

# THESE

présentée par

Alex LACERDA

POUR OBTENIR LE TITRE DE DOCTEUR  
DE L'UNIVERSITE JOSEPH FOURIER - GRENOBLE I  
SPECIALITE PHYSIQUE

---

## PROPRIETES MAGNETOVOLUMIQUES DES COMPOSES A FERMIONS LOURDS CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> ET CeCu<sub>6</sub> A BASSE TEMPERATURE

---

DATE DE SOUTENANCE : le 15 novembre 1990

COMPOSITION DU JURY : R. LEMAIRE (Président)  
P. MORIN  
J. FLOUQUET  
P. HAEN  
A. de VISSER

THESE PREPAREE AU SEIN DU CENTRE DE RECHERCHES SUR LES TRES BASSES TEMPERATURES  
- CENTRE NATIONAL DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE -



*Je remercie Monsieur R. Lemaire d'avoir accepté la présidence du jury de cette thèse.*

*Je remercie également Monsieur P. Morin d'avoir accepté de participer à ce jury.*

*J. Flouquet et P. Haen ont orienté ce travail tout au long de son développement. Je voudrais vivement les remercier pour leur dynamisme, leur compétence et leur enthousiasme qui m'ont été très utiles dans les moments difficiles.*

*Je remercie très chaleureusement A. de Visser envers qui j'ai une grande dette pour sa disponibilité et sa patience. Qu'il sache que j'ai beaucoup appris avec lui de ce que je sais sur les expériences. Obrigado, Anne.*

*Lors de la réalisation de cette thèse, j'ai profité de l'aide morale et du soutien scientifique de nombreuses personnes que je souhaite remercier ici : L. Puech, C. Paulsen et J. L. Tholence.*

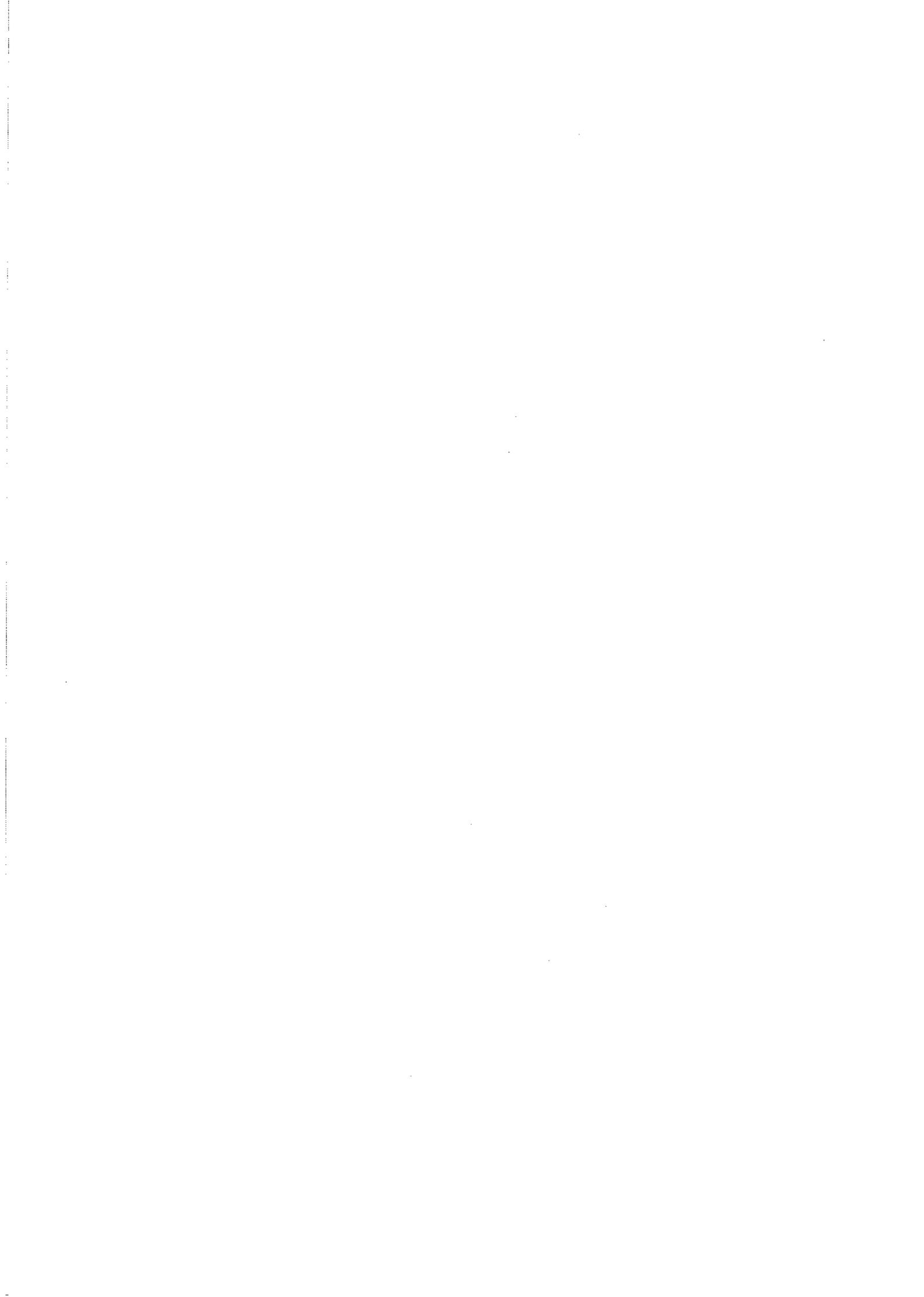
*Je suis très reconnaissant envers les chercheurs et techniciens du CRTBT qui ont contribué à la réalisation de ce travail, en particulier P. Lejay, L. Perli, H. Rodenas, J. L. Bret et M. Caussignac.*

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

*J'ai eu beaucoup de discussions fructueuses sur divers aspects de ce travail avec mes camarades : J. Amrit, K. Behnia, K. Hasselbach et N. Keller. Je les remercie tous.*

*Mesdames D. Devillers et P. Poirier ont tapé cette thèse avec beaucoup de gentillesse et de patience. Je leur adresse mes remerciements.*

*Enfin, Je suis très reconnaissant au CNPq (BRASIL) dont la bourse d'études m'a permis de réaliser ce travail.*



# TABLE des MATIERES

	Pages
<b><u>CHAPITRE I</u> - INTRODUCTION</b>	
I-1 Introduction historique.....	5
I-2 Introduction aux composés à fermions lourds.....	7
<i>I-2-1 Terme <math>\gamma</math> de la chaleur spécifique.....</i>	<i>9</i>
<i>I-2-2 Susceptibilité magnétique.....</i>	<i>11</i>
<i>I-2-3 Rapport de Wilson.....</i>	<i>11</i>
I-3 Propriétés thermodynamiques du composé CeRu <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> .....	12
<i>I-3-1 Propriétés magnétiques.....</i>	<i>12</i>
3-1-1 Aimantation en champs intenses.....	15
<i>I-3-2 Propriétés de transport.....</i>	<i>18</i>
3-2-1 Résistivité électrique.....	18
3-2-2 Magnétorésistance.....	20
<i>I-3-3 Loi d'échelle.....</i>	<i>22</i>
<b><u>CHAPITRE II</u> - TECHNIQUES EXPERIMENTALES</b>	
II-1 Préparation des échantillons.....	31
II-2 Cellule capacitive.....	33
<i>II-2-1 Construction de la cellule.....</i>	<i>33</i>
<i>II-2-2 Méthode de mesure.....</i>	<i>34</i>
II-3 Les systèmes cryogéniques.....	40
<i>II-3-1 Cryostat à <sup>4</sup>He.....</i>	<i>40</i>
<i>II-3-2 Cryostat à <sup>3</sup>He.....</i>	<i>42</i>
<i>II-3-3 Cryostat et canne à dilution.....</i>	<i>44</i>

II-4 Mesures d'aimantation.....	47
---------------------------------	----

II-4-1 Mesures à fort champ.....	47
----------------------------------	----

II-4-2 Mesures avec un SQUID.....	47
-----------------------------------	----

### CHAPITRE III - PROPRIETES MAGNETOVOLUMIQUES : CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> et Ce<sub>0.95</sub>La<sub>0.05</sub>Ru<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>

III-1 Dilatation thermique à champ nul.....	53
---	----

III-1-1 Le composé CeRu <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> .....	55
--	----

III.2 Paramètres de Grüneisen.....	60
------------------------------------	----

III.3 Le composé Ce <sub>0.95</sub> La <sub>0.05</sub> Ru <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> .....	71
--	----

III.4 Effet du champ magnétique.....	74
--------------------------------------	----

III.4.1 Magnétostriction.....	74
-------------------------------	----

III.5 Augmentation de la masse effective à B*.....	85
--	----

III.6 Dilation thermique sous champ.....	93
--	----

III.6.1 Résultats expérimentaux.....	93
--------------------------------------	----

III.6.2 Loi d'échelle.....	99
----------------------------	----

### CHAPITRE IV - EFFETS MAGNETOVOLUMIQUES DANS CeCu<sub>6</sub>

IV-1 Le composé CeCu <sub>6</sub> .....	109
---	-----

IV-2 Dilatation thermique à champ nul.....	113
--	-----

IV-3 Paramètres de Grüneisen.....	117
-----------------------------------	-----

IV-4 Effet du champ magnétique.....	119
-------------------------------------	-----

<i>IV-4-1 Magnétostriction à basses températures.....</i>	<i>123</i>
---	------------

<i>IV-4-2 Dilatation thermique sous champ.....</i>	<i>127</i>
--	------------

## CHAPITRE V - L'ALLIAGE ORDONNE $Ce_{0.80}La_{0.20}Ru_2Si_2$

V-1 Le composé $Ce_{0.80}La_{0.20}Ru_2Si_2$ .....	135
---	-----

V-2 Expériences de neutrons.....	135
----------------------------------	-----

V-3 Propriétés thermodynamiques.....	139
--------------------------------------	-----

<i>V-3-1 Magnétostriction.....</i>	<i>139</i>
------------------------------------	------------

<i>V-3-2 Chaleur spécifique.....</i>	<i>142</i>
--------------------------------------	------------

<i>V-3-3 Dilatation thermique.....</i>	<i>146</i>
--	------------

CONCLUSION.....	155
-----------------	-----

REFERENCES.....	159
-----------------	-----

PUBLICATIONS.....	171
-------------------	-----



# CHAPITRE I

*Dans ce chapitre, une courte introduction des propriétés thermodynamiques des composés à fermions lourds sera discutée. La dernière section sera consacrée aux propriétés spécifiques du composé  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ .*



# I - INTRODUCTION

## I-1 Introduction historique

## I-2 Introduction aux composés à fermions lourds

*I-2-1 Terme  $\gamma$  de la chaleur spécifique*

*I-2-2 Susceptibilité magnétique*

*I-2-3 Rapport de Wilson*

## I-3 Propriétés thermodynamiques du composé $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$

*I-3-1 Propriétés magnétiques*

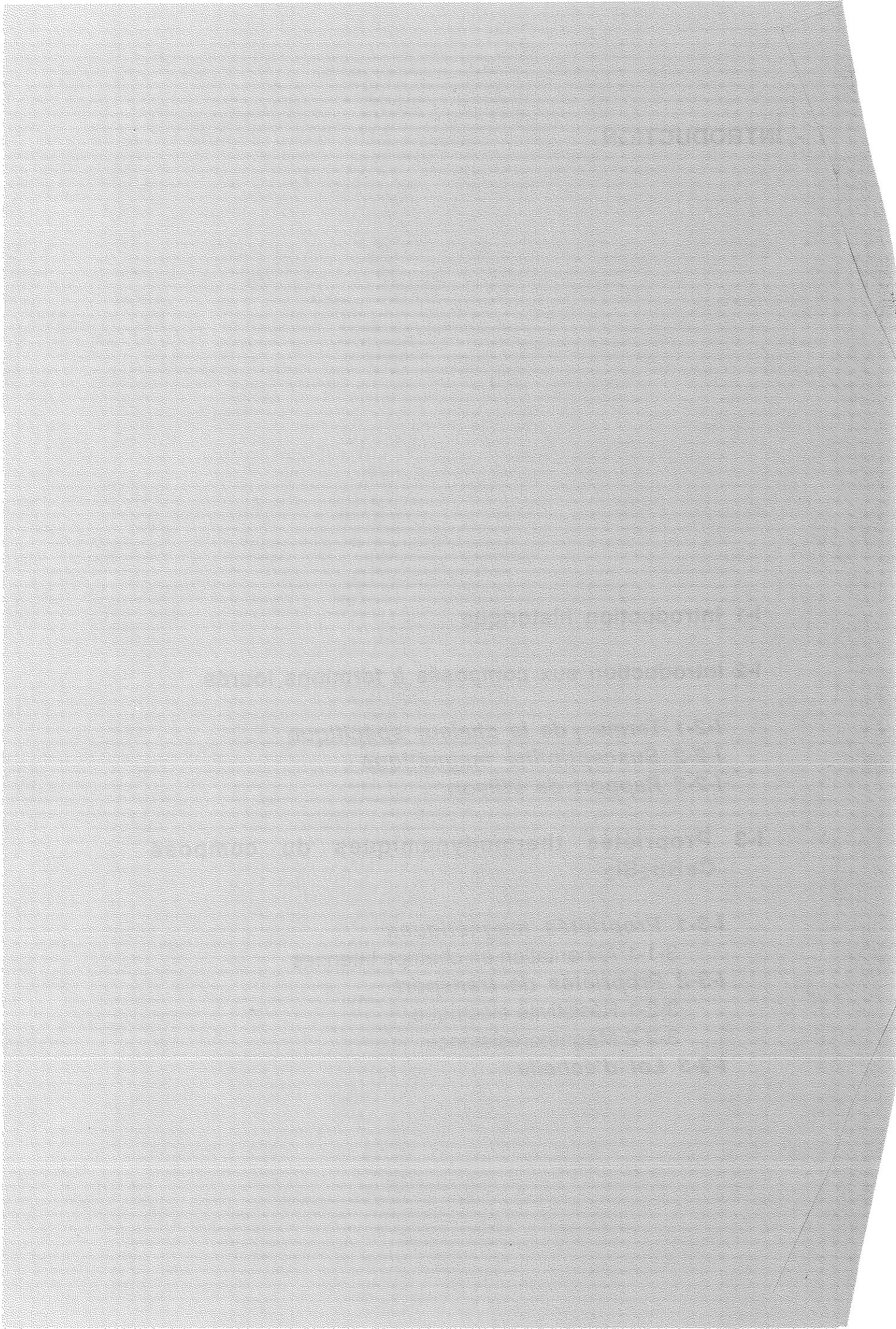
3-1-1 Aimantation en champs intenses

*I-3-2 Propriétés de transport*

3-2-1 Résistivité électrique

3-2-2 Magnétorésistance

*I-3-3 Loi d'échelle*



## I - INTRODUCTION

### I-1 Introduction historique

Les fermions lourds (FL) sont des systèmes intermétalliques de composés de terres rares (TR), généralement des composés de cérium (Ce), ytterbium (Yb) ou d'actinides (U, Np ou Pu). Leur principale caractéristique, décrite dans la section I-2, est de présenter un rapport de chaleur spécifique/ température ( $\gamma \equiv C/T$ ) très grand pour  $T \rightarrow 0$ .

Dans un cristal métallique de TR, la bande de conduction est formée par les électrons les plus externes. Les électrons 4f, dans le cas des composés de Ce, restent localisés au niveau de l'ion de TR. Comme l'extension radiale de la couche 4f est faible et les distances intermétalliques entre les atomes de TR sont grandes, les propriétés magnétiques peuvent s'interpréter par un modèle de moments magnétiques localisés. Dans les composés de TR constitués de cérium (Ce), samarium (Sm), europium (Eu), thulium (Tm) et ytterbium (Yb), la proximité du niveau 4f ( $\epsilon_{4f}$ ) et du niveau de Fermi ( $\epsilon_F$ ) entraîne des propriétés anormales. Ces propriétés seront décrites avec plus de détail dans les sections suivantes.

Les modèles capables de décrire quelques propriétés thermodynamiques dans les systèmes à FL sont issus de modèles développés pour le problème d'une impureté Kondo des impuretés magnétiques dans les matrices métalliques. Un effet spectaculaire des impuretés Kondo est d'avoir une résistivité électrique,  $\rho$ , présentant un minimum à basse température, suivi d'une remontée logarithmique en  $T$  décroissante (voir par exemple de Haas *et al.* (1933)). L'interprétation théorique de cette remontée a été proposée par J. Kondo en 1964.

Dans l'Hamiltonien de Kondo, l'interaction entre une impureté magnétique avec un spin  $\vec{S}=1/2$ , et un électron de conduction de spin  $\vec{s}$ , s'écrit sous la forme :

$$\mathcal{H} = - J \vec{S} \cdot \vec{s}, \quad (I-1)$$

$J$  étant la constante de couplage. Pour un couplage antiferromagnétique ( $J < 0$ ), le spin de l'impureté est complètement compensé à basses températures, avec la formation d'un état singulet. La résistivité présente une augmentation logarithmique en refroidissant ( $\ln(T/T_K)$ ), avant d'atteindre un régime en  $T^2$  puis une saturation à la valeur unitaire de diffusion. Dans ce cas, la température  $T_K$  dite température de Kondo différencie une région à  $T < T_K$  où un régime à couplage fort se développe. Dans la région  $T < T_K$ , le complet écrantage de l'impureté par les électrons de conduction conduit à une disparition progressive du magnétisme. Pour  $T \ll T_K$ , un régime de type liquide de Fermi s'établit (voir par exemple P. Nozières, 1974).

Dans un réseau, avec l'augmentation du nombre d'impuretés, un simple modèle de Kondo à une impureté n'est plus utilisable. Pour des fortes concentrations d'impuretés, à basses températures, les électrons de conduction ont une certaine "cohérence" correspondant par exemple au fait que le système obéit au théorème de Bloch. En-dessous d'une température caractéristique  $T^*$  (généralement inférieure à  $T_K$ ), il y a apparition de la cohérence. Bien sur, ce modèle est trop naïf pour étudier par exemple l'apparition d'ordre magnétique et le phénomène de la supraconductivité dans les composés à fermions lourds.

## I-2 Introduction aux composés à fermions lourds

L'observation d'un énorme terme linéaire  $\gamma$  ( $\equiv C/T$  à  $T \rightarrow 0$ ) dans la chaleur spécifique à basses températures est à l'origine de la dénomination fermions lourds. Par exemple, dans un métal ordinaire, le terme  $\gamma$  est de l'ordre de 1 à 10 mJ K<sup>-2</sup> mole<sup>-1</sup> ; pour les systèmes à FL, le terme  $\gamma$  augmente à 200 à 1 700 mJ K<sup>-2</sup> mole<sup>-1</sup>. Pour une revue expérimentale, voir par exemple G.R. Stewart (1984 a).

Un des premiers composés à présenter ces propriétés anormales à basses températures a été CeAl<sub>3</sub> ( $\gamma \sim 1600$  mJ K<sup>-2</sup> mole<sup>-1</sup>) par K. Andres *et al.* 1975 (voir Fig. I-2-1a). Sur ce composé, la dilatation thermique à très basse température, mesurée par M. Ribault *et al.* (1979), montre des propriétés très particulières : au-dessus de 1 K,  $\partial V/\partial T > 0$  (où  $V$  est le volume molaire), tandis qu'au-dessous de 1 K,  $\partial V/\partial T < 0$  en passant par un extrémum vers 300 mK et en s'annulant à  $T = 0$  suivant une décroissance linéaire en  $T$  (voir Fig. I-2-1b.). Dans la même année, F. Steglich *et al.*, 1979, ont découvert la supraconductivité dans le composé CeCu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> ( $\gamma \sim 1100$  mJ K<sup>-2</sup> mole<sup>-1</sup>).

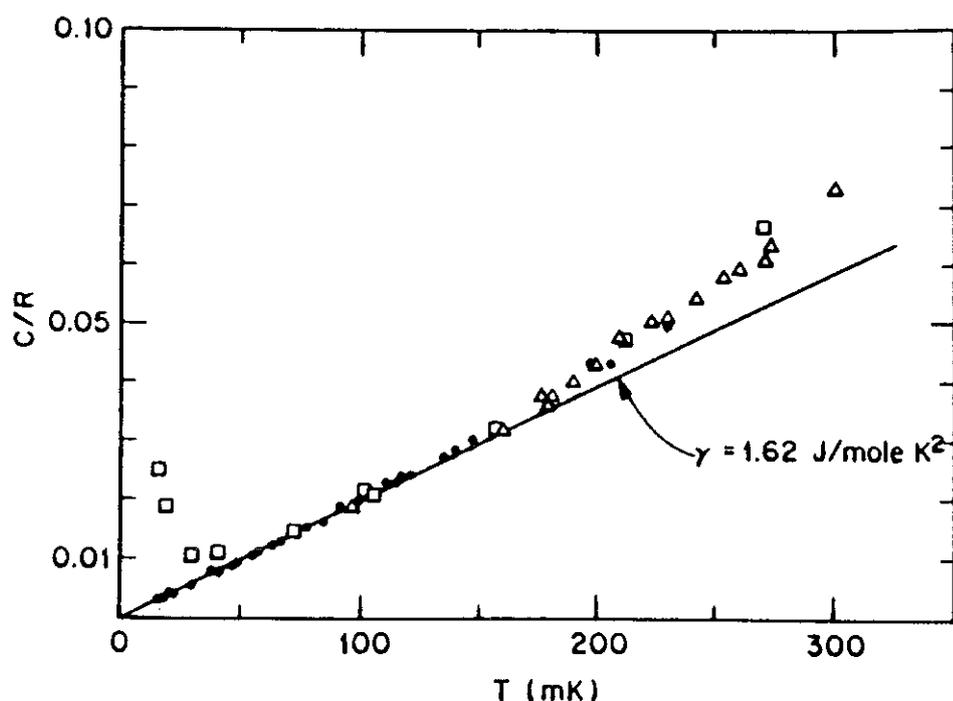


Fig. I-2-1a (a) Chaleur spécifique de CeAl<sub>3</sub> à basses températures à champ nul (d'après Andres *et al.* (1975)). (□) à 10 kOe.

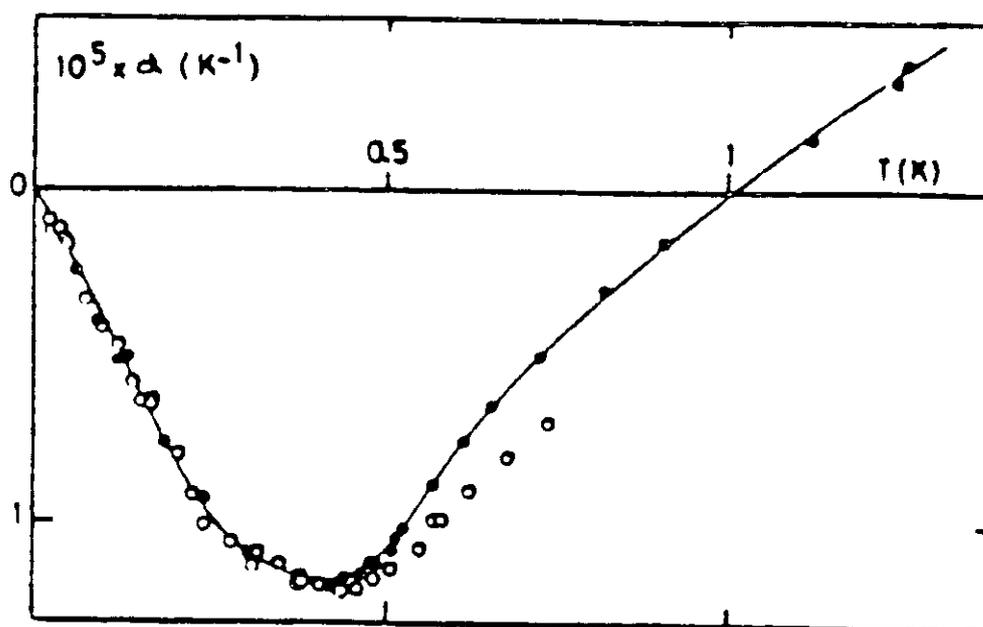


Fig. I-2-1b (b) Dilatation thermique de  $\text{CeAl}_3$  d'après Ribault *et al.* (1979).

### 1-2-1 Le terme $\gamma$ de la chaleur spécifique

Dans une théorie de liquide de Fermi (voir par exemple P. Nozières (1964)), le terme  $\gamma$  est proportionnel à la densité des quasi-particules au niveau de Fermi ( $\epsilon_F$ ) ou à la masse effective. On peut écrire :

$$\gamma = \frac{\pi^2 k_B^2}{3} \sum_{\vec{k}, \ell} \delta(\epsilon_F - \epsilon_{\vec{k}}^{\ell}), \quad (1-2)$$

où l'index  $\ell$  caractérise les bandes et  $k_B$  est la constante de Boltzmann. Si l'on suppose que les bandes décrivent des électrons libres, avec des relations de dispersion :

$$\epsilon_{\vec{k}}^{\ell} = \frac{\hbar^2 k^2}{2m^*} \quad (1-3)$$

où  $m^*$  est la masse effective d'une certaine bande, la densité d'état totale des quasi-particules peut s'écrire :

$$N_F = \sum_{\ell} N_F^{\ell}.$$

Dans ce cas, la surface de Fermi est remplacée par une sphère et on trouve :

$$\gamma = \frac{k_B^2}{3 \hbar^2} k_F m^*. \quad (1-4)$$

L'énergie de Fermi est égale à :  $\epsilon_F^* = \hbar^2 k_F^2 / 2m^*$ , où  $k_F$  est le moment au niveau de Fermi. Pour  $\gamma \sim 1 \text{ J K}^{-2} \text{ mole}^{-1}$  et  $k_F$  de l'ordre de  $1 \text{ \AA}^{-1}$ , la masse effective obtenue de l'équation 1-4 est de l'ordre de  $10^2 - 10^3 m_0$ , où  $m_0$  est la masse des électrons libres. Il est clair que l'application de l'éq. 1-4 est limitée aux basses températures, c'est-à-dire à  $T < T^*$ . On peut définir  $T^*$  comme la température de cohérence. Par exemple,  $T^*$  peut être déterminée par la position du maximum de la chaleur spécifique reliée à la température de Kondo ( $T_K$ ) par la relation :  $T^* = 0.68 T_K$  (voir par exemple N. Andrei *et al.*, 1983)).

Le tableau I reproduit les propriétés de quelques FL avec  $\gamma > 200 \text{ mJ K}^{-2} \text{ mole}^{-1}$  ; ces termes ont été calculés par :

$$\gamma = \lim_{T \rightarrow 0} \left( \frac{C_P}{T} \right).$$

Pour les composés ordonnés,  $\gamma$  a été calculé par l'extrapolation vers  $T \rightarrow 0$  à partir des données à  $T > T_{\text{ordre}} (T_c \text{ ou } T_N)$ .

TABLEAU I

Composé	Structure	$d_{\text{eff}}(\text{\AA})$	$\gamma(\text{mJ K}^{-2}\text{mole}^{-1})$	Type	$T_N$
					$T_c$
CeAl <sub>3</sub>	hexagonale	4.43	1620 <sup>a</sup>	antif. (AF)	1.6 <sup>a'</sup>
CeCu <sub>6</sub>	orthorhombic	4.83	1600 <sup>b,c</sup>	non ordonné	-
CeCu <sub>2</sub> Si <sub>2</sub>	tetragonale	4.10	1100 <sup>d</sup>	superc.	- / 0.6
CePb <sub>3</sub>	cubique	4.87	> 200 <sup>e</sup>	AF	1.1 / -
CeRu <sub>2</sub> Si <sub>2</sub>	tetragonale	4.20	350 <sup>f</sup>	non ordonné	-
UBe <sub>13</sub>	cubique	5.13	1100 <sup>g</sup>	superc.	- / 0.9
UPt <sub>3</sub>	hexagonal	4.12	422 <sup>h,i,j</sup>	superc. (AF)	5 / 0.5

a) Andres *et al.* (1975) ; a') Barth *et al.* (1987) ; b) Stewart *et al.* (1984b) ; c) Fujita *et al.* (1985) ; d) Steglich *et al.* (1979) ; e) Lin *et al.* (1985) ; f) Besnus *et al.*, (1985) ; g) Ott *et al.* (1983) ; h) Frings *et al.* (1983) ; i) Stewart *et al.* (1984c) ; j) de Visser *et al.* (1984)

### I-2-2 La susceptibilité magnétique

La susceptibilité à haute température suit une loi de Curie-Weiss ( $\chi = \mu_{\text{eff}}^2 / 3 k_B (T - \Theta)$ ). La forte localisation des électrons 4f (composés de Ce) permet d'interpréter les propriétés à haute température par des modèles de moments magnétiques localisés. Le moment effectif,  $\mu_{\text{eff}}$ , déduit du comportement Curie-Weiss de  $\chi^{-1}$  en fonction de T, est proche de la valeur de l'ion libre de Ce trivalent. A basse température,  $\chi (T \rightarrow 0)$  reste grand mais fini ; encore une fois, cet effet suggère une description de ces systèmes en termes d'un liquide de Fermi.  $\chi (T \rightarrow 0) (\equiv \chi_0)$  et  $\mu_{\text{eff}}$  déterminés pour quelques composés à base de cérium sont décrites dans le tableau II.

TABLEAU II

Composé	$\mu_{\text{eff}} (\mu_B)^*$	$\chi (T \rightarrow 0) (10^{-3} \text{ emu mole}^{-1})$
CeAl <sub>3</sub>	2.55	36 <sup>a</sup>
CeCu <sub>6</sub>	2.69	34 <sup>b</sup>
CeCu <sub>2</sub> Si <sub>2</sub>	2.62	15 <sup>c,d</sup>
CeRu <sub>2</sub> Si <sub>2</sub>	2.44	14 <sup>e,f</sup>

\* On rappelle que le moment effectif pour un ion libre de Ce trivalent est de 2.54  $\mu_B$

a) Benoit *et al.* (1981) ; b) Amato *et al.* (1987) ; c) Lieke *et al.* (1982) ; d) Batlogg *et al.* (1984), e) Besnus *et al.* (1985) ; f) Haen *et al.* (1987).

### I-2-3 Le rapport de Wilson

Dans le but d'avoir une corrélation possible entre  $\gamma$  et  $\chi_0$  ( $\equiv \chi (T \rightarrow 0)$ ) dans les systèmes à FL, le rapport de Wilson, R, peut être écrit :

$$R = \frac{\pi k_B^2}{\mu_0 \mu_{\text{eff}}^2} \cdot \frac{\chi_0}{\gamma} \quad (I-5)$$

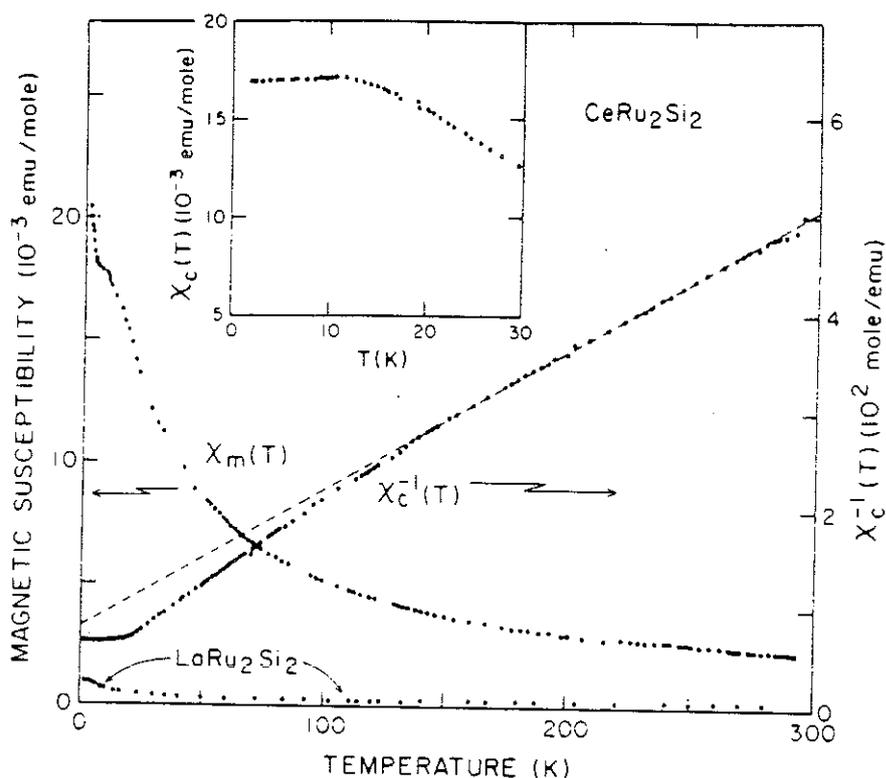
où  $\mu_{\text{eff}}^2 = (g\mu_B)^2 (J(J+1))$ , avec  $g$  le facteur de Landé. Dans un système à électrons libres,  $\chi_0$  et  $\gamma$  sont proportionnels à la densité d'état au niveau de Fermi,  $g(\epsilon_F)$  et  $R$  vaut 1. Par contre, dans un système Kondo (avec spin 1/2), K.G. Wilson (1975) a montré que ce rapport vaut 2. Le problème dans la détermination de ce rapport réside dans l'évaluation de  $\mu_{\text{eff}}$  à basse température. Comme nous l'avons vu, la susceptibilité à basse température ne suit pas le comportement signalé ; l'estimation du moment effectif n'est pas univoque.

### I-3 Propriétés thermodynamiques du composé $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$

#### I-3-1 Propriétés magnétiques

Dans la famille des terres rares à structure quadratique de type  $\text{ThCr}_2\text{Si}_2$ , le composé  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  a attiré beaucoup d'attention ces dernières années à cause de ces propriétés de fermions lourds et plus spécifiquement à cause de l'apparition d'une transition de type métamagnétique à la température de l' $^4\text{He}$  liquide.

Une des premières mesures magnétiques effectuées dans le composé  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  a été réalisée par L.C. Gupta *et al.* (1983), sur un polycristal, par des mesures de susceptibilité magnétique  $\chi_m$  (Fig. I-3-1), dans la gamme de température  $4 \text{ K} < T < 300 \text{ K}$ . Après soustraction de la composante du réseau ( $\text{LaRu}_2\text{Si}_2$ ),  $\chi_c$ , un maximum peu prononcé à  $T \sim 10 \text{ K}$  a été observé. Au-dessous de  $4 \text{ K}$ ,  $\chi_m$  présente une remontée en refroidissant, due probablement à des moments localisés de Ce. A haute température,  $\chi_m$  suivrait une loi de Curie-Weiss,  $\chi_c(T) = C/(T + \Theta)$  avec  $\Theta = 5 \text{ K}$  et  $\mu_{\text{eff}} = 2.38 \mu_B$ . La valeur presque constante de  $\chi_c$  à basse température (dans l'encart Fig. I-3-1) a été attribuée à la présence de fluctuations de spin de type Kondo.



**Fig. I-3-1** La susceptibilité  $\chi_m$  et l'inverse de la susceptibilité corrigée,  $\chi_c^{-1}$ , en fonction de la température de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ . Un fit de la loi de Curie-Weiss à haute température est indiqué par la ligne pointillée. La susceptibilité du composé de référence  $\text{LaRu}_2\text{Si}_2$  est aussi montrée. Dans l'encart,  $\chi_c(T)$  pour  $T < 30$  K (d'après Gupta *et al.* (1983)).

La chaleur spécifique électronique a été mesurée par différents auteurs :  $\gamma = 385 \pm 20$  mJ K<sup>-2</sup> mole<sup>-1</sup> (J.D. Thompson *et al.* 1985a), 310 (M.J. Besnus *et al.* 1985), 350 (F. Steglich *et al.* 1985) et 354 (R.A. Fisher *et al.* 1988), (voir Fig. I-3-2). Les mesures dans une gamme de température  $1.5 \text{ K} < T < 100 \text{ K}$  effectuées par Besnus *et al.* (1985) sur un polycristal, ont montré qu'après la soustraction du réseau ( $\text{LaRu}_2\text{Si}_2$ ) deux anomalies distinctes existent à 11 K et  $\sim 84$  K (voir Fig. I-3-3). A partir de ces mesures, les auteurs ont considéré que l'atome de Ce dans  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  est dans un état fondamental doublet. Les  $2J + 1 = 6$  niveaux de Ce étant décomposés en 3 doublets. L'effet Kondo dans le doublet fondamental donne l'anomalie à 11 K. Celle-ci, à haute température,  $\sim 84$  K, est interprétée comme une anomalie Schottky due au champ cristallin.

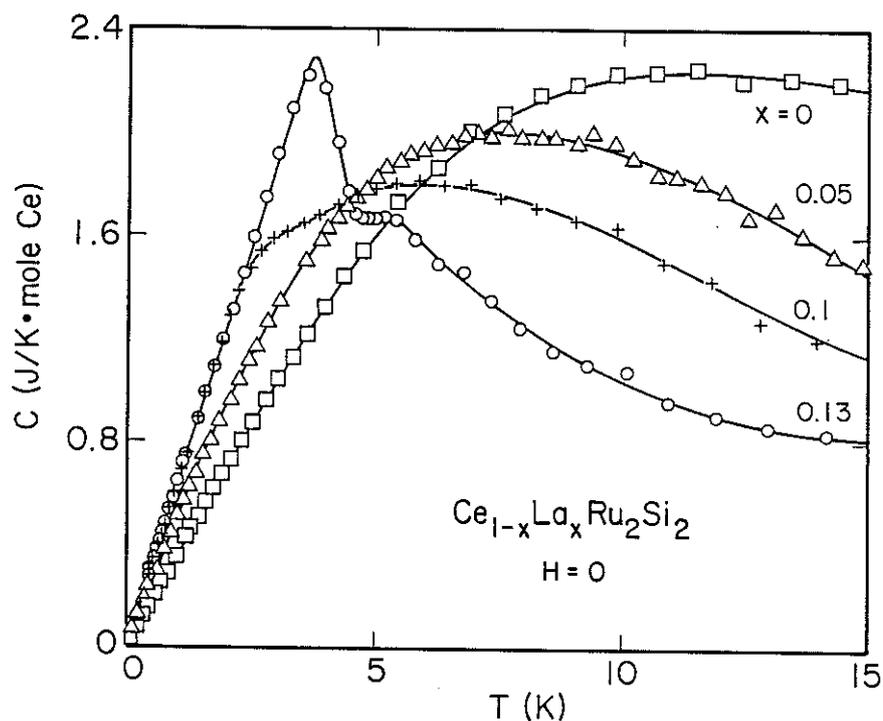


Fig. I-3-2 Chaleur spécifique du système  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$  à champ nul (d'après Fisher *et al.* (1990)).

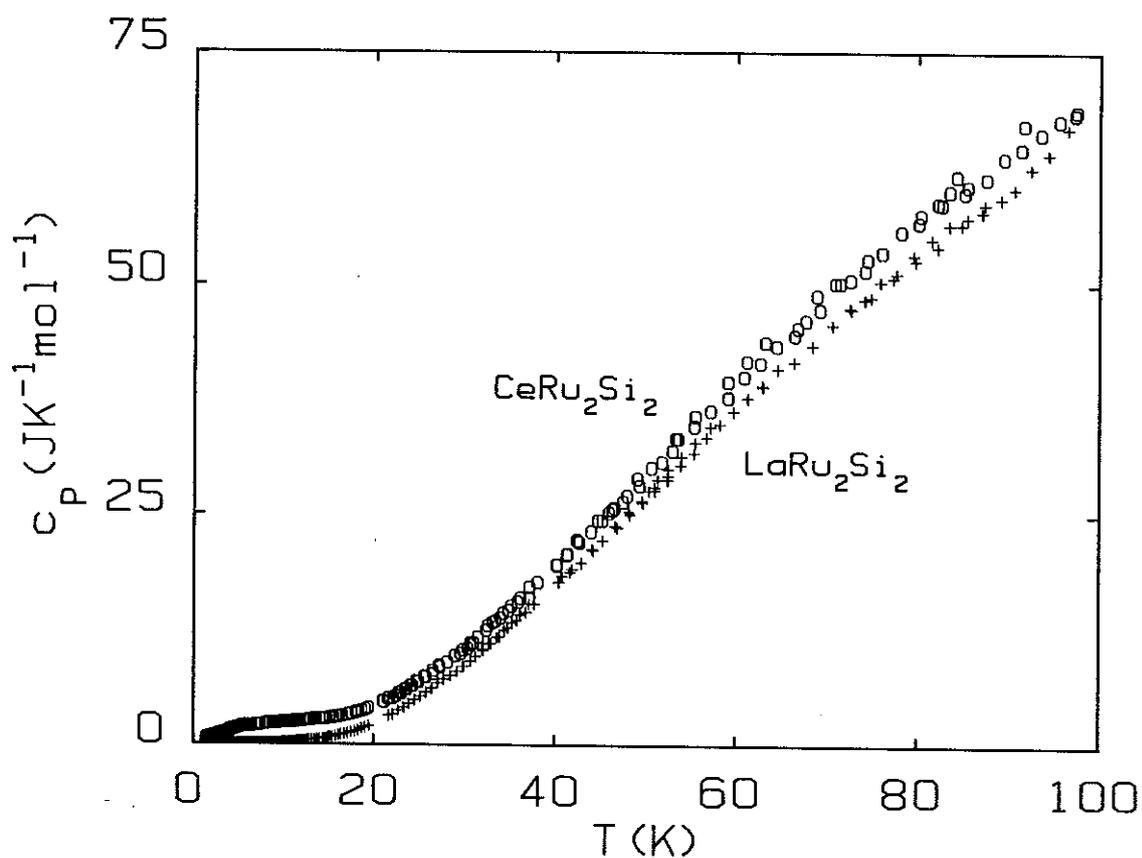


Fig. I-3-3 Chaleur spécifique de  $CeRu_2Si_2$  (o) et  $LaRu_2Si_2$  (+) pour  $T < 100$  K (d'après Besnus *et al.* (1987))

### I-3-1-1 Aimantation en champs intenses

Les mesures de susceptibilité magnétique à bas champ ( $T < 300$  K) d'un monocristal (P. Haen *et al.*, (1987)), ont montré une forte anisotropie du système, avec  $\chi_{\parallel}/\chi_{\perp} \sim 15$  à 4.2 K (voir Fig. I-3-4). A hautes températures, le moment effectif déduit de la pente de  $\chi_{\parallel}^{-1}$  est plus faible que le moment théorique de l'ion libre  $\text{Ce}^{3+}$ , ce même résultat a été aussi retrouvé dans des mesures faites sur un polycristal.

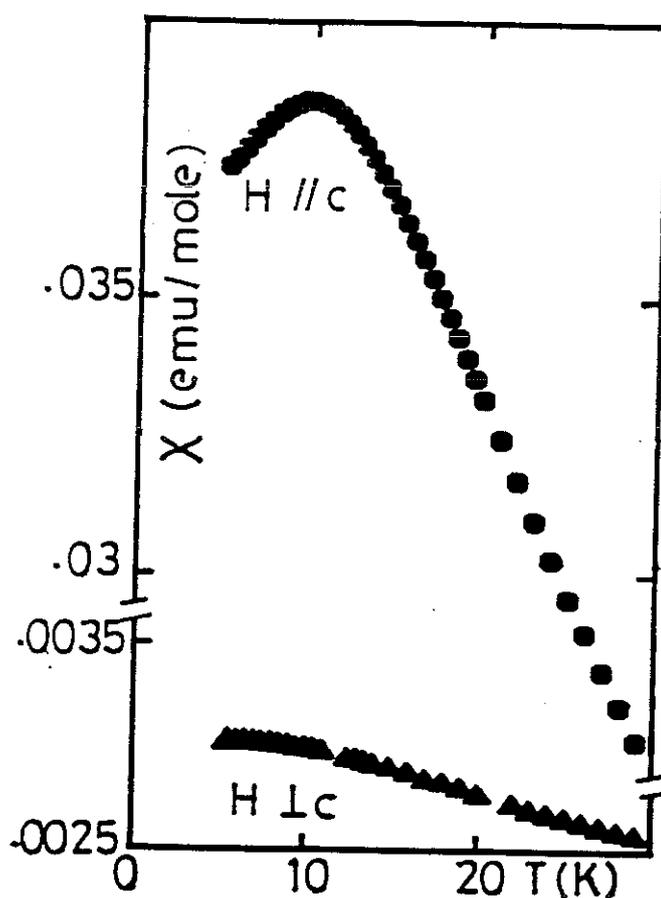


Fig. I-3-4  $\chi_{\parallel}$  et  $\chi_{\perp}$  en fonction de la température de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  (d'après Haen *et al.* 1987)

Dans des mesures de monocristaux, Haen *et al.* (1987) ont montré que l'aimantation à basses températures ( $T < 15$  K) et à fort champ présente une transition de type métamagnétique à  $B^* \sim 8$  T (à  $T \sim 4$  K), avec le

champ appliqué suivant l'axe  $c$  de la structure tétragonale (ce comportement a été aussi observé dans des mesures avec un polycristal par Besnus *et al.* (1985)). Comme on peut le voir dans la Fig. I-3-5, l'aimantation à bas champ est linéaire en champ magnétique. Quand l'aimantation atteint une valeur de  $\sim (1/2) M_{\text{sat}}$ , une transition dite "métamagnétique" est observée. Aucun effet analogue n'est observé pour le champ suivant le plan de base. Aucun ordre magnétique à longue portée, ainsi qu'aucune transition supraconductrice n'ont pu être détectés à des températures de l'ordre de 20 mK.

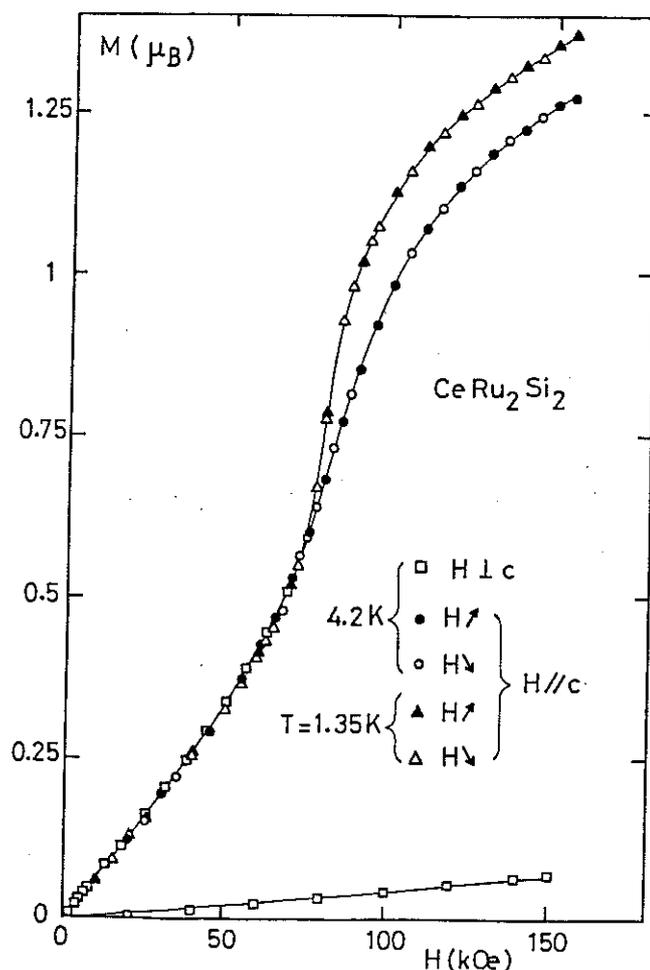
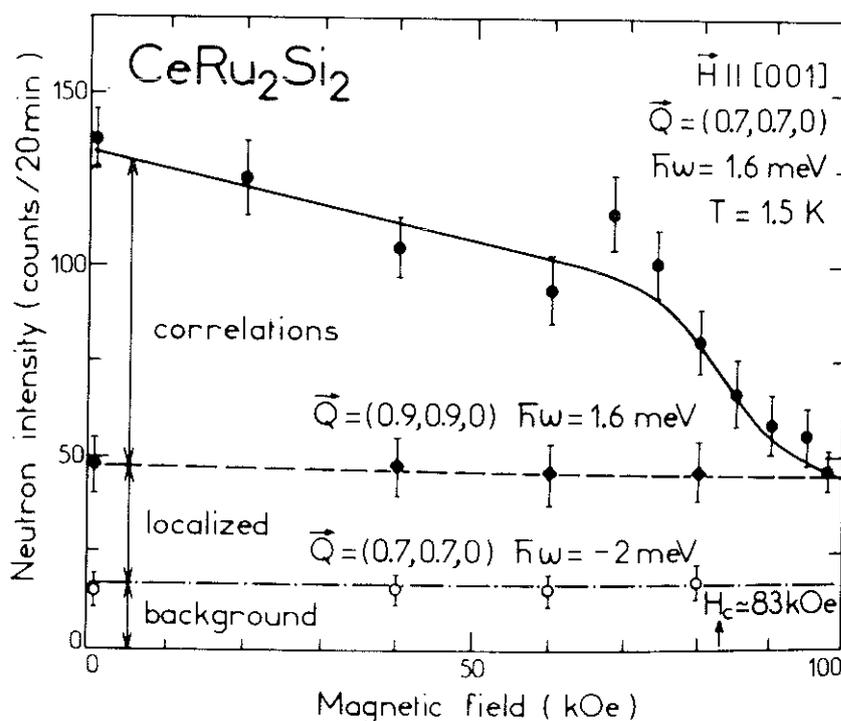


Fig. I-3-5 Aimantation de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  pour le champ magnétique  $\parallel$  et  $\perp$  suivant l'axe  $c$  (d'après Haen *et al.* (1987)).

