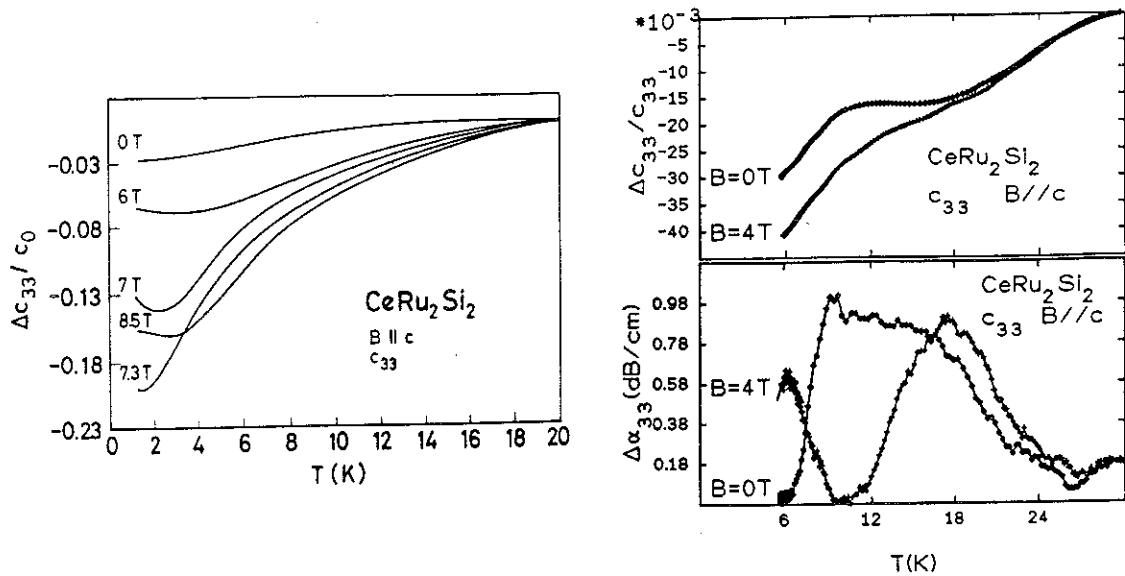


Figure III.55 : Vitesse du son longitudinale c_{33} et coefficient d'absorption α_{33} de CeRu_2Si_2 en fonction de la température [Weber 1991].

En conclusion, on constate que sous champ magnétique, la dilatation thermique dévie du comportement habituel des systèmes de fermions lourds (figure I.7). Sous champ, le maximum de α ne se comporte plus comme celui de la chaleur spécifique, mais plutôt comme celui de la susceptibilité. On remarque que le maximum de $\chi(T)$, contrairement à celui de $C(T)$, ne peut pas être expliqué par un effet Kondo à un site pour un doublet fondamental avec une dégénérescence de 2 [Rajan 1983].

Les anomalies qui décrivent le pseudodiagramme de phase dans le plan $B - T$ (figure III.52), apparaissent seulement en balayant la température sous champ magnétique constant. Les anomalies qui apparaissent en balayant le champ magnétique à température constante se comportent d'une façon différente, comme on l'a vu par exemple dans le cas de la susceptibilité magnétique $\chi_M \equiv \partial M / \partial B(B^*)$ (figure III.56). Le champ pseudo-métamagnétique B^* est maximal justement pour $T = T_m$. Sur la figure III.56, on voit aussi que la définition de B^* dépend de la mesure, surtout au-dessus d'une certaine température ($T > 2$ K) : B^* est visiblement différent pour dM/dH , c_{33} et $\rho(H)$ avec $I // a$. Le fait qu'on observe des lignes critiques différentes si l'on fait varier la température ou le champ nous indique clairement qu'il ne s'agit pas d'un vrai diagramme de phase bien que la transition pseudo-métamagnétique soit très raide à basse température.

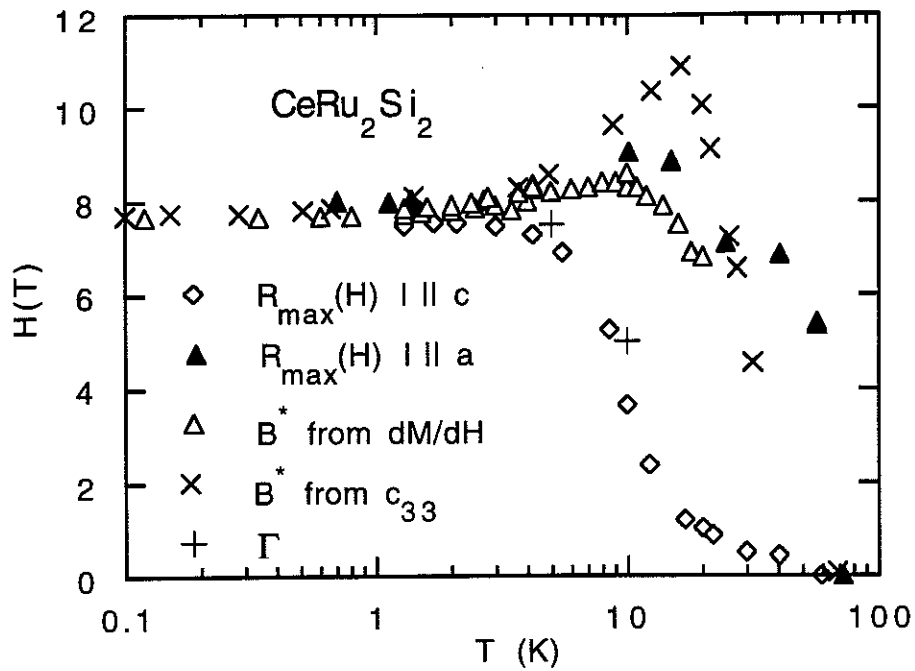


Figure III.56 : Maximums en fonction du champ magnétique de la magnétorésistance avec $i \parallel c$ ($\diamond$) et $i \parallel a$ ($\blacktriangle$), de χ_m ($\triangle$) et de c_{33} ($\times$). (+) est la température de la cassure dans le paramètre de Grüneisen (voir texte).

La seule propriété dont la température présente un pseudo-diagramme de phase comparable à celui de T_m lorsque l'on fait varier le champ magnétique à température constante, est la magnétorésistance avec $I \parallel c$ [Djerbi 1989] ; cependant, la variation de B^* déduite de ces mesures n'est quand même pas identique à celle de T_m . Par contre, la température limite, T_Γ , au-dessous de laquelle le paramètre de Grüneisen augmente brusquement en refroidissant (figure III.29), montre une dépendance en champ comparable à celle du maximum de cette magnétorésistance avec $I \parallel c$ (figure III.55). Selon cette courbe, le changement de régime de Γ à $B = 0$, devrait avoir lieu autour de 50 K, en très bon accord avec les résultats de la figure III.28. La magnétorésistance est donc la seule mesure qui, dans CeRu_2Si_2 , montre, suivant la direction du courant, ces deux types de pseudo-diagramme de phase. Une explication de ce phénomène sera donnée au paragraphe III.3.

III.2.6. COMPARAISON AVEC UPt_3

Comme nous l'avons déjà mentionné, le composé UPt_3 est le seul parmi les systèmes de fermions lourds qui présente une transition pseudo-métamagnétique comparable à celle de CeRu_2Si_2 . Voici les propriétés les plus importantes de ce composé.

UPt_3 possède la structure cristalline hexagonale $P6_3/mmc$. Le terme linéaire de la chaleur spécifique, $\gamma = 450 \text{ mJ.mole}^{-1}.\text{K}^{-2}$, indique qu'il s'agit d'un système de fermions lourds "modéré". Au-dessous de 5 K, un ordre antiferromagnétique avec un moment ordonné de $10^{-2} \mu_B$ a été observé par diffraction de neutrons [Aeppli 1988a], mais cet ordre ne se manifeste pas dans les propriétés thermodynamiques ou de transport. Au-dessous de 0,5 K, UPt_3 devient supraconducteur avec un diagramme de phase complexe, qui est connecté lui même avec l'ordre magnétique [Hasselbach 1989, Joynt 1992, van Dijk 1993, Keller 1994].

Au-dessous de 5 K, la chaleur spécifique dans la phase normale peut être représentée en ajoutant aux termes classiques un terme additionnel en $T^3 \ln T/T^*$ [de Visser 1984] qui peut être interprété par la théorie des liquides de Fermi [Auerbach 1986, Coffey 1986] ou par la théorie des paramagnons [Brinkmann 1968], où T^* est la température de fluctuations de spin.

Des expériences de diffusion des neutrons [Goldman 1987, Aeppli 1988b] ont montré l'existence de corrélations antiferromagnétiques entre les plans ab , avec une très courte longueur de corrélation. La réponse inélastique est centrée autour de 6 à 8 meV. L'axe de propagation des corrélations est l'axe c , le moment magnétique est dirigé dans le plan ab . Les corrélations apparaissent au-dessous de 18 K. Dans les plans ab , il y a des corrélations ferromagnétiques jusqu'à 150 K.

A la même température de 18 K, où des corrélations antiferromagnétiques apparaissent, la susceptibilité $\chi_{ab}(T)$ présente un maximum [Frings 1983, Schneider 1981] (figure III.57). La dilatation thermique [de Visser 1987a] est positive dans le plan ab et négative selon l'axe c (figure III.58). A 12 K, α_{ab} présente un maximum et α_c un minimum. Le paramètre de Grüneisen effectif augmente en refroidissant, et passe de 5 à 20 K à 80 dans la limite $T \rightarrow 0$. Dans une analyse du paramètre de Grüneisen, Franse et coll. ont extrait de la chaleur spécifique une contribution "fermions lourds". Ainsi ils ont trouvé un maximum C_{FL} à 10 K et une température de Kondo de 23 K [Franse 1989].

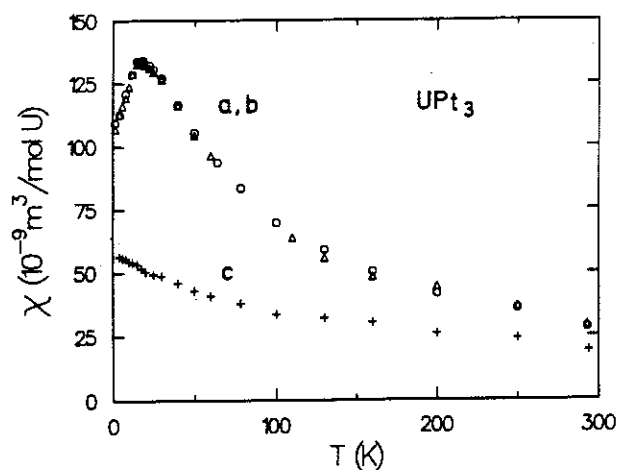


Figure III.57 : Susceptibilité de UPt_3 suivant les trois directions cristallo-graphiques [Frings 1983].

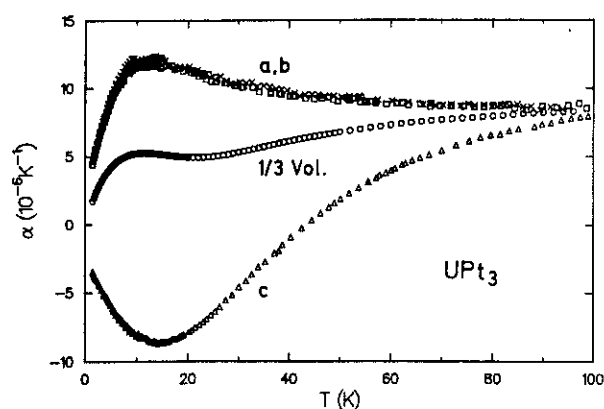


Figure III.58 : Coefficient de dilatation thermique de UPt_3 , selon les trois axes [de Visser 1986, 1987a].

La résistivité électrique décroît continûment en refroidissant sans présenter d'anomalie de type "Kondo" [de Visser 1986, 1987a] (figure III.59). A basse température ($T < 3K$), le rapport de Lorentz est inférieur à L_0 , comme dans $CeRu_2Si_2$. La résistivité de Hall, ρ_H , présente un maximum à 18 K comme la susceptibilité.

Un champ magnétique dans le plan ab induit une transition pseudo-métamagnétique à $B^* = 21$ T alors que l'aimantation est linéaire pour le champ magnétique dirigé selon l'axe c . On note que dans UPt_3 , il existe un plan de facile aimantation au contraire d'un axe de facile aimantation dans $CeRu_2Si_2$. Le terme linéaire de la chaleur spécifique présente un maximum à B^* , comparable à celui de $CeRu_2Si_2$ [Müller 1989, 1990] (figure III.60). Le rapport $\chi/\gamma = 8$ à B^* , est grand par rapport à sa valeur proche de 1 à champ nul, ce qui indique le rôle important des corrélations magnétiques. Le maximum dans la densité d'états au niveau de Fermi se manifeste aussi par un maximum dans la magnétorésistance (figure III.61) et les autres mesures de transport [de Visser 1986, 1987a]. L'aimantation présente un point d'inflexion à B^* ; $M(B^*)$ s'élève à $\sim 0,5 \mu_B$, et, comme dans $CeRu_2Si_2$, dépend relativement faiblement de la pression ou de la température (figure III.62).

La magnétostriction montre, comme l'aimantation, une anomalie à B^* [de Visser 1987c] (figure III.63). Elle est uniforme selon tous les axes. La dilatation volumique $\lambda_v(B^*) \sim 3.10^{-4}$ est approximativement la moitié de celle de $CeRu_2Si_2$, ce qui s'explique par le paramètre de Grüneisen de 80, qui est aussi la moitié de celui de $CeRu_2Si_2$. Le rapport entre la contribution dans le plan $a-b$, $(\lambda_a + \lambda_b)/2$ et celle de l'axe c , λ_c , est approximativement 3, comme dans $CeRu_2Si_2$.

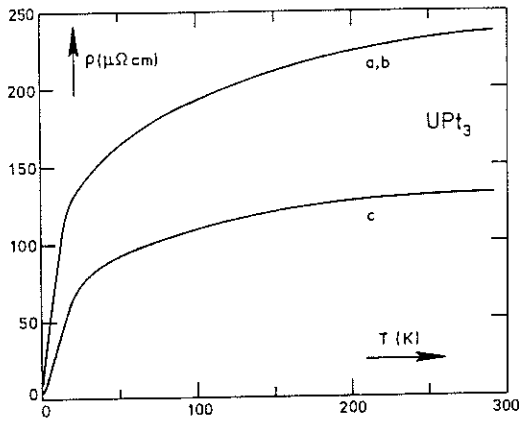


Figure III.59 : Résistivité électrique dans UPt_3 pour $I \parallel a,b$ et $I \parallel c$ [de Visser 1986, 1987a].

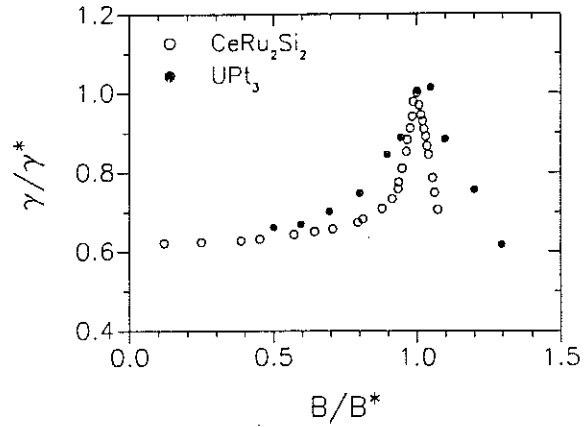


Figure III.60 : Terme linéaire de la chaleur spécifique de CeRu_2Si_2 et UPt_3 en coordonnées normalisées [Müller 1990].

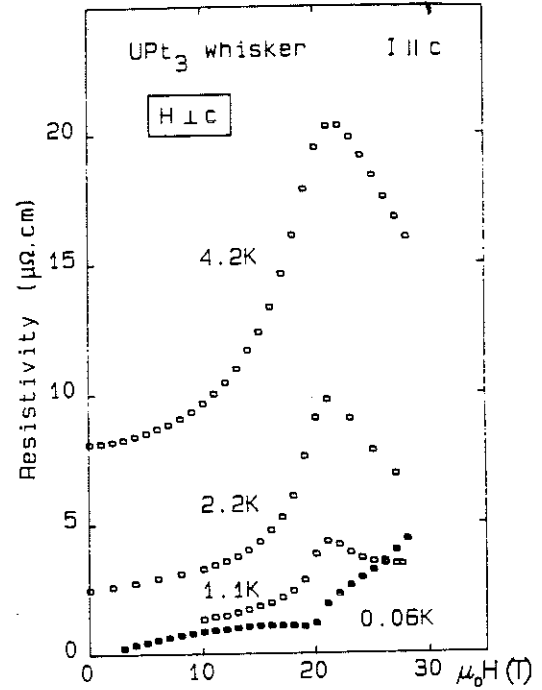
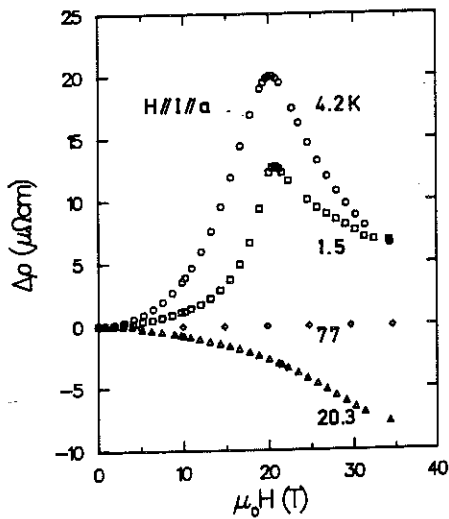


Figure III.61 : Magnétorésistance de UPt_3 pour $H \perp c$; à gauche $i \perp c$ [de Visser 1986, 1987a], à droite $i \parallel c$ [Taillefer 1988] ; .

Les maximums de dilatation thermique $\alpha(T, B=\text{const.})$ [Wyder 1994] se comportent sous champ de façon comparable à ceux de CeRu_2Si_2 (figure III.64). Comme dans la susceptibilité $\chi(T, B=\text{const.})$ [Müller 1990], T_m a un minimum profond à B^* . Dans la variation thermique du paramètre de Grüneisen, on peut définir une température T_Γ , au-dessous de laquelle Γ augmente brusquement en refroidissant, comme dans CeRu_2Si_2 . Jusqu'à maintenant, on n'a pas découvert de maximum en C/T dans UPt_3 . Il y a donc deux valeurs caractéristiques $T_m = 18 \text{ K}$ et $B^* = 21 \text{ T}$. Au moyen de la relation $k_B T_m = \mu B^*$ on obtient un "moment à saturation" $M_s = 1,28 \mu_B$ (pour CeRu_2Si_2 : $T_m = 10 \text{ K}$, $B^* = 7,7 \text{ T}$ et $M_s = 1,8 \mu_B$).

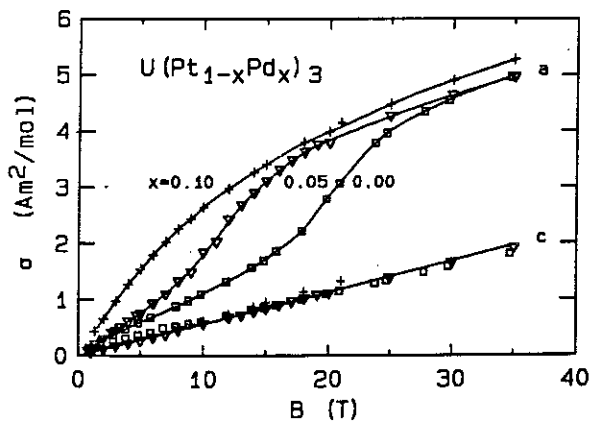


Figure III.62 : Aimantation du système $\text{U}(\text{Pt}_{1-x}\text{Pd}_x)_3$ [Franse 1990].

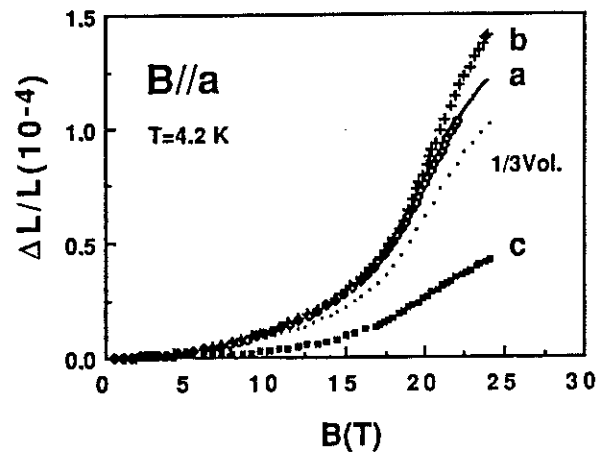


Figure III.63 : Magnétostriction de UPt_3 suivant les trois axes [de Visser 1987c].

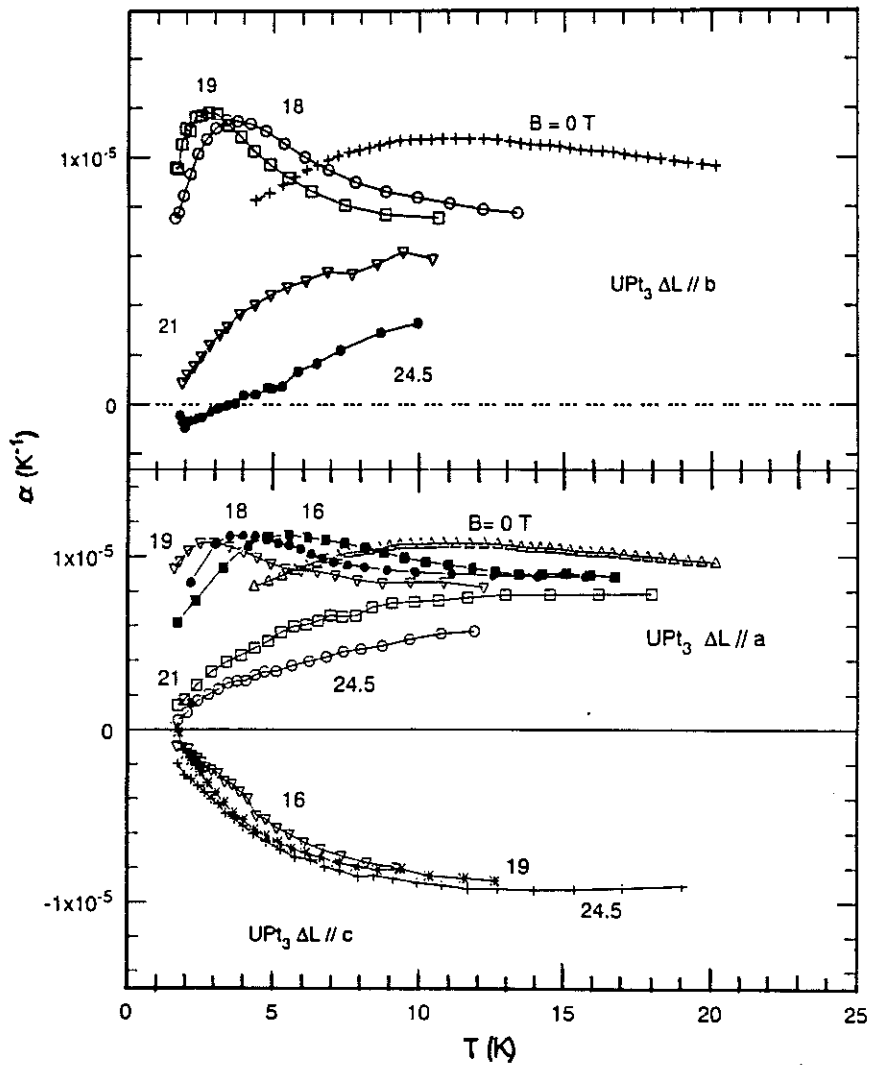


Figure III.64 : Dilatation thermique de UPt_3 selon les trois axes [Wyder 1994].

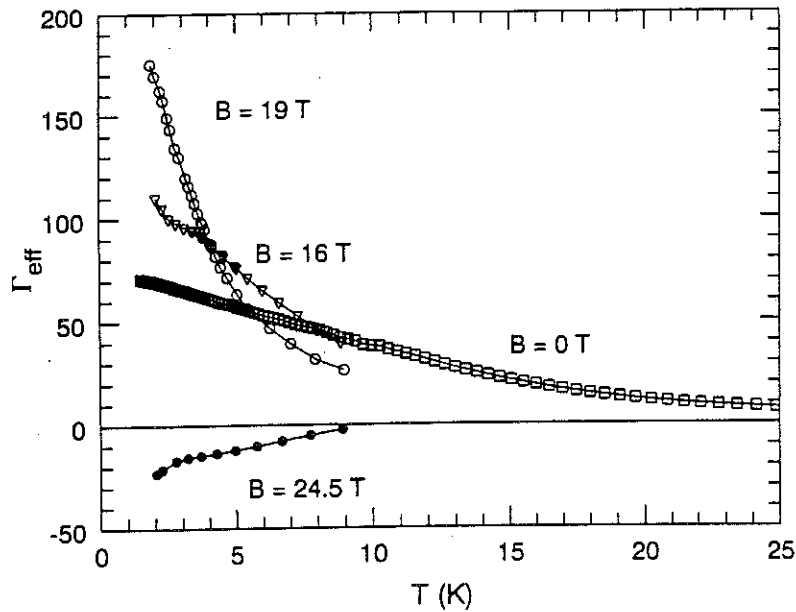


Figure III.65 : Paramètre de Grüneisen de UPt₃ [Wyder 1994].

Le système U(Pt_{1-x}Pd_x)₃ (dont les solutions solides n'existent que pour $x < 0,1$) présente une analogie avec le système Ce_{1-x}La_xRu₂Si₂. Pour le composé avec x (de Pd) = 0,05, qui est ordonné antiferromagnétiquement, on observe aussi une coexistence entre le vrai métamagnétisme et le pseudométamagnétisme, dont les champs coïncident à basse température. [Bakker 1993].

La transition pseudo-métamagnétique dans UPt₃ étant semblable à celle de CeRu₂Si₂, on peut supposer qu'il s'agit de la même physique. Ce phénomène est étonnant, parce qu'il y a des différences fondamentales entre les deux composés, comme la structure cristalline et l'élément magnétique (U et Ce). De plus il n'y a pas encore d'autres systèmes qui montrent cet effet.

A part des différences due à la supraconductivité et l'ordre antiferromagnétique, une différence fondamentale se manifeste dans la dilatation thermique de UPt₃, qui n'est pas positive selon tous les axes contrairement à celle de CeRu₂Si₂. La dilatation négative est liée au rapport c/a , qui joue un rôle important dans UPt₃. Ce rapport a une influence comparable à celui du volume dans ce système hexagonal, et complique l'observation d'une loi d'échelle simple comme dans CeRu₂Si₂, mais peut aussi induire des transitions structurales. Un autre point important est que, dans UPt₃, les énergies observées par diffusion de neutrons sont beaucoup plus larges que les énergies caractéristiques T_m , B^* et T_K . Finalement, des expériences en présence d'un champ magnétique de 21 T sont difficiles à réaliser et il manque encore des données pour comprendre complètement les mécanismes qui régissent les propriétés de UPt₃.

III.3. DISCUSSION SUR L'ORIGINE DE LA TRANSITION PSEUDOMETAMAGNETIQUE DE CeRu_2Si_2

III.3.1. MODELES THEORIQUES

Souletie [1988a, b] a développé une loi d'échelle basée sur le fait que dans tous les systèmes avec des interactions intersites, la longueur de cohérence qui caractérise le système, augmente en refroidissant. A une température critique, cette longueur diverge. On a donc besoin de deux énergies, l'une, Q , qui est proportionnelle à l'interaction et l'autre, T_c , la température critique, qui tient compte des mécanismes qui contrecarrent l'apparition d'un ordre à longue portée. Ainsi, T_c est toujours inférieure à Q . En ajustant ce modèle à la chaleur spécifique de CeRu_2Si_2 on obtient $Q = 20$ K et $T_c = 13,5$ K, valeurs en bon accord avec celles trouvées dans la diffusion de neutrons comme Γ_{ss} (= température de Kondo), et $\hbar\omega_{is}$ respectivement. Par contre, il paraît difficile d'interpréter cette bonne coïncidence entre l'expérience et le modèle.

Un autre modèle basé sur une loi d'échelle [Continentino 1989, 1991, 1993] suppose, par analogie avec le diagramme de Doniach (figure I.4), qu'il existe une valeur critique J_c de l'interaction d'échange, qui sépare une région avec ordre antiferromagnétique d'une région "Kondo". Il est possible de montrer qu'il s'agit d'une transition à $T = 0$ [Pfeuty 1982]. Continentino [1989] a d'abord proposé une loi d'échelle pour un système Kondo où J est proche de J_c . Une conséquence en est qu'il existe une nouvelle échelle d'énergie caractérisée par les paramètres T_c et H_c , avec T_c inférieur à la température de Kondo (en fait, T_c n'est autre que la température de cohérence T^* , autrement dit, ici, le minimum de T_m à B^* , ou encore la température au-dessous de laquelle la résistivité varie en T^2). Il s'agit du même point de départ que la loi d'échelle dans CeRu_2Si_2 utilisée pour interpréter l'aimantation sous pression [Voiron 1988]. Un résultat particulièrement intéressant de cette loi d'échelle est qu'elle prédit que l'aimantation à la transition métamagnétique, $M(B^*)$, est indépendante de la pression.

Un modèle de liquide de Fermi basé sur l'idée du magnétisme itinérant a été développé [Misawa 1993], où un terme $M^4 \ln M$ apparaît dans l'énergie libre. Ce terme explique le maximum dans la susceptibilité à T_m , mais peut aussi expliquer le pseudo-métamagnétisme dans CeRu_2Si_2 , avec $T_m \equiv B^*$. Il ne s'agit pas d'une transition de phase de premier ordre. Par contre, ce modèle s'applique également à des systèmes faiblement ferromagnétiques comme par exemple le système $\text{Y}(\text{Co}_{1-x}\text{Al}_x)_2$ [Duc 1993, Sakakibara 1990], où, pour $x < 0.12$, il n'y a pas d'ordre magnétique, mais un maximum en $\chi(T)$ et une vraie transition métamagnétique. Dans ce modèle, la transition métamagnétique se distingue de la transition pseudo-métamagnétique par une valeur critique du terme $M^4 \ln M$. Il demeure intéressant qu'un modèle développé pour les systèmes presque ferromagnétiques a un caractère assez universel pour bien reproduire les courbes $M(H)$ de CeRu_2Si_2 .

L'intention d'obtenir une description unifiée pour les systèmes presque magnétiques 3d et 4f, s'est exprimée dans d'autres travaux [Kuramoto 1989, Edwards 1991, Miyake 1991]. Dans ces modèles semi-phénoménologiques la nature à la fois itinérante et localisée est considérée. Les premiers modèles de ce type ont été développés pour comprendre cette double nature des électrons 3d dans le fer [Edwards 1970, 1982, Hasegawa 1979]. Selon ces modèles, [Edwards 1991], à la transition pseudo-métamagnétique, les électrons 4f seront localisés.

Ohkawa [1989] a introduit un mécanisme de collapse de Kondo : La formation du singulet local par l'effet Kondo réduit le volume du système. Un champ magnétique supprime l'effet Kondo et le cristal se dilate. La dilatation elle-même affaiblit l'effet Kondo, avec pour conséquence que le cristal se dilate davantage. Un tel processus d'avalanche peut expliquer l'anomalie à B^* . Par contre, ce modèle, malgré les corrections qui prennent en compte l'effondrement des constantes élastiques [Bruls 1990], nécessite une énergie d'échange positive (ferromagnétique) qui n'a pas été observée dans l'expérience. Il reste quand même intéressant que la possibilité d'un mécanisme de type feed-back ait été évoquée. Par la suite, on a introduit un paramètre d'échange antiferromagnétique [Saso 1991], mais variable en fonction du champ magnétique appliqué. De toute façon, ces modèles de collapse de volume nécessitent donc de fortes variations des paramètres fondamentaux, comme T_K et J . Mais expérimentalement, ces derniers paramètres ne varient pas de plus de 10%, bien que dans CeRu_2Si_2 et UPt_3 les effets volumiques soient spectaculaires.

Une autre classe de modèles décrit des centres Kondo faiblement couplés [Konno 1991, 1992, Ueda 1990]. Bien que ces modèles nécessitent des paramètres fondamentaux, T_K et T_{RKKY} , beaucoup trop élevés, ils reproduisent très bien la transition pseudo-métamagnétique, mais surtout l'anisotropie du système par rapport au champ magnétique. Une conséquence également non négligeable est qu'on peut obtenir un singulet comme état fondamental. Dans ce cas il s'agit d'un état qui n'est ni de type Kondo à un site ni purement antiferromagnétique, mais entre les deux.

Ce dernier état fondamental est décrit par des modèles phénoménologiques [Brenig 1987, Lehmann 1987, Marcenat 1988, Amato 1988, Matho 1988], qui consistent en une double lorentzienne séparée par un terme d'énergie d'échange. Ce gap représente l'échelle d'énergie unique dans ces systèmes et un champ magnétique induit la transition singulet triplet discutée plus haut.

Finalement, un autre modèle [Evans 1992a, b] introduit un terme d'hybridation anisotrope dans l'Hamiltonien d'Anderson. Pour un doublet fondamental $J = \pm 5/2$, il est possible, d'obtenir un maximum prononcé à B^* mais aussi un maximum dans la susceptibilité et une décroissance de sa température T_m au voisinage de B^* . L'aimantation $M(B^*)$ reste également indépendante de la pression, pendant que B^* varie. Cette théorie décrit un effet de bande pur. Il est quand même douteux que l'on puisse décrire la transition pseudo-métamagnétique sans inclure les interactions antiferromagnétiques observées dans la diffusion des neutrons. Aussi cette théorie ne peut pas reproduire les effets magnétovolumiques qui sont très importants.

III.3.2. UNE EXPLICATION POSSIBLE DE LA TRANSITION PSEUDO-METAMAGNETIQUE DANS CeRu_2Si_2

Pour illustrer ce qui a été dit au chapitre précédent, une vue d'ensemble du "scénario de Kondo" dans CeRu_2Si_2 [Bruls 1992] est représentée sur la figure III.66. On s'aperçoit que le pseudométamagnétisme n'est pas du tout une transition de phase. Une transition de phase magnétique, quel que soit l'ordre, est caractérisée, dans l'espace B-T, par une ligne de séparation de phase à laquelle la transition de phase a lieu, indépendamment de la façon dont cette ligne est traversée (en fonction de T, à B constante, ou en fonction de B, à T constante). Dans la théorie classique du (vrai) métamagnétisme il devrait s'agir d'une transition de phase de premier ordre. Une telle transition présente un effet d'hystérésis qui n'a pas été trouvé expérimentalement dans CeRu_2Si_2 , même aux plus basses températures. Pourtant, les pics très aigus dans la susceptibilité différentielle dM/dH et la magnétostriction λ' qui divergent presque pour $T = 0$ (figures II.1.9 et 10) permettent de supposer qu'il s'agit d'un phénomène critique.

Le comportement de T_m et B^* (figure III.66) a plutôt le caractère d'un croisement de deux niveaux. Tenant compte du fait que la séparation du premier niveau excité de champ cristallin est de 220 K et ne peut pas être fermée par un champ magnétique de laboratoire, on évoque la possibilité d'un gap créé par l'interaction antiferromagnétique.

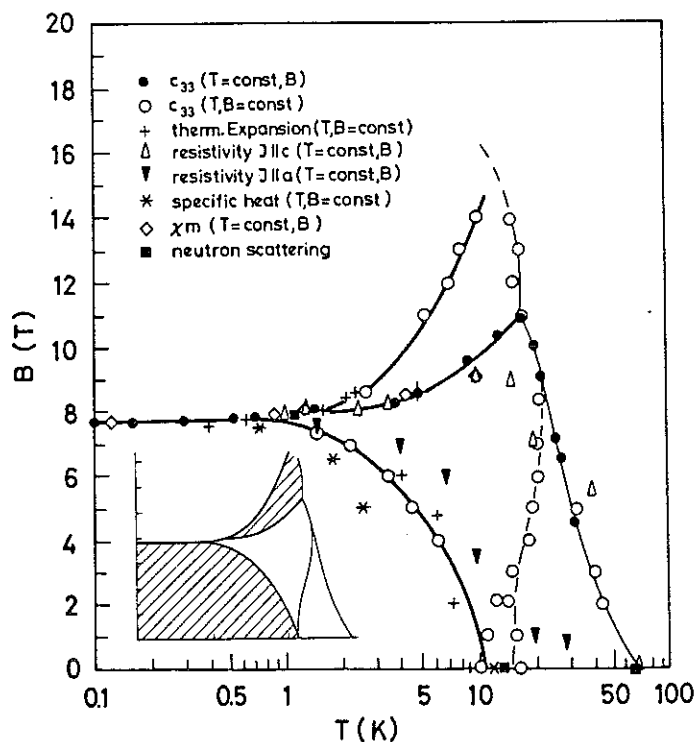


Figure III.66 : Scénario de Kondo [Bruls 1992] : les points marquent les anomalies dans les variations des différentes propriétés, en particulier ultrasonores.

Une explication possible de la transition pseudométamagnétique de CeRu_2Si_2 est la suivante.

Supposons un groupe de trois moments magnétiques qui s'ordonnent antiferromagnétiquement afin de former un cluster qui a un spin résultant S non nul. Ce dernier peut être dirigé parallèlement ou antiparallèlement suivant l'axe de quantification (figure III.67), c. à d. l'axe de facile aimantation. Un électron de conduction avec un spin s peut ainsi faire une diffusion de type spin-flip avec le spin S du cluster. On peut alors supposer que dans CeRu_2Si_2 l'écrantage du moment magnétique ne serait pas total par effet Kondo à un site, mais pourrait l'être par effet Kondo avec le cluster antiferromagnétique. Il est important de noter qu'une paire de moments magnétiques en interaction antiferromagnétique est forcément un singulet avec $S = 0$. La diffusion de type spin-flip avec un électron de conduction mène à un triplet $S = 1$, mais pour cela il faut détruire la corrélation antiferromagnétique et ainsi surmonter l'interaction d'échange. L'effet Kondo est inélastique et ainsi ne peut induire la formation d'un singulet fondamental à basse température. On remarque que jusqu'à maintenant, à cause de sa grande complexité, seul le problème à deux impuretés a été étudié théoriquement et apporte forcément un résultat qui exclut la coexistence entre l'effet Kondo et l'antiferromagnétisme. [Matho 1973, Jayaprakash 1981, Jones 1987, 1988, 1989 et Schlottmann 1990]. Un spin $S \neq 0$,

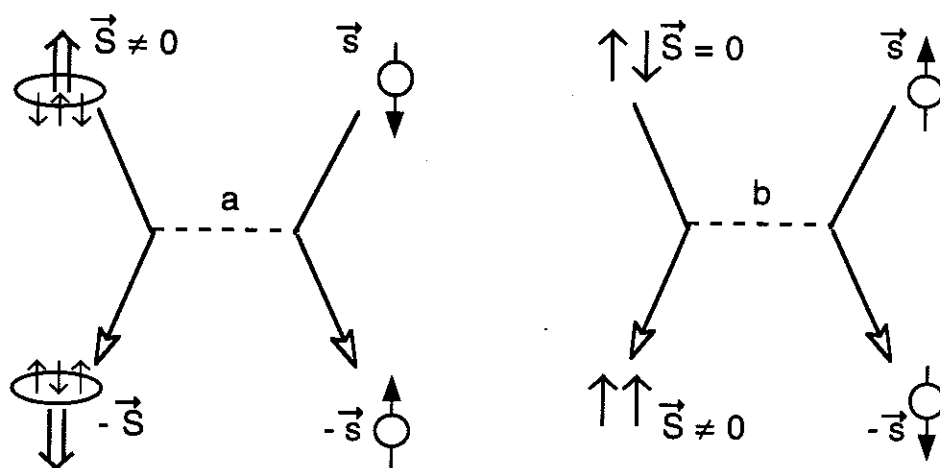


Figure III.67 : Principe de la diffusion spin-flip d'un électron de conduction (spin s) avec (a) un triplet antiferromagnétique (spin $S \neq 0$) et (b) une paire (spin $S = 0$) antiferromagnétique. La diffusion spin-flip avec une paire détruit l'alignement antiparallèle des spins ; elle est inélastique et ainsi ne peut induire un effet Kondo à basse température.

qui résulte toujours d'un nombre de sites impair, mais au moins de trois, peut flipper librement et contribuer au singulet de Kondo (figure III.67). Comme on va le voir par la suite, un tel arrangement réunit le singulet de Kondo et celui de l'interaction antiferromagnétique et pourra expliquer le pseudo-métamagnétisme dans CeRu₂Si₂. Énergétiquement, l'arrangement antiferromagnétique est situé au-dessous des spins isolés mais à la place des niveaux discrets, on s'attend à des résonances de Kondo (figure III.68). On peut aussi parler d'un pseudo-gap de spin.

Un champ magnétique détruit les corrélations antiferromagnétiques au champ pseudométamagnétique B^* . On observe ainsi un saut dans l'aimantation proche de la valeur $M(B^*) = 0,75 \mu_B$, c'est à dire proche d'un tiers de la valeur à saturation de $1,8 \mu_B$. Pour des champs supérieurs à B^* , le moment à saturation n'est pas encore récupéré entièrement parce qu'il est encore écranté par l'effet Kondo à un site. En fait, le modèle de résonance Kondo à un site est seulement en bon accord avec les expériences en champs intenses, à $B \gg B^*$ [van der Meulen 1991] et on peut supposer que l'effet Kondo à un site est seulement détruit à des champs de l'ordre de 50 T.

Avec la destruction du cluster antiferromagnétique, dont nous supposons l'existence, le singulet de Kondo est détruit. En conséquence, le volume se

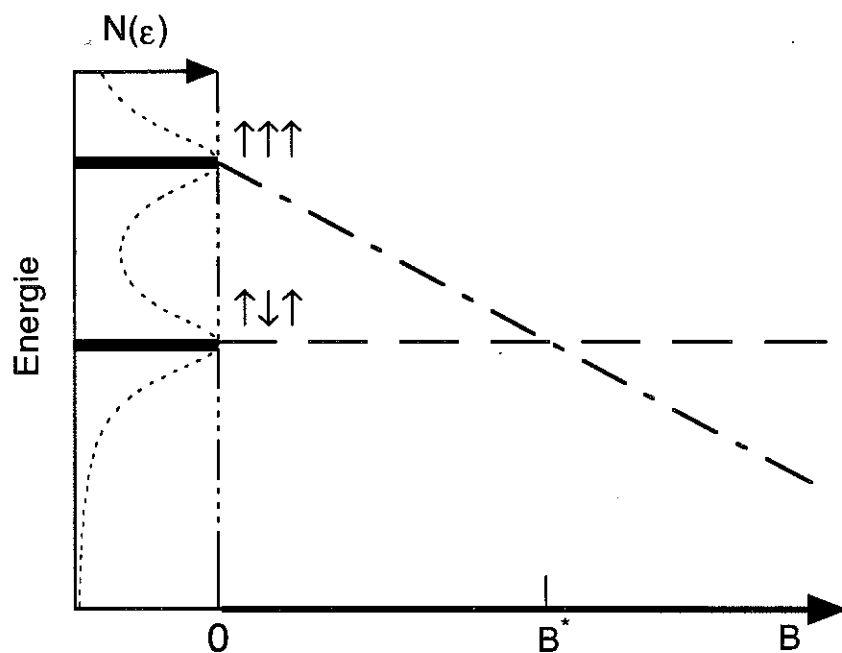


Figure III.68 : Fermeture du gap antiferromagnétique par effet Zeeman. La ligne pointillée à gauche indique que les niveaux énergétiques sont élargis par l'effet Kondo.

dilate d'un millièrre. C'est à dire que le cristal se dilate approximativement dans les mêmes proportions qu'il s'est contracté en refroidissant. Comme on l'a vu dans le chapitre I.5.2, les forts effets volumiques sont dus à la formation du singulet de Kondo. Cet effet est très bien démontré sur la figure III.34, où est illustrée une comparaison entre les composés non ordonnés du système $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$ avec 0 et 5 % de La et celui avec 20% La, qui est ordonné. On voit clairement que le composé ordonné ne présente pas cette magnétostriction géante, ce qui est dû au fait que l'état fondamental des composés non-ordonnés est un singulet de Kondo mais pas celui du composé avec 20% La.

Ainsi, dans notre schéma, la formation d'un état cohérent à très basse température établit une corrélation entre les clusters antiferromagnétiques qui n'est pas identique avec l'ordre magnétique. La coexistence de deux longueurs caractéristiques, celle de l'ordre et celle de la cohérence, est donc possible (voir aussi la discussion au chapitre III.2.4). Cet état cohérent pourra être comparable à une phase thermodynamique dans la limite $T \rightarrow 0$ et ainsi expliquer la raideur de la transition pseudométamagnétique. Comme nous l'avons mentionné auparavant, la destruction du singulet de Kondo, qui caractérise l'état cohérent à basse température, est accompagnée par une forte dilatation volumique. Sur la figure III.49, on voit que la susceptibilité différentielle possède une forte contribution due à la magnétostriction. Rappelons que dans la transition γ - α du Ce pur, qui est une transition de premier ordre, on observe un changement de volume de 15%.

La formation de l'état singulet fondamental n'est possible que si le cluster n'est pas détruit thermiquement. A la température qui correspond à l'énergie de l'interaction antiferromagnétique, on observe un maximum de la susceptibilité magnétique $\chi(T)$, ce qui indique que les clusters commencent à se former en refroidissant. En même temps ils commencent à créer une diffusion de type spin-flip des électrons de conduction, le volume se contracte, et le coefficient de dilatation thermique $\alpha(T)$ a un maximum à la même température que celui de $\chi(T)$.

Un champ magnétique ferme le gap antiferromagnétique par effet Zeeman (figure.III.68). Les maximums de α et χ sont par suite centrés à des températures d'autant plus proches de zéro que le champ B est proche du champ pseudo-métamagnétique B^* . A ce champ, le gap antiferromagnétique est fermé. Pour des champs supérieurs à B^* , la polarisation parallèle des moments magnétiques devient énergétiquement plus favorable que l'orientation antiferromagnétique, le gap se rouvre et le maximum en χ se déplace vers des

plus hautes températures. A basse température, les clusters de trois et le singulet fondamental ne peuvent plus se former ; en augmentant la température, l'activation thermique surmonte le nouveau gap ferromagnétique. Ainsi la dilatation thermique devient négative pour $B > B^*$. On remarque qu'il s'agit ici clairement d'un croisement de niveaux (antiferro-parallèle) et pas d'une destruction d'un champ moléculaire qui caractérise une phase ordonnée magnétiquement. La meilleure preuve est que les extremums en χ et α réapparaissent pour des champs supérieurs à B^* .

De même, on comprend aussi pourquoi le paramètre de Grüneisen Γ_{eff} présente une cassure sous champ (figure III.29). Au paragraphe I.5.2, on avait constaté que dans tous les systèmes de fermions lourds de type liquide de Fermi, Γ_{eff} augmente en refroidissant. On peut supposer que Γ_{eff} constitue un indicateur extrêmement sensible de la formation du singulet de Kondo : Γ_{eff} chute et devient même négatif si la formation de ce singulet est empêchée, soit par effet Zeeman, soit par l'apparition d'un ordre antiferromagnétique (figure III.33), soit pour une autre raison. Dans le cas de CeRu_2Si_2 , Γ_{eff} commence à augmenter au-dessous de $T = 60 \text{ K}$. On peut donc supposer que les clusters magnétiques se forment à des températures relativement élevées. Probablement, ces clusters ne servent donc pas seulement à écranter le moment magnétique à basse température mais constituent aussi un état énergétiquement favorable à haute température. On trouvera plus loin une discussion à propos des résultats de diffusion de neutrons.