Dans le but de comprendre l'origine de la transition métamagnétique dans le  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , J. Rossat-Mignod *et al.* (1988) ont étudié le comportement des corrélations magnétiques en fonction du champ magnétique par des mesures inélastiques de neutrons, le champ magnétique étant appliqué

suivant l'axe  $c$ . Dans la Fig. I-3-6, on peut voir que l'intensité magnétique à  $T = 1.5$  K est composée de deux contributions : une de type quasi-élastique, à un seul site,  $\Gamma_{ss} \sim (2.0 \pm 0.3)$  meV est presque indépendante du champ appliqué et du vecteur d'onde (système localisé), et un autre de type inélastique, intrasites,  $\Gamma_{is} \sim (0.9 \pm 0.2)$  meV,  $\hbar\omega_b \sim (1.2 \pm 0.2)$  meV qui dépendant du vecteur d'onde est "complètement détruite" dans un champ caractéristique  $B^*$ . A basses températures, ce champ  $B^*$ , nécessaire pour détruire les corrélations intersites, correspond au même champ trouvé dans la transition métamagnétique de l'aimantation. A partir de ces résultats, on peut dire que la transition métamagnétique correspond à un effondrement des corrélations magnétiques incommensurables.



**Fig. I-3-6** Intensités magnétiques mesurées à  $T = 1.5$  K en fonction du champ magnétique ( $B//c$ ) de CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> (d'après Rossat-Mignod *et al.* (1988)).

Dans la zone de très fort champ magnétique,  $B \gg B^*$ , l'énergie Zeeman est très élevée et le système tend vers un régime à moments magnétique localisés indépendants.

## I-3-2 Propriétés de Transport

### I-3-2-1 Résistivité électrique

La variation thermique de la résistivité d'un monocristal de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  mesurée par Haen *et al.* (1987) est montrée sur la Fig. I-3-7 après soustraction du terme de réseau (composé non magnétique  $\text{LaRu}_2\text{Si}_2$ ). Comme dans les mesures de chaleur spécifique décrites antérieurement, on peut observer deux anomalies bien distinctes : à haute température un large maximum centré vers 220 K dû aux effets de champ cristallin et à basse température, un changement de régime ( $\sim 22$  K) suivi d'un comportement linéaire en température.

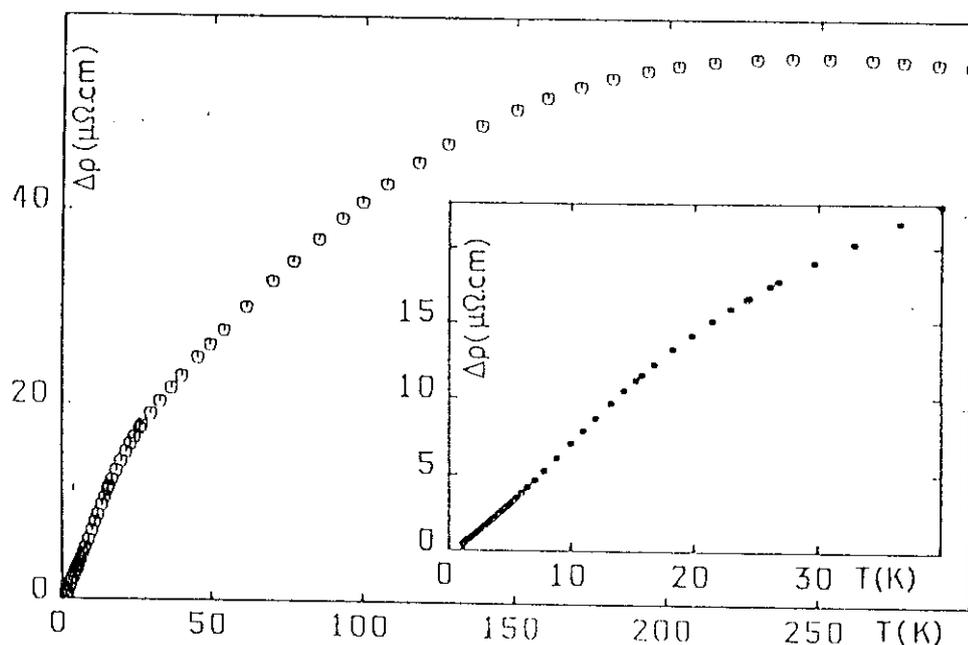
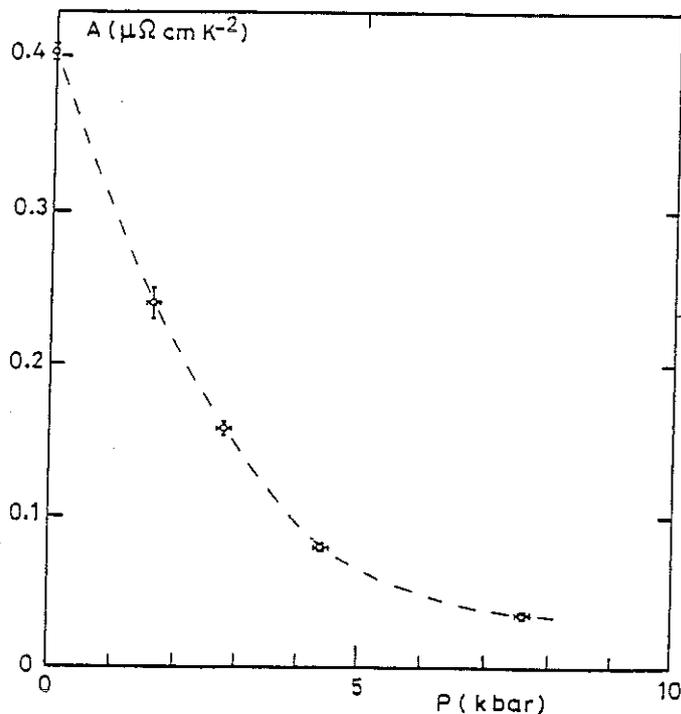


Fig. I-3-7 Résistivité de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  en fonction de la température après la soustraction de la résistivité de  $\text{LaRu}_2\text{Si}_2$ . Dans l'encart, le détail de basses températures (d'après Haen *et al.* (1987))

Au dessous de 1 K, la résistivité peut être décrite par la forme :  $\rho = \rho_0 + AT^2$ , avec  $A \sim 0.5 \mu\Omega \text{ cm K}^{-2}$ . Cependant, la résistivité présente une forte dépendance en fonction de la pression (voir par exemple A. Ponchet, 1987).

Le terme quadratique (A) décroît fortement quand la pression augmente, suggérant que la température de fluctuation de spin,  $T_{sf}$ , augmente avec la pression :  $A \sim T_{sf}^{-2}$  (Fig. I-3-8).



**Fig. I-3-8** Variation du terme A avec la pression (d'après Ponchet (1987))

Dans un schéma de fluctuations locales (problème Kondo), on peut imaginer que le niveau 4f,  $\epsilon_{4f}$ , de l'ion  $Ce^{3+}$  qui se trouve plus bas que le niveau de Fermi,  $\epsilon_F$ , se déplace vers ce niveau quand on augmente la pression et conduit donc à une augmentation de  $T_{sf}$ . Cette augmentation a été confirmée par J. Voiron *et al.*, 1989, par des mesures d'aimantation sous pression, puisque la susceptibilité de Pauli,  $\chi_0$  présente une forte diminution avec l'augmentation de la pression. Cette forte dépendance de la susceptibilité avec la pression :  $\partial \ln \chi_0 / \partial P \approx -171 \text{ Mbar}^{-1}$  indique un grand couplage entre les électrons et le réseau.

### I-3-2-2 Magnétorésistance

En appliquant le champ magnétique suivant l'axe  $c$ , la magnétorésistance présente un maximum bien prononcé à  $B^*$  à basse température, comme le montre la Fig. I-3-9 ( $B \parallel c$  et  $I \perp c$ ).

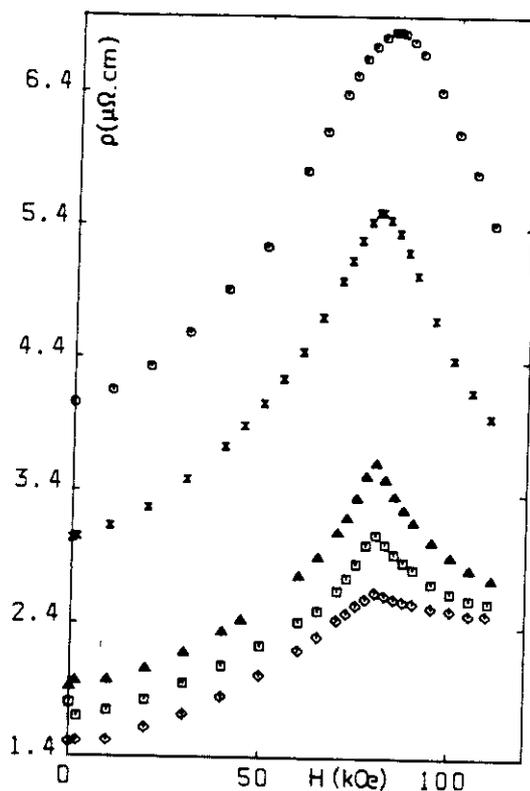
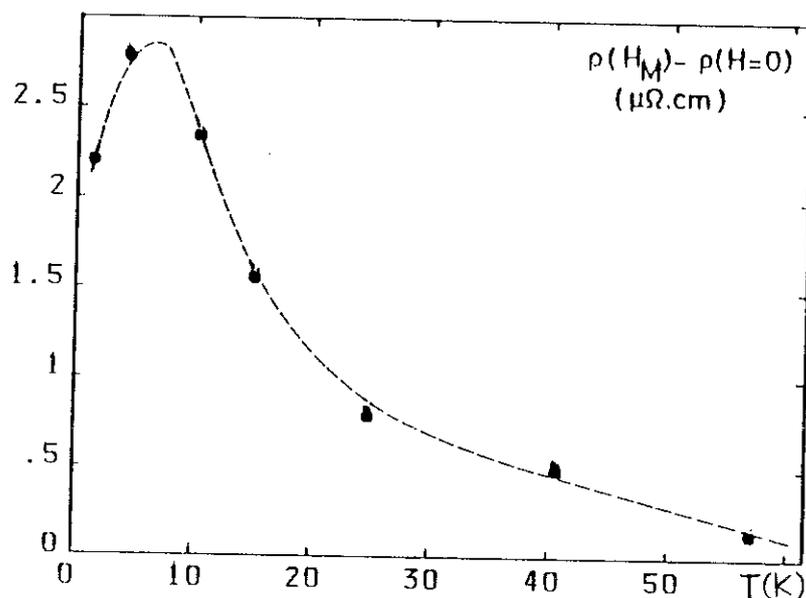


Fig. I-3-9 Résistivité de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  en fonction du champ magnétique à différentes températures : ( $\diamond$ ) 70 mK, ( $\square$ ) 700 mK, ( $\blacktriangle$ ) 1.13 K, ( $\times$ ) 2.7 K et ( $\odot$ ) 4.2 K (d'après Haen *et al.* (1987)).

Le maximum que l'on observe à  $B^*$  à basses températures est encore clairement discernable pour  $T < 15$  K et disparaît complètement à  $T \sim 70$  K.

Ceci peut s'observer sur la Fig. I-3-10 qui représente la différence en température de la variation de la résistivité :  $\rho(B^*) - \rho(B = 0)$ , pour  $B \parallel c$ . A hautes températures, la résistivité sous champ présente une diminution caractéristique de moments magnétiques localisés. L'apparition d'une

magnétorésistance positive correspond à l'apparition des corrélations magnétiques observé par diffusion inélastique des neutrons.



**Fig. I-3-10** Variation en température de  $\Delta\rho_M = \rho(H_M) - \rho(H=0)$  (où  $H_M = B^*$ ) de  $CeRu_2Si_2$  d'après Haen *et al.* (1987))

La résistance de Hall présente elle aussi un fort maximum au voisinage de  $B^*$ . Au champ métamagnétique la magnétorésistance positive et la tension d'effet Hall chutent par le fait que le système entre dans une phase polarisée.

### I-3-3 Loi d'échelle

Dans le composé  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , J. Voiron (1987) a montré que le produit  $\chi_0(P) \cdot B^*(P)$  ne varie que d'environ 15 % entre 0 et 6 kbar (voir Fig. I-3-11).

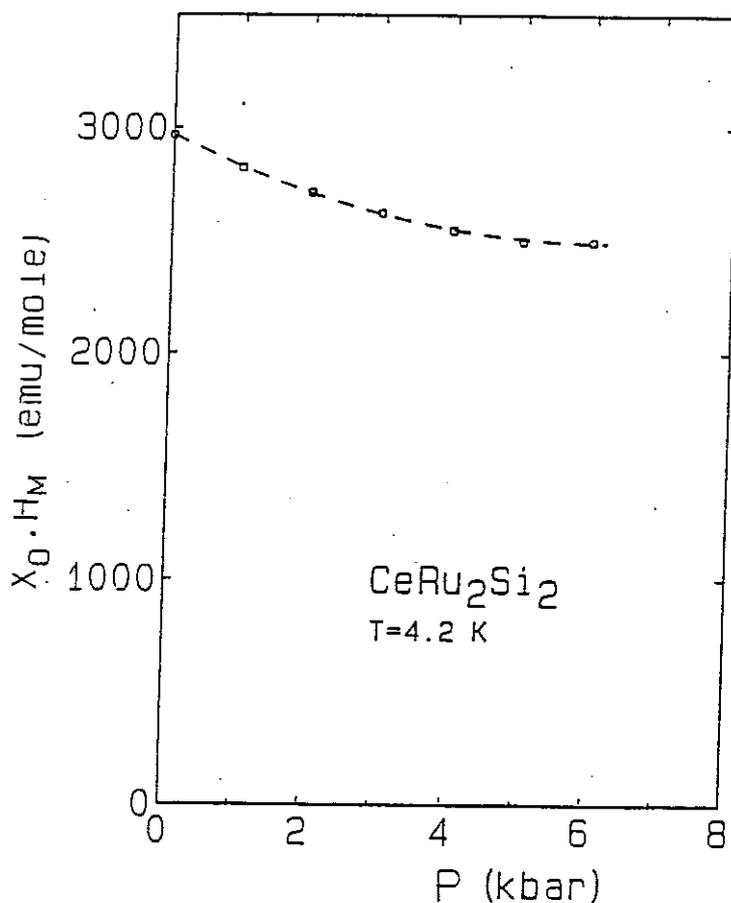


Fig. I-3-11 Le produit  $\chi_0 \cdot B^*$  en fonction de la pression de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  (d'après Ponchet (1987))

Avec ces résultats L. Puech *et al.* (1987) ont suggéré que les courbes d'aimantation aux différentes pressions peuvent être écrites comme fonction d'une seule variable :

$$M(B,P)/\mu_B = \phi(B/B_s(P)), \quad (I-6)$$

où  $\phi$  est une fonction impaire et  $B_s(P)$  est arbitraire pour une pression donnée. D'après les relations de Maxwell, on peut écrire :

$$\left. \frac{\partial V}{\partial B} \right|_{P,T} = - \left. \frac{\partial M}{\partial P} \right|_{B,T} = \Omega_B B \left. \frac{\partial M}{\partial B} \right|_{P,T} , \quad (I-7)$$

avec  $\Omega_B = \partial \ln B_s / \partial P$ . Si cette relation (Eq. I-7) est vérifiée, on peut relier les expériences de magnétostriction et d'aimantation. La Fig. I-3-12 (Lacerda *et al.*, 1989a) montre un test de l'équation I-7 à partir des mesures absolues de la magnétostriction et de l'aimantation faites à 1.3 K et 4.2 K sur un même monocristal de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ . Comme on le verra par la suite, la loi d'échelle (Eq. I-7) présente quelques problèmes dans la région  $B \sim B^*$ .

L'importance d'une seule échelle d'énergie dans une autre approche a été aussi mentionnée pour l'état fondamental de liquide de Fermi du réseau Kondo (A. Auerbach et K. Levin, 1986). En admettant une seule échelle de température et de champ magnétique normalisable par le volume ou par la pression, P. Thalmeier et P. Fulde (1986) ont aussi montré que l'on peut décrire quelques grandeurs thermodynamiques des systèmes à fermions lourds. Un fait remarquable dans la loi d'échelle est que l'ensemble des interactions microscopiques peut être renormalisé.

Récemment, M.A. Continentino *et al.* (1989) ont proposé un scaling plus général pour étudier les FL de type réseau Kondo. Dans ce scaling, les effets de température et champ magnétique sont étudiés du point de vue des phénomènes critiques. Une température de cohérence,  $T_c$ , est déterminée et associée à un crossover entre un état paramagnétique, avec des moments localisés, vers un système de type liquide de Fermi avec des fortes corrélations.

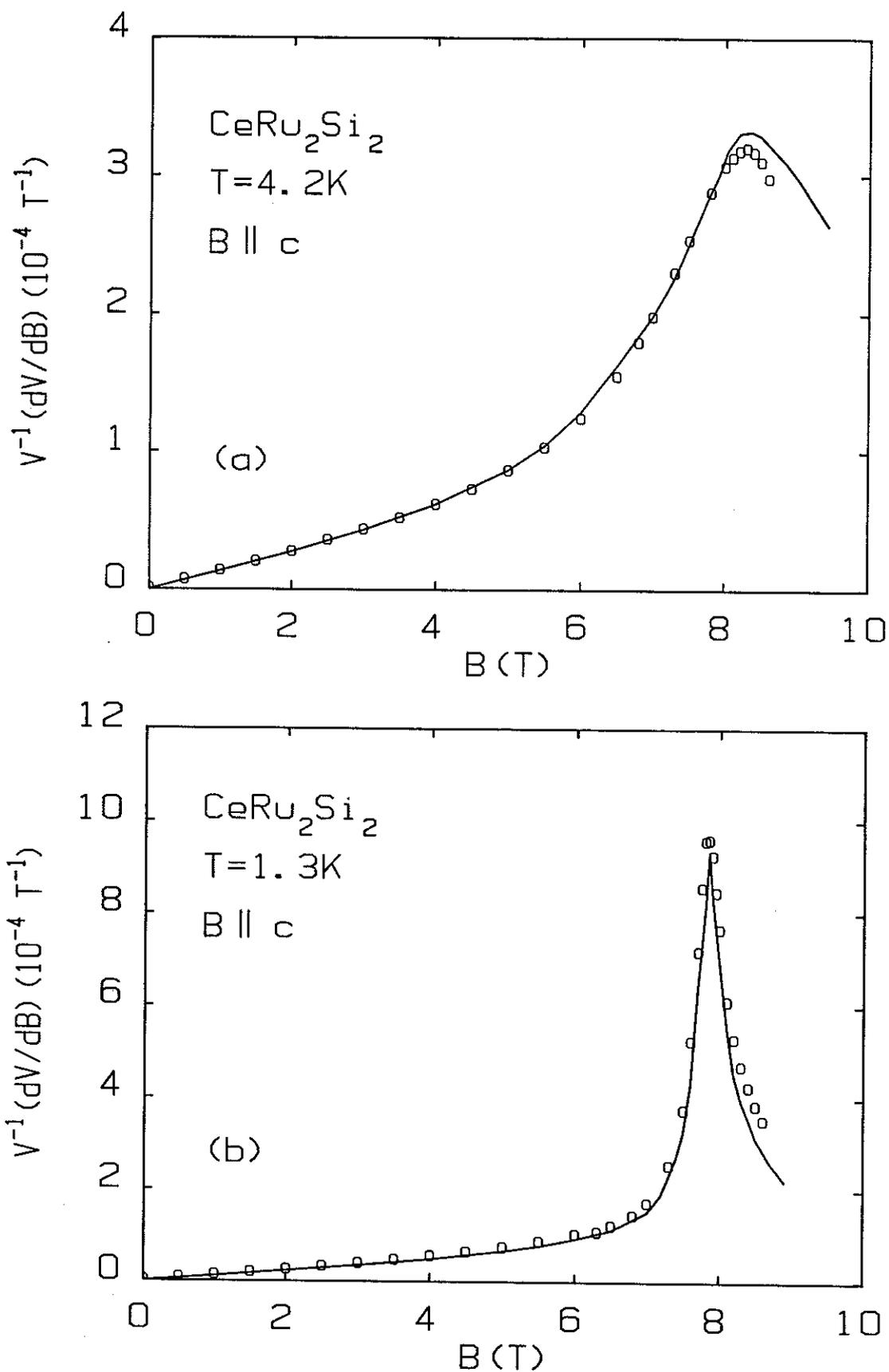
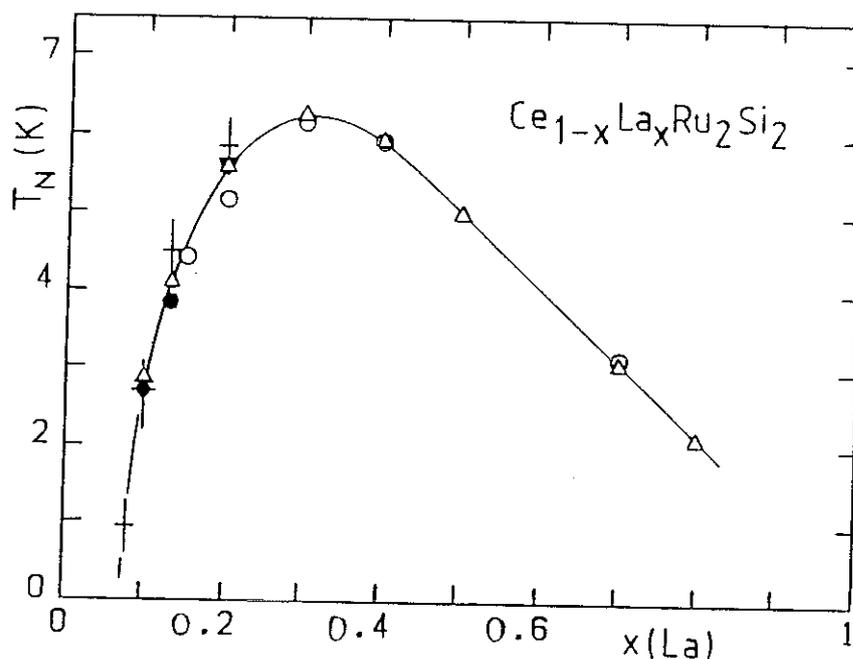


Fig. I-3-12 Dérivée de la magnétostriction de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  (B||c), (o) mesuré et déterminé à partir de l'éq. I-7 (voir texte) ; (a) à  $T = 4.2 \text{ K}$  et (b) à  $T = 1.3 \text{ K}$ .

Dans le composé  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , la substitution des atomes de La dans les sites de Ce :  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  conduit à l'apparition d'un ordre antiferromagnétique pour quelques pourcent de lanthane. Conformément à la Fig. I-3-13, la température d'ordre  $T_N$  croît avec l'augmentation de la concentration  $x$  en La, passe par un maximum pour  $x \sim 0.3$  et après décroît d'une façon linéaire pour  $x > 0.3$ .



**Fig. I-3-13**  $T_N$ (K) en fonction de la concentration ( $x$ ) en La dans la série  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  (voir par exemple de Visser *et al.* (1990b)).

Dans ce travail, on va surtout s'intéresser à deux composés dilués :

- (i) Le composé  $\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  qui présente les mêmes propriétés magnétiques que le composé "pur"  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ . Une transition de type métamagnétique est aussi observée à  $B^* \sim 5.3$  T. Le but principal est de voir comment la transition métamagnétique est affectée par les impuretés.
- (ii) Le composé  $\text{Ce}_{0.80}\text{La}_{0.20}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ , lui, fait partie des composés ordonnés antiferromagnétiquement de la série, avec  $T_N \sim 5.7$  K. On comparera les effets de volume à ceux du réseau pur  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ .



## CHAPITRE II

*Nous décrivons dans ce chapitre les détails de notre montage.*



## II - TECHNIQUES EXPERIMENTALES

### II-1 Préparation des échantillons

### II-2 Cellule capacitive

*II-2-1 Construction de la cellule*

*II-2-2 Méthode de mesure*

### II-3 Les systèmes cryogéniques

*II-3-1 Cryostat à  $^4\text{He}$*

*II-3-2 Cryostat à  $^3\text{He}$*

*II-3-3 Cryostat et canne à dilution*

### II-4 Mesures d'aimantation

*II-4-1 Mesures à fort champ*

*II-4-2 Mesures avec un SQUID*



## II - TECHNIQUES EXPERIMENTALES

### II-1 Préparation des échantillons

Tous les échantillons de la série  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$  étudiés dans ce travail sont des monocristaux de grande taille ( $\sim 5 \times 5 \times 5 \text{ mm}^3$ ), préparés par P. Lejay au CRTBT par la méthode de Czochralski. Les matériaux de départ ont été Ce (99.99 %), Si ( $> 99.999 \%$ ) et La (99.99 %) fournis par Johnson-Matthey et Ru (99.999 %) par Leico Ind. Inc.

Le composé  $CeRu_2Si_2$  présente une structure cristallographique quadratique de type  $ThCr_2Si_2$ . Il a été synthétisé pour la première fois par R. Ballestracci et G. Astier (1978). La structure quadratique centrée appartient au groupe d'espace  $I4/m$  (voir Fig. II-1-1). La maille élémentaire est approximativement de volume  $4 \times 4 \times 10 \text{ \AA}$  et contient deux formules chimiques.

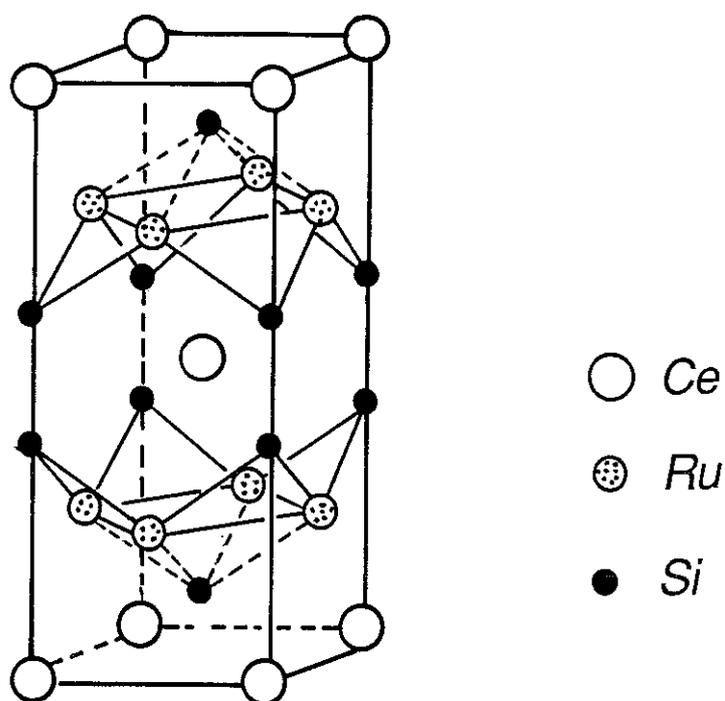


Fig. II-1-1 Structure cristalline de  $CeRu_2Si_2$ .

La variation du volume atomique à la température ambiante dans le systèmes  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  et  $\text{Ce}_{1-y}\text{Y}_y\text{Ru}_2\text{Si}_2$  a été mesurée par P. Lehman (1987). Aucun écart à la loi de Vegard n'a été observé à basses concentrations (voir Fig. II-1-2).

La variation  $\Delta V/V_0$ , où  $V_0$  est le volume de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , est de l'ordre de  $\sim 7\%$  entre les composés  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  et  $\text{LaRu}_2\text{Si}_2$ . Pour donner un ordre de grandeur de cet effet, dans la transition  $\text{Ce}_\gamma - \text{Ce}_\alpha$ , la variation de volume est de l'ordre de  $\sim 1.6\%$ .

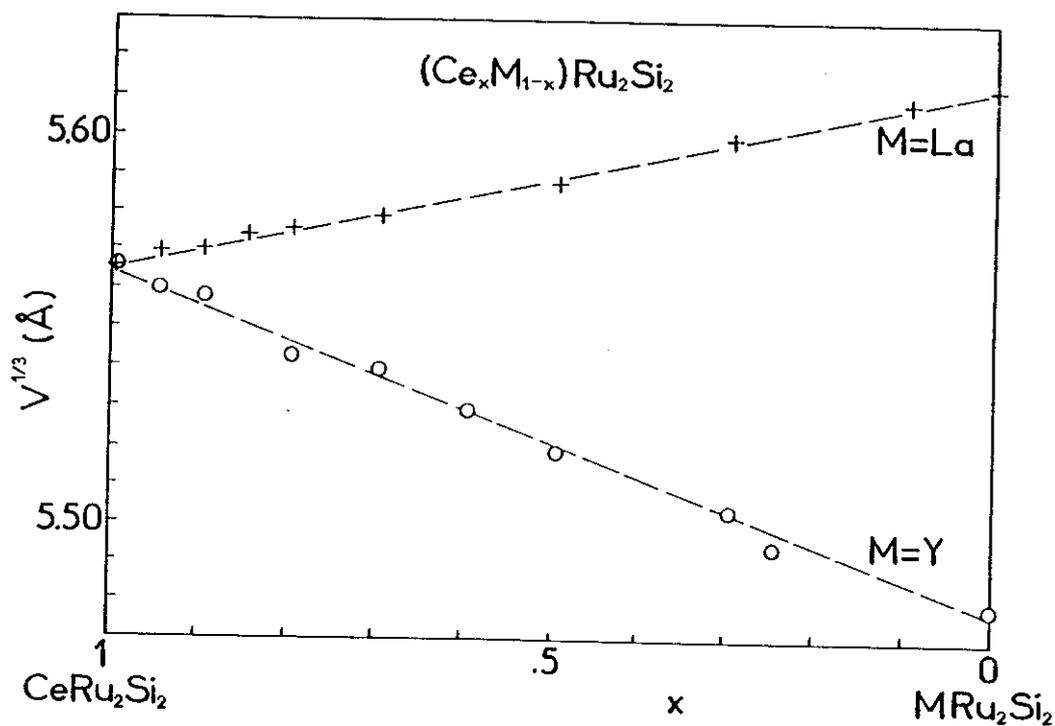


Fig. II-1-2 Variation du paramètre de réseau dans les systèmes  $(\text{Ce-M})\text{Ru}_2\text{Si}_2$  ( $M = \text{La}$  et  $\text{Y}$ ) à  $T = 300\text{ K}$  (d'après Lehmann (1987)).

Les échantillons que nous avons utilisés dans nos mesures d'aimantation, magnétostriction, chaleur spécifique et dilatation thermique ont été découpés par électro-érosion et n'ont jamais été recuits.

L'échantillon monocristallin de  $\text{CeCu}_6$  ( $3 \times 4 \times 5 \text{ mm}^3$ ) a été synthétisé à Genève par E. Walker par tirage Czochralski. Les matériaux de départ étaient du Ce de Rare Earth Products Ltd et du Cu de Koch-Light Laboratories Ltd. La structure cristalline de  $\text{CeCu}_6$  est orthorhombique, à température ambiante ; elle appartient au groupe d'espace  $D_{2h}^{16}$  (Y. Onuki *et al.*, 1985). Pour plus de détails, voir A. Amato, 1988.

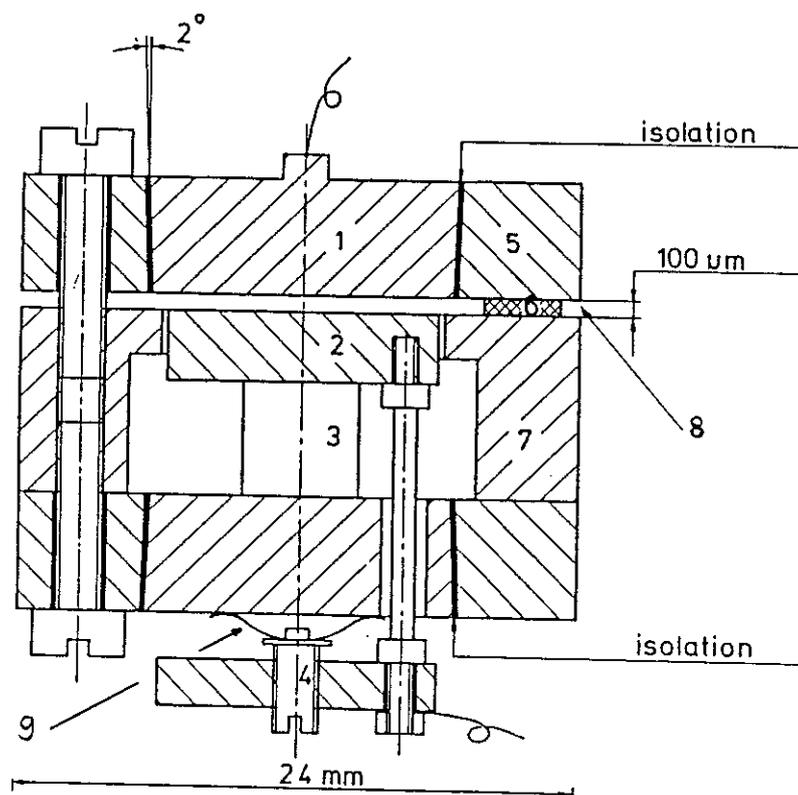
## II-2 Cellule capacitive

Une de nos premières mesures de magnétostriction dans les composés  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  (Lacerda *et al.*, 1988) a été faite avec une cellule élaborée par L. Puech *et al.*, 1987. Dans l'impossibilité de faire des mesures en absolu, nous avons construit au CRTBT avec la collaboration de A. de Visser une autre cellule capacitive. Celle-ci présente les mêmes caractéristiques que celle construite au Natuurkundig Laboratorium (Amsterdam).

### II-2-1 Construction de la cellule

#### a) Mesures à champ nul

La cellule a été faite avec du cuivre très pur, OFHC-Copper (Oxygen Free High Conductivity). Sa géométrie a été optimisée pour mesurer des échantillons de 5 mm (= L) de longueur. Des échantillons avec  $L < 5 \text{ mm}$  peuvent être mesurés en ajoutant une rondelle de cuivre OFHC pour faire une longueur totale de 5 mm. La Fig. II-2-3 montre un schéma de la cellule. La plaquette 2 (voir Fig. II-2-3) est positionnée par trois tiges (dans la Fig. II-2-3, nous n'en montrons qu'une) et une faible pression exercée par la vis 4 est nécessaire pour maintenir l'échantillon, à travers ru ressort 9.



**Fig. II-2-3** Cellule capacitive ; (1) plaquette supérieure ; (2) plaquette inférieure ; (3) échantillon ; (4) vis ; (5) ; l'anneau de garde supérieur ; (6) feuilles de cuivre (pas sur échelle) ; (7) l'anneau de garde latéral ; (8) gap ; (9) ressort.

La capacité est mesurée 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 50-210  $\mu\text{m}$ . A température ambiante, la capacité mesurée entre 1 et 2 est de l'ordre de 10-30 pF. Pour avoir un parallélisme de l'ordre de 1  $\mu\text{m}$ , toutes les parties de la cellule ont été réalisées par électro-érosion.

### **II-2-1 La méthode de mesure**

Nos premières mesures de dilatation thermique et de magnétostriction ont été faites dans un cryostat à l' $^4\text{He}$  puis dans une dilution, avec une détection synchrone (Lock-In Amplifier, Princeton Applied Research, modèle 125 A) et un pont capacitif General Radio (modèle 1620-A). Les mesures ont

été faites à une fréquence fixée de l'ordre de 1 kHz et un voltage d'excitation de 10-30 volt (méthode trois fils). La capacité mesurée est donnée directement par l'écart entre les plaquettes parallèles 1 et 2 suivant la relation :

$$C = \frac{\epsilon A}{d}$$

où  $d$  est le gap 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 dans la constante diélectrique,  $\epsilon$ , de 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, pF  $\mu\text{m}$ ) peut être comparée à la valeur trouvée à partir des étalonnages faits à l'ambiante pour différentes épaisseurs de feuilles de cuivre (différents  $d$ ). Après l'utilisation d'une régression linéaire, la valeur moyenne de  $\epsilon_0 A$  trouvée à partir de la Fig. II-2-4 est  $\sim 1013.7$  pF  $\mu\text{m}$ .

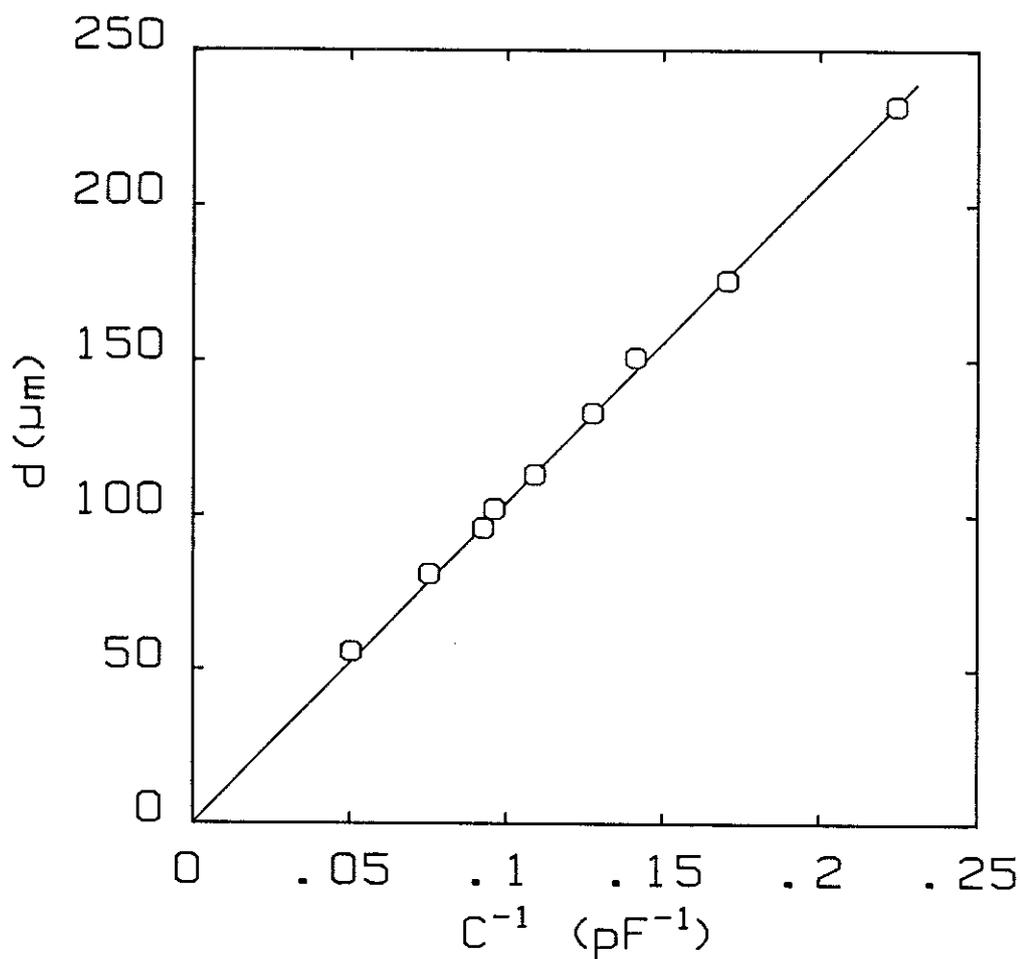


Fig. II-2-4 Le gap ( $d$ ) en fonction de  $1/C$ .

Le coefficient linéaire de dilatation thermique :  $\alpha = L^{-1} (dL/dT)$ , dans nos premières mesures a été obtenu par pas de température. Un fil de constantan (de 70  $\Omega/m$ ) placé sur l'enceinte de la cellule (voir paragraphe sur les cryostats) constitue le chauffage. Une résistance Allen Bradley (AB 68  $\Omega$  à l'ambiante) est utilisée comme sonde de régulation de température. La température, au niveau de l'échantillon, a été mesurée avec une résistance de platine (107  $\Omega$  à l'ambiante) pour la gamme de température 70 K < T < 300 K et une Carbon Glass (9  $\Omega$  à l'ambiante) dans la gamme 1.5 K < T < 70 K. Le coefficient  $\alpha$  pour l'échantillon est calculé :

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

Le terme  $\alpha_{\text{Cu}}$  correspond à une correction due à la dilatation thermique du cuivre. Celle-ci peut être trouvée dans la littérature (voir par exemple F.R. Kroeger et C.A. Swenson, 1977). Le deuxième terme représente la variation du gap ( $\Delta d$ ) avec un échantillon de cuivre de 5 x 5 x 5 mm<sup>3</sup> (L = 5 mm). Le premier terme correspond à la variation de gap due à un échantillon de longueur maximale L = 5 mm. La Fig. II-2-5 montre la contribution de la cellule (deuxième terme) à basse température.

Avec cette méthode, on est capable de mesurer des variations de longueur de l'ordre de 0.1 Å. Pour plus de détails, voir A. de Visser 1986.

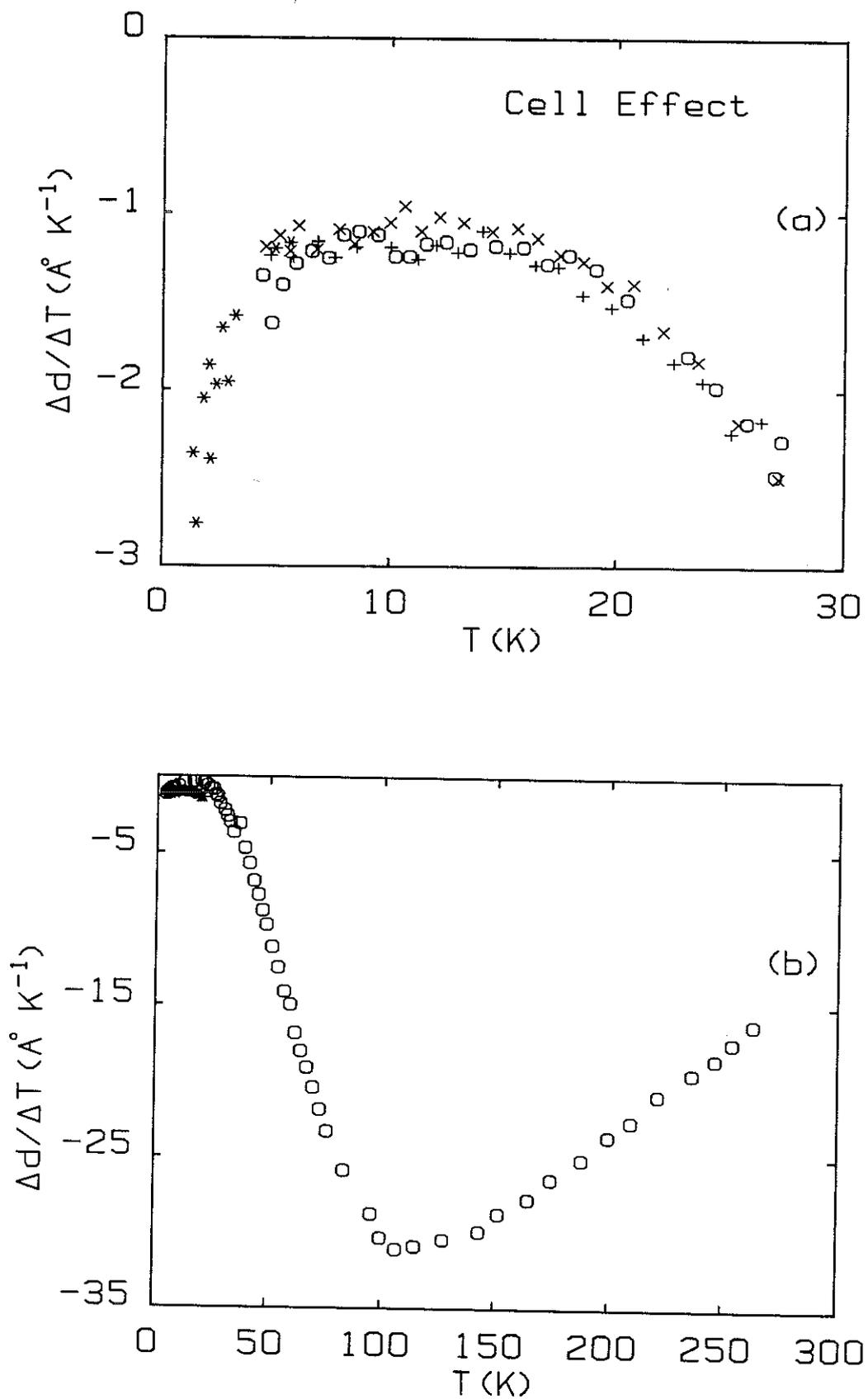
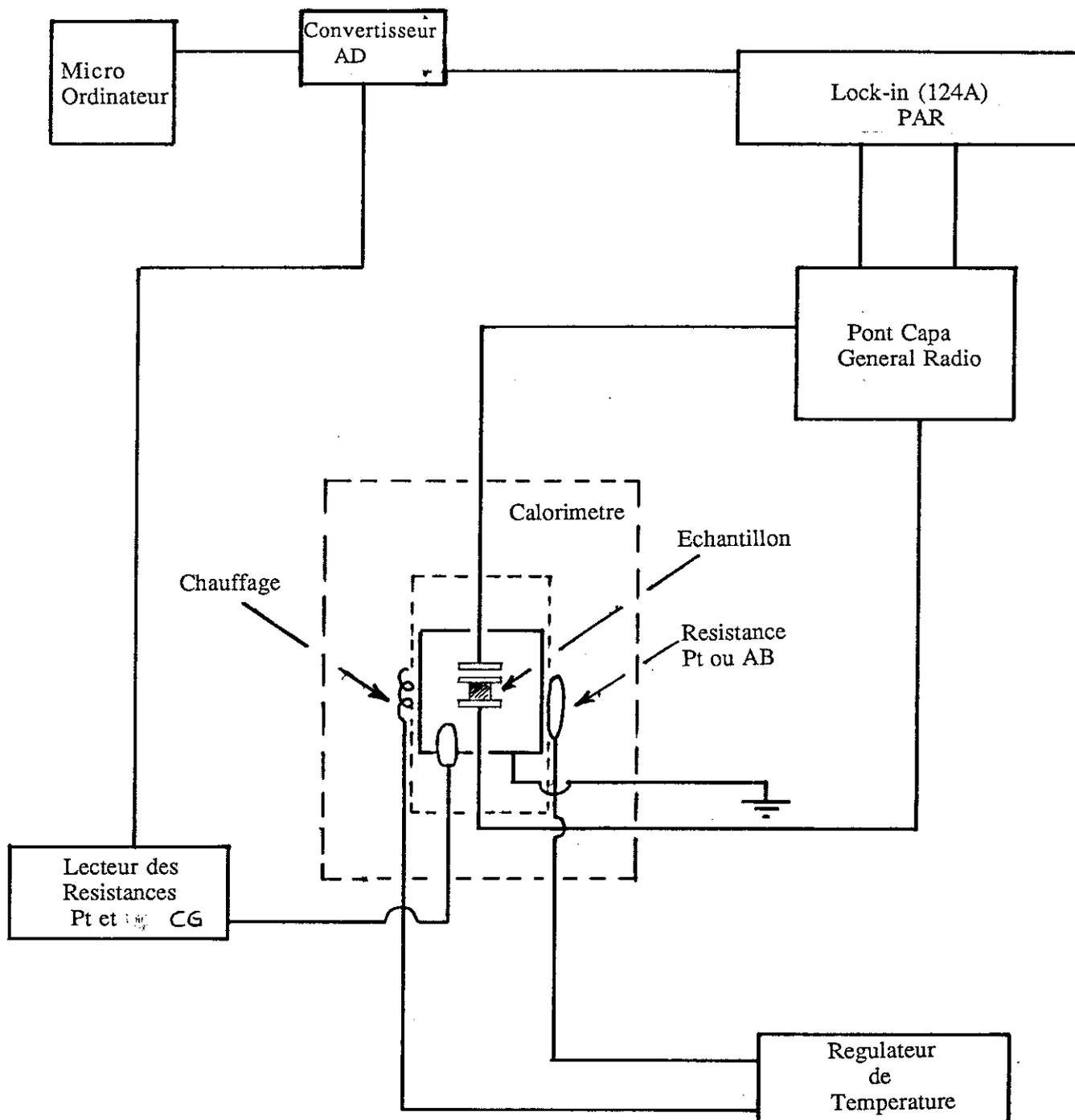


Fig. II-2-5 L'effet de cellule, (a) basse température et (b) haute température.

Dans le diagramme suivant, on montre comment les mesures ont été faites.

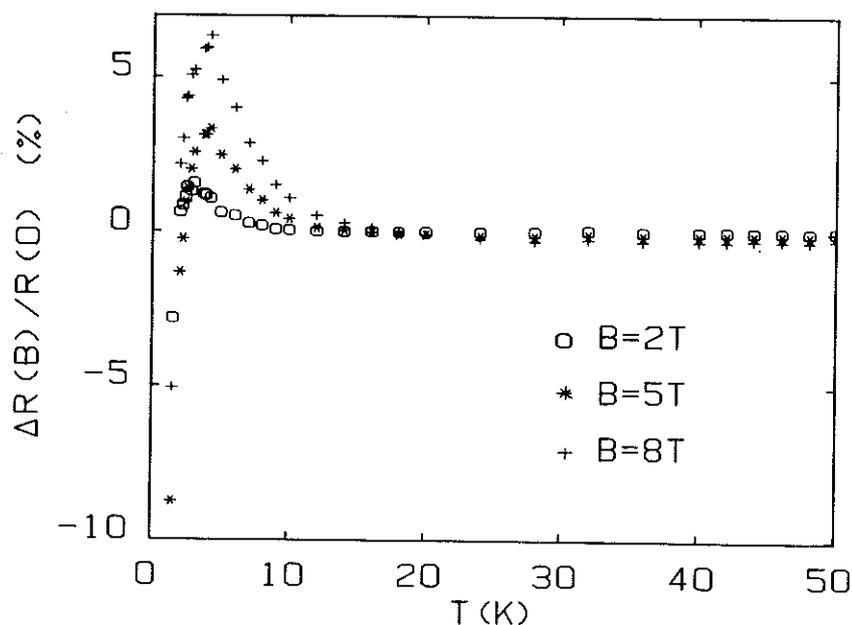


**Diagramme I** Schéma de mesure avec le Lock-in (124 A) et le pont General Radio (1620-A).

*b) Mesures sous champ*

La magnétostriction,  $\lambda' = L^{-1} (dL/dB)$ , du système  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$  à haute température ( $T > 1.5$  K) a été mesurée en plaçant la cellule décrite précédemment dans une bobine supraconductrice ( $\phi$  60 mm) de champ maximal  $B_{max} \sim 9$  tesla. Pour le composé  $CeCu_6$ , les mesures de magnétostriction ont été faites dans un autre cryostat avec une bobine supraconductrice ( $\phi$  54 mm) et  $B_{max} \sim 14$  tesla. Pour une température donnée, l'effet de magnétostriction de la cellule a été mesuré et trouvé négligeable par rapport aux effets de magnétostriction des composés étudiés ( $\Delta L/L$  cellule  $< 10^{-8}$  à 4.2 K).

Pour les expériences de dilatation thermique sous champ magnétique, il faut tenir compte des corrections dues au champ appliqué dans la thermométrie. A haute température ( $1.5$  K  $< T < 50$  K), on a étalonné la résistance de "Carbon Glass" (CG) dans des champs de 2, 5 et 8 tesla. Avant chaque montée de champ, la température a été réglée avec une capacité à l'aide d'un pont capacitif construit au CRTBT. La Fig. II-2-6 montre les courbes de magnétorésistance de la résistance CG dans la gamme de température  $1.5$  K  $\leq T \leq 50$  K.



**Fig. II-2-6** Magnétorésistance de Carbon Glass ( $\Delta R = R(B) - R(B=0)$ ) en fonction de la température à différents champs appliqués : (o)  $B = 2T$ , (\*)  $B = 5T$  et (+)  $B = 8T$ .

Comme on peut l'observer, la magnétorésistance au-dessous de 4 K est considérable. Ces valeurs sont en bon accord avec celles trouvées par H.H. Sample *et al.*, 1982, dans une autre série de Carbon Glass.

Pour les mesures sous champ à plus basses températures ( $50 \text{ mK} < T < 2.0 \text{ K}$ ), les étalonnages suivants ont été faits :

- a) Pour les mesures de magnétostriction et de dilatation thermique sous champ dans le cryostat du groupe S.Wiegers, P.E. Wolf et L. Puech ( $80 \text{ mK} < T < 4.2 \text{ K}$ ), l'étalonnage a été fait en comparant deux résistances "Speer", l'une placée à côté de l'échantillon et l'autre située dans la région de champ nul sur la boîte à mélange.
- b) Pour celles réalisées dans la "dilulette" (canne à dilution, M. Caussignac, 1980), dans la gamme de température  $50 \text{ mK} < T < 800 \text{ mK}$ , nous disposons aussi d'une région de champ compensé. L'étalonnage a été fait en comparant deux résistances de  $\text{RuO}_2$  ( $9 \text{ k}\Omega$  à l'ambiante) suivant la même procédure que ci-dessus.
- c) Pour le cryostat à  $^3\text{He}$  à Amsterdam ( $320 \text{ mK} < T < 2.0 \text{ K}$ ), l'étalonnage a été fait de la même façon que (b) en collaboration avec K. Bakker.

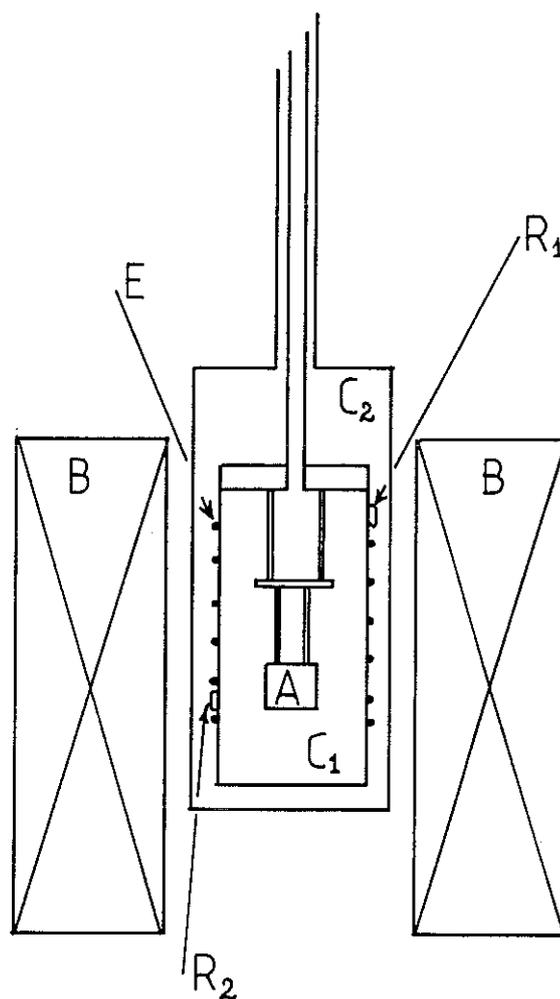
### II-3 Les systèmes cryogéniques

Dans cette section, nous décrivons les cryostats utilisés.

#### II-3-1 Cryostat à $^4\text{He}$

Il nous a permis de réaliser les expériences dans la gamme de température :  $1.5 \text{ K} < T < 300 \text{ K}$ . Le cryostat possède une bobine supraconductrice ( $\phi 60 \text{ mm}$ ) de champ magnétique maximum de  $\sim 9$  tesla (à l' $^4\text{He}$  pompé), sur une région d'homogénéité sphérique de  $10^{-3}$  sur un

diamètre de  $\sim 2.5$  mm de longueur. On a conçu une canne à température variable décrite dans la Fig. II-3-7. Dans ce système à double enceinte, on a disposé deux thermomètres : une platine ( $107 \Omega$  à l'ambiante) et une Carbon Glass ( $9 \Omega$  à l'ambiante), une résistance de chauffage placée sur la première enceinte et une résistance Allen Bradley utilisée avec le régulateur de température dans les mesures à champ nul. La pression dans  $C_1$  est de l'ordre de 1 mbar ( $P_1$ ) et dans l'enceinte  $C_2$  :  $P_2 = P_1/10$ . Pour les mesures de dilatation thermique sous champ, on installe une capacité de régulation.



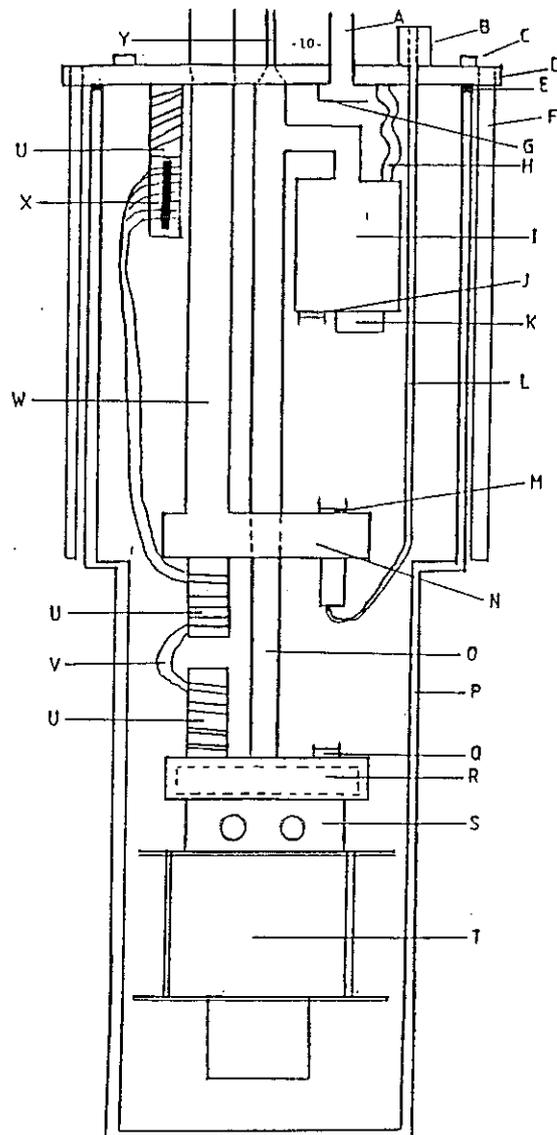
**Fig. II-3-7** Canne à température variable (A) La cellule capacitive. (C1) et (C2) : première et deuxième enceinte. (B) La bobine supraconductrice 9 tesla. Le chauffage est indiqué par E et les thermomètres de régulation par R1 et R2.

### ***II-3-2 Cryostat à $^3\text{He}$***

Ces mesures ont été réalisées grâce à un séjour d'un mois au Natuurkundig Laboratorium à Amsterdam. On a mesuré la magnétostriction à  $T = 400 \text{ mK}$  et la dilatation thermique sous champ dans la gamme de température  $310 \text{ mK} < T < 2.0 \text{ K}$ . Ce cryostat est muni d'une bobine supraconductrice ( $\phi 50 \text{ mm}$ ) avec un champ maximal de 8 tesla. La cellule a été accrochée au-dessous de la boîte d' $^3\text{He}$  et placée dans la région de champ maximal. Les mesures ont été faites en continu pendant le refroidissement entre 4.2 K et 310 mK sur une période de 2.5 h.

Cette canne à  $^3\text{He}$  est présentée dans la Fig. II-3-8. Le système opère avec un petit réservoir d' $^3\text{He}$ , où la condensation se fait à l'aide d'une boîte à 1 K et d'une pompe à absorption.

Pour la thermométrie, on a utilisé deux thermomètres de  $\text{RuO}_2$ , l'un à côté de la cellule et l'autre collé sur la plaquette S montrée dans la Fig. II-3-8. Les mesures de magnétostriction à 400 mK ont été faites par pas de champ magnétique.



- A : Vacuumcan pumping tube and wires transporter.  
 B : Filter to keep capillary ice-free.  
 C : Screw to close vacuumcan.  
 D : Plate to close the vacuum can.  
 E : Indium wire.  
 F : Copper tube to keep topplate cold.  
 H : Heat link between pump and top plate.  
 I : Adsorption pump.  
 J : Thermometer of adsorptionpump.  
 K : Heater adsorption pump.  
 L : Capillary.  
 M : Thermometer of 1.5 K pot.  
 N : 1.5 K pot.  
 O : Pumping tube of  $^3\text{He}$  pot..  
 P : Vacuumcan.  
 Q : Thermometer of  $^3\text{He}$  pot.  
 R :  $^4\text{He}$  pot.  
 S : Connection to the experiment.  
 T : Specific heat measurement part.  
 U : Thermal anchor.  
 V : Electrical wires.  
 W : Pumping tube of 1.5 K pot.  
 X : Wire connector.  
 Y : Tube to  $^3\text{He}$  gas tank.

Fig. II-3-8 D'après Bakker (1989).

### ***II-3-3 Cryostat et canne à dilution***

Nos premières mesures de dilatation thermique à basses températures ont été faites sur le composé  $\text{CeCu}_6$  dans un cryostat à dilution standard en utilisant les techniques décrites auparavant. Ces mesures ont été faites à champ nul et la cellule a été accrochée directement à la boîte à mélange.

Pour des mesures de magnétostriction et dilatation thermique sous champ à basses températures ( $50 \text{ mK} < T < 1.0 \text{ K}$ ), on a utilisé la canne à dilution (dite diluette) dans un cryostat équipé d'une bobine supraconductrice de 14 tesla. 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 de base d'environ 35 mK (la figure II-3-9 montre un schéma de la diluette).

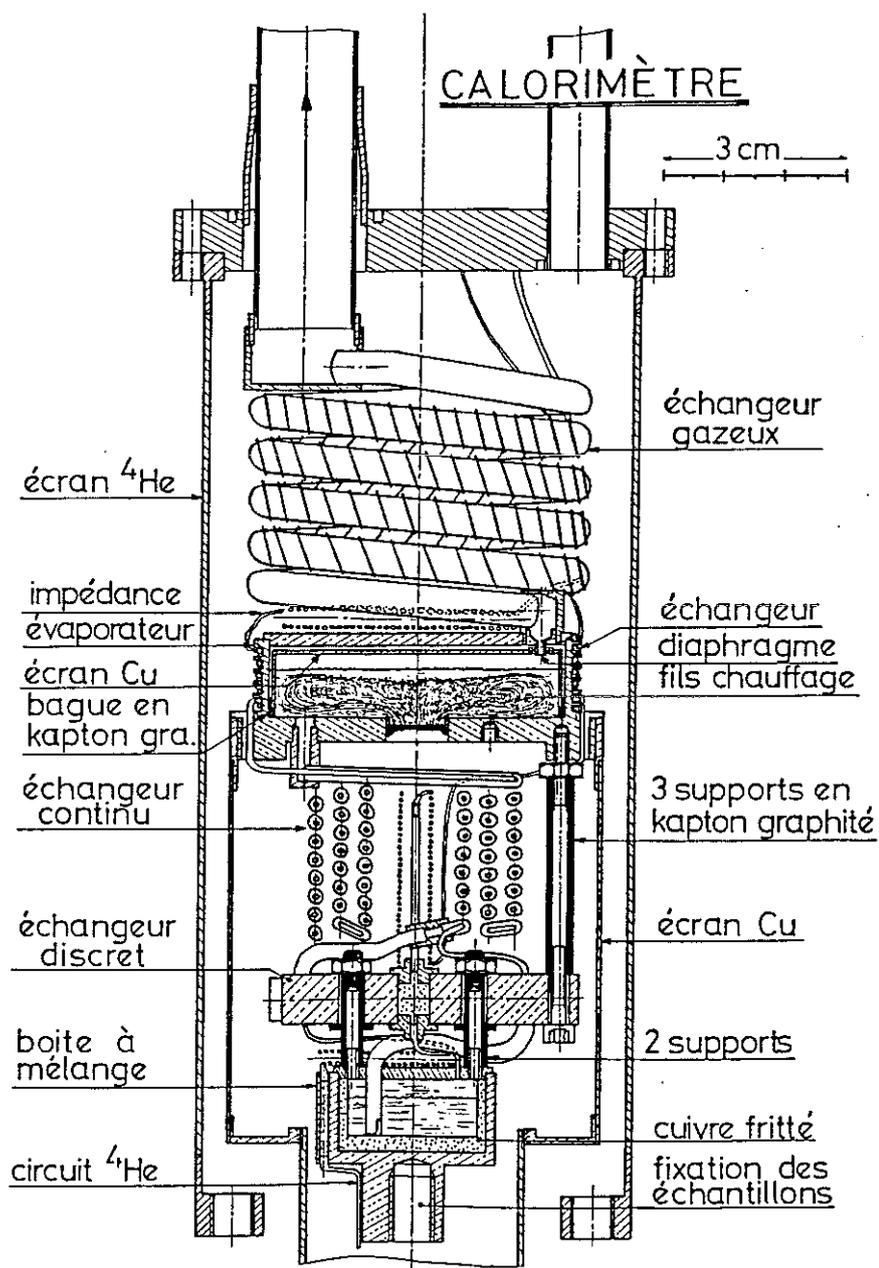
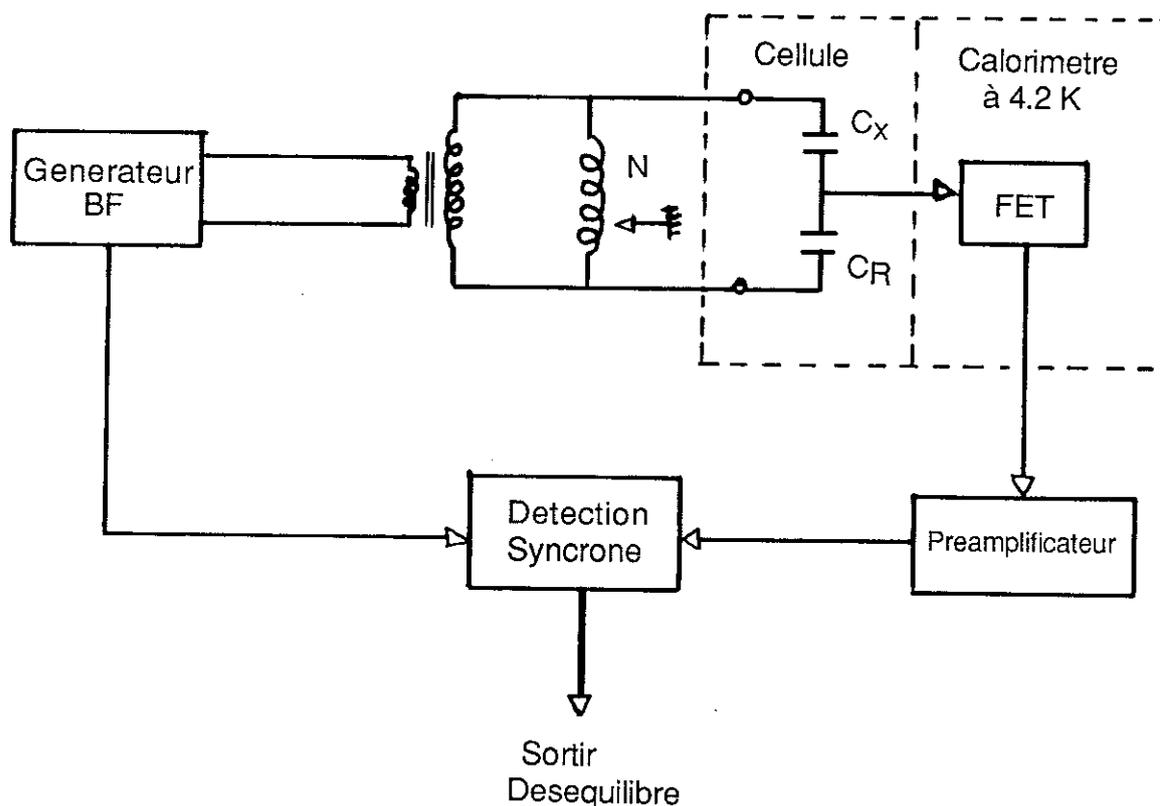


Fig. II-3-9 Diluette (d'après Caussignac, 1980).

Dans ce cryostat, pour éliminer les problèmes de dérive du signal dus à l'instabilité des capacités de références du pont GR, on a utilisé une nouvelle technique de mesure. Les mesures ont été faites avec un pont de capacité construit au CRTBT (Barras-Provence), avec un préamplificateur à froid (un transistor à effet de champ placé à 4.2 K) et la capacité de référence  $C_R$  placée à côté de la cellule (voir le diagramme II). Grâce à un chauffage collé sur l'échantillon, on donne des pulses de chaleur à une fréquence contrôlée ( $\omega \sim 1/10$  Hz) qui induisent sur le thermomètre collé sur l'échantillon une variation oscillante de température d'amplitude réglée à  $\sim 4$  mK. La cellule même reste à une température  $T_0$  constante. En modulant ainsi la température, on arrive à une sensibilité de mesure :  $\Delta L/L \sim 10^{-10}$ , où  $L$  est la longueur de l'échantillon, c'est-à-dire un gain de dix par rapport à la mesure faite avec le pont General Radio.



**Diagramme II** Montage avec le pont capacitif CRTBT. Dans ce diagramme, nous montrons le générateur basse fréquence (BF), la cellule ( $C_x$ ) et la capacité de référence ( $C_R = 56$  pF  $\pm 10$  %). Le transistor à effet de champ (FET, Crystallonics 2N6550) a été monté sur l'écran à 4.2 K.

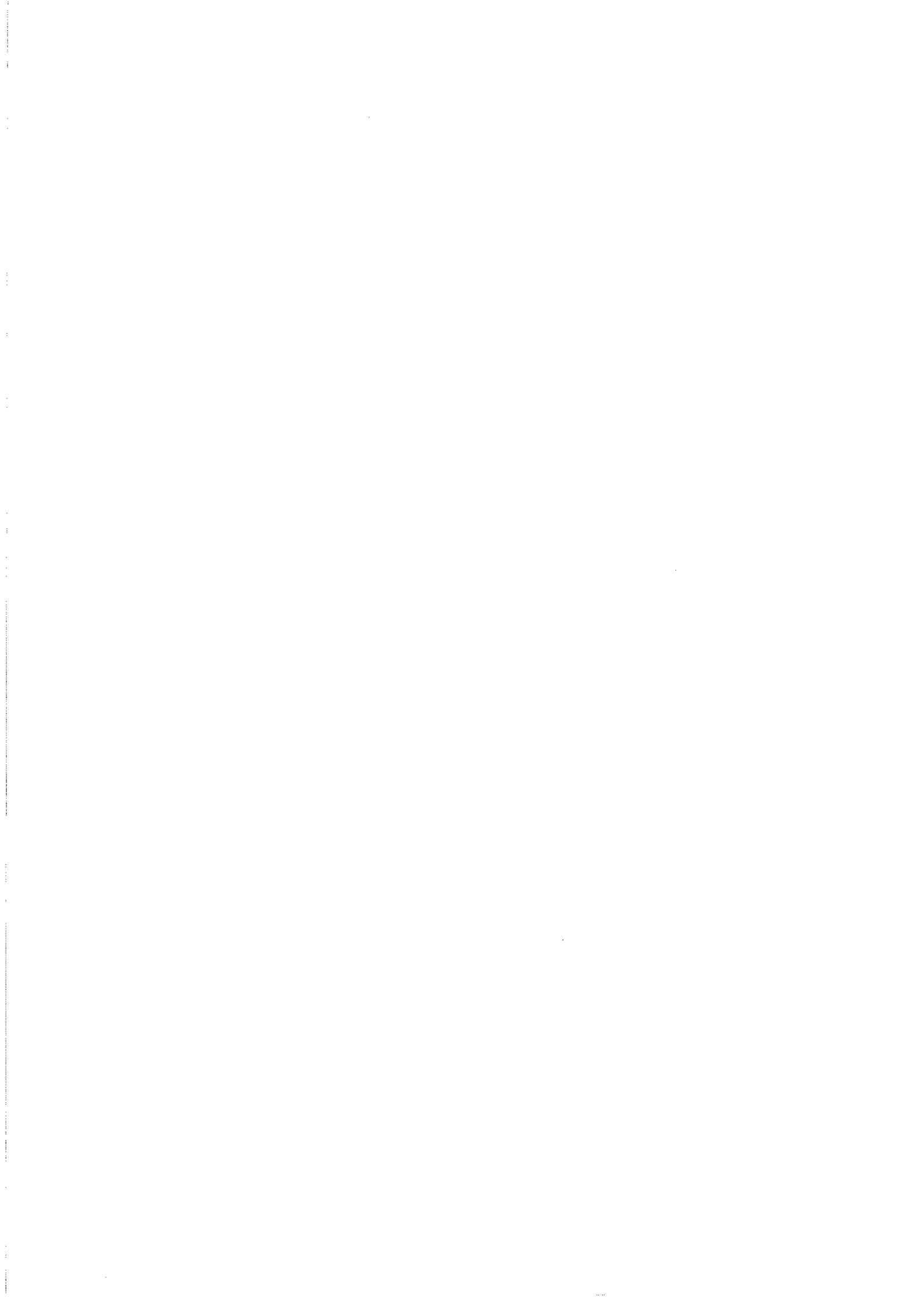
## **II-4 Mesures d'aimantation**

### ***II-4-1 Mesures à fort champ***

Les mesures d'aimantation à fort champ ( $B \leq 20$  tesla) dans la gamme de température  $1.3 \text{ K} < T < 4.2 \text{ K}$  ont été faites dans une bobine Bitter au Service National des Champs Intenses (SNCI - CNRS). Ces mesures ont été réalisées en collaboration avec J. Voiron (Lab. Louis Néel, CNRS), avec une méthode d'extraction standard.

### ***II-4-2 Mesures avec un SQUID***

Les mesures de la variation de l'aimantation à basses températures ( $150 \text{ mK} < T < 1.0 \text{ K}$ ) dans les composés  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  et  $\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  ont été réalisées en collaboration avec C. Paulsen et J.L. Tholence, (1989), avec un magnétomètre à SQUID construit au CRTBT. Comme on le verra dans le chapitre suivant, ces mesures ont permis de suivre la variation de l'aimantation à basses températures à un champ donné.



## CHAPITRE III

*Dans ce chapitre, nous allons étudier deux composés à fermions lourds :  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  et  $\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ . Les effets du champ magnétique à basses températures seront discutés. L'apparition d'une loi d'échelle avec la pression, sous champ et à basse température, sera utilisée pour lier quelques quantités thermodynamiques.*



### III - PROPRIETES MAGNETOVOLUMIQUES de $CeRu_2Si_2$ et $Ce_{0.95}La_{0.05}Ru_2Si_2$

#### III-1 Dilatation thermique à champ nul

##### *III-1-1 Le composé $CeRu_2Si_2$*

#### III.2 Paramètres de Grüneisen

#### III.3 Le composé $Ce_{0.95}La_{0.05}Ru_2Si_2$

#### III.4 Effet du champ magnétique

##### *III.4.1 Magnétostriction*

#### III.5 Augmentation de la masse effective à $B^*$

#### III.6 Dilatation thermique sous champ

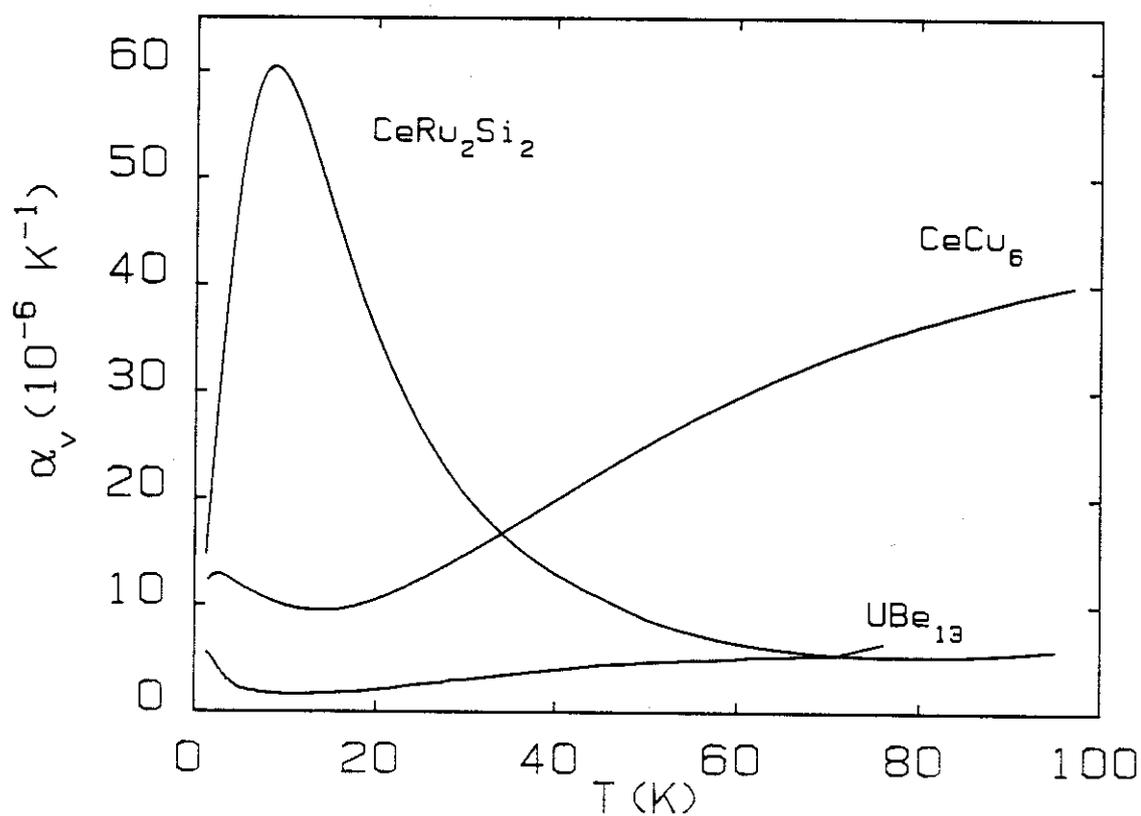
##### *III.6.1 Résultats expérimentaux*

##### *III.6.2 Loi d'échelle*

où  $\mathcal{F}$  est l'énergie libre et le premier terme la compressibilité isothermique  $\kappa$ .  
Alors :

$$\alpha_v = - \kappa \left( \frac{\partial^2 \mathcal{F}}{\partial V \partial T} \right). \quad (\text{III.2})$$

On va appliquer cette dernière équation pour étudier les propriétés de basse et haute température (à champ nul) du composé  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ .

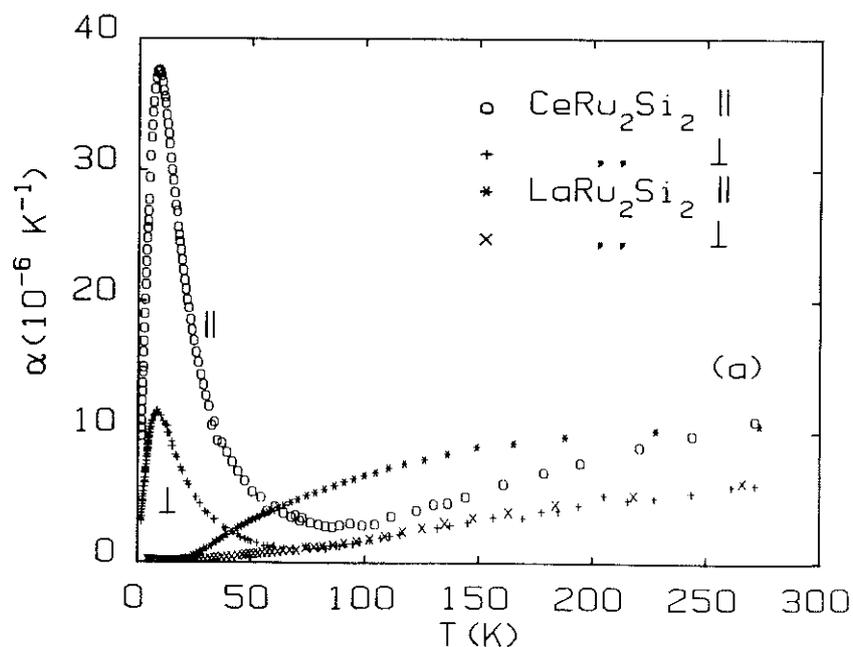


**Fig. III-1** Coefficient de dilatation volumique,  $\alpha_v$ , en fonction de la température pour quelques composés à fermion lourds.

### III-1-1 Le composé $CeRu_2Si_2$

Pour le composé  $CeRu_2Si_2$  et son analogue non magnétique  $LaRu_2Si_2$ , nous avons mesuré le coefficient linéaire de dilatation thermique,  $\alpha_{//}$  et  $\alpha_{\perp}$  parallèle et perpendiculaire à l'axe  $c$  de la structure cristalline sur une large gamme de températures (voir Fig. III-1-1).

Quand la température croît, la cellule unitaire de  $CeRu_2Si_2$  et  $LaRu_2Si_2$  augmente dans toute la gamme de température, avec le coefficient d'expansion suivant l'axe  $c$  plus fort que celui du plan basal. D'après la figure III-1-1., nous pouvons calculer l'expansion volumique à partir de la relation  $\alpha_v = \alpha_{//} + 2\alpha_{\perp}$ , après avoir représenté  $\alpha_{//}$  et  $\alpha_{\perp}$ , par exemple, par un fit polynomial. Les résultats de  $\alpha_v$  sont montrés dans la figure III-1-2. Dans la figure III-1-2, on montre l'expansion thermique après la soustraction du terme du au réseau (le composé  $LaRu_2Si_2$ ). Comme on le voit,  $\alpha_v$  devient négatif au-dessus de  $\sim 65$  K. Ces résultats (pour  $T < 100$  K) sont en accord avec les résultats de A. de Visser *et al.* (1988). Cependant, une différence sur  $\alpha_{//}$  de 25 % est trouvée par rapport aux résultats obtenus auparavant (de Visser *et al.* (1988)) sur le même monocristal. La différence peut être due aux différents cycles thermiques subis par l'échantillon.



**Fig. III-1-1** Coefficient linéaire de dilatation thermique de  $CeRu_2Si_2$  et  $LaRu_2Si_2$  parallèle (o et \*) et perpendiculaire (+ et x) à l'axe  $c$ .

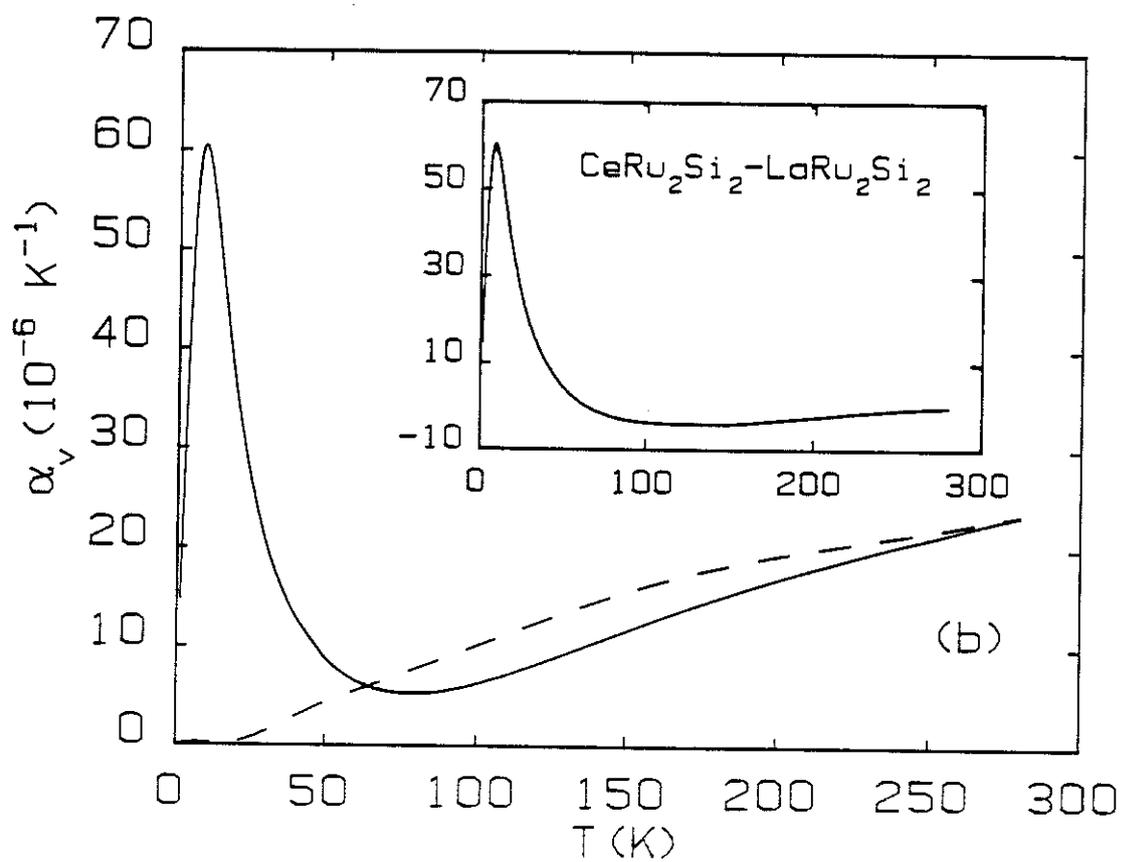


Fig.III-1-2 Coefficient de dilatation volumique,  $\alpha_v$ ,  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  (ligne continue) et  $\text{LaRu}_2\text{Si}_2$  (ligne pointillée). Dans l'encart la contribution des électrons f (voir le texte).

La dilatation thermique "relative",  $\alpha_r = \alpha_c - \alpha_a$  ( $\alpha_c \equiv \alpha_{//}$  et  $\alpha_a = \alpha_{\perp}$ ), nous donne le rapport  $c/a$  qui indique comment le paramètre  $c$  varie par rapport au plan basal (Fig. III-1-3).

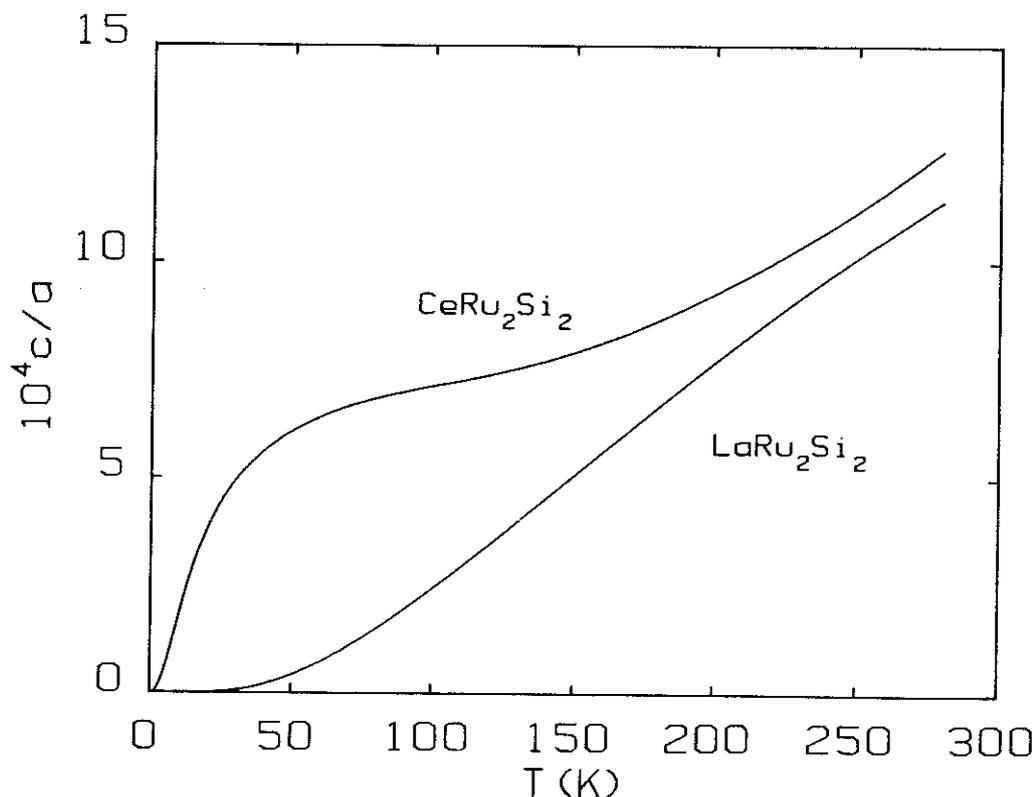


Fig. III-1-3 Le quotient  $c/a$  normalisé à 0 à 1.5 K de CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> et LaRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>

Vue la très faible contribution du réseau LaRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> à basse température :  $\alpha_v(\text{LaRu}_2\text{Si}_2) \sim 10^{-8} \text{ K}^{-1}$  à  $T < 30 \text{ K}$ , la contribution de basse température est dominée par les électrons 4f du Ce. La grande anomalie positive centrée à  $\sim 9 \text{ K}$  déjà signalée dans les figures III-1-1 et III-1-2 reflète la compétition entre l'effet Kondo à un site et les couplages intersites. Cet effet a été aussi observé dans des mesures de la chaleur spécifique (anomalie centrée à 11 K) et de la susceptibilité magnétique (anomalie centrée à 10 K).

A plus haute température,  $\alpha_{el.}$  devient négatif. Cet effet est attribué à une anomalie de type Schottky comme celle déjà trouvée par M.J. Besnus *et al.* (1985) dans la chaleur spécifique. A haute température (Fig. III-1-4), un faible minimum de  $\alpha_{el.}$  à 120 K est aussi trouvé.

Le grand coefficient de dilatation thermique ( $\alpha_V \sim 10^{-5}$ ) de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  peut être utilisé avec la thermodynamique standard pour estimer la différence entre la chaleur spécifique à pression constante ( $C_P$ ) et à volume constant ( $C_V$ ) (voir Fig. III-1-5).

$$C_P - C_V = \frac{V_0 T}{\kappa} \alpha_V^2,$$

où  $V_0$  est le volume molaire de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  ( $V_0 = 5.17 \times 10^{-5} \text{ m}^3/\text{mol}$ ) et  $\kappa$  la compressibilité isothermique  $\sim 0.95 \text{ Mbar}^{-1}$  (J.M. Laurant et M. Rossignol (1986)). La correction  $\Delta C_P$  atteint 10 % à  $T \sim 11 \text{ K}$ . Dans les courbes de chaleur spécifique que nous avons montrées, cette correction n'a pas été faite.

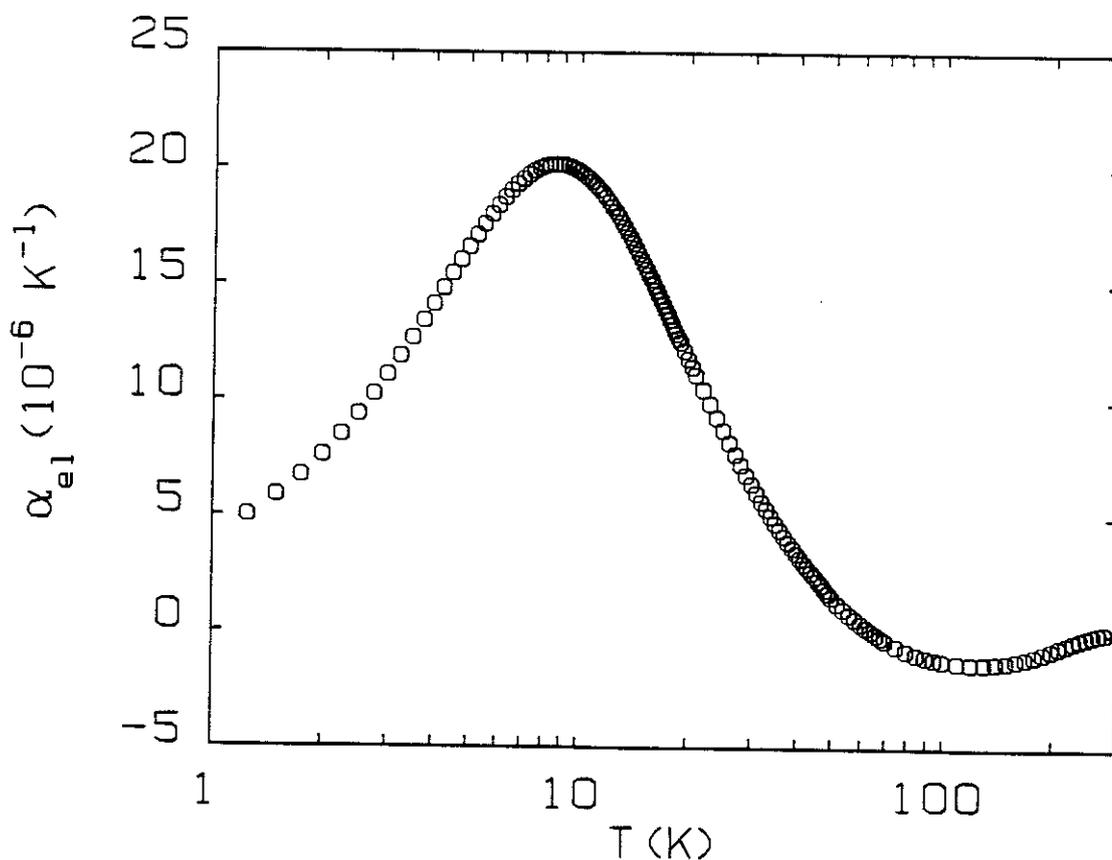


Fig. III-1-4  $\alpha_{e1}$  en fonction de la température de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$

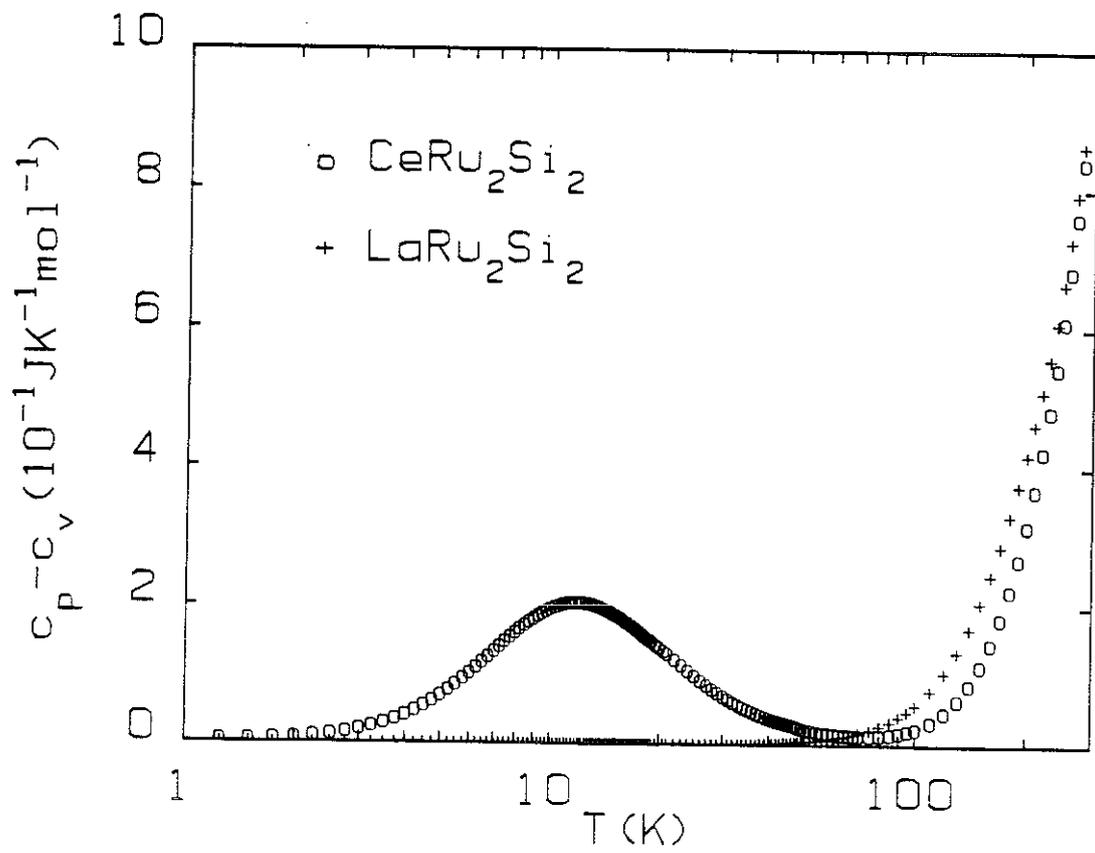


Fig.III-1-5  $c_p - c_v$  de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  (o) et  $\text{LaRu}_2\text{Si}_2$  (+).