Intuitivement, on peut comprendre que le terme linéaire de la chaleur spécifique devient maximal à B^* : on s'attend à ce que la densité d'états soit maximale au croisement des deux niveaux. Dans une image simple on peut supposer que les deux niveaux sur la figure III.68 sont élargis par l'effet Kondo. La densité d'états devient donc maximale, quand les deux niveaux se croisent. Les premiers modèles phénoménologiques qui décrivent la transition pseudo-métamagnétique comme transition entre deux niveaux énergétiques élargis sont basés sur une densité d'états lorentzienne au niveau de Fermi, comme celle utilisée pour approximer l'effet Kondo à un site. En introduisant un terme d'interaction, cette résonance est dédoublée ; la séparation des maximums est de l'ordre de l'énergie d'échange. Ainsi, le comportement du pouvoir thermoélectrique peut être compris qualitativement (figure III.69) [Amato 1988]. La dépendance en température de la chaleur spécifique $C(T)$ est mieux reproduite qu'avec une résonance simple [Lehmann 1987].

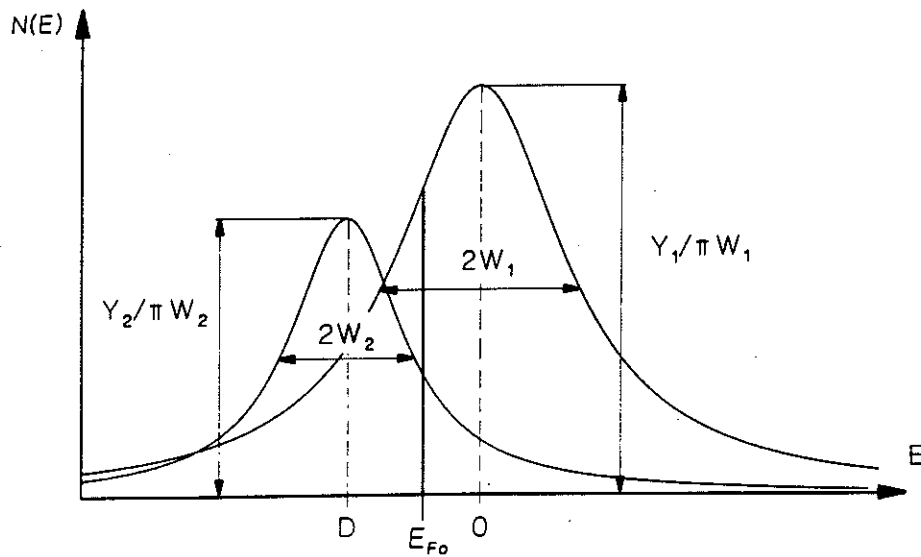


Figure III.69 : Modèle de double résonance utilisé pour expliquer qualitativement le pouvoir thermoélectrique sous champ [Amato 1988].

De la même manière, le maximum dans la magnétorésistance à B^* s'explique par la densité d'états élevée $N(E_F)$ à B^* qui varie comme $A^{1/2}$ (où A est le coefficient du terme en T^2 de la résistivité). Jusque vers 5-6 K, le maximum de $\rho(B)$ est d'autant plus grand que la température est élevée (figure III.9). A plus basse température, il est plus réduit. Le produit de la résistivité électrique et de la conductivité thermique $\rho\kappa/T$ selon la loi de Wiedemann-Franz, est inférieur au nombre de Lorentz L_0 pour des électrons libres pour $B < B^*$, atteint précisément la valeur L_0 à B^* , et reste supérieur à cette valeur pour $B > B^*$. Ce fait peut être lié à l'existence d'un pseudogap dans la densité d'états.

Dans la diffusion de neutrons, on observe une contribution quasi-élastique de largeur Γ_{ss} , qui a été attribuée à l'effet Kondo à un site. Cependant on peut se demander s'il ne s'agit pas aussi de la diffusion Kondo avec un cluster de trois spins. L'énergie de la contribution inélastique $\hbar\omega_{is} = 1,2$ meV (14 K), peut être considérée comme l'énergie nécessaire pour détruire un tel cluster antiferromagnétique. Numériquement, elle correspond à l'énergie magnétique $\mu_{eff}B^*$ avec $\mu_{eff} = 1,8 \mu_B$. Le fait qu'il ne s'agisse pas d'une ligne aiguë dans le spectre d'énergie, mais qu'on observe une largeur Γ_{is} , indique que cette configuration n'est pas stable avec le temps. L'élargissement Γ_{is} peut provenir de la diffusion de type spin flip.

Dans le plan (a,a) des corrélations ont été trouvées pour des températures inférieures à 70 K ; au-dessous de 40 K, on peut distinguer clairement les corrélations intersites des fluctuations locales. Leur longueur de corrélation augmente brusquement en refroidissant au-dessous de 10 K (maximum de $\chi(T)$) et se sature à basse température à 12 Å, ce qui représente trois distances interatomiques et est donc en bon accord avec l'idée d'un cluster de trois moments.

Sous champ magnétique les corrélations antiferromagnétiques disparaissent, mais jusqu'à aujourd'hui on n'a pas pu observer que l'énergie $\hbar\omega_{\text{IS}}$ change de valeur sous champ. Cette dernière observation n'est pas ce qu'on attend si deux niveaux énergétiques se rapprochent (figure III.68). Par contre la valeur de $\hbar\omega_{\text{IS}}$ est seulement un paramètre parmi d'autres dans l'analyse du spectre d'énergie obtenu par diffusion de neutrons [Jacoud 1991]. Selon Regnault [1994], il est bien possible que $\hbar\omega_{\text{IS}}$ puisse même être nul à B^* .

La proximité entre la transition pseudo-métamagnétique et le vrai métamagnétisme dans les alliages avec $x_{\text{La}} \geq 8\%$ peut être expliquée, par le fait que, à B^* , les interactions antiferromagnétiques sont détruites. Au contraire des clusters, la phase ordonnée possède un champ moléculaire, qui est détruit par la température. Par contre, l'augmentation de B^* avec la température et son maximum à T_m est encore un élément à comprendre.

Nous avons développé un modèle intuitif, qui nous explique l'ensemble des observations expérimentales autour de la transition pseudométamagnétique dans CeRu_2Si_2 . Ce modèle est basé sur l'existence de corrélations antiferromagnétiques à courte distance en coopération avec un effet Kondo. Le pseudométamagnétisme est la destruction de cet état coopératif. Cette discussion était basée sur l'existence d'un effet Kondo à un site avec des électrons 4f localisés. Les mesures d'effet de Haas-van-Alphen [Julian 1994, Aoki 1993] et les calculs de bande [Zwicknagel 1992] nous montrent que les électrons 4f ont aussi un caractère délocalisé à basse température. On observe que les électrons 4f dans CeRu_2Si_2 deviennent davantage localisés à la transition pseudométamagnétique. Dans notre modèle, l'effet de délocalisation à champ nul est attribué à la formation du singulet de Kondo (chapitre I.4). Cet état, dont on ne possède pas encore une description microscopique satisfaisante, ne sera donc pas discuté en détail. La transition pseudo-métamagnétique est ainsi la destruction de l'état fondamental singulet de Kondo.

III.3.3. CONCLUSION

Nous venons de discuter l'origine de la transition pseudo-métamagnétique dans CeRu_2Si_2 . Il apparaît que cette transition est une conséquence des particularités de l'état fondamental de ce système. Parmi des nombreuses mesures faites sur ce système, les effets magnétovolumiques sont très importants. En particulier, dans la magnétostriction, le cristal se dilate uniformément comme un gaz, ce qui, parmi des systèmes de fermions lourds, n'est observé que dans UPt_3 . Pour réconcilier les nombreuses théories et expériences, surtout la diffusion des neutrons, une transition d'un état fondamental singulet vers un état excité triplet semble être une solution simple. Dans un système Kondo, deux singulets différents sont possibles : le singulet local, entre le spin de l'électron de conduction et l'électron de la couche 4f et le singulet inter-site entre deux impuretés. Les observations témoignent de ces deux contributions. La diffusion inélastique des neutrons montre sans ambiguïté l'importance des corrélations inter-site, alors que les forts effets magnétovolumiques peuvent provenir de la contribution d'un singulet local. L'état fondamental est certainement composé de ces deux contributions.

QUATRIEME PARTIE :
LE COMPOSE
 CeCu_6

IV.1. DESCRIPTION DES PROPRIETES DE CeCu₆

IV.1.1. STRUCTURE CRISTALLINE

La structure cristalline de CeCu₆ est orthorhombique et appartient au groupe d'espace D16₂h [Cromer 1960]. Les paramètres de maille sont: $a = 8,104 \text{ \AA}$, $b = 5,091 \text{ \AA}$, $c = 10,130 \text{ \AA}$ (figure IV.1). La maille élémentaire contient quatre formules chimiques. La distance entre deux cérium voisins est de $4,83 \text{ \AA}$.

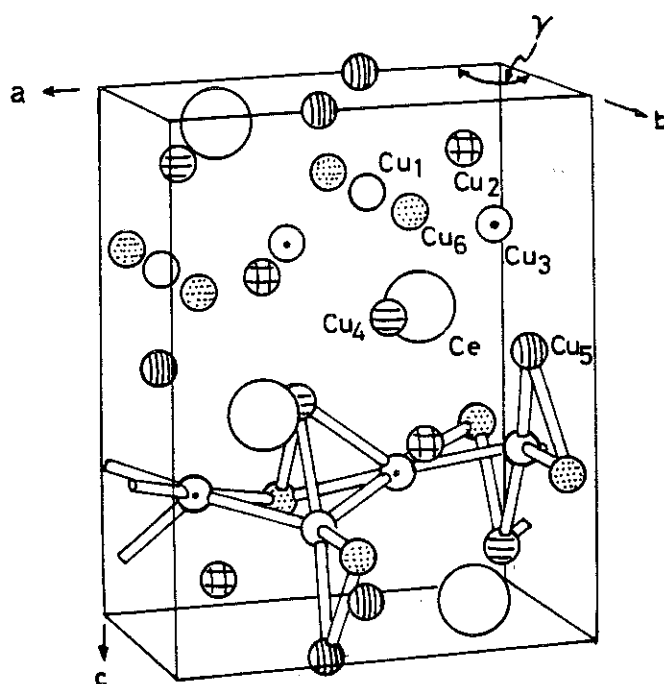


Figure IV.1 : Structure cristalline de CeCu₆ [Cromer 1960].

Chaque atome de cérium est entouré de dix-neuf atomes de cuivre, avec une distance moyenne Ce-Cu de $3,146 \text{ \AA}$. Six atomes de cuivre sont rangés dans un hexagone approximativement coplanaire à l'atome de cérium. Un autre hexagone, formé de six atomes de Cu, se trouve au-dessous du Ce, et cinq Cu forment un pentagone au-dessus de Ce. De plus, deux atomes de Cu encadrent ces plans (figure IV.2). Au-dessous de 220 K , la structure cristalline devient monoclinique. L'angle γ entre les axes a et b se déforme de $\Delta\gamma = 1,5^\circ$. Etant donné que cette distorsion est très faible, il est d'usage de conserver la notation de la structure orthorhombique à basse température [Bomken 1987, Gratz 1987, Noda 1985, Suzuki 1985, Yamada 1987].

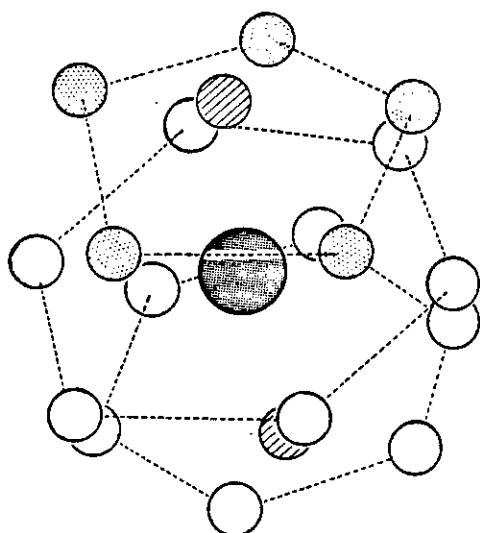


Figure IV.2 : L'atome de Ce entouré de 19 atomes de Cu [Cromer 1960].

IV.1.2. SUSCEPTIBILITE MAGNETIQUE

Au-dessus de 100K, la susceptibilité $\chi(T)$ de CeCu_6 suit une loi de Curie-Weiss avec un moment magnétique très proche de celui de l'ion libre Ce^{3+} ($2,54 \mu_B$) pour toutes les directions cristallographiques (figure IV.3). La température de Curie est - 70 K selon les axes a et b et - 10 K selon l'axe c [Onuki 1985a, Zemirli 1985].

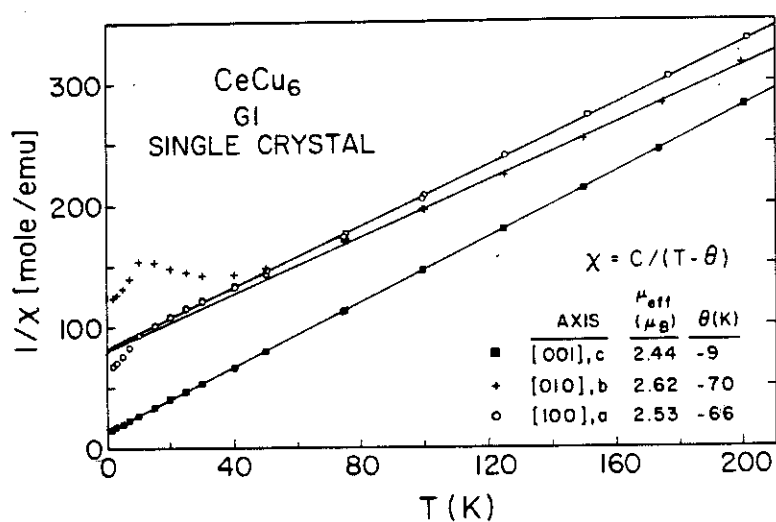


Figure IV.3 : Inverse de la susceptibilité magnétique de CeCu_6 en fonction de la température [Amato 1987].

La déviation de $\chi(T)$ par rapport à la loi Curie-Weiss au dessous de 100 K est attribuée aux effets du champ cristallin. Le multiplet de Ce^{3+} ($J = 5/2$) est séparé en trois doublets. Les niveaux du champ cristallin ont été déterminés à partir de plusieurs types d'expériences, comme par exemple par la diffusion inélastique des neutrons (0 - 64 - 128 K) [Walter 1986], la dépendance en température des constantes élastiques (0 - 71 - 117 K) [Weber 1987] et la chaleur spécifique (0 - 60 - 100 K) (voir chapitre IV.1.4). Comme on peut le voir, ces résultats sont en bon accord entre eux.

IV.1.3. AIMANTATION

L'aimantation est anisotrope ; elle est la plus faible selon les axes a et b et linéaire avec H jusqu'à 20 T à la plus basse température mesurée (1,6 K) (figure IV.4) L'axe de facile aimantation est l'axe c ; l'aimantation selon cette axe $M_c(H)$ atteint la valeur de $1,1 \mu_B/\text{Ce}$ à 20 T. A 1,6 K, la pente initiale de $M_c(H)$ est environ cinq fois plus forte que celle de M_a et M_b . Mais à plus haut champ, $M_c(H)$ présente une courbure négative [Amato 1987, Onuki 1988]. Ce n'est qu'à très basse température, au-dessous de 500 mK, qu'on a observé récemment un point d'inflexion, qui se traduit par un faible maximum dans dM_c/dH [Schröder 1992, v. Löhneysen 1993] (figure IV.5).

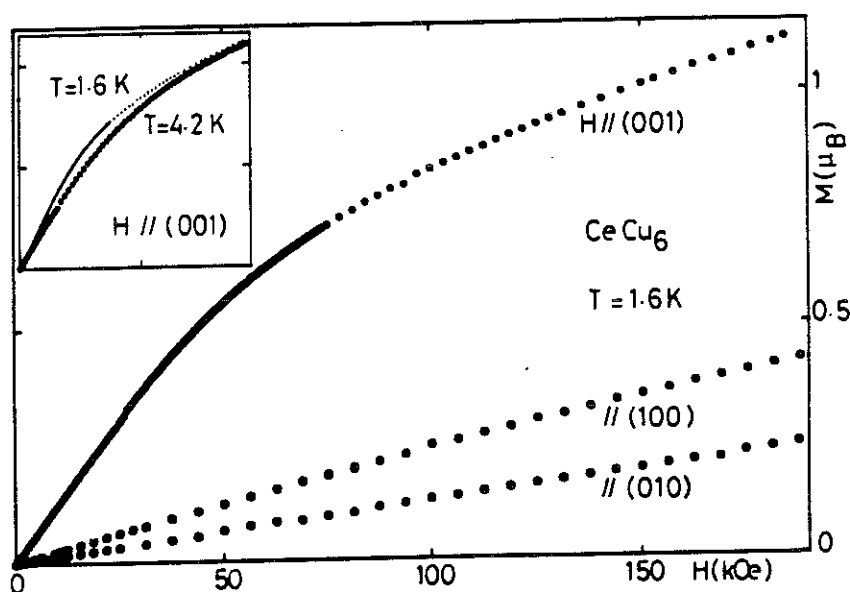


Figure IV.4 : Aimantation de CeCu₆ pour le champ appliqué suivant les trois axes cristallographiques, à $T = 1,6$ K. En encart, aimantation selon l'axe de facile aimantation (axe c) [Amato 1987].

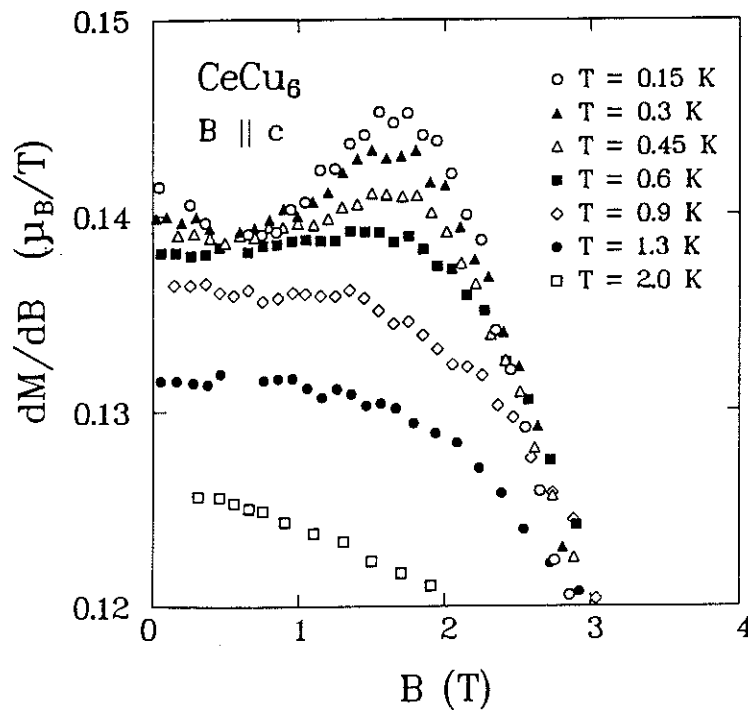


Figure IV.5 : Susceptibilité différentielle dM/dH de $CeCu_6$ à basse température [v. Löhneysen 1993].

IV.1.4. CHALEUR SPECIFIQUE

La contribution électronique à la chaleur spécifique présente deux maximums, à 2,6 et 27 K respectivement. Le premier a été attribué à l'effet Kondo du doublet fondamental avec $T_K = 3,9$ K. Le deuxième est considéré comme une anomalie Schottky du premier doublet excité avec $\Delta/k_B = 65$ K [Fujita 1985]. L'entropie, déterminée à partir des mesures de chaleur spécifique [Felten 1987], s'élève à $R \log 4$ à 70 K et à $R \log 6$ à 220 K ; on en a déduit les niveaux (0 - 60 - 100K). Le maximum à 2,6 K trouve son correspondant dans la contribution électronique de la dilatation thermique à 2 K [de Visser 1989], comme on le verra au chapitre IV.1.8.

A basse température, au dessous de 0,2 K, le terme linéaire de la chaleur spécifique γ atteint la valeur gigantesque de $1,6 \text{ J.mole}^{-1}.\text{K}^{-2}$ [Amato 1987]. Il est donc 200 fois plus élevé que celui de son analogue non-magnétique $LaCu_6$ [Fujita 1985]. Sous champ magnétique, γ décroît ($0,5 \text{ J.mole}^{-1}.\text{K}^{-2}$ à 8 T) de la même façon que la masse effective dans des mesures d'effet de Haas van Alphen [Reinders 1986, Chapman 1990]. Des maximums en C/T apparaissent pour $B > 4$ T (figure IV.6). Le rapport de Wilson χ/γ présente un maximum d'environ un facteur 1,7 à $B = 4,5$ T par rapport à sa valeur de $\sim 1,5 R_0$ à champ nul.

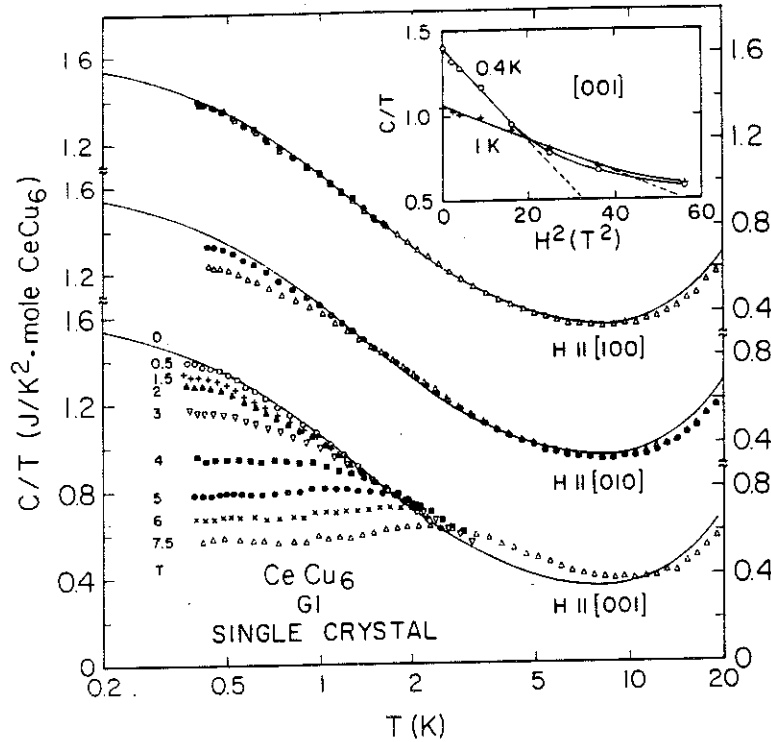


Figure IV.6 : Effet du champ magnétique sur la chaleur spécifique de CeCu_6 [Amato 1987].

IV.1.5. PROPRIETES DE TRANSPORT

IV.1.5.a. Résistivité électrique

La résistivité électrique présente un faible minimum en refroidissant à partir de 300 K et un maximum situé entre 7 et 10 K suivant l'axe mesuré. (figure IV.4) [Onuki 1984, 1985a, 1985b, Sumiyama 1985 et 1986, Amato 1988]. Ce comportement a été interprété comme de l'effet Kondo à haute température sur tous les niveaux de champ cristallin avec une température de Kondo $T_{K,eff} = (T_K \Delta_1 \Delta_2)^{1/3} = 30 \text{ K}$ [Hanzawa 1985]. La résistivité selon les trois axes diminue brusquement au-dessous de 5 K. C'est seulement à 200 mK que l'on observe un régime $\rho(T) = AT^2$ typique d'un liquide Fermi. C'est donc au-dessous de cette température de 200 mK que les quasiparticules se condensent dans un état de liquide Fermi, comme on vient de le voir par les mesures de chaleur spécifique et comme le montre également la résonance magnétique nucléaire [Onuki 1987b].

Même aux plus basses températures atteintes par des mesures de résistivité (18 mK [Sumiyama 1985]), de diffusion de neutrons (25 mK [Jacoud 1991]) et de rotation de muons (40 mK [Amato 1993]), aucune indication de supraconductivité ou d'ordre magnétique à longue portée n'a été trouvée.

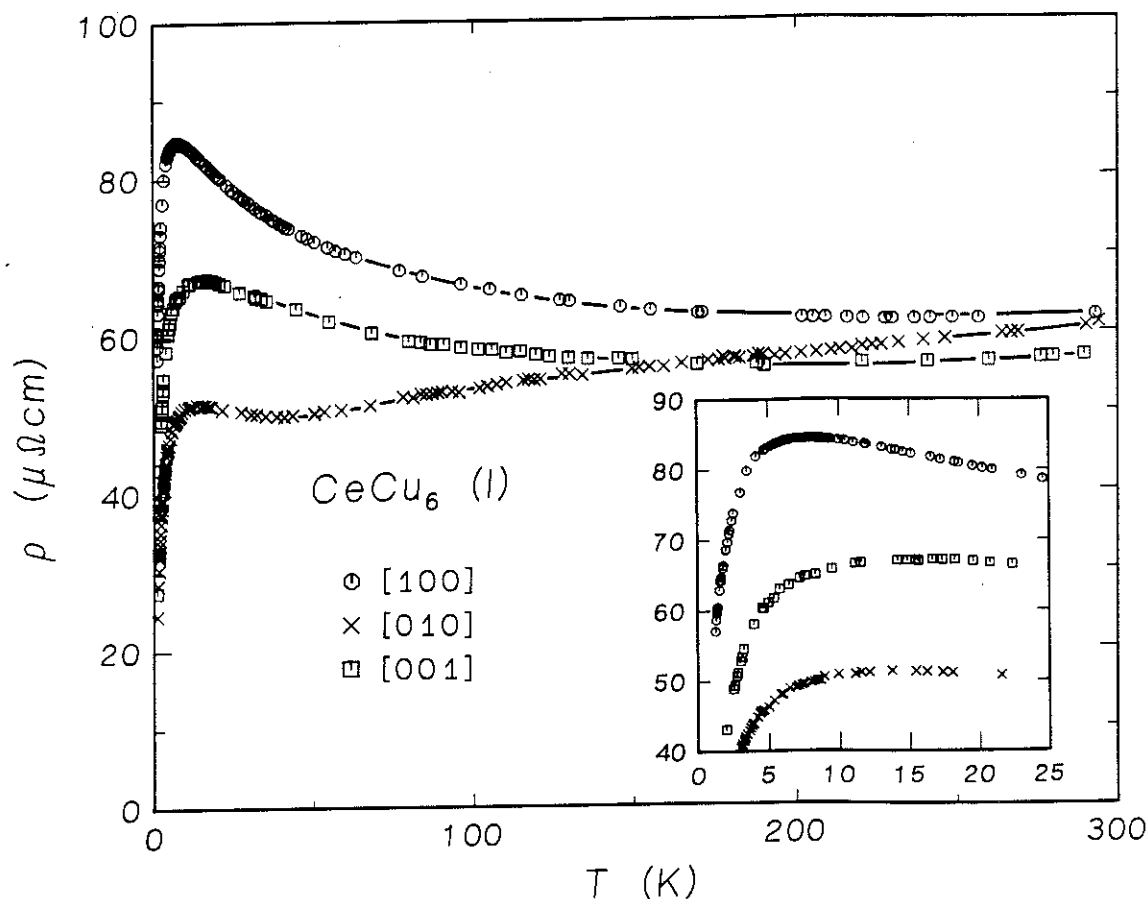


Figure IV.7 : Résistivité de CeCu_6 avec le courant selon les trois axes [Amato 1988].

IV.1.5.b. Conductivité thermique

Le nombre de Lorentz $L = \kappa\rho/T$ est supérieur à la valeur de Sommerfeld $L_0 = 2,45 \cdot 10^{-2} \text{ W}\Omega/\text{K}^2$, à des températures supérieures à 0,2 K et égal à L_0 pour $T < 0,2 \text{ K}$ [Amato 1988].

IV.1.5.c. Pouvoir thermoélectrique

Le pouvoir thermoélectrique (PTE) [Amato 1988] présente deux maximums, à 60 K et à 5 K (figure IV.4). Le dernier est plus ou moins prononcé selon l'axe cristallographique. Les deux maximums sont situés respectivement à la température du splitting de champ cristallin Δ_{cf} et à la température de Kondo T_K . On constate la forte analogie avec CeRu_2Si_2 (figure III.4), où les maximums du pouvoir thermoélectrique sont situés autour de $\Delta_{\text{cf}} = 220 \text{ K}$ et $T_K = 23 \text{ K}$.

Sous champ magnétique ($B//c$), le PTE montre des variations dramatiques pour $B < 4 \text{ T}$, avec un changement de signe entre 2 et 3 Tesla. La variation du PTE est tout à fait comparable avec celle de CeRu_2Si_2 .

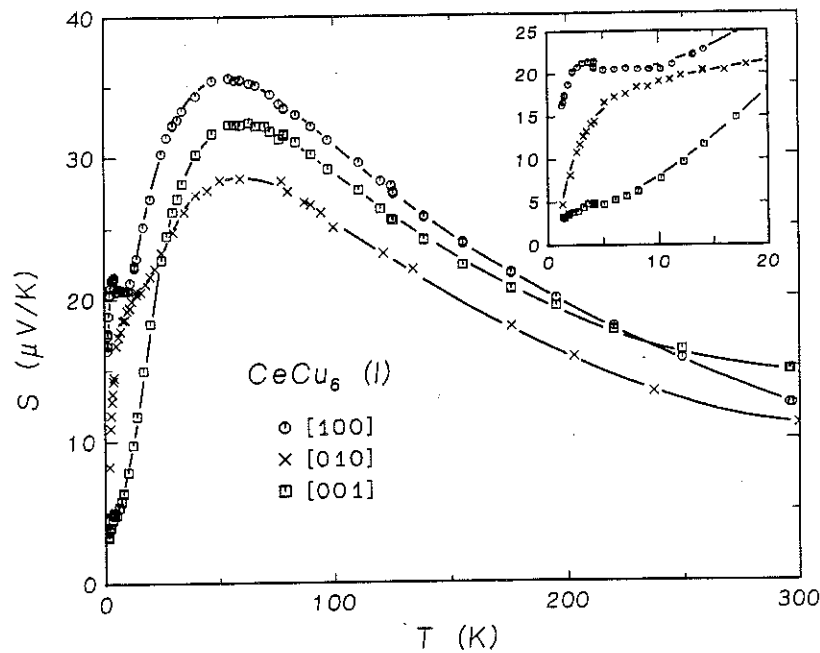


Figure IV.8 : Pouvoir thermoélectrique de CeCu₆ selon les trois axes cristallographiques [Amato 1988].

IV.1.5.d. Magnétorésistance

Une étude détaillée a été entreprise par A. Amato [Amato 1987, 1988]. On observe une magnétorésistance positive à très basse température ($T < 0,1$ K) si le champ magnétique est dirigé suivant les axes a et b et un maximum positif pour ($B // c$) (voir aussi [Onuki 1988]). A plus haute température ($T > 0,5$ K), elle devient négative suivant les trois axes, comme attendu pour des réseaux Kondo (figures IV.9.a et IV.9.b).

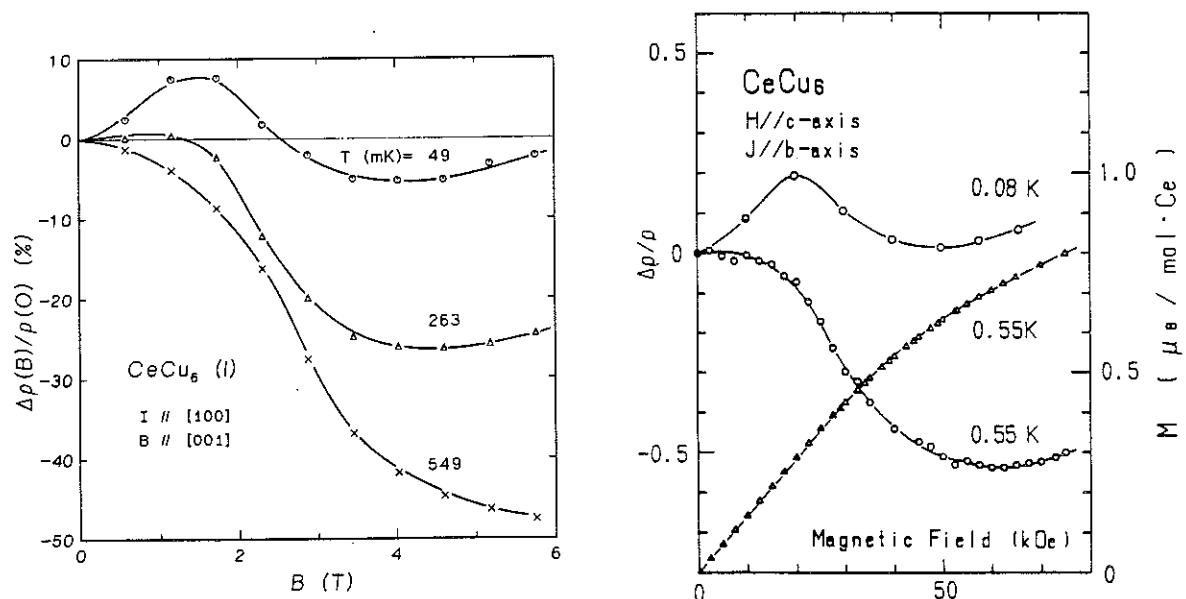


Figure IV.9 : Magnétorésistance de CeCu₆, à gauche : Amato [1987], à droite : Onuki [1988] ; cette figure montre également l'aimantation à 0,55 K.

IV.1.6. DIFFUSION DE NEUTRONS

La diffusion inélastique de neutrons révèle l'existence de deux contributions différentes :

1. Une contribution quasi-élastique indépendante du vecteur de diffusion, qui est attribuée aux fluctuations locales de type Kondo à un site. Sa largeur pic, Γ_{ss} est de 0.4 meV (figure IV.10) et mène à une température de Kondo de 5 K.

2. Une contribution intersite due à des corrélations antiferromagnétiques à courte distance. Le pic, centré autour de $\hbar\omega_{is} \sim 0,2$ meV avec une largeur $\Gamma_{is} \sim 0,2$ meV, apparaît pour un vecteur de diffusion incommensurable selon l'axe b : $Q = (0, 1 \pm 0,15, 0)$. L'axe b est donc l'axe principal de propagation des corrélations, alors que les moments magnétiques sont dirigés selon l'axe de facile aimantation c. Les corrélations intersite apparaissent au-dessous de 4 K ; la longueur de corrélation augmente brusquement au-dessous de 2 K et sature à deux distances interatomiques selon l'axe b et à une seule selon l'axe a (figure IV.11).

Si l'on applique un champ magnétique selon l'axe c, les corrélations intersite commencent à s'effondrer à $B^* = 2$ T et disparaissent définitivement à $B = 4,5$ T (figure IV.12) [Jacoud1991, Regnault 1987, 1988, Rossat-Mignod 1988].

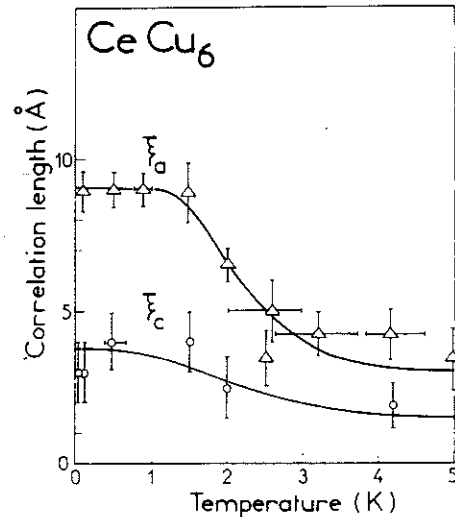
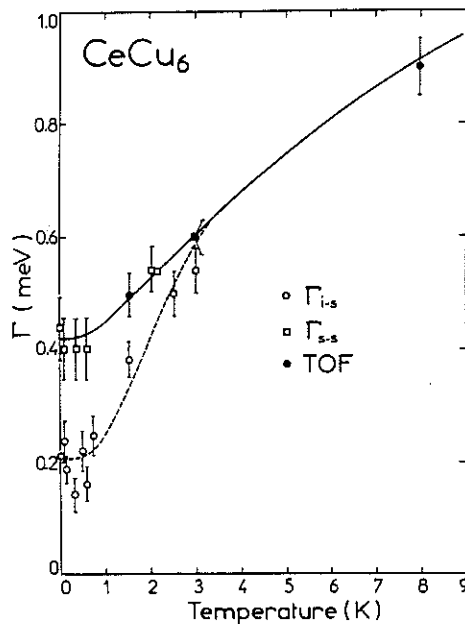


Figure IV.10 [Rossat-Mignod 1988] Largeurs en énergie de la contribution magnétique selon les axes a et c dans quasi-élastique (à un site) dans CeCu_6 , CeCu_6 (notation monoclinique). Conversion : $a_{\text{mono.}} = b_{\text{ortho.}}$, $b_{\text{mono.}} = c_{\text{ortho.}}$, $c_{\text{mono.}} = a_{\text{ortho.}}$ [Rossat-Mignod 1988].
Figure IV.11 : Longueur des corrélations magnétiques selon les axes a et c dans CeCu_6 , CeCu_6 (notation monoclinique). Conversion : $a_{\text{mono.}} = b_{\text{ortho.}}$, $b_{\text{mono.}} = c_{\text{ortho.}}$, $c_{\text{mono.}} = a_{\text{ortho.}}$ [Rossat-Mignod 1988].
 mesures de temps de vol [Walter 1986].

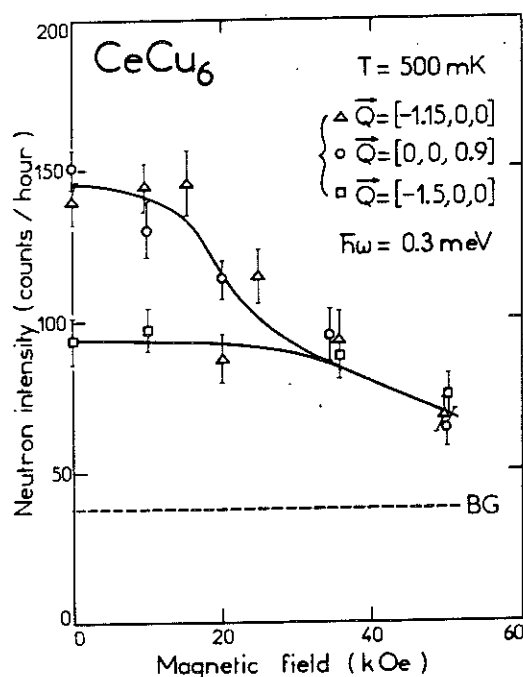


Figure IV.12 : Intensités magnétiques de la contribution à un site ($\square$) et inter-site ($\circ$), (Δ) en fonction d'un champ appliqué selon l'axe facile dans CeCu₆ (Notation monoclinique). On constate une forte suppression des corrélations intersite à 2 T et une réduction de la contribution à un site à 4 T [Rossat-Mignod 1988].

IV.1.7. EFFETS D'ALLIAGE

CeCu₆ est proche d'une instabilité magnétique. On peut observer un état fondamental ordonné magnétiquement dans les systèmes CeCu_{6-x}Au_x [Germann 1988, Schlager 1993, Paschke 1994] et CeCu_{6-y}Ag_y [Gangopadhyay 1988, Germann 1988] ($T_N = 0,48$ K pour $x = 0,3$, $T_N = 0,58$ K pour $y = 0,6$). Le composé avec $x = 0,1$ ($C/T \approx 2,5$ J.mole⁻¹.K⁻²) se situe directement sur l'instabilité magnétique et ne se comporte pas comme un liquide de Fermi à basse température [v. Löhneysen 1994]. Dans ces systèmes, les vecteurs de propagation qui caractérisent l'état ordonné ont, à ce jour, été trouvés différents de ceux caractérisant les corrélations antiferromagnétiques dans CeCu₆.

IV.1.8. DILATATION THERMIQUE

La première mesure de dilatation thermique a été effectuée entre 4,2 et 200 K au moyen de jauges de contrainte [Oomi 1987] (figures IV.13.a,b,c). Le coefficient de dilatation thermique α s'est avéré extrêmement anisotrope ; les changements les plus importants se situent à $T = 30$ K. Oomi et coll. [Oomi 1987] ont éliminé la contribution du réseau en mesurant la dilatation thermique de LaCu₆, également anisotrope.

Dans CeCu₆, après soustraction de la contribution de LaCu₆, α est le plus grand selon l'axe b (figure IV.13.c), axe de propagation des corrélations antiferromagnétiques. A 30 K, α_b passe par un maximum de l'ordre de 10^{-5} K⁻¹,

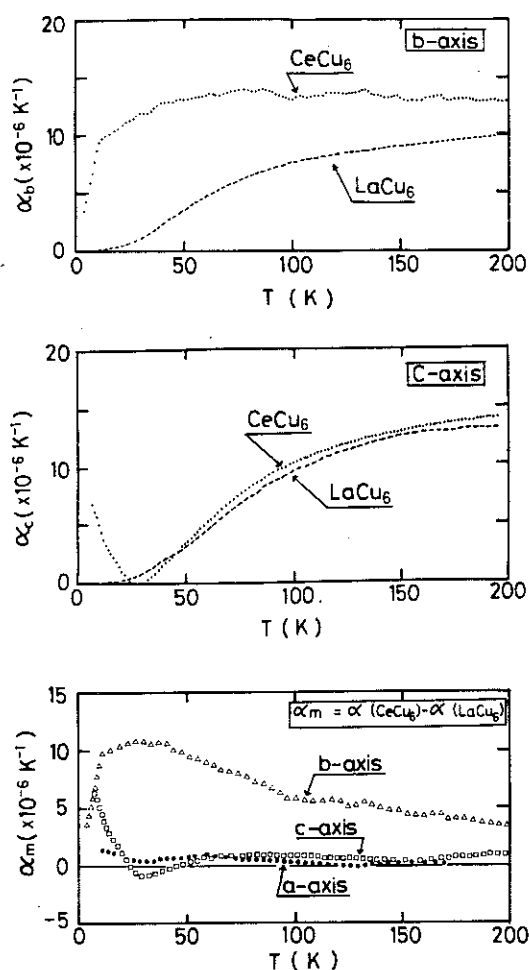


Figure IV.13.a, b, c : Dilatation thermique de CeCu₆ et de LaCu₆ selon les axes b et c et contribution électronique selon les trois axes (CeCu₆ - LaCu₆) [Oomi 1987].

puis diminue de moitié en chauffant à 200 K. Le coefficient de dilatation thermique selon les axes a et c, corrigé de la contribution du réseau, est inférieur au précédent de presque un ordre de grandeur entre 30 et 200 K et pratiquement indépendant de la température. Au-dessous de 30 K, α_c croît rapidement jusqu'à un maximum de 10^{-5} K^{-1} à 2 K, qui est attribué à l'effet Kondo du doublet fondamental. Oomi et coll. ont supposé que le splitting des niveaux de champ cristallin se manifeste principalement selon l'axe b. Leur analyse conduit au schéma (0 - 35 - 104 K). Le grand désaccord sur la valeur du premier niveau excité avec les autres résultats s'explique par le fait que les niveaux de champ cristallin sont très proches et peuvent avoir des paramètres de Grüneisen très différents. Pour ce genre de calculs, l'effet volumique doit être pris en compte (figure IV.14b) [de Visser 1989].

A. de Visser et A. Lacerda ont effectué ensuite des mesures plus précises

de la dilatation thermique de CeCu₆, tout d'abord de 300 à 1,5 K [de Visser 1989, Lacerda 1990] (figure IV.14.a). La contribution électronique du paramètre de Grüneisen, Γ_{eff} , présente une valeur constante de 13 entre 12 K et 100 K, qui est attribuée à l'effet du champ cristallin (figure IV.15). Les mesures au-dessous de 1,5 K (figure IV.16.a) montrent que Γ_{eff} augmente continûment jusqu'à très basse température (figure IV.16.b) [de Visser 1990, Lacerda 1990].

Puis Lacerda [1990, 1992] a entrepris des expériences sous champ magnétique (orienté selon l'axe facile c). Il a mesuré α_c , entre 80 et 500 mK (figure IV.17). On voit que α_c devient négatif entre 3 et 5 T. Cela ressemble au changement de signe de α_v de CeRu₂Si₂ à la transition pseudométamagnétique. Toutefois, dans CeCu₆, le changement de signe de α_c ne se produit pas au champ $B^* = 2 \text{ T}$, mais vers 4 T. Lacerda a également mesuré λ_c , pour $B // c$.

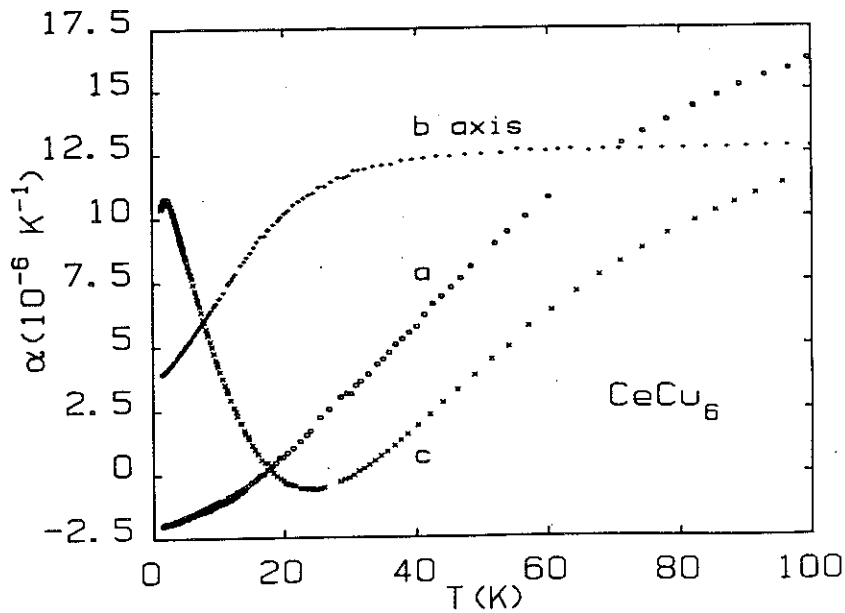


Figure IV.14.a :
Coefficient linéaire de la dilatation thermique de CeCu₆
[de Visser 1989, Lacerda 1990].

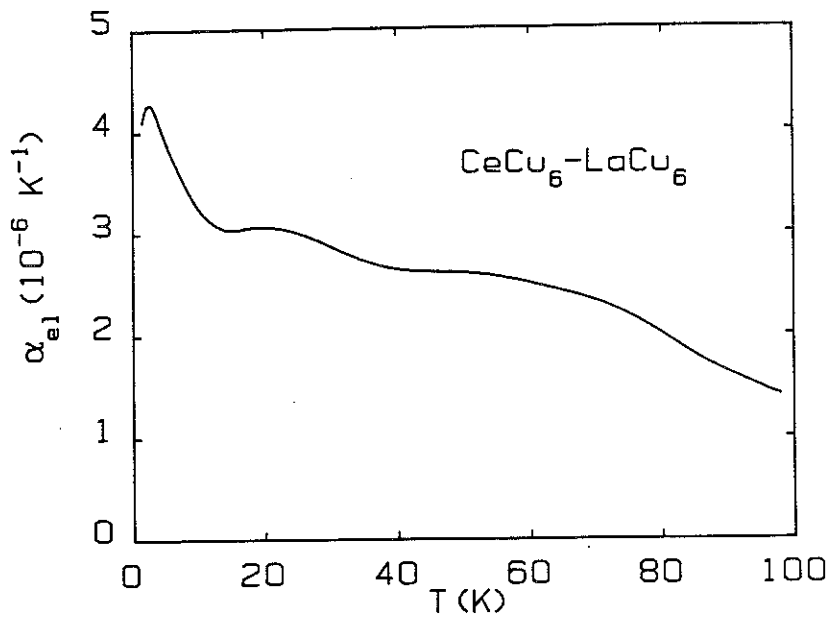


Figure IV.14.b :
Contribution électronique α_{el} à la dilatation thermique volumique de CeCu₆
[de Visser 1989, Lacerda 1990].