### III-2 Paramètres de Grüneisen

Nous allons supposer que, pour une contribution particulière des propriétés thermodynamiques, nous pouvons écrire l'entropie,  $S_j$ , sous la forme :

$$S_j(T/T_j(V)) , \quad (\text{III.3})$$

où  $T_j(V)$  est une température caractéristique dépendant du volume. D'après la thermodynamique, nous pouvons écrire :

$$\frac{V(\partial S_j/\partial V)_T}{T(\partial S_j/\partial T)_V} = - \frac{d \ln T_j(V)}{d \ln V} , \quad (\text{III.4})$$

Le terme  $d \ln T_j(V)/d \ln V$  définit un paramètre de Grüneisen (P.E. Brommer (1982)). Expérimentalement, il est utile d'écrire un paramètre de Grüneisen effectif ( $\Gamma_{\text{eff}}(T)$ ), capable de représenter comment les différentes échelles d'énergie se distribuent pour les gammes de température balayées (voir par exemple A. de Visser *et al.* (1990a)). On définit  $\Gamma_{\text{eff}}(T)$  par l'expression :

$$\frac{V(\partial S_j/\partial V)_T}{T(\partial S_j/\partial T)_V} = \frac{V_0 \alpha_v(T)}{\kappa C_P(T)} \equiv \Gamma_{\text{eff}}(T) , \quad (\text{III.5})$$

où  $V_0$  est le volume molaire,  $\alpha_v(T)$  l'expansion thermique volumique,  $V^{-1}(dV/dT)$ ,  $C_P(T)$  la chaleur spécifique à pression constante et  $\kappa$  la compressibilité isothermique,  $-V^{-1}(dV/dP)$ . En utilisant les données de chaleur spécifique de J.M. Besnus *et al.* (1985), la figure III-2-1 montre la variation thermique de  $\Gamma_{\text{eff}}(T)$  de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ . Dans la limite des basses températures,

$$\Gamma_{\text{eff}}(T \rightarrow 0) = \Gamma_{\text{FL}} = \frac{aV_0}{\kappa\gamma} \sim 190 , \quad (\text{III.6})$$

où  $\alpha_v = aT$  avec  $a = 1.29 \times 10^{-5} \text{ K}^{-2}$  et  $C_P = \gamma T$  ( $\gamma = 0.350 \text{ J mol}^{-1} \text{ K}^{-2}$ ). La grande valeur de  $\Gamma_{\text{eff}}(T \rightarrow 0)$  est encore une caractéristique des composés à

fermions lourds. Un point important est la grande dépendance en température de  $\Gamma_{\text{eff}}(T)$ . En partant d'une énergie libre de la forme

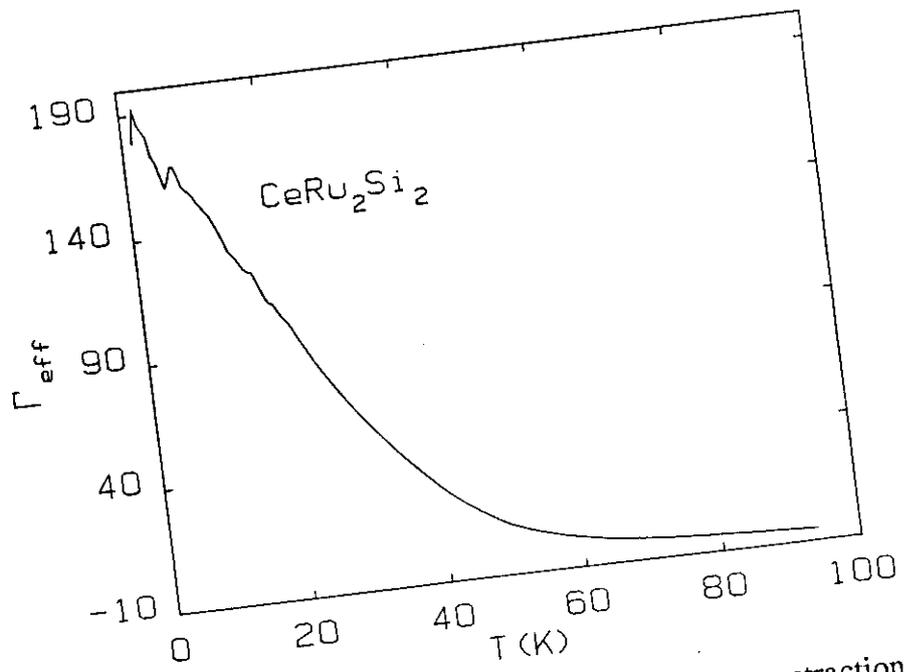
$$\mathcal{F} = T\phi(T/T^*),$$

où  $T^*$  est une température caractéristique et  $\phi$  une fonction de  $T/T^*$ ,  $\Gamma_{\text{eff}}$  donnera la dépendance volumique de  $T^*$  :

$$\Gamma_{\text{eff}} = - \frac{\partial \ln T^*}{\partial \ln V},$$

Dans ce cas, avec une seule échelle d'énergie à basse température définie par  $T^*$ , le paramètre de Grüneisen doit avoir une valeur constante. Un paramètre de Grüneisen constant est aussi trouvé en appliquant un modèle de Kondo à une impureté.

L'importance des couplages électron-phonon dans la grande valeur trouvée pour le  $\Gamma_{\text{FL}}$  dans les composés à fermions lourds a été développée par B. Lüthi (1985). Plus récemment, Thalmeier-Lüthi (1990) ont développé l'idée d'une interaction entre les électrons et les ondes élastiques du réseau, où des grandeurs thermodynamiques comme la dilatation thermique peuvent être fittées.



**III-2-1**  $\Gamma_{\text{eff}}$  en fonction de la température de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  (après soustraction du terme de réseau).

ar mesures de la susceptibilité de Pauli sous pression par J. Voiron et  
 8), un paramètre de Grüneisen compatible avec le notre de 170 a été  
 Cette grande valeur pour le  $\Gamma_{FL}$  implique une très forte dépendance  
 chaleur spécifique avec la pression. De la relation de Maxwell  
 $= -(\partial S/\partial P)$  et de l'équation (III-6), nous pouvons écrire :

$$\frac{dy}{dP} = -\kappa\Gamma_{FL}\gamma = -66 \text{ mJ}/(\text{mol K}^2 \text{ kbar}) .$$

Lorsque la température augmente,  $\Gamma_{eff}(T)$  change de signe à 65 K et  
 ure à une valeur presque constante de - 5.3. Ce plateau en  $\Gamma_{eff}(T)$  à  
 température (voir Fig. III-2-1) est lié à l'anomalie de champ cristallin.  
 est maintenant de séparer les contributions d'énergie du composé  
 $2\text{Si}_2$ .

### a) Régime à haute température

Nous allons considérer que, dans la structure cristallographique tétra-  
 ale de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , le niveau  $J = 5/2$  du Ce est décomposé en trois doublets  
 blement dégénérés. Par simplicité, nous allons considérer que le troisiè-  
 niveau est très séparé et qu'en première approximation le composé  
 $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  a un doublet fondamental et un premier état excité séparé de /  
 ns ce cas, l'énergie libre par mole est donnée par :

$$\mathcal{F} = -RT \ln(g_0 + g_1 e^{-\Delta/T}) ,$$

$g_0 = g_1 = 2$  sont les dégénérescences,  $\Delta$  le splitting d'énergie  
 nstante du gaz parfait ( $R = 8.314 \text{ JK}^{-1}\text{mol}^{-1}$ ). En général,  $\Delta = \Delta$   
 ur simplifier, nous allons supposer une seule variation en  
 $= \Delta(V)$ . La population du deuxième niveau conduit aux effets  
 chottky. Par exemple, la chaleur spécifique s'écrit (E.S.R. Gop

Fig.

$$C_{Sch.} = R \left[ \frac{\Delta}{T} \right]^2 \frac{e^{\Delta/T}}{(1+e^{\Delta/T})^2} . \quad (III.8)$$

Comme l'entropie peut s'écrire comme une fonction de  $T/\Delta$ , une équation équivalente pour la dilatation thermique apparaît :

$$\alpha_{Sch.} = \frac{R\kappa}{V_0} \left[ - \frac{\partial \ln \Delta}{\partial \ln V} \right] \left[ \frac{\Delta}{T} \right]^2 \frac{e^{\Delta/T}}{(1+e^{\Delta/T})^2} , \quad (III.9)$$

avec :

$$\Gamma_{Sch.} = - \frac{\partial \ln \Delta}{\partial \ln V} = \frac{V_0 \alpha_{Sch.}}{\kappa C_{Sch.}} = \Gamma_{CF} . \quad (III.10)$$

La figure III-2-2 montre la solution de l'éq. (III.9) calculée avec  $\Gamma_{CF} = -5.3$ . Pour comparer avec la valeur de  $\Delta$  trouvée à partir des mesures de la chaleur spécifique (M.J. Besnus *et al.*, 1985) par  $\Delta = T_{min}/0.417$  (Gopal, 1966), dans cette figure, nous fittons nos valeurs avec  $\Delta$  égal à 220 K (M.J. Besnus *et al.*, 1985) et 288 K. Pour la dilatation thermique, le fit  $\Delta=288$  K semble le plus adapté.

La valeur négative de  $\Gamma_{CF}$  donne  $\Delta$  qui décroît avec la pression :

$$\frac{d\Delta}{dP} = \kappa \Gamma_{CF} \Delta = -1.2 \text{ K/kbar} .$$

Cette valeur peut être comparée avec celle trouvée à partir des mesures de résistivité sous pression par J.M. Mignot *et al.* (1989) de  $d\Delta/dP = -3.2$  K/kbar. La température  $T_{max}$ , où un maximum en  $\rho(T)$  (résistivité après la soustraction de  $\text{LaRu}_2\text{Si}_2$ ) apparaît, décroît de 250 K à 225 K en appliquant une pression de 7.7 kbar.

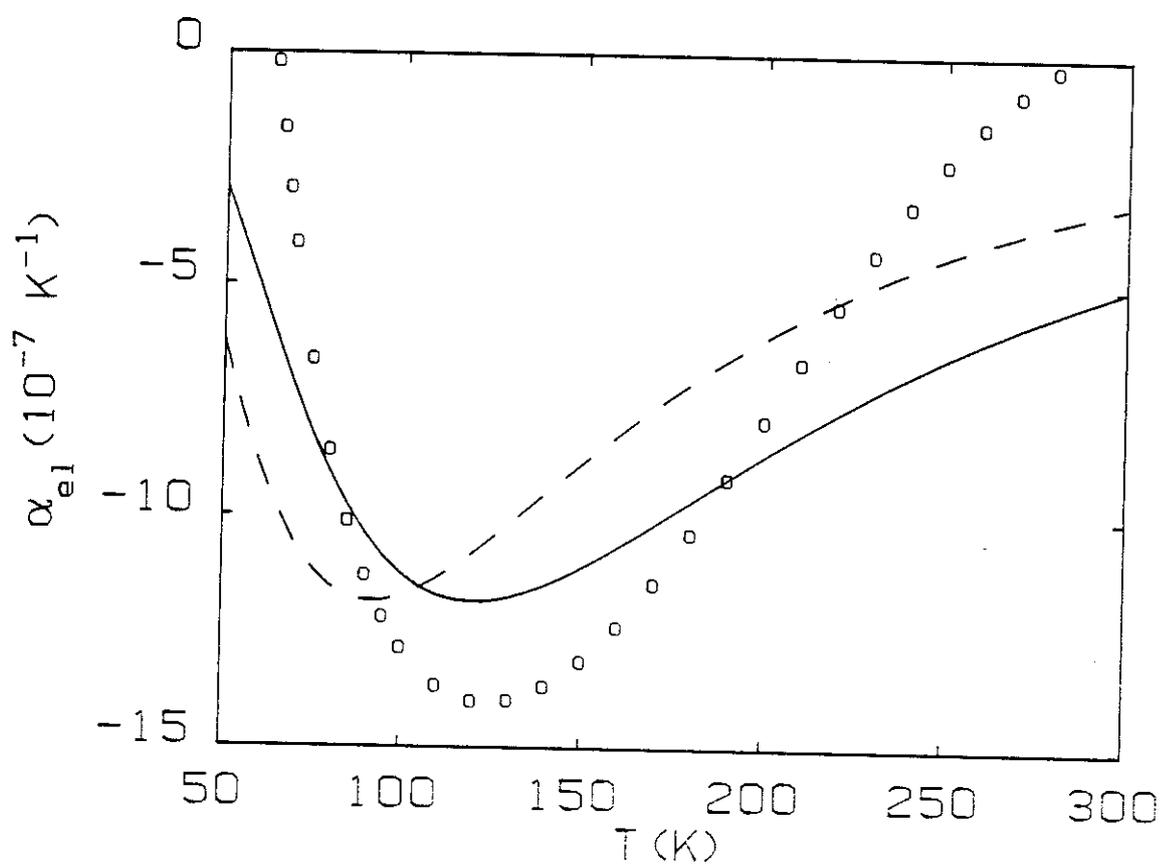


Fig.III-2-2  $\alpha_{el}$  de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , (o) points expérimentaux. Ligne continue et ligne pointillée ont été calculées d'après l'éq. II.9 avec  $\Gamma_{CF} = -5.3$ ,  $\Delta = 288$  et 220 K, respectivement.

Pour tenir compte des couplages magnétoélastiques, P. Morin *et al.* (1988) utilisent un formalisme via la susceptibilité. La valeur d'équilibre pour les contraintes est obtenue après minimisation de l'énergie magnétoélastique par rapport aux champs de contrainte. Pour la symétrie quadratique du composé  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , les coefficients de la dilatation thermique sont donnés par :

$$\alpha_{//} = \frac{1}{\sqrt{3}} \cdot \frac{(C_0^{\alpha 2} B^{\alpha 1} - C_0^{\alpha 1 2} B^{\alpha 2}) + \sqrt{2} (C_0^{\alpha 1} B^{\alpha 2} - C_0^{\alpha 1 2} B^{\alpha 1})}{C_0^{\alpha 1} C_0^{\alpha 2} - (C_0^{\alpha 1 2})^2} \cdot \frac{d\langle 0_2^0 \rangle}{dT},$$

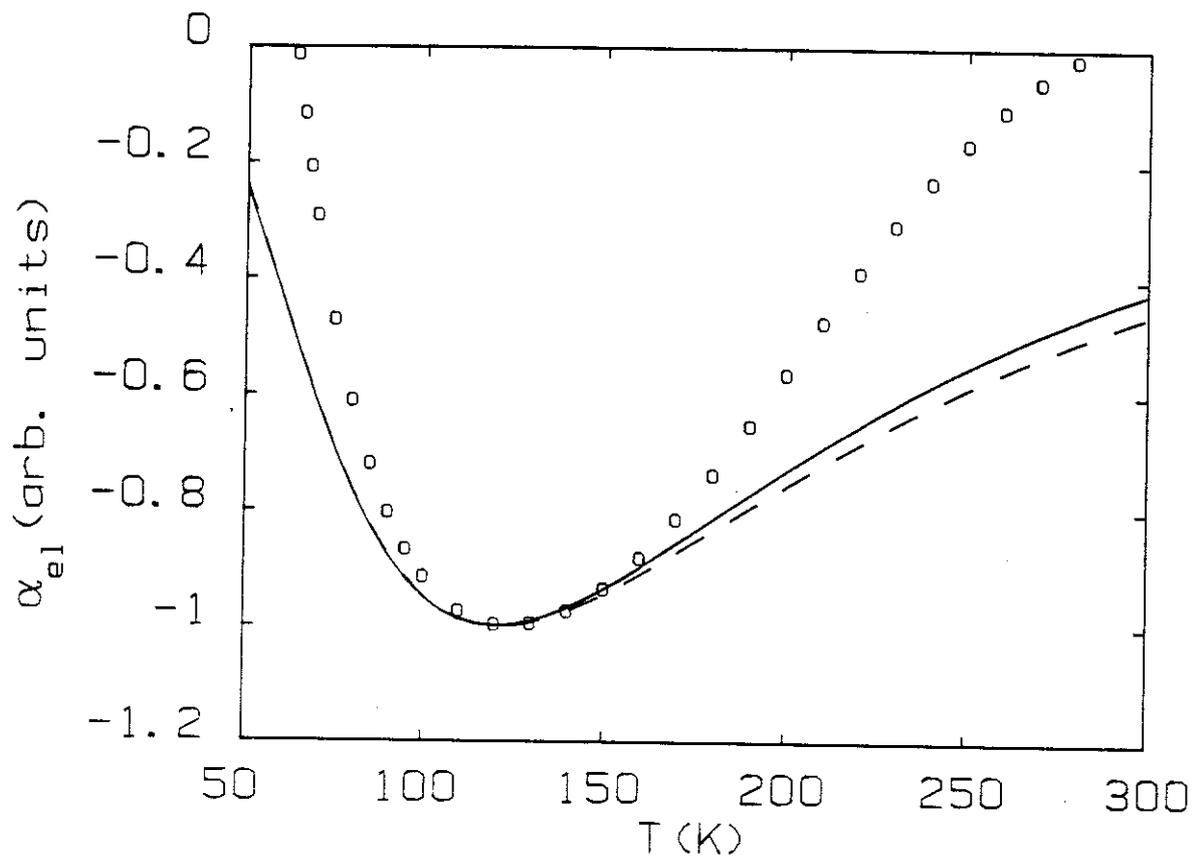
$$\alpha_{\perp} = \frac{1}{\sqrt{3}} \cdot \frac{(C_0^{\alpha 2} B^{\alpha 1} - C_0^{\alpha 1 2} B^{\alpha 2}) - \frac{1}{\sqrt{2}} (C_0^{\alpha 1} B^{\alpha 2} - C_0^{\alpha 1 2} B^{\alpha 1})}{C_0^{\alpha 1} C_0^{\alpha 2} - (C_0^{\alpha 1 2})^2} \cdot \frac{d\langle 0_2^0 \rangle}{dT},$$

(III.11)

où  $C_0^{\alpha 1}$ ,  $C_0^{\alpha 2}$  et  $C_0^{\alpha 1 2}$  sont les constantes élastiques du background ( $\text{LaRu}_2\text{Si}_2$ ),  $B^{\alpha 1}$  et  $B^{\alpha 2}$  les paramètres magnétoélastiques et  $0_2^0$  l'opérateur quadrupolaire. Pour déterminer les paramètres magnétoélastiques  $B^{\alpha i}$ , toutes les constantes élastiques  $C_0^{\alpha ij}$  devraient être connues. Malheureusement, ce n'est pas le cas. Pour comparer avec nos données expérimentales, nous allons seulement considérer les dépendances en température de l'eq. (III.11). La dépendance en température vient du terme  $d\langle 0_2^0 \rangle/dT$ . Pour calculer l'opérateur quadrupolaire  $\langle 0_2^0 \rangle$  (voir par exemple M.T. Hutchings (1964)), nous avons besoin des états de base du champ cristallin :

$$\begin{aligned} |0\rangle &= a|\pm 5/2\rangle - b|\mp 3/2\rangle \\ |1\rangle &= |\mp 1/2\rangle \\ |2\rangle &= b|\pm 5/2\rangle + a|\mp 3/2\rangle. \end{aligned}$$

Nous avons pris à l'issue de l'analyse de P. Lehmann (1987)  $a = 0.96$  et  $b = (1-a^2)^{1/2}$ . La figure III-2-3 montre la dépendance en température de l'eq. III.11 et la compare avec la dépendance en température de l'anomalie type Schottky pour la dilatation thermique (avec  $\Delta = 288$  K). Les deux formalismes donnent presque les mêmes résultats, confirmant ainsi que l'anomalie à haute température de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  peut être étudiée séparément comme une anomalie de type Schottky dans le premier doublet excité.



**Fig.III-2-3**  $\alpha_{el}$  de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , normalisé à -1 à 120 K. (o) points expérimentaux. La ligne pointillée est calculée à partir de l'équation III.11. La ligne continue est calculée à partir de l'équation III-9 avec  $\Gamma_{CF} = -5.3$  et  $\Delta = 288$  K.

### b) Régime de basses températures

Nous allons tenter de représenter la grande anomalie à  $T \sim 10$  K dans un modèle simple. Pour cela, nous allons considérer un problème Kondo à une impureté avec une résonance au niveau de Fermi. Ce traitement est bien sûr trop simple pour l'étude d'un réseau comme  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ . Mais nous pouvons le considérer comme une première approximation pour étudier la dilatation thermique à champ nul. Dans le modèle de Schotte et Schotte (1975), une résonance de type Lorentzienne se forme au niveau de Fermi. La largeur de la Lorentzienne,  $\Delta$ , est de l'ordre de la température de Kondo,  $\Delta \sim k_B T_K$ . Cette résonance correspond à l'énergie libre :

$$\mathcal{F} = -RT \int_{-\infty}^{+\infty} \rho(\epsilon) \ln(1+e^{-\beta\epsilon}) d\epsilon, \quad (\text{III.12})$$

où  $\beta = 1/k_B T$  et la densité d'état  $\rho(\epsilon)$  a une forme lorentzienne :

$$\rho(\epsilon) = \frac{\Delta}{\pi} \cdot \frac{1}{(\epsilon^2 + \Delta^2)}. \quad (\text{III.13})$$

En suivant la thermodynamique, la dilatation thermique volumique s'écrit :

$$\alpha_{SS} = \frac{\kappa}{V_0} \frac{R}{\pi} \left[ - \frac{\partial \ln \Delta}{\partial \ln V} \right] \frac{\Delta}{T} \left\{ 1 - \frac{1}{2\pi k_B} \left[ \frac{\Delta}{T} \right] \psi' \left[ \frac{1}{2} + \frac{\Delta}{2\pi k_B T} \right] \right\}, \quad (\text{III.14})$$

et pour la chaleur spécifique :

$$C_{SS} = \frac{R}{\pi} \frac{\Delta}{T} \left\{ 1 - \frac{1}{2\pi k_B} \left[ \frac{\Delta}{T} \right] \psi' \left[ \frac{1}{2} + \frac{\Delta}{2\pi k_B T} \right] \right\}, \quad (\text{III.15})$$

où  $\psi'(z) = d \ln \Gamma(z) / dz$  et  $\Gamma(z)$  la fonction gamma. La fonction digamma,  $\psi'(z)$ , peut être calculée numériquement après la transformation en coordonnées polaires :

$$z = \rho e^{i\theta}; \quad z = (x+iy), \text{ avec } x = \rho \cos\theta \text{ et } y = \rho \sin\theta$$

$$\rho = (x^2 + y^2)^{1/2}$$

$$\theta = \arctan(y/x),$$

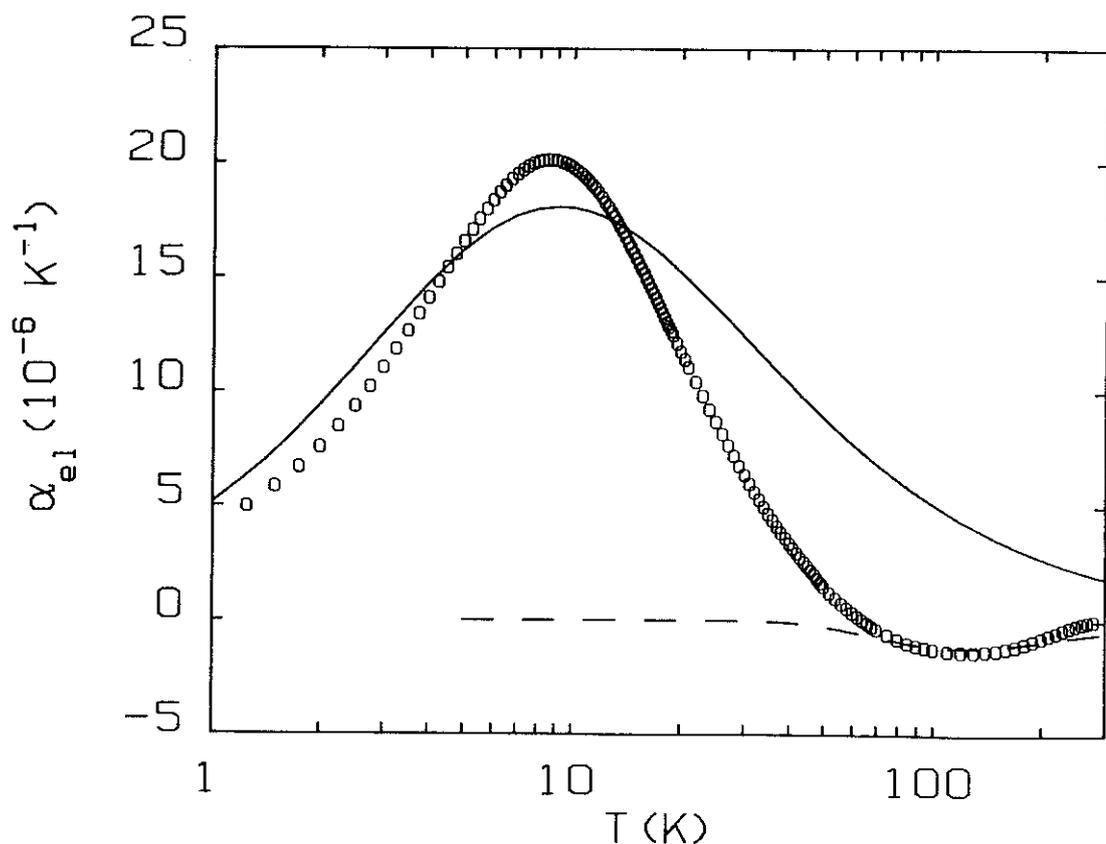
et l'expansion (d'après M. Abramovitz et J.A. Stegun (1979)) :

$$\psi'(z) = \ln z - \frac{1}{2z} - \frac{1}{12z^2} + \frac{1}{120z^4} + \dots \quad (\text{III.16})$$

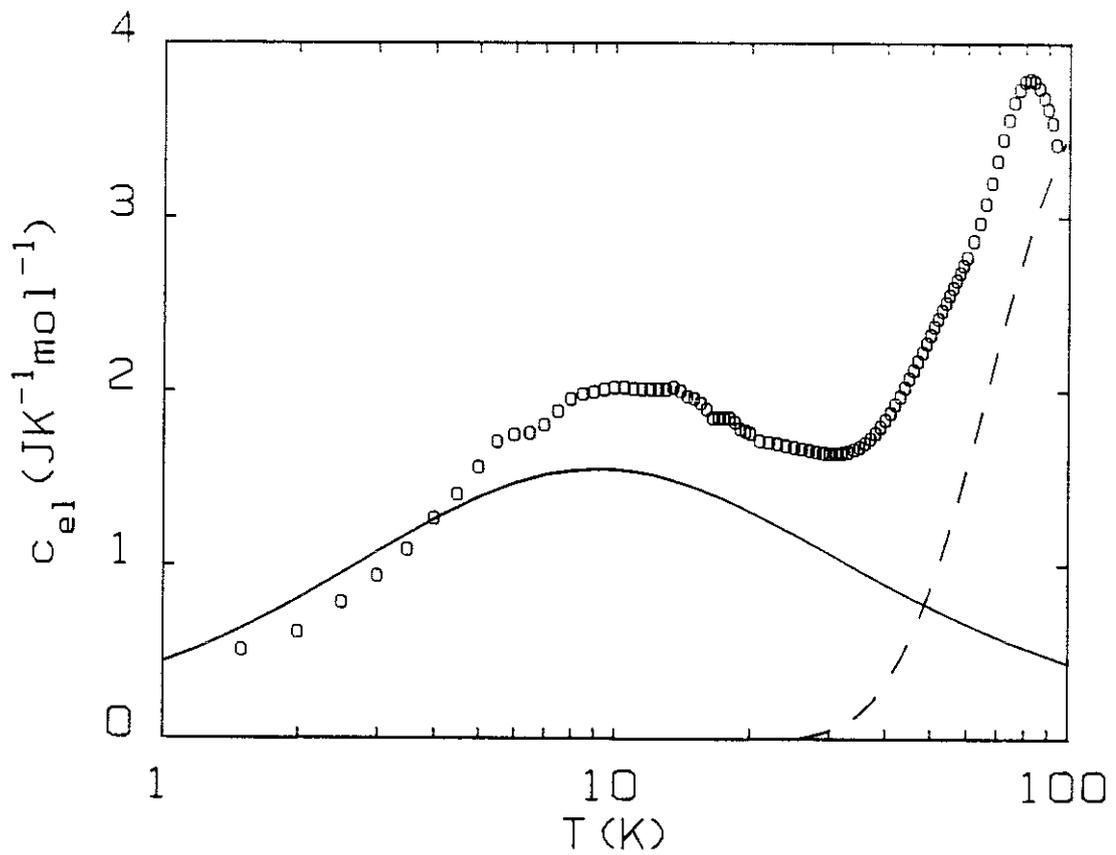
Dans ce cas :

$$\Gamma_{SS} = - \frac{\partial \ln \Delta}{\partial \ln V} = - \frac{\partial \ln T_K}{\partial \ln V} = \frac{V_0 \alpha_{SS}}{\kappa C_{SS}}. \quad (\text{III.17})$$

Dans la figure III-2-4, nous comparons les solutions des eq. (14) et (9) avec les données expérimentales pour la dilatation thermique et dans la figure III-2-5, celles obtenues pour la chaleur spécifique (Eq. (15) et (8)).



**Fig.III-2-4**  $\alpha_{el}$  de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ . (o) points expérimentaux. La ligne continue est calculée à partir de l'éq. III. 14 avec  $\Gamma_{SS} = 190$  et  $T_K = 19$  K. La ligne pointillée est calculée à partir de l'éq. III. 9 avec  $\Gamma_{CF} = -5.3$  et  $\Delta = 288$  K



**Fig.III-2-5** Chaleur spécifique de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ . (o) points expérimentaux (d'après Besnus *et al.* 1985). La ligne continue est calculée à partir de l'éq. III. 15 avec  $T_K = 19 \text{ K}$ . La ligne pointillée est calculée à partir de l'éq. III. 8 avec  $\Delta = 288 \text{ K}$ .

L'incorporation d'un champ moléculaire supplémentaire dans le modèle de Schotte-Schotte a été proposé par C.D. Bredl *et al.* (1978) pour l'étude de la chaleur spécifique dans les alliages (Ce,La)Al<sub>2</sub>. Récemment, K. Matho et C. Marcenat (1988) ont proposé un modèle de résonance à deux sites. Dans ce modèle, l'hamiltonien s'écrit :

$$-\beta\mathcal{H} = \omega S_1 S_2 + \varepsilon(S_1^Z + S_2^Z),$$

où  $\beta = 1/k_B T$  et l'interaction de Heisenberg  $W = \omega/\beta$  rentre en compétition avec l'effet Kondo de spin  $S = 1/2$ . L'énergie libre :

$$\mathcal{F}(T,B) = -k_B T \langle \ln \text{Tr} \exp(-\beta\mathcal{H}) \rangle,$$

permet de calculer les quantités thermodynamiques. Dans ce modèle ainsi que dans le modèle de Schotte-Schotte, un possible mélange entre l'effet Kondo et le champ cristallin n'a pas été considéré. La température de Kondo à haute température,  $T_K^h$ , peut être calculée d'après K. Hanzawa *et al.* (1987) :

$$T_K^h = (T_K \Delta_1 \Delta_2)^{1/3}.$$

Pour CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>, avec  $T_K = 19$  K,  $\Delta_1 = 288$  K (d'après nos mesures de dilatation thermique) et une estimation de  $\Delta_2 = 1000$  K (d'après Besnus *et al.*, 1987), nous trouvons  $T_K^h \sim 170$  K qui n'est pas une valeur trop élevée et doit être prise en compte.

### III-3 Le composé $\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$

Pour connaître le rôle des impuretés dans les propriétés thermodynamiques du système  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , nous avons étudié les propriétés magnéto-volumiques de l'alliage avec 5 % de La. Ce composé présente une transition de type métamagnétique pour  $B//c$  à  $B^* \sim 5.3$  tesla à basses températures.

La figure III-3-1 montre la dilatation thermique suivant l'axe tétragonal et dans le plan basal. L'anomalie située à  $T_m \sim 9$  K pour le composé pur ( $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ ) est retrouvée à plus basse température,  $T_m \sim 6$  K. Ce déplacement de  $T_m$  vers les plus basses températures est directement lié à l'augmentation du volume molaire par l'addition de La. Il correspond à une diminution du  $T_K$ . Après les mesures de  $\alpha_{//}$  et  $\alpha_{\perp}$  dans une large gamme de températures, nous avons observé  $\alpha_{//} \sim 2.5\alpha_{\perp}$  (pour  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  on a  $\alpha_{//} \sim 3\alpha_{\perp}$ ). Dans ce cas, le paramètre de Grüneisen à basse température  $\Gamma_{\text{eff}}(T \rightarrow 0) = 220$  a augmenté. Nous rappelons que, pour une concentration de 8 % La, le système  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  développe un ordre antiferromagnétique à longue portée.

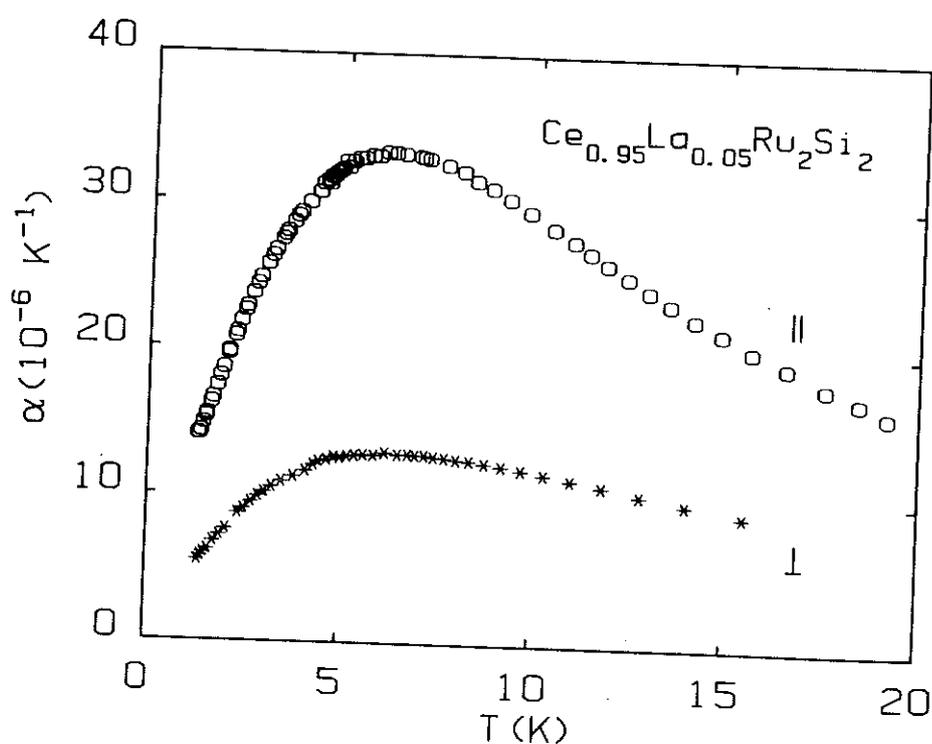


Fig. III-3-1 Coefficient linéaire de la dilatation thermique de  $\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ . (o) parallèle et (\*) perpendiculaire à l'axe  $c$ .

### III-4 Effet du champ magnétique

#### III-4-1 Magnétostriction

##### a) Régime à haute température

La figure III-4-1 montre l'aimantation à fort champ (à 1.3 K et 4.2 K) de l'échantillon de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  sur lequel nous avons réalisé les mesures de magnétostriction et dilatation thermique.

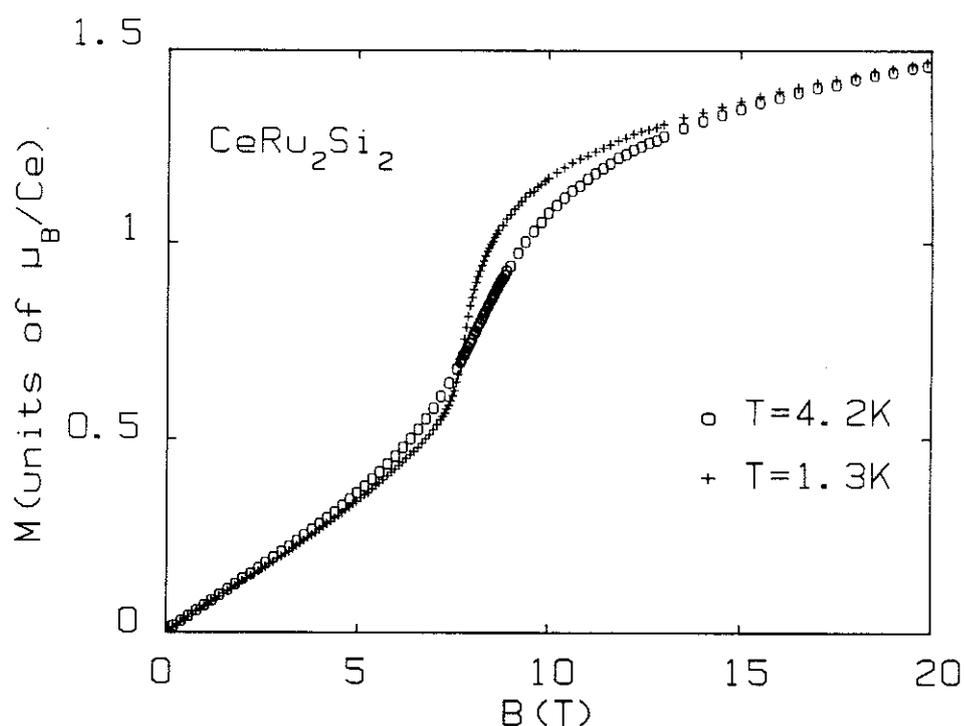


Fig. III-4-1 Aimantation de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  pour  $B//c$  à  $T = 1.3 \text{ K}$  (+) et  $T = 4.2 \text{ K}$  (o).

Par des mesures relatives de la magnétostriction, L. Puech *et al.* (1987) ont montré que l'axe  $c$  présente une grande anomalie au voisinage de  $B^*$ . Avec la nouvelle cellule capacitive, nous avons pu réaliser des mesures absolues de magnétostriction parallèle ( $\lambda_{//} = \Delta L_c / L_c$ ) et perpendiculaire

( $\lambda_{\perp} = \Delta L_a/L_a$ ) à l'axe  $c$ . La figure III-4-2 montre la magnétostriction à 1.3 K et 4.2 K pour le champ magnétique appliqué suivant l'axe  $c$ . Les points marquants sont que dans les deux gammes de température  $\lambda_{//} \sim 3\lambda_{\perp}$  et que le changement de volume devient de plus en plus marqué en refroidissant le système. Le champ  $B^*$  correspond exactement au champ magnétique où le maximum en  $\lambda'_V (= V^{-1}dV/dB)$  apparaît.

La dépendance de la magnétostriction volumique peut être écrite sous la forme  $\lambda_V \sim \epsilon_T B^2$ , à bas champ, dans les deux gammes de température. D'après la relation de Maxwell :

$$\left. \frac{\partial V}{\partial B} \right|_{P,T} = - \left. \frac{\partial M}{\partial P} \right|_{B,T} , \quad (\text{III.18})$$

nous pouvons écrire :

$$\frac{\partial \ln \chi}{\partial P} = - \frac{2\epsilon_T V_0}{\chi_0} \mu_0 , \quad (\text{III.19})$$

où  $V_0$  est le volume molaire,  $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7}$  la perméabilité ( $B = \mu H$  avec  $\mu = \mu_0 \mu_r$ ),  $\chi_0$  la susceptibilité à  $B \rightarrow 0$  à basse température et  $\epsilon_T$  la pente initiale de  $\lambda_V$ . Par exemple, à 1.3 K l'éq. (III.19) nous donne  $d \ln \chi / dP = -167 \text{ Mbar}^{-1}$  et les mesures de susceptibilité sous pression de J. Voiron *et al.* (1988) nous donnent  $d \ln \chi / dP \approx -170 \text{ Mbar}^{-1}$ .

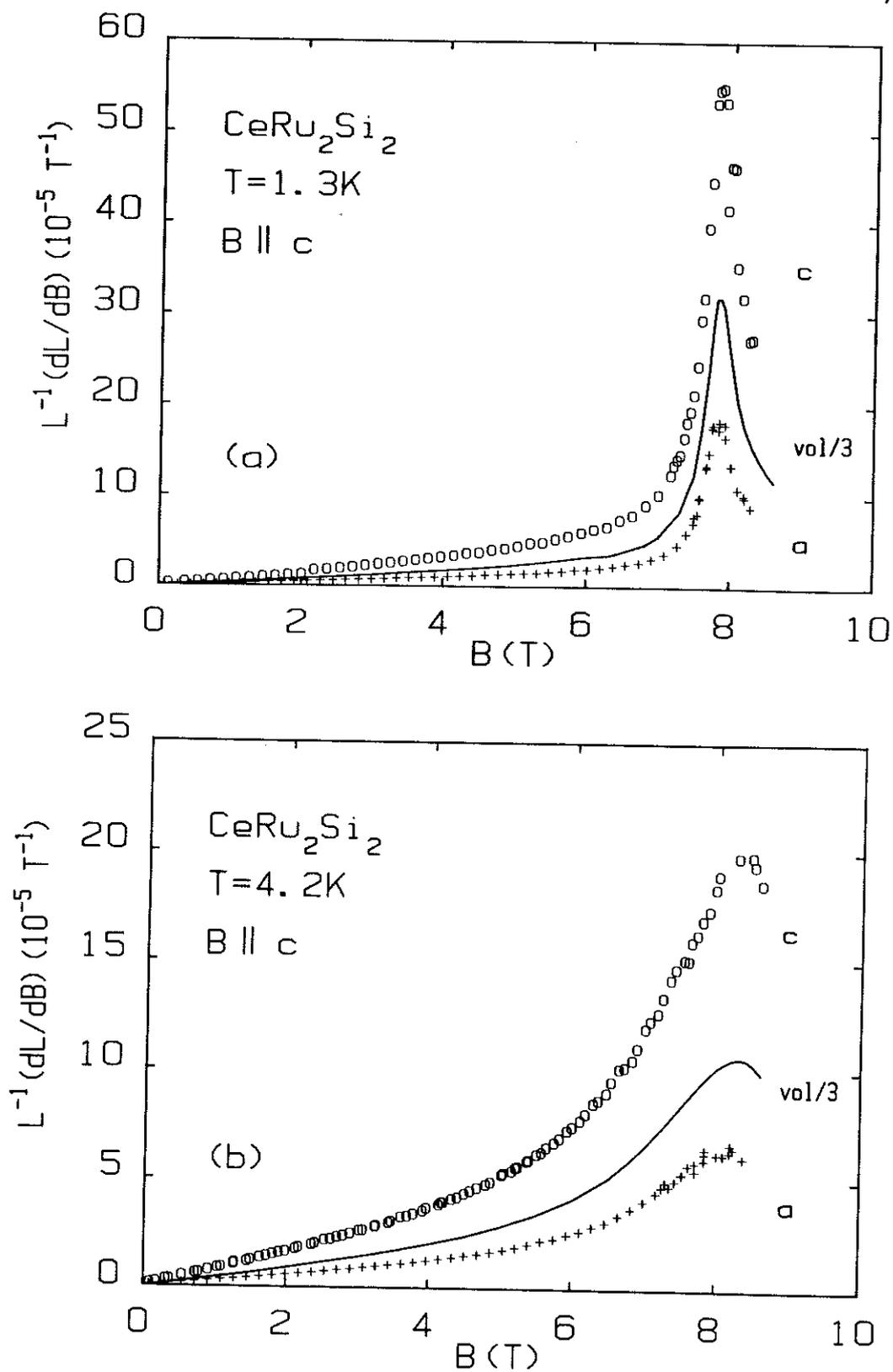


Fig. III-4-2 Coefficient linéaire de la dérivée de la magnétostriction,  $\lambda'_L$  ( $\equiv L^{-1}dL/dB$ ), de  $CeRu_2Si_2$  pour  $B/c$  : (o)  $\Delta L/L$  parallèle à l'axe  $c$  et (+)  $\Delta L/L$  perpendiculaire à l'axe  $c$ . (a)  $T = 1.3 K$  et (b)  $T = 4.2 K$ .

Les données pour la magnétostriction volumique quand  $B//a$  à 4.2 K et 1.3 K sont montrées Fig. III-4-3. La magnétostriction pour  $B//a$  est trois ordres de grandeur plus petite que celle détectée pour  $B//c$ .

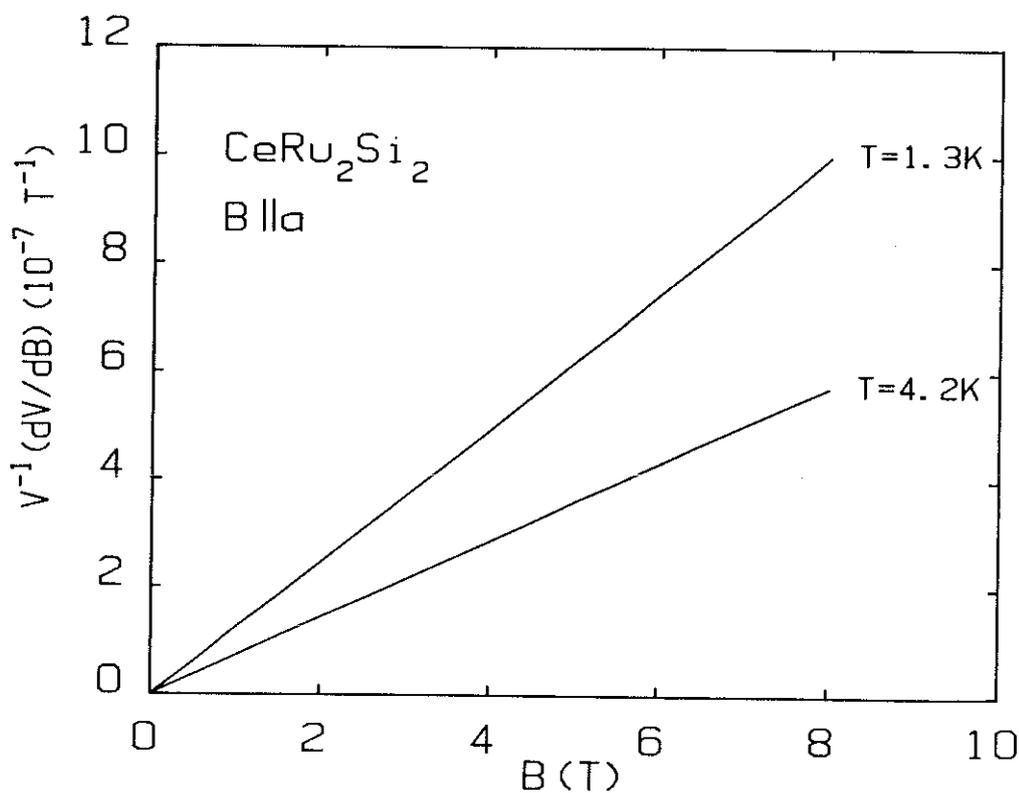


Fig. III-4-3 Coefficient de la dérivée de la magnétostriction volumique,  $\lambda'_v$  ( $\equiv V^{-1}dV/dB$ ), de  $CeRu_2Si_2$  pour  $B//a$  aux températures indiquées.

Les mêmes effets sont aussi observés dans le composé avec 5 % La. La figure III-4-4 montre la dérivée de la magnétostriction,  $\lambda' = L^{-1}dL/dB$ , à 1.3 K et 4.2 K pour  $B//c$  (ici  $\lambda'_// \sim 2.5 \lambda'_\perp$ ).

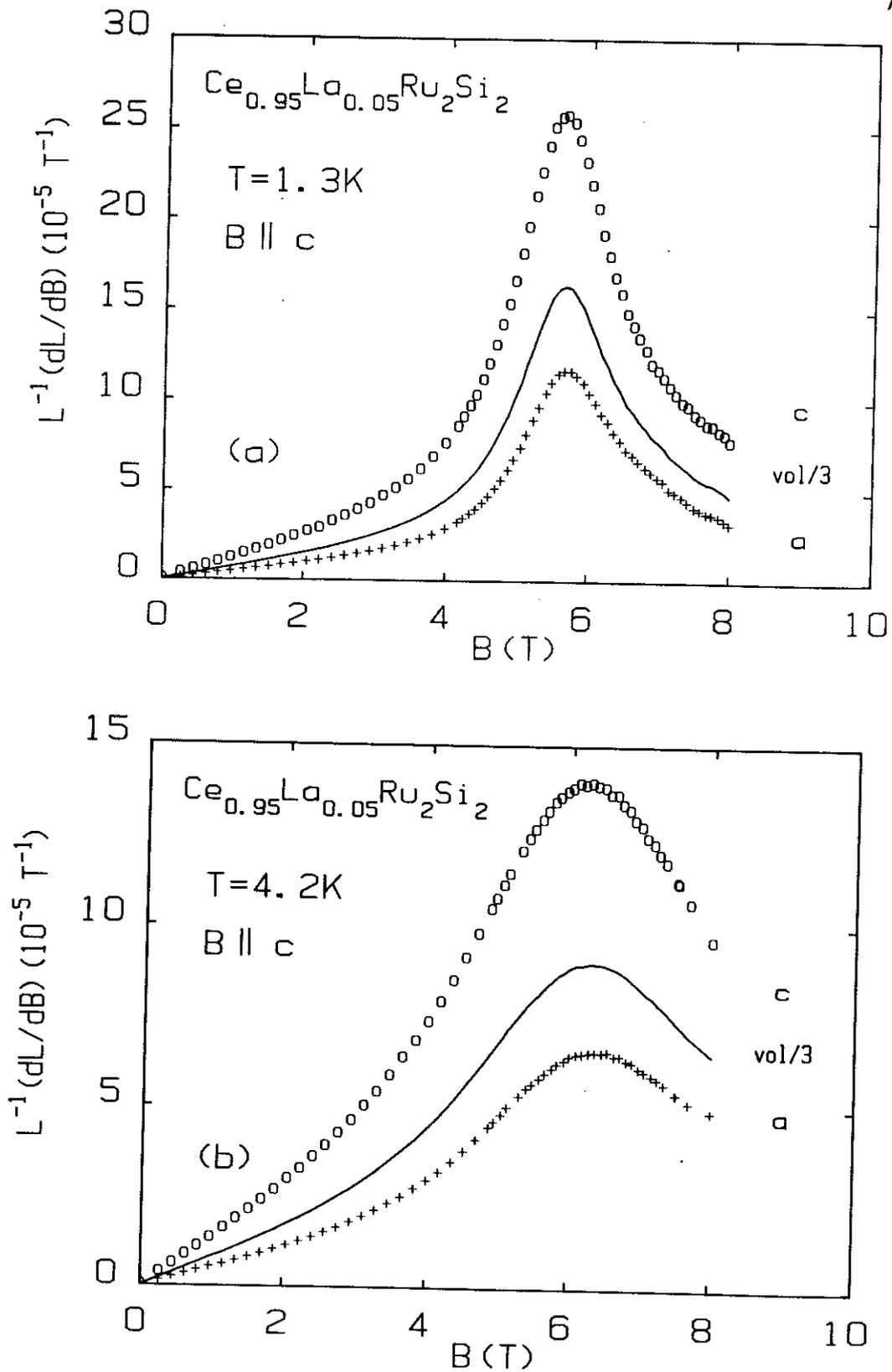


Fig. III-4-4 Coefficient linéaire de la dérivée de la magnétostriction,  $\lambda'_w$  ( $\equiv L^{-1}dL/dB$ ), de  $Ce_{0.95}La_{0.05}Ru_2Si_2$  pour  $B/c$  : (o)  $\Delta L/L$  parallèle à l'axe  $c$  et (+)  $\Delta L/L$  perpendiculaire à l'axe  $c$ . (a)  $T = 1.3$  K et (b)  $T = 4.2$  K.

La thermodynamique peut relier la susceptibilité à pression constante à la susceptibilité à volume constant :

$$\chi_P - \chi_V = \frac{V_0}{\kappa} (\lambda'_V)_{P,T}^2 \quad (\text{III.20})$$

Pour  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ ,  $\chi_P$  et  $\lambda'_V$  ont été mesurés,  $\kappa$  peut se calculer en fonction du champ d'après l'hypothèse de loi d'échelle (SA) (L. Puech, 1988). Pour  $\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ ,  $\chi_P$  et  $\kappa$  ont été calculés par le SA. La figure III-4-5 montre  $\chi_P$  et  $\chi_V$  à 1.3 K pour le système  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  avec  $x = 0$  et  $x = 0.05$ . Le fait intéressant est que même à volume constant la transition métamagnétique induit un maximum à  $B^*$  en  $\chi_V$ . Pour  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  :  $\chi_V(B^*) \sim 5\chi_V(B=0)$ . Avec ces résultats, nous pouvons dire que la transition métamagnétique observée dans ces composés est une caractéristique intrinsèque des effets du champ magnétique sur les électrons lourds. Cet effet, dont on ne sait pas l'origine précise, induit d'énormes variations de volume et, même si l'on pouvait imposer le volume constant pendant le balayage du champ magnétique, un maximum en  $\chi_V$  continuerait d'exister.

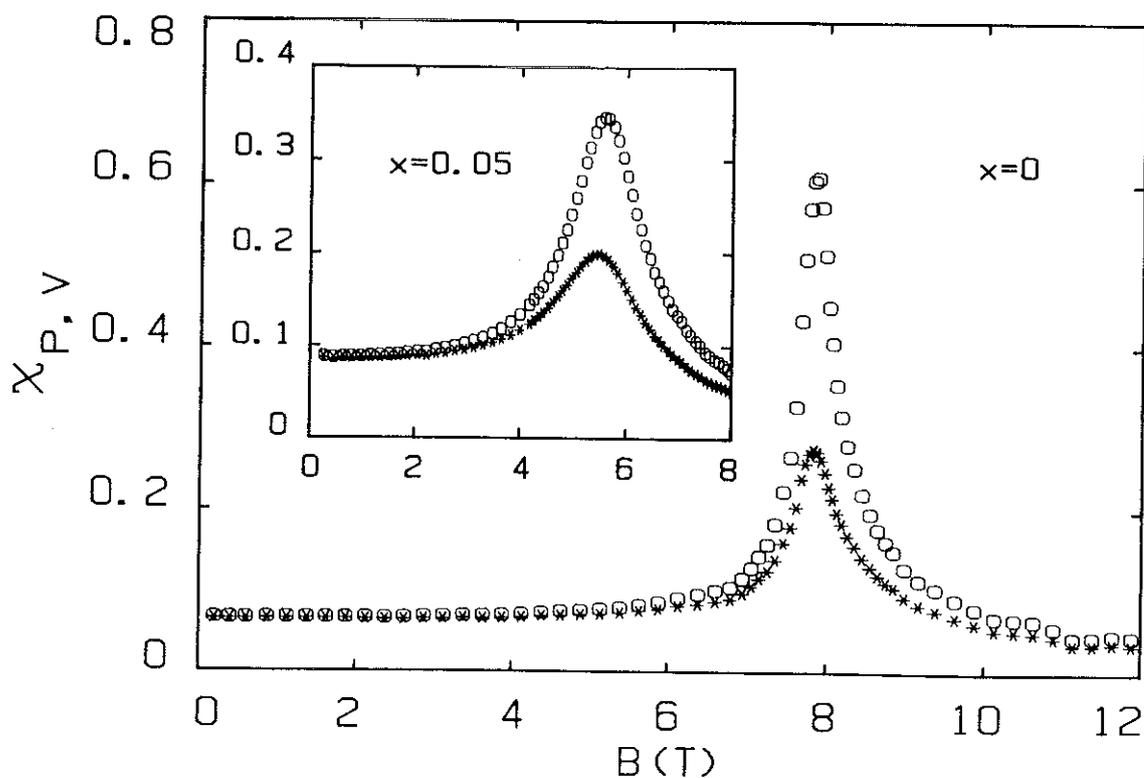


Fig. III-4-5  $\chi_P$  (o) et  $\chi_V$  (\*) (en  $\mu_B/T$ ) de  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  avec  $x = 0$  et  $x = 0.05$  (l'encart).

### b) Régime à basse température

L'idée principale de la série de mesures est de rechercher l'obtention de lois simples caractéristiques d'un régime basse température. Pour cela, nous avons réalisé une série de mesures (en collaboration avec L. Puech) de la magnétostriction du composé  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  à des températures  $100 \text{ mK} < T < 4.2 \text{ K}$ . Dans ces mesures, ayant observé  $\lambda_{//} \sim 3\lambda_{\perp}$  (voir Fig. III-4-2), nous nous sommes restreint à l'étude de la variation,  $\lambda_{//}$ , de longueur suivant l'axe  $c$ . La magnétostriction volumique a été calculée en considérant  $\lambda_v \sim (5/3)\lambda_{//}$ . Pour donner une idée des fortes variations en température, on compare dans la figure III-4-6  $\lambda'_v$  à 4.2 K et à 120 mK. L'amplitude de la dérivée de la magnétostriction au champ  $B^*$  à une température donnée  $\lambda'_v(B^*, T)$  a augmenté d'un facteur 5 entre 1.3 K et 120 mK. Un autre point important est que la valeur de la demi-largeur au voisinage de  $B^*$  a une très forte variation entre 1.3 K et 120 mK.

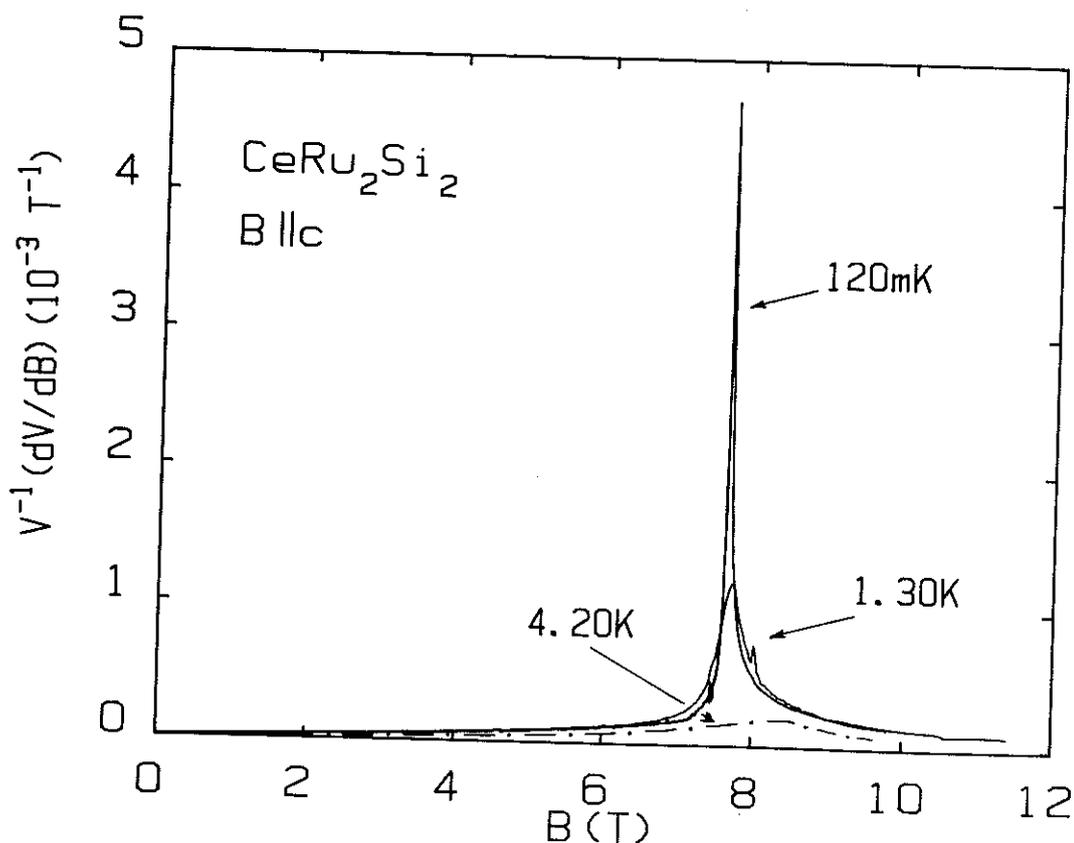


Fig. III-4-6 Dérivée de la magnétostriction volumique,  $\lambda'_v$  ( $\equiv V^{-1}dV/dB$ ), de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  pour  $B//c$  à  $T=4.2 \text{ K}$ ,  $1.3 \text{ K}$  et  $120 \text{ mK}$ .

La figure suivante (Fig. III-4-7, Lacerda *et al.*, 1990b) montre l'effet de la température sur la transition métamagnétique. Dans l'encart, on remarque le rétrécissement de la largeur de la transition quand la température décroît.

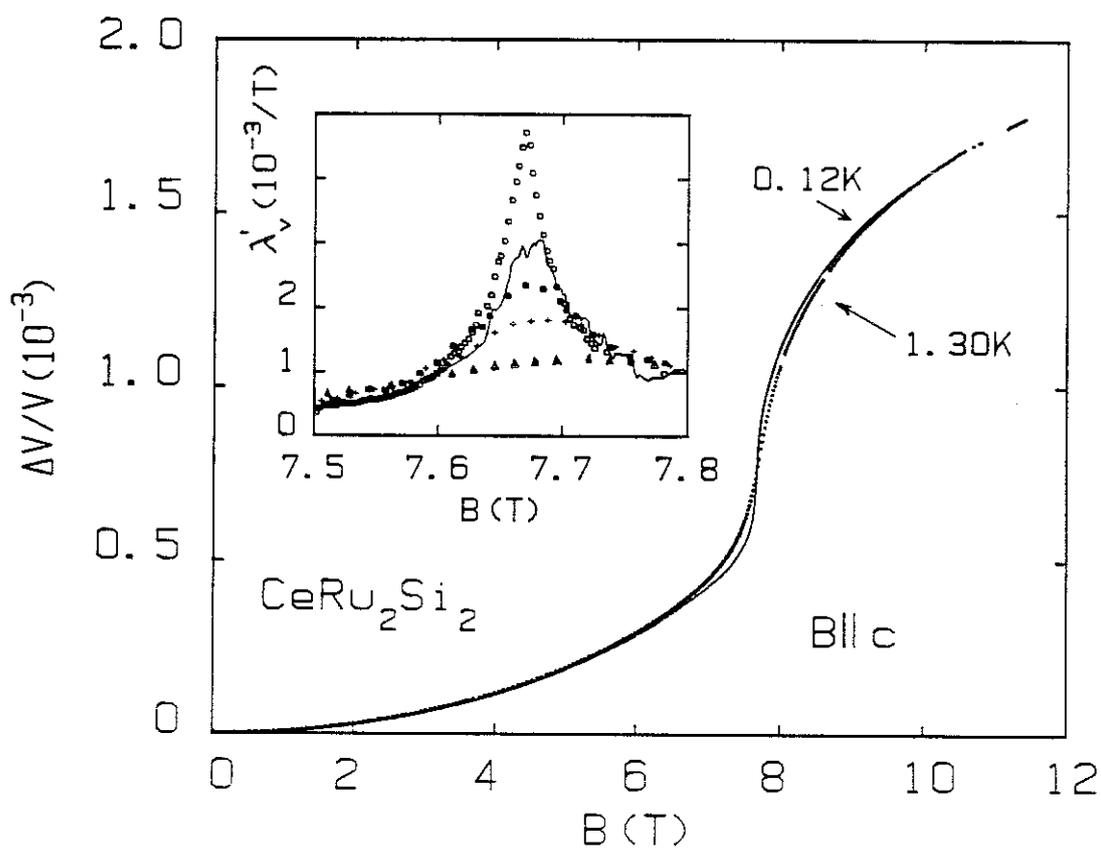


Fig. III-4-7 Magnétostriction,  $\lambda_v$  ( $\equiv \Delta V/V$ ), de  $CeRu_2Si_2$  pour  $B/c$ . Dans l'encart  $\lambda'_v$  ( $\equiv V^{-1}dV/dB$ ) à (▲) 1.3 K, (+) 0.8 K, (●) 0.6 K, (—) 0.34 K et (○) 0.120 K.

Un autre point important est la diminution de  $B^*$  avec la température. Le tableau III montre la variation de  $B^*$  déterminée par la variation thermique du maximum de  $\lambda_v$ .

TABLEAU III

T(K)	$B^*(T)$	$\lambda_v$ (at $B^*$ ) ( $10^{-3}/T$ )
0.120	7.665	4.703
0.340	7.674	3.000
0.600	7.676	2.344
0.800	7.688	1.813
1.300	7.727	1.196
4.200	8.323	0.204

D'après le tableau III, l'équation (III.20) et l'hypothèse d'une loi d'échelle (Eq. (I.4.2)), nous pouvons calculer la variation par rapport à la température de  $\chi_P$  et  $\chi_V$  à  $B^*$ . A basse température,  $\chi_V(B^*)$  est presque constant. La figure III.4.8 montre  $\chi_P(B^*)$  et  $\chi_V(B^*)$  en fonction de la température pour le  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ .

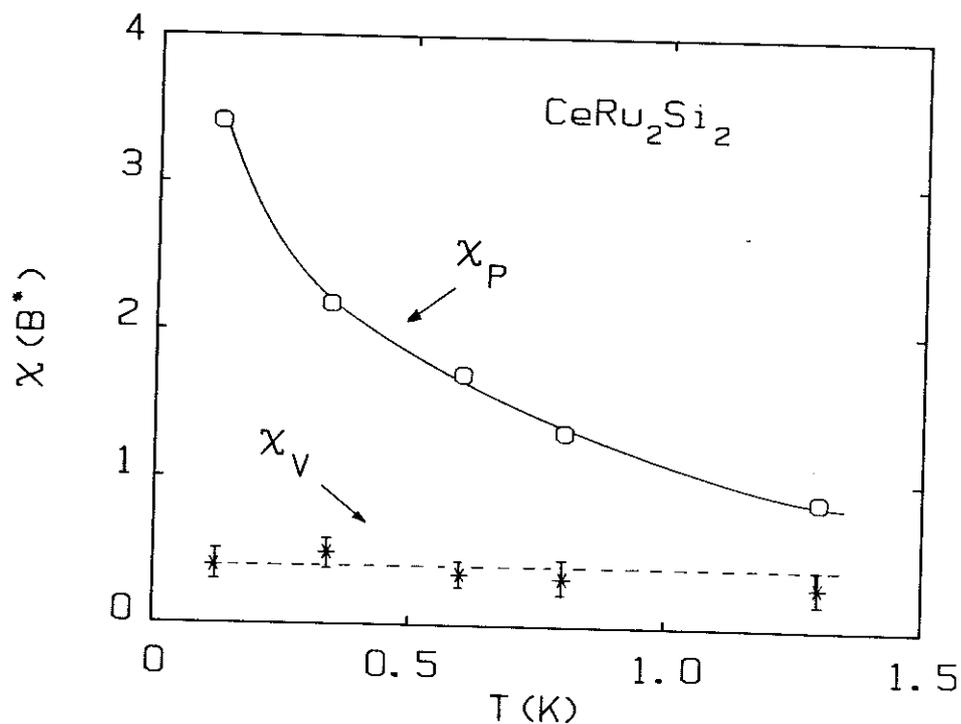


Fig. III-4-8  $\chi_P$  (o) et  $\chi_V$  (\*) en fonction de la température de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  pour  $B//c$  (voir le texte).

La forte variation de volume au voisinage de  $B^*$  peut faire penser qu'à très basses températures une vraie transition de phase de premier ordre peut apparaître. Toutefois, les fortes fluctuations locales peuvent empêcher la formation d'un état fondamental antiferromagnétique. Un point important est le rôle du désordre. Typiquement, la résistivité résiduelle est  $\rho_0 \sim 1.7 \mu\Omega\text{cm}$  à champ nul et augmente presque jusqu'à  $2.8 \mu\Omega\text{cm}$  à  $B^*$ . Pour invoquer avec certitude les fluctuations quantiques comme responsables d'un état fondamental non ordonné, il faut faire une étude détaillée des anomalies en fonction d'un paramètre lié au désordre, par exemple la résistivité résiduelle. Pour donner une idée de l'influence du désordre, la figure III-4-9 montre la dérivée de la magnétostriction volumique pour les composés :  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  (à 1.3 K et 340 mK) et  $\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  (à 1.3 K et 400 mK). L'effet magnéto-volumique au champ métamagnétique  $B^*$  peut être décrit par  $\lambda'_V(340 \text{ mK})/\lambda'_V(1.3 \text{ K}) = 2.5$  (pour  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ ) et  $\lambda'_V(400 \text{ mK})/\lambda'_V(1.3 \text{ K}) = 1.2$  (pour  $\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ ). L'élargissement rapide des effets de volume pour le composé avec 5 % La par rapport au composé pur montre l'importance de l'homogénéité de l'échantillon.

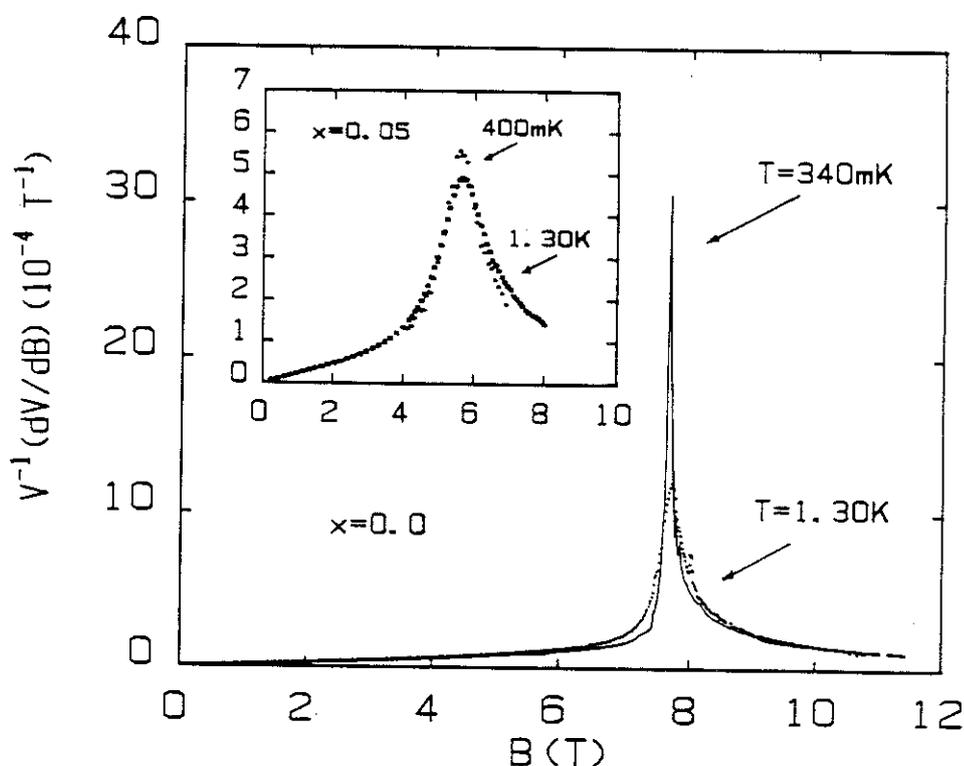
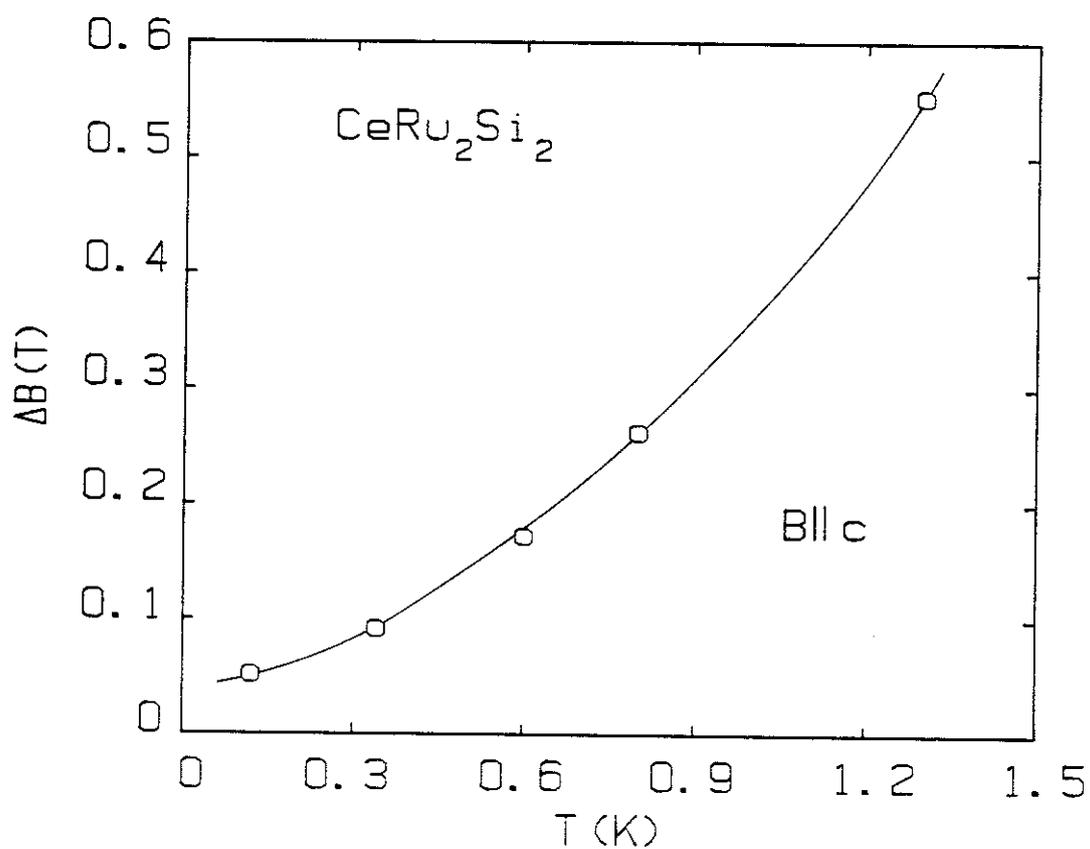


Fig. III-4-9 Coefficient de la dérivée de la magnétostriction volumique,  $\lambda'_V$  ( $\equiv V^{-1}dV/dB$ ), à des températures indiquées de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  et  $\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  (dans l'encart).

La figure III-4-10 montre la largeur de la transition en fonction de la température. La largeur a été estimée sur la dérivée de la magnétostriction (Fig. III-4-7) en prenant la demi-hauteur de  $\lambda'_v$  par rapport à la valeur obtenue à  $B = B^*$ . La largeur de la transition semble rester finie pour  $T \rightarrow 0$ .



**Fig. III-4-10** Largeur de la dérivée de la magnétostriction volumique pour  $B \parallel c$  en prenant la demi-hauteur de  $\lambda'_v$  à  $B^*$  de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ .

### III-5 Augmentation de la masse effective à $B^*$

Les premières mesures de chaleur spécifique du composé  $CeRu_2Si_2$  sous champ ont été faites par R.A. Fisher *et al.* (1988). Ces mesures ont été réalisées sous champ magnétique  $B < 7.5$  tesla, dans la gamme de température  $300 \text{ mK} < T < 15 \text{ K}$ . Le champ appliqué n'était pas suffisant pour étudier l'augmentation de la masse effective à  $B^*$ .

A partir des mesures d'aimantation et de la thermodynamique, nous avons obtenu la variation du terme  $\gamma$  de la chaleur spécifique en fonction du champ magnétique.

#### *a) Mesures à haute température*

Des mesures d'aimantation à différentes températures, 1.3 K, 1.6 K, 2.0 K, 2.4 K, 3.7 K et 4.2 K, à fort champ ( $B \leq 15 \text{ T}$ ), ont été réalisées au SNCI. Dans la figure III-5-1, nous montrons l'aimantation (en  $\mu_B/Ce$ ) à différentes températures pour  $B//c$ . A  $T < 2.4 \text{ K}$ , pour un champ magnétique donné  $B_0$ , la variation d'aimantation pour  $B_0 \leq B^*$ ,  $\Delta M \equiv M(B_0, T_2) - M(B_0, T_1)$  avec  $T_2 > T_1$  peut être écrite sous la forme  $\Delta M = \beta T^2$ . Au voisinage de  $B^*$ , cette relation n'est pas très bien vérifiée.

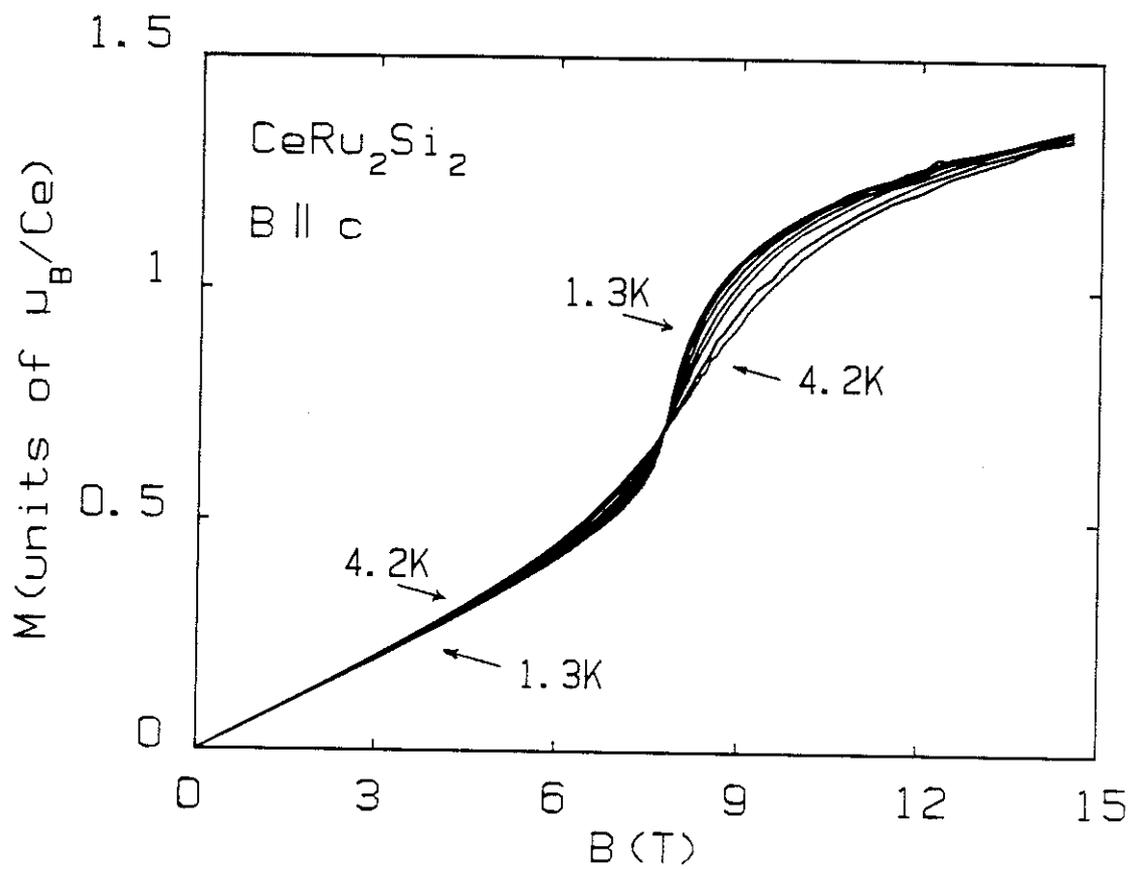


Fig. III-5-1 Aimantation de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  pour  $B \parallel c$  à 1.3 K, 1.6 K, 2.0 K, 2.4 K, 2.8 K, 3.4 K et 4.2 K.

### b) Mesures à basses températures

Des mesures de l'aimantation en température à champ magnétique fixe,  $B_0 (\leq B^*)$  dans la gamme de température  $150 \text{ mK} < T < 1.0 \text{ K}$  ont été réalisées par C. Paulsen pour les composés  $\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  (voir Paulsen *et al.*, 1990a) et  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  (voir Paulsen *et al.*, 1990b et c). Paulsen a utilisé un dispositif à SQUID avec une détection limite de  $\sim 10^{-6} \mu_B/\text{Ce}$ .

La figure III-5-2 représente  $\Delta M$  en fonction de  $T^2$  pour les composés  $\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  et  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ . La loi  $\Delta M = \beta T^2$  est bien respectée pour  $B \leq B^*$ . Le terme  $\beta$  est positif pour  $B < B^*$  et négatif pour  $B > B^*$ .

Avec la relation de Maxwell :

$$\left. \frac{\partial M}{\partial T} \right|_{P,B} = \left. \frac{\partial S}{\partial B} \right|_P, \quad (\text{III.21})$$

l'aimantation  $\Delta M = \beta T^2$  et une entropie linéaire en température  $S = \gamma T$ , nous trouvons :

$$\frac{\partial \gamma}{\partial B} = 2\beta. \quad (\text{III.22})$$

Pour le composé  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , la proportionnalité,  $\Delta M = \beta T^2$ , au voisinage de  $B^*$  ( $B^* \sim 7.7 \text{ T}$ ) est trouvée seulement à très basse température ( $T < 400 \text{ mK}$ ).

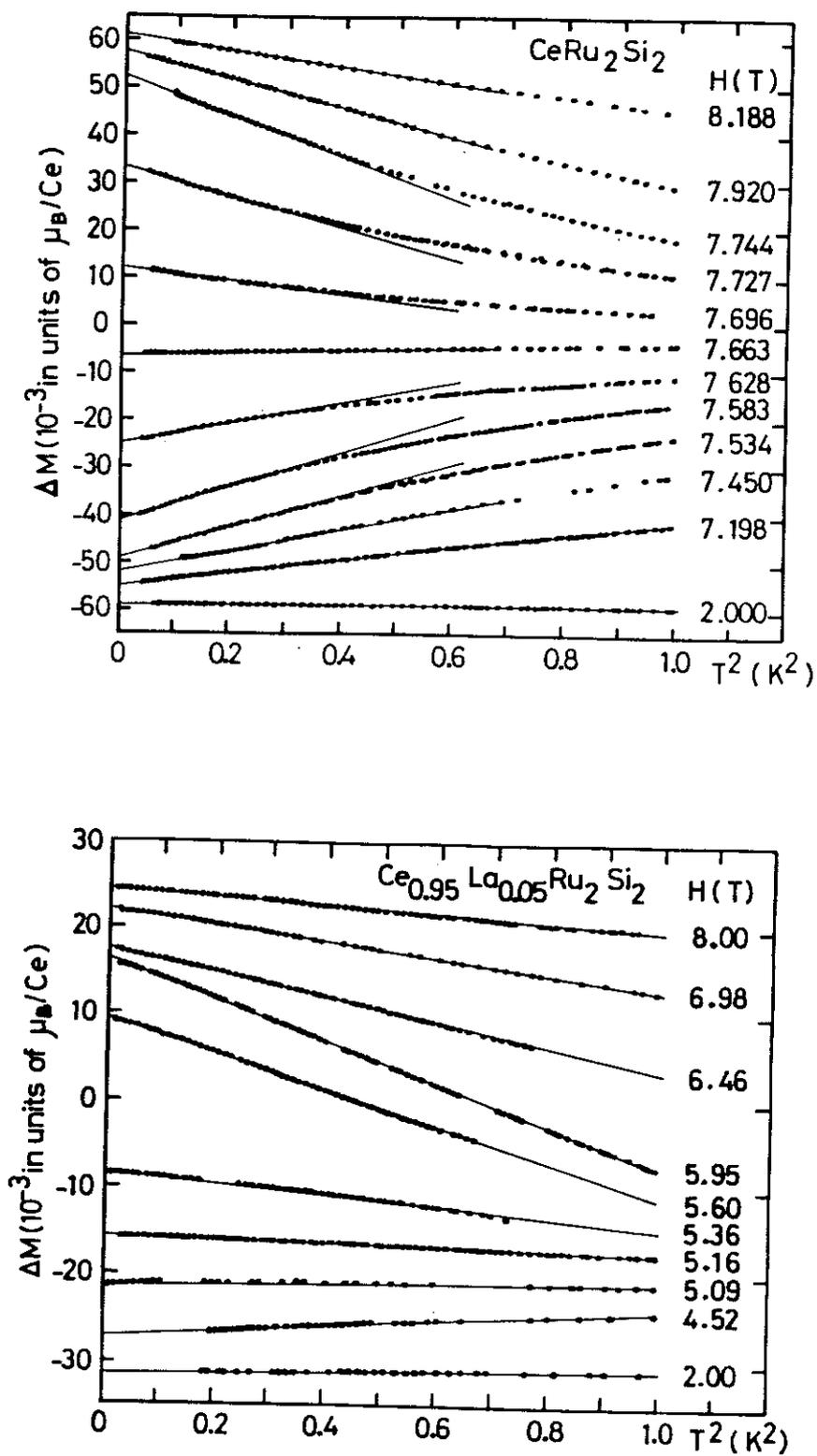
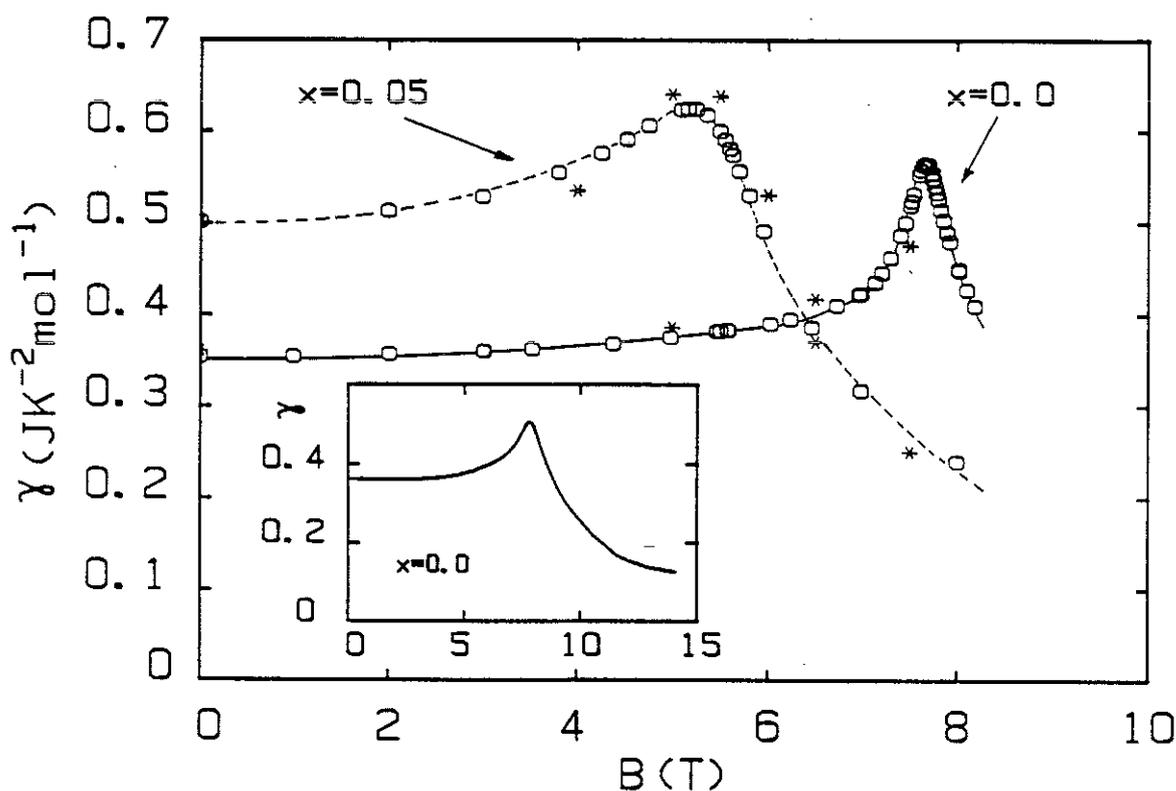


Fig. III-5-2  $\Delta M = M(B) - M(B^*)$  en fonction de  $T^2$  ; (a)  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  et (b)  $\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ . Les courbes ont été déplacées d'une quantité arbitraire suivant l'axe vertical.

Si la valeur de  $\gamma$  à champ nul est connue (R.A. Fisher *et al.*, 1988), nous pouvons calculer  $\gamma$  en fonction de  $B$  d'après l'éq. (III.22). La figure III-5-3 compare la solution de l'éq. (III.22) pour le système  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  ( $x = 0$  et  $x = 0.05$ ) avec les données expérimentales obtenues par Fisher *et al.* (1988). Pour  $x = 0$ , une augmentation de la masse effective  $m_{\text{eff}}(B^*)/m_{\text{eff}}(B = 0) \sim 62\%$  est trouvée. Pour le composé  $\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ , cette augmentation est de l'ordre de  $\sim 30\%$ .



**Fig. III-5-3** (o) Dépendance en champ magnétique du terme  $\gamma$  calculé à partir de l'éq. (III.22) du système  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  ( $x=0$  et  $x=0.05$ ); (\*) points expérimentaux d'après Fisher *et al.* (1988). Dans l'encart,  $\gamma$  en fonction de  $B$  de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  calculé à partir de l'éq. (III.22) avec des mesures d'aimantation à haute température ( $1.3 \text{ K} < T < 4.2 \text{ K}$ , d'après Lacerda *et al.* (1989b)).

Si on impose la proportionnalité  $\Delta M = \beta T^2$  dans une vaste gamme de température pour le composé  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , d'après l'équation (III.22), la détermination de  $\gamma$  est directement liée à la gamme de température où la loi en  $T^2$  est forcée d'être suivie. Dans l'encart de la figure III-5-4, nous montrons la valeur de  $\gamma(B^*)$ , déterminée en fonction de la température moyenne où on a imposé la loi en  $T^2$ . Un point intéressant est la saturation de la valeur de  $\gamma(B^*)$  pour  $T \rightarrow 0$ .

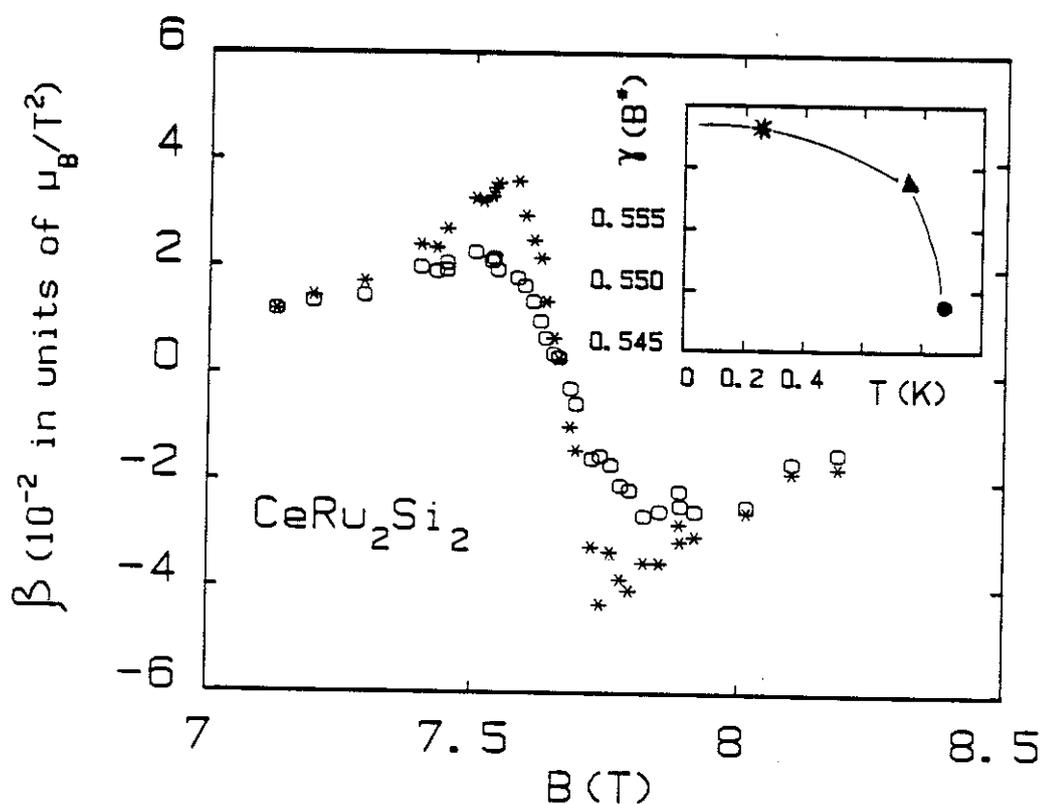
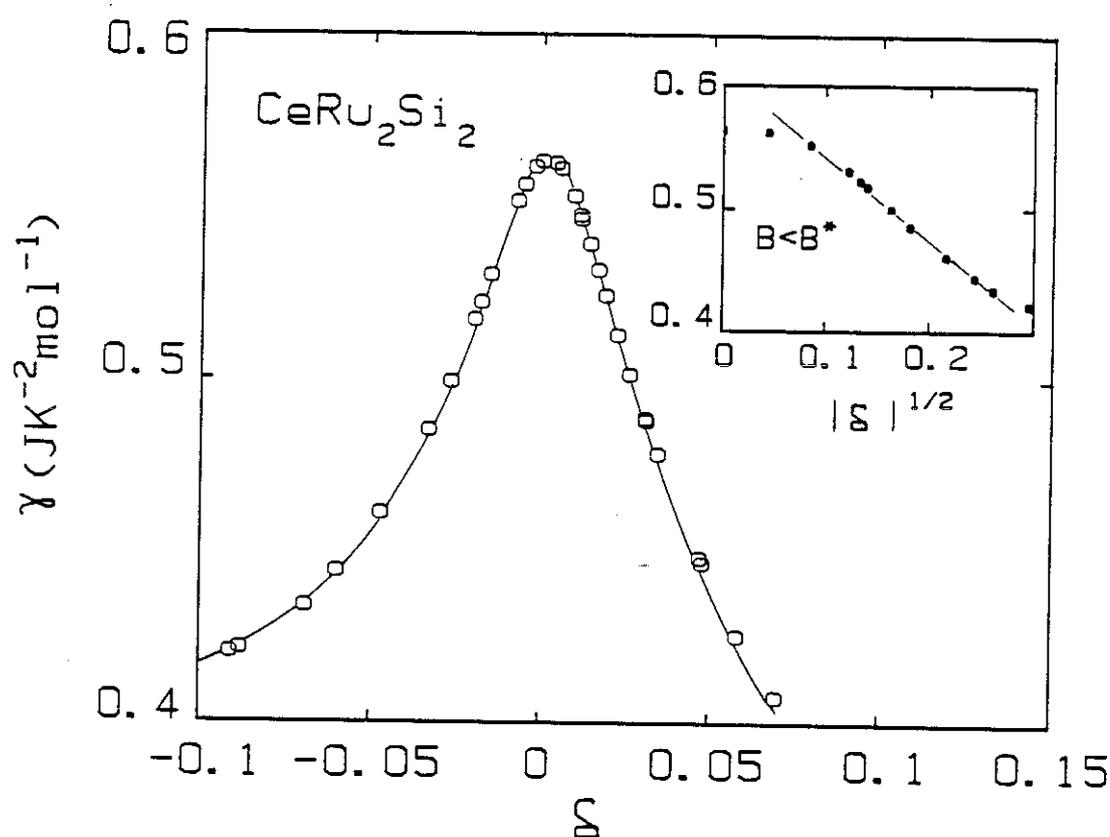


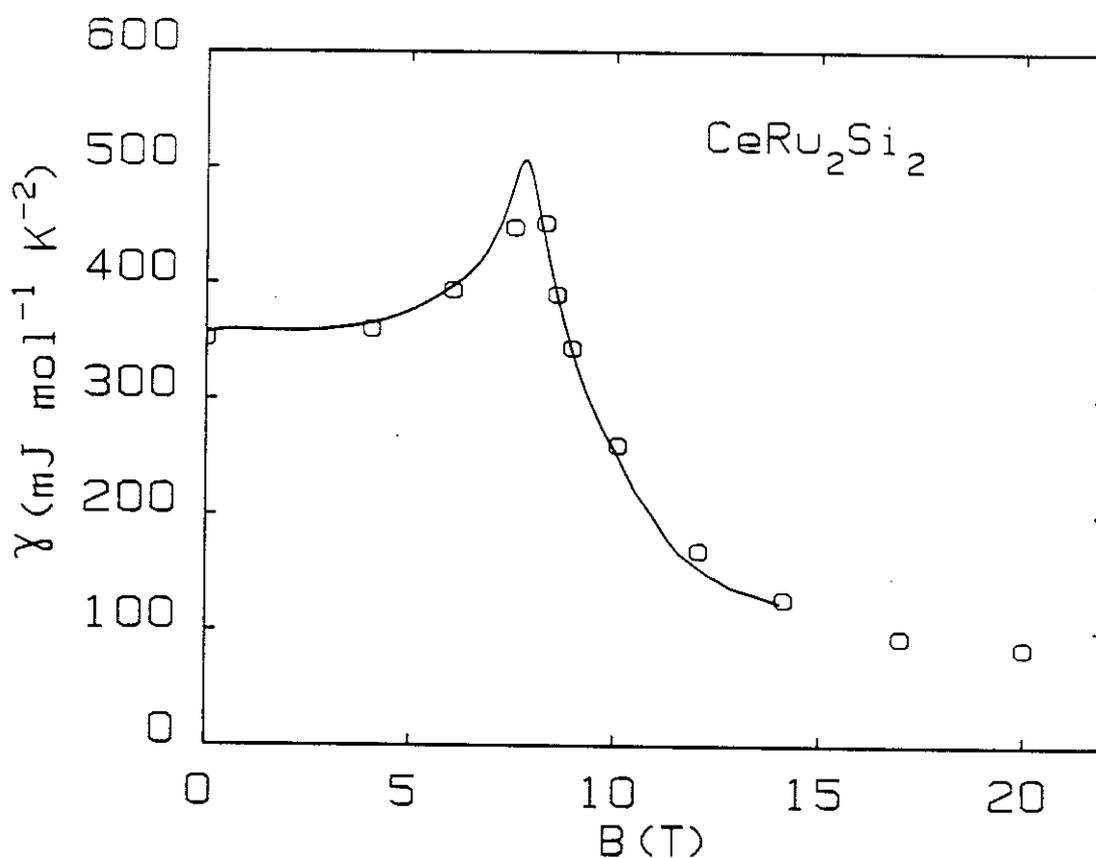
Fig. III-5-4 Dépendance en champ magnétique du terme  $\beta(B)$  (voir le texte); (o) déterminé dans la gamme de température 0.5-1.0 K et (\*) dans la gamme de température 0-0.5 K. Dans l'encart,  $\gamma(B^*)$  est calculé à partir de l'éq. (III.22), (o) et (\*) sont calculés dans la gamme de température déjà mentionnée et (▲) est calculé dans la plage 0.5-0.75 K.

Pour  $T < 500$  mK, la variation de  $\gamma$  est représentée en fonction de la variable réduite  $\delta(\equiv(B-B^*)/B^*)$  (Fig. III-5-5). Dans l'encart, on montre  $\gamma$  en fonction de  $|\delta|^{1/2}$  pour  $B < B^*$ . Au voisinage de  $B^*$ ,  $\gamma$  semble atteindre une valeur "critique" limite de  $\sim 620$  mJ mole $^{-1}$ K $^{-2}$  qui est presque la même valeur que celle obtenue pour le composé dopé  $\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  ( $\sim 640$  mJ mole $^{-1}$  K $^{-2}$ ).



**Fig. III-5-5** Le terme  $\gamma$  est calculé à partir de l'éq. (III.22) en fonction d'une variable réduite,  $\delta(\equiv(B-B^*)/B^*)$  de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ . Dans l'encart, nous montrons  $\gamma$  en fonction de  $|\delta|^{1/2}$  pour  $B < B^*$ .

Récemment, H. van der Meulen *et al.* (1990) ont réalisé des mesures de chaleur spécifique à très fort champ ( $B \leq 20$  T) dans la gamme de température  $1.5 \text{ K} < T < 20 \text{ K}$  sur le même monocristal de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ . Ces mesures révèlent que le terme  $\gamma$  de la chaleur spécifique s'effondre à  $\sim 80 \text{ mJ mole}^{-1} \text{ K}^{-2}$  pour 20 T. Les résultats de van der Meulen sont reproduits Fig. III-5-6. Un point important est de savoir si, dans la région fortement polarisée ( $B \gg B^*$ ), les électrons lourds peuvent encore exister.