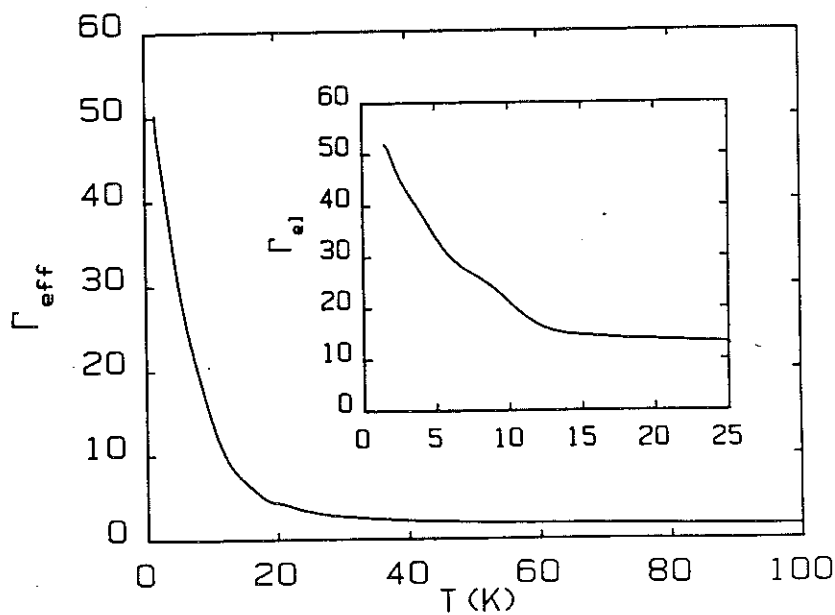


Figure IV.15 :
Variation du paramètre de Grüneisen de CeCu₆ en fonction de la température [de Visser 1989, Lacerda 1990].

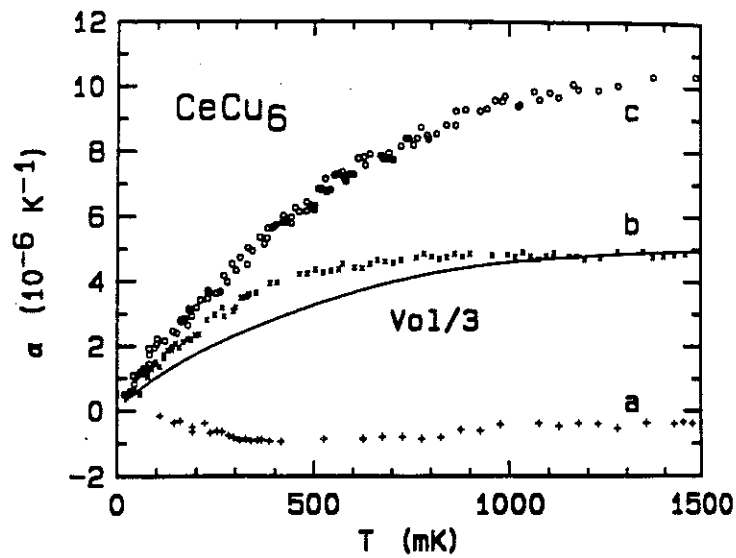


Figure IV.16.a : Variation à très basse température des coefficients de dilatation thermique de CeCu_6 suivant les trois axes cristallographiques. La ligne continue représente $\alpha_v/3$ [de Visser 1990, Lacerda 1990].

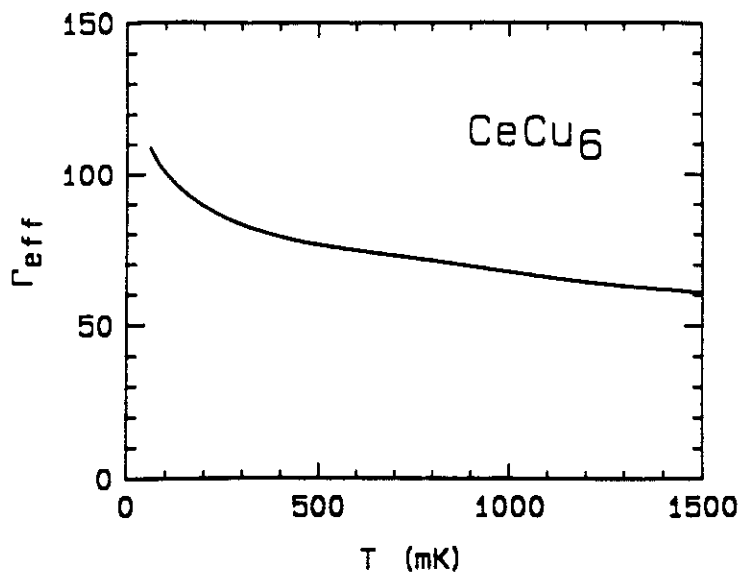


Figure IV.16.b : Paramètre de Grüneisen de CeCu_6 , à très basse température [de Visser 1990, Lacerda 1990].

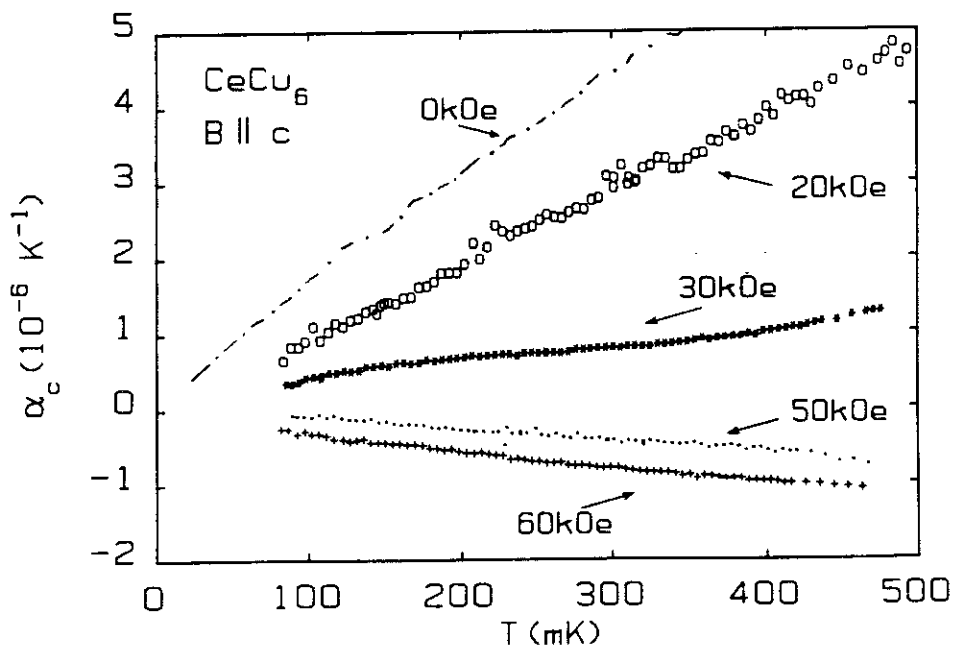


Figure IV.17 : Variation de α_c de CeCu_6 , sous champ magnétique (orienté selon l'axe facile c) [Lacerda 1990, 1992].

IV.2. ETUDE DE LA DILATATION THERMIQUE ET DE LA MAGNETOSTRICTION DE CeCu₆ A TRES BASSE TEMPERATURE

Nous avons effectué une étude complète de la dilatation thermique et de la magnétostriction de CeCu₆, selon les trois orientations cristallographiques, sous champ magnétique dirigé selon l'axe de facile aimantation, *c* (sachant qu'un champ dirigé selon les autres axes ne produit que peu ou pas d'effet), étude qui constitue la suite du travail commencé par A. Lacerda [1990, 1992] (et rappelé au chapitre précédent). Après avoir décrit nos nouveaux résultats, nous ajouterons des mesures magnétiques à très basse température, effectuées ensuite par C. Paulsen, puis nous discuterons l'ensemble de ces propriétés.

Le cristal (dont, auparavant l'aimantation avait été mesurée au SNCI à 1,6 et 4,2 K [Amato 1987]) était le même que celui mesuré par A. Lacerda. Toutefois, une tranche fine de ce cristal ayant ensuite été prélevée par J.P. Brison afin de mesurer sa chaleur spécifique, nous avons rétabli le parallélisme de la face découpée avec celle opposée.

IV.2.1. DILATATION THERMIQUE

Les variations des coefficients de dilatation thermique linéaire selon toutes les directions cristallographiques entre 0,3 et 10 K, mesurés dans un cryostat ³He à Amsterdam, sous des champs magnétiques appliqués selon l'axe *c* jusqu'à 8 T, sont représentées sur la figure IV.18.a. Dans cette gamme de température, la contribution du réseau, obtenue par le coefficient de dilatation thermique de LaCu₆, est comparable au coefficient du cuivre, et reste de l'ordre de 10⁻⁷ [Oomi 1987]. On suppose donc, qu'ici, on mesure directement la contribution électronique α_{el} , et qu'aucune correction aux résultats ne s'impose.

L'effet le plus prononcé est observé selon l'axe *c* ; α_c passe par un maximum de l'ordre de 10⁻⁵ K⁻¹ à $T_{m,c} = 1,8$ K. Sous champ magnétique, ce maximum se déplace vers des températures plus élevées et sa valeur est fortement réduite. Dans un champ de 8 T, α_c est réduit d'un facteur 20 par rapport à sa valeur à $B = 0$, et $T_{m,c} = 7$ K. La variation de $T_{m,c}$ en fonction de B est tracée sur la figure IV.19. Elle suit approximativement la relation :

$$T_{m,c}(B) = \sqrt{T_{m,c}^2(0) + aB^2}. \quad (IV.1)$$

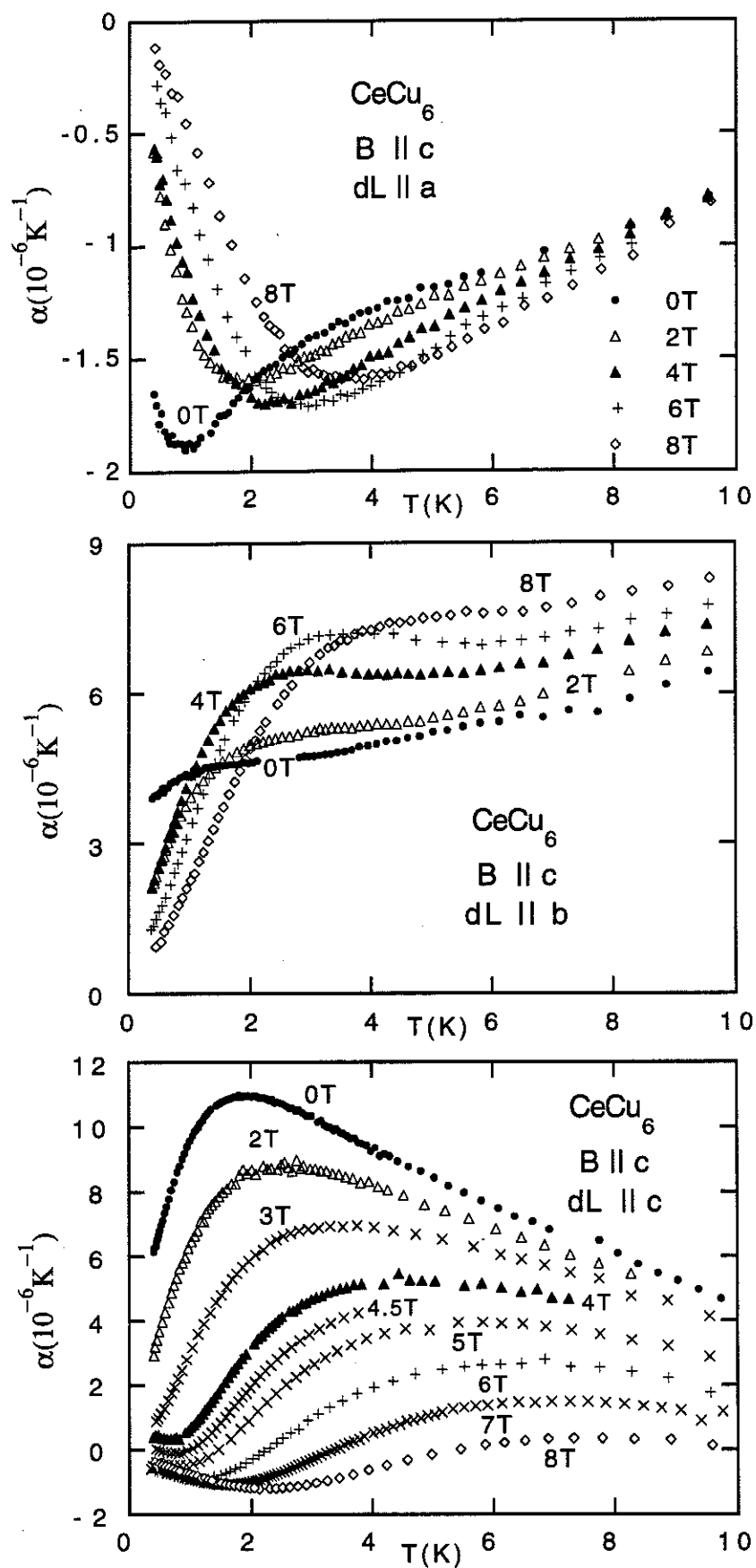


Figure IV.18 : Dilatation thermique de CeCu_6 , selon les l'axes a , b et c (de haut en bas).

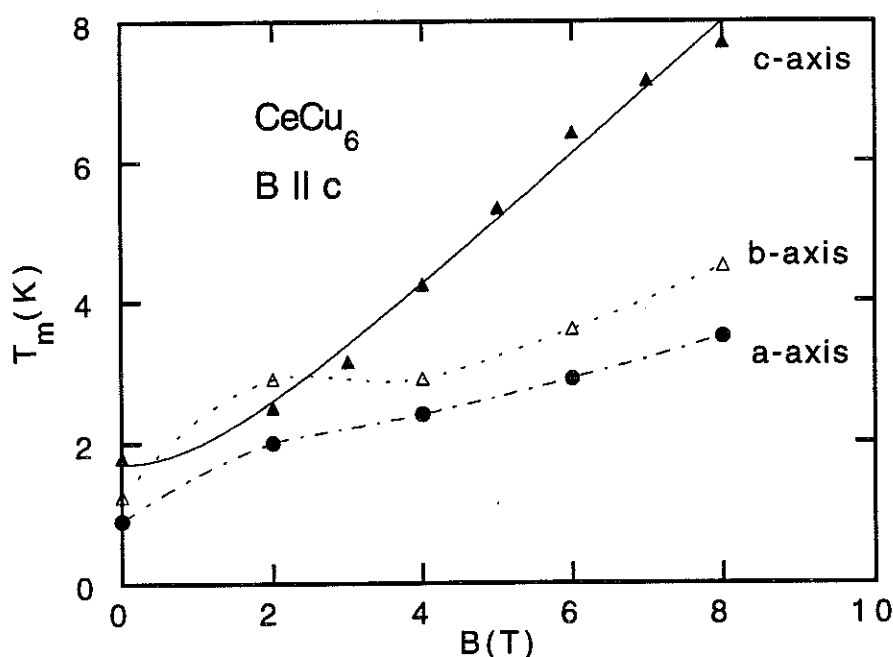


Figure IV.19 : Variation sous champ magnétique ($B//c$) des maximums de dilatation thermique suivant les axes b et c et du minimum suivant l'axe b . Les maximums de α_c suivent la relation $T_{m,c}(B) = (T_m^2(0) + aB^2)^{1/2}$, avec $T_m(0) = 1,75$ et $a = 0,96$.

Les résultats sont en accord avec ceux obtenus par A. Lacerda au CRTBT dans un cryostat à dilution (figure IV.17). On voit que pour des champs supérieurs à 3 T, un minimum apparaît, qui se déplace vers des températures plus hautes sous champ magnétique. Le changement de signe de α_c paraît se produire entre 4 et 4,5 T.

La dilatation thermique selon l'axe b , α_b , se comporte relativement indépendamment de α_c et montre des effets moins spectaculaires sous champ. α_b est toujours positif, de l'ordre de $5 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$, avec un faible maximum, dont la température, $T_{m,b}$, est également portée en fonction de B sur la figure IV.19. Sauf à bas champ ($B \leq 2 \text{ T}$), cette dernière ne coïncide pas avec la variation de $T_{m,c}$: à partir de 4 T, $T_{m,b}$ est approximativement égale à $T_{m,c}/2$. Par contre, la valeur maximale de α_b augmente légèrement sous champ magnétique, d'un facteur 1,5 à 8 T.

α_a est toujours négatif, de l'ordre de $1,5 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$, et présente des minimums qui coïncident approximativement avec les maximums de α_b . Enfin, α_a ne dépend que faiblement du champ magnétique au-dessus du minimum, mais est fortement réduit en valeur absolue au-dessous.

La variation du coefficient de la dilatation thermique volumique est représentée sur la figure IV.20. A champ nul, elle est dominée par le maximum de α_c . Sous un champ de 8 T, ce maximum a pratiquement disparu, et α_v est dominé cette fois par α_b , les deux coefficients α_c et α_a étant devenus environ cinq fois plus faibles que α_b en valeur absolue. La figure IV.21 où les quatre coefficients sont représentés à 0 T, 4 T et 8 T, montre clairement cette évolution.

Le maximum de α_v , dû à celui de α_c , est visible jusqu'à 4 T. En raison de l'existence des minimums de α_c et α_a , la courbure $d^2\alpha_v/dH^2$ change de négative au-dessous de 4 T à positive au-dessus. Ce changement de courbure, qui implique un point d'inflexion dans la variation de α_v , donc dans celle de C , trouve son équivalent dans les variations de C/T en fonction de T sous différents champs magnétiques, où l'on voit que des maximums apparaissent aux mêmes températures pour $B > 5$ T [Amato 1987] (figure IV.6).

Les variations du paramètre de Grüneisen $\Gamma_{\text{eff}} = \kappa\alpha_v/CV_{\text{mol}}$ au-dessous de 10 K sous différents champs magnétiques sont représentées sur la figure IV.22. Les valeurs de chaleur spécifique utilisées pour ces calculs sont celles de la figure IV.6. La chaleur spécifique à 8 T a été obtenue par extrapolation car la mesure s'arrête à 7,5 T. La compressibilité isotherme peut être trouvée dans la littérature [Shibata 1986] ; elle est extrêmement anisotrope : $\kappa_a = 0,14 \text{ Mbar}^{-1}$, $\kappa_b = 0,66 \text{ Mbar}^{-1}$, $\kappa_c = 0,41 \text{ Mbar}^{-1}$ et $\kappa_v = 1,21 \text{ Mbar}^{-1}$; quant au volume molaire, il est égal à $6,33 \cdot 10^{-5} \text{ m}^3/\text{mole}$.

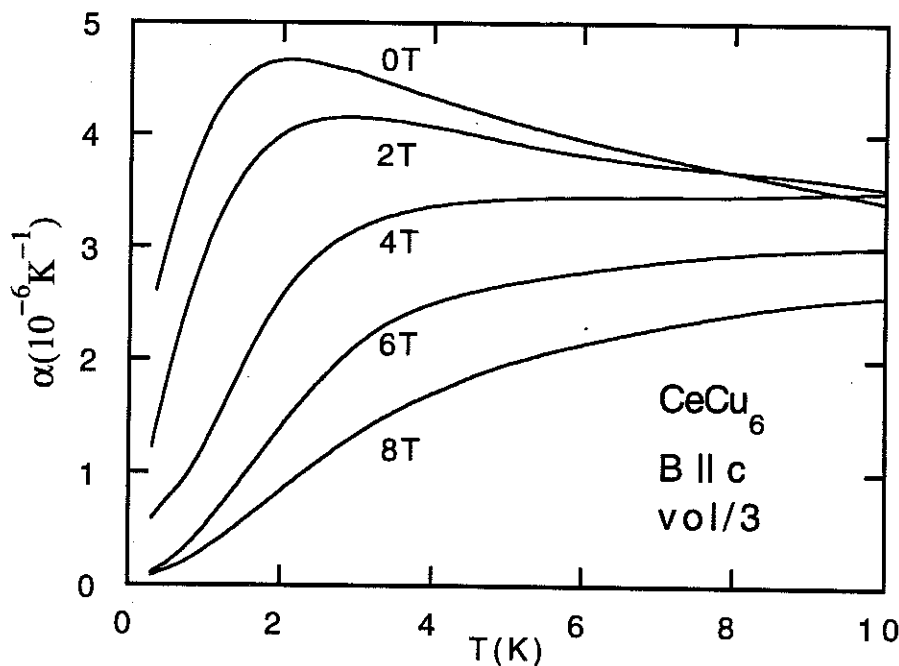


Figure IV.20 : Dilatation thermique volumique de CeCu_6 sous champ magnétique.

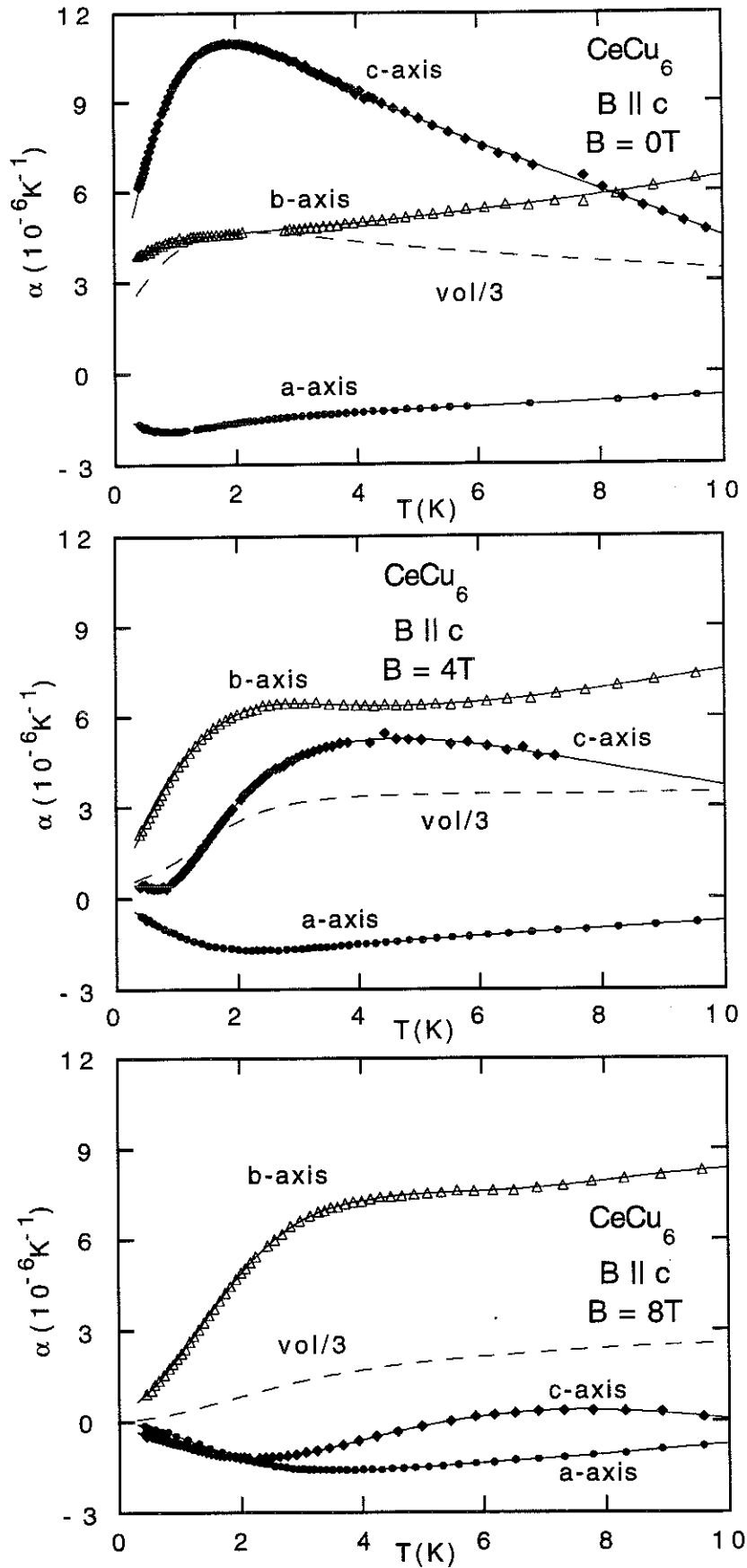


Figure IV.21 : Coefficient de dilatation thermique de CeCu_6 selon les trois axes cristallographiques, à 0 T (haut), 4 T (milieu) et 8 T (bas). La dilatation thermique suivant l'axe c prédomine à champ nul, alors qu'à 8 T elle a pratiquement disparu.

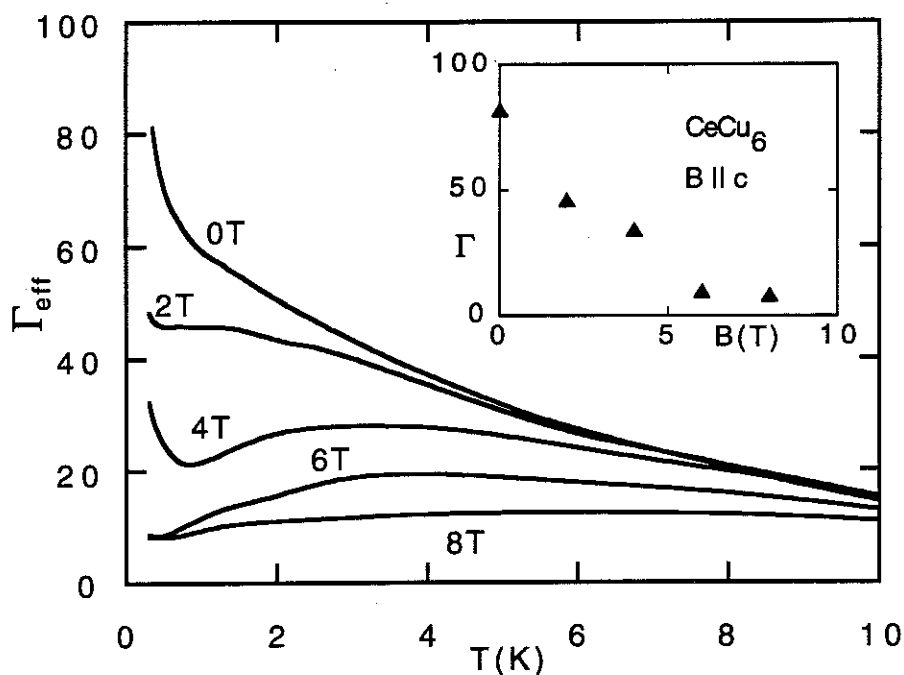


Figure IV.22 : Paramètre de Grüneisen effectif de CeCu_6 sous champ magnétique. En encart, évolution sous champ de Γ_{eff} dans la limite $T \rightarrow 0$.

A champ nul, Γ_{eff} augmente jusqu'à 80 en refroidissant jusqu'à 400 mK, et ce chiffre n'est pas sa valeur limite (cf. figure IV.16.b). Cependant, la chaleur spécifique et le coefficient de dilatation thermique suivent une loi linéaire : $C = \gamma T$ et $\alpha_v = aT$ au dessous de 200 mK, donc la valeur de Γ_{eff} devrait se saturer au-dessous de cette température. Ce point sera discuté plus loin. La variation de Γ_{eff} à 400 mK en fonction du champ magnétique est représentée en encart sur la figure IV.22.

On voit qu'un champ magnétique diminue la valeur du paramètre de Grüneisen, et sa forte dépendance en température. A 8 T, ce paramètre est réduit d'un facteur 10, à une valeur indépendante de la température, $\Gamma = 9$. Les variations de Γ à très basse température, sont davantage gouvernées par celles de la dilatation que par celles de la chaleur spécifique, puisque cette dernière n'est réduite que d'un facteur 4 entre 0 et 8 T. Mais la figure IV.22 montre aussi des détails dans la variation thermique de Γ ; cela est bien visible dans la courbe à 4 T. Dans la limite $T \rightarrow 0$, où $\alpha = aT$ et $C = \gamma T$, un changement brusque entre deux régimes semble apparaître entre 4 et 6 T. En fait, juste au-dessus de 4 T, la dilatation thermique selon l'axe c change de signe et celle selon l'axe b devient dominante.

On a vu que dans le système CeRu₂Si₂, α_v présente des maximums, puis des minimums dans toute la gamme de champ magnétique, dont la température peut être assimilée à une température caractéristique. Trouver une telle température caractéristique est plus difficile dans le cas de CeCu₆, où l'évolution de T_m avec le champ magnétique est différente suivant l'axe c et les axes a et b .

Dans une première tentative, on pourra choisir comme caractéristique $T_{m,c}$, la température du maximum selon l'axe facile c . La valeur du coefficient de dilatation à $T_{m,c}$, selon toutes les directions cristallographiques, est reportée sur la figure IV.23. Le coefficient α_c garde la même valeur jusqu'à 4 T. Pour des champs plus élevés, $\alpha_c(T_{m,c})$ décroît. La valeur de α_b à $T_{m,c}$ augmente sous champ et domine à partir de 4 T, cependant que α_a varie comme $-\alpha_b/5$. Enfin, en volume, $\alpha_v(T_{m,c})$ augmente légèrement sous champ.

Une autre possibilité d'estimer la température caractéristique T_m est de supposer que le produit γT_m ne varie pas sous champ, et d'obtenir ainsi T_m à partir de γ . En effet, ce produit est invariant sous pression [Thompson 1989] et exprime la loi d'échelle à un paramètre de Grüneisen ; il semble constituer une moyenne entre les T_m uniaxiales. Bien qu'une similitude entre effet de pression et de champ magnétique ait été constatée dans des expériences de chaleur spécifique [Amato 1987], la forte variation de Γ_{eff} sous champ (figure IV.22) jette un doute sur cette loi d'échelle. Les valeurs des différents coefficients de dilatation pour cette valeur normalisée de T_m , sont reportées sur la figure IV.24. A l'exception des valeurs à $B = 0$, la dilatation selon tous les axes semble obéir à une loi linéaire en B . L'extrapolation de α_c à $B = 0$ donne une valeur proche de celle de α_v , alors que selon les axes α_a et α_b s'extrapolent vers zéro. Cette tendance était déjà visible sur le tracé en fonction de $T_{m,c}$, mais moins prononcée. Ici, on voit qu'un changement de régime semble s'opérer à 2 T.

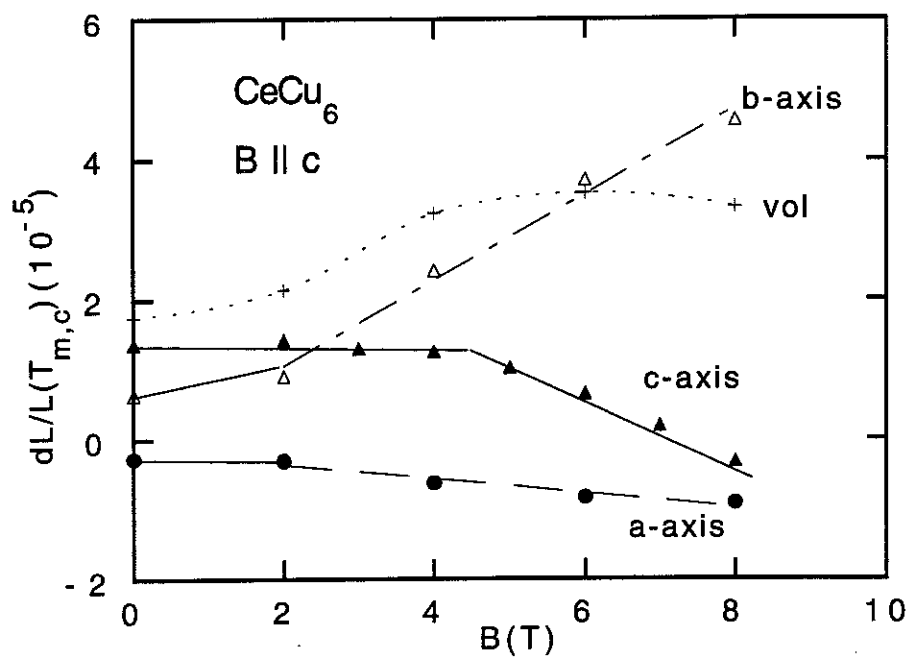


Figure IV.23 : Dilatation thermique de CeCu_6 à la température caractéristique $T_m = T_{m,c}$ (voir texte).

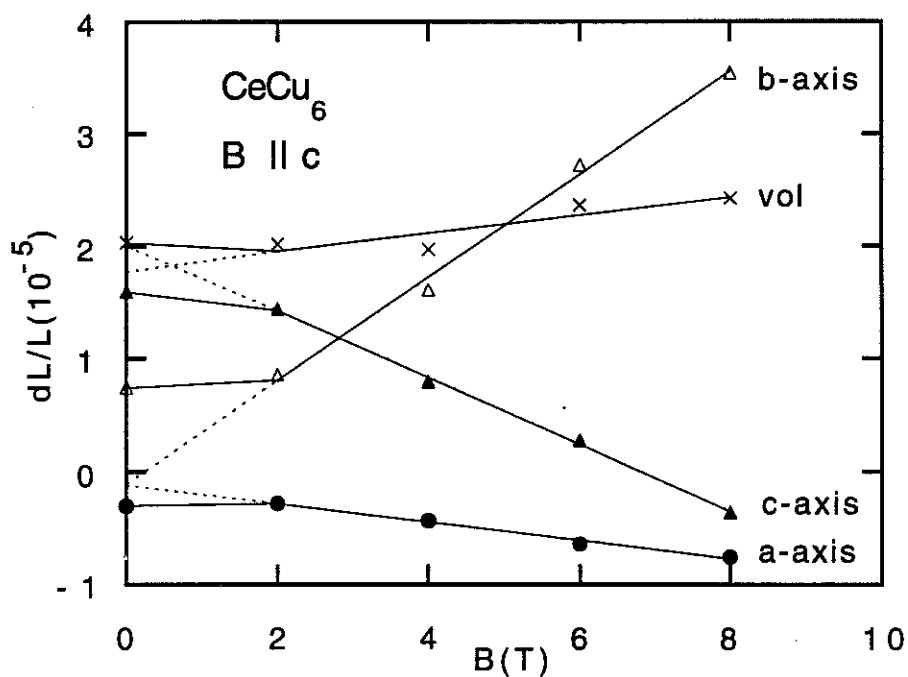


Figure IV.24 : Dilatation thermique de CeCu_6 à la température caractéristique obtenue en supposant $\gamma T_m = \text{const.}$ (voir texte).

IV.2.2. MAGNETOSTRICTION A TRES BASSE TEMPERATURE

La magnétostriction, $\lambda = dL/L$ a été mesurée selon les trois axes entre 0,1 et 4,2 K et jusqu'à des champs de 10 T orientés selon l'axe c.

La magnétostriction selon l'axe a, λ_a , représentée sur la figure IV.25, est la plus faible dans le cristal ; sa dérivée $\lambda'_a = L^{-1}dL/dB$ est tracée sur la figure IV.26. Dans 6 T, λ_a vaut moins de 10^{-6} . A très basse température, on peut distinguer dans sa variation deux contributions différentes : un minimum vers 2,4 T et un maximum vers 4,5 T. Le minimum est d'autant plus prononcé que la température est basse ; il disparaît complètement à 1,6 K. Le maximum à 4,5 T peut être observé jusqu'à 4,2 K.

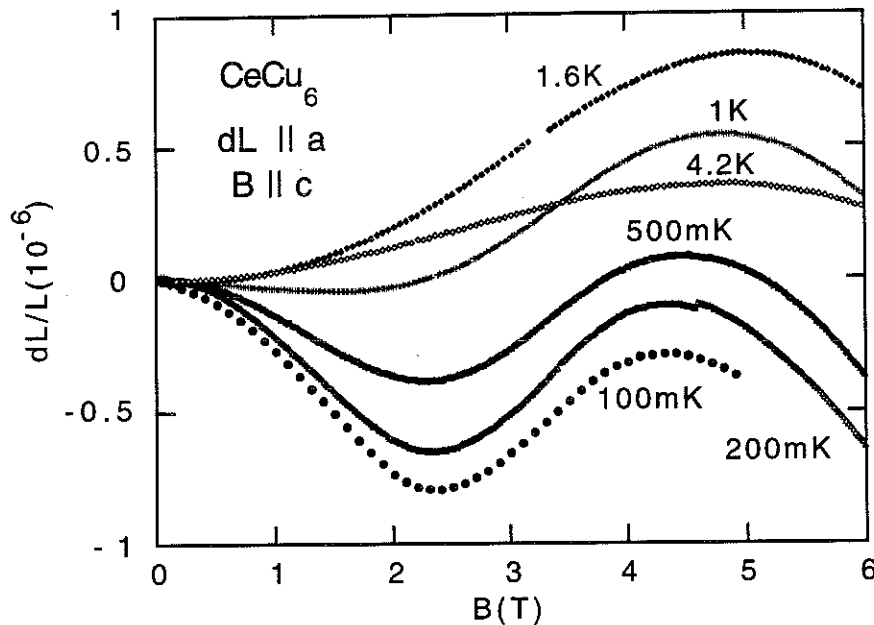


Figure IV.25 :
Magnétostriction de CeCu₆ suivant l'axe a, pour B // c.

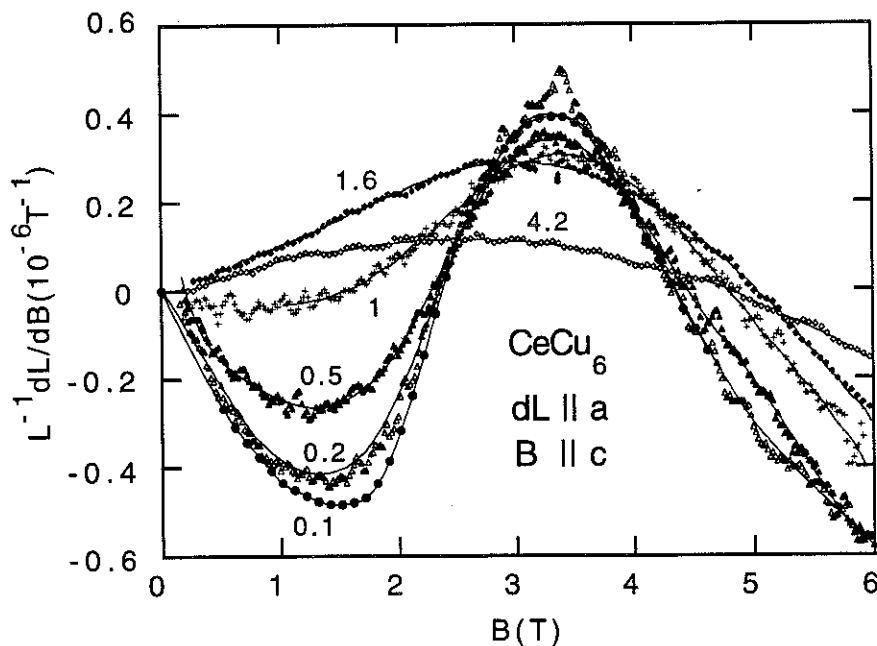


Figure IV.26 :
Magnétostriction différentielle, λ'_a , de CeCu₆ suivant l'axe a (dérivées des courbes de la figure IV.25 ci-dessus).

Selon l'axe b , (figures IV.27 et IV.28) la magnétostriction est toujours négative. A 8 T, λ_b vaut $-2,5 \cdot 10^{-5}$. A très basse température, deux anomalies peuvent être observées, une chute plus rapide vers 2 T et un point d'inflexion vers 4 T.

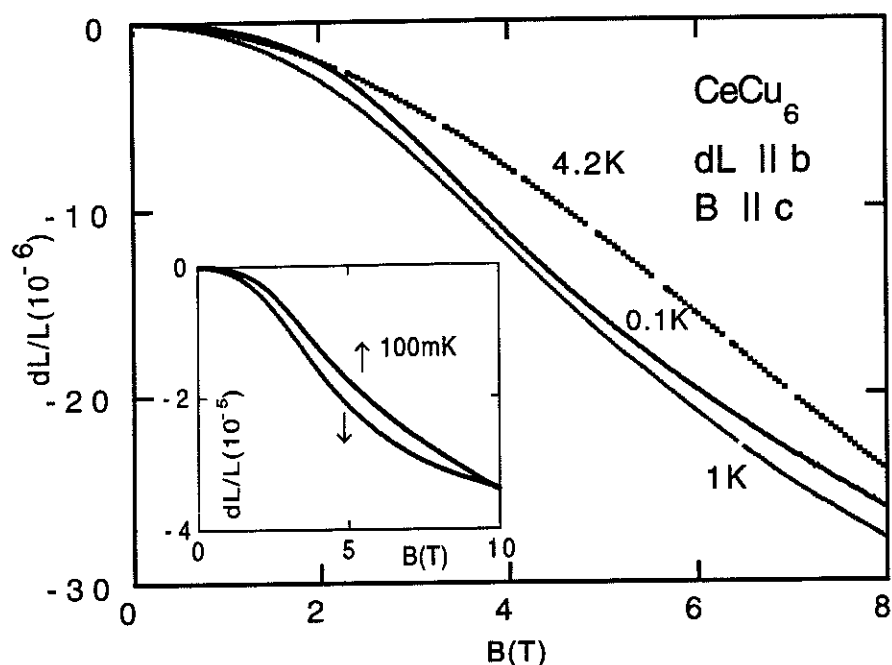


Figure IV.27 : Magnétostriction de CeCu_6 suivant l'axe b , pour $B \parallel c$. En encart, l'hystérésis à très basse température.

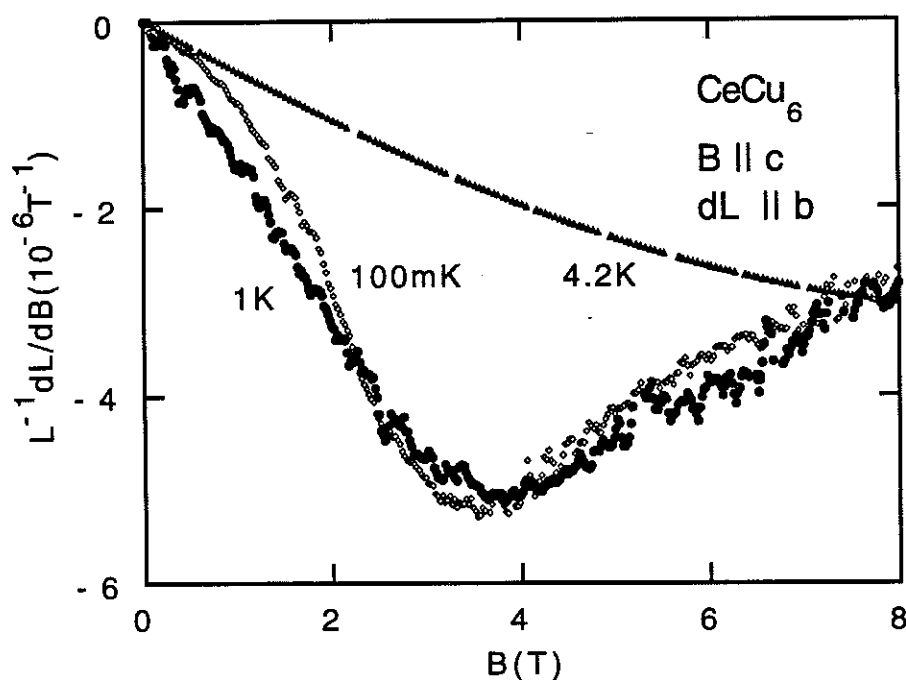


Figure IV.28 : Dérivée de la magnétostriction de CeCu_6 suivant l'axe b .

En changeant la direction de balayage du champ magnétique, une hystérésis apparaît (encart de la figure IV.27). Dans cette hystérésis, les points de départ et d'arrivée à champ nul sont toujours identiques, indépendamment de la valeur du champ auquel on a changé la direction de balayage ; aucun traînage n'apparaît au moment de l'arrêt du balayage, avant un changement de sens de celui-ci. Simplement, l'hystérésis ne peut pas être détectée facilement pour des champs inférieurs à 2 T.

Cette hystérésis, qui n'a pas de rémanence, est donc différente de la plupart des autres effets d'hystérésis, dans lesquels seule le point de changement du sens de balayage reste le même, mais où le point d'arrivée diffère à cause d'effets d'inélasticité, d'énergie d'activation ou de variation de température. Il n'y a aucune évidence pour une transition de phase de premier ordre, liée aux anomalies à 2 et 4,5 T.

Un thermomètre collé sur l'échantillon a montré que la température s'abaissait de quelque dizaines de mK en descendant le champ magnétique. Ce changement de température pouvait provenir principalement de la forte réduction de la chaleur spécifique sous champ. Un fort effet magnétocalorique a pu être observé entre 2 et 3 T, où la diminution de γ sous champ est la plus rapide. Par contre le refroidissement, qui était apparu indépendant de la valeur du champ, pourrait aussi résulter d'un effet de désaimantation nucléaire des noyaux de Cu. Toutefois, cette hystérésis ne s'explique pas par un effet de température. Si on arrêta la descente du champ, la température remontait alors que le signal de la cellule restait stable. Dans nos expériences, la différence de valeur de λ pour un champ donné entre montée et descente du champ pouvait atteindre 5.10^{-6} . Nos données sur la dilatation thermique nous montrent qu'une telle différence aurait impliqué des changements de température de l'ordre de 1 K, au lieu des quelques dizaines de 10 mK observées.

Pour nous assurer qu'il n'y avait pas d'effets extrinsèques, nous avons répété l'expérience après avoir sorti l'échantillon de la cellule puis l'avoir remplacé, et l'effet est demeuré inchangé. L'hystérésis a été observée seulement selon cette direction. (Une hystérésis que nous qualifierons de "normale" a pu être observée selon l'axe a à très basses températures, mais elle peut alors être attribuée à un défaut de thermalisation du cristal).

Cet effet d'hystérésis selon l'axe b semble donc être intrinsèque à CeCu₆. Une explication serait qu'il soit en rapport avec la transition orthorhombique-monoclinique qui se produit à 220 K. Dans cette transition l'angle entre les axes a et b varie de 1,5°.

La magnétostriction selon l'axe c (figures IV.29 et IV.30) est toujours positive et de valeur élevée : $\lambda_c = 10^{-4}$ à 8 T. Ici aussi, deux anomalies, à 2 T et à 4,5 T, peuvent être détectées. A 2 T, un genou devient visible à basse température dans $\lambda_c' = 1/\lambda(d\lambda/dB)$ et un faible maximum apparaît à 4,5 T ; tous deux dépendent de la température de la même façon que les anomalies dans les autres directions (figure IV.30). Les courbes de cette figure sont en accord avec les résultats de A. Lacerda.