**Fig. III-5-6** (o) points expérimentaux du terme  $\gamma$  en fonction de  $B$  (d'après van der Meulen) de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ . Courbe continue calculée à partir de l'éq. (III.22) et mesures d'aimantation haute température ( $T \geq 1.3 \text{ K}$ ).

## III-6 Dilatation thermique sous champ

### III-6-1 Résultats expérimentaux

Les premières mesures de dilatation thermique sous champ sur le composé  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  ont été réalisées dans la gamme de température  $1.5 \text{ K} < T < 20 \text{ K}$  dans un champ magnétique de  $\sim 9$  tesla (Lacerda, 1989b). Ces mesures ont été effectuées avec le champ  $B//c$  et soit suivant l'axe  $c$  ( $\Delta L/L // c$ ), soit dans le plan basal ( $\Delta L/L // a$ ) (voir Fig. III-6-1).

Dans ces premières mesures, nous avons observé qu'en augmentant le champ magnétique vers  $B^*$  (avec  $B < B^*$ ), le coefficient linéaire de la dilatation thermique,  $\alpha (= \alpha_v/T)$ , est positif et augmente considérablement à  $B^*$ . L'anomalie trouvée à  $T_m = 9 \text{ K}$  (extremum de la dilatation thermique) à champ nul est déplacée vers les basses températures lorsque  $B \rightarrow B^*$  ( $B < B^*$ ). A  $B^*$ ,  $\alpha$  change de signe : il devient négatif et en augmentant le champ magnétique ( $B > B^*$ ),  $\alpha$  décroît fortement.  $T_m$  atteint un minimum prononcé à  $B^*$  puis croît avec le champ. Comme le montre la figure III-6-2, la gamme de champ magnétique où  $\alpha$  change de signe est très étroite. Pour le composé  $\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ , nous pouvons suivre la remontée de  $T_m$  dans la région  $B > B^*$  ( $B^* \sim 5.3 \text{ T}$ ).

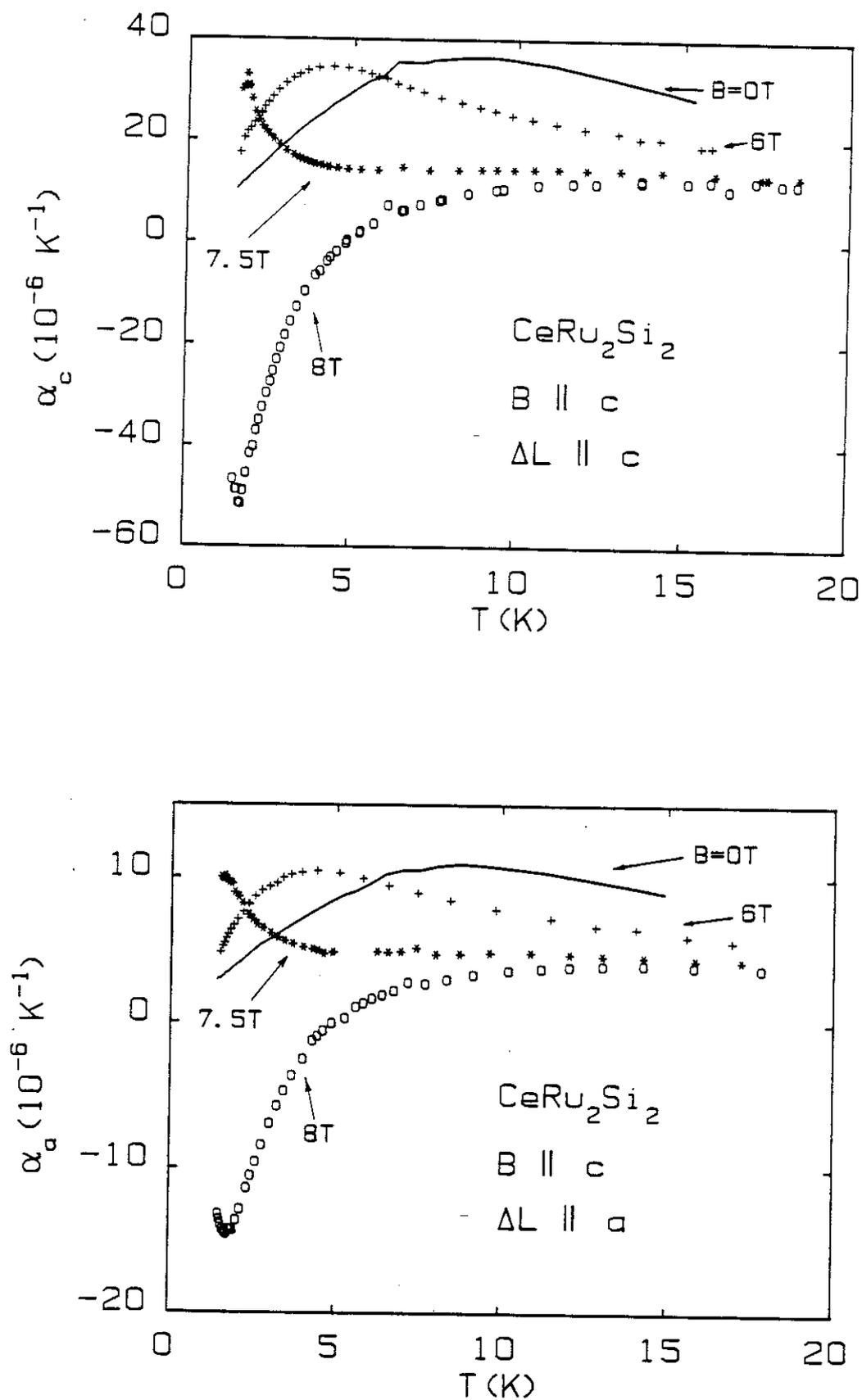


Fig. III-6-1 Coefficient linéaire de la dilatation thermique de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  pour  $B//c$  en champ de 0, 6, 7.5 et 8 T : (a)  $\Delta L//c$  et (b)  $\Delta L//a$ .

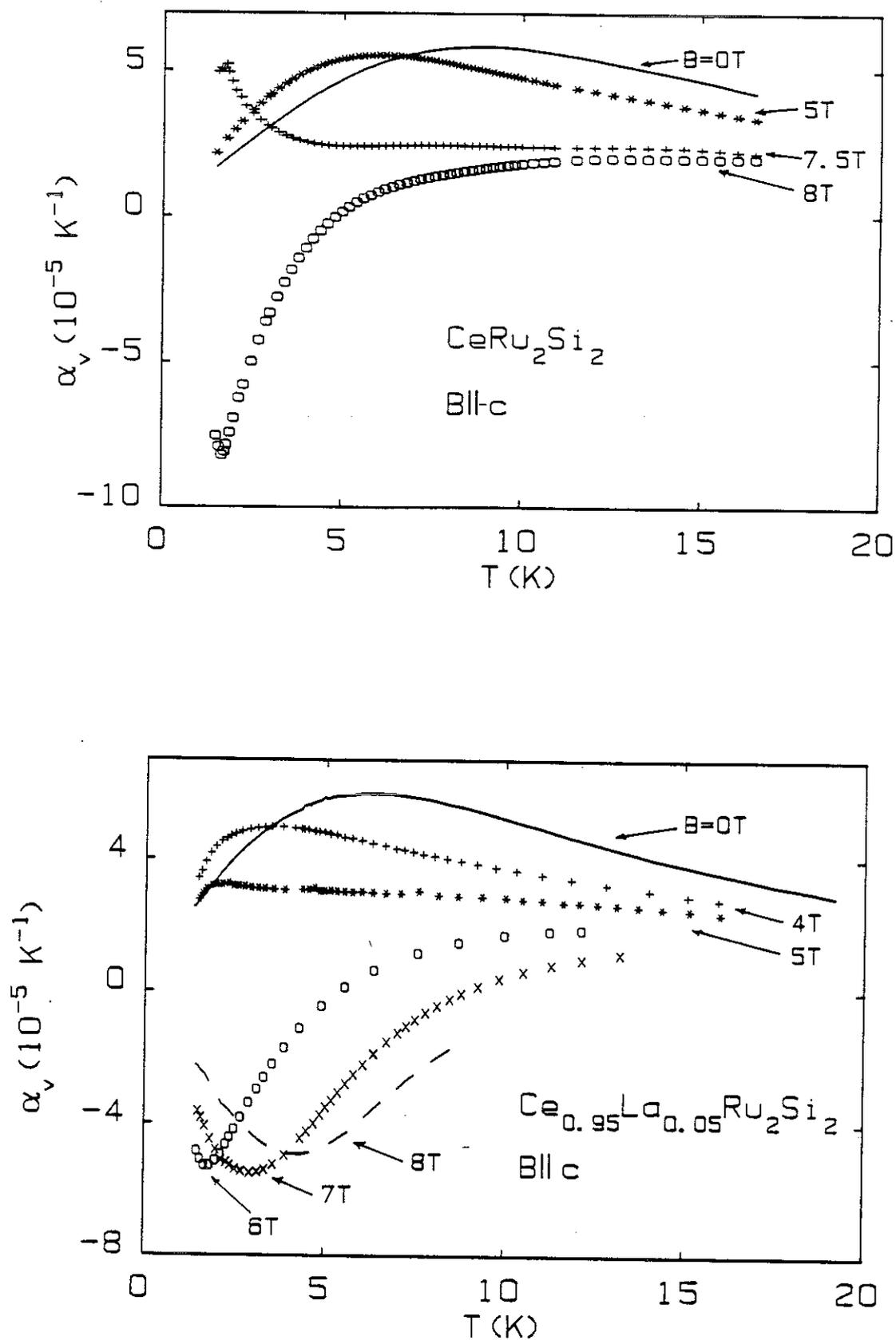


Fig. III-6-2 Coefficient linéaire de la dilatation thermique volumique pour B//c : (a) de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  et (b) de  $\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ .

Vu la forte diminution de  $T_m$  pour  $B \sim B^*$ , des mesures de dilatation thermique sous champ ont été effectuées à basses températures,  $T_{\min} \sim 100$  mK pour  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  et  $T_{\min} \sim 320$  mK pour  $\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ .

Pour  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , le coefficient  $\alpha$  de dilatation thermique varie de  $\alpha_+ = +1.7 \times 10^{-4} \text{ K}^{-2}$  à  $B = 7.614 \text{ T}$  pour  $\alpha_- = -1.8 \times 10^{-4} \text{ K}^{-2}$  à  $B = 7.685 \text{ T}$ . Le champ métamagnétique  $B^*$  se trouve entre ces deux valeurs de champs. Son estimation de  $7.665 \text{ T}$  coïncide avec le maximum trouvé dans la dérivée de la magnétostriction à basses températures. La figure III-6-3 représente  $\alpha_v$  en fonction de la température à champ fixe pour le système  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  avec  $x=0$  et  $0.05$ .

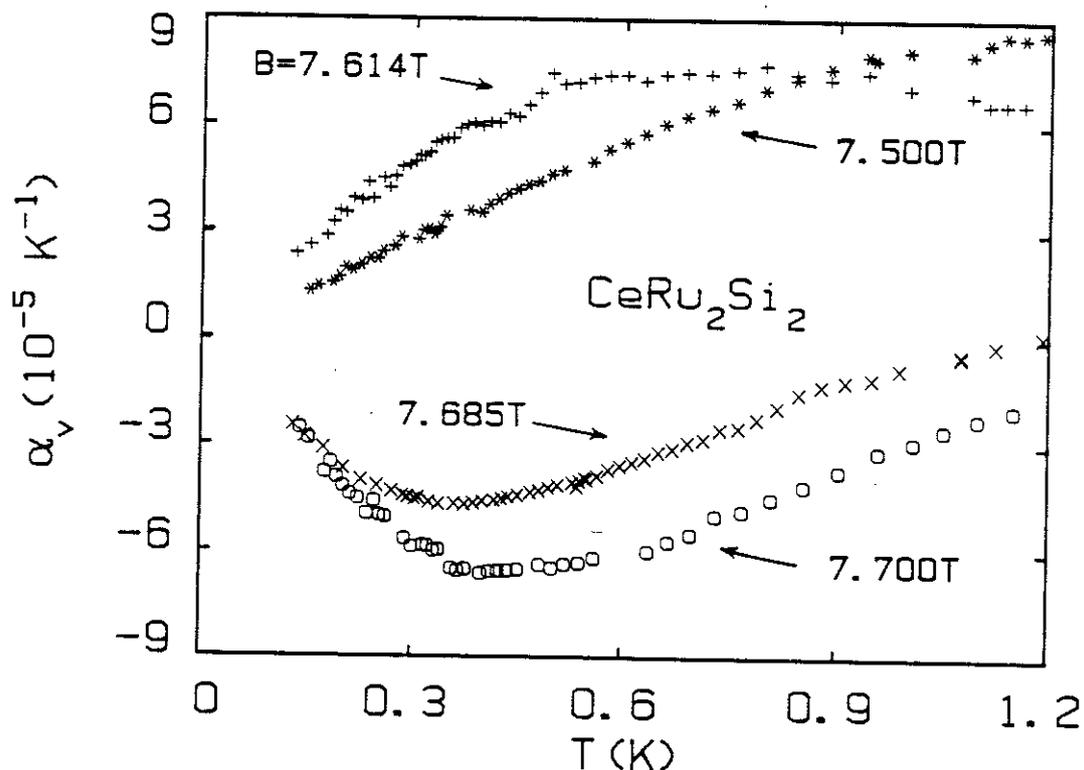


Fig. III-6-3a  $\alpha_v$  pour  $B/c$  au voisinage de  $B^*$  de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ .

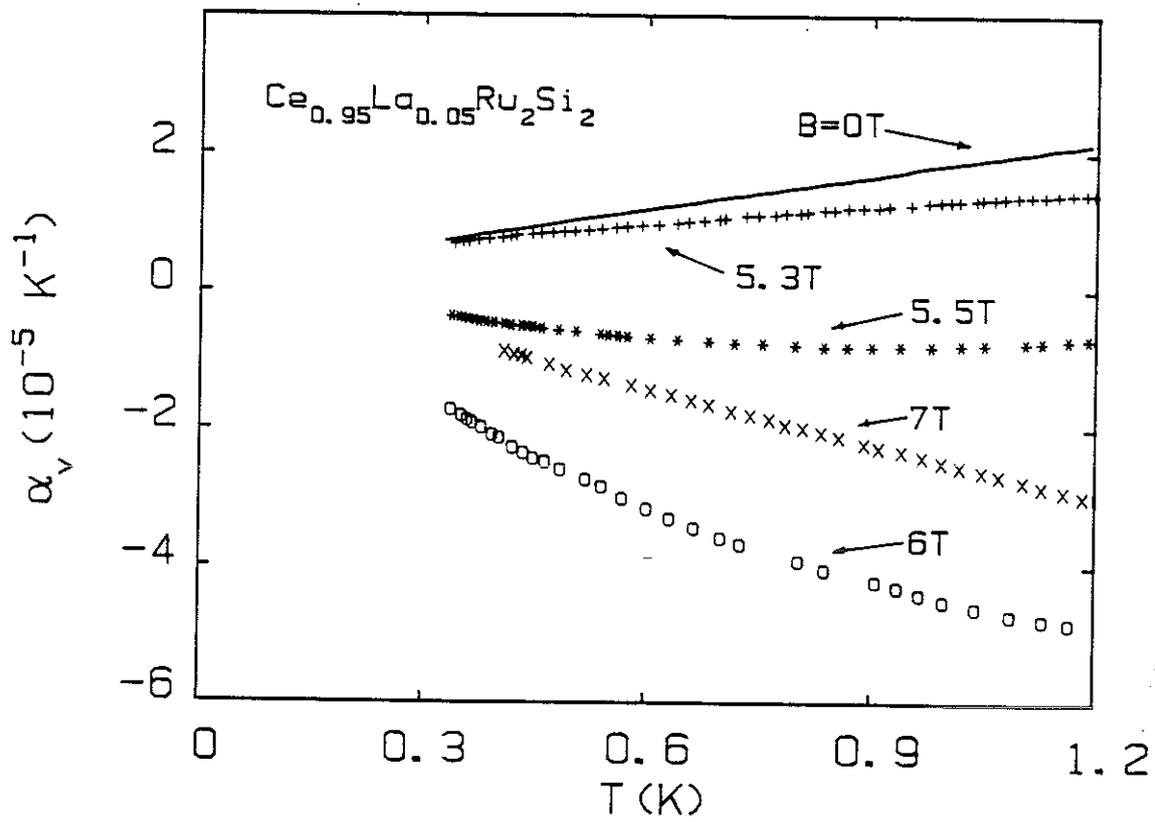


Fig. III-6-3b  $\alpha_v$  pour  $B/c$  au voisinage de  $B^*$  de  $\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ .

La figure III-6-4 décrit le comportement de la température  $T_m$  en fonction du champ magnétique  $B$ . Pour  $B > B^*$ ,  $T_m$  croît. Qualitativement  $T_m$  peut décrire une région de crossover séparant une phase bas champ à fortes corrélations intersites et une phase haut champ décrivant des fermions à fortes fluctuations locales.

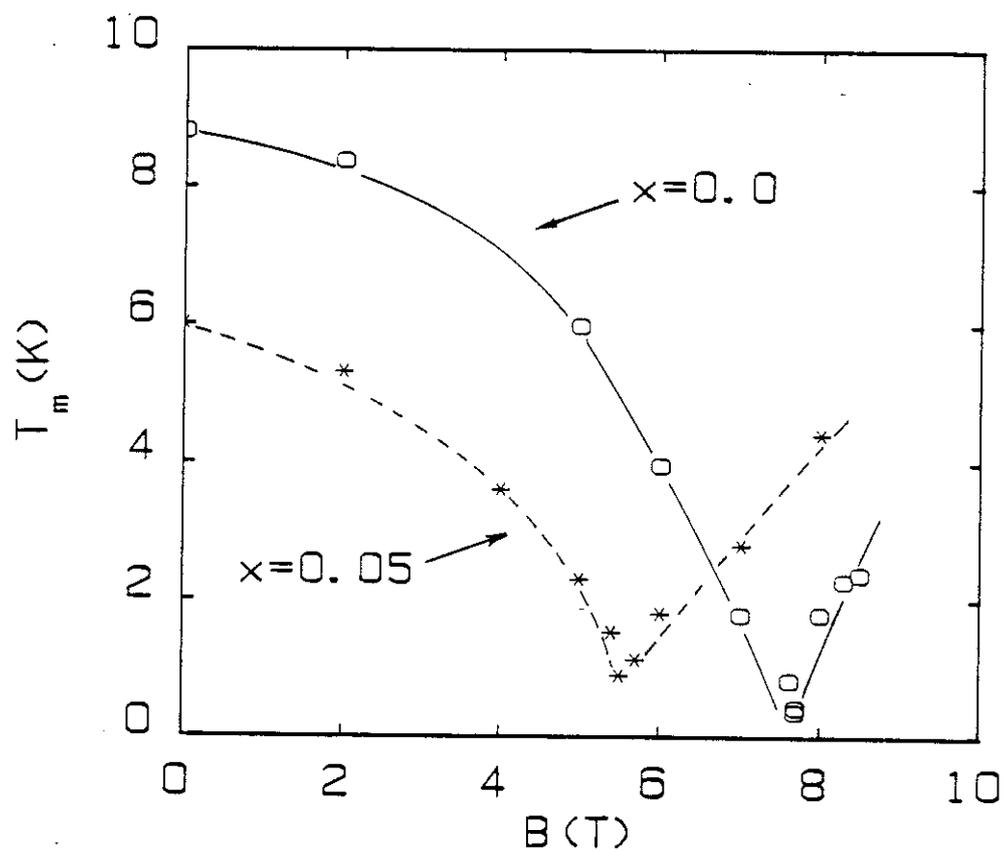


Fig. III-6-4  $T_m$ (K) en fonction du champ magnétique du système  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$  pour  $x=0$  et  $x=0.05$ .

### III-6-2 La loi d'échelle (SA)

L'idée du scaling a été proposée à l'origine pour le composé  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  étant donné que le produit  $\chi_0 \cdot B^*$  est indépendant de la pression (voir section I.3). Dans cette section, nous allons montrer qu'avec les hypothèses de la loi d'échelle nous pouvons relier les mesures de dilatation thermique à la variation du terme  $\gamma$  sous champ.

Nous allons supposer qu'il n'existe qu'une seule échelle d'énergie dépendant de la pression. Supposons que l'entropie s'écrive :

$$S = S\left(\frac{T}{T_S(P)}, \frac{B}{B_S(P)}\right), \quad (\text{III.23})$$

en fonction des variables réduites  $T/T_S(P)$  et  $B/B_S(P)$ . D'après la relation de Maxwell :

$$\left.\frac{\partial V}{\partial T}\right|_P = - \left.\frac{\partial S}{\partial P}\right|_T, \quad (\text{III.24})$$

la dilatation thermique peut s'exprimer par :

$$\frac{\partial V}{\partial T} = T \left( \frac{1}{T_S} \frac{\partial T_S}{\partial P} \right) \frac{\partial S}{\partial T} + B \left( \frac{1}{B_S} \frac{\partial B_S}{\partial P} \right) \frac{\partial S}{\partial B}. \quad (\text{III.25})$$

Les termes entre parenthèses sont reliés aux paramètres de Grüneisen  $\Gamma^{T_S}$  et  $\Gamma^{B_S}$  de  $T_S$  et  $B_S$  par les relations :

$$\begin{aligned} \Omega^{T_S} &\equiv \frac{1}{T_S} \frac{\partial T_S}{\partial P} = \frac{\partial \ln T_S}{\partial \ln V} \left( \frac{1}{V} \frac{\partial V}{\partial P} \right) = \kappa \Gamma^{T_S} \\ \Omega^{B_S} &\equiv \frac{1}{B_S} \frac{\partial B_S}{\partial P} = \frac{\partial \ln B_S}{\partial \ln V} \left( \frac{1}{V} \frac{\partial V}{\partial P} \right) = \kappa \Gamma^{B_S}. \end{aligned} \quad (\text{III.26})$$

Si, à basses températures, un régime de liquide de Fermi est établi :  $S = \gamma T$ , l'éq. (III.25) indique une relation simple entre  $a$  et la variation de  $\gamma$  à travers la relation différentielle.

$$a = \frac{\kappa}{V_0} \left[ \Gamma^{Ts} \gamma + \Gamma^{Bs} B \frac{\partial \gamma}{\partial B} \right]. \quad (\text{III.27})$$

Expérimentalement, comme  $\Gamma^{Ts} \sim \Gamma^{Bs} (\equiv \Gamma)$ ,  $a(B)$  est relié à  $\gamma$  par l'expression :

$$a(B) = \frac{\kappa \Gamma}{V_0} \left[ \gamma + B \frac{\partial \gamma}{\partial B} \right]. \quad (\text{III.28})$$

Un point intéressant est que les différents paramètres  $\kappa$ ,  $\Gamma$  et  $a(B)$  ( $= \alpha_v(B)/T$ ) sont des quantités expérimentales. Pour la dépendance en champ magnétique de  $\kappa(B)$ , le SA proposé par L. Puech (1987) a été utilisé.  $\kappa(B)$  a une augmentation de  $\sim 42\%$  à  $B = B^*$  (à  $T = 1.3$  K). Si on connaît  $a(B)$ , on est capable de déterminer la dépendance en champ magnétique du terme  $\gamma$ . Pour montrer les grandes variations du terme  $a(B)$  en champ magnétique, nous présentons dans la figure III-6-5  $a(B)$  déterminé à partir des mesures à basses températures pour  $B \sim B^*$ . Encore une fois, les effets pour  $B \sim B^*$  sont très faibles pour le composé  $\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  par rapport à ceux observés pour le composé pur  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ .

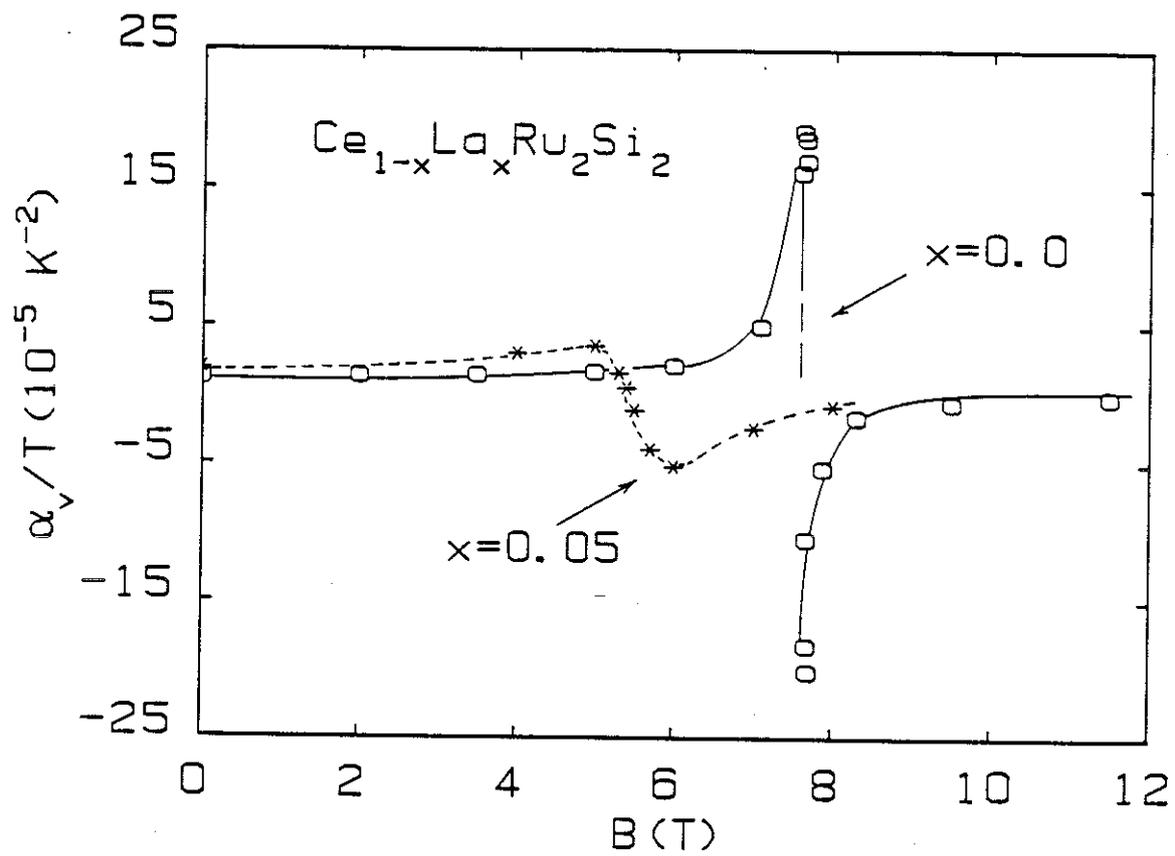


Fig. III-6-5 Le terme linéaire de la dilatation volumique  $a(B)$  ( $\equiv \alpha_v/T$ ) en fonction du champ magnétique du système  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$  pour  $x = 0$  et  $x = 0.05$ .

Nous pouvons tester la validité du SA en comparant la prédiction pour le terme  $a(B)$  donné par l'éq. (III.28) avec les données expérimentales. La figure III.6.6 compare la solution  $a_{SA}$  (eq. (III.28)) avec  $\gamma = \gamma_M$  (où  $\gamma_M$  est la solution thermodynamique (eq. (III.22)) de  $a(B)$  obtenue pour le composé  $CeRu_2Si_2$  (et le composé  $Ce_{0.95}La_{0.05}Ru_2Si_2$  dans l'encart). L'accord entre le SA et l'expérience au voisinage de  $B^*$  n'est pas très bon pour les deux composés. L'hypothèse d'une seule échelle d'énergie doit être revue dans cette gamme de champ magnétique.

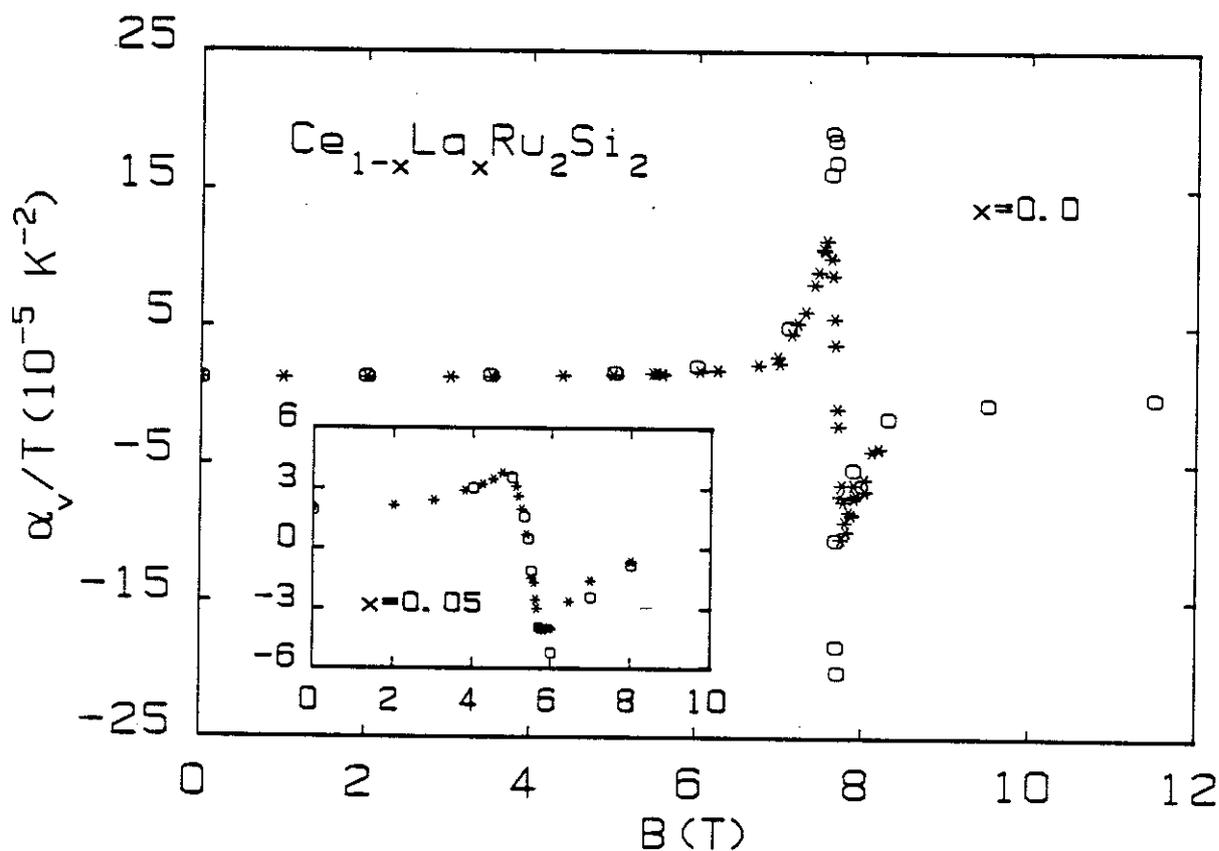


Fig. III-6-6 (o) points expérimentaux du terme linéaire de la dilatation volumique  $a(B)$ , (\*)  $a(B)$  calculé à partir de l'éq. (III.28) de  $CeRu_2Si_2$ . Dans l'encart pour le  $Ce_{0.95}La_{0.05}Ru_2Si_2$

Un point important de cette étude est la remarquable dépendance en température de  $\gamma$  à  $B^*$  (encart Fig. III-5-4) pour  $T < 1$  K. Pour  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , un  $\gamma$  "critique" de l'ordre de  $650 \text{ mJ mole}^{-1}\text{K}^{-2}$  ( $=\gamma_c$ ) peut être déterminé pour  $T < 500 \text{ mK}$  à  $B = B^*$ . Dans les séries  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  (R.A. Fisher *et al.*, 1988),  $\text{CeRu}_{2-x}\text{Rh}_x\text{Si}_2$  (B. Lloret *et al.*, 1987) ou  $\text{CeRu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$  (J.S. Kim *et al.*, 1990), les diverses valeurs de  $\gamma$  trouvées peuvent indiquer que  $\gamma_c$  est la valeur critique à laquelle l'ordre à longue portée s'établit.

Dans le cas de l'autre FL qui présente une transition métamagnétique,  $\text{UPt}_3$  montre une augmentation de sa masse effective à  $B = 20 \text{ T}$  de l'ordre de 35 % (T. Müller *et al.*, 1988). Malheureusement, il n'a pas encore été effectué de mesures à très basses températures et à très fort champ dans  $\text{UPt}_3$  pour comparer avec la transition métamagnétique de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ .

Comme on a pu l'observer, la proximité d'un état ordonné pour le composé  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  et les grands effets de volume doivent être connectés. Dans une première approximation, F.J. Ohkawa (1989) a utilisé une théorie de champ moléculaire avec des interactions ferromagnétiques pour étudier les effets de volume dans  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ . Pour reproduire les augmentations observées dans  $\lambda_V$  et l'aimantation, un paramètre de Grüneisen ( $\Gamma_{\text{FL}}$ ) de l'ordre de celui observé expérimentalement a été considéré. Malheureusement, dans ce modèle, le produit  $\chi_0(P) \cdot B^* \sim \text{constante}$  n'est pas obtenu et  $\gamma(B^*)$  a une augmentation de seulement  $\sim 3 \%$  par rapport à  $\gamma(B=0)$ .

Récemment, pour tenir compte des fluctuations locales (observées par les expériences aux neutrons) et du caractère itinérant des quasi particules, K. Miyake et Y. Kuramoto (1990) ont proposé un modèle basé sur les interactions RKKY entre les moments localisés. Dans ce modèle, le produit  $\chi_0(P) \cdot B^* = \text{constante}$  est reproduit pour le composé  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ .

Un modèle pour l'aimantation des composés à fermions lourds a été récemment proposé par K. Ueda *et al.* (1990). Pour le composé  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , l'application de ce modèle reproduit assez bien l'anisotropie dans l'aimantation (pour  $B //$  ou  $\perp$  à l'axe  $c$ ), mais en aucun cas le feedback entre le volume et les instabilités magnétiques n'a encore été incorporé.



# CHAPITRE IV

*Dans ce chapitre, nous décrivons quelques propriétés magnéto-volumiques d'un autre composé à fermions lourds non ordonné, CeCu<sub>6</sub>.*



## **IV - LES EFFETS MAGNETOVOLUMIQUES DANS CeCu<sub>6</sub>**

**IV-1 Le composé CeCu<sub>6</sub>**

**IV-2 Dilatation thermique à champ nul**

**IV-3 Paramètres de Grüneisen**

**IV-4 Effet du champ magnétique**

***IV-4-1 Magnétostriction à basses températures***

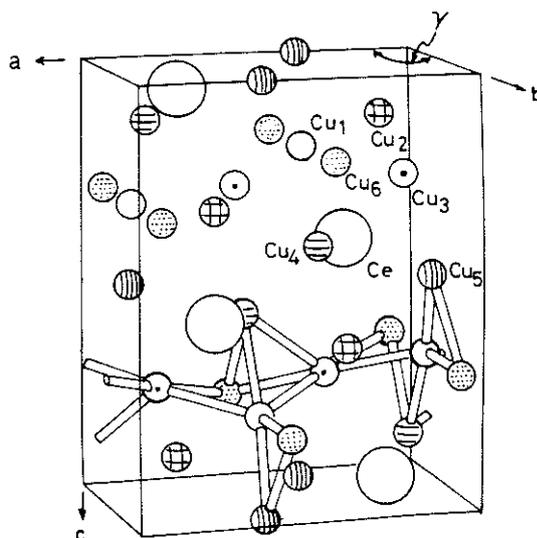
***IV-4-2 Dilatation thermique sous champ***



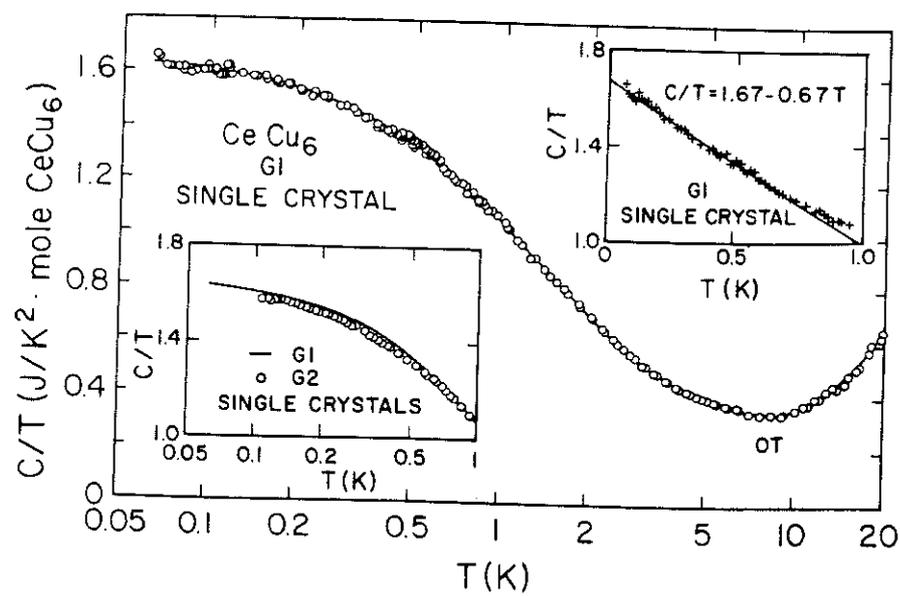
## IV - LES EFFETS MAGNETOVOLUMIQUES DANS $\text{CeCu}_6$

### IV-1 Le composé $\text{CeCu}_6$

Le composé intermétallique  $\text{CeCu}_6$  de structure cristalline orthorhombique (Fig. IV-1) est un des fermions lourds les plus étudiés. Ce composé peut être caractérisé par de très grands termes  $\gamma \sim 1.6 \text{ JK}^{-2} \text{ mole}^{-1}$  (voir G.R. Stewart *et al.*, (1984), T. Fujita *et al.*, (1985), H.R. Ott *et al.*, (1985) et A. Amato *et al.* (1987)). Ce terme  $\gamma$  est environ 200 fois plus grand que celui du composé  $\text{LaCu}_6$ . Comme pour les deux composés  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  ( $x = 0$  et  $x = 0.05$ ), aucun ordre supraconducteur n'a été observé dans des mesures au-dessus de  $\sim 18 \text{ mK}$  (A. Sumiyama *et al.*, (1985)). Contrairement au composé  $\text{CeAl}_3$  considéré souvent comme le fermion lourd typique, le  $\text{CeCu}_6$  a l'avantage de s'obtenir sous forme de grands monocristaux (voir par exemple Y. Onuki *et al.*, (1984)). La Fig. IV-1-1 reproduit la courbe de chaleur spécifique à basses températures (A. Amato *et al.*, (1987)) du monocristal que nous avons étudié. L'échantillon G2 a été recuit pendant 10 jours à  $680^\circ\text{C}$ . L'échantillon G1 n'a pas été recuit. Pour les mesures que nous allons décrire, nous nous limiterons à l'étude de l'échantillon non recuit.



**Fig. IV-1** Structure cristalline de  $\text{CeCu}_6$ . L'atome de Ce est entouré de 19 atomes de cuivre (d'après Onuki *et al.* 1985 et Cromer *et al.* 1960).



**Fig. IV-1-1**  $C/T$  en fonction de  $T$  à champ nul de  $\text{CeCu}_6$ . L'encart ci-dessous pour : (o) après et (-) avant le recuit. L'encart ci-dessus  $C/T$  en fonction de  $T$  à basse température. (D'après A. Amato *et al.*, (1987)).

Par des mesures de chaleur spécifique sur une large gamme de température ( $150 \text{ mK} < T < 70 \text{ K}$ ), T. Fujita *et al.*, (1985) ont détecté deux anomalies : une à  $\sim 2.6 \text{ K}$  et une autre à  $\sim 27 \text{ K}$ . L'anomalie de basse température a été attribuée à l'effet Kondo du doublet de l'état fondamental ( $T_K \sim 4 \text{ K}$ ), issue de la symétrie orthorhombique du champ cristallin qui décompose le niveau  $J = 5/2$  en trois doublets. D'après les modèles théoriques (voir par exemple Hanzawa *et al.*, (1985)), la température de Kondo effective de haute température s'écrit :

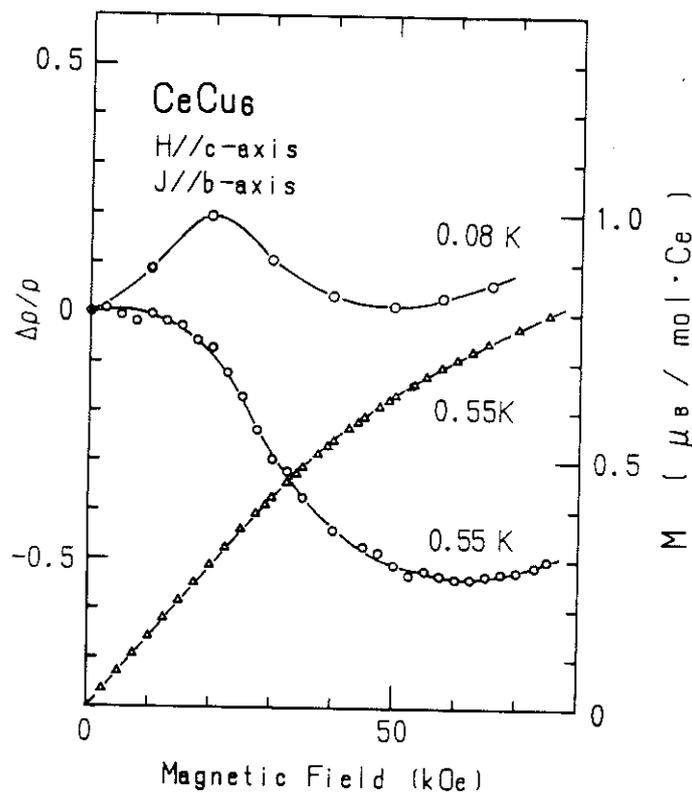
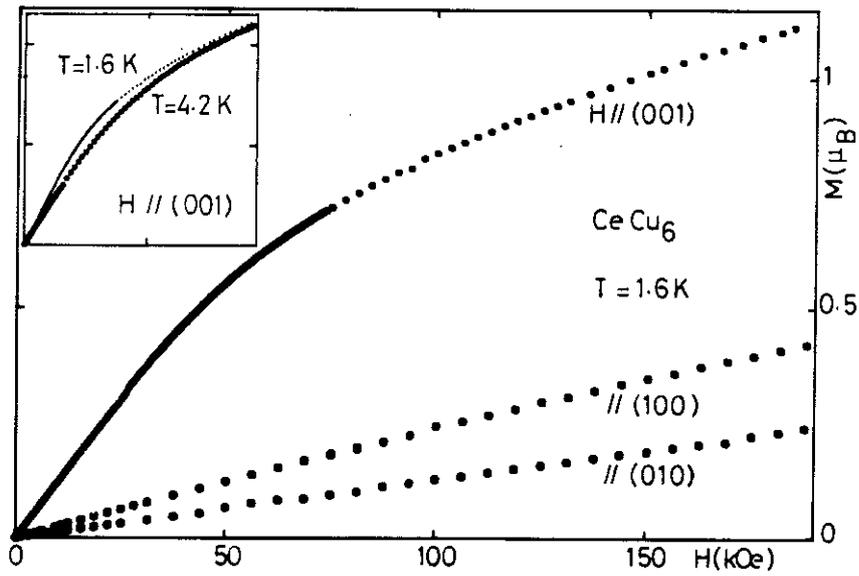
$$T_K^h = (T_K \Delta_1 \Delta_2)^{1/3} \sim 30 \text{ K}$$

Les splitting de champ cristallin déterminé à partir des mesures de diffusion inélastique neutronique par U. Walter *et al.*, (1986) est estimé à 0-64-128 K.

L'aimantation selon l'axe  $c$  de la structure orthorhombique (axe de facile aimantation) présente, au contraire du composé  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  (Haen *et al.*, (1987)) et  $\text{UPt}_3$  (P.H. Frings et J.J.M. Franse, (1985)), une courbure négative jusqu'aux plus basses températures (Y. Onuki *et al.*, (1988), A. Amato *et al.*, (1987) et S. Schröder (1990)). Suivant les autres directions, l'aimantation  $M$  est linéaire en champ plus faible :  $M_c/M_{a,b} \sim 7$  (A. Amato *et al.*, (1987)). La Fig. IV-1-2 reproduit les courbes d'aimantation à fort champ à  $T = 1.6 \text{ K}$  et  $4.2 \text{ K}$ , pour les trois directions de la structure cristallographique. La Fig. IV-1-2b montre l'aimantation à plus basse température (550 mK) par Y. Onuki *et al.* (1988).

L'addition de Au ou de Ag dans le système  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$  (ou  $\text{CeCu}_{6-y}\text{Ag}_y$ ) induit un ordre antiferromagnétique. Pour une concentration de 20 % de Au le système s'ordonne antiferromagnétiquement avec  $T_N \sim 250 \text{ mK}$  (A. Germann *et al.* 1988).

Comme dans le cas de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , les expériences de diffusion inélastique neutronique (G. Aeppli *et al.*, (1986)) révèlent l'existence de corrélations antiferromagnétiques. Notre but dans ce chapitre est de comparer nos mesures des effets magnétovolumiques des deux composés  $\text{CeCu}_6$  et  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ .



**Fig. IV-1-2** (a) Aimantation de  $\text{CeCu}_6$  pour le champ magnétique appliqué suivant les trois axes cristallographiques à  $T = 1.6 \text{ K}$ . Dans l'encart, l'aimantation selon l'axe de facile aimantation (axe  $c$ ) (d'après Amato *et al.*, (1987))  
 (b) Aimantation ( $\Delta$ ) et magnétorésistance de  $\text{CeCu}_6$  d'après Onuki *et al.* (1988).

## IV-2 Dilatation thermique à champ nul

Le composé  $\text{CeCu}_6$ , qui a une structure orthorhombique à température ambiante, passe par une transition de phase vers une structure monoclinique (H. Asano *et al.*, (1986) et E. Gratz *et al.*, (1987)) à  $\sim 220$  K. La distorsion vers la structure monoclinique est petite ( $\beta = 91.5^\circ$  à 4.2 K, Gratz *et al.*, (1987)). Par la suite, nous conserverons les notations de la structure orthorhombique. La résistivité résiduelle d'un échantillon typique a été mesurée par Amato *et al.*, (1987) avec des valeurs respectives de 15.7, 8.3 et 9.2  $\mu\Omega$  cm pour les axes  $a$ ,  $b$  et  $c$ .

Pour nos mesures de dilatation thermique, l'échantillon a été découpé par électro-érosion suivant les trois axes cristallographiques. Les dimensions finales de l'échantillon sont : 3.8 x 5.0 x 3.8 mm<sup>3</sup>. Le coefficient linéaire de la dilatation thermique,  $\alpha$ , a été mesuré avec la même cellule que celle décrite précédemment.

Le coefficient linéaire de la dilatation  $\alpha_a$ ,  $\alpha_b$  et  $\alpha_c$  est montré Fig. IV-2-1 (A. de Visser *et al.*, (1989)) dans la gamme de température 1.3 K  $< T < 100$  K. La partie basse température est représentée Fig. IV-2-1b. Pour  $T < 15$  K, on a effectué plusieurs expériences. Le coefficient  $\alpha_a$  à basse température révèle un effet d'hystérésis ( $\sim 5 \times 10^{-7} \text{ K}^{-1}$ ) que nous avons attribué à des problèmes de friction entre le plan  $bc$  et les plans parallèles de la cellule. Pour les autres directions,  $\alpha_b$  et  $\alpha_c$ , on n'a pas détecté ces effets.