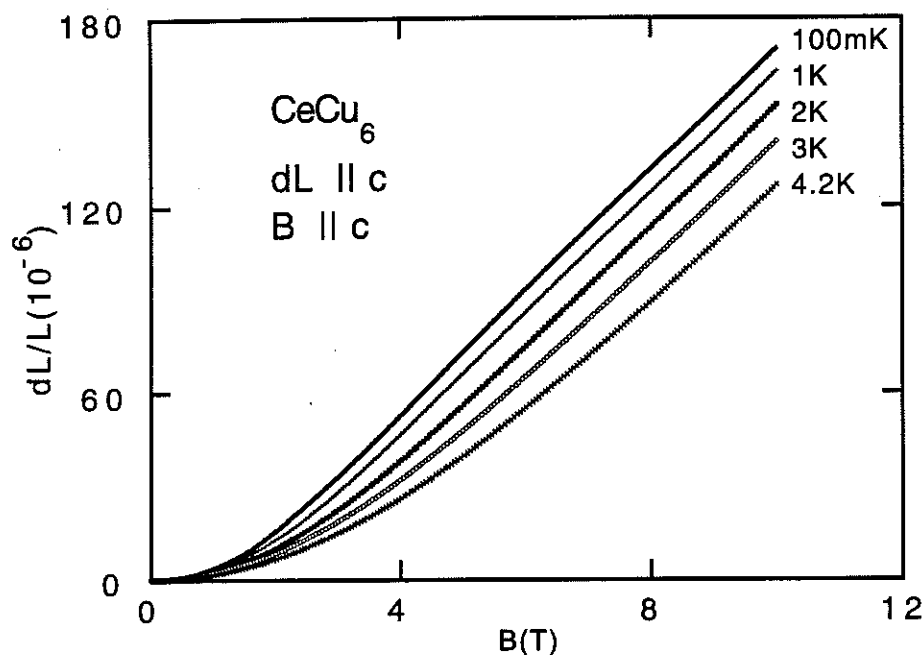


Figure IV.29 : Magnétostriction de CeCu_6 suivant l'axe c , pour $B \parallel c$.

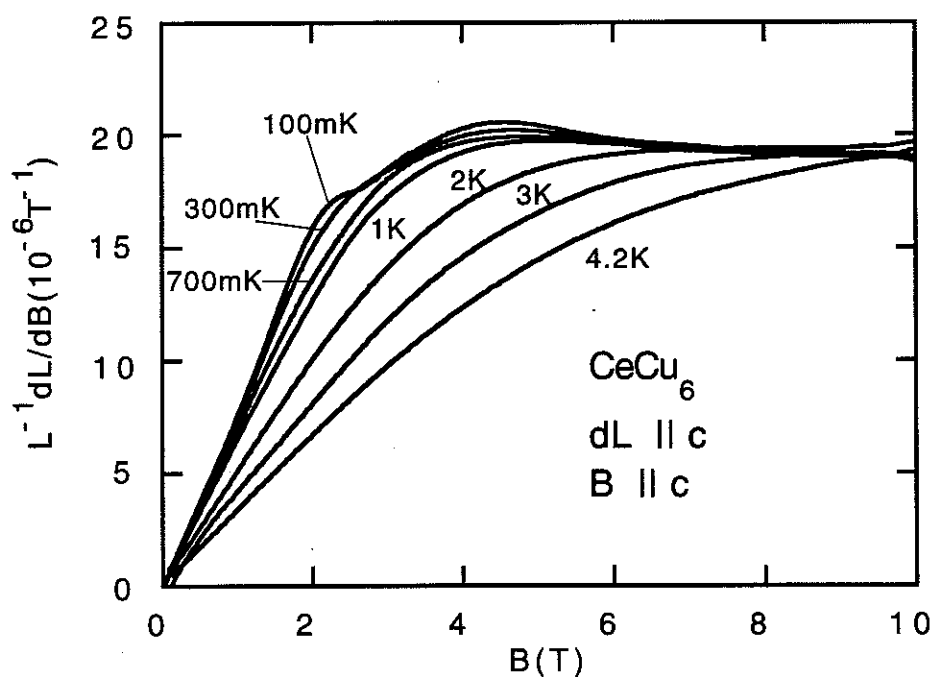


Figure IV.30 : Dérivée de la magnétostriction, λ_c' , de CeCu_6 suivant l'axe c .

La magnétostriction est donc fortement anisotrope. Elle est positive et la plus forte selon l'axe facile *c* (figure IV.31). L'axe *b* qui est la direction de propagation des corrélations, se contracte, mais environ 5 fois moins que l'axe *c* ne se dilate. L'axe *a*, dont les variations sont plus faibles que celle de l'axe *c* de deux ordres de grandeur, présente un comportement plus diversifié. Par contre les structures que l'on observe selon l'axe *a* compensent en partie les effets selon l'axe *b* (voir en particulier les dérivées, figures IV.26 et IV.25), si bien que la contribution du plan *ab*, représentée sur la figure IV.32, est assez régulière (pour effectuer ce tracé, les courbes ont été linéarisées). Cependant, un minimum de la dérivée λ'_{ab} apparaît à 4 T à basse température, et disparaît à 4,2 K. Ce minimum de λ'_{ab} compense le maximum observé à 4 T selon l'axe *c*.

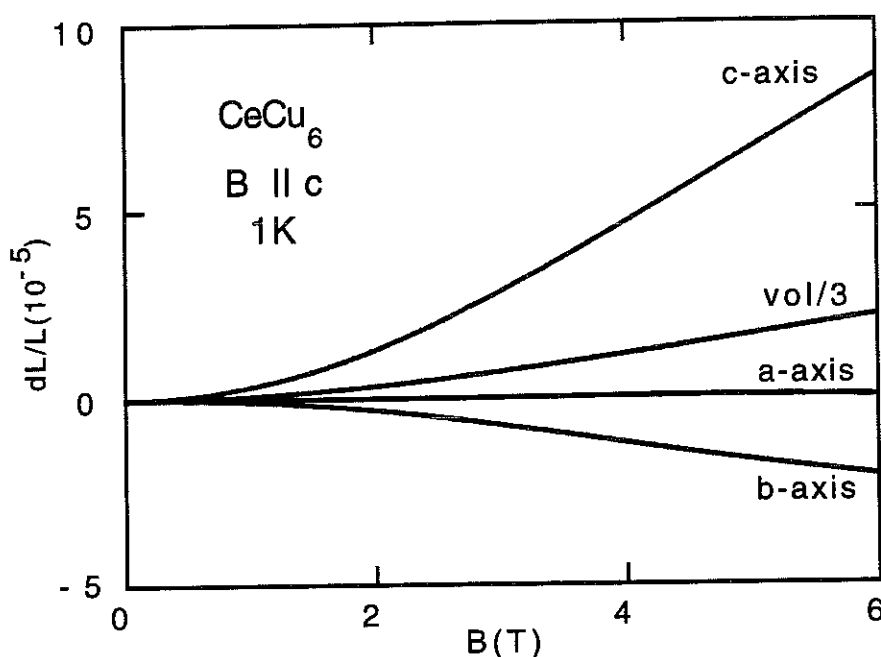


Figure IV.31 : Magnétostriction de CeCu₆ suivant les trois axes cristallographiques.

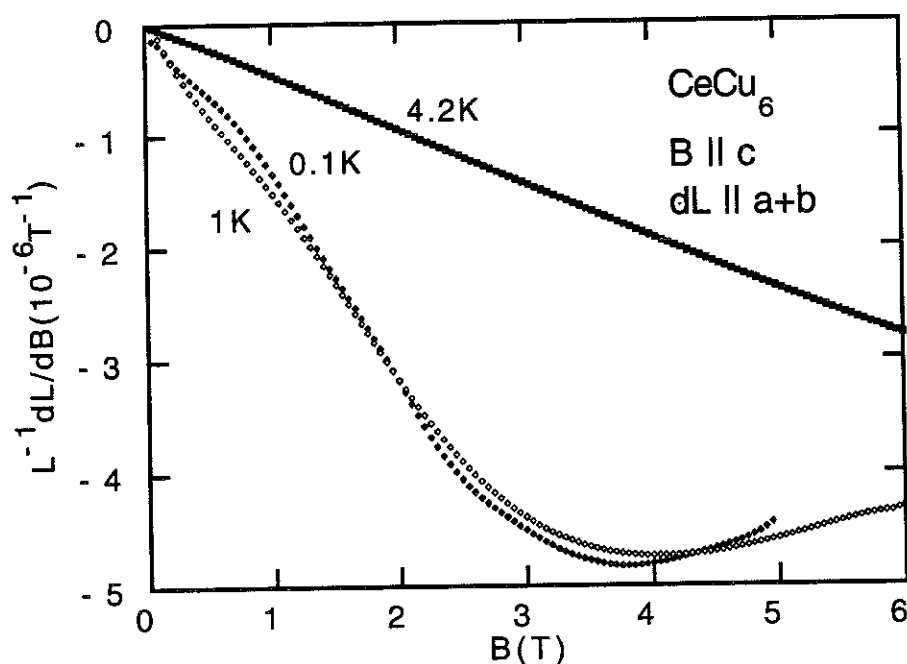


Figure IV.32 : Magnétostriction différentielle du plan *ab* dans CeCu₆.

L'effet volumique, λ_v , est représenté sur la figure IV.33. La seule anomalie qui subsiste dans sa dérivée, λ'_v , (figure IV.34) est le genou à 2 T, clairement visible à basse température. On peut supposer que ce genou résulte d'une superposition d'un fond régulier et d'un maximum.

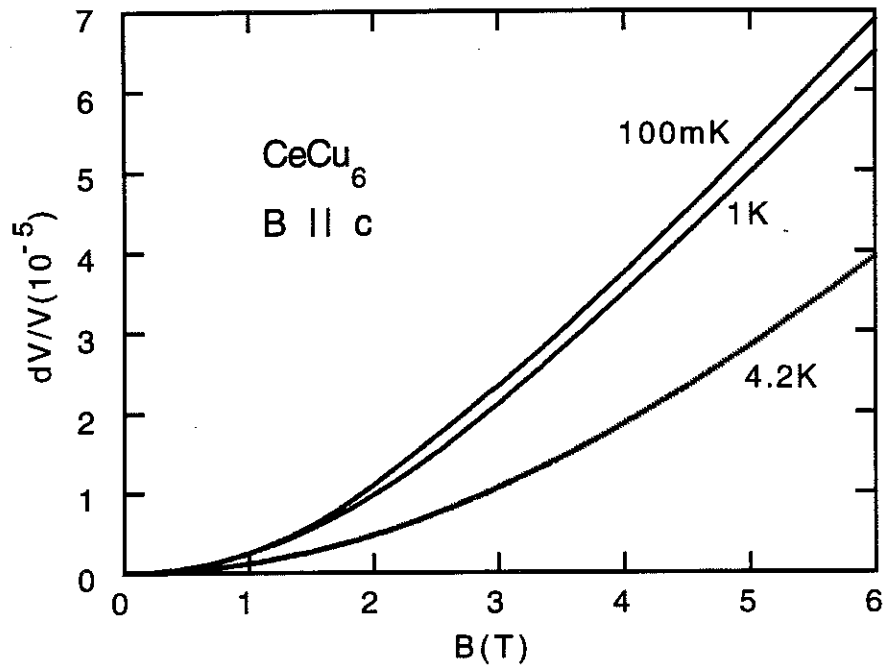


Figure IV.33 : Magnétostriction volumique λ_v de CeCu_6 .

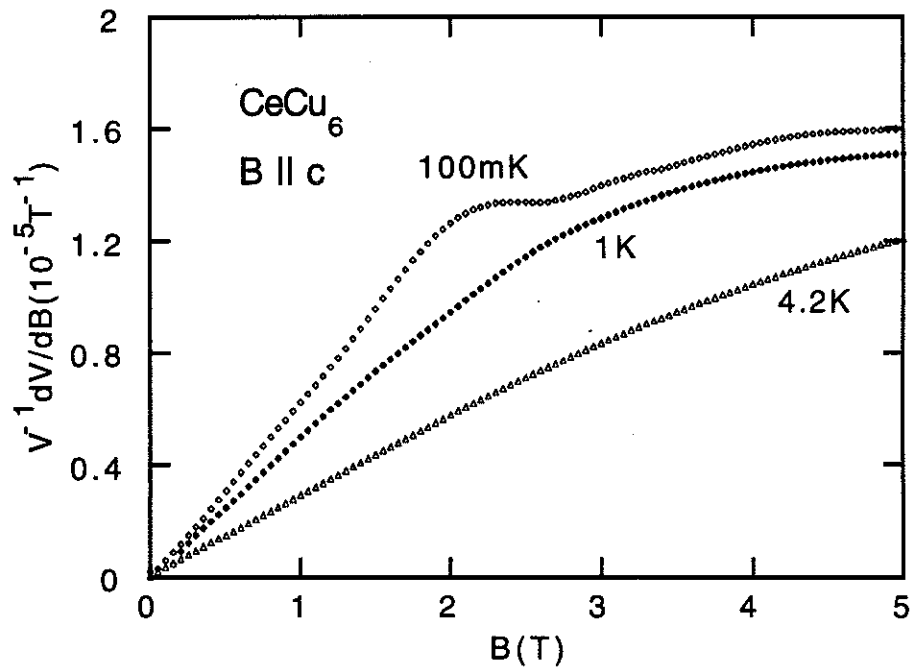


Figure IV.34 : Magnétostriction différentielle volumique λ'_v de CeCu_6 .

IV.2.3. AIMANTATION A TRES BASSE TEMPERATURE

Nous décrivons et discutons ici les mesures de l'aimantation à basse température effectuées au moyen d'un SQUID par C. Paulsen. A 175 mK, un faible maximum de dM_c/dH a pu être trouvé (figure IV.35), qui est en très bon accord avec les résultats obtenus à Karlsruhe [Schröder 1992, v. Löhneysen 1993].

Dans la limite de champs magnétiques faibles, où

$$M = \chi H \quad \text{et} \quad \lambda_v' = \ell H,$$

l'équation I.8 s'écrit comme :

$$\ell = \kappa \Gamma_B \left(\frac{\partial M}{\partial H} \right)_{P,T} + T \kappa \Gamma_T \left(\frac{\partial \chi}{\partial T} \right)_{P,H} \quad (\text{III.3})$$

Le dernier terme de cette équation est négligeable surtout à très basse température, où la susceptibilité est indépendante de la température. Ainsi, on peut obtenir le paramètre de Grüneisen magnétique :

$$\Gamma_B = \frac{\ell}{\kappa \chi_{\text{vol}}} \quad (\text{III.4})$$

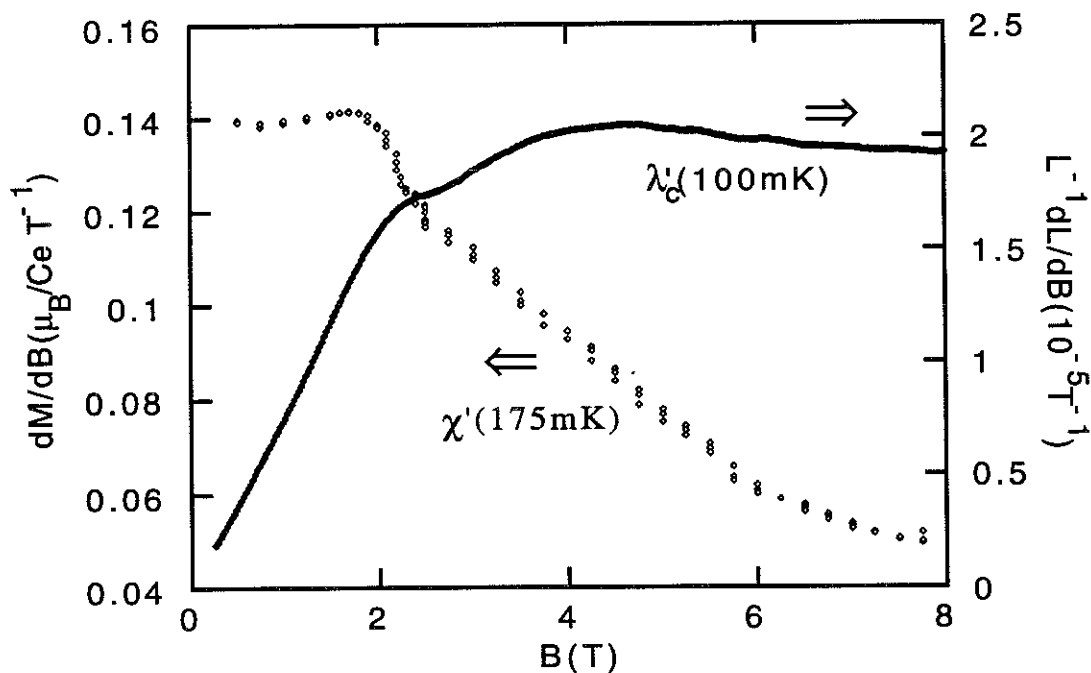


Figure IV.35 : Susceptibilité différentielle dM/dH et magnétostriction différentielle λ' de CeCu₆ à très basse température.

On en déduit :

à 100 mK, (χ à 175 mK) :	$\Gamma_B = 52,7$;
à 1 K :	$\Gamma_B = 43$;
à 4,2 K :	$\Gamma_B = 31,4$.

Γ_B est inférieur à Γ_T , mais il faut se rappeler que Γ_T présente sa plus forte augmentation, de 30%, entre 0 et 1 K. A 4,2 K, $\Gamma_B \approx \Gamma_T$, bien que ici le dernier terme de l'équation III.3 n'est certainement plus négligeable. La loi d'échelle magnétique n'a pas encore été vérifiée par des mesures sous pression.

Avec une dépendance de l'aimantation en fonction de la température de type $dM = \beta T^2$, on peut déduire la variation de γ en fonction du champ magnétique : $d\gamma/dB = 2\beta$ [Paulsen 1990b]. Comme on le peut le voir sur la figure IV.36, le régime quadratique existe dans des plages de température très différentes selon le champ. β est représenté en fonction de B dans l'encart de la figure IV.37, tandis que la partie principale de cette figure représente $\gamma(B)$ déduit de $\beta(B)$, qui est en bon accord avec $\gamma(B)$ mesuré.

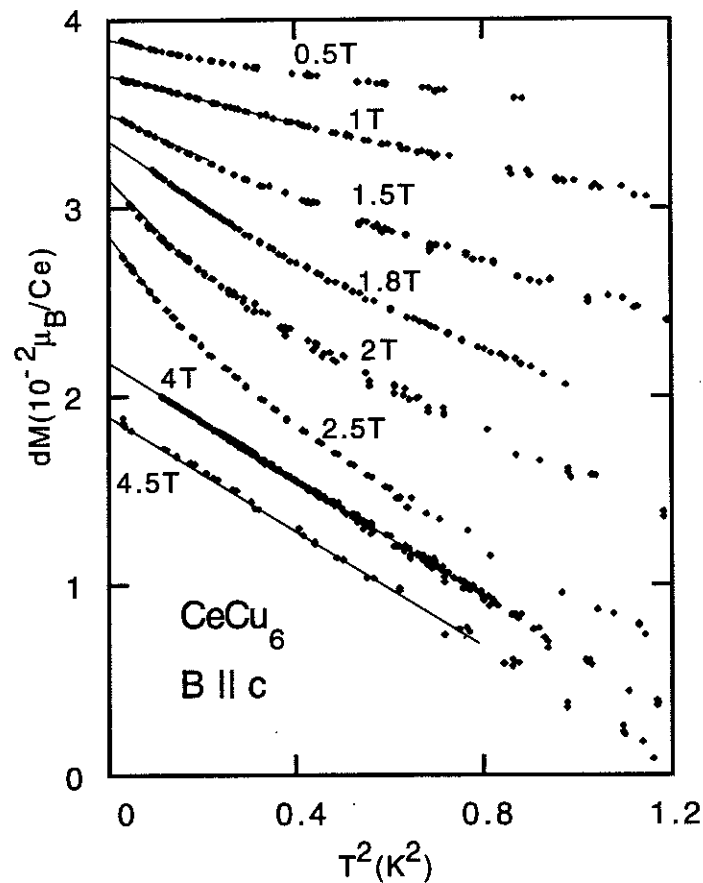


Figure IV.36 : Aimantation en fonction du carré de la température. Les valeurs de $M(T \rightarrow 0)$ sont décalées pour rendre la figure plus claire. Pour obtenir les valeurs absolues de M , voir la figure IV.2.

La relation $\lambda \propto M^2$ est vérifiée, d'après la figure IV.38. Elle est valable à 100 mK jusqu'à 3,5 T et à 4,2 K jusqu'à 5 T.

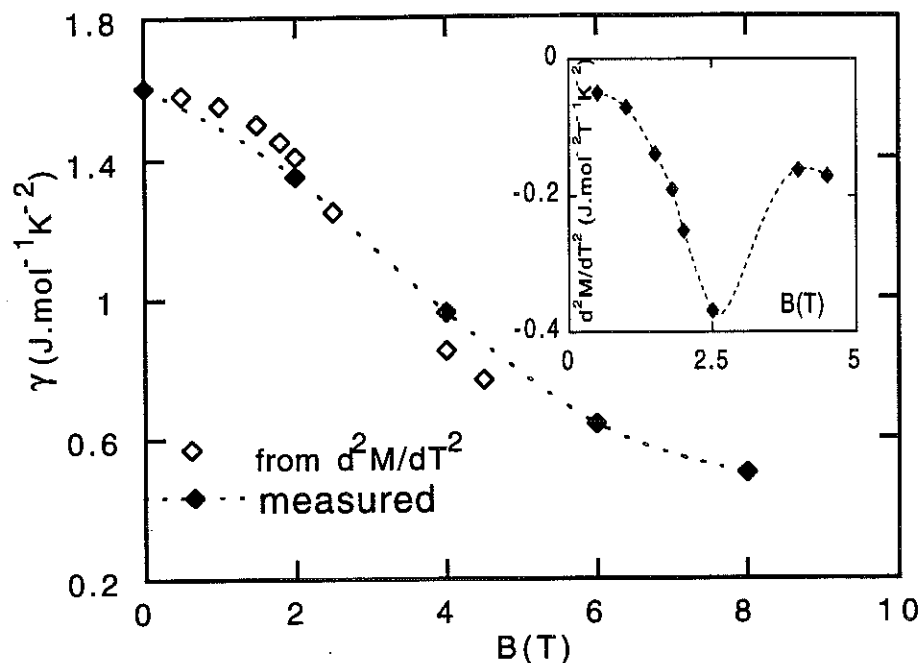


Figure IV.37 : Comparaison entre γ calculé par $\partial^2 M / \partial T^2 = \partial \gamma / \partial B$, et γ mesuré.

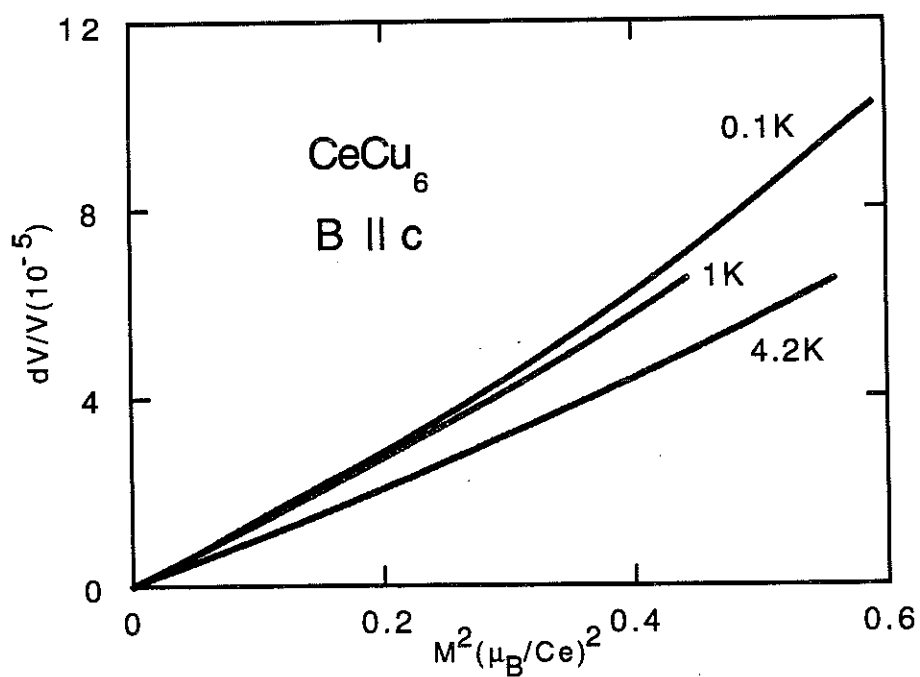


Figure IV.38 Magnétostriction en fonction du carré de l'aimantation.

IV.2.4. DISCUSSION

Nos expériences montrent qu'il existe dans CeCu_6 deux contributions à la chaleur spécifique, auxquelles correspondent des contributions à la dilatation thermique, chacune suivant un axe différent.

La première, dominante à haute température, est liée au maximum de la chaleur spécifique à 26 K. Ce dernier se reflète dans un maximum de la dilatation thermique suivant l'axe b. Son paramètre de Grüneisen, Γ_{eff} , est voisin de 10 et varie peu avec la température et le champ magnétique. Cette contribution, assimilable à une anomalie Schottky, est attribuée à l'effet du champ cristallin [Oomi 1987].

La deuxième domine à basse température ($T < 10$ K) et est liée avec le maximum de chaleur spécifique à 2 K, et donne un maximum dans la dilatation thermique suivant l'axe c. Elle est attribuée à l'effet Kondo sur le doublet fondamental, qui est à l'origine des quasiparticules lourdes. Son paramètre de Grüneisen augmente en refroidissant, comme dans tout composé à fermions lourds et vers 300-400 mK, il atteint la valeur $\Gamma_{\text{HF}} = 81$. Cette contribution est purement uniaxiale dans la dilatation thermique, alors que la dilatation suivant l'axe a semble être liée avec la première contribution selon l'axe b.

Les deux axes b et c, suivant lesquels on observe les deux contributions, se distinguent aussi dans les expériences de diffusion des neutrons : l'axe c est l'axe de facile aimantation et également l'axe suivant lequel les moments du Ce sont orientés. Comme dans presque tous les systèmes de fermions lourds, c'est aussi l'axe suivant lequel les effets volumiques sont les plus grands. L'axe b est l'axe de propagation des corrélations intersite. Par contre, jusqu'à maintenant, on ne connaît pas de lien entre les deux effets que sont le maximum de type Schottky et ces corrélations intersite.

En règle générale, CeCu_6 présente un comportement typique de système de fermions lourds : en refroidissant au-dessous de la température de Kondo, $T_K = 5$ K, un maximum dans la chaleur spécifique apparaît à $T_K/2$. La susceptibilité magnétique, C/T et le paramètre de Grüneisen augmentent en refroidissant sans aucune anomalie. Au dessous d'une température $T^* \equiv T_K/10$, on observe des quasiparticules lourdes avec une constante de Sommerfeld $\gamma \equiv 1,6 \text{ J.mole}^{-1}.\text{K}^{-2}$. Cependant, on observe encore une forte augmentation du paramètre de Grüneisen au-dessous de $T^* \equiv 0,3$ K [Lacerda 1990] : Γ_{HF} passe de 80 à plus de 100 entre 0,3 et 0,1 K, et la limite $T \rightarrow 0$ ne semble pas réellement atteinte (figure IV.16.b). Cela est contraire à ce que l'on attendait des variations

de $C (= \gamma T)$ et $\alpha (= aT)$ au-dessous de quelques centaines de mK (voir p. 124) et semble accréditer l'existence d'une deuxième échelle d'énergie à basse température (tant que la remontée de Γ observée sur la figure IV.16.b n'est pas attribuable à des incertitudes de mesure). Cependant, la même idée a été énoncée par Penney [1988] d'après des mesures de la constante de Hall, et par Amato [1987] à partir de mesures du pouvoir thermoélectrique.

Le champ magnétique a essentiellement comme effet de séparer le doublet fondamental du Ce en deux singulets séparés par l'énergie de Zeeman de $2\mu_{\text{eff}}B$. Par conséquent, la résonance au niveau de Fermi est élargie (figure IV.40). La densité d'états au niveau de Fermi, et ainsi le coefficient de Sommerfeld s'abaissent. On note qu'à partir d'une énergie magnétique de l'ordre de $k_B T_K$, un minimum apparaît dans la densité d'états, qui correspond au maximum dans C/T observé dans des champs supérieurs à 5 T (figure IV.6). Le champ magnétique mène à une réduction du caractère fermion lourd : le terme linéaire de la chaleur spécifique est réduit d'un facteur trois. Pourtant la valeur de γ demeure égale à $0,5 \text{ J.mole}^{-1}.\text{K}^{-2}$ à 8 T, ce qui est encore plus de cent fois plus élevé que dans un métal normal.

Le paramètre de Grüneisen, qui vaut près de 100 dans la limite $T \rightarrow 0$ à champ nul, tombe à une valeur inférieure à 10 indépendante de la température ($T < 10\text{K}$) pour $B = 8 \text{ T}$. Cet effondrement du paramètre de Grüneisen, qui implique que la dilatation thermique est réduite d'un facteur 30 à 8 T, indique également que le champ magnétique empêche la formation du singulet de Kondo.

Sous champ magnétique, la contribution Kondo à la dilatation thermique suivant l'axe c perd de l'importance. L'autre contribution, suivant l'axe b, devient dominante en champ intense. Ceci se reflète très bien dans le paramètre de Grüneisen, où l'on observe une compétition entre une contribution qui augmente en refroidissant et une autre qui a une valeur stable de 10. Lacerda a observé que cette dernière contribution ne varie pas jusqu'à 100 K (figure IV.15).

Sur la figure IV.22, on voit d'une façon très nette que, dans la limite $T \rightarrow 0$, la transition entre ces deux régimes se passe entre 4 et 6 Tesla. Cette transition est aussi visible dans la dilatation thermique selon l'axe c, où α_c , dans la limite $T \rightarrow 0$, devient négatif à un champ $B_c = 4,5 \text{ T}$ et est alors, comme α_a , très faible devant α_b . Le champ critique $B_c = 4,5 \text{ T}$ est retrouvé dans presque toutes les propriétés physiques :

Au-dessus de B_c , l'aimantation augmente moins rapidement sous champ. Ce changement de régime est visible jusqu'à 4,2K. Un effet analogue est observé dans nos mesures de magnétostriction. Le rapport de Wilson χ/γ a un maximum de 2,5 à B_c [Amato 1987] ($\chi/\gamma(B=0) = 1,5$). Au-dessus de B_c , tous les coefficients de transport [Amato 1987, 1988] varient beaucoup moins rapidement avec le champ que pour $B < B_c$. Le terme linéaire de la chaleur spécifique γ (encart de la figure IV.6) et, très légèrement, la température du maximum $T_{m,c}$ (figure IV.19), dévient de la loi (IV.1) pour varier moins rapidement. Dans les expériences de diffusion neutronique, l'intensité des corrélations intersite, et aussi à un site, diminue visiblement.

En pratique, le champ critique B_c sépare une région à bas champ, où toutes les propriétés physiques varient fortement avec le champ magnétique, d'un régime en champs intenses, qui montre une certaine saturation. Si l'on suppose $k_B T_K \equiv \mu_{\text{eff}} B_c$, avec $T_K = 5$ K, on trouve un moment effectif $\mu_{\text{eff}} = 1,6 \mu_B$, valeur identique à celle trouvée par la diffusion de neutrons [Walter 1986] et dans des mesures de chaleur spécifique [Schlager 1993]. Le champ de transition B_c est donc énergétiquement du même ordre que la température de Kondo du doublet fondamental. Cette transition pourra correspondre à la fermeture sous champ du pseudogap de largeur T_K , qui

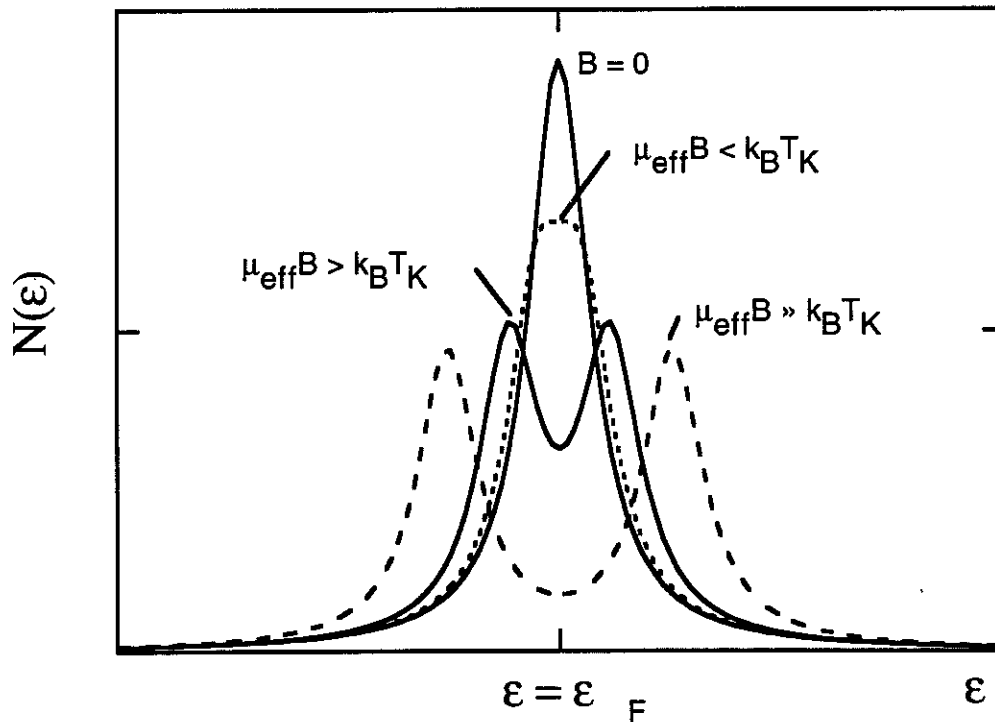


Figure IV.40 : Effet du champ magnétique sur la densité d'état au niveau de Fermi dans CeCu_6 .

sépare le singulet de Kondo du triplet excité. On peut expliquer ainsi qu'à 8 T, l'effet Kondo du doublet fondamental contribue déjà beaucoup moins à la dilatation thermique. Par contre, le moment à saturation de $1,6 \mu_B$ est loin d'être atteint dans l'aimantation, même à $B = 20$ T (voir figure IV.4). Ce dernier phénomène est tout à fait normal pour des composés à fermions lourds, où des champs magnétiques beaucoup plus élevés que le "champ Kondo" sont nécessaires pour détruire l'écrantage du moment magnétique. Il n'est pas à exclure que dans CeCu₆, il existe aussi d'autres contributions à l'effet Kondo que celle qui se manifeste dans la dilatation thermique suivant l'axe c. Ce peut être par exemple une contribution du doublet excité de champ cristallin. Le doublet excité réagit beaucoup moins au champ magnétique que le doublet fondamental à cause de son moment effectif plus faible. C'est cette contribution qui domine en champ intense, où l'effet Kondo sur le doublet fondamental est devenu relativement inefficace. Cette interprétation du champ B_c est en bon accord avec le fait mentionné plus haut, que toutes les propriétés physiques varient moins dramatiquement pour $B > B_c$.

Mentionnons encore une autre interprétation de B_c , selon laquelle ce champ, voisin de 4,5 T, est lié à la destruction des corrélations intersite. Cette interprétation s'appuie sur des observations faites dans la diffusion neutronique, où les corrélations intersite disparaissent définitivement après avoir été réduites considérablement au champ $B^* = 2$ T. Il a été argumenté [Amato 1987] que B^* et B_c représentent les champs caractéristiques d'une transition en deux étapes, comme lorsqu'il existe une transition de type spin-flop vers une phase à champ intermédiaire avant d'entrer dans la phase fortement polarisée. Par contre, l'énergie inélastique des corrélations, 0,2 meV, correspond à $\mu_{\text{eff}} = 1,6 \mu_B$ plutôt pour $B^* = 2$ T que pour $B_c = 4,5$ T. Les anomalies liées au champ $B^* = 2$ T ne sont observables qu'à des températures de l'ordre de $T^* \sim T_K/10$, alors que celles liées au champ B_c de 4,5 T sont visibles encore à 4,2 K ($\sim T_K$). On peut expliquer ainsi que les maximums dans l'aimantation et dans la magnétostriction à B^* n'apparaissent qu'au-dessous de 0,5 K environ.

D'autres anomalies sont visibles à B^* au-dessous de 0,5 K dans les mesures de propagation d'ultrasons : minimum de la vitesse longitudinale c_{33} [Goto 1988] et dans des mesures de transport, mentionnées en introduction [Amato 1987, 1988] : maximum positif dans la magnétorésistance, forte variation du pouvoir thermoélectrique, maximum de la résistivité résiduelle. Ces effets rappellent ceux observés dans les propriétés de transport de CeRu₂Si₂.

IV.2.5 COMPARAISON FINALE ENTRE CeCu_6 ET CeRu_2Si_2

CeRu_2Si_2 et CeCu_6 sont deux composées à fermions lourds comparables au point de vue de la diffusion des neutrons [Rossat-Mignod 1988]. On y observe une contribution indépendante du vecteur de diffusion attribuée à l'effet Kondo ($\Gamma_{\text{ss}}/k_B = 23 \text{ K}$ [CeRu_2Si_2] et 5 K [CeCu_6]) à laquelle s'ajoute une contribution inélastique suivant un vecteur incommensurable ($\hbar\omega_{\text{is}} = 1,2 \text{ meV}$ [CeRu_2Si_2] et $0,2 \text{ meV}$ [CeCu_6]). Le rapport entre ces deux énergies est très similaire : $\hbar\omega_{\text{is}} \sim \Gamma_{\text{ss}}/2$. Un champ magnétique de l'ordre de $\mu_{\text{eff}}B^* \sim \hbar\omega_{\text{is}}$, appliqué suivant l'axe de facile aimantation, détruit les corrélations intersite. On n'observe que des changements d'intensité dans des mesures sous champ, sans que les valeurs $\hbar\omega_{\text{is}}$ et Γ_{ss} varient de façon significative. En intensité, les corrélations antiferromagnétiques représentent 40% du signal quasiélastique dans CeRu_2Si_2 et 10% dans CeCu_6 .

Mais comme on l'a vu dans les deux derniers chapitres, le comportement sous champ des propriétés thermodynamiques est totalement différent pour les deux composés : en chaleur spécifique, CeCu_6 montre un comportement qui est tout à fait normal pour un système de fermions lourds qui a comme seule échelle d'énergie la température de Kondo. L'effet des corrélations antiferromagnétiques est détectable uniquement dans les propriétés magnétiques et de transport à très basse température. Par contre, si la contribution des corrélations intersite dans CeRu_2Si_2 est beaucoup plus importante, l'énergie dominante est encore l'énergie de Kondo. Ce fait est souligné par l'observation que le produit γT_K est le même dans les deux systèmes. Mais dans CeRu_2Si_2 , le comportement pseudométamagnétique peut être détecté jusqu'à des températures supérieures à T_K ; de plus, à basse température, l'effet pseudométamagnétique est considérablement plus important que dans CeCu_6 .

On ne connaît pas encore le critère selon lequel ces deux systèmes se comportent si différemment. En effet, le rapport entre T_K et T_{RKKY} , les énergies principales, ne semble pas être trop différent. On constate une différence dans l'intensité des corrélations intersite, qui n'est que d'un facteur quatre entre les deux composés, mais des différences de deux ordres de grandeur dans la susceptibilité et la magnétostriction différentielles. Cette intensité des corrélations intersite n'est d'ailleurs pas une grandeur principale et doit, par conséquent, être expliquée par une théorie. Il reste à argumenter que l'origine de cette différence est microscopique.

CINQUIEME PARTIE : LE COMPOSE CeNiSn

V.1. DESCRIPTION DES PROPRIETES DE CeNiSn

V.1.1. STRUCTURE CRISTALLINE

La première description de la structure de CeNiSn [Skolozdra 1984] le donne comme orthorhombique, du type ϵ -TiNiSn (Pnma, [Shoemaker 1965]). Une publication récente [Higashi 1992], mentionne que la structure de CeNiSn n'est pas centrosymétrique, mais appartient au groupe d'espace Pn21a (figure V.1.a).

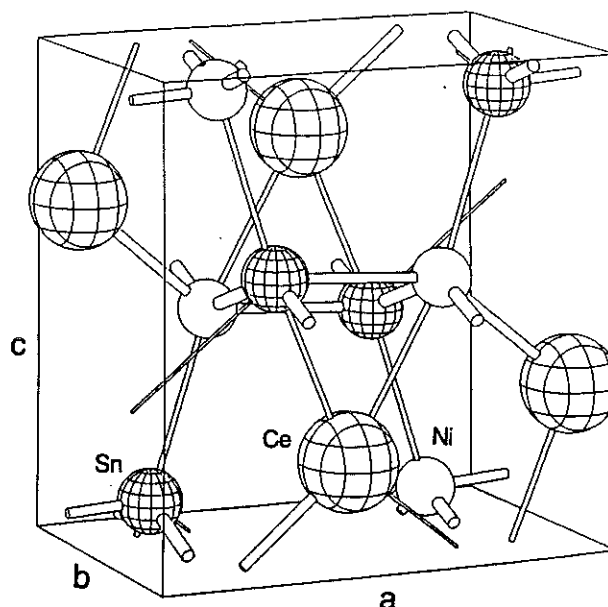
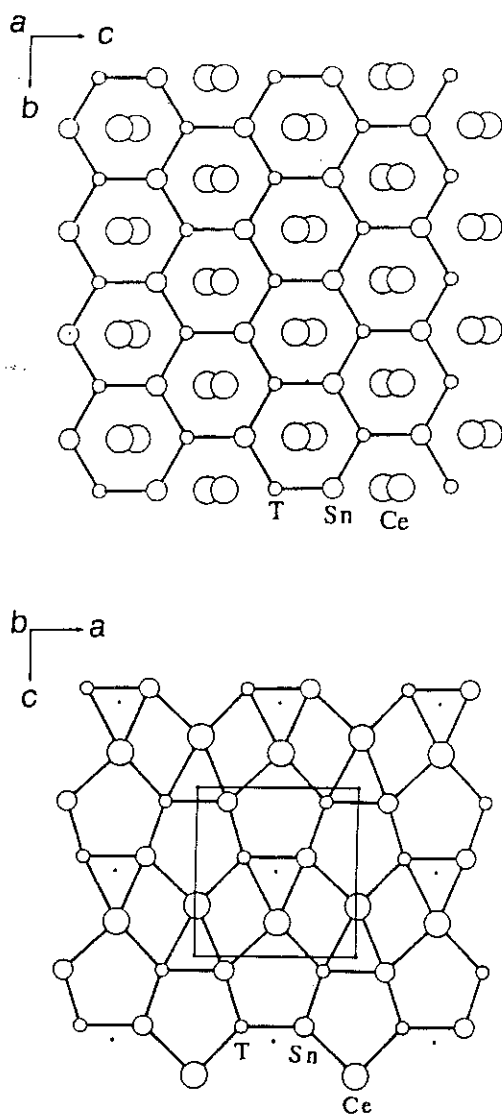


Figure V.1.a : Structure cristalline de CeNiSn, vue tridimensionnelle [Higashi 1992].

Les paramètres de maille sont $a = 7,542 \text{ \AA}$, $b = 4,601 \text{ \AA}$ et $c = 7,617 \text{ \AA}$. Un Ce est entouré par trois Ni et un Sn à une distance moyenne de $3,2 \text{ \AA}$. La distance entre deux Ce les plus proches est de $3,847 \text{ \AA}$. La structure peut être décrite par des réseaux bi-dimensionnels de CeNiSn dans le plan a-c, qui se suivent avec un intervalle $b/2$ (figure V.1.b). Dans le plan b-c se trouvent des réseaux de Ce bidimensionnels avec un intervalle $a/2$ (figure V.1.c). Ils sont séparés par des réseaux de Ni et Sn de sorte qu'un Ce est entouré par deux anneaux hexagonaux distordus (figure V.1.d). La cellule unitaire contient quatre formules chimiques (figure V.1.a) [Takabatake 1992d].



Figures V.1.b et V.1.c : Structure cristalline de CeNiSn , plans a-c et b-c [Higashi 1992].

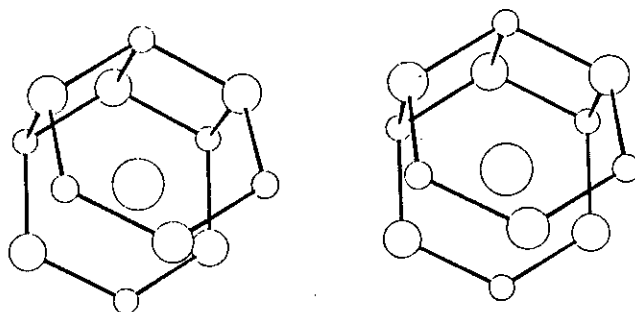


Figure V.1.d : Structure cristalline de CeNiSn , vue stéréoscopique de l'entourage des atomes de Ce [Higashi 1993].

V.1.2. SUSCEPTIBILITE MAGNETIQUE

La susceptibilité selon l'axe a , $\chi_a(T)$, suit une loi de Curie-Weiss au-dessus de 150 K [Takabatake 1990] (figure V.2) avec un moment effectif de $\mu_{\text{eff}} = 2,78 \mu_B/\text{Ce}$, plus grand que le moment du Ce^{3+} libre ($2.54 \mu_B/\text{Ce}$). Or, CeNiSn est le plus souvent décrit comme un composé de valence intermédiaire, ce qui devrait conduire à une valeur mesurée du moment inférieure à celle de l'ion libre. En fait, des expériences de photoémission [Nohara 1993] indiquent que la valence du Ce est très proche de 3. On peut imaginer que la valeur mesurée diffère de celle de l'ion libre en raison d'effets de champ cristallin. Vers 12 K, $\chi_a(T)$ présente un maximum, alors que χ_b et χ_c augmentent rapidement en refroidissant (figure V.2). Le maximum en $\chi_a(T)$ a pu être confirmé par des mesures de RMN [Kyogaku 1990, 1991]. Par contre la remontée à basse température de $\chi_b(T)$ et $\chi_c(T)$ n'était pas reproduite. Ce dernier phénomène a été donc attribué à des impuretés.

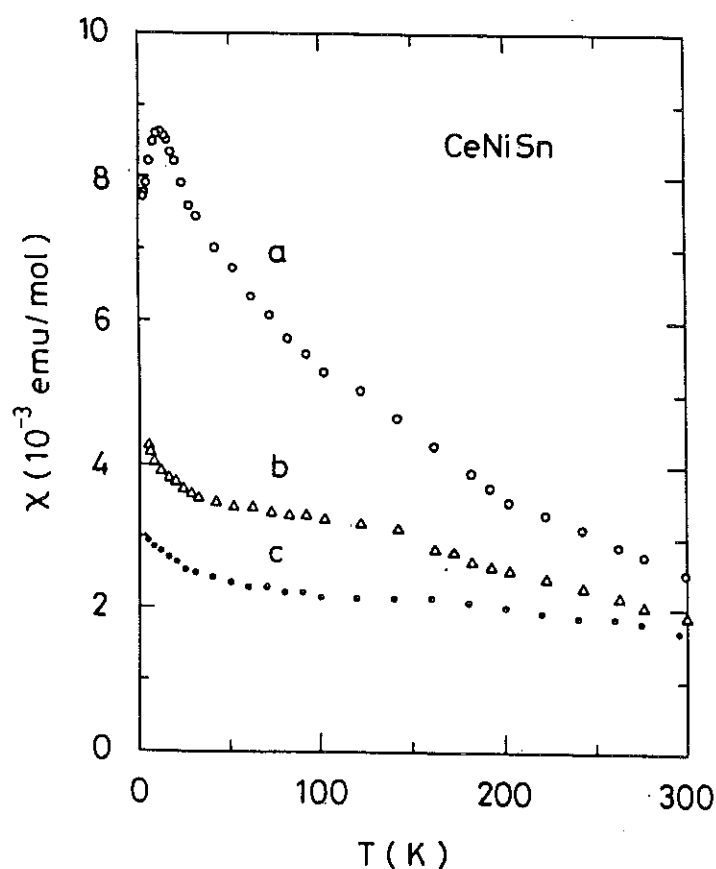


Figure V.2 : Susceptibilité magnétique de CeNiSn [Takabatake 1990].

V.1.3. PROPRIETES DE TRANSPORT

Au dessus de 10 K, la **résistivité électrique** [Takabatake 1992a] (figure V.3) montre un comportement typique de composé Kondo selon les trois axes et tout d'abord une variation en $-\ln(T)$ à haute température. Ensuite, $\rho_a(T)$, $\rho_b(T)$ et $\rho_c(T)$ présentent des maximums autour de 100, 60 et 50 K, respectivement, et on a estimé la température de Kondo du multiplet non-dégénéré $J = 5/2$ à 100 K. $\rho_a(T)$ passe par un autre maximum à 12 K, comme la susceptibilité $\chi_a(T)$.

Au-dessous de 6 K, $\rho_b(T)$ et $\rho_c(T)$ augmentent dramatiquement en refroidissant pendant que $\rho_a(T)$ présente seulement une remontée modeste. Ce comportement inhabituel a suggéré l'idée que s'ouvre un gap dans la densité d'état à basse température. Effectivement, entre 2,5 et 4,6 K, la résistivité suivant c obéit à une loi d'activation $\rho(T) = \rho_0 \exp(E_{\text{gap}}/2k_B T)$, avec des énergies de gap de 1, 4,8 et 8 K, respectivement pour les axes a, b et c. Donc, le gap devrait être très anisotrope à basse température. Cependant, on observe un maximum de $\rho(T)$, autour de 1 K, 0,7 et 0,5 K, selon les axe a, b et c, respectivement, un comportement inhabituel dans le cas d'un gap intrinsèque. Enfin les derniers résultats [Takabatake 1994] montrent que ces remontées disparaissent dans les échantillons les plus purs. L'ouverture du gap, confirmé par ailleurs, serait donc pratiquement sans effet sur $\rho(T)$.

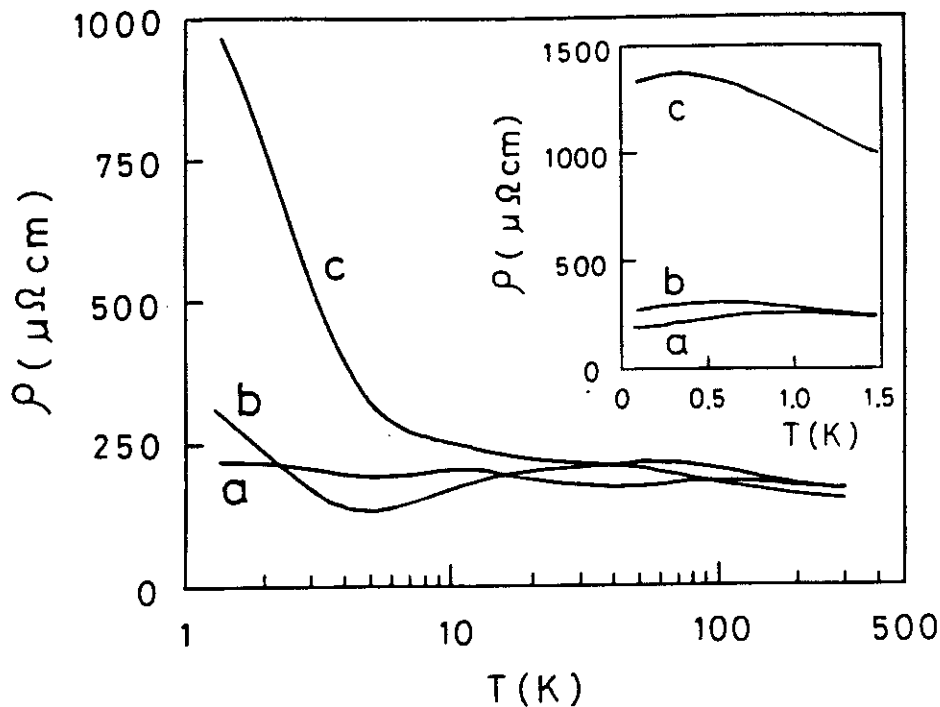


Figure V.3 : Résistivité électrique de CeNiSn [Takabatake 1992a].

Finalement, Mason et coll. [Mason 1992] ont décrit leur mesure de la résistivité ρ_b à basse température comme la somme d'une résistance semiconducteur et d'une résistance métallique en parallèle :

$$\frac{1}{\rho(T)} = \sigma_m \frac{1}{1+(T/T_0)^2} + \sigma_s \exp\left(\frac{E_g}{2k_B T}\right) \quad (V.1)$$

avec $T_0=1,4$ K et $E_g=6,8$ K; $\sigma_m = 0,0023 (\mu\Omega\text{cm})^{-1}$ et $\sigma_s = 0,012 (\mu\Omega\text{cm})^{-1}$.

Les autres propriétés de transport indiquent aussi l'existence d'un gap, ou d'une structure fine dans la densité d'états au niveau de Fermi, en tout cas, d'une diminution du nombre de porteurs.

La conductivité thermique [Hiess 1993, Ishikawa 1991] diminue fortement à basse température. Le produit $\rho\kappa/T$ de la loi de Wiedemann-Franz est plus élevé que le nombre de Lorentz $L_0 = 24,5 \cdot 10^{-9} \Omega\text{W}/\text{K}^2$ et tend vers L_0 dans la limite $T = 0$.

L'effet Hall [Takabatake 1992c] montre un maximum positif à 9K du même ordre de grandeur que celui de CeRu_2Si_2 vers 20 K [Haen 1987], ce qui peut être interprété comme un effet de cohérence (voir [Fert 1987]), mais devient négatif et augmente fortement en valeur absolue (d'un facteur de 10) au-dessous de quelques K pour certaines directions.

Le pouvoir thermoélectrique [Hiess 1994, Takabatake 1990, Yamaguchi 1990] (figure V.4) diminue en refroidissant au dessous de 20K, passe par un minimum vers 6K et un maximum prononcé vers 3K. Au-dessous de 1 K, $S(T)$ varie linéairement en T , comme un métal.

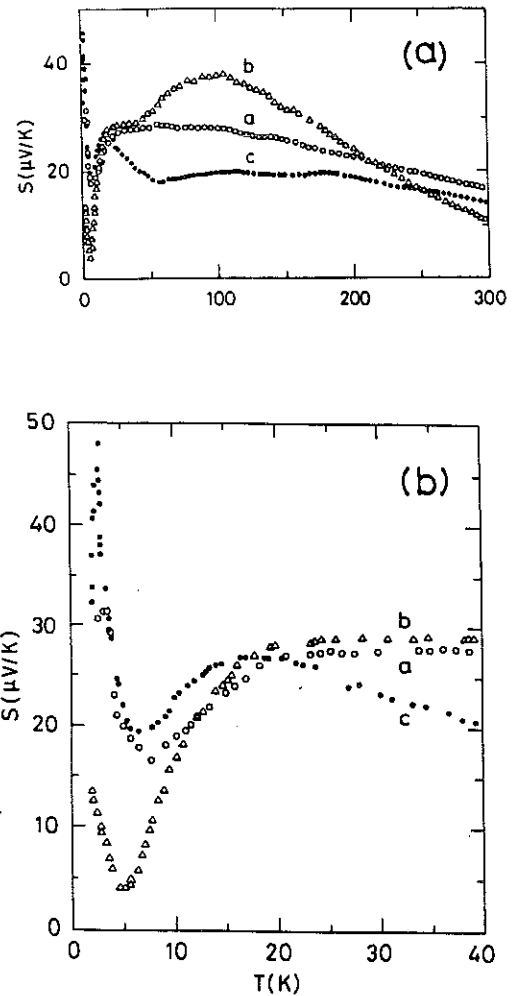


Figure V.4 : Pouvoir thermoélectrique de CeNiSn : [Takabatake 1990] suivant les trois axes cristallographiques, a : $T < 300$ K, b : $T < 40$ K.

V.1.4. CHALEUR SPECIFIQUE

La chaleur spécifique [Takabatake 1990] ne montre pas le maximum typique pour une impureté Kondo. Au dessus de 6 K, C/T varie classiquement en T^2 , reflétant la somme d'une contribution électronique et d'une contribution de phonons (figure V.5). Dans ce régime, la valeur de γ obtenue par extrapolation à $T = 0$ est de $200 \text{ mJ/K}^2 \cdot \text{mole}$. A partir de cette valeur, on peut calculer une température de Kondo à un site T_K égale à 28 K, au moyen de la relation $T_K = 0.68 R/\gamma$. L'entropie magnétique à 20 K est trouvée égale à $0,5 R \ln 2$.

Au dessous de 6 K, C/T varie en T , au contraire de ce qu'on attend d'un métal normal. La contribution magnétique C_m/T présente un maximum à 6 K avec une valeur modérée de $180 \text{ mJ/K}^2 \cdot \text{mole}^{-1}$ et atteint approximativement $60 \text{ mJ/K}^2 \cdot \text{mole}^{-1}$ dans la limite $T \rightarrow 0$. On peut imaginer que la différence entre l'extrapolation du régime au-dessus de 6 K et cette dépendance anormale avec la température résulte de l'ouverture du gap dans la densité d'états à la surface de Fermi. On peut supposer que celui-ci est en forme de V, comme cela a été fait pour décrire le comportement non Korringa de T_1 ($T_1 \approx T^3$) à basse température dans les résultats de RMN [Kyogaku 1991]. Ces derniers auteurs ont trouvé un gap d'énergie $\Delta = 14 \text{ K}$.

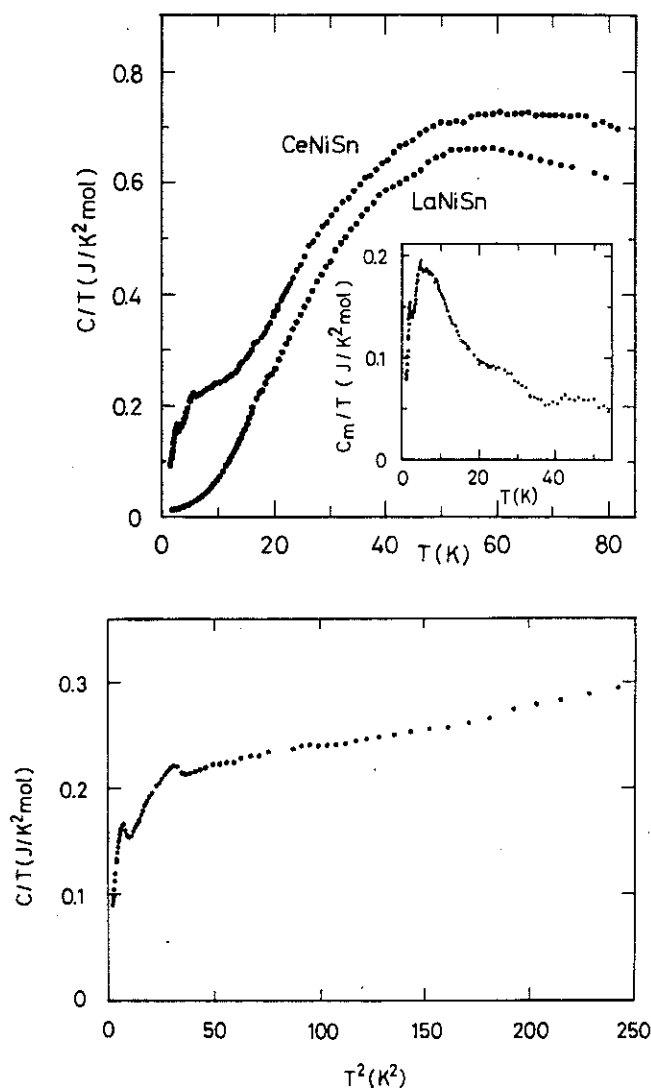


Figure V.5 : haut : Variations de C/T de CeNiSn, LaNiSn et de la contribution magnétique, après soustraction de celle de LaNiSn, bas : C/T de CeNiSn en fonction de T^2 [Takabatake 1990].

V.1.5. DIFFUSION DES NEUTRONS

Mason et coll. [Mason 1992] ont effectué des mesures de diffusion inélastique des neutrons dans le plan a-c. Dans un ajustement, ils ont trouvé une contribution quasiélastique indépendante du vecteur de diffusion, d'une largeur de $\Gamma = 0,8$ meV, et une réponse inélastique de $\hbar\omega = 2,1$ meV pour un vecteur de diffusion antiferromagnétique (0, 0, 1) suivant l'axe c. Le moment magnétique est dirigé selon l'axe a.

Par ailleurs, Kadowaki et coll. [1994] ont montré l'existence de corrélations antiferromagnétiques quasi unidimensionnelles selon l'axe b piquées en (0, 1/2, 0). Ces fluctuations ont un caractère inélastique avec un pseudogap, dont l'échelle d'énergie est 4 meV disparaissant à 20 K.

A présent il est encore difficile d'établir un lien entre ces dernières mesures et de les relier à des propriétés thermodynamiques.

V.1.6. EFFET DU CHAMP MAGNETIQUE

V.1.6.a. Aimantation

L'aimantation, $M(H)$, a été mesurée jusqu'à 36 T à 1,7 K en champs pulsés [Takabatake 1992b]. Selon l'axe a, M a été trouvée en moyenne trois fois plus élevée que selon les axes b et c (figure V.6). L'axe a est donc considéré comme axe de facile aimantation. A 36 T, $M_a(H)$ est seulement de $0,3 \mu_B$. Un faible maximum de dM/dH à 13 T a été reporté qui, par analogie avec $CeRu_2Si_2$ et $CeCu_6$, pourrait correspondre à une faible transition pseudométamagnétique, surtout en connexion avec le maximum de χ_a à 12 K.

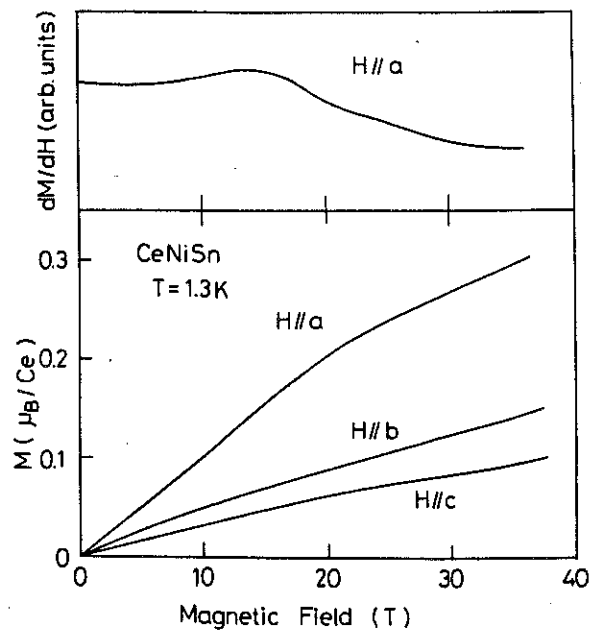


Figure V.6 : Aimantation et susceptibilité différentielle de CeNiSn en champ intense [Takabatake 1992b].

V.1.6.b. Magnétorésistance

Un champ appliqué selon l'axe de facile aimantation à 1,4 K produit une magnétorésistance négative [Takabatake 1992a]. A 15 T, $\rho(B)$ est réduite de 80% selon les trois axes. La résistivité sous 12 T montre que le gap est fermé par le champ magnétique (figure V.7), si du moins on continue à considérer ces remontés à basse température comme dues à l'ouverture du gap.

V.1.6.c. Chaleur spécifique

La chaleur spécifique a été mesurée à basse température ($T < 1$ K) sous champ jusqu'à 12 T [Takabatake 1992a]. C/T augmente avec le champ, approximativement d'un facteur 2 entre 0 et 12 T (figure V.8). Cet effet a été interprété également comme dû à la fermeture du gap par le champ.

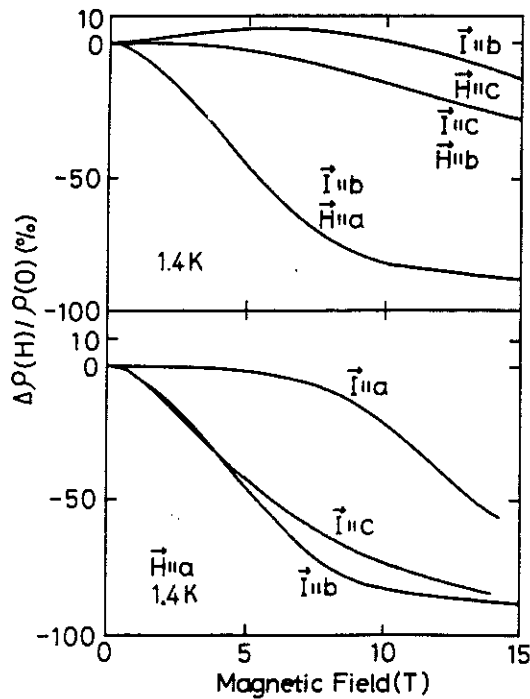


Figure V.7 : Magnétorésistance de CeNiSn pour des courants et champs magnétiques suivants les trois axes [Takabatake 1992a].

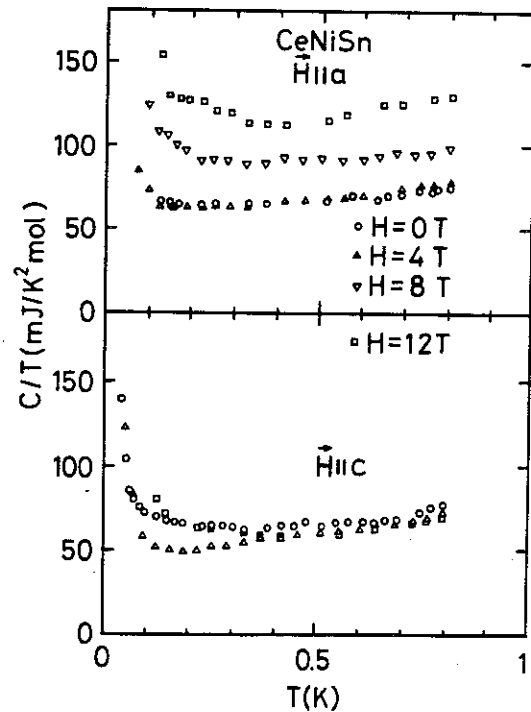


Figure V.8 : Variation de C/T de CeNiSn à basse température, en fonction du champ magnétique [Takabatake 1992a].

V.1.7. AUTRES PROPRIETES

V.1.7.a. Effets de pression

Des mesures de résistivité sous pression jusqu'à 24 kbar sur un échantillon polycristallin [Kurusu 1988], puis jusqu'à 20 kbar sur des monocristaux [Kurusu 1993] montrent que la remontée au-dessous de 6 K est rapidement supprimée par la pression. A partir de 12 kbar, on observe une variation en T^2 à basse température. Donc le gap devrait être supprimé. Des conclusions comparables ont été tirées à partir des mesures du coefficient de Hall sous pression [Hiraoka, 1994]

V.1.7.b. Effets d'alliage

Les systèmes suivants ont été étudiés : $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{NiSn}$ [Aliev 1988, 1990, 1991a], $\text{CeNi}_{1-x}\text{Sn}_{1+y}$ [Takabatake 1987], $\text{CeNi}_{1-x}\text{Cu}_x\text{Sn}$ [Takabatake 1987, 1988], $\text{CeNi}_{1-x}\text{Pd}_x\text{Sn}$ [Kasaya 1988, 1991b] $\text{CeNi}_{1-x}\text{Pt}_x\text{Sn}$ [Fujita 1992, Sakurai 1992], $\text{CeNi}_{1-x}\text{Co}_x\text{Sn}$ [Adroja 1994], $\text{CeNi}_{1-x}\text{Sn}_{1+x}$ [Aliev 1994] et $\text{Ce}_{1-x}\text{U}_x\text{NiSn}$ [Park 1994b, c]. Sans discuter en détail ces expériences il a été observé qu'une teneur en impuretés supérieure à 10% détruit le gap, indépendamment de son effet de pression chimique. Ce fait a été utilisé comme argument pour dire qu'il s'agit d'un gap de cohérence qui est détruit avec la perte de périodicité du réseau. Pour une concentration relativement faible de 13% de Cu substitué au Ni, on peut observer de l'ordre antiferromagnétique, ce qui indique que CeNiSn est proche d'une instabilité magnétique.

V.2. ETUDE DE LA DILATATION THERMIQUE ET DE LA MAGNETOSTRICTION D'UN MONOCRISTAL DE CeNiSn

Dans le contexte évoqué ci-dessus, il paraissait intéressant d'étudier les propriétés magnétovolumiques de CeNiSn, dans le but d'apporter davantage d'informations sur le gap et sa disparition sous champ magnétique. Les expériences seront effectuées avec le champ appliqué parallèlement à l'axe de facile aimantation (axe a) ; en effet, comme dans les expériences rappelées ci-dessus (magnétorésistance en particulier), c'est dans cette configuration que les effets les plus significatifs doivent être observés.

V.2.1. CARACTERISTIQUES DU CRISTAL ETUDIE

Cette étude a été effectuée sur un échantillon de forme presque cubique, d'environ 4 mm de côté, découpé par électroérosion dans un monocristal préparé par M. Ishikawa de l'Université de Toyama (Japon). Les faces de cet échantillon étaient parallèles à des plans cristallographiques.

Chaque face du cristal a été examinée par diffraction de rayons X, selon la méthode de Laue par A. Hiess. Bien que ces faces étaient polies, on a toujours observé un dédoublement des taches de diffraction. Pourtant, comme on va le voir par la suite, les effets volumiques que nous avons mesurés se sont révélés bien distincts pour chaque axe et peu différents de ceux obtenus indépendamment par A. de Visser sur un autre cristal. On peut donc supposer que le dédoublement des points de Laue résulte d'un effet de mosaïque dans le cristal (bien que seule la surface ait été examinée par réflexion), mais pas d'un effet de macle.

La **susceptibilité** de ce cristal a été déterminée au-dessus de 1,5 K à partir de mesures d'aimantation effectuées au laboratoire Louis Néel par une méthode d'extraction. Seules les susceptibilités selon les axes a et b ont été mesurées. Les résultats (figure V.9) sont en bon accord avec ceux que nous avons rappelés au chapitre précédent, en particulier le maximum de χ_a et la remontée de χ_b à basse température.

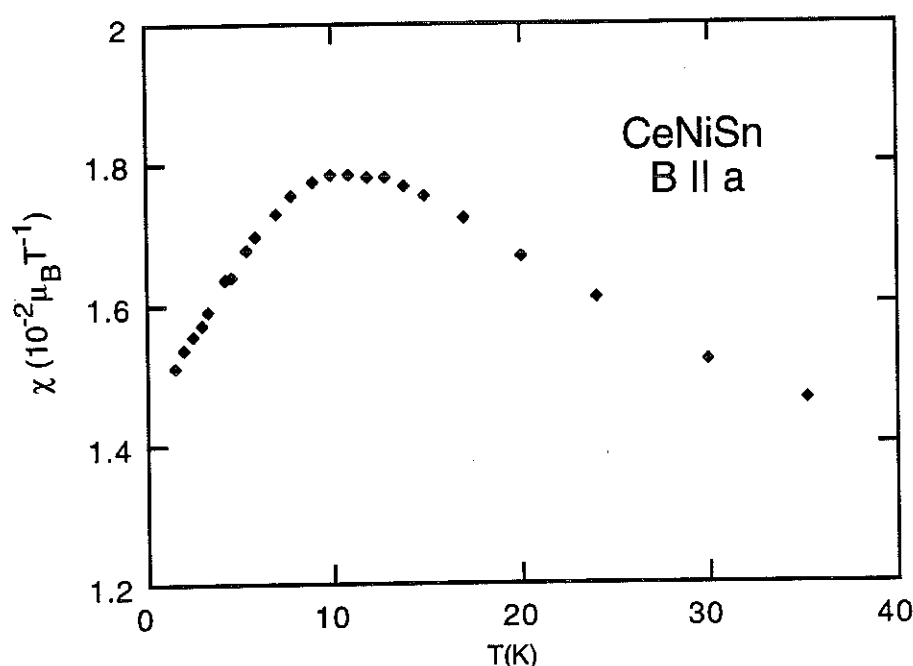


Figure V.9 : Susceptibilité du cristal de CeNiSn étudié (axe a)

L'aimantation, mesurée comme indiqué ci-dessus, est linéaire jusqu'à 7 Tesla, même selon l'axe a. D'autres mesures ont été effectuées au SNCI, jusqu'à 20 T entre 1,5 et 30 K. Enfin, $M_a(H)$ a été mesurée jusqu'à 0,1 K et dans 14 Tesla au laboratoire Louis Néel. Cependant, en raison de la taille réduite de l'échantillon, de la faible valeur de son aimantation et de la moindre sensibilité des appareils, ces deux dernières séries de mesures devaient être entachées d'un terme parasite (contribution du porte échantillon) dont il était difficile de tenir compte précisément.

A l'état brut, on observe comme précédemment [Takabatake 1990] que M_b et M_c sont linéaires avec H à 4,2 et 1,5 K. De même, au-dessus de 10 K environ et jusqu'à 30 K (limite de nos mesures), $M_a(H)$ est parfaitement linéaire avec H jusqu'à 20 T. Par contre, dans les mesures jusqu'à 20 T, à 4,2 et 1,5 K, nous n'avons pas retrouvé le point d'inflexion à 14 T observé par Takabatake : $M(H)$ semble montrer une courbure continue vers le haut. Enfin, aucune dépendance en température de $M_a(H)$ n'a été observée au-dessous de 1,5 K : toutes les courbes sont parfaitement superposables. Cependant, l'impossibilité de les corriger précisément laisse subsister une certaine barre d'erreur sur les résultats, qui demanderaient à être confirmés par des nouvelles mesures.

La **chaleur spécifique** a été mesurée par H. Suderow et coll. [1994] sur plusieurs cristaux de CeNiSn, entre autre aussi sur le nôtre (figure V.10) entre 10 mK et 8 K et 20 K et 300 K. C/T présente un large maximum à 60 K qui est aussi observé dans LaNiSn. Entre 8 K et 20 K, on attend une bosse dans C/T qui correspond au maximum de la contribution magnétique à 8 K (cf. figure V.5). Au-dessous de 8 K, C/T varie presque linéairement avec la température à l'exception de deux anomalies (flèches dans l'encart de la figure V.10) qui ont été attribuées à des phases parasites dans le cristal : Ce_2O_3 (6 K) et $CeNi_2Sn_2$ (3 K) [Takabatake 1994]. Au-dessous de 100 mK, C/T remonte au refroidissement, comme observé par ailleurs [Takabatake 1992a].

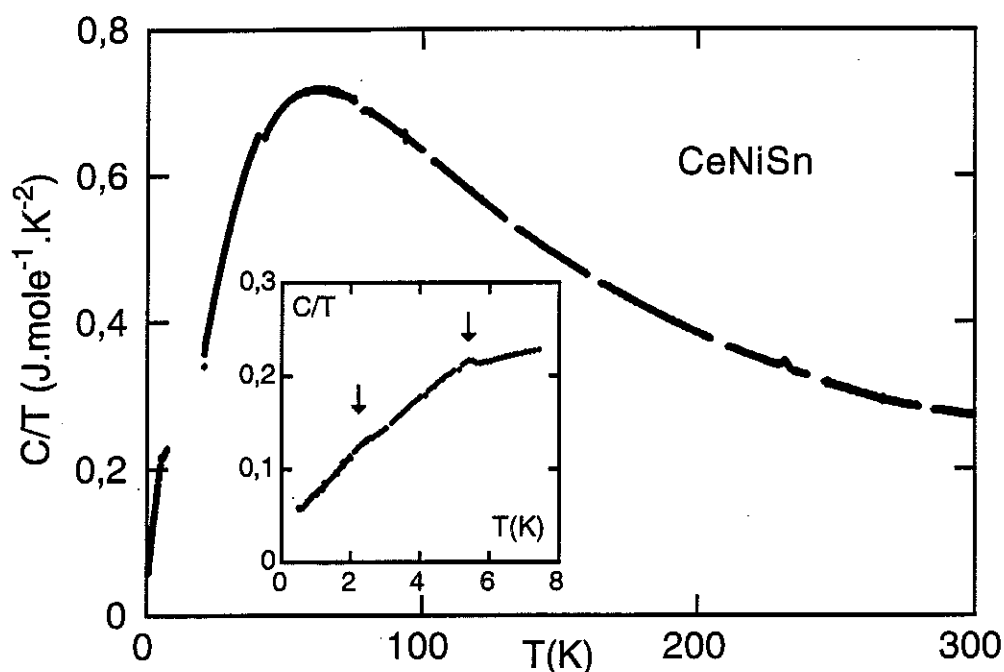


Figure V.10 : Chaleur spécifique C/T de CeNiSn [Suderow 1994].

La **résistivité** de petits monocristaux provenant du même bain que l'échantillon étudié, a été mesurée par H. Bioud (figures V.11a et b). Les résultats sont en accord avec ceux rappelés au chapitre précédent. On peut y observer plus en détail les principales caractéristiques que nous avons énoncées. La **magnétorésistance** [Bioud 1994] est négative pour un champ magnétique dirigé suivant l'axe a ; cependant, pour $i \parallel a$, on peut observer une faible contribution positive à $T = 1,5$ K (figures V.12.a et 12.b).

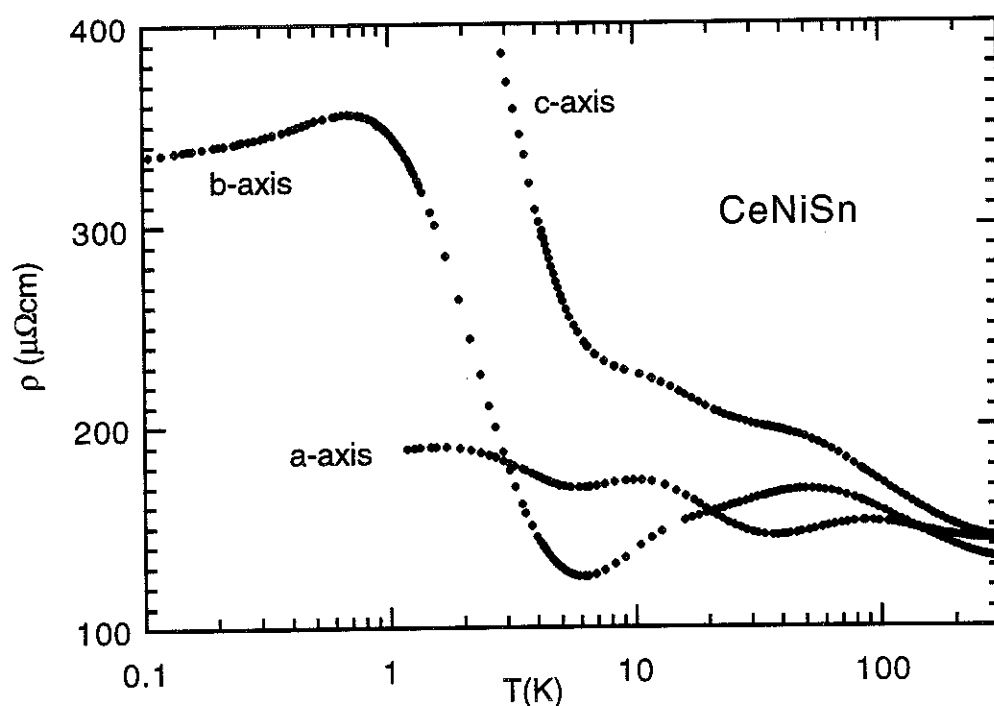


Figure V.11.a : Résistivité selon les trois axes de petits monocristaux tirés du même bain que l'échantillon de CeNiSn étudié (échelle $\log T$) [Bioud 1994].

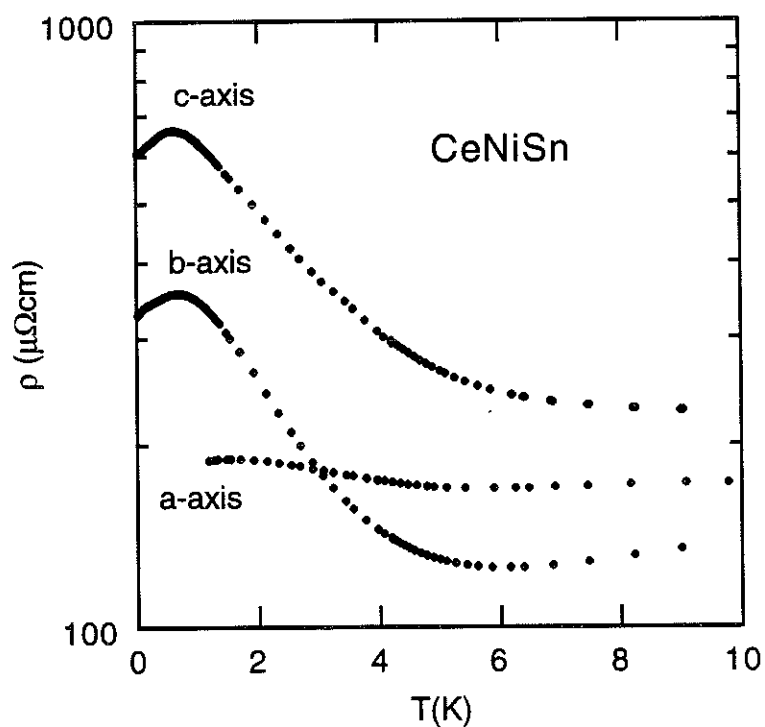


Figure V.11.b : Résistivité selon les trois axes de petits monocristaux tirés du même bain que l'échantillon de CeNiSn étudié (détails basse température).

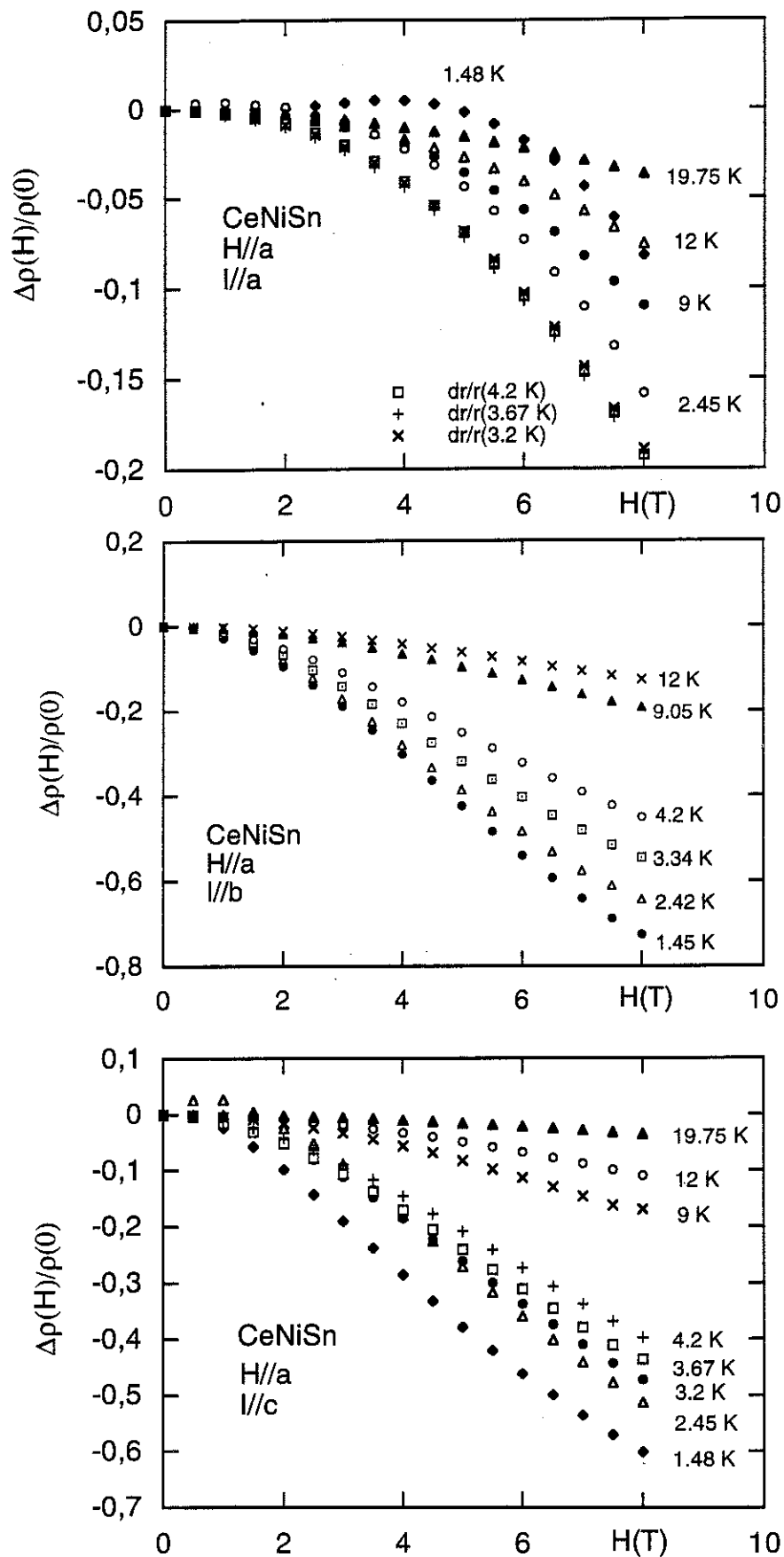


Figure V.12.a : Magnétorésistance de CeNiSn pour $H // a$ et le courant suivant les trois directions cristallines [Bioud 1994].

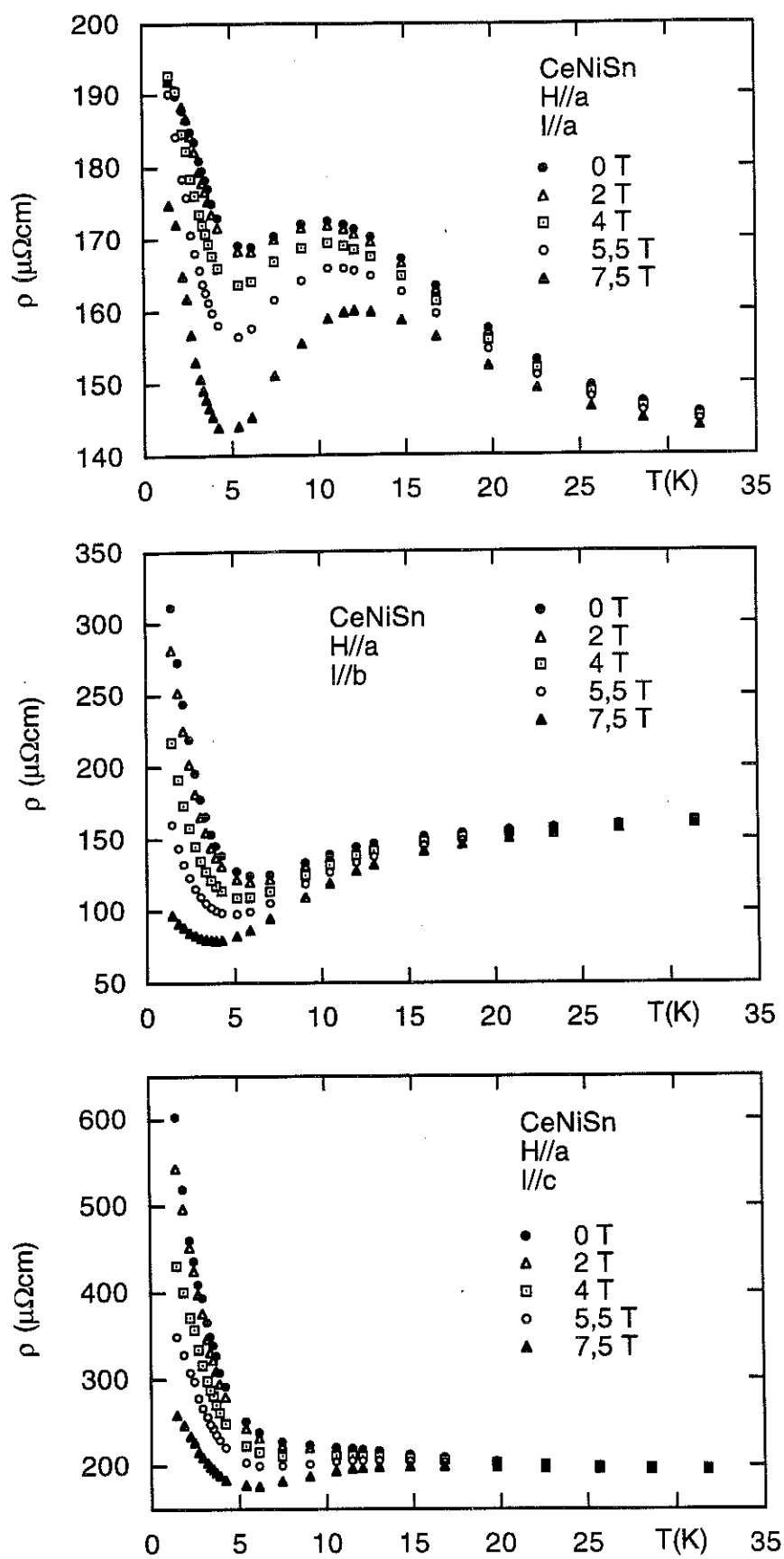


Figure V.12.b : Résistivité sous champ de CeNiSn pour H // a et le courant suivant les trois directions cristallines [Bioud 1994].

V.2.2. RESULTATS ET ANALYSE : DILATATION THERMIQUE

Nous avons mesuré la dilatation thermique du monocristal selon les trois axes cristallographiques entre 0,2 et 300 K. Comme dans les études précédentes, la partie à haute température ($T < 1,5$ K) a été mesurée dans le cryostat ^4He jusque dans 8 T, cependant que la partie basse température était mesurée dans le cryostat à dilution jusque sous 11 T. Toutes ces mesures ont été effectuées avec $B // a$, axe de facile aimantation¹

V.2.2.a. : Partie haute température ($T \geq 15$ K) : Résultats et analyse

Les variations des coefficients de dilatation thermique selon les 3 axes à haute température, en champ nul, sont représentées sur la figure V.13. On constate une forte anisotropie. Toutefois, les axes a et b sont très semblables. Dans les deux cas, on observe un maximum de α autour de 55 K. Le coefficient de dilatation thermique selon l'axe c, après un large maximum à 180 K, change de signe à 55 K, température où l'on observe un maximum de α_a et α_b , puis passe par un minimum à 30 K.

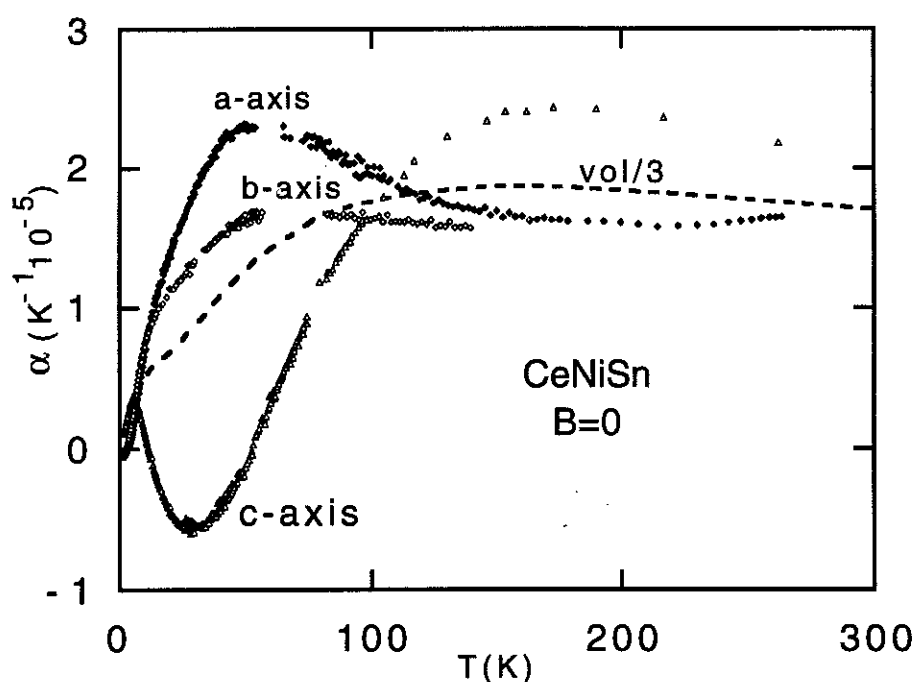


Figure V.13 : Dilatation thermique de CeNiSn, au-dessous de 300 K, en champ nul.

¹Nous avons effectué quelques mesures de dilatation suivant l'axe c dans des champs magnétiques dirigés suivant les axes b ou c : la dilatation thermique suivant les trois axes est alors indépendante du champ magnétique.

En volume, cette variation de α_c est compensée par celles des deux autres coefficients. On voit que α_v présente simplement un faible maximum autour de 160 K puis diminue rapidement au-dessous de 100 K. Il est donc intéressant de regarder s'il y a des relations entre certains coefficients.

La variation thermique du coefficient de dilatation moyen dans le plan b-c, $(\alpha_b + \alpha_c)/2$, est tracée sur la figure V.14, en comparaison avec celle de α_a . Ce dernier coefficient décroît de façon logarithmique au-dessous de son maximum à 55 K et change de comportement vers 6 K. Le terme $(\alpha_b + \alpha_c)/2$ possède deux maximums, l'un à 10 K et l'autre à 170 K. Il est remarquable que les anomalies de ces deux contributions sont indépendantes l'une de l'autre. Il est également intéressant de noter que les deux contributions sont positives. On peut se demander si le maximum de $(\alpha_b + \alpha_c)/2$ à 10 K est lié avec le maximum de χ_a à 12 K et le maximum de ρ_a à 10 K. De même, on peut se demander si le changement de régime observé dans la variation de α_a est lié à la formation du gap qui est observable surtout selon ρ_b et ρ_c .

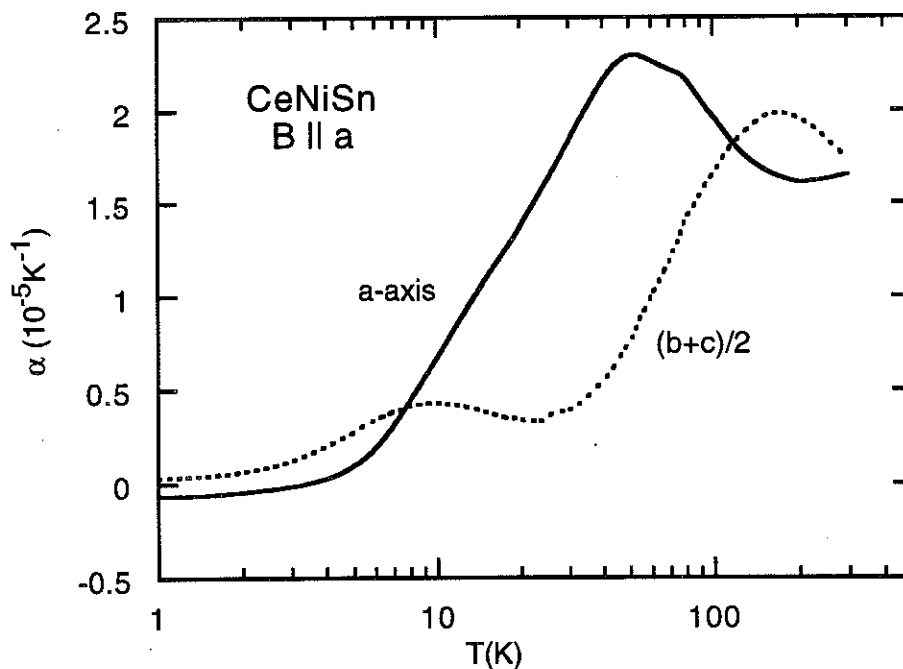


Figure V.14 : Contribution du plan b-c en comparaison avec l'axe a dans le coefficient de la dilatation thermique dans CeNiSn.