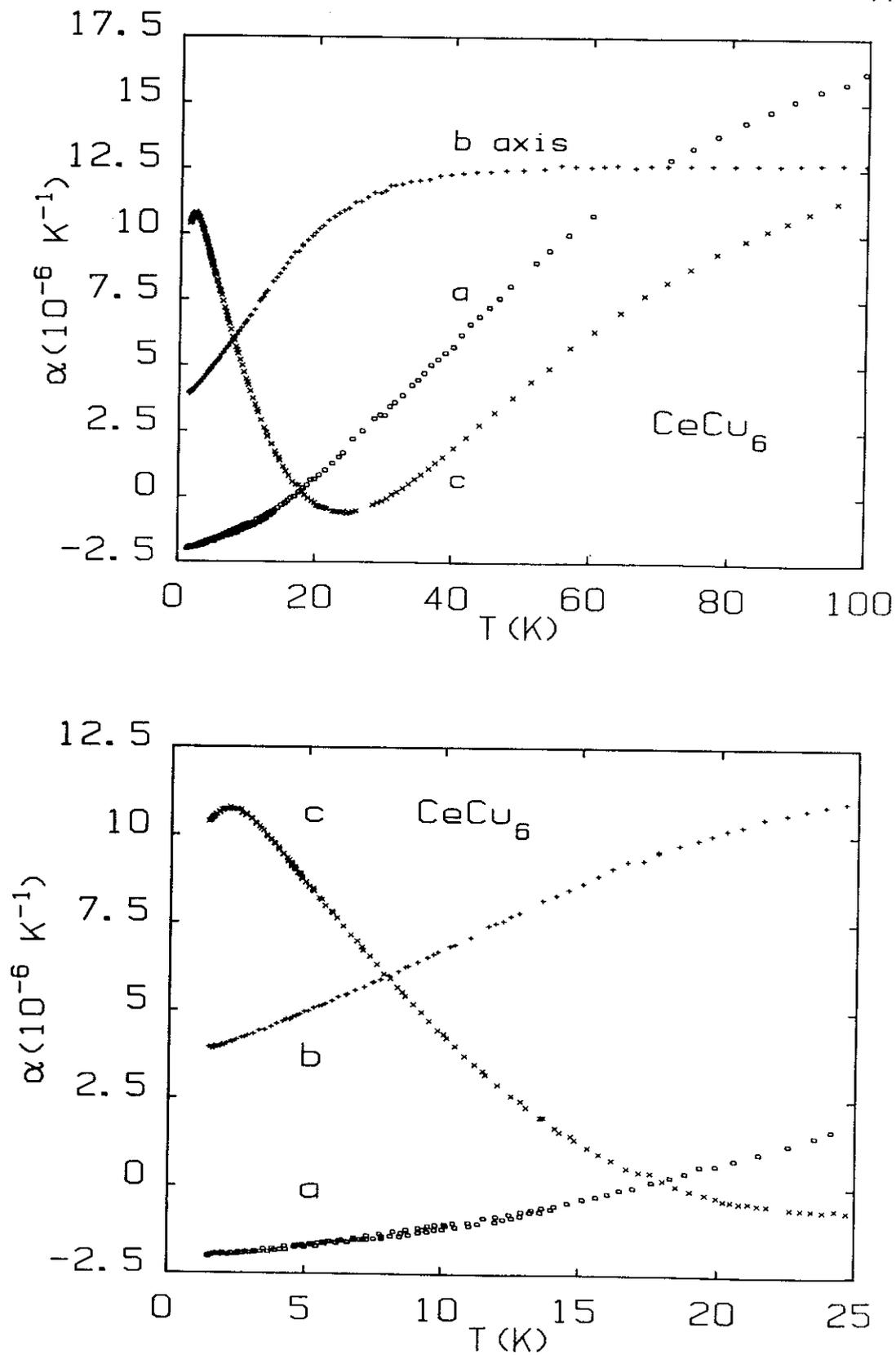


Fig. IV-2-1 Coefficient linéaire de la dilatation thermique de  $\text{CeCu}_6$  (a) pour  $T \leq 100 \text{ K}$  et (b) pour  $T \leq 25 \text{ K}$ .

Comme on peut le voir, la dilatation thermique du composé  $\text{CeCu}_6$  est extrêmement anisotrope. En augmentant la température, les axes  $b$  et  $c$  se dilatent, tandis que l'axe  $a$  montre une contraction. Pour obtenir la contribution électronique,  $\alpha_{el.}$ , de la dilatation thermique, la partie du réseau,  $\alpha_{ph.}$ , a été soustraite à partir des mesures faites sur le composé isostructural  $\text{LaCu}_6$  (G. Oomi *et al.*, (1987)). La Fig. IV-2-2 montre  $\alpha_{el.}$  ; on peut discerner deux contributions : (1) le maximum centré à basse température  $\sim 2.5$  K est attribué à une anomalie Kondo et (2) la contribution à haute température est due aux effets de champ cristallin, centré à  $\sim 60$  K.

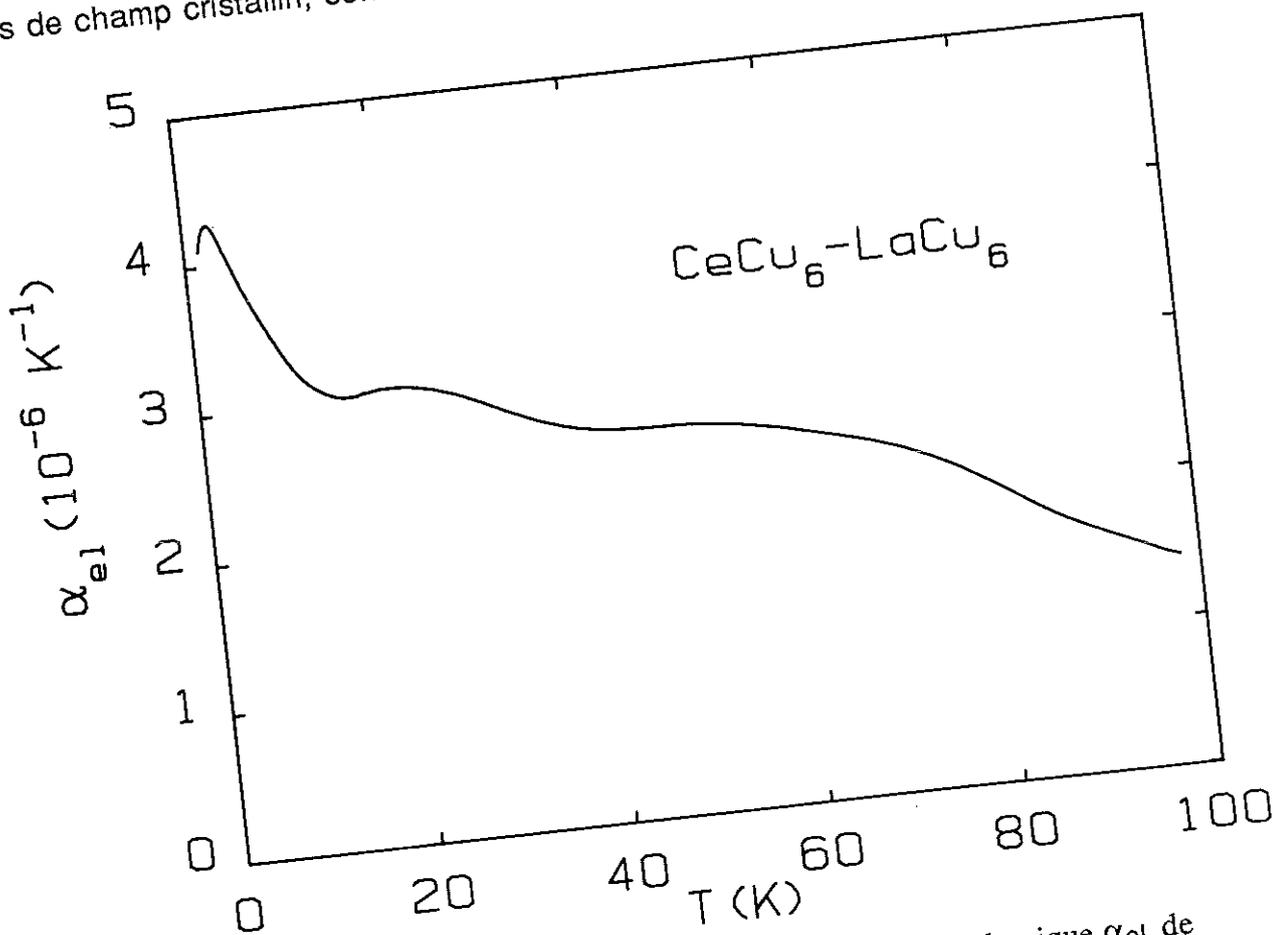
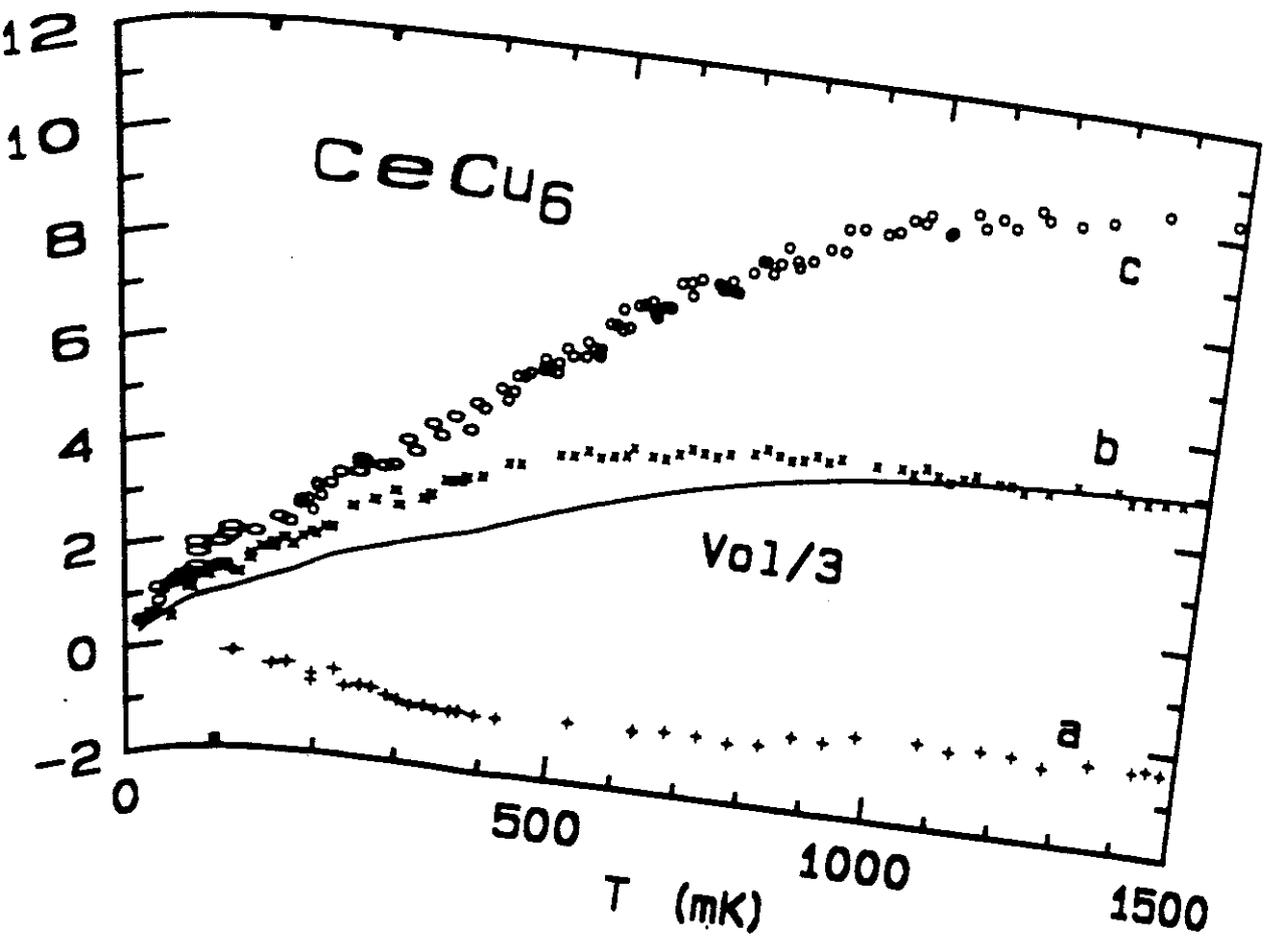


Fig. IV-2-2 Contribution électronique de la dilatation thermique volumique  $\alpha_{el.}$  de  $\text{CeCu}_6$

La Fig. IV-2-3 montre nos mesures à plus basses températures ( $T_{\min} \sim 20$  mK). Des extréma très élargis peuvent être observés à  $\sim 500$  mK pour l'axe  $a$  ( $\alpha_a$ ) et  $\sim 700$  mK pour l'axe  $b$  ( $\alpha_b$ ). Dans ce montage, une différence de l'ordre de 10 % a été observée dans les valeurs absolues de  $\alpha_b$  à  $T = 1.5$  K par rapport à celles trouvées dans la Fig. IV-2-2.

IV-2-2. Cette différence peut être due aux cycles thermiques que l'échantillon a subi entre ces deux expériences.



IV-2-3 Coefficients de la dilatation thermique de CeCu<sub>6</sub> suivant les axes (+) a, (x) b, et (o) c. La ligne continue représente  $\alpha_v/3$

### IV-3 Paramètres de Grüneisen

Pour séparer les différentes contributions, une analyse en terme de paramètres de Grüneisen est présentée. En utilisant les données de chaleur spécifique ( $T < 20$  K, A. Amato *et al.*, (1987) et  $T > 20$  K, T. Fujita *et al.*, (1985)), on définit un paramètre de Grüneisen effectif :  $\Gamma_{\text{eff}}(T) = V_0 \alpha_v / \kappa C_P$  qui va être fonction de la température (voir Fig. IV-3-1).

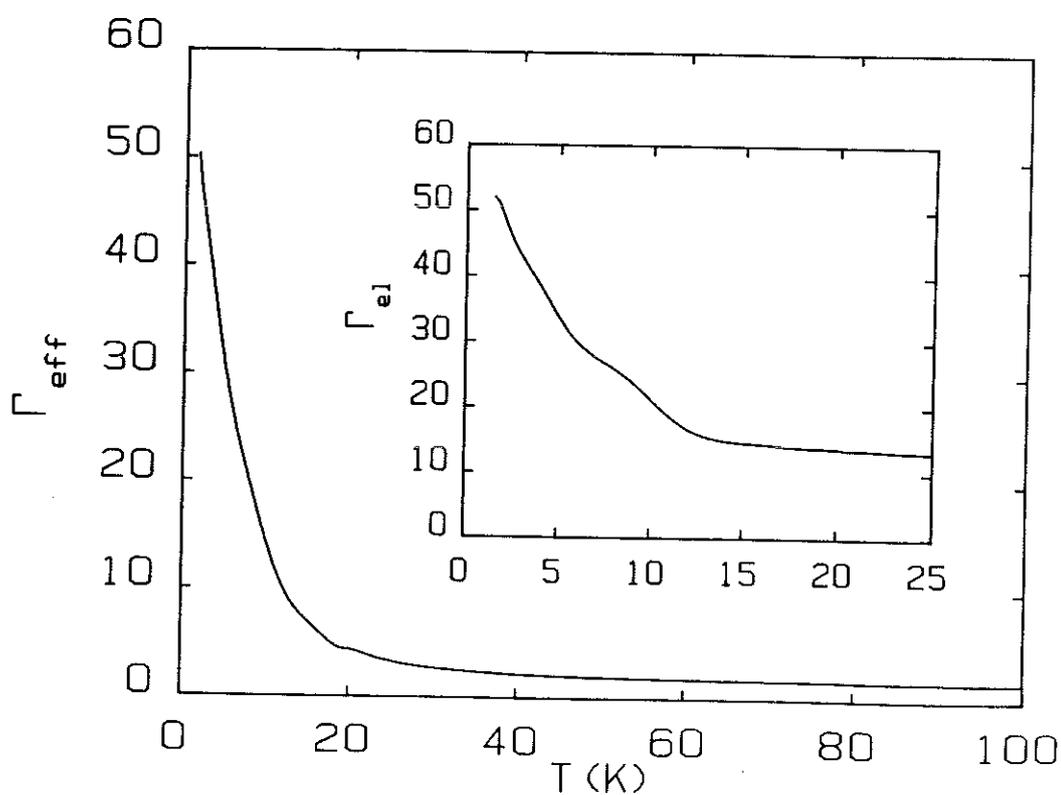


Fig. IV-3-1 Dépendance en température du paramètre effectif de Grüneisen ( $\Gamma_{\text{eff}}$ ) de CeCu6. Dans l'encart  $\Gamma_{\text{el}}(T)$  pour  $T \leq 25$  K.

Ici la dilatation thermique volumique a été calculée par  $\alpha_v = \alpha_a + \alpha_b + \alpha_c$ . La compressibilité isothermique,  $\kappa$ , a été estimée d'après la dépendance sous pression des réflexions nucléaires (020), (104) et (311) mesurés par A. Shibata *et al.*, (1986). La compressibilité est très anisotrope :  $\kappa_a = -a^{-1}(da/dP) = 0.14 \text{ Mbar}^{-1}$ ,  $\kappa_b = 0.66 \text{ Mbar}^{-1}$  et  $\kappa_c = 0.41 \text{ Mbar}^{-1}$ , d'où une compressibilité  $\kappa = \kappa_a + \kappa_b + \kappa_c = 1.21 \text{ Mbar}^{-1}$ . A basse température,  $\Gamma_{\text{eff}}$

présente une forte remontée vers une valeur limite  $> 60$ . A haute température  $\Gamma_{\text{eff}} = 1.7$  ; cette valeur est proche de  $\Gamma_{\text{ph}} = 2$  trouvée pour les métaux normaux.

La dépendance initiale en pression du terme  $\gamma$  de la chaleur spécifique peut être calculée à partir du paramètre de Grüneisen :

$$\frac{d\gamma}{dP} = -\kappa \Gamma_{\text{el}} \gamma \quad (\text{IV-1})$$

Avec les mesures de basses températures ( $T < 1$  K), on trouve  $\Gamma_{\text{el}}$  ( $T \rightarrow 0$ ) 80. Pour  $\gamma = 1.67 \text{ J K}^{-2} \text{ mole}^{-1}$  (Amato *et al.*, (1987)), on prédit  $d\gamma/dP \sim -160 \text{ (mJ K}^{-2} \text{ mole}^{-1})/\text{kbar}$ . Ce résultat est en bon accord avec les données expérimentales de chaleur spécifique sous pression de R.A. Fisher *et al.*, (1987), donnant  $d\gamma/dP = -145 \text{ (mJ K}^{-2} \text{ mole}^{-1})/\text{kbar}$ . La Fig. IV-3-2 montre le coefficient de Grüneisen obtenu à très basses températures. Une remarquable remontée est observée pour  $T < 1.5$  K, même à très basse température ( $T < 300$  mK),  $\Gamma_{\text{eff}}(T)$  montre une très forte augmentation. Celle de  $\Gamma_{\text{eff}}$  ( $T < 300$  K) peut être due à des effets de cellule, qui ne sont pas négligeables dans cette gamme de température, par contre l'existence d'autres échelles d'énergie à très basse température ne peut pas être exclue. D'après les mesures de la constante de Hall par T. Penney *et al.*, (1985) et du pouvoir thermoélectrique par A. Amato *et al.*, (1987), deux échelles d'énergie à basse température ont été proposées.

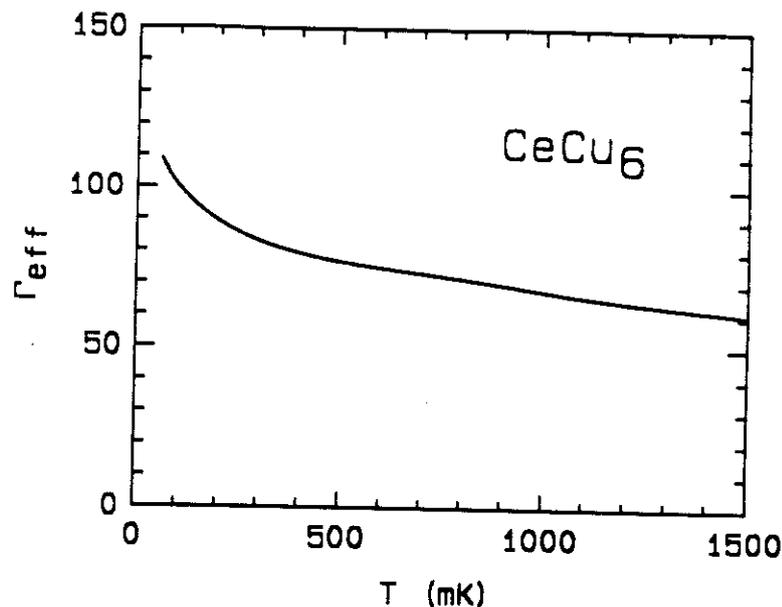


Fig. IV-3-2 Grüneisen effectif ( $\Gamma_{\text{eff}}$ ) de  $\text{CeCu}_6$  à basses températures

On rappelle que l'autre composé à FL qui présente de grandes variations du paramètre de Grüneisen à basses température est  $\text{CeAl}_3$  (J. Flouquet *et al.*, 1982). Dans ce cas,  $\Gamma_{\text{eff}}$  est de l'ordre de 25 à 1 K et décroît à - 200 à 100 mK.

Dans le modèle de Kondo à une impureté,  $\Gamma_{\text{eff}}$  peut être utilisé pour déterminer la dépendance en pression de  $T_K$  ;  $\gamma = 0.68 R/T_K$  (voir par exemple V.T. Rajan *et al.*, (1983)), où  $R$  est la constante universelle du gaz. Dans ce cas :

$$\Gamma_{\text{el}} = - \frac{\partial \ln T_K}{\partial \ln V} \quad (\text{IV-2})$$

avec  $T_K = 3.9$  K, on trouve :

$$\frac{d T_K}{d P} = \kappa \Gamma_{\text{el}} T_K = 0.38 \text{ K/kbar} \quad (\text{IV-3})$$

Ce résultat est aussi en bon accord avec les mesures de résistivité sous pression (voir par exemple J.D. Thompson et Z. Fisk (1985b) et A. Shibata *et al.*, (1986)).

#### IV-4 Effet du champ magnétique

La principale motivation que nous ayons eu pour étudier les effets du champ magnétique a été donné par les résultats d'expériences d'effet Haas-van Alphen par P.H.P. Reinders *et al.*, (1986) et par des mesures de constantes élastiques sous champ à basses températures par T. Goto *et al.*, (1988). La Fig. IV-4-1 reproduit les résultats de la dépendance en champ magnétique des modes  $C_{11}$  et  $C_{33}$ , mesurés pour  $T \geq 30$  mK. Le mode  $C_{11}$  à  $\sim 500$  mK augmente monotoniquement jusqu'au champ magnétique maximal de 8.5 tesla. A basses températures  $\sim 27$  mK, aucune variation n'est observée à bas champ ( $B < 2$  T). Le mode  $C_{33}$  présente de fortes variations en champ à très basses températures :  $30 \text{ mK} < T < 260 \text{ mK}$ . Au voisinage de  $B = 2$  T, un fort durcissement apparaît.

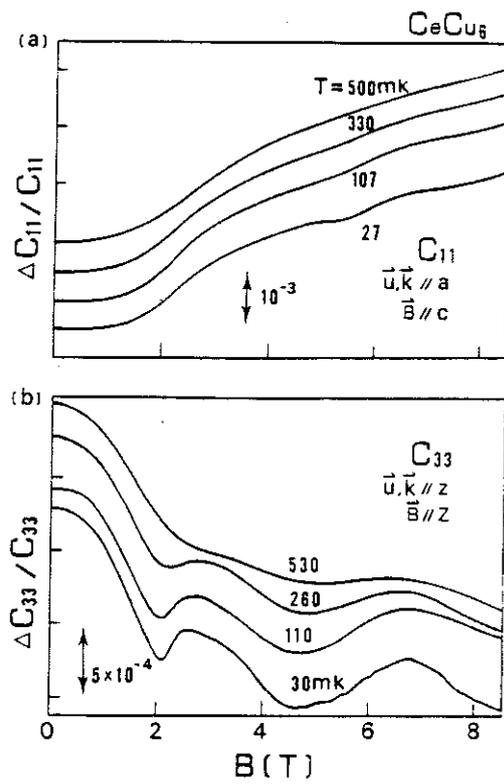


Fig. 2. (a) and (b). Dependences on the magnetic field along the  $c$  direction of the longitudinal  $C_{11}$  and  $C_{33}$  modes in the  $\text{CeCu}_6$  of sample #1 with the residual resistivity  $\rho_0^b \approx 5 \mu\Omega \text{ cm}$  are shown in (a) and (b), respectively. The anomalies at  $B_c = 2.2$  T relate to the metamagnetic transition.

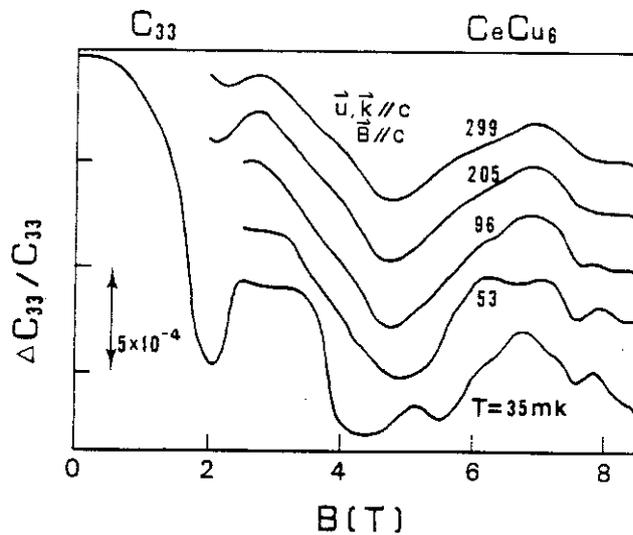
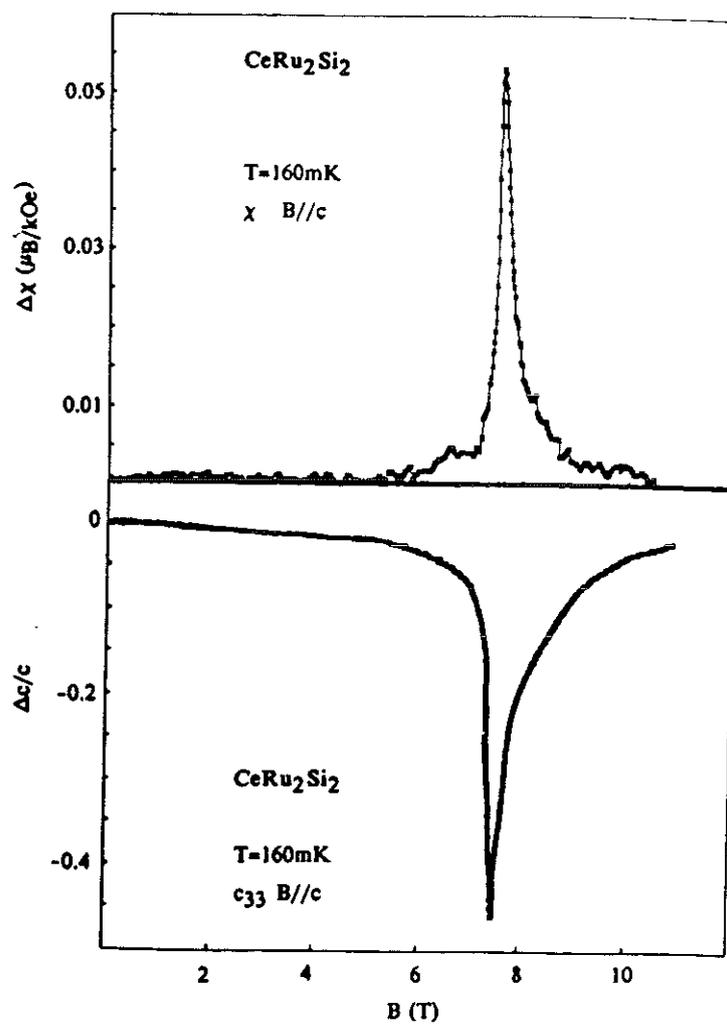


Fig. 3. Oscillatory behaviors of  $C_{33}$  under the field along the  $c$  direction in the  $\text{CeCu}_6$  of sample #2 with the residual resistivity  $\rho_0^b \approx 1 \mu\Omega \text{ cm}$ . At the metamagnetic transition  $B_c = 2.2$  T, the dip has been observed. The characteristic oscillation above 2 T up to 8.5 T may be related to the unstable orbits of heavy electrons in  $\text{CeCu}_6$ .

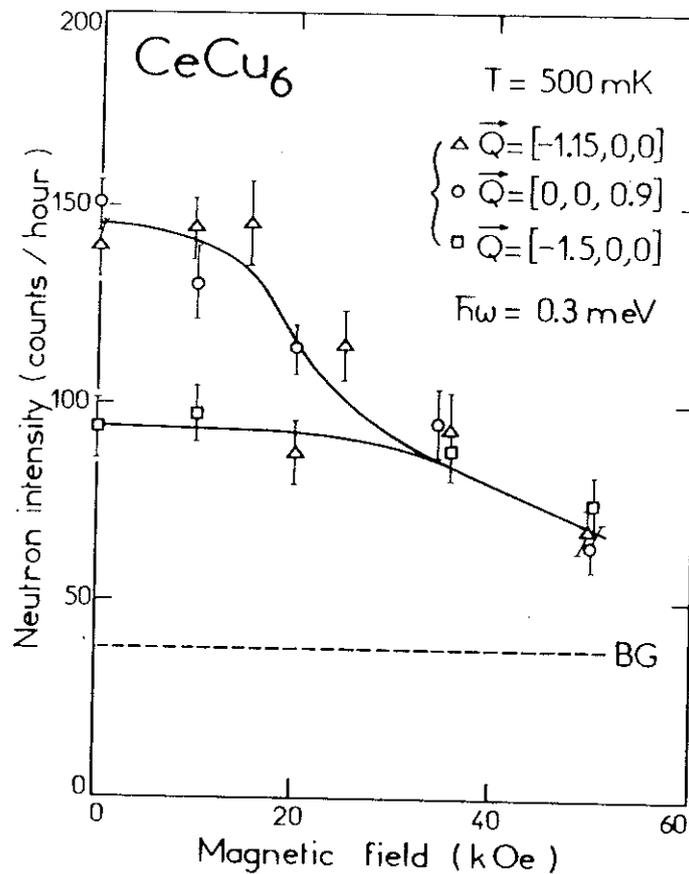
Fig. IV-4-1 D'après Goto *et al.*, (1988).

Pour comparaison, la Fig. IV-4-2 montre les mesures récentes faites à 160 mK par G. Bruls *et al.*, (90) de la variation  $\Delta C_{33}/C_{33}$  sous champ dans  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ .



**Fig. IV-4-2** Susceptibilité magnétique et mode  $C_{33}$  en fonction du champ magnétique ( $B/c$ ) de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  à  $T = 160$  mK (d'après Bruls *et al.* (1990)).

L'intensité magnétique sous champ à basse température a été mesuré par L. P. Regnault *et al.* 1987 et J. Rossat-Mignod *et al.* 1988 sur le  $\text{CeCu}_6$ . La Fig. IV-4-3 reproduit l'intensité magnétique en fonction du champ magnétique à  $T = 500 \text{ mK}$  pour  $B // b$  pour le composé  $\text{CeCu}_6$ . Pour  $B > 4 \text{ T}$  les corrélations magnétiques sont détruites. Comme dans le composé  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  à  $B \sim B^*$ , le composé  $\text{CeCu}_6$  présente une très forte décroissance des corrélations inter-sites pour  $B \sim 2.5 \text{ T}$ . La suppression de ces corrélations ne donnera pas les memes effets en magnétostriction que dans le  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ .



**Fig. IV-4-3** Intensités magnétiques mesurées à  $T = 500 \text{ mK}$  en fonction du champ magnétique ( $B//c$ ) de  $\text{CeCu}_6$  (d'après Rossat-Mignod *et al.* (1988)).

#### IV-4-1 Magnétostriction à basses températures

Pour voir les effets du champ magnétique sur le volume, on a réalisé des mesures de magnétostriction à basses températures. Comme pour l'aimantation, la chaleur spécifique et les constantes élastiques, les effets en champ sont plus nets pour B//c. Dans nos mesures, le champ magnétique et la dilatation thermique ( $\Delta L$ ) ont été mesurés suivant l'axe c.

La magnétostriction a été mesurée à 80, 100, 150, 300 et 350 mK dans un champ appliqué maximum de 9 tesla. Aucun effet d'hysteresis pendant la montée et la descente du champ magnétique n'a été observé. La Fig. IV-4-4 montre une courbe typique de magnétostriction  $\lambda_c$  ( $\equiv \Delta L_c/L_c$  pour B//c) à 80 mK et 100 mK. On peut observer une nette cassure de pente à  $\sim 2$  tesla et à 4 tesla. La cassure à faible champ ( $\sim 2$ T) correspond au champ où le fort changement du mode  $C_{33}$  a été observé. Récemment, A. Schröder *et al.* 1990 ont aussi observé une anomalie dans une courbe d'aimantation à  $\sim 150$  mK.

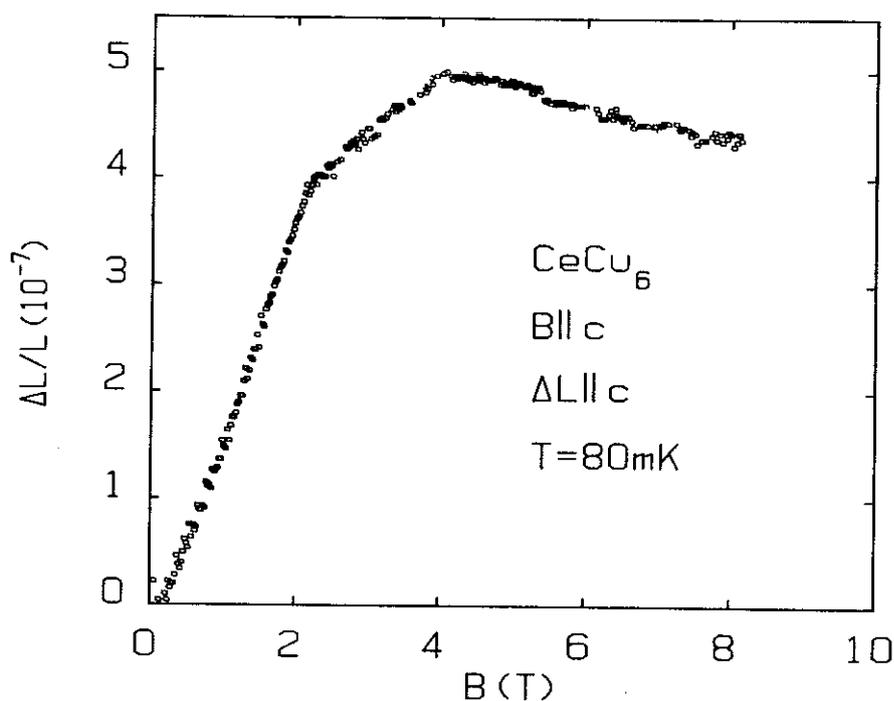


Fig. IV-4-4a La magnétostriction de CeCu<sub>6</sub> (B//c et  $\Delta L//c$ ) à T = 80 mK.

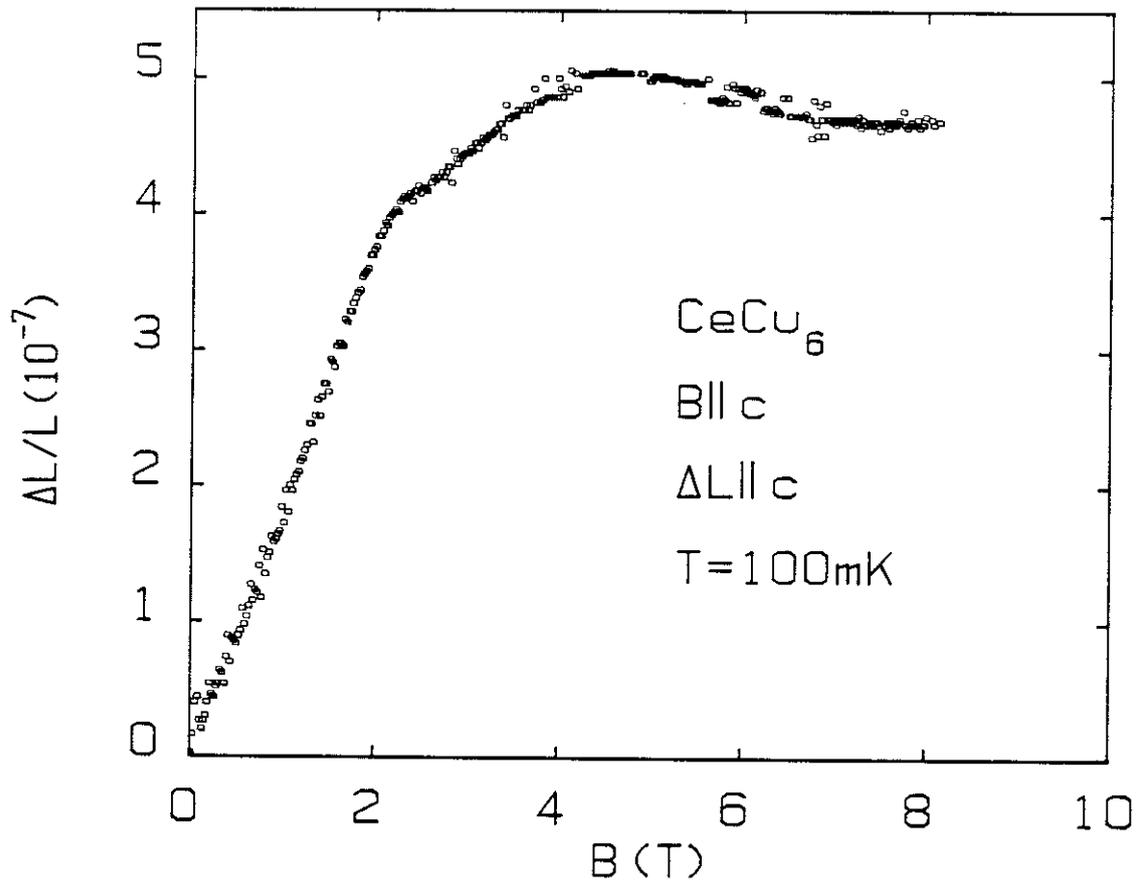


Fig. IV-4-4b La magnétostriction de  $CeCu_6$  ( $B//c$  et  $\Delta L//c$ ) à  $T = 100$  mK.

Pour comparer les effets de  $\text{CeCu}_6$  et  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , la Fig. IV-4-5 représente la magnétostriction des deux composés à  $T \sim 100$  mK.

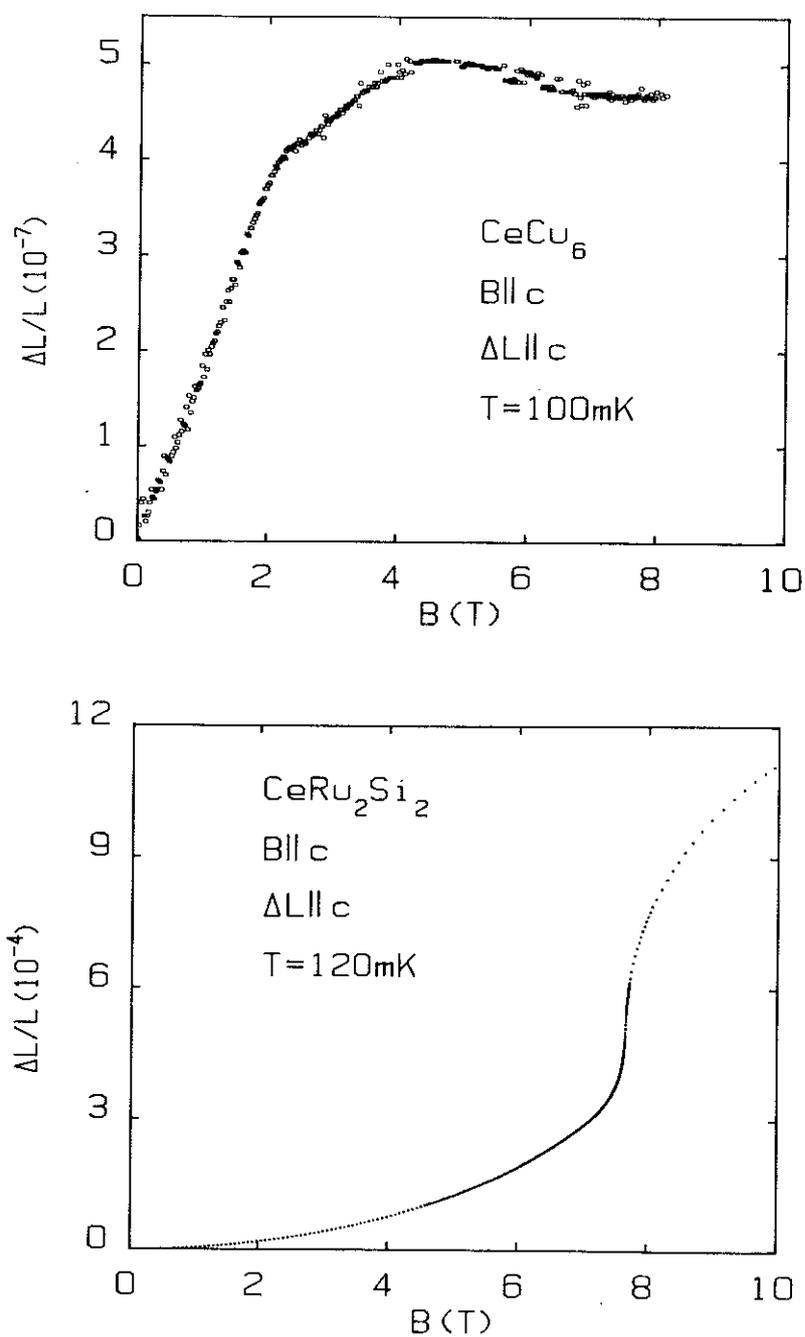


Fig. IV-4-5 Magnétostriction pour  $B//c$  et  $\Delta L//c$ ; (a) de  $\text{CeCu}_6$  à  $T = 100$  mK et (b) de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  à  $T = 120$  mK.

La Fig. IV-4-8 décrit le coefficient du terme linéaire de la dilatation thermique,  $a$  ( $= \alpha_c/T$ ) en fonction du champ magnétique appliqué. On note un très fort changement de pente entre 2 et 3 T et l'apparition d'un minimum au voisinage de 6 T.

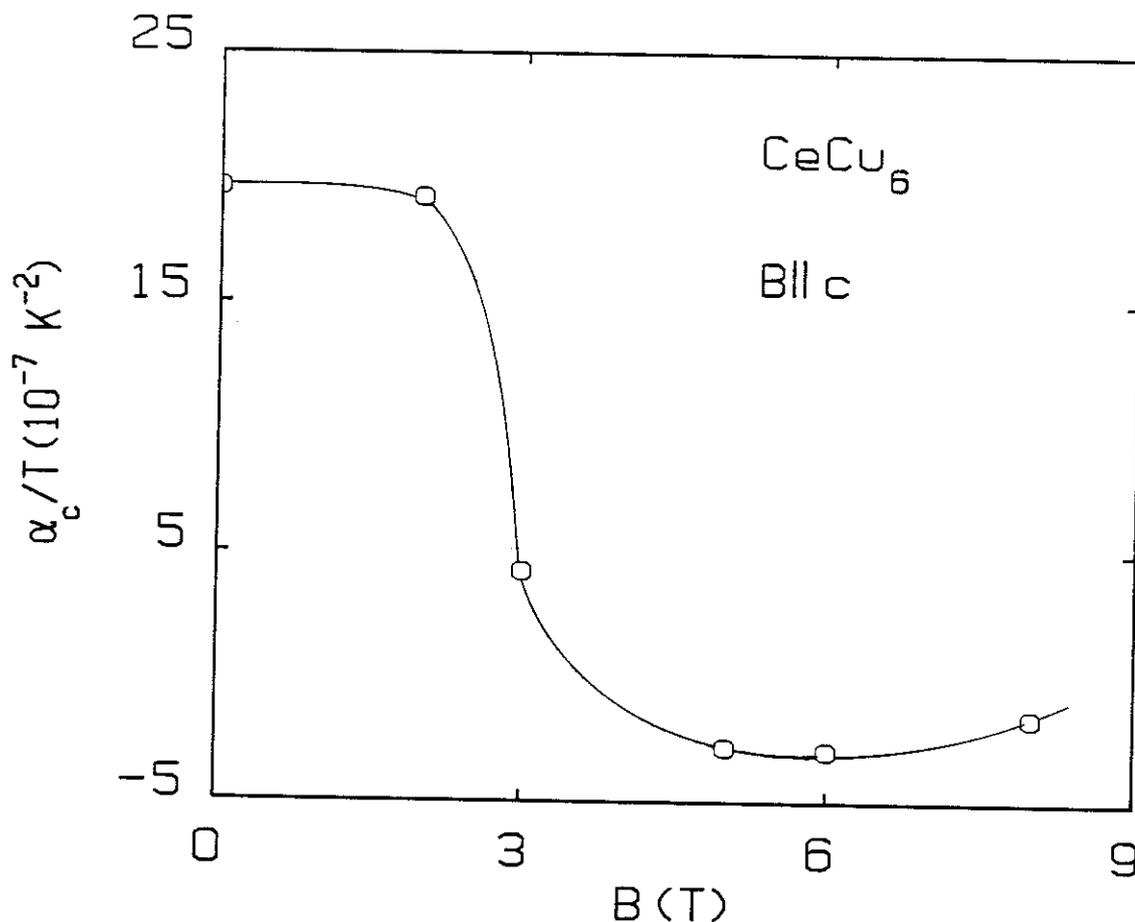
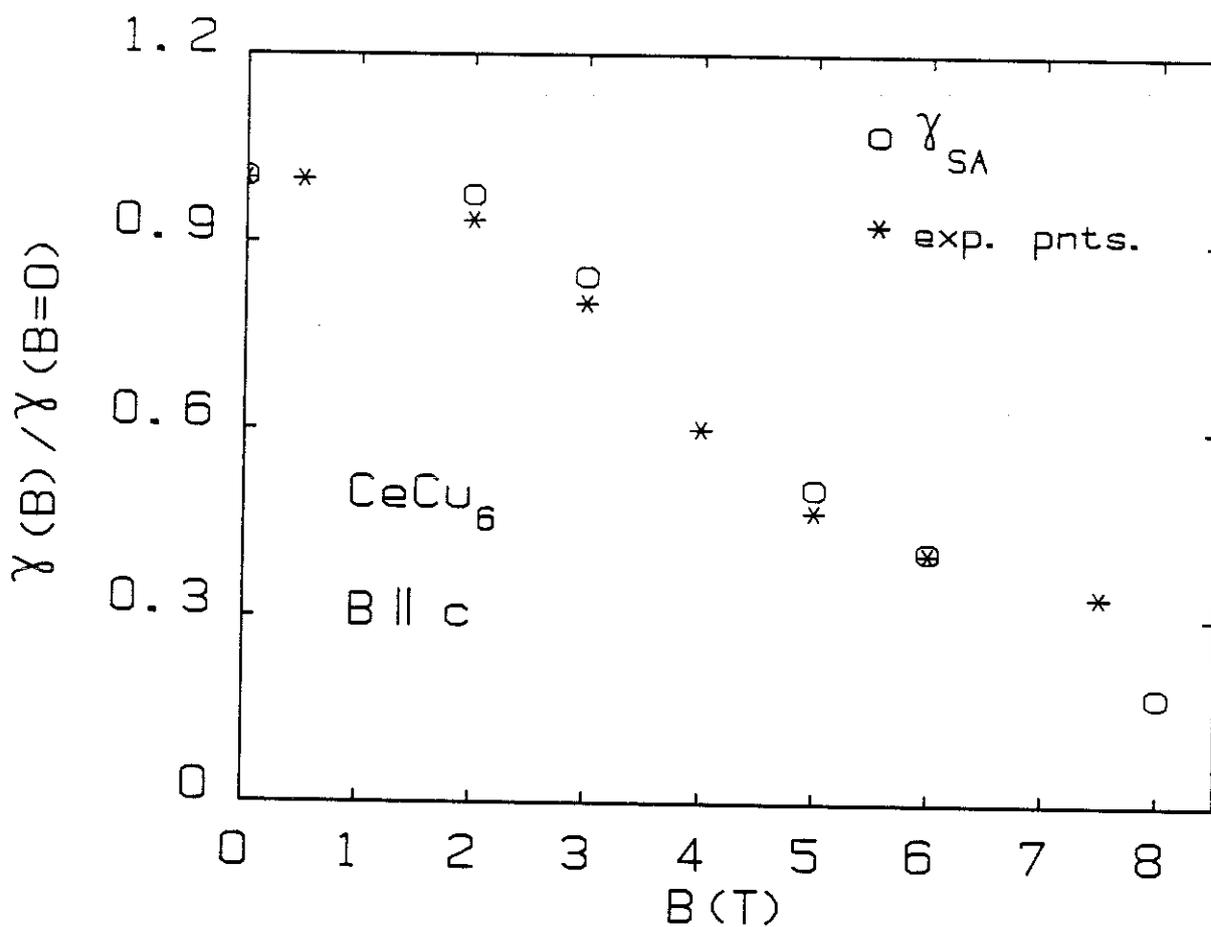


Fig. IV-4-8 Le coefficient linéaire de la dilatation thermique,  $a_c$  ( $\equiv \alpha_c/T$ ) de  $\text{CeCu}_6$  en fonction du champ magnétique ( $B//c$ )

Avec les mesures de la chaleur spécifique sous champ sur le même monocristal (Amato *et al.* 1987), en utilisant l'équation de l'hypothèse d'échelle (l'éq. III.28) et  $a_c$  (Fig. IV-4-8), nous pouvons calculer la variation du terme  $\gamma$  en fonction du champ magnétique. Comme nos mesures ont été restreintes à  $B//c$  et  $\Delta L//c$ , dans la Fig. IV-4-9, on compare seulement la variation relative  $\gamma(B)/\gamma(B=0)$  en fonction du champ magnétique. A l'opposé de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ ,  $\gamma$  présente une diminution continue en champ magnétique. En augmentant le champ magnétique ( $B > 2$  T), la polarisation des moments

magnétiques localisés se traduit par une forte décroissance de  $\gamma$ . Des mesures inélastiques neutroniques (Rossat - Mignod *et al.* 1988) ont aussi vu une brusque diminution des corrélations intersites à  $B \sim 2$  T (voir Fig. IV-4-3). Encore une fois, à l'opposé de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , aucun maximum n'est observé en  $\partial M/\partial B$  au voisinage de 2 T ; un maximum est discernable seulement en  $\partial^2 M/\partial B^2$ .