La variation thermique du plan a-c, $(\alpha_a + \alpha_c)/2$, est tracée sur la figure V.15, en comparaison avec celle de α_b . Ici on voit clairement une anomalie à 10 K dans les deux courbes, qui ne sont donc pas indépendantes comme celles de la figure V.14. La contribution $(\alpha_a + \alpha_c)/2$ dépend linéairement de la température entre 20 et 80 K.

Pour aller plus loin dans l'interprétation de ces résultats, il serait nécessaire de bien connaître et de soustraire la contribution des phonons. On peut penser que cette dernière devrait être bien représentée par les coefficients de dilatation thermique de LaNiSn.

La dilatation thermique d'un polycristal de LaNiSn a été trouvée négative entre 0,3 et 12 K [Kikoin 1994] et même entre 4,2 et 200 K [Nolten 1994]. En fait elle est relativement élevée et peut être approximée entre 0,3 et 8 K par $\alpha_{\text{LaNiSn},v}(T) = aT$, avec $a = -2,3 \cdot 10^{-6} \text{K}^{-2}$. Des mesures par rayons X [Aliev 1991b] ont montré que la contribution selon les axes a et b est négative, tandis qu'elle est positive selon l'axe c. Ces résultats montrent que LaNiSn présente un comportement anormal comparé à une contribution de phonons habituelle. Il serait souhaitable de mesurer un monocristal de LaNiSn, mais il est difficile d'obtenir des monocristaux à cause de l'évaporation du lanthane pendant leur croissance [de Visser 1994].

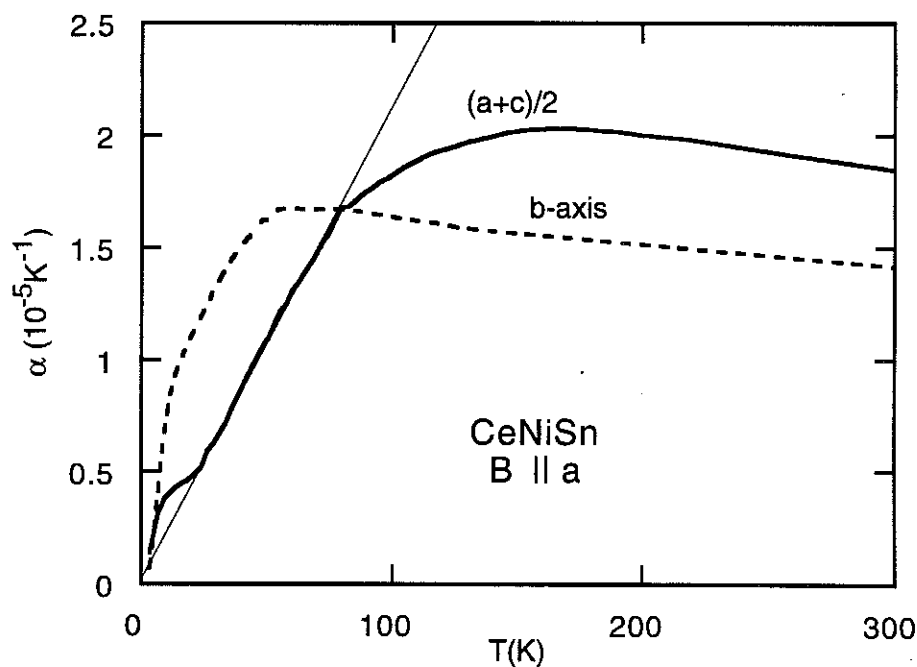


Figure V.15 : Contribution du plan a-c en comparaison avec l'axe b dans le coefficient de dilatation thermique de CeNiSn.

V.2.2.b. : Parties basse et très basse température ($T \leq 15$ K) : Résultats

Les variations à $T < 15$ K des coefficients de dilatation selon les 3 axes à champ nul et sous des champs de 2, 5 et 10 T sont représentées sur la figure V.16, tandis que la figure V.17 représente les détails de ces résultats au-dessous de 2 K.

A champ nul, α_a et α_b changent de signe vers 5 K, puis présentent un minimum bien marqué, mais faible en valeur absolue, situé vers 0,5 K, pour tendre ensuite vers zéro. α_c , qui était négatif avec un minimum à 30 K, change de signe vers 12 K pour devenir positif, passer par un maximum à 6 K et tendre enfin vers zéro. Au passage, α_c présente un "genou" marqué vers 0,5 K.

Sur la figure V.17, il apparaît que α_c se comporte proportionnellement à la différence ($\alpha_b - \alpha_a$), indépendamment du champ magnétique appliqué. En particulier, on voit que α_c devient égal à zéro quand $\alpha_a = \alpha_b$, ou bien que l'axe b est déterminé par les axes a et c, ce qui peut s'écrire : $\alpha_b = a\alpha_a + b\alpha_c$. Par contre, α_v est pauvre en structure, sauf à très basse température : α_v commence à décroître rapidement au-dessous de 10 K (figure V.18), présente un léger point d'inflexion autour de 5 K (figure V.19.a) devient pratiquement nul, voire très légèrement négatif au-dessous de 1 K et présente une petite anomalie positive au-dessous de 0,5 K, dont la véracité sera discuté plus loin (figure V.19.b).

Un champ magnétique orienté selon l'axe de facile aimantation (axe a) n'a d'influence visible sur les différents coefficients que pour des températures inférieures à 12 K (figures V.15 et V.16). Il a tendance à effacer toutes les anomalies qui apparaissent au-dessous de cette température, en particulier dans les variations de α_a et α_b . Le changement de signe de ces deux coefficients à basse température est supprimé pour $B > 2$ T ; à $B \geq 5$ T, α_a et α_b sont alors toujours positifs et décroissent de façon monotone. Le champ réduit fortement le maximum positif de α_c situé vers 6 K, puis détruit le genou observé à basse température ; pour $B \geq 5$ T, α_c devient négatif au-dessous de quelques K et passe par un minimum dont la température augmente avec B (et avoisine 1,7 K sous 11 T). Dans le coefficient de dilatation volumique, le point d'inflexion à 5 K et toutes les anomalies à très basse température disparaissent sous champ magnétique (figure V.19) : sous 8 T, α_v décroît de façon pratiquement monotone.

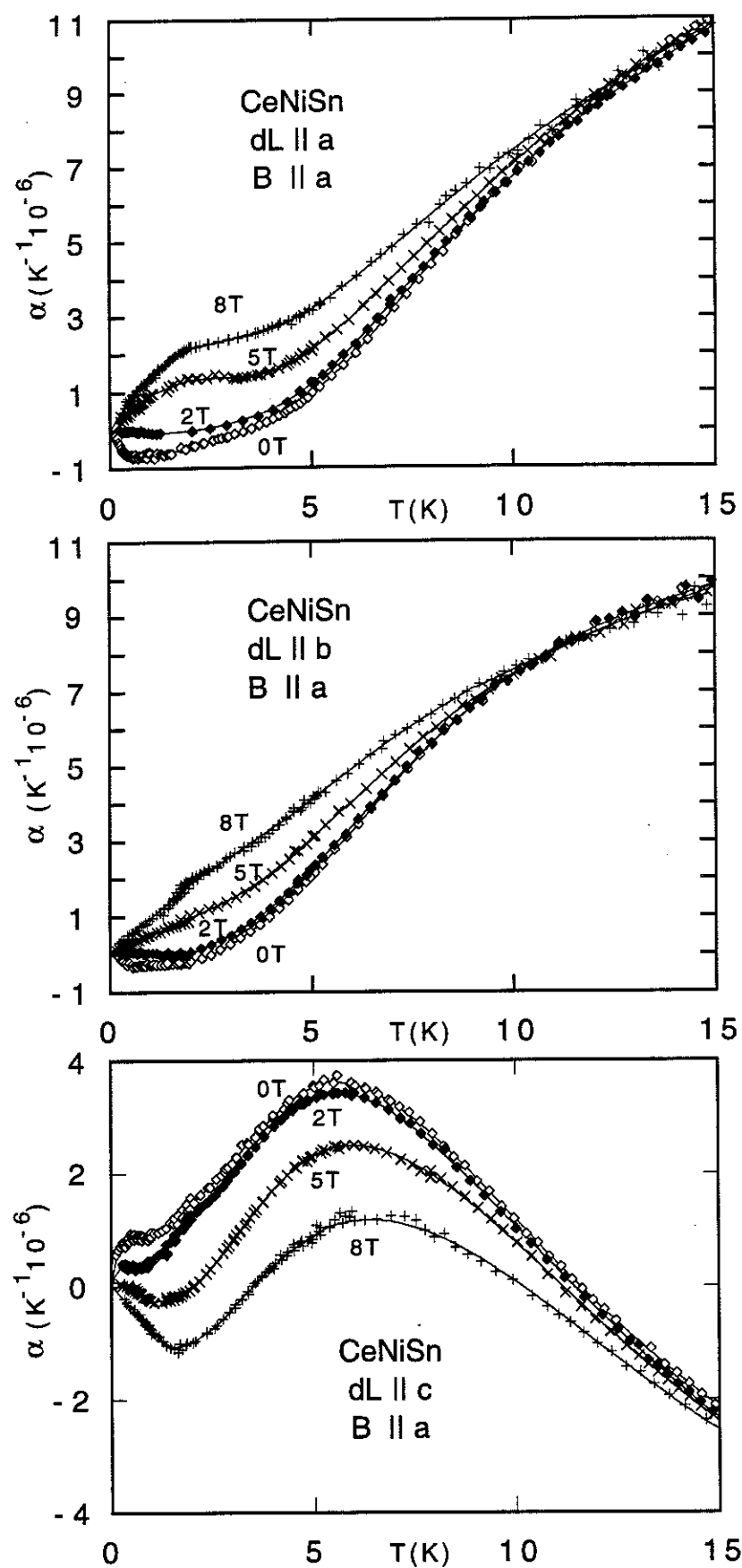


Figure V.16 : Dilatation thermique de CeNiSn selon les trois axes, pour $T < 15$ K et sous des champs magnétiques (selon l'axe a) de 0, 2, 5 et 8 T.

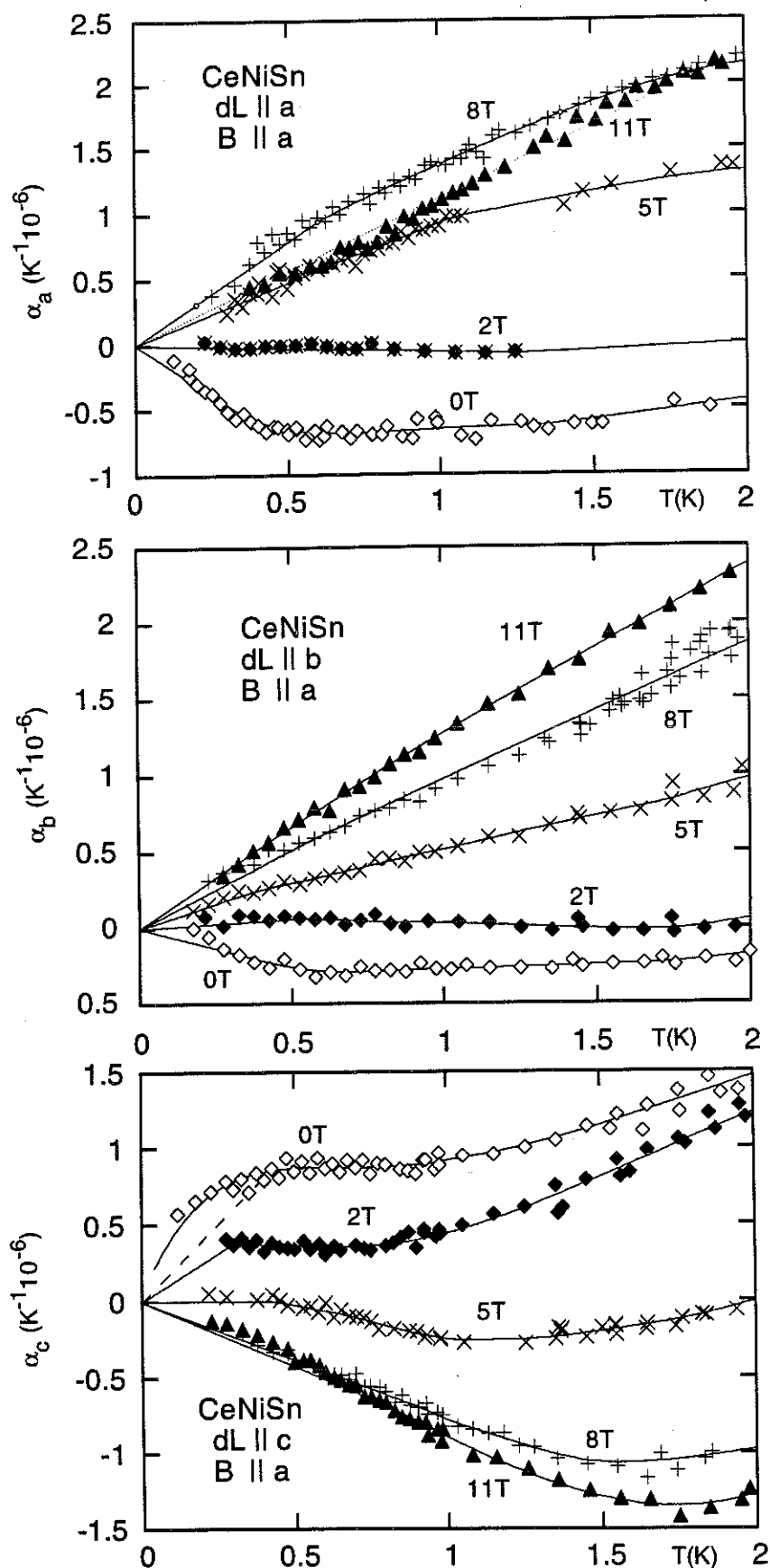


Figure V.17 : Dilatation thermique à basse température ($T < 2 \text{ K}$) de CeNiSn selon les trois axes sous des champs magnétiques ($\parallel a$) de 0, 2, 5 et 8 T. A noter que la variation de α_c à champ nul au-dessous de 0,5 K pourrait éventuellement s'extrapoler par la ligne en tirets.

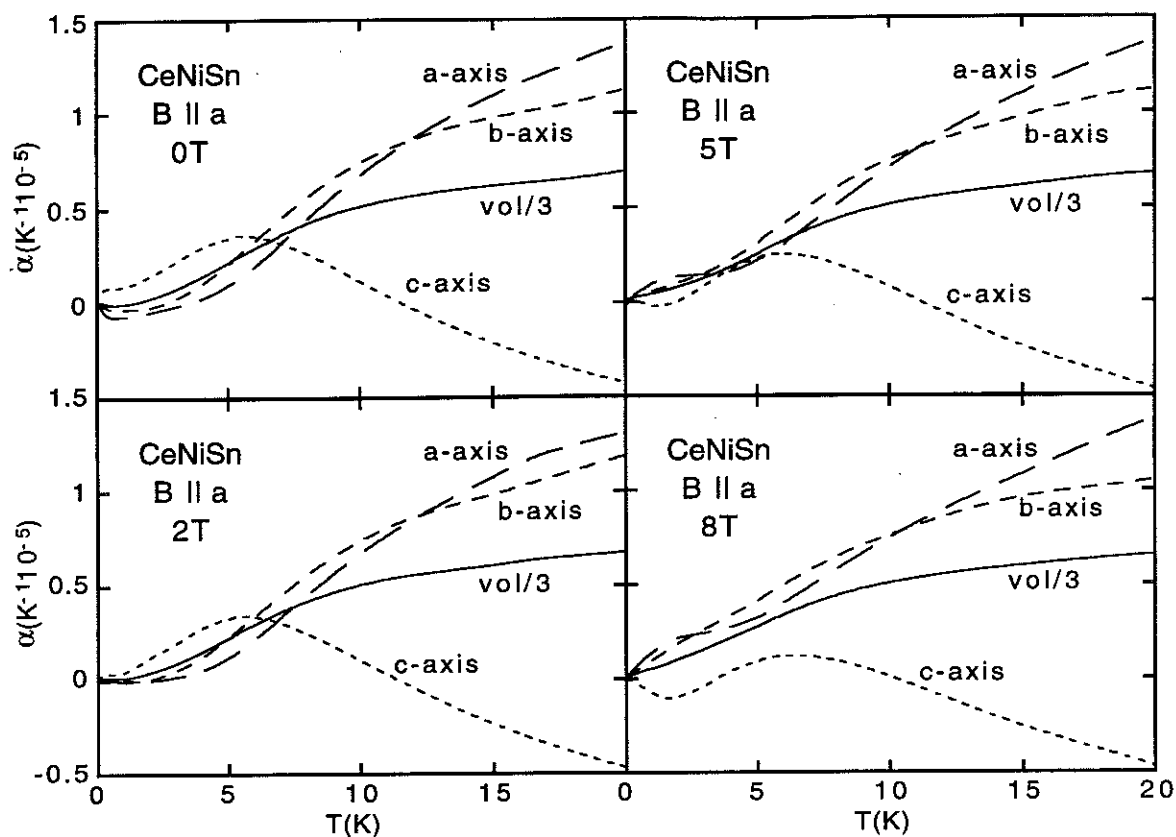


Figure V.18.a: Dilatation thermique uniaxiale de CeNiSn en comparaison avec l'effet volumique sous différents champs magnétiques ($B \parallel a$), à $T < 20$ K.

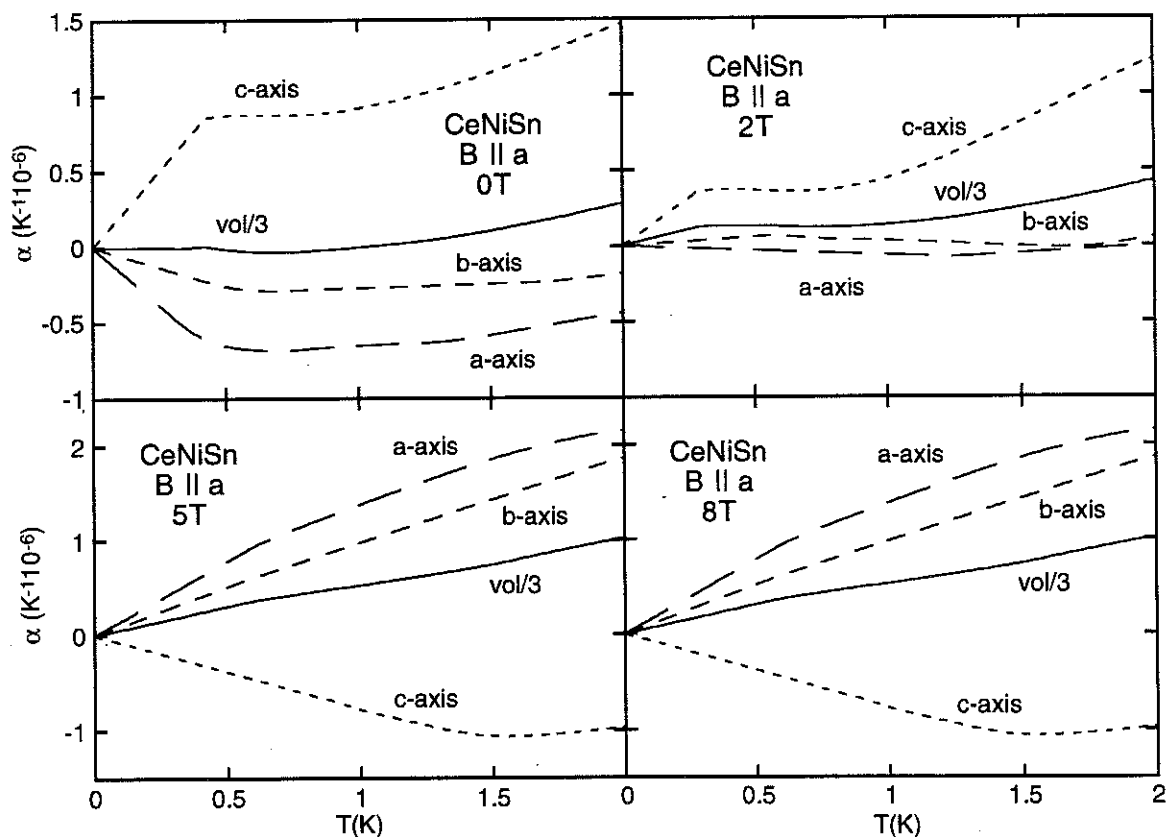


Figure V.18.b: Dilatation thermique uniaxiale de CeNiSn en comparaison avec l'effet volumique sous différents champs magnétiques ($B \parallel a$), à $T < 2$ K.

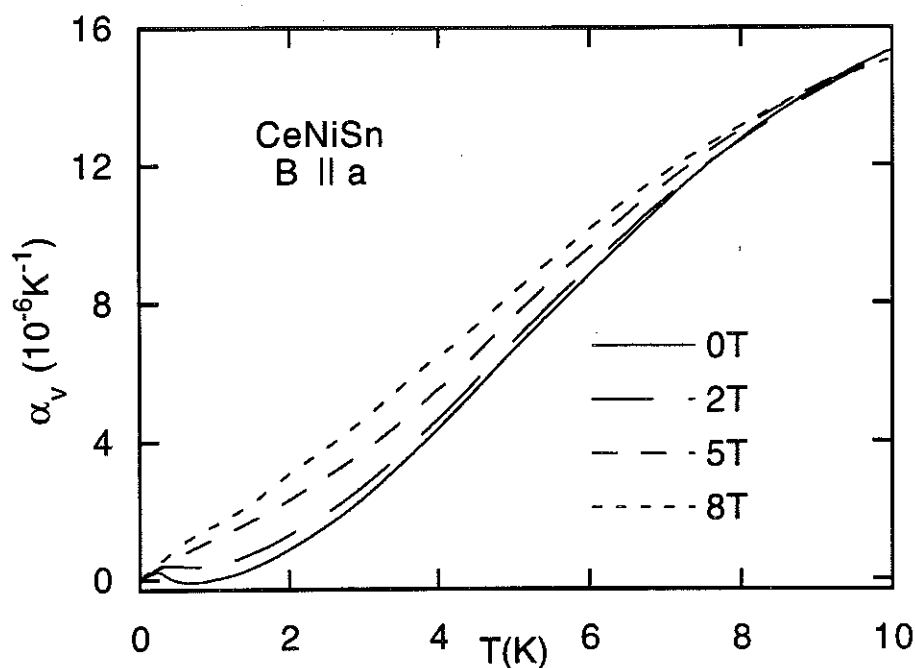


Figure V.19.a : Dilatation thermique volumique de CeNiSn sous différents champs magnétiques (orientés selon l'axe a), pour $T < 10$ K.

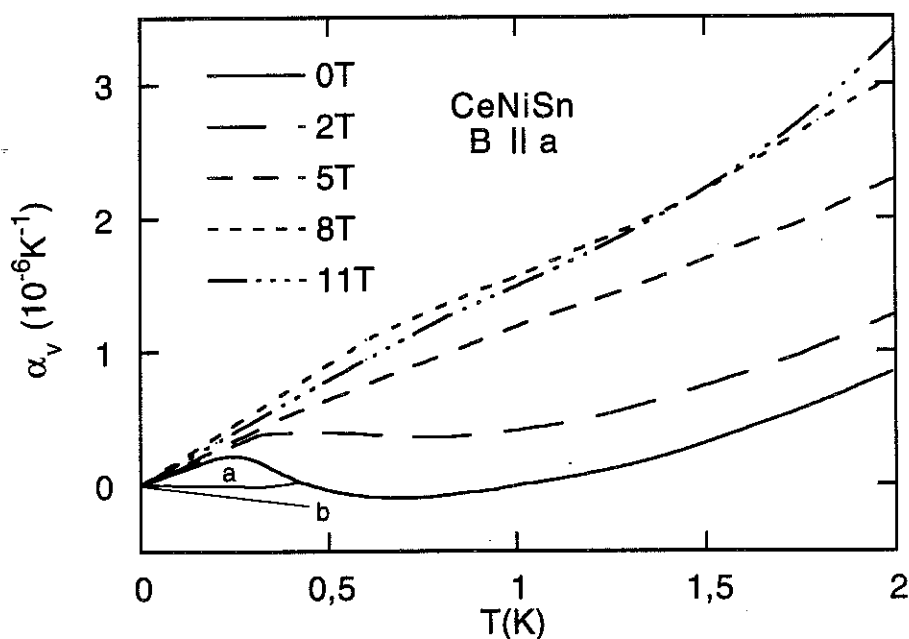


Figure V.19.b : Dilatation thermique volumique de CeNiSn sous différents champs magnétiques ($T < 2$ K). Dans la variation à champ nul au dessous de 0,5 K, la ligne a représente α_v déterminé à partir de α_c approximé par la ligne en tirets de la figure V.17. la ligne b représente la pente initiale attendue d'un paramètre de Grüneisen de -12 (voir chapitre magnétostriction).

V.2.2.c. Comparaison avec d'autres expériences

La dilatation thermique d'un monocristal de CeNiSn produit par T. Takabatake a été mesurée pour la première fois par la méthode des jauges de contrainte entre 4,2 et 300 K et aussi sous pression hydrostatique jusqu'à 8 kbar [Uwatoko 1991]. Les résultats sont approximativement en accord avec les nôtres, sauf que ces auteurs observent une anomalie très prononcée à 45 K, selon tous les axes. Deuxièmement l'axe b présente un maximum à 7 K, qui n'est pas observé dans nos mesures. Ces différences peuvent résulter d'un effet des jauges de contrainte.

Le cristal précédent a été étudié par A. de Visser entre 0,3 et 12 K et à 0, 4 et 8 T [Kikoin 1994]. Les résultats sont cette fois en bon accord avec les nôtres. Par contre, à champ nul, α_v ne devient pas négatif mais décroît lentement vers zéro au refroidissement (figure V.20.a). Il apparaît également un croisement de α_a et α_b à 2 K, que nous n'avons pas observé.

Enfin, des mesures ont été aussi effectuées sur un polycristal au moyen d'une cellule capacitive [Aliev 1993]. Un minimum négatif et très profond de α_v est observé au-dessous de 1 K. On suppose que cet effet résulte de phases parasites dans le polycristal. Les mêmes auteurs [Aliev 1994] ont publié des résultats sur un monocristal en champ nul (figure V.20.b). α_v est négatif entre 0,8 et 1,6 K ce qui est qualitativement en accord avec nos résultats.

En résumé, les résultats obtenus sur trois monocristaux sont donc en très bon accord, sauf à très basse température, où tous sont un peu différents. Au paragraphe suivant, nous allons donc discuter, dans quelle mesure le comportement que nous observons à basse température est intrinsèque ou pas et, tenant compte de la faible valeur de α_v , s'il y a des incertitudes provenant de la contribution de la cellule.

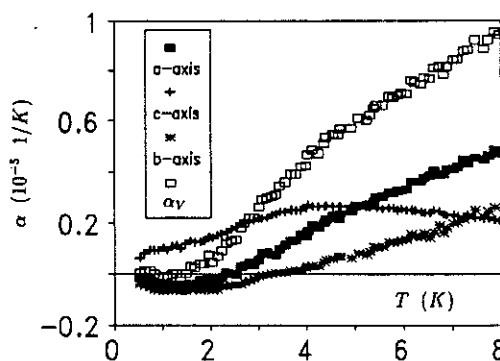
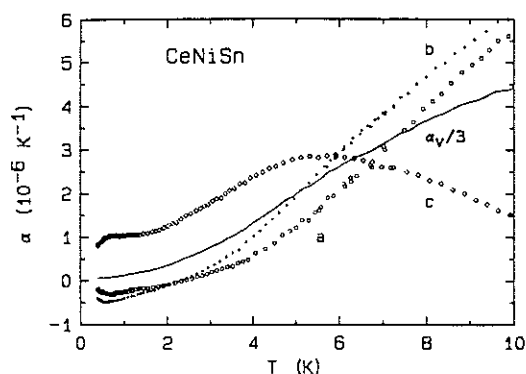


Figure V.20.a : Dilatation thermique mesurée par de Visser [Kikoin 1994]. Figure V.20.b : Dilatation thermique mesurée par Aliev [1994].

V.2.2.d. Analyse des résultats de dilatation thermique à basse et très basse température

On peut supposer que le point d'inflexion de α_v autour de 5 K est dû à l'ouverture du gap.

Entre 1 et 5 K, α_v obéit à l'expression : $\alpha_v/3 = a + AT + BT^2$. La variation des paramètres A et B est tracée sur la figure V.21. Ces résultats sont en bon accord avec ceux de de Visser [Kikoin 1994]. Le terme AT correspond au terme linéaire de la chaleur spécifique ; BT^2 représente le terme dû au gap en forme de V [Kyogaku 1991] ; a est un terme qui tient compte des anomalies à très basse température ($T < 1$ K). L'augmentation de A correspond à l'augmentation de γ sous champ [Takabatake 1992a], pendant que la chute du coefficient B résulte de la fermeture du gap.

La figure V.22 représente les variations de α_v/T sous différents champs magnétiques. Cette quantité présente, comme C/T , un maximum à 7 K. Le champ magnétique élimine la redescente de α_v/T à très basse température et on peut supposer qu'il existe un champ au-delà duquel α_v/T augmente continûment au refroidissement (sans présenter de maximum). La valeur à saturation de α_v/T dans la limite $T \rightarrow 0$, peut être estimée à : 2.10^{-6} K^{-2} .

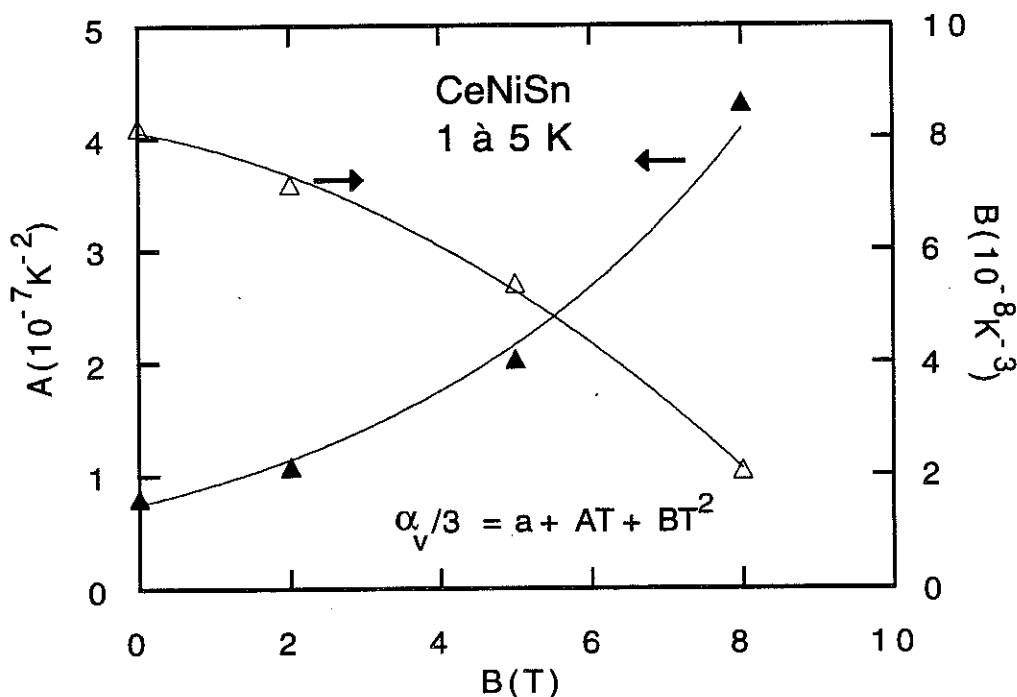


Figure V.21 : Dépendance des termes A et B, qui représentent la variation de $\alpha_v(T) = a + AT + BT^2$ entre 1 et 5 K dans CeNiSn.

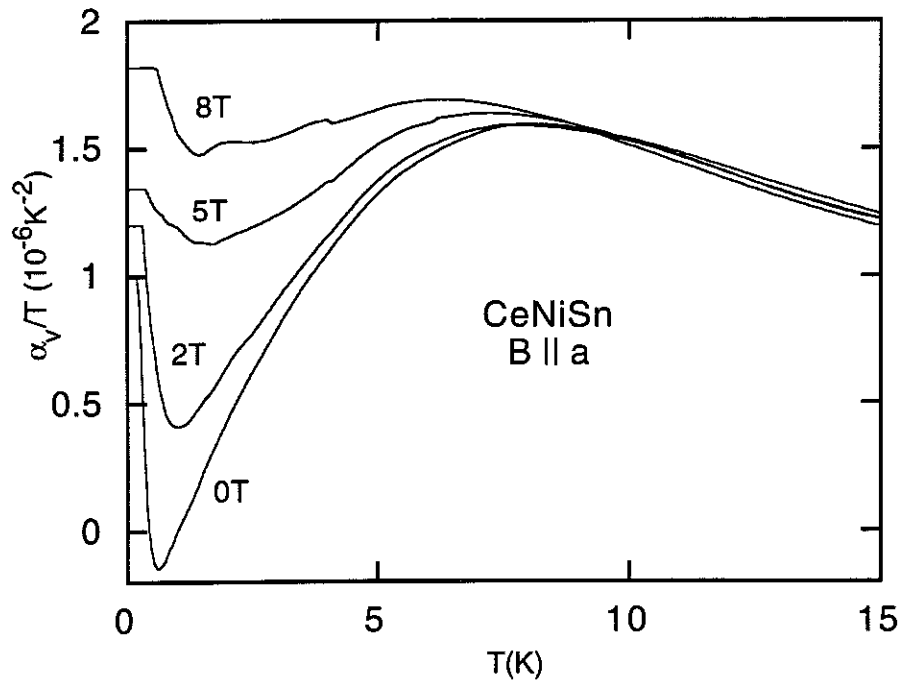


Figure V.22 : Variation de α_v/T de CeNiSn sous différents champs magnétiques dirigés selon l'axe a .

Pour calculer le paramètre de Grüneisen, on dispose de valeurs de la compressibilité isotherme, $\kappa = 1,8 \cdot 10^{-11} \text{ m}^2/\text{N}$ [Uwatoko 1994] et du volume molaire, $V_m = 4 \cdot 10^{-5} \text{ m}^3/\text{mole}$. Il serait nécessaire, pour obtenir le paramètre de Grüneisen électronique Γ_{eff} , d'avoir soustrait à la variation de α_v de CeNiSn, celle de LaNiSn ; nous avons mentionné plus haut (fin du § V.2.2.a) que cette dernière est anormale puisque variant comme $-2,3 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-2}$ entre 0,3 et 8 K, [Kikoin 1994] alors qu'elle devrait être positive dans cette zone. Nous avons donc décidé de ne pas tenir compte de cette variation. De même, il serait nécessaire de n'utiliser que la contribution magnétique à la chaleur spécifique de CeNiSn (après soustraction de celle des phonons, c. à d. de celle de LaNiSn). Les résultats de Takabatake [1990] (figure V.5) montrent que cette dernière est négligeable pour $T < 5 \text{ K}$.

Nous avons calculé la variation thermique du paramètre de Grüneisen à champ nul en utilisant les mesures de chaleur spécifique effectuées sur le même cristal par Suderow [1994] (figure V.10). Cette variation de Γ_{eff} à champ nul est représentée sur la figure V.23. On arriverait à un résultat analogue à partir des mesures de chaleur spécifique de Takabatake [1990].

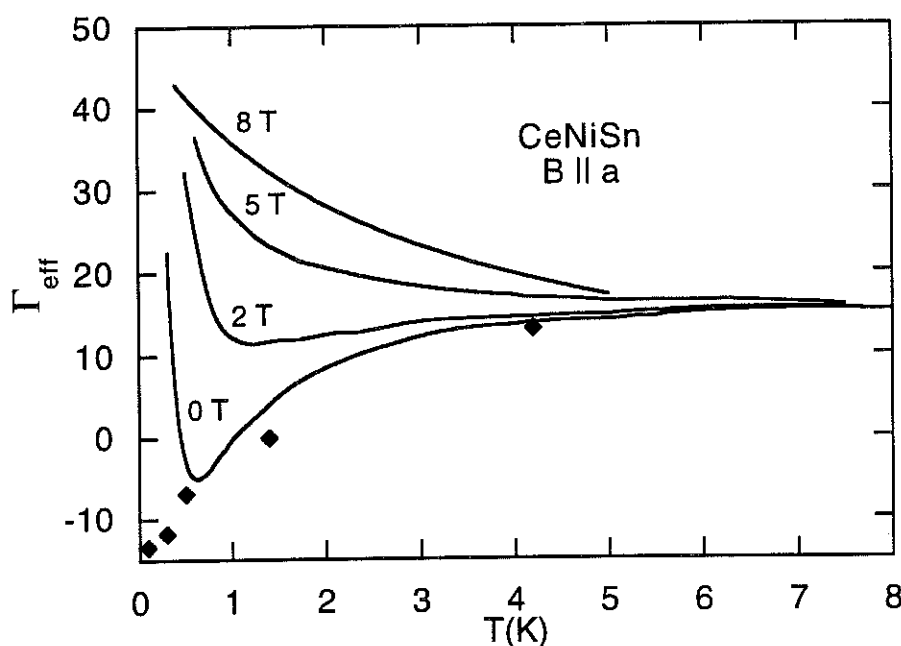


Figure V.23 : Paramètre de Grüneisen effectif, Γ_{eff} , pour différents champs magnétiques. Les losanges représentent le paramètre de Grüneisen magnétique, Γ_B , obtenu à partir des résultats de magnétostriction.

Un calcul des variations de Γ en fonction de T sous différents champs nécessiterait de posséder des mesures de chaleur spécifique sous champ dans toute la gamme de température qui nous intéresse. Mais C/T sous champ n'a été mesuré qu'à des températures inférieures à 1 K [Takabatake 1990] (figure V.5).

Nous avons donc calculé en premier lieu les valeurs de Γ pour $T \rightarrow 0$ à partir de ces résultats et des pentes initiales de $\alpha_v (\equiv aT)$ sous champ relevées sur la figure V.18.b. La figure V.24 représente la variation en fonction du champ de ces pentes initiales de α_v (et celles des différents coefficients) et les valeurs de Γ qui en découlent. On voit que celles-ci valent environ 30 à champ nul et à 11 T, et passent par un maximum proche de 50 à 8 T.

Nous avons ensuite calculé Γ à partir de variations supposées de C : en première approximation, C/T peut être supposé indépendant du champ pour $T > 5$ K, et variant linéairement entre cette température et les valeurs mesurées à 1 K. Les variations de Γ résultantes sont représentées sur la figure V.23, pour 2, 5 et 8 T.

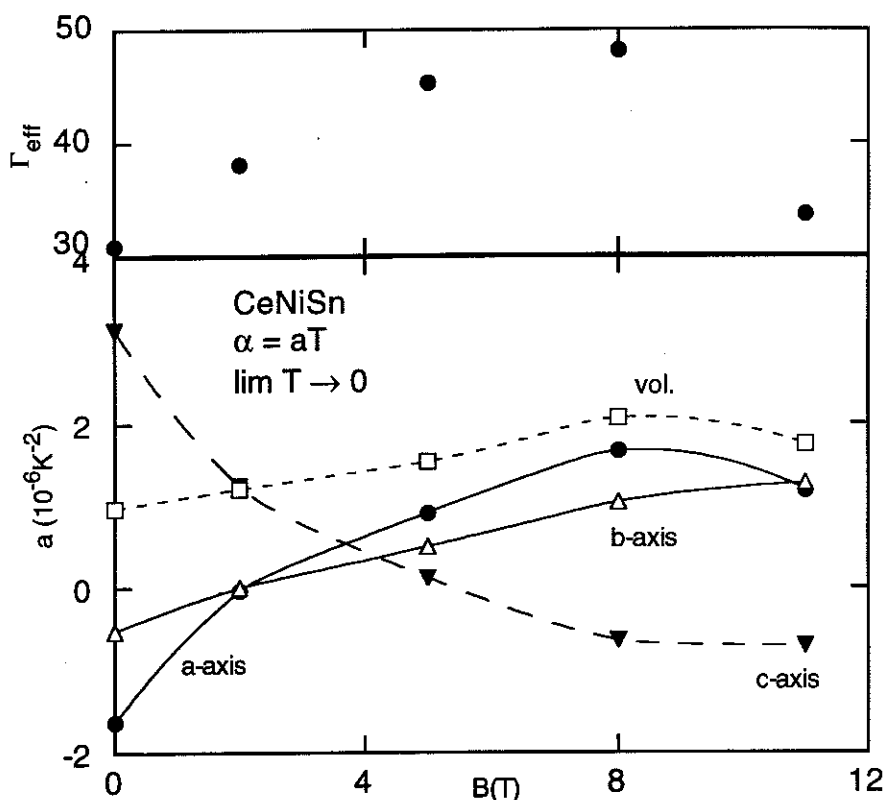


Figure V.24 : en bas : pente initiale linéaire des variations de α_a , α_b , α_c et α_v ($\equiv aT$) sous champ ; en haut : variation de Γ en fonction du champ.

V.2.2.e. Discussion critique des résultats à très basse température

A champ nul, les variations de Γ_{eff} représentées sur la figure V.23 ne montrent pas du tout un comportement habituel de système de fermions lourds. Γ_{eff} chute au-dessous de 6 K, puis passe par un minimum négatif vers 0,7 K, avant de remonter brusquement vers la valeur positive de 30 pour $T \rightarrow 0$ mentionné ci-dessus. Ce minimum s'atténue rapidement sous champ, et déjà pour un champ modeste de 2 T, Γ_{eff} demeure positif dans toute la gamme de température. Finalement, pour $B = 8$ T, on retrouve un comportement classique de fermions lourds, une augmentation pratiquement continue de Γ_{eff} au refroidissement, jusqu'à la valeur proche de 50 pour $T \rightarrow 0$, déjà mentionnée.

Les variations de Γ_{eff} sont nettement dominées par celles de α_v (voir aussi celles de α_v/T sur la figure V.22) puisque chaque fois nous avons pris C/T proportionnel à T au-dessous de 5 K. On peut donc se demander si ces variations sont intrinsèques.

En ce qui concerne α_v , ce dernier ne semble pas s'extrapoler vers zéro d'une façon simple. Son changement de signe vers 1 K semble vrai compte tenu du fait que la dilatation de la cellule apporte un α d'environ $5 \cdot 10^{-8} T^{-1}$ dans cette gamme de température (figure II.3). Il est donc peu probable que le fait que Γ_{eff} devienne négatif, soit un "artefact" de la cellule. Comme on le verra plus loin, au chapitre sur la magnétostriction, il y a encore d'autres indications que Γ_{eff} devient négatif au-dessous de 1 K.

Par contre la remontée de Γ_{eff} à très basse température nécessite un peu plus de critique. Comme nous l'avons mentionné au chapitre II, la dilatation n'a pas pu être mesurée avec la méthode de modulation thermique à cause de la mauvaise conductivité thermique du cristal. Ainsi on a mesuré aussi la contribution de la cellule qui est de l'ordre de $2 \cdot 10^{-7} K^{-1}$ au dessous de 0,5 K. Compte tenu de ce que la dilatation thermique volumique de CeNiSn est faible à cette température, également de l'ordre de $2 \cdot 10^{-7} K^{-1}$, on peut supposer que les courbes contiennent encore un effet de la cellule. En fait, il est bien possible que les contributions uniaxiales du cristal se compensent en calculant l'effet volumique alors qu'on leur additionne celles de la cellule. Cette tendance à obtenir des valeurs positives et trop élevées de α_v a pu être observée dans toutes nos expériences. Ainsi, il est bien possible que la remontée brusque de Γ_{eff} dans CeCu₆ à très basse température soit seulement un effet de la cellule.

Une autre difficulté vient du fait que, dans CeNiSn, le comportement linéaire de α avec la température ne s'annonce qu'au-dessous de 0,5 K, à champ nul, surtout suivant l'axe c . Comme on peut le voir sur la figure V.17, la pente dans la limite $T \rightarrow 0$ est très difficile à déterminer dans ce cas. La prédominance de α_c à très basse température peut mener à une grande incertitude sur α_v . Rappelons que dans cette zone l'erreur dans la dilatation thermique uniaxiale peut être facilement 10 %. A champ nul, α_v est ici de l'ordre de 20 % de α_c . Ainsi, le petit maximum de α_v au-dessous de 0,5 K (figure V.19.b) a pratiquement disparu, si la pente initiale de α_c est choisie comme indiqué sur figure V.17 par la ligne en tirets.

Qu'en est-il de la remontée de Γ_{eff} observée sous champ à très basse température ? A 2 T, les contributions uniaxiales (figure V.17) sont encore très prononcées, mais la remontée de Γ_{eff} commence déjà à 1 K, où la contribution de la cellule n'est pas encore si importante. Ainsi cette remontée ne peut vraisemblablement pas être attribuée à un effet de la cellule. Pour des champs plus élevés, la pente linéaire de α_v dans la limite $T \rightarrow 0$ est plus facile à déterminer, par contre les valeurs de la chaleur spécifique sont seulement estimées. Il faut souligner que des anomalies analogues à très basse température, qui mènent à une augmentation de Γ_{eff} , ont été observées par les autres auteurs [Kikoin 1994, Aliev 1994].

Quant aux valeurs de Γ dans la limite $T \rightarrow 0$ (figure V.24), elles sont relativement élevées, mais comportent également une barre d'erreur très importante, surtout à champ nul. A noter que la valeur maximale de Γ ($T \rightarrow 0$) est observé à 8 T et que Γ est déjà considérablement plus faible à 11 T. En champ intense avec les valeurs limites $0,2 \text{ Jmole}^{-1}\text{K}^{-2}$ pour γ et $1,8 \cdot 10^{-6}\text{K}^{-1}$ pour α_v , Γ devrait s'abaisser à environ 20. On remarque qu'une suppression du paramètre du Grüneisen sous champ magnétique a été aussi observée dans CeCu_6 et peut être interprétée comme un comportement "normal" d'un système de fermions lourds sous champ. Pour confirmer ce point, il serait utile d'effectuer des mesures de dilatation thermique (et de chaleur spécifique) jusque dans des champs très élevés (sans doute supérieurs à 20 T).

En conclusion, on peut dire que le paramètre de Grüneisen devient négatif à très basse température. Ce comportement est attendu d'après les résultats des expériences sous pression, qui montrent que le gap est supprimé par application de la pression. Comme on va le voir par la suite, la magnétostriction nous fournit des résultats importants à ce propos. Mais si le paramètre de Grüneisen peut être attribué au gap semiconducteur, il est alors plus sensible à la destruction de ce gap par le champ que les propriétés de transport (voir figure V.12). Rappelons le cas de CeCu_6 , où Γ_{eff} s'effondre plus rapidement que le terme linéaire de la chaleur spécifique sous champ. Dans CeNiSn , la remontée de Γ à très basse température, bien que non totalement confirmée, peut être comparée à la redescende de la résistivité électrique au-dessous de 1 K. Son origine est-elle extrinsèque ou intrinsèque, cela n'est pas encore clair. Une étude encore plus précise, avec une cellule de dilatation absolue, nous paraît utile pour éclaircir ce point.

V.2.3 . RESULTATS ET ANALYSE : MAGNETOSTRICTION

La magnétostriction a été mesurée selon les trois axes dans le cryostat à dilution jusqu'à 11 T et dans un cryostat à ^4He au laboratoire des champs intenses (SNCI/MPI) jusqu'à 20 T, toujours avec le champ orienté selon l'axe a, bien que d'autres configurations puissent être intéressantes².

A 4,2 K, les axes a et b présentent une magnétostriction positive alors que selon l'axe c elle est négative (figure V.26.a). A plus basse température, la magnétostriction selon les axes a et b est négative au départ, puis passe par un minimum très arrondi, pour redevenir positive à partir d'un certain champ (figure V.26.b). A l'inverse, un maximum positif apparaît dans λ_c . On constate qu'à toutes les températures λ_c et λ_b ont tendance à se compenser. Il est intéressant de noter que les trois courbes se coupent en un même point, donc que λ_a , λ_c et λ_b ont la même valeur pour un certain champ magnétique.

Toutes les courbes de magnétostriction volumique $dV/V = \lambda_v$ en fonction de B, jusqu'à 8 T, sont rassemblées sur la figure V.27 ; λ_v reste toujours positive sauf aux plus basses températures, où elle passe par un faible minimum négatif à 2 T. A 8 T, λ_v augmente avec la température de $3,5 \cdot 10^{-6}$ à 0,1 K jusqu'à $5,5 \cdot 10^{-6}$ à 4,2 K.

Sur la figure V.27 on observe qu'entre 0,1 et 4,2 K la magnétostriction est d'autant plus forte que la température est plus haute. Ce comportement est tout à fait le contraire de celui observé dans CeCu₆ (figure IV.34). Ce

²La magnétostriction pour $dL//c$ et $B//b$ est représentée en fonction de B^2 sur figure V.25. Il est intéressant de noter qu'elle est du même ordre qu'avec $B//a$. Toutefois, pour tirer des conclusions définitives, on a besoin de l'effet volumique. Par contre, un champ dirigé suivant l'axe c n'avait aucun effet de magnétostriction pour $T > 4,2$ K.

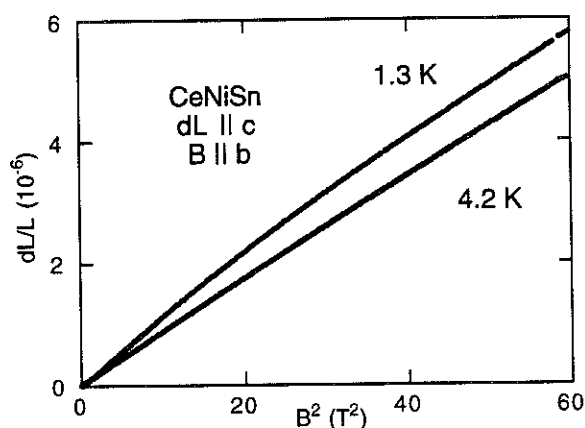


Figure V.25 : Magnétostriction de CeNiSn $dL//c$, pour $B//b$.

dernier cas a été expliqué par la formation du singulet de Kondo à basse température ; de plus, dans CeCu_6 , la proportionnalité entre λ' et H sur une assez grande plage de champ nous a permis d'obtenir des valeurs du paramètre de Grüneisen magnétique, Γ_B , très proches de celles de Γ_{eff} . Dans CeNiSn , on observe ce comportement seulement à haute température, à $T > 4,2 \text{ K}$. Par contre, à basse température, la magnétostriction volumique ne semble s'approcher de la loi $\lambda \approx B^2$ qu'en champ intense, avec approximativement la même pente qu'à haute température, comme semble le montrer la figure V.28. En fait cette proportionnalité n'est réalisée qu'à plus haut champ (voir plus loin les mesures jusque dans 20 T).

A faible champ et très basse température, la magnétostriction est faiblement négative. Sur la figure V.29, nous avons tracé λ'_v . Cette dernière quantité obéit à l'équation I.8. Si l'on tient compte de ce que la susceptibilité magnétique (figure V.9) varie seulement d'environ 10 % entre la limite $T \rightarrow 0$ et 4.2 K, et si l'on suppose l'identité entre les paramètres de Grüneisen magnétique et thermique, le terme proportionnel à dM/dH peut être négligé en première approximation dans cette équation. Si l'on suppose ensuite que $\lambda'_v = \ell H$, on peut estimer le paramètre de Grüneisen magnétique à partir de la relation simplifiée (voir aussi page 133) :

$$\Gamma_B = \frac{\ell}{\kappa \chi_{\text{vol}}} \quad (\text{V.2})$$

On voit sur la figure V.29 que le régime linéaire en champ est difficile à obtenir à très basse température et l'erreur faite sur Γ_B peut s'élever de 10 à 20 %. Toutefois on obtient une valeur de Γ_B négative à très basse température, qui varie ensuite en bon accord avec Γ_{eff} lorsque la température augmente. Ces valeurs de Γ_B sont représentées par des triangles sur la figure V.23. Ces résultats paraissent montrer qu'il y a une compétition entre deux contributions au paramètre de Grüneisen : la première de type fermions lourds, valant entre 40 et 50, la seconde, négative, de l'ordre de - 10, que l'on peut attribuer à l'existence du gap. Cette dernière n'est pratiquement observée qu'au-dessous de 1 T, bien que ses manifestations restent visible encore en champs intenses. Par contre, la remontée du paramètre de Grüneisen au-dessous de 0,5 K, observée dans les expériences de dilatation thermique, n'a pas pu être confirmée.

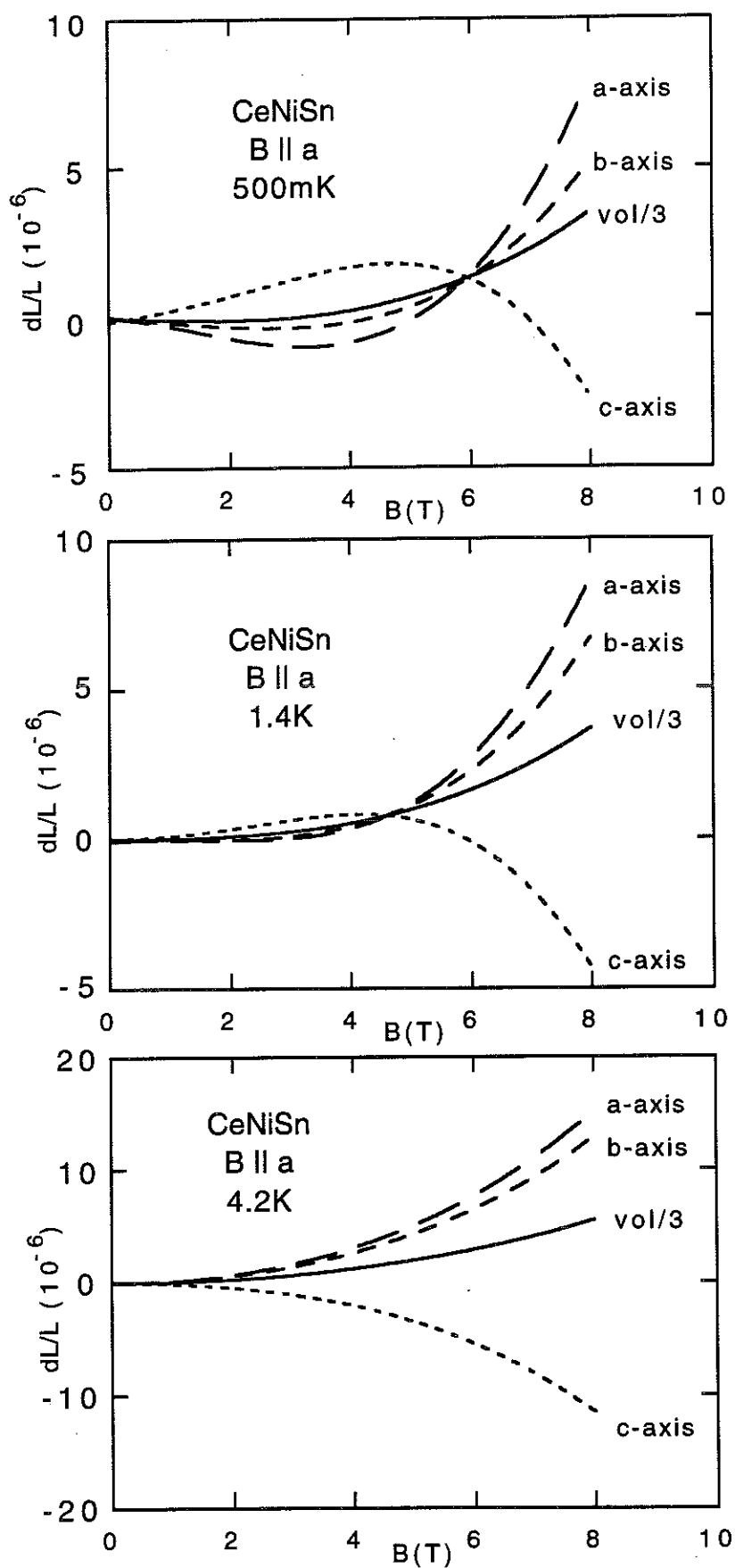


Figure V.26.a : Magnétostriction de CeNiSn, $T = 0,5, 1,4$ et $4,2$ K.

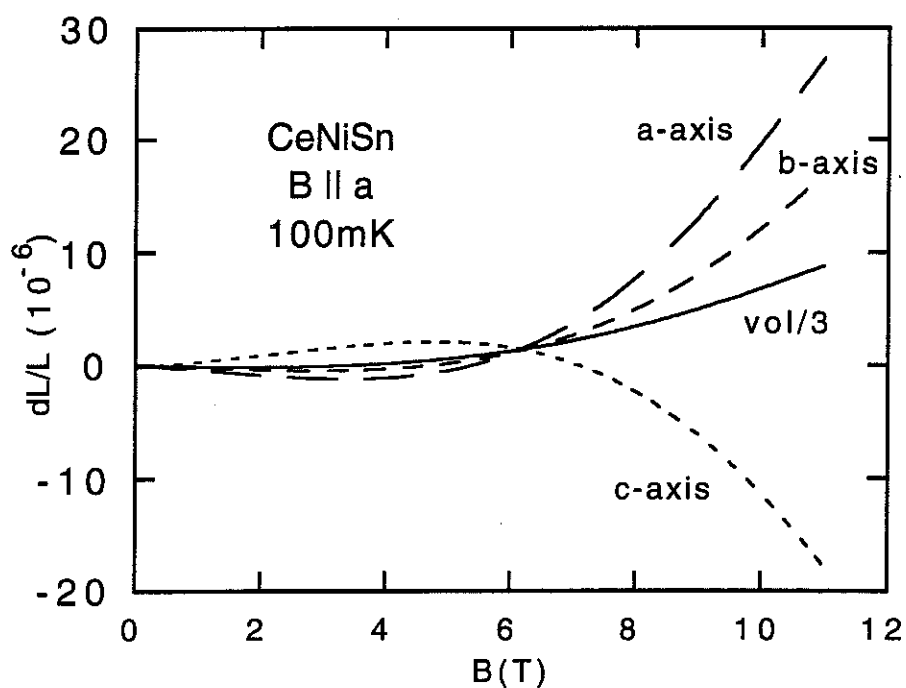


Figure V.26.b: Magnétostriction de CeNiSn à 0,1 K.

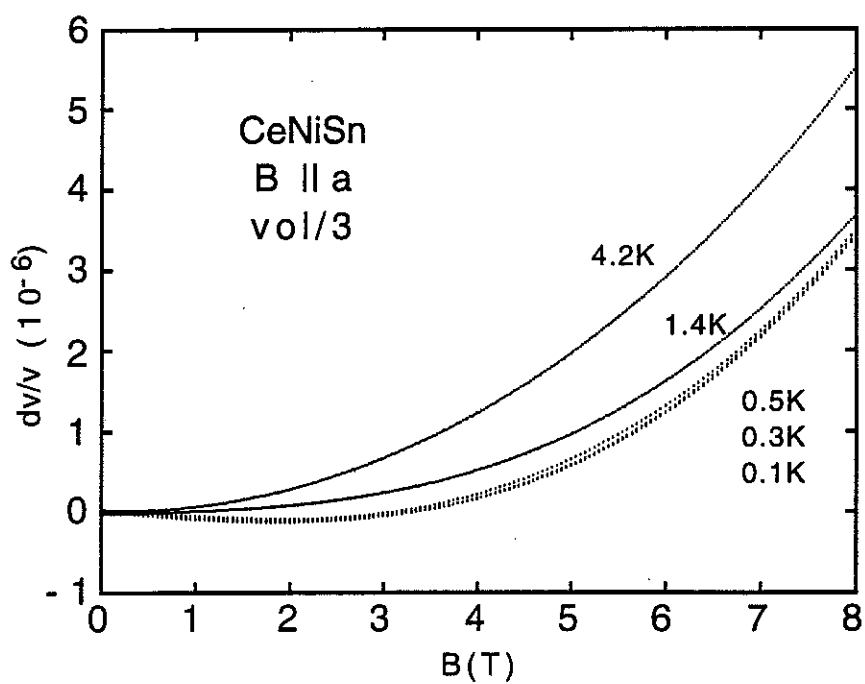


Figure V.27 : Magnétostriction volumique de CeNiSn jusqu'à 8 T, pour différentes températures entre 0,1 et 4,2 K.

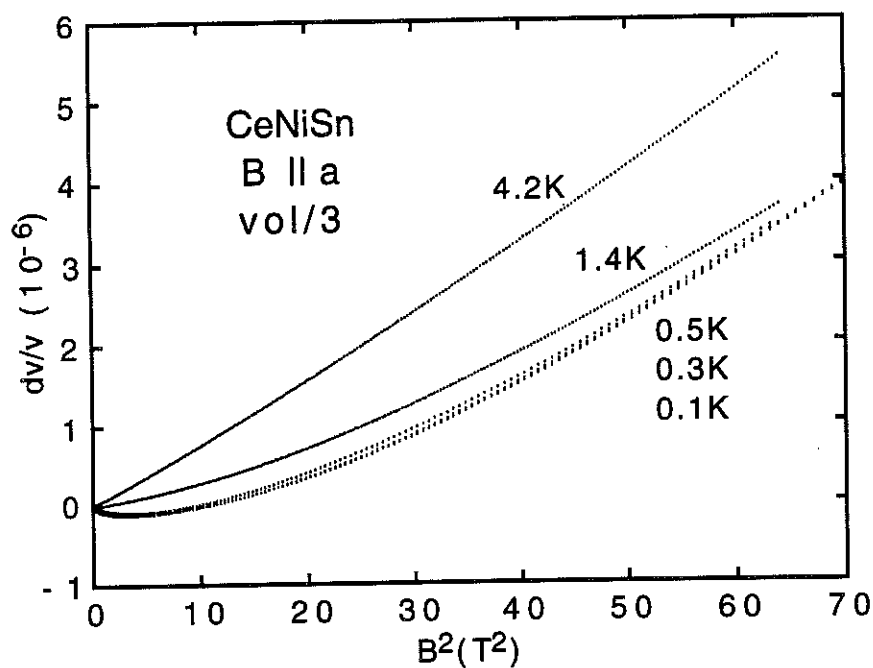


Figure V.28 : Magnétostriction de CeNiSn à plusieurs températures entre 4,2 et 0,1 K, jusqu'à 8 T, en fonction de B^2 (résultats de la figure V.24).

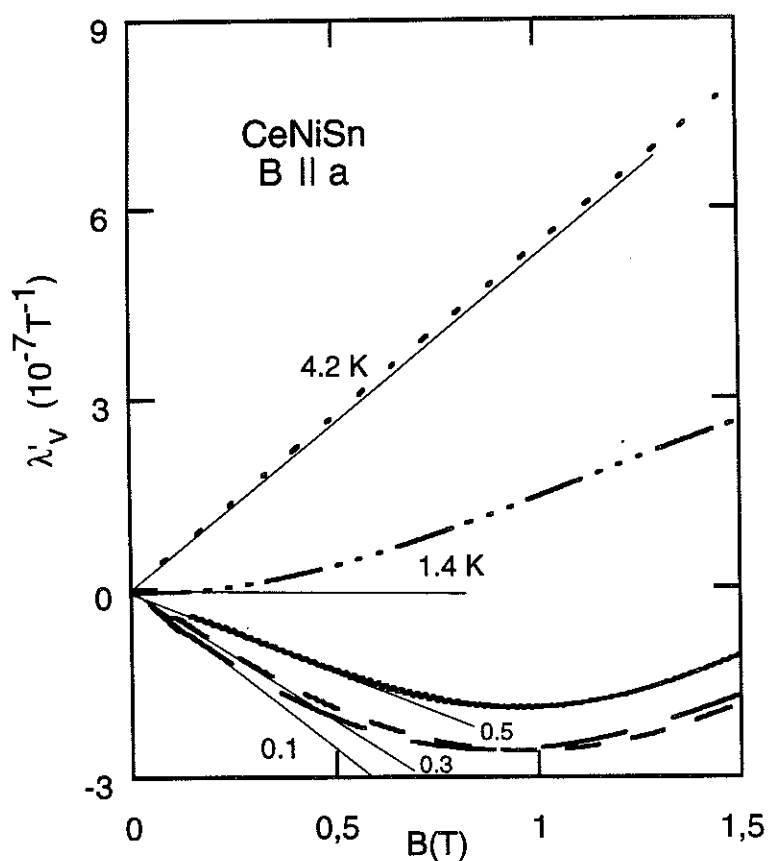


Figure V.29 : Magnétostriction différentielle λ'_v de CeNiSn à plusieurs températures entre 4,2 et 0,1 K. Les lignes représentent la pente initiale (voir texte).

La magnétostriction à 4,2 K et jusqu'à 20 T, est représentée sur la figure V.30 pour les trois axes. La magnétostriction en champ intense a été mesurée également à 1,7 K. Mais à cause d'un défaut du cryostat, il manque la courbe selon l'axe c (figure V.31).

A 4,2 K, λ_v varie assez bien en B^2 , comme le montre la figure V.32. Ceci est pratiquement vrai aussi pour chacun des axes, mais seulement au-delà d'un certain champ, de l'ordre de 12 T ; à plus bas champ, on observe une courbure (par suite, la variation linéaire en B^2 en grand champ s'extrapole à une valeur différente de zéro). Mais il n'existe aucune indication de l'existence d'un point d'inflexion vers 14 T, tel que celui qui a été rapporté pour $M(H)$ [Takabatake 1992b] à partir de mesures en champs pulsés. Il n'est pas possible d'affirmer l'absence de point d'inflexion pour λ_v à 1,7 K, puisque nous n'avons pas mesuré l'axe c. Cependant on ne voit pas non plus d'anomalie selon les deux autres axes jusqu'à 20 T. Si l'on considère que l'aimantation est seulement de $0,3 \mu_B$ à 36 T, on peut attendre une saturation de λ_v à des champs encore beaucoup plus élevés que 20 T.

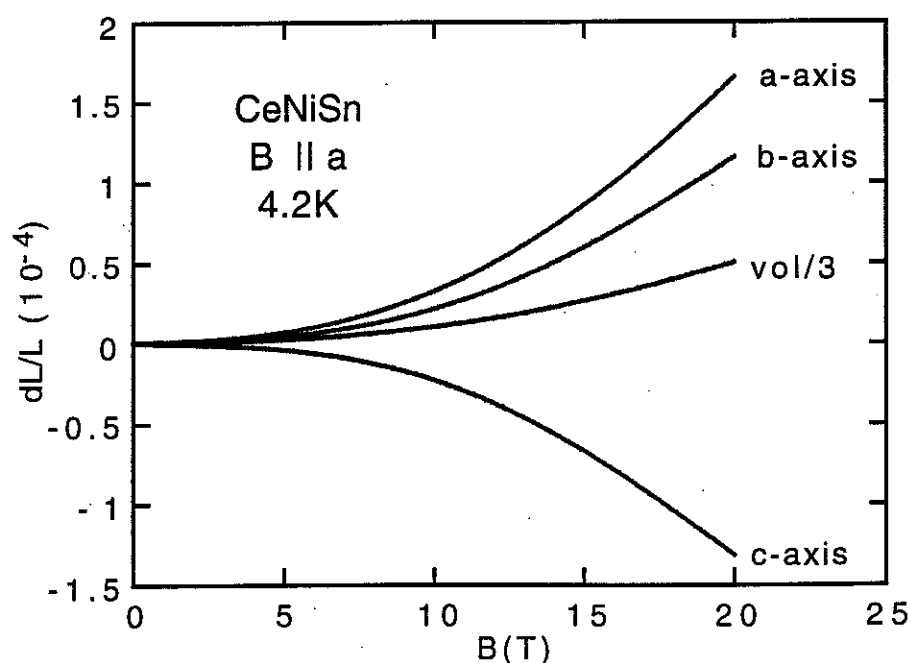


Figure V.30 : Magnétostriction de CeNiSn en champ intense, à 4,2 K.

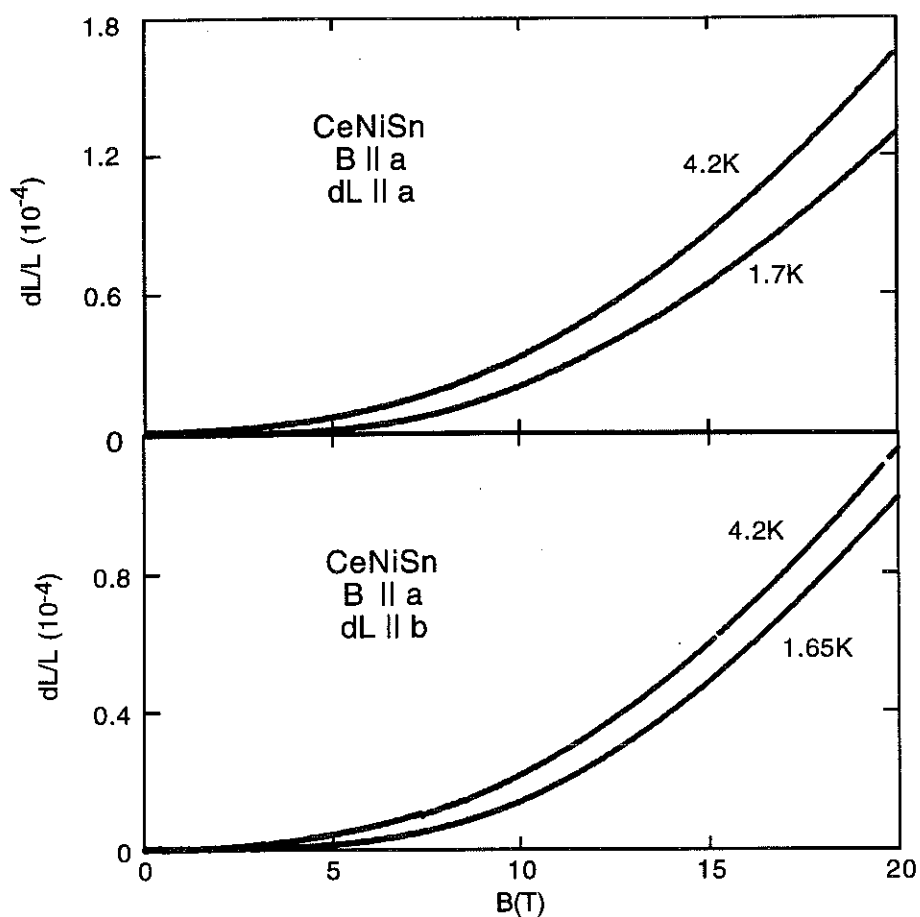


Figure V.31 : Magnétostriction de CeNiSn en champ intense à 1,7 K, selon les axes a et b.

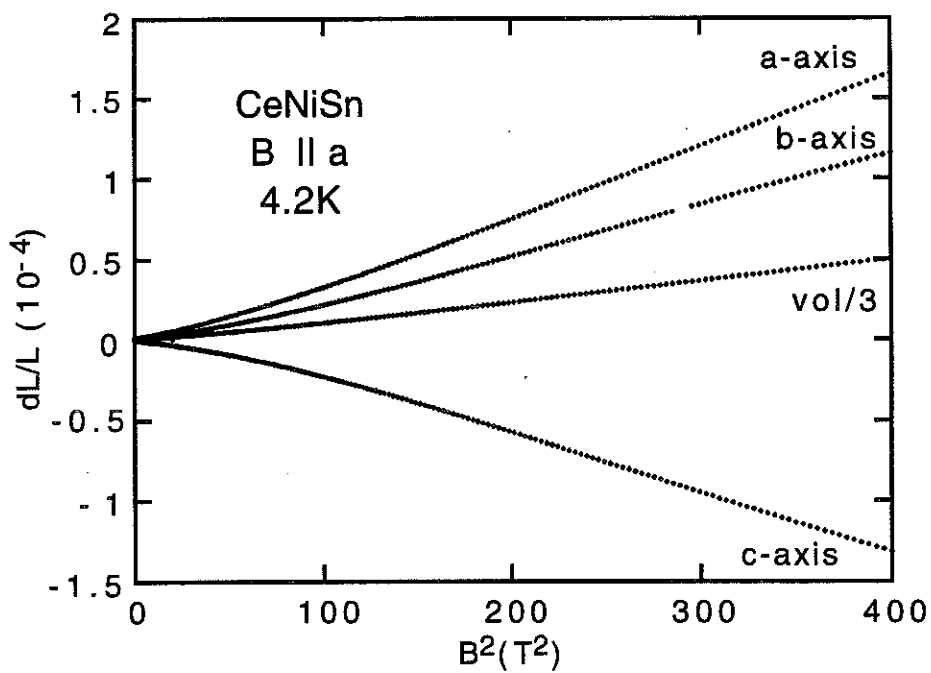


Figure V.32 : Magnétostriction de CeNiSn à 4,2 K en champ intense, en fonction de B^2 .

V.2.4 . DISCUSSION

L'origine du gap semiconducteur n'est pas claire à présent. Des transitions vers un état semiconducteur ont lieu dans des systèmes à valence intermédiaire comme SmB_6 , SmS sous pression, TmSe et YbB_{12} (voir tableau V.1 [Fisk 1992]). Récemment, des composées semiconducteurs de Ce ont été découverts comme $\text{Ce}_3\text{Bi}_4\text{Pt}_3$ [Hundley 1990] et $\text{Ce}_3\text{Sb}_4\text{Pt}_3$ [Kasaya 1991a]. Presque tous ces composés ont en commun une structure cristalline cubique et des énergies de gap E_g bien définies de l'ordre de 50 à 200 K ; ce point les distingue de CeNiSn . La semiconductivité dans ces

Composés	Structure	$\Delta(\text{K})^1$	Analogue non-magn. ²	Références
CeNiSn	$\epsilon\text{-TiNiSn}$	3	TiNiSn	[a]
CeRhSb	$\epsilon\text{-TiNiSn}$	7	TiNiSn	[b]
$\text{Ce}_3\text{Bi}_4\text{Pt}_3$	$\text{Y}_3\text{Sb}_4\text{Au}_3$	42	$\text{Th}_3\text{Sb}_4\text{Ni}_3$	[c]
$\text{Ce}_3\text{Sb}_4\text{Pt}_3$	$\text{Y}_3\text{Sb}_4\text{Au}_3$	475	$\text{Th}_3\text{Sb}_4\text{Ni}_3$	[d]
$\text{CeFe}_4\text{P}_{12}$	$\text{LaFe}_4\text{P}_{12}$	1500		[e]
SmB_6	CaB_6	30	SrB_6	[f]
SmS	NaCl	300-3000	SrS	[g]
TmSe	NaCl	*	SrS	[h]
TmTe	NaCl	3500	SrS	[i]
YbB_{12}	UB_{12}	70		[j]
$\text{UFe}_4\text{P}_{12}$	$\text{LaFe}_4\text{P}_{12}$	170		[k]
$\text{U}_3\text{Sb}_4\text{Ni}_3$	$\text{Y}_3\text{Sb}_4\text{Au}_3$	1200	$\text{Th}_3\text{Sb}_4\text{Ni}_3$	[l]
$\text{U}_3\text{Sb}_4\text{Pd}_3$	$\text{Y}_3\text{Sb}_4\text{Au}_3$	1300	$\text{Th}_3\text{Sb}_4\text{Ni}_3$	[l]
$\text{U}_3\text{Sb}_4\text{Pt}_3$	$\text{Y}_3\text{Sb}_4\text{Au}_3$	900	$\text{Th}_3\text{Sb}_4\text{Ni}_3$	[l]
UNiSn	MgAgAs	1200	ThNiSn	[m]
UPtSn	MgAgAs	3400	ThNiSn	[m]
URhSn	MgAgAs	4400	ThNiSn	[m]
FeSi	FeSi	300		[n]

Tableau V.1 : Liste des isolants Kondo [Fisk 1992] a : Takabatake 1990, b : Malik 1991, c : Hundley 1990, d : Kasaya 1991b, e : Torikachvili 1984, f : Allen 1978, g : Jayaraman 1975, h : Haen 1979, i : Boppart 1985, j : Kasaya 1985, k : Meisner 1985, l : Canfield 1992, Takabatake 1990b, m : Palstra 1986, n : Hunt 1994/95 ; ¹Gap déterminé à partir des mesures de transport ; ²Composé isostructural semiconducteur sans ions magnétiques ; *Pas de loi d'activation observée par mesures de transport.

derniers systèmes peut s'expliquer par la formation d'un gap d'hybridation, qui nécessite une périodicité parfaite du réseau. Le gap disparaît donc avec la perte de la périodicité, comme cela a été vu dans des expériences sur des alliages. Ils ont ce point en commun avec CeNiSn. Le composé CeRhSb, isostructural de CeNiSn, présente un pseudogap de 4 K [Malik 1991], comparable à celui de CeNiSn [Takabatake 1994a].

La figure V.33 représente la dilatation thermique d'un cristal de SmB_6 , que nous avons mesurée à titre de comparaison. Dans ce dernier, α devient négatif au-dessous de 100 K, montre un profond minimum à 40 K puis devient voisin de zéro au-dessous de 10 K. La température du gap est de 30 K, donc proche du minimum de α .

Nos mesures d'effets magnétovolumiques sur CeNiSn révèlent un coefficient de dilatation thermique et ainsi un paramètre de Grüneisen négatif à une température qui est située largement au-dessous de l'énergie du gap. Cet effet peut s'expliquer par le fait que CeNiSn est un système de fermions lourds qui possède un paramètre de Grüneisen positif très élevé, qui domine à plus haute température. Un champ magnétique d'environ 1 T rend la dilatation thermique positive. On constate que cette dernière est beaucoup plus sensible au champ magnétique que la magnétorésistance. Une autre indication de l'existence de ce gap est le maximum de α_v/T à 7 K qui est lié au maximum de C/T . A champ nul, on trouve dans α_v un terme en T^2 entre 1 et 5 K, comme dans C . Dans α_v , ce terme est supprimé sous champ.

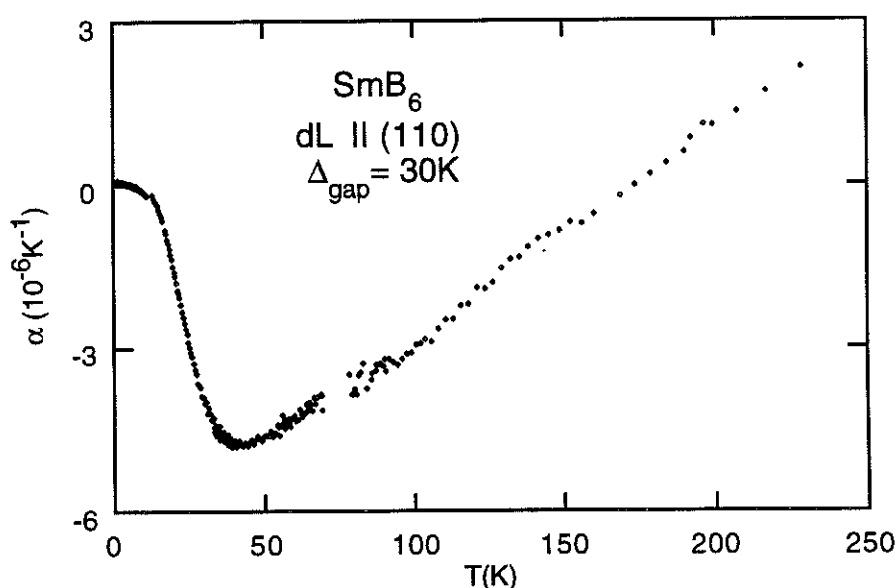


Figure V.29 : Dilatation thermique d'un monocristal de SmB_6 .

Un autre aspect intéressant est que la relation $\Gamma_T \approx \Gamma_B$ est valable aussi pour un paramètre de Grüneisen négatif. Ainsi, le volume du cristal se contracte sous champ magnétique, une observation certainement pas habituelle. Rappelons le cas du composé ordonné $\text{Ce}_{0,8}\text{La}_{0,2}\text{Ru}_2\text{Si}_2$, où Γ_{eff} atteint une valeur négative (figure III.33), alors que la magnétostriction est positive (figure III.34). Dans CeNiSn , le fait que l'identité entre les deux paramètres de Grüneisen, Γ_T et Γ_B , est atteinte dans l'état fermion lourd pourra nous mener à la conclusion qu'il s'agit d'un gap dans la densité d'états des quasiparticules lourdes.

Les anomalies à très basse température, qui rétablissent l'état métallique ou même fermion lourd se manifestent d'une façon faible dans la dilatation thermique. Ainsi, il y a toujours la difficulté de bien les distinguer de l'effet de la cellule ou des erreurs dans la dilatation uniaxiale. Toutefois ces anomalies ont été observées dans toutes les expériences sur des monocristaux de CeNiSn , mais le fait qu'elles sont à chaque fois différentes pose la question de savoir si elles sont intrinsèques au composé ou pas. Ces anomalies ne réagissent pas au champ magnétique de la même manière que le gap. La valeur négative de Γ est rapidement supprimée par le champ, contrairement à la remontée de la résistivité. Elles sont à comparer avec le maximum dans la résistivité au-dessous de 1 K, qui, lui même, pourrait être lié à des corrélations intersite qui ont été vues par la résonance de muons [Kratzer 1992].

Les anomalies à plus haute température dans la dilatation thermique de CeNiSn ne sont pas encore comprises. On ne trouve pas dans la chaleur spécifique d'anomalie correspondant au maximum de α_v à 150 K. On peut se demander si ce maximum est lié à ceux observés dans la résistivité à haute température, qui peuvent indiquer un effet de champ cristallin. La forte décroissance de α_v à $T < 10$ K peut résulter d'une superposition d'un maximum en α_{b-c} et d'une contribution "normale" selon l'axe a. S'agit-il ici d'un maximum relié à la température de Kondo, analogue au maximum de α_v que l'on observe à 9 K dans CeRu_2Si_2 et vers 2 K dans CeCu_6 ? (Dans ce dernier le maximum est dû essentiellement à la contribution d'un seul axe, l'axe c). Dans CeNiSn , quel est le rapport entre ce genou de α_v à 10 K et les maximums de ρ_a et χ_a à 12 K ?

On constate une orthogonalité entre la résistivité (figure V.11) et la dilatation thermique (figure V.13) pour les contributions dans le plan b-c et selon l'axe a : dans ρ_b et ρ_c on trouve des maximums à 55 K, alors que α_a est maximal à 50 K. Le maximum de ρ_a à 12 K trouve son correspondant en α_{b+c} à 10 K, de la même manière que le maximum en α_{b+c} à 150 K

correspond à celui de ρ_a à 100 K. ρ_b et ρ_c augmentent rapidement au-dessous de 7 K où α_a change de comportement. Il reste à remarquer que ces concordances entre les effets selon l'axe a et le plan b-c ne sont pas univoques. Par exemple, un maximum à 12 K n'apparaît pas uniquement dans ρ_a , mais aussi sous forme d'une anomalie très faible dans ρ_b et ρ_c , tandis que ρ_a présente aussi une légère remontée au-dessous de 7 K. Pourtant, cette analyse relie les effets les plus prononcés et semble ainsi justifiée. Il est intéressant qu'avec cette analyse, on élimine des contributions selon l'axe c, comme le signe négatif de α_c entre 12 et 55 K et son maximum à 6 K, qui rendent l'interprétation difficile.

L'axe c est l'axe qui montre de loin les anomalies les plus spectaculaires à la fois dans la dilatation thermique et dans la magnétostriction. Cristallographiquement, c'est l'axe selon lequel on trouve un déplacement des atomes de Ce, sans lequel ces derniers devraient former des plans b-c hexagonaux (figure V.1.c). Ce déplacement a comme effet que, dans le plan b-c, il existe des chaînes zig-zag selon l'axe b, si bien que la distance entre deux atomes de Ce selon l'axe c est plus courte que dans la bande suivante. En fait, la distance entre deux Ce dans une telle chaîne zig-zag est la seconde dans CeNiSn, après la distance entre deux Ce selon l'axe a (figure V.1.b) et selon l'axe b. On peut s'apercevoir que la liaison entre deux Ce dans une chaîne zig-zag contribue à la conductivité selon les axes b et c.

Compte tenu que l'effet du gap sur la résistivité est le plus important dans le plan b-c (figure V.2), on pourrait supposer qu'une des chaînes zig-zag selon l'axe b devient semiconductrice. Comme conséquence, on pourrait observer selon les axes b et c un circuit parallèle entre un semiconducteur et un métal normal comme cela a été imaginé [Mason 1992] (chap.V.1) ; par suite, l'effet selon l'axe a sera très faible, ce qui correspond approximativement aux observations expérimentales. Par contre cette grande différence ne s'observe pas dans des autres propriétés de transport, alors qu'elle serait logique s'agissant d'un gap de charge. De plus, ces remontées de résistivité ne sont peut-être pas intrinsèques [Takabatake 1994].

On pourrait penser que la dilatation thermique et magnétostriction "anormales" selon l'axe c sont liées à des changements structuraux, essentiellement à une modification du déplacement entre les deux Ce selon l'axe c. La dilatation thermique négative de LaNiSn pourrait bien résulter d'un tel effet. La magnétostriction positive selon les axes a et b et négative selon l'axe c correspondrait alors à une linéarisation des chaînes zig-zag selon l'axe b mais aussi selon l'axe a. Ou bien, une forte liaison dans les chaînes

zig-zag selon l'axe b compense la dilatation selon les axes a et b , induisant ainsi une contraction selon l'axe c .

Enfin, Kikoin [1994] suppose que l'origine du gap semiconducteur dans CeNiSn n'est pas le même que dans des semiconducteurs de valence intermédiaire conventionnels. Dans son modèle, la séparation entre le fondamental et le premier niveau de champ cristallin doit être plus faible que la température de Kondo du doublet fondamental : $\Delta_{\text{cf}} < T_K$. Dans CeNiSn , la température de Kondo a été estimée à $T_K = 28 \text{ K}$, cependant que l'énergie de séparation des niveaux de champ cristallin n'a pas pu être mise en évidence. A l'appui de son hypothèse, Kikoin prend comme argument le cas de CeNi_2Sn_2 , où Δ_{cf} est seulement de 17 K [Takabatake 1990c]. Une autre condition nécessaire est une symétrie non-cubique de l'environnement d'un Ce et la prédominance d'une onde partielle du multiplet de Ce ($J = 5/2$) pour la formation de fermions lourds, une condition qui peut être remplie dans le cas de CeNiSn . On remarque spécialement, que dans une géométrie locale hexagonale, chaque niveau de champ cristallin est dominé par une onde partielle [Kagan 1993]. Comme on l'a vu sur la figure V.1.d, l'entourage d'un Ce est un hexagone distordu. Dans ces conditions, il est possible que le niveau excité s'hybride avec la bande de fermions lourds du doublet fondamental, induisant ainsi un gap d'hybridation en forme de V. C'est essentiellement le niveau excité de champ cristallin qui se couple au champ magnétique grâce à son facteur g qui est plus élevé que celui du doublet fondamental. L'effet du champ sera donc de pousser le niveau de Fermi en dehors du pseudo-gap.

Bien que l'on comprenne qualitativement la formation d'un gap d'hybridation à basse température dans un système non-cubique, beaucoup de questions restent encore ouvertes : dans le modèle de Kikoin, il s'agit d'un gap de spin, mais le couplage avec les électrons de conduction n'est pas encore clair. Egalement, la faible entropie magnétique observée, de $0,5 R \ln 2$ à 20 K , est en contradiction avec la forte dégénérescence à relativement basse température. Finalement, ce modèle ne tient compte des particularités de la structure cristalline que par le splitting de champ cristallin, réduisant tout le problème à un effet à un site, et négligeant toute interaction intersite. Surtout, ce modèle seul ne produit pas un gap d'hybridation anisotrope, si bien que pour une meilleure compréhension, davantage de travail est nécessaire.

V.3 CONCLUSION

Les coefficients de dilatation thermique de CeNiSn varient très différemment selon les axes, en particulier à haute température où α_c est négatif dans une grande plage de température. Nous avons tenté d'analyser ces différentes variations et de relier leurs caractéristiques à celles d'autres propriétés telles la chaleur spécifique et la résistivité, et aussi aux propriétés structurales du composé. Il est remarquable de constater que ces anomalies se compensent pour ne donner qu'une variation très douce du coefficient de dilatation volumique, α_v .

Cependant, à champ nul, ce dernier décroît assez rapidement et présente un léger point d'inflexion vers 5 K, que l'on peut attribuer à l'ouverture du gap. α_v devient pratiquement égal à zéro vers 1 K, puis passe par un minimum négatif ce qui conduit à un minimum négatif du paramètre de Grüneisen Γ_{eff} , de l'ordre de -10. La même valeur est trouvée à partir de la pente initiale de la courbe de magnétostriction différentielle. Même si elle n'est obtenue qu'au-dessous de 1 K environ, une telle valeur négative est classique dans le cas d'un semiconducteur. Par comparaison, nos mesures du composé de valence intermédiaire semiconducteur SmB₆ montrent une très grande anomalie négative de α_v , donc de Γ_{eff} . Toutefois, cette dernière commence au-dessous de 150 K, c'est à dire à une température supérieure à celle du gap, contrairement à ce que nous venons d'observer dans CeNiSn.

Une question reste actuellement sans réponse, à savoir quel est le comportement intrinsèque de α_v dans CeNiSn à champ nul au-dessous de 1 K. Nous avons montré que l'anomalie que nous observons à 0,5 K n'est peut-être due qu'à un effet de la cellule. Si elle était exacte, elle conduirait à une remontée de Γ vers une valeur positive de 30 pour $T \rightarrow 0$, ce qui n'est pas confirmé par la magnétostriction. De plus, les variations de α_v , mesurées par d'autres groupes sur d'autres monocristaux par la même méthode, sont différentes de celles que nous avons observées dans cette gamme des très basses températures. Soit ces auteurs ont également des résultats entachés d'effets de cellule, soit ces résultats diffèrent réellement parce que les échantillons sont différents. On sait, d'après des résultats récents de Takabatake [1994], que les remontées de résistivité ne semblent pas être intrinsèques à CeNiSn, puisqu'elles disparaissent dans les échantillons les meilleurs (le test de qualité étant l'absence de petites anomalies parasites dans la chaleur spécifique). Seules pourront répondre à cette question, des mesures effectuées sur un cristal exempt d'impuretés et si possible au moyen d'une cellule absolue.

Les anomalies de α_V ci-dessus disparaissent sous champ magnétique, et l'on peut avoir une meilleure confiance dans les résultats à très basse température que dans ceux à champ nul. Bien que ne possédant pas de résultats de chaleur spécifique sous champ dans toute la gamme de température, nous avons pu estimer les variations de Γ dans différents champs : dans 8 T, Γ augmente régulièrement au refroidissement jusqu'à une valeur de l'ordre de 40 à 50. Il semble que le même type de variation existe dans des champs plus élevés, mais que les valeurs de Γ soient plus faibles : dans 11 T, la limite $T \rightarrow 0$ de Γ est seulement de 30. Cela signifie qu'on a ainsi retrouvé un comportement normal pour un système de fermions lourds. Pour confirmer ce fait, il serait souhaitable d'effectuer des mesures de chaleur spécifique et de dilatation thermique jusque dans des champs très élevés.

Cette observation qu'un comportement "normal" de Γ est retrouvé dès qu'on applique 8 T montre que ce paramètre est beaucoup plus sensible au champ que ne le sont d'autres propriétés telles que la chaleur spécifique ou la résistivité.

Enfin, à la question, de savoir si la fermeture du gap par le champ magnétique se manifeste par une transition pseudométamagnétique telle que celle vue ailleurs par mesures d'aimantation [Takabatake 1994], nos mesures de magnétostriction permettent de répondre par la négative, car elles présentent une variation régulière en fonction de B^2 jusque dans 20 T, tout comme nos courbes d'aimantation, même si ces dernières sont peu précises.

Il ressort de notre étude, et de tous les travaux effectués par ailleurs sur CeNiSn, que l'on est encore assez loin de bien connaître les propriétés intrinsèques de ce composé à très basse température. Par ailleurs, il apparaît que les modèles théoriques sont encore bien plus loin d'expliquer les résultats actuels. C'est en particulier le cas du modèle de Kikoin, qui pourtant est très séduisant. Le fait que la résistivité soit maintenant trouvée insensible à l'ouverture du gap, donne un argument supplémentaire à cet auteur pour affirmer qu'il s'agit d'un gap de spin et non pas d'un gap de charge. Cependant, la principale critique que l'on puisse poser à ce modèle est qu'il nécessite des hypothèses (sur la valeur de T_K et du splitting de champ cristallin, notamment) qui ne sont pas vérifiées.

Pour résumer d'un mot, le composé CeNiSn représente un nouveau type de comportement d'un système de fermions lourds à basse température dont la compréhension nécessitera encore de nombreuses études, tant expérimentales que théoriques.

SIXIEME PARTIE :

CONCLUSION GENERALE

VI CONCLUSION GENERALE

Ce travail consistait à étudier des effets magnétovolumiques dans trois composés à fermions lourds non ordonnés magnétiquement : CeRu_2Si_2 , CeCu_6 et CeNiSn . La comparaison entre les deux premiers est particulièrement intéressante. Dans ces deux composés, le spectre des excitations élémentaires, détecté par diffusion neutronique, est comparable, mais on observe de grandes différences dans les mesures thermodynamiques. La transition pseudo-métamagnétique, à laquelle des corrélations antiferromagnétiques à courte distance sont supprimées par un champ magnétique, a été l'objet d'une analyse détaillée.

Dans la partie introductive de cette thèse, nous soulignons l'importance des effets magnétovolumiques dans des systèmes de fermions lourds. L'état fermion lourd est caractérisé par une forte diminution du volume au refroidissement, qui s'exprime aussi par une très forte augmentation du paramètre de Grüneisen. Ce dernier atteint une valeur anormalement élevée à très basse température, en l'absence d'ordre (antiferro-) magnétique ou de supraconductivité. Ce comportement a été attribué à la formation du singulet de Kondo.

Nous avons analysé les propriétés magnétovolumiques de CeRu_2Si_2 à partir des résultats sur trois échantillons. Les deux premiers, CeRu_2Si_2 et $\text{Ce}_{0,95}\text{La}_{0,05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$, ont été étudiés par A. Lacerda et les mesures sur $\text{Ce}_{0,985}\text{Y}_{0,015}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ ont été effectuées dans le cadre de ce travail. La valeur du paramètre de Grüneisen (voisine de 170 dans CeRu_2Si_2 , et de 220 dans $\text{Ce}_{0,95}\text{La}_{0,05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$) fait que les énergies qui caractérisent l'état fondamental fermion lourd varient fortement, bien que les concentrations de dopants soient relativement faibles. On peut considérer que ce dopage n'induit en première approximation que des effets de pression chimique, et ces trois composés obéissent à une loi d'échelle.

Dans CeRu_2Si_2 , les effets magnétovolumiques sont de même signe suivant tous les axes cristallographiques, phénomène inhabituel parmi les systèmes de fermions lourds. A basse température, le cristal se dilate d'un millième de son volume initial à la transition pseudométamagnétique, c'est à dire approximativement dans la même proportion qu'il s'est contracté au refroidissement. Dans la dilatation thermique, on observe un maximum à une température caractéristique T_m voisine de 10 K. Sous champ magnétique, cette température diminue et atteint une valeur proche de zéro (≈ 350 mK) au champ pseudométamagnétique B^* . Pour des champs supérieurs à B^* , la dilatation thermique devient négative et passe par un minimum, dont la température, maintenant augmente avec le champ magnétique.

Dans CeRu_2Si_2 , la magnétostriction différentielle présente, à la transition pseudométamagnétique, un maximum qui devient extrêmement aigu quand on abaisse la température, mais ne diverge pas pour $T \rightarrow 0$. Dans les alliages, la valeur de ce maximum se sature dès 0,5 K, à des valeurs bien inférieures à celles observées dans CeRu_2Si_2 . La "raideur" de la transition pseudométamagnétique dépend donc de la pureté de l'échantillon, et mériterait d'être à nouveau étudiée sur un cristal de très grande qualité.

Enfin, nous avons élaboré un modèle intuitif qui explique l'ensemble des observations expérimentales. Selon ce modèle, l'état fondamental de CeRu_2Si_2 résulte d'un effet Kondo entre les électrons de conduction et des moments magnétiques liés antiferromagnétiquement. Ainsi un pseudo-gap de spin est formé, qui est fermé au champ B^* .

Le composé CeCu_6 présente des effets magnétovolumiques très anisotropes en fonction de la direction cristallographique. Au-dessous de 300 mK, on peut observer un maximum dans la magnétostriction volumique différentielle à un champ pseudo-métamagnétique B^* de 2 T, champ à partir duquel l'intensité des corrélations antiferromagnétiques commence à décroître. Mais ce maximum de la susceptibilité magnétostrictive est plus faible, de trois ordres de grandeur, que dans CeRu_2Si_2 .

La valeur du paramètre de Grüneisen chute rapidement sous champ. A très basse température, partant d'une valeur de 80 à champ nul, il atteint 10 à 8 T. Ce chiffre est très voisin de la valeur de 13 déduite précédemment de la dilatation thermique entre 10 et 40 K, et attribuée à l'effet du champ cristallin. Cet effondrement de 80 à 10 du paramètre de Grüneisen sous champ à très

basse température n'est pas continu, mais on peut y observer un deuxième champ critique B_c de 4,5 T. Ce dernier se manifeste dans plusieurs autres propriétés physiques.

Le maximum de la dilatation thermique, qui, comme dans CeRu_2Si_2 , coïncide, à champ nul, avec celui de la chaleur spécifique, se déplace vers les hautes températures sous champ magnétique, au contraire de ce qui a été observé dans CeRu_2Si_2 . Un tel comportement peut être compris qualitativement en terme d'une résonance de Kondo simple, élargie par effet Zeeman. Il est donc raisonnable de supposer que, dans CeCu_6 , l'effet Kondo sur le doublet fondamental est rapidement supprimé sous champ. On peut imaginer que dans CeCu_6 , les moments magnétiques sont déjà réduits par l'effet Kondo à un site lorsque les interactions antiferromagnétiques se développent. Ainsi, il se peut que ces dernières aient beaucoup moins d'effet sur les propriétés thermodynamiques que dans CeRu_2Si_2 .

Le composé CeNiSn , qui, lui non plus, ne montre ni ordre magnétique, ni supraconductivité, présente par contre un gap de type semiconducteur à basse température. Le but de notre étude était de rechercher les effets d'un tel gap dans les propriétés magnétovolumiques.

Dans ce composé, la forte anisotropie de la dilatation uniaxiale est remarquable, mais la dilatation thermique volumique ne montre pas d'effet spectaculaire. La seule manifestation possible de l'existence du gap semiconducteur que l'on remarque dans cette dernière est un point d'inflexion autour de 6 K. Le paramètre de Grüneisen diminue en refroidissant au-dessous de cette température, observation absolument inhabituelle dans un système de fermions lourds non ordonné (des anomalies observées au-dessous de 1 K demanderaient à être confirmées).

Cependant, nos résultats permettent de prévoir que dans un champ de 8 T, la valeur du paramètre de Grüneisen présentera une augmentation continue au refroidissement (pour atteindre environ 40 à très basse température), puis sera réduite en champs plus élevé, comme dans les autres systèmes de fermions lourds. Par contre, la magnétostriction en champ intense (jusqu'à 20 T) ne montre aucune anomalie qui pourrait indiquer l'existence d'une transition pseudo-métamagnétique.

L'interprétation des propriétés de CeNiSn n'en est encore qu'à ses balbutiements.

**SEPTIEME PARTIE :
REFERENCES**

VII. REFERENCES

- Adroja, D. T., B. D. Rainford, *Physica B* **199&200**, 498 (1994).
- Aeppli, G., E. Bucher, C. Broholm, J. Kjems, J. Baumann et J. Hufnagel, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 615 (1988a).
- Aeppli, G., E. Bucher, A. Goldman, G. Shirane, C. Broholm et J. Kjems, *J. Magn. Magn. Mat.* **76&77**, 385 (1988b).
- Aliev, F. G., V. V. Moshchalkov, V. V. Kozyrkov, M. K. Zalyalyutdinov, V. V. Pryadun et R. V. Skolozdra, *J. Magn. Magn. Mat.* **76&77**, 295 (1988).
- Aliev, F. G., V. V. Moshchalkov, M. K. Zalyalyutdinov, G. I. Pak, R. V. Skolozdra, P. A. Alekseev, V. N. Lazukov et I. P. Padikov, *Physica B* **163**, 356 (1990).
- Aliev, F. G., *Physica B* **171**, 199 (1991a).
- Aliev, F. G. et al., *J. Moscow Phys. Soc.* **1**, 311 (1991b).
- Aliev, F. G., R. Villar, S. Vieira, M. A. Lopez de la Torre, R. V. Scolozdra et M. B. Maple, *Phys. Rev. B* **47**, 769 (1993).
- Aliev, F. G., R. Villar, S. Vieira, R. V. Scolozdra et T. Takabatake, *Physica B* **199&200**, 433 (1994).
- Allen, J. W., R. M. Martin, B. Batlogg et P. Wachter, *J. Appl. Phys.* **49**, 2078 (1978).
- Allen, J. et R. Martin, *Phys. Rev. Lett.* **49**, 106 (1982).
- Amato, A., D. Jaccard, J. Flouquet, F. Lapierre, J. L. Tholence, R. A. Fisher, S. Lacy, J. Olsen et N. Phillips, *J. Low Temp. Phys.* **68**, 371 (1987).
- Amato, A., Thèse, Université de Genève (1988).
- Amato, A., D. Jaccard, J. Sierro, P. Haen, P. Lejay et J. Flouquet, *J. Low Temp. Phys.* **77**, 195 (1989).
- Amato, A., R. Feyerherm, F. N. Gygax, D. Jaccard, A. Schenck, J. Sierro, E. Walker et U. Zimmermann, *Physica B* **186-188**, 273 (1993).
- Andrei, N., K. Furuya et J. H. Lowenstein, *Rev. Mod. Phys.* **55**, 331 (1983).
- Andres, K. A., J. E. Graebner et H. R. Ott, *Phys. Rev. Lett.* **35**, 1979 (1975).
- Aoki, H., S. Uji, A. K. Albessard et Y. Onuki, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 2110 (1993).
- Auerbach, A. et K. Levin, *Phys. Rev. B* **34**, 3524 (1986).
- Bakker, K., Thèse, Université d'Amsterdam (1993).

- Ballestracci, B. et G. Astier, *C. R. Acad. Scien. B* **286**, 109 (1978).
- Ban, Z. et M. Sikirica, *Acta Cryst.* **18**, 594 (1965).
- Batlogg, B., J. Remeika, A. Cooper et Z. Fisk, *J. Appl. Phys.* **55**, 2001 (1984).
- Benoit, A., J. Boucherle, J. Flouquet, F. Holtzberg, J. Schweizer et C. Vettier, in *Valence Fluctuations in Solids*, L. M. Falicov, W. Hanke et M. B. Maple, Eds., North-Holland, Amsterdam (1981), p. 197.
- Besnus, M. J., J. P. Kappler, P. Lehmann et A. Meyer, *Solid State Commun.* **55**, 779 (1985).
- Besnus, M. J., P. Lehmann et A. Meyer, *J.M.M.M.* **63&64**, 323 (1987).
- Bioud, H., P. Haen et al., non publié, 1994
- Bomken, K., D. Weber, M. Yoshizawa, W. Assmus, B. Luthi et E. Walker, *J. Magn. Magn. Mat* **63&64**, 315 (1987).
- Boppart, H., *J. Magn. Magn. Mat.* **47&48**, 436 (1985).
- Brändli, G. et R. Griessen, *Cryogenics* **13**, 299 (1973).
- Bredl, C. D. et F. Steglich, *J. Mag. Mag. Mat.* **7**, 286 (1978).
- Brenig, W., *Solid State Comm.* **2**, 203-205 (1987).
- Brinkmann, W. F. et S. Engelsberg, *Phys. Rev.* **169**, 417 (1968).
- Brommer, P. E., *Physica B* **112**, 343 (1982).
- Bruls, G., D. Weber, B. Lüthi, J. Flouquet et P. Lejay, *Phys.Rev. B* **42**, 4329 (1990).
- Bruls, G., G. Hampel, D. Weber, M. Günther et B. Lüthi, *Physica B* **177**, 139 (1992).
- Canfield, P. C., A. Lacerda, J. D. Thompson, G. Sparn, W. P. Beyermann, M. F. Hundley et Z. Fisk, *J. Alloys Comp.* **181**, 77 (1992).
- Chapman, S., M. Hunt, P. Meeson, P. H. P. Reinders, M. Springford et M. Norman, *J. Phys. : Condens. Matter* **2**, 8123 (1990).
- Coffey, D. et C. J. Pethick, *Phys. Rev. B* **33**, 7508 (1986).
- Coles, B. R., *Contemp. Phys.* **28**, 143 (1987).
- Continentino, M. A., G. M. Japiassu et A. Troper, *Phys. Rev. B* **39**, 9734 (1989).
- Continentino, M. A., *J. Phys. I* **1**, 693 (1991).
- Continentino, M. A., *Phys. Rev. B* **47**, 11587 (1993).
- Coqblin, B. et J. R. Schrieffer, *Phys. Rev.* **185**, 847 (1969).
- Cornut, B. et B. Coqblin, *Phys. Rev. B* **11**, 4541 (1972).
- Cromer, D. T., A. C. Larson et R. B. Roof Jr., *Acta Cryst.* **13**, 913 (1960).
- de Visser, A., J. J. M. Franse, A. Menovsky et T. T. M. Palstra, *Physica B* **127**, 442 (1984).

- de Visser, A., Thèse, Université d'Amsterdam (1986).
- de Visser, A., A. Menovsky et J. J. M. Franse, *Physica B* **147**, 81 (1987a).
- de Visser, A., A. Menovsky et J. J. M. Franse, *J. Magn. Magn. Mat.* **63&64**, 286 (1987b).
- de Visser, A., L. Puech, W. Joss, A. A. Menovsky et J. J. M. Franse, *Jap. J. of Appl. Phys.* **26/3**, 513 (1987c).
- de Visser, A., A. Lacerda, P. Haen, J. Flouquet, F. E. Kayzel et J. J. M. Franse, *Phys. Rev. B* **39**, 11301 (1989).
- de Visser, A., J. J. M. Franse, A. Lacerda, P. Haen et J. Flouquet, *Physica B* **163**, 49 (1990).
- de Visser, A., communication privée (1994).
- Djerbi, R., P. Haen, F. Lapierre, P. Lehmann et J. P. Kappler, *J. Magn. Magn. Mater.* **76 & 77**, 260 (1988).
- Djerbi, R., Thèse, Université de Grenoble (1989).
- Djerbi, R., P. Haen et J.-M. Mignot, *Physica B* **171**, 258 (1991).
- Doniach, S., *Physica B* **91**, 231 (1977).
- Duc, N. H., J. Voiron, S. Holtmeier, P. Haen et X. Li, *J. Mag. Magn. Mat.* **125**, 323 (1993).
- Edwards, D. M., *Phys. Lett. A* **33**, 183 (1970).
- Edwards, D. M., *J. Phys. F* **12**, 1789 (1982).
- Edwards, D. M., *Physica B* **169**, 271 (1991).
- Evans, S. M. M., *Europhys. Lett.* **17**, 469 (1992a).
- Evans, S. M. M., *J. Magn. Magn. Mat.* **108**, 135 (1992b).
- Felten, R., Thèse, Université de Darmstadt (1987).
- Fert, A. et P. M. Levy, *Phys. Rev. B* **36**, 1907 (1987).
- Fisher, R. A., N. E. Phillips, C. Marcenat, J. Flouquet, P. Haen, P. Lejay et J. M. Mignot, *J. Physique colloq.* **C8-49**, 759 (1988).
- Fisher, R., C. Marcenat, N. Phillips, P. Haen, F. Lapierre, P. Lejay, J. Flouquet et J. Voiron, *J. of Low Temp. Phys.* **84**, 49 (1991).
- Fisk, Z., H. R. Ott, T. M. Rice et J. L. Smith, *Nature* **320**, 124 (1986).
- Fisk, Z., D. W. Hess, C. J. Pethick, D. Pines, J. L. Smith, J. D. Thompson et J. O. Willis, *Science* **239**, 33 (1988).
- Fisk, Z., P. C. Canfield, J. D. Thompson et M. F. Hundley, *J. Alloys and Compounds* **181**, 369 (1992).
- Flouquet, J., P. Haen, C. Marcenat, P. Lejay, A. Amato, D. Jaccard et E. Walker, *J. Mag. Mag. Mat.* **52**, 85 (1985).

- Franse, J. J. M., M. van Sprang, A. de Visser et P. E. Brommer, *Physica B* **154**, 379 (1989).
- Franse, J. J. M., H. P. van der Meulen, A. Menovsky, A. de Visser, J. A. A. J. Perenboom et H. van Kempen, *J. Mag. Mag. Mat.* **90&91**, 29 (1990).
- Frings, P., J. Franse et F. de Boer, *J. Mag. Mag. Mat.* **31-34**, 240 (1983).
- Frings, P. H., B. Renker et C. Vettier, *J. Mag. Mag. Mat.* **63&64**, 202 (1987).
- Frossati, G., J. le G. Gilchrist, J. C. Lasjaunas et W. Meyer, *J. Phys. C: Solid State Phys.* **10**, L515 (1977).
- Fujita, T., K. Satoh, Y. Onuki et T. Komatsubara, *J. Magn. Magn. Mat.* **47&48**, 66 (1985).
- Fujita, T., T. Suzuki, S. Nishigori, T. Takabatake, H. Fujii et J. Sakurai, *J. Magn. Magn. Mat.* **108**, 35 (1992).
- Fulde, P., J. Keller et G. Zwicknagel, *Sol. State Phys.* **41**, 1 (1988a).
- Fulde, P., *J. Phys. F : Met. Phys.* **18**, 601 (1988b).
- Gangopadhyay, A. K., J. S. Schilling, E. Schuberth, P. Gutsmedl, F. Gross et K. Andres, *Phys. Rev. B* **38**, 2603 (1988).
- Germann, A., A. K. Nigam, J. Dutzi, A. Schröder et H. v. Löhneysen, *J. de Physique* **49**, 755 (1988).
- Goldman, A., G. Shirane, G. Aeppli, E. Bucher et J. Hufnagel, *Phys. Rev. B* **36**, 8523 (1987).
- Gopal, E. S. R., in *"Specific Heats at Low Temperatures"*, Heywood, London, (1966).
- Goto, T., T. Suzuki, Y. Ohe, T. Fujimura, S. Sakatsume, Y. Onuki et T. Kamatsubara, *J. Phys. Soc. Jpn.* **57**, 2612 (1988).
- Gratz, E., E. Bauer, H. Nowotny, H. Mueller, S. Zemirli et B. Barbara, *J. Magn. Magn. Mat.* **63&64**, 312 (1987).
- Guessous, A., Thèse d'Etat, Grenoble (1987).
- Gupta, L. C., D. E. Maclaughlin, C. Tien, G. Godart, M. A. Edwards et R. D. Parks, *Phys. Rev. B* **28**, 3673 (1983).
- Haen, P., F. Lapierre, J. M. Mignot, R. Tournier et F. Holtzberg, *Phys. Rev. Lett.* **43**, 304 (1979).
- Haen, P., J. Flouquet, F. Lapierre, P. Lejay et G. Remenyi, *J. Low Temp. Phys.* **67**, 391 (1987).
- Haen, P., F. Lapierre, J. P. Kappler, P. Lejay, J. Flouquet et A. Meyer, *J. Magn. Magn. Mat.* **76&77**, 143 (1988a).
- Haen, P., J. P. Kappler, F. Lapierre, P. Lehmann, P. Lejay, J. Flouquet et A. Meyer, *J. de Physique colloq. C8-49*, 757 (1988b).
- Haen, P., J. Voiron, F. Lapierre, J. Flouquet et P. Lejay, *Physica B* **163**, 519 (1990).
- Haen, P., F. Lapierre, P. Lejay et J. Voiron, *J. Magn. Magn. Mat.* **116**, 108 (1992).

- Haen, P., J.-M. Laurent, K. Payer, J.-M. Mignot, in *Transport and Thermal Properties of f-Electron Systems*, G. Oomi, H. Fujii and T. Fujita, Eds., Plenum Press N. Y. (1993), p.145.
- Haen, P., A. de Visser, F. Lapierre, RHMF'94 Nijmegen (1994), à paraître dans *Physica B*.
- Hampel, G., *Phys. Rev. Lett.* **72**, 3386 (1994).
- Hanzawa, K., K. Yamada et K. Yoshida, *J. Magn. Magn. Mat.* **47&48**, 357 (1985).
- Hasegawa, H., *J. Phys. Soc. Jpn.* **46**, 1504 (1979).
- Hasselbach, K., L. Taillefer et J. Flouquet, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 93 (1989).
- Hess, D. W., P. S. Riseborough et J. L. Smith, in *Encyclopedia of Applied Physics*, vol. 7, VCH Publishers (1993).
- Hiess, A., C. Geibel, G. Sparn, C. D. Bredl, F. Steglich, T. Takabatake et H. Fujii, *Physica B* **199&200**, (1994) 437.
- Higashi, I., K. Kobayashi, T. Takabatake et M. Kasaya, *J. Alloys and Compounds* **193**, 100 (1993).
- Hill, H. H., dans "Plutonium and Other Actinides", ed. W.N. Miner (AIME New York 1970), p. 2.
- Hill, H. H. et R. O. Elliot, *Phys. Lett.* **35A**, 75 (1971).
- Hiraoka, T., E. Kinoshita, T. Takabatake, H. Tanaka, H. Fujii, *Physica B* **199&200**, 440 (1994).
- Hundley, M. F., P. C. Canfield, J. D. Thompson et Z. Fisk, *Phys. Rev. B* **42**, 6842 (1990).
- Hunt, M. B., M. A. Chernikov, E. Felder, H. R. Ott, Z. Fisk, P. Canfield, *Phys. Rev. B*, à paraître (1994/5).
- Ishikawa, Y., K. Mori, Y. Osigo, K. Oyabe et K. Sato, *J. Phys. Soc. Jpn.* **60**, 2514 (1991).
- Jaccard, D. et J. Flouquet, *Helv. Phys. Acta* **60**, 108 (1987).
- Jacoud, J. L., Thèse, Université de Grenoble (1991).
- Jayaprakash, C., H. R. Krishna-murthy et J. W. Wilkins, *Phys. Rev. Lett.* **47**, 737 (1981).
- Jayaraman, A., P. Denier et L. D. Longinotti, *Phys. Rev. B* **11**, 2783 (1975).
- Jones, B. A. et C. M. Varma, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 843 (1987).
- Jones, B. A., C. M. Varma et J. W. Wilkins, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 125 (1988).
- Jones, B. A. et C. M. Varma, *Phys. Rev. B* **40**, 324 (1989).
- Joynt, R., *J. Mag. Mag. Mat.* **108**, 31 (1992).
- Julian, S. R., F. S. Tautz, G. J. McMullan et G. G. Lonzarich, *Physica B* **199&200**, 63 (1994).
- Jullien, R., J. N. Fields et S. Doniach, *Phys. Rev. Lett.* **38**, 1500 (1977).

- Kadowaki, H., T. Sato, H. Yoshizawa, T. Ekino, T. Takabatake, H. Fujii, L. P. Regnault, Y. Isikawa, *J. Phys. Soc. Jpn.* **63**, 2074 (1994).
- Kagan, Y., K. A. Kikoin et N. V. Prokofev, *JETP Lett.* **57**, 584 (1993).
- Kaiser, A. et P. Fulde, *Phys. Rev. B* **37**, 5357 (1988).
- Kaiser, A. B., *Physica B* **161**, 311 (1989).
- Kambe, S., H. Suderow, J. Flouquet, P. Haen, P. Lejay, soumis à *Solid State Comm.* (1994).
- Kasaya, M., F. Iga, M. Takigawa et T. Kasuya, *J. Magn. Magn. Mat.* **47&48**, 429 (1985).
- Kasaya, M., T. Tani, F. Iga et T. Kasuya, *J. Magn. Magn. Mat.* **76**, 278 (1988).
- Kasaya, M., K. Satoh et K. Takegahara, *Solid State Commun.* **78**, 797 (1991a).
- Kasaya, M., T. Tani, H. Suzuki, K. Ohoyama et H. Kohgi, *J. Phys. Soc. Jpn.* **60**, 2542 (1991b).
- Kasuya, T., *Progr. Theor. Phys. Kyoto* **14**, 45 (1956).
- Keller, N., J. L. Tholence, A. Huxley et J. Flouquet, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 2364 (1994).
- Kikoin, K. A., A. de Visser, K. Bakker et T. Takabatake, *Z. Phys. B* **94**, 79 (1994).
- Kim, J. S., B. Andraka, G. Fraunberger et G. R. Stewart, *Phys. Rev. B* **41**, 541 (1990).
- Kitaoka, Y., H. Arimoto, Y. Kohori et K. Asayama, *J. Phys. Soc. Japan.* **54**, 3236 (1985).
- Kondo, J., *Progr. Theor. Phys.* **27**, 772 (1964).
- Konno, R., *J. Cond. Mat. Phys.* **3**, 9915 (1991).
- Konno, R. et T. Yanagisawa, *J. Magn. Magn. Mat.* **104-107**, 649 (1992).
- Kratzer, A., G. M. Kalvius, T. Takabatake, G. Nakamoto, H. Fujii et S. R. Kreitzman, *Europhys. Lett.* **19**, 649 (1992).
- Kroeger, F. R. et C. A. Swenson, *J. Appl. Phys.* **48**, 853 (1977).
- Kuramoto, Y., *Physica B* **156&157**, 189 (1989).
- Kurisu, M., T. Takabatake et H. Fujiwara, *Solid State Comm.* **68**, 595 (1988).
- Kurisu, M., T. Takabatake et H. Fujii, dans "*Proc. Hiroshima Workshop on Transport and Thermal Properties of f-Electron Systems*", H. Fujii, T. Fujita et G. Oomi, eds., Plenum Press New York (1993), p. 263.
- Kyogaku, M., Y. Kitaoka, H. Nakamura, K. Asayama, T. Takabatake, F. Teshima et H. Fujii, *J. Phys. Soc. Jpn.* **59**, 1728 (1990).
- Kyogaku, M., Y. Kitaoka, H. Nakamura, K. Asayama, T. Takabatake, F. Teshima et H. Fujii, *Physica B* **171**, 235 (1991).
- Lacerda, A., A. de Visser, L. Puech, P. Lejay et P. Haen, *J. Magn. Magn. Mater.* **76 & 77**, 138 (1988).

- Lacerda, A., A. de Visser, P. Haen, P. Lejay et J. Flouquet, *Phys. Rev. B* **40**, 8759 (1989a).
- Lacerda, A., A. de Visser, L. Puech, P. Haen, J. Flouquet, J. Voiron et F. Ohkawa, *Phys. Rev. B* **40**, 11429 (1989b).
- Lacerda, A., Thèse, Université de Grenoble (1990).
- Lacerda, A., A. de Visser, L. Puech, C. Paulsen, P. Haen, P. Lejay et J. Flouquet, *Physica B* **171**, 312 (1991)
- Lacerda, A., P. Haen, A. de Visser, J. Flouquet et E. Walker, *Physics Letters A* **164**, 93-98 (1992).
- Lacroix, C., *J. Appl. Phys.* **53**, 2131 (1982).
- Lang, M., Thèse, Université de Darmstadt (1992).
- Lapierre, F. et P. Haen, *J. Magn. Magn. Mater.* **108**, 167 (1992).
- Lavagna, M., C. Lacroix et M. Cyrot, *Phys. Lett.* **90A**, 210 (1982).
- Lavagna, M., C. Lacroix et M. Cyrot, *J. Phys. F : Met. Phys.* **13**, 1007 (1983).
- Lee, P. A., T. M. Rice, J. W. Serene, L. J. Sham et J. W. Wilkins, *Comm. Cond. Mat. Phys.* **12**, 99 (1986).
- Lehmann, P., Thèse, Université de Strasbourg (1987).
- Lloret, B., B. Chevallier, B. Buffat, J. Etourneau, S. Quezel, A. Lamharrar, J. Rossat - Mignod, R. Calemczuk et E. Bonjour, *J. Magn. Magn. Mat.* **63 & 64**, 85 (1987).
- Lonzarich, G., *J. Mag. Mag. Mat.* **76&77**, 1 (1988).
- Maekawa, S., S. Kashiba, M. Tachiki et S. Takahashi, dans "*Theory of Heavy Fermions and Valence Fluctuations*" T. Kasuya et T. Saso, ed., Springer Verlag, New York (1985) p. 10.
- Maekawa, S., S. Kashiba, M. Tachiki et S. Takahashi, *J. Phys. Soc. Japan*, **55**, 3194 (1986).
- Malik, S. K. et D. T. Androja, *Phys. Rev. B* **43**, 6277 (1991).
- Mason, T. E., G. Aeppli, A. P. Ramirez, K. N. Clausen, C. Broholm, N. Stücheli, E. Bucher et T. T. M. Palstra, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 490 (1992).
- Matho, K. et M. T. Béal-Monod, *J. Phys. F : Metal Phys.* **3**, 136 (1973).
- Matho, K. et C. Marcenat, *J. de Physique colloq.* **C8-49**, 717 (1988).
- Meisner, G. P., M. S. Torikachvili, K. N. Yang, M. B. Maple et R. P. Guertin, *J. Appl. Phys.* **57**, 3073 (1985).
- Mignot, J., J. Flouquet, P. Haen, F. Lapierre, L. Puech et J. Voiron, *J. Mag. Mag. Mat.* **76&77**, 97 (1988).
- Mignot, J. M., A. Ponchet, P. Haen, F. Lapierre et J. Flouquet, *Phys. Rev. B* **40**, 10917 (1989).
- Mignot, J. M., J. L. Jacoud, L. P. Regnault, J. Rossat - Mignod, P. Haen, P. Lejay, P. Boutrouille, B. Hennion et D. Petitgrand, *Physica B* **163**, 611 (1990).

- Mignot, J. M., L. P. Regnault, J. L. Jacoud, J. Rossat - Mignod, P. Haen et P. Lejay, *Physica B* **171**, 357 (1991).
- Misawa, S., *Phil. Mag.*, (1993).
- Miyake, K. et Y. Kuramoto, *Physica B* **171**, 20 (1991).
- Müller, T., W. Joss et L. Taillefer, *Phys. Rev. B* **40**, 2614 (1989).
- Müller, T., Thèse, Université de Karlsruhe, (1990).
- Noda, Y., K. Yamada, I. Hirose, Y. Endoh, Y. Onuki et T. Komatsubara, *J. Phys. Soc. Jpn.* **54**, 4486 (1985).
- Nohara, S., H. Namatame, A. Fujimori et T. Takabatake, *Phys. Rev. B* **47**, 1754 (1993).
- Nolten, S., Thèse (master), Université d'Amsterdam (1994).
- Nozières, P., *J. Low Temp. Phys.* **17**, 31 (1974).
- Nozières, P., *Ann. de Phys.* **10**, 19 (1985).
- Ohkawa, F., *Sol. State Comm.* **71**, 907 (1989).
- Onuki, Y., Y. Shimizu et T. Komatsubara, *J. Phys. Soc. Jpn.* **53**, 1210 (1984).
- Onuki, Y., Y. Shimizu et T. Komatsubara, *J. Phys. Soc. Jpn.* **54**, 304 (1985a).
- Onuki, Y., Y. Shimizu, M. Mashihara, Y. Machii et T. Komatsubara, *J. Phys. Soc. Jpn.* **54**, 1964 (1985b).
- Onuki, Y., K. Shibusaki, T. Hirai, T. Komatsubara, A. Sumiyama, Y. Oda, H. Nagano, H. Sato et K. Yonemitsu, *J. Phys. Soc. Jpn.* **54**, 2804 (1985c).
- Onuki, Y., Y. Shimizu, T. Hirai, K. Shibusaki, M. Nishihara, T. Komatsubara, A. Sumiyama, Y. Oda, H. Nagano, G. Oomi, A. Shibata et S. Minomura, *J. Magn. Magn. Mat.* **54-57**, 389 (1986).
- Onuki, Y., M. Nishihara, F. Fujimura, T. Yamazaki et T. Komatsubara, *J. Mag. Mag. Mat.* **63&64**, 317 (1987a).
- Onuki, Y. et T. Komatsubara, *J. Magn. Magn. Mat.* **63&64**, 281 (1987b).
- Onuki, Y., Y. Nakai, T. Omi, T. Yamazaki et T. Komatsubara, *J. Magn Magn. Mat.* **76&77**, 119 (1988).
- Onuki, Y., I. Umehara, A. Albessard, T. Ebihara et K. Satoh, *J. Phys. Soc. Jap.* **61**, 960 (1992).
- Oomi, G., K. Takahashi, F. J. Ohkawa, Y. Onuki et T. Komatsubara, *Physica B* **148**, 61 (1987).
- Ott, H. R., *Physica B* **130**, 163 (1985).
- Palstra, T., Thèse, Université de Leiden (1986).
- Park, J.-G., P. Haen, P. Lejay et J. Voiron, *J. Phys. Condens. Matter* **6**, 9383 (1994a).

- Park, J.-G., B. R. Coles, B. V. Sarkissian, *Physica B* **199&200**, 475 (1994b).
- Park, J.-G., M. Ocko, B. R. Coles, *J. Phys.: Condens. Matter* **6**, L781 (1994c).
- Parthé, E. et W. Rieger, *Monatsh. Chem.* **100**, 444 (1969).
- Paschke, C., C. Speck, G. Portisch, H. v. Löhneysen, *J. Low Temp. Phys.* **97**, 229 (1994).
- Paulsen, C., A. Lacerda, L. Puech, P. Haen, P. Lejay, J. L. Tholence, J. Flouquet et A. deVisser, *J. Low Temp. Phys.* **81**, 317 (1990a).
- Paulsen, C., A. Lacerda, J. L. Tholence et J. Flouquet, *Physica B* **165&166**, 433 (1990b).
- Payer, K., P. Haen, J.-M. Laurent, J.-M. Mignot et J. Flouquet, *Physica B* **186-188**, 503 (1993).
- Penney, T., F. P. Milliken, F. Holtzberg et Z. Fisk, *J. Magn. Magn. Mater.* **76&77**, 201 (1988).
- Pfeuty, P., R. Julien et K. A. Penson, in *Real Space renormalization Group*, T. W. Burkhardt et J. M. J. van Leeuwen, Eds., Springer-Verlag, Berlin (1982), p. 119.
- Phillips, W. A., *Proc. Roy. Soc. Lond. A.* **319**, 565 (1970).
- Ponchet, A., Thèse, Université de Grenoble (1987).
- Puech, L., *Solid State Commun.* **64**, 1095 (1987).
- Puech, L., J. M. Mignot, P. Lejay, P. Haen, J. Flouquet et J. Voiron, *J. Low Temp. Phys.* **70**, 237 (1988).
- Puech, L., *J. Phys. I France* **1**, 979 (1991).
- Quezel, S., P. Burlet, J. L. Jacoud, L. P. Regnault, J. Rossat - Mignod, C. Vettier, P. Lejay et J. Flouquet, *J. Magn. Magn. Mater.* **76 & 77**, 403 (1988).
- Rajan, V. T., *Phys. Rev. Lett.* **51**, 308 (1983).
- Regnault, L. P., W. A. C. Erkelens, J. Rossat-Mignod, J. Flouquet, E. Walker, D. Jaccard, A. Amato et B. Hennion, *J. Magn. Magn. Mat.* **63&64**, 289 (1987).
- Regnault, L. P., 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 Phys. colloq.* **C8-49**, 773 (1988).
- Regnault, L. P., J. L. Jacoud, J.M. Mignot, J. Rossat-Mignod, C. Vettier, P. Lejay et J. Flouquet, *Physica B* **163**, 606 (1990a).
- Regnault, L. P., J. L. Jacoud, J.M. Mignot, J. Rossat-Mignod, C. Vettier, P. Lejay et J. Flouquet, *J. Mag. Mag. Mat.* **90&91**, 398 (1990b).
- Regnault, L. P., communication privée (1994).
- Reinders, P. H. P., M. Springford, P. T. Coleridge, R. Boulet et D. Ravot, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 1631 (1986).
- Reinders, P. H. P., M. Springford, P. T. Coleridge, R. Burlet et D. Ravot, *J. Magn. Magn. Mat.* **63&64**, 297 (1987).
- Röhler, J., D. Wohlleben, J. P. Kappler et G. Krill, *Phys. Lett.* **103A**, 220 (1984).

- Rossat-Mignod, J., L. Regnault, J. Jacoud, C. Vettier, P. Lejay, J. Flouquet, E. Walker, D. Jaccard et A. Amato, *J. Mag. Mag. Mat.* **76&77**, 376 (1988).
- Ruderman, A. et C. Kittel, *Phys. Rev.* **96**, 99 (1954).
- Saint-Paul, M. et J. le G. Gilchrist, *J. Phys. C : Solid State Phys.* **19**, 2091 (1986).
- Sakakibara, T., T. Goto, K. Yoshimura et K. Murata, *J. Magn. Magn. Mat.* **90&91**, 131 (1990).
- Sakakibara, T., T. Tayama, H. Mitamura, K. Matsuhira, S. Kunii, SCES'94 (1994a), à paraître dans *Physica B*
- Sakakibara, T., T. Tayama, K. Matsuhira, H. Mitamura, H. Amitsuka, K. Maezawa et Y. Onuki, à paraître (1994b)
- Sakurai, J., R. Kawamura, T. Taniguchi, S. Nishigori, S. Ikeda, H. Goshima, T. Suzuki et T. Fujita, *J. Magn. Magn. Mater.* **104-107**, 1415 (1992).
- Saso, T., dans *Third International Conference on Materials and Mechanisms of Superconductivity*, Kanazawa, Japon (1991).
- Schlager, H. G., A. Schröder, M. Welsch et H. v. Löhneysen, *J. Low Temp. Phys.* **90**, 181 (1993).
- Schlottman, P. et J. W. Rasul, *Physica B* **163**, 544 (1990).
- Schneider, W. D. et C. Laubschat, *Phys. Rev. B* **23**, 997 (1981).
- Schotte, K. D. et U. Schotte, *Phys. Lett.* **55A**, 38 (1975).
- Schrieffer, J. et P. Wolf, *Phys. Rev.* **149**, 4910 (1966).
- Schröder, A., H. G. Schlager et H. v. Löhneysen, *J. Magn. Magn. Mat.* **108**, 47 (1992).
- Severing, A., E. Holland-Moritz et B. Frick, *Phys. Rev. B* **39**, 4164 (1989).
- Shibata, A., G. Oomi, Y. Onuki et T. Kamatsubara, *J. Phys. Soc. Jpn.* **55**, 2086 (1986).
- Shoemaker, C. B. et D. P. Shoemaker, *Acta cryst.* **18**, 900 (1965).
- Skolozdra, R. V., O. E. Koretskaya et Y. K. Gorelenko, *Inorganic Mater.* **20**, 604 (1984).
- Smith, J. L. et E. A. Kmetko, *J. Less Comm. Met.* **90**, 83 (1983).
- Souletie, J., J. P. Brison, A. de Visser et J. Odin, *J. Mag. Magn. Mat.* **76&77**, 123 (1988a).
- Souletie, J., *J. de Physique* **49**, 1211 (1988b).
- Steglich, F., U. Rauschwalbe, U. Gottwick, H. M. Mayer, G. Sparn, N. Grewe, U. Poppe et J. J. M. Franse, *J. Appl. Phys.* **57**, 3054 (1985).
- Stewart, G. R., *Rev. Mod. Phys.* **56**, 755 (1984).
- Suderow, H., J. P. Brison, R. Calemczuk et coll. (1994), non publié.
- Sumiyama, A., Y. Oda, H. Nagano, Y. Onuki et T. Komatsubara, *J. Phys. Soc. Jpn.* **54**, 877 (1985).

- Sumiyama, A., Y. Oda, H. Nagano, Y. Onuki, K. Shibutani et T. Komatsubara, *J. Phys. Soc. Jpn.* **55**, 1294 (1986).
- Suzuki, T., T. Goto, A. Tamaki, T. Fujimura, Y. Onuki et T. Komatsubara, *J. Phys. Soc. Jpn.* **54**, 2367 (1985).
- Taillefer, L., J. Flouquet et W. Joss, *J. Mag. Mag. Mat.* **76&77**, 218 (1988).
- Takabatake, T., Y. Nakazawa et M. Ishikawa, *Jpn. J. Appl. Phys.* **26**, 547 (1987).
- Takabatake, T., Y. Nakazawa, M. Ishikawa, T. Sakakibara, K. Koga et I. Oguro, *J. Magn. Magn. Mater.* **76&77**, 87 (1988).
- Takabatake, T., M. Nagasawa, H. Fujii, S. Nishigori, T. Suzuki, T. Fujita, Y. Yamaguchi, J. Sakurai et D. Jaccard, *Phys. Rev. B* **41**, 9607 (1990a).
- Takabatake, T., S. I. Miyata, H. Fujii, Y. Aoki, T. Suzuki, T. Fujita, J. Sakurai et T. Hiraoka, *J. Phys. Soc. Jpn.* **59**, 4412 (1990b).
- Takabatake, T., F. Teshima, H. Fujii, S. Nishigori, T. Suzuki, T. Fujita, Y. Yamaguchi et J. Sakurai, *J. Magn. Magn. Mater.* **90&91**, 474 (1990c).
- Takabatake, T., M. Nagasawa, H. Fujii, G. Kido, M. Nohara, S. Nishigori, T. Suzuki, T. Fujita, R. Helfrich, U. Ahlheim, K. Fraas, C. Geibel et F. Steglich, *Phys. Rev. B* **45**, 5470 (1992a).
- Takabatake, T., M. Nagasawa, H. Fujii, G. Kido, K. Sugiyama, K. Senda, K. Kindo et M. Date, *Physica B* **177**, 177 (1992b).
- Takabatake, T., M. Nagasawa, H. Fujii, M. Nohara, T. Suzuki, T. Fujita, G. Kido et T. Hiraoka, *J. Magn. Magn. Mater.* **108**, 155 (1992c).
- Takabatake, T. et H. Fujii, *Jpn. J. Appl. Phys.* **8**, (1992d).
- Takabatake, T., G. Nakamoto, H. Tanaka, Y. Bando, H. Fujii, S. Nishigori, H. Goshima, T. Suzuki, T. Fujita, I. Oguro, T. Hiraoka, S.K. Malik, *Physica B* **199&200**, 457 (1994a).
- Takabatake, T., SCES'94 Amsterdam (1994b), à paraître dans *Physica B*, voir Nakamoto et al.
- Thalmeier, P. et P. Fulde, *Europhys. Lett.* **1**, 367 (1986).
- Thalmeier, P. et B. Luthi, dans *Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths*, North Holland Amsterdam, vol. **14** (1991).
- Thompson, J. D., J. O. Willis, C. Godart, D. E. MacLaughlin et L. C. Gupta, *Solid State Commun.* **56**, 169 (1985a).
- Thompson, J. O. Willis, C. Godart, D. E. MacLaughlin et L. C. Gupta, *J. Magn. Magn. Mat.* **47&48**, 281 (1985b).
- Thompson, J. D., Z. Fisk et G. G. Lonzarich, *Physica B* **161**, 317 (1989).
- Thomson, A. M., *I.R.E. Transactions on Instrumentation* **I-7**, 245 (1958).
- Torikachvili, M. S., M. B. Maple et G. P. Meisner, dans "Proc. of LT-17", H. Eckerns, Ed., North-Holland, Amsterdam (1984), p. 875.

- Tsvelick, A. M. et P. B. Wiegemann, *Adv. Phys.* **32**, 453 (1983).
- Ueda, K., K. Yamamoto et R. Konno, *J. Mag. Mag. Mat.* **90&91**, 419 (1990).
- Uwatoko, Y., G. Oomi, T. Takabatake, T. Teshima et H. Fujii, Intern. Symp. on Intermetallic Compounds (JIMIS-6), (The Japan Institute of Metals), (1991) p. 135 .
- Uwatoko, Y., pas publié (1994).
- v. Löhneysen, H., A. G. Schlager et A. Schröder, *Physica B* **186-188**, 590 (1993).
- v. Löhneysen, H., T. Pietrus, G. Portisch, H. G. Schlager, A. Schröder, M. Sieck et T. Trappmann, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 3262 (1994).
- van der Meulen, H. P., A. de Visser, J. J. M. Franse, T. T. J. M. Berendschot, J. A. A. J. Perenboom, H. van Kempen, A. Lacerda, P. Lejay et J. Flouquet, *Phys. Rev. B* **44**, 814 (1991).
- van Dijk, N. H., A. de Visser et J. J. M. Franse, *J. Low Temp. Phys.* **93**, 101 (1993).
- Varma, C. M., *Comm. Solid State Phys.* **11**, 221 (1985).
- Voiron, J., J. Mignot, P. Lejay et J. Flouquet, *J. de Physique* **49**, 1555 (1988).
- Voiron, J., P. Haen, F. Lapierre, P. Lejay et J. Flouquet, *J. Appl. Phys.*, **69** , 5490 (1991).
- Walter, U., D. Wohlleben et Z. Fisk, *Z. Phys. B* **62**, 325 (1986).
- Weber, D., M. Yoshizawa, I. Kouroudis, B. Luthi et E. Walker, *Europhys. Lett.* **3**, 827 (1987).
- Weber, D., Thèse, Université de Frankfurt (1991).
- Weidner, P., K. Keulerz, R. Löhe, B. Roden, J. Röhler, B. Wittershagen et D. Wohlleben, *J. Mag. Mag. Mat.* **47&48**, 75 (1985).
- Wilson, K. G., *Rev. Mod. Phys.* **47**, 773 (1975).
- Wohlfarth, E. P. et P. Rhodes, *Phil. Mag.* **7**, 1817 (1962).
- Wyder, U., H. P. van der Meulen, A. de Visser, P. van der Linden, J. A. A. J. Perenboom, A. A. Menovsky et J. J. M. Franse, *Physica B* **199&200**, 178 (1994).
- Yamada, K., I. Hirose, Y. Noma, Y. Endoh, Y. Onuki et T. Komatsubara, *J. Phys. Soc. Jpn.* **56**, 3553 (1987).
- Yamaguchi, Y., J. Sakurai, F. Teshima, H. Kawanaka, T. Takabatake et H. Fujii, *J. Phys.: Condens. Matter* **2**, 5715 (1990).
- Yoshida, K., *Phys. Rev.* **106**, 893 (1957).
- Zemirli, S. et B. Barbara, *Solid State Commun.* **56**, 385 (1985).
- Zwicknagel, G., *Adv. Phys.* **41**, 203 (1992).

ABSTRACT

This work describes studies of the thermal expansion and of the magnetostriction performed with a capacitance dilatometer on single crystalline heavy fermion compounds, between 0,2 et 300 K and in magnetic fields up to 11 T.

In the first chapter, results on the alloy $\text{Ce}_{0.985}\text{Y}_{0.015}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ are presented which complete a study already performed on crystals of CeRu_2Si_2 and $\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$. Their characteristic energies follow a scaling law. None of these three compounds shows long range magnetic order but short-range antiferromagnetic correlations which disappear in the so called pseudo-metamagnetic field induced transition. The influence of alloying on the thermal expansion and on the sharpness of the transition is discussed. An explanation is given, based on the Kondo-effect in presence of the antiferromagnetic correlations.

The heavy fermion system CeCu_6 shows strongly anisotropic magnetovolume effects. At low temperature a tiny pseudo-metamagnetic transition has been detected. The field dependence of the thermal expansion is discussed in terms of the single-site Kondo-effect.

The semiconducting gap opening in CeNiSn does not show any particular influence on the magnetovolume properties. Our measurements confirm the existence of an anisotropic spin-gap. Theoretical models which try to explain this behaviour not common among classic magnetic semiconductors are discussed.

KEYWORDS

Cerium compounds
Magnetostriction

Heavy fermions
Metamagnetism

Thermal expansion
Grüneisen parameter

RÉSUMÉ

Ce mémoire décrit des études de dilatation thermique et de magnétostriction effectuées au moyen d'un dilatomètre capacitif sur des monocritaux de composés à fermions lourds, entre 0.2 et 300 K et sous des champs magnétiques allant jusqu'à 11 T.

Dans une première partie, sont décrits des résultats sur l'alliage $\text{Ce}_{0.985}\text{Y}_{0.015}\text{Ru}_2\text{Si}_2$, qui complètent une étude précédente du composé CeRu_2Si_2 pur et de l'alliage $\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$. Leur énergie caractéristique obéit à une loi d'échelle. Aucun des de ces trois composés ne présente d'ordre magnétique à longue distance, mais des corrélations antiferromagnétiques à courte portée, lesquelles disparaissent lors d'une transition induite sous champ, qualifiée de pseudométamagnétique. Les effets d'alliage sur la dilatation volumique et sur la largeur de cette transition sont discutés, et une explication basée sur un effet Kondo en présence des corrélations est présentée.

Le composé CeCu_6 montre des effets magnétovolumiques très anisotropes. A très basse température, une faible transition pseudométamagnétique a pu être détectée. Le comportement sous champ est discuté en terme d'effet Kondo à un site.

La formation d'un gap semiconducteur dans CeNiSn n'a pas de forte influence sur les propriétés magnétovolumiques. Par contre, nos expériences confirment l'existence d'un pseudogap de spin très anisotrope. Les modèles théoriques qui tentent d'expliquer ce comportement nouveau dans les semiconducteurs magnétiques sont discutés.

MOTS CLÉS

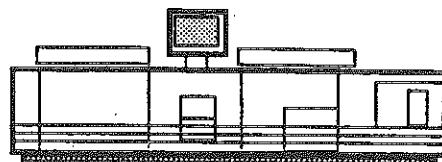
Composés de cérium
Magnétostriction

Fermions lourds
Métamagnétisme

Dilatation thermique
Paramètre de Grüneisen



Grenoble, août 1995



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