**Fig. IV-4-9** Variation en champ magnétique du terme  $\gamma(B)/\gamma(B=0)$  de la chaleur spécifique de  $\text{CeCu}_6$ . (o) à partir de l'éq. III.28 et (\*) points expérimentaux d'après Amato *et al.* 1988.

En résumé, on a mesuré la dilatation thermique ( $20 \text{ mK} < T < 100 \text{ K}$ ) et la magnétostriction ( $80 \text{ mK} < T < 350 \text{ K}$ ) dans le champ jusqu'à 9 tesla pour le composé à FL  $\text{CeCu}_6$ . La forte anisotropie trouvée dans la dilatation thermique de  $\text{CeCu}_6$  à champ nul peut être liée au spectre anisotrope des fluctuations de spin. Cette anisotropie n'a pas été retrouvée dans le composé  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , puisque la dilatation selon l'axe  $c$  se déduit de celle du plan de base par homothétie (avec  $\alpha_c > \alpha_a$ ). Ainsi, comme dans le  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , les mesures de diffusion inélastique de neutrons (L.P. Regnault *et al.*, 1987) ont montré l'existence de fluctuations antiferromagnétiques suivant l'axe  $c$ . Pour ces deux FL ( $\text{CeCu}_6$  et  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ ), l'axe de facile aimantation (l'axe  $c$ ) révèle la plus grande dilatation thermique.

Un point important est la remontée continue du paramètre de Grüneisen,  $\Gamma_{\text{eff}}(T)$  à basse température. Le  $\Gamma_{\text{eff}}(T)$  de  $\text{CeCu}_6$  présente une remarquable remontée même au-dessous de 300 mK. L'apparition d'une deuxième échelle d'énergie pour  $\text{CeCu}_6$  n'est pas exclue. On rappelle que les anomalies à basse température trouvées dans l'expansion volumique,  $\alpha_v$ , (à champ nul) nous donnent des températures de Kondo de l'ordre de 2 K pour  $\text{CeCu}_6$  et 10 K pour  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ .

L'application d'un champ magnétique à basse température parallèle à l'axe de facile aimantation (axe  $c$ ) révèle les principales différences entre  $\text{CeCu}_6$  et  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ . L'absence d'un maximum en  $\partial M/\partial B$  est thermodynamiquement liée à la faible magnétostriction dans ce composé ;  $\Delta L/L$  suivant l'axe  $c$  (pour  $B//c$ ) à  $T \sim 100 \text{ mK}$  de  $\text{CeCu}_6$  est d'environ  $10^3$  plus faible que celle de  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ . Le fort changement du mode  $C_{33}$  observé par T. Goto *et al.*, 1988, à basse température à  $B \sim 2 \text{ T}$ , n'est peut être pas une indication de l'existence d'une transition de type métamagnétique comme celle observée pour le composé  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  à  $B \sim 7.7 \text{ T}$ .

# CHAPITRE V

*Dans ce chapitre, nous allons étudier un alliage dérivé du composé  $CeRu_2Si_2$ , le composé  $Ce_{0.80}La_{0.20}Ru_2Si_2$ , qui présente une transition antiferromagnétique à  $T_N \sim 5.7$  K.*



## V - L'ALLIAGE ORDONNE $\text{Ce}_{0.80}\text{La}_{0.20}\text{Ru}_2\text{Si}_2$

V-1 Le composé  $\text{Ce}_{0.80}\text{La}_{0.20}\text{Ru}_2\text{Si}_2$

V-2 Expériences de neutrons

V-3 Propriétés thermodynamiques

*V-3-1 Magnetostriction*

*V-3-2 Chaleur spécifique*

*V-3-3 Dilatation thermique*



## V - L'ALLIAGE ORDONNE $Ce_{0.80}La_{0.20}Ru_2Si_2$

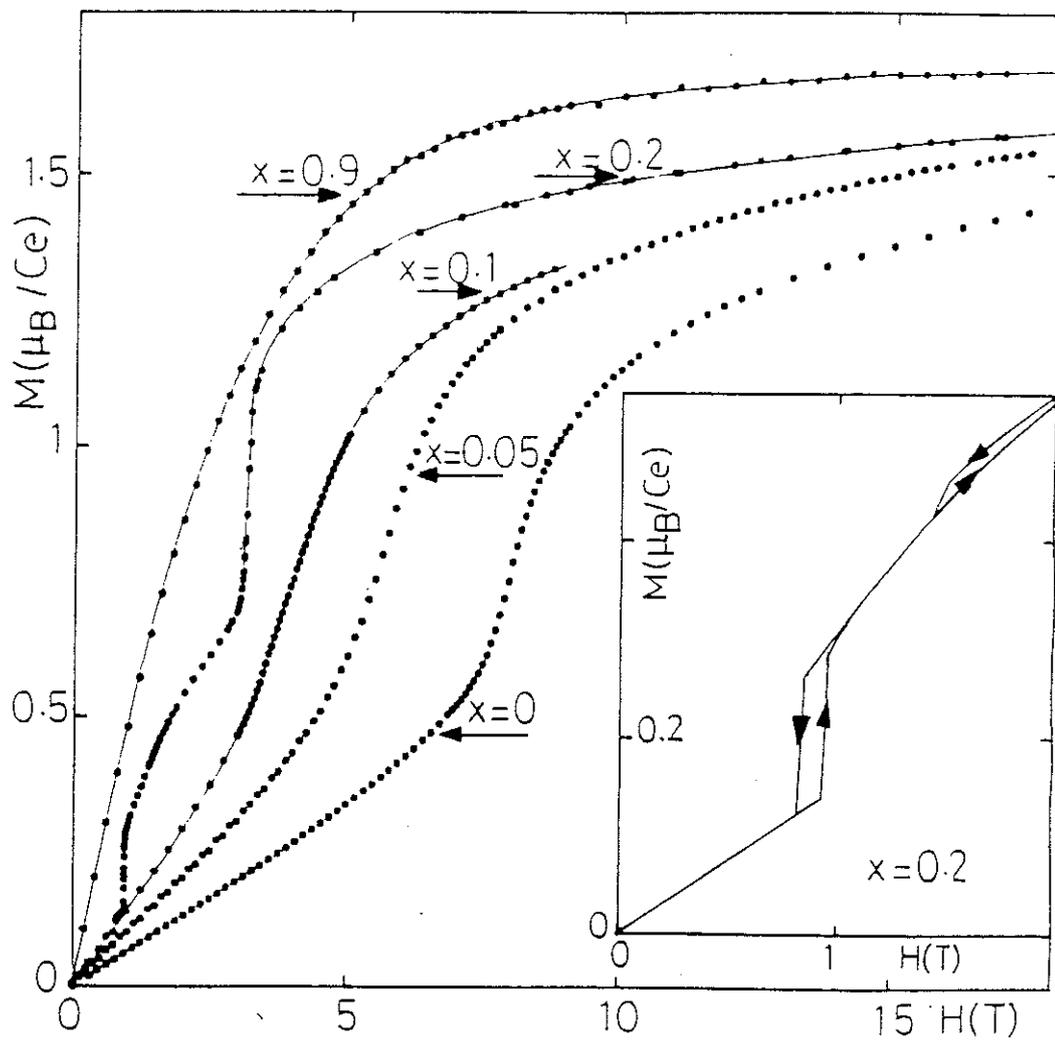
### V-1 Le composé $Ce_{0.80}La_{0.20}Ru_2Si_2$

Dans le système  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$ , l'addition de La donne lieu à l'apparition d'un ordre antiferromagnétique pour  $x \geq 0.08$ . Le composé avec  $x = 0.20$  s'ordonne antiferromagnétiquement avec  $T_N \sim 5.7$  K et présente un moment ordonné de  $1.2 \mu_B/Ce$ -atome. Nos mesures ont été faites sur un monocristal de dimensions  $3 \times 3.5 \times 4$  mm<sup>3</sup> préparé par P. Lejay au CRTBT.

Les mesures d'aimantation ont été effectuées auparavant par P. Haen *et al.*, (1988), sur des monocristaux provenant du même bain. La Fig. IV-1-1 reproduit la courbe d'aimantation de  $Ce_{0.80}La_{0.20}Ru_2Si_2$  à 1.5 K. Deux anomalies sont nettement vues pour  $B \sim 1$  T et  $B \sim 3.5$  T. A 1.5 K l'anomalie à champ faible est accompagnée d'un faible hystérésis qui peut être observé dans l'encart. Cette anomalie à bas champ ( $\sim 1$  T) a été aussi accompagnée d'hystérésis dans nos mesures de magnétostriction à 1.5 K.

### V-2 Expériences de neutrons

L'ordre magnétique du système  $Ce_{1-x}La_xRu_2Si_2$  ( $x \geq 0.08$ ) se caractérise par un vecteur d'onde incommensurable  $\vec{k}$  (0.309, 0, 0). Récemment, J.M. Mignot *et al.*, (1990a) et L.P. Regnault *et al.*, (1990a) ont réalisé des mesures élastiques et inélastiques de neutrons dans le composé  $Ce_{0.80}La_{0.20}Ru_2Si_2$ . Plusieurs effets anormaux ont été observés au voisinage de  $T_N$ .



**Fig. V-1-1** Aimantation du système  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  avec  $x = 0, 0.05, 0.1, 0.2$  et  $0.9$  à  $1.5 \text{ K}$  par Haen *et al.*, 1988. Dans l'encart, le détail pour le composé  $\text{Ce}_{0.80}\text{La}_{0.20}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ .

- (i) Les intensités du pic magnétique de Bragg augmentent à peu près linéairement en température pour  $T < T_N$  (voir Fig. IV-2-1). Dans cette gamme de température, un exposant critique  $\beta \sim 0.5$  est déterminé, qui est différent de celui attendu pour un système Ising 3D ( $\beta \sim 0.3$ ).
- (ii) Les fluctuations magnétiques présentent un maximum à  $T_N$ , mais contrairement à un système Ising, 3D ne divergent pas. La Fig. V-2-2 reproduit les résultats de Regnault *et al.*, (1990a) de la dépendance en température de l'intensité neutronique mesurée à  $\vec{Q}$  (0.715, 0.98, 0), localisée près du pic magnétique de Bragg (0.695, 1, 0).

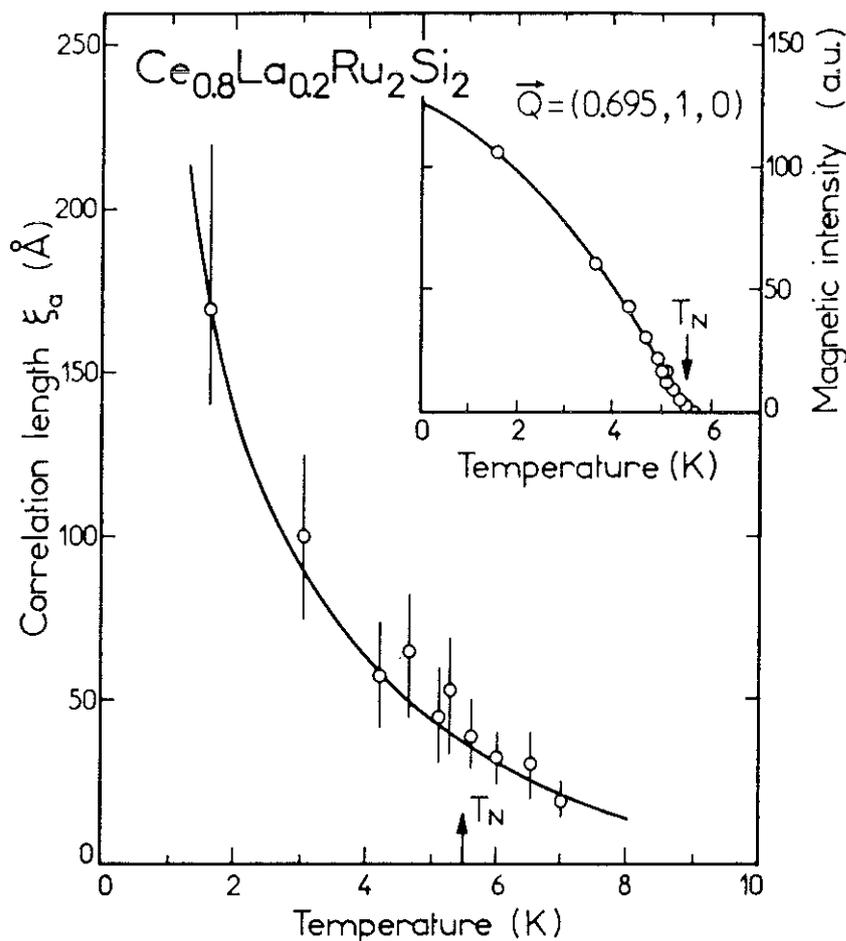
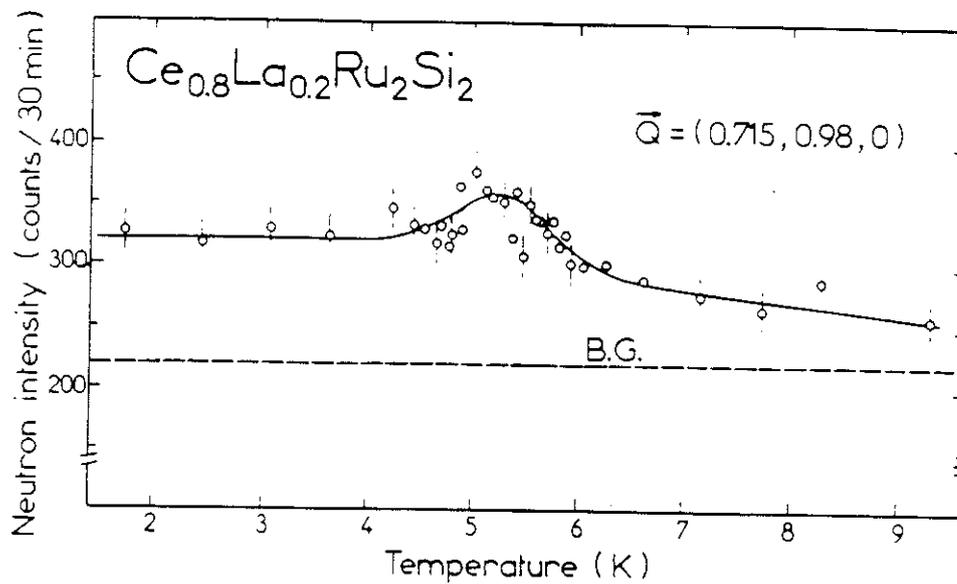


Fig. V-2-1 Largeur de corrélation  $\zeta_a$  en fonction de la température de  $\text{Ce}_{0.8}\text{La}_{0.2}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ . Dans l'encart, dépendance en température du pic de Bragg situé à  $\vec{Q} = (0.695, 1, 0)$  en fonction de la température de  $\text{Ce}_{0.8}\text{La}_{0.2}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  d'après Regnault *et al.*, 1990a.



**Fig. V-2-2** Intensité neutronique à  $\bar{Q} = (0.715, 0.98, 0)$  en fonction de la température de  $\text{Ce}_{0.8}\text{La}_{0.2}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ , d'après Regnault *et al.*, 1990a.

A plus basses températures, l'intensité des fluctuations persiste (Fig. V-2-2) ; cela implique de grandes fluctuations magnétiques et en conséquence une réduction du moment ordonné (aimantation du sous-réseau).

### V-3 Propriétés thermodynamiques

Nous allons étudier les effets thermiques de volume au passage de la transition antiferromagnétique à champ nul et sous champ. Pour comparer avec le diagramme de phase trouvé par J.M. Mignot *et al.*, (1990b), des études de chaleur spécifique et de dilatation thermique sous champ et magnétostriction seront présentées.

#### V-3-1 La magnétostriction

La magnétostriction du composé  $\text{Ce}_{0.80}\text{La}_{0.20}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  a été mesurée suivant l'axe  $c$  ( $\Delta L/c$ ) et  $B/c$  à deux températures : 1.3 K et 4.2 K. La Fig. V-3-1 montre la dérivée de la magnétostriction ( $\lambda'$ ) pour les deux températures. Les anomalies trouvées à 1.3 K pour  $B \sim 1$  T et  $B \sim 3$  T correspondent à celles mentionnées dans les courbes d'aimantation (voir Fig. V-1-1). Pour donner une idée des effets du champ magnétique dans la série  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$ , la Fig. V-3-2 montre  $\lambda_v$  à 1.3 K pour  $x = 0, 0.05$  et  $0.20$ . Le faible épaulement qui suit dans le composé ordonné ( $x = 0.20$ ) au-dessus du champ métamagnétique ( $B \sim 3$  T) est une indication de la coexistence de l'ordre et des fluctuations magnétiques (indication du métamagnétisme du composé pur  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ ). Pour le composé  $\text{Ce}_{0.80}\text{La}_{0.20}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  on a supposé  $\Delta L_c \sim 3.3\Delta L_a$ , comme on a observé pour la dilatation thermique.

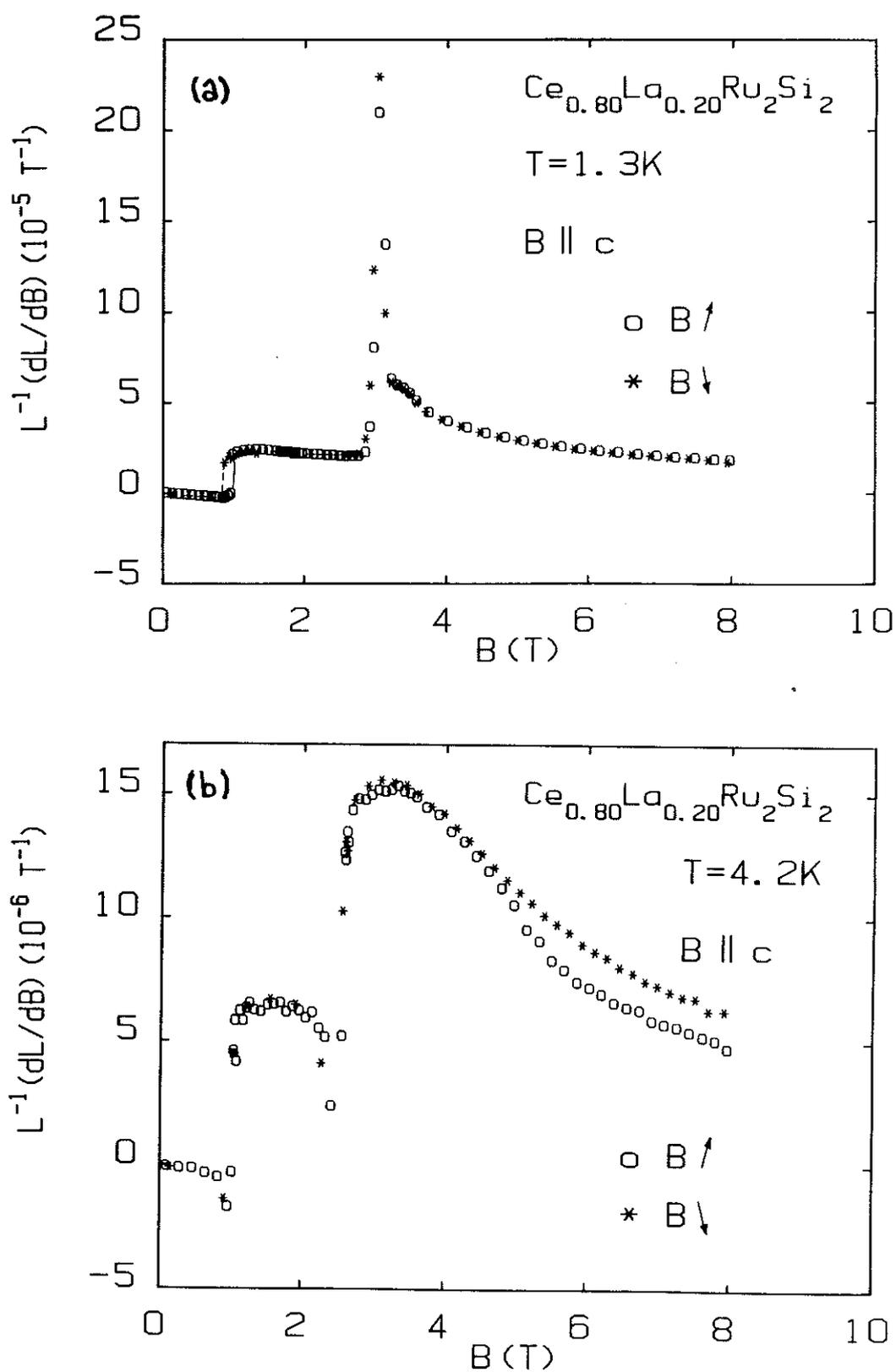


Fig. V-3-1 Dérivée de la magnétostriction,  $\lambda'$  ( $= L^{-1} dL/dB$ ), pour  $B//c$  et  $\Delta L//c$  de  $Ce_{0.80}La_{0.20}Ru_2Si_2$  (a)  $T = 1.3$  K et (b)  $T = 4.2$  K

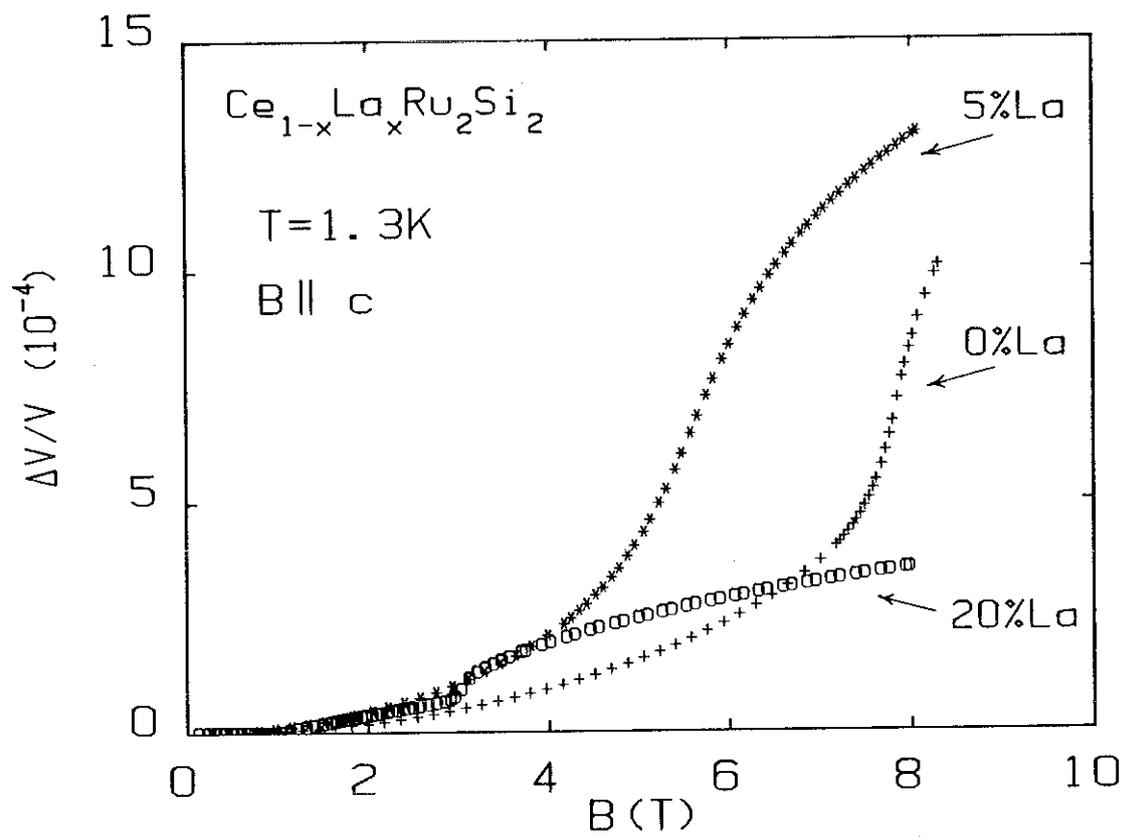


Fig. V-3-2  $\lambda_V$  pour le système  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  pour  $x = 0, 0.05$  et  $0.20$  avec  $B \parallel c$  à  $T = 1.3 \text{ K}$ .

### V-3-2 Chaleur spécifique

Les mesures de la chaleur spécifique de  $\text{Ce}_{0.80}\text{La}_{0.20}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  ont été effectuées à Amsterdam dans un champ magnétique ( $B_{\text{max}} = 5$  tesla) et dans la gamme de température  $1.5 \text{ K} < T < 15 \text{ K}$ . La Fig. V-3-3 montre la chaleur spécifique de  $\text{Ce}_{0.80}\text{La}_{0.20}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  à champ nul après la soustraction de la chaleur spécifique de  $\text{LaRu}_2\text{Si}_2$ . Dans la phase ordonnée,  $T < T_N$ , un deuxième pic est observé au voisinage de  $\sim 2.0 \text{ K}$  ( $T_{N2}$ ). Cette deuxième transition à  $T_{N2}$  a été vue pour la première fois à partir des mesures de résistivité (R. Djerbi *et al.* 1988). La Fig. V-3-3c montre  $C_p/T$  en fonction de la température au carré. La remontée en  $T^3$ , caractéristique des ondes de spin dans un antiferromagnétiques est observée seulement pour  $T_{N2} < T < T_{N1}$ . Comme on le verra, une grande anomalie à  $T_{N2}$  est aussi trouvée dans la dilatation thermique.

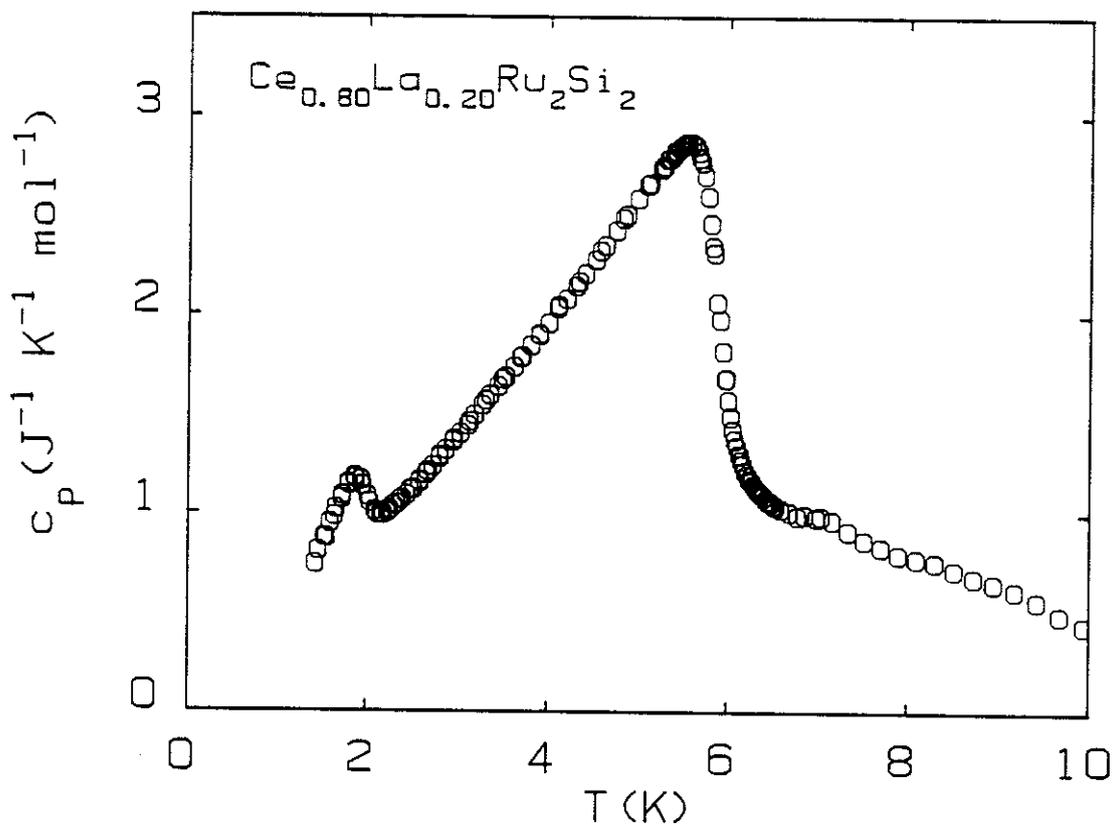


Fig. V-3-3a Chaleur spécifique à champ nul de  $\text{Ce}_{0.80}\text{La}_{0.20}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  dans la gamme de température  $1.5 \text{ K} < T < 10 \text{ K}$ .

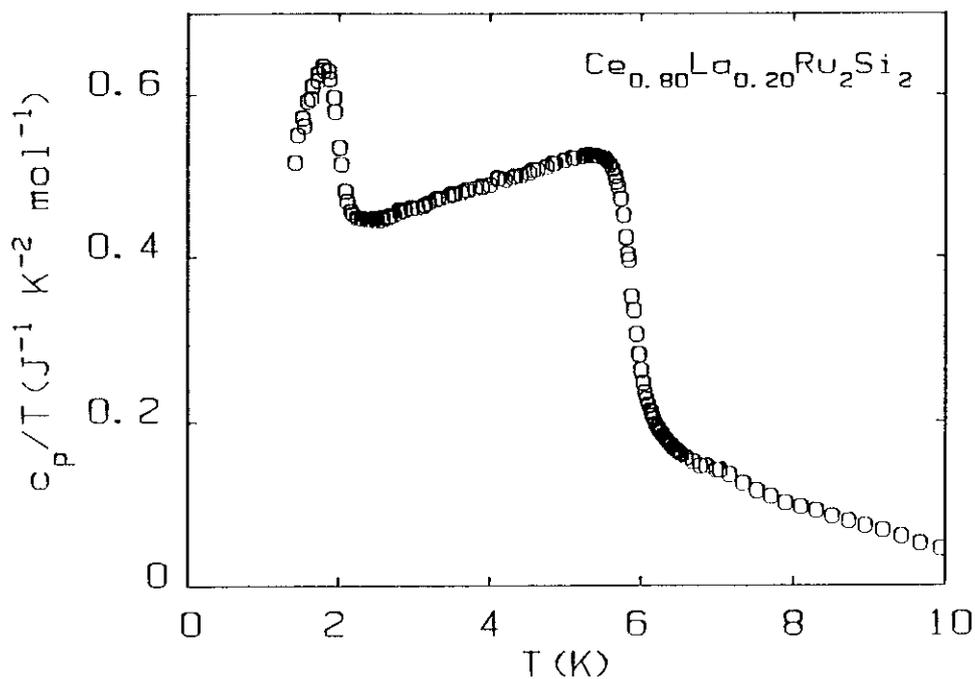


Fig. V-3-3b  $c_p/T$  en fonction de la température de  $\text{Ce}_{0.80}\text{La}_{0.20}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  à champ nul.

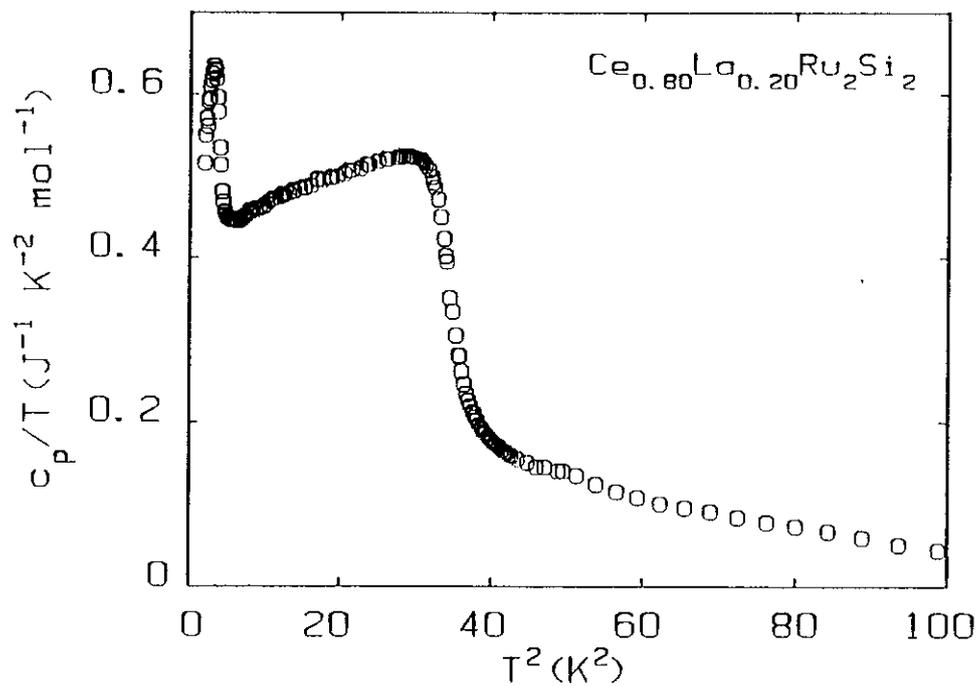
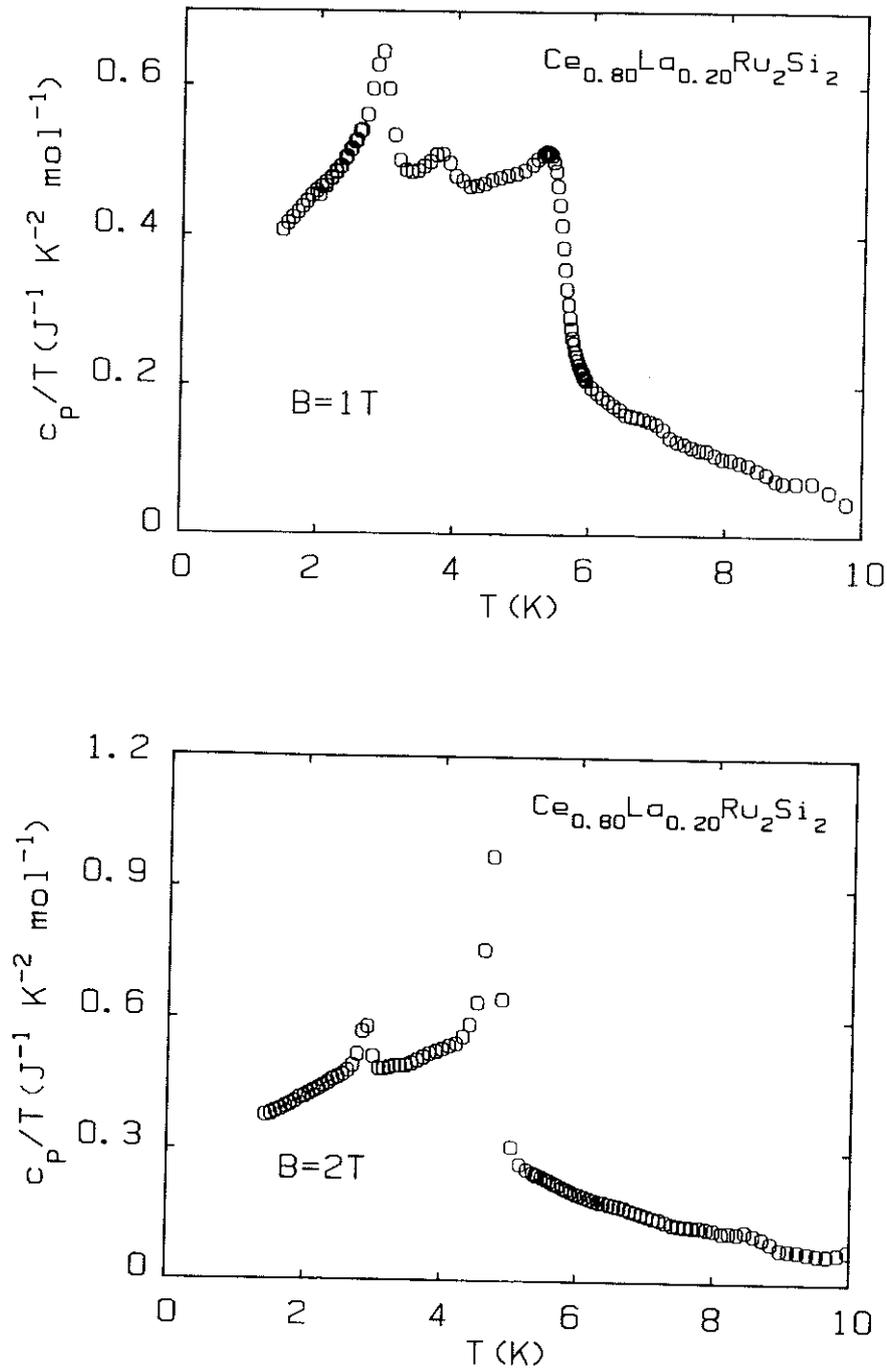


Fig. V-3-3c  $c_p/T$  en fonction de  $T^2$  de  $\text{Ce}_{0.80}\text{La}_{0.20}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  à champ nul.

Les Figs. V-3-4 et V-3-5 montrent le terme  $C_P/T$  pour plusieurs champs magnétiques appliqués parallèles à l'axe  $c$ . En appliquant le champ magnétique, le pic de la phase ordonnée disparaît. A fort champ, ( $B > 3T$ ), une chaleur spécifique de type Schottky se développe à basse température.



**Fig. V-3-4** Chaleur spécifique sous champ ( $B//c$ ) de  $Ce_{0.80}La_{0.20}Ru_2Si_2$   
(a)  $B = 1 T$  et (b)  $B = 2 T$ .

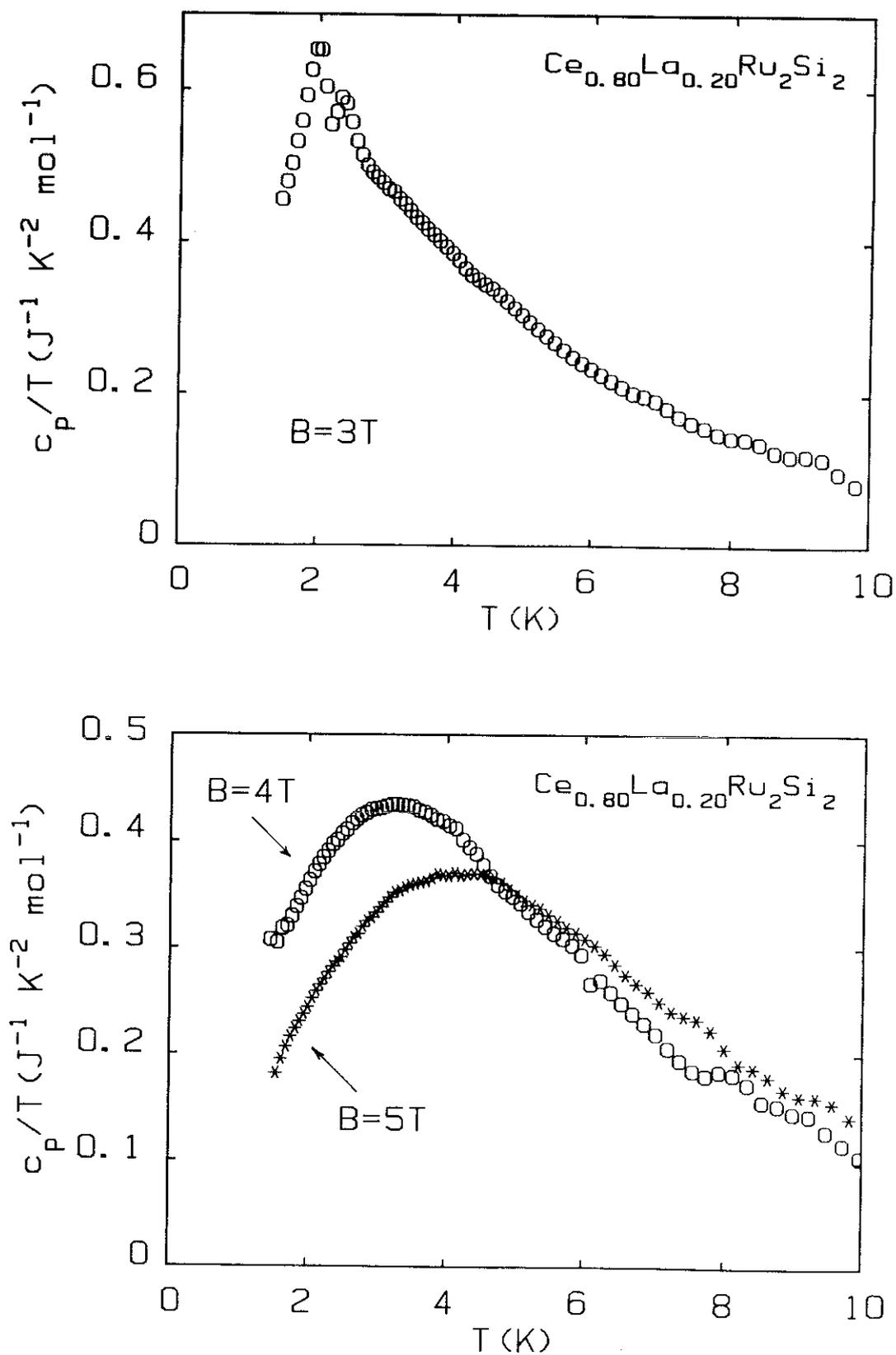


Fig. V-3-5 Chaleur spécifique sous champ ( $B/c$ ) de  $\text{Ce}_{0.80}\text{La}_{0.20}\text{Ru}_2\text{Si}_2$   
 (a)  $B=3\text{T}$  et (b)  $B=4\text{T}$  et  $5\text{T}$ .

### V-3-3 Dilatation thermique

Le coefficient linéaire de la dilatation thermique parallèle ( $\alpha_{||}$ ) et perpendiculaire ( $\alpha_{\perp}$ ) à l'axe c pour  $1.3 \text{ K} < T < 100 \text{ K}$  est représenté Fig. V-3-6. Le passage par  $T_N$  est accompagné par des sauts dans  $\alpha_{||}$  et  $\alpha_{\perp}$ . La seconde transition dans la phase ordonnée ( $T_{N2} \sim 2 \text{ K}$ ) donne aussi de grands effets dans la dilatation thermique.

L'application de la relation d'Ehrenferst :

$$\frac{dT_N}{dP} = T_N V_0 \frac{\Delta\alpha_V}{\Delta C_p} \quad (\text{V-1})$$

où  $V_0$  est le volume molaire ( $V_0 \sim 5.2 \times 10^{-5} \text{ m}^3/\text{mol}$ ),  $\Delta\alpha_V$  et  $\Delta C_p$  les sauts respectifs dans la dilatation thermique et la chaleur spécifique à  $T_N$  ( $\Delta C_p = -1.9 \text{ J K}^{-1} \text{ mol}^{-1}$  à  $T_{N1}$  et  $\Delta C_p = -0.2 \text{ J K}^{-1} \text{ mol}^{-1}$  à  $T_{N2}$ ) permet de calculer les variations sous pression des deux températures d'ordre :

$$\frac{dT_{N1}}{dP} = -0.56 \text{ K/kbar}$$

$$\frac{dT_{N2}}{dP} = -0.70 \text{ K/kbar}$$

Récemment, J. Voiron *et al.*, (1990), à partir des mesures d'aimantation sous pression, ont trouvé d'une façon indirecte une limite inférieure de  $dT_{N1}/dP = \sim -0.8 \text{ K/kbar}$ . Les mesures élastiques neutroniques par L. P. Regnault *et al.* 1990b donnent  $\sim -0.36 \text{ K/kbar}$ . La valeur trouvée ( $dT_{N1}/dP = -0.56 \text{ K/kbar}$ ) par nos mesures se situe entre ces deux limites.

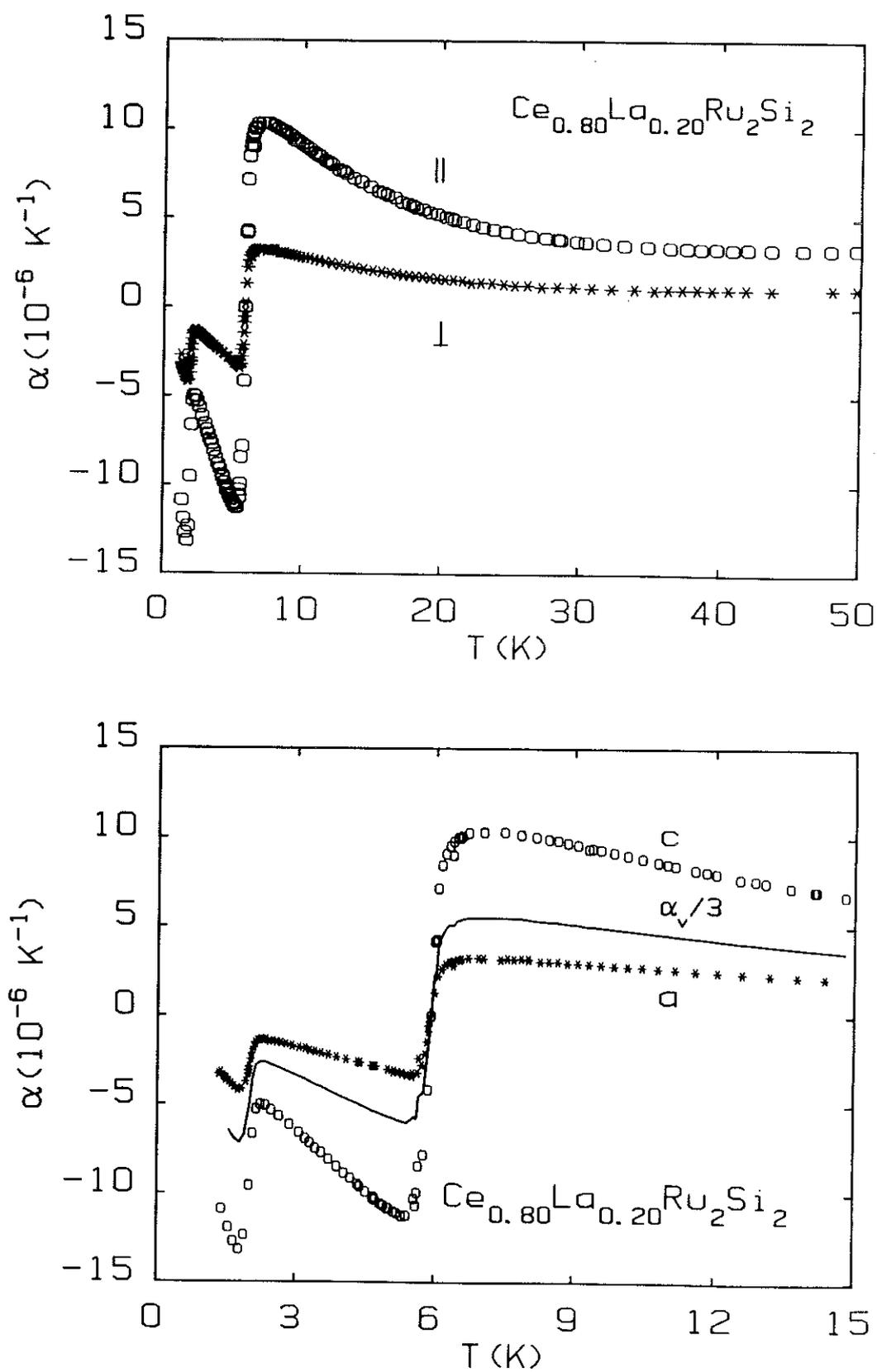


Fig. V-3-6 Coefficient de la dilatation thermique de  $\text{Ce}_{0.80}\text{La}_{0.20}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  à champ nul (a) pour  $T \leq 100 \text{ K}$  et (b) pour  $1.5 \leq T \leq 15 \text{ K}$ .

La Fig. V-3-7 compare les effets de volume à champ nul pour le système  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$ . Les dilatations thermiques pour  $T > T_m$  (pour  $x = 0$  et  $x = 0.05$ ) et pour  $T > T_{N1}$  dans le composé ordonné présentent la même décroissance en température.

Pour mieux caractériser les couplages électrons-réseau, la Fig. V-3-8 montre le paramètre effectif de Gruneisen ( $\Gamma_{\text{eff}} = V_0 \alpha_v(T) / \kappa C_p(T)$ ) pour les trois composés en fonction de la température. En première approximation on a considéré  $\kappa = 0.95 \text{ Mbar}^{-1}$  pour les trois composés. Pour  $x = 0$  et  $x = 0.05$ ,  $C_p(T)$  a été mesuré par R. Fischer *et al.* 1990 (voir Fig. I-3-2), et pour  $x = 0.20$  voir la Fig. V-3-3a. Pour le composé ordonné,  $\Gamma_{\text{eff}}$  montre deux sauts à  $T_{N1}$  et  $T_{N2}$  respectivement. Pour  $T_{N2} < T < T_{N1}$  les régions de linéarité, en fonction de la température, de  $\alpha_v(T)$  et  $C_p(T)$  conduit au plateau trouvé dans  $\Gamma_{\text{eff}}$ . Pour  $T > T_m$  (pour  $x = 0$  et  $x = 0.05$ ) et pour  $T > T_{N1}$  dans le  $x = 0.20$  le Gruneisen effectif présente la même dépendance en température.

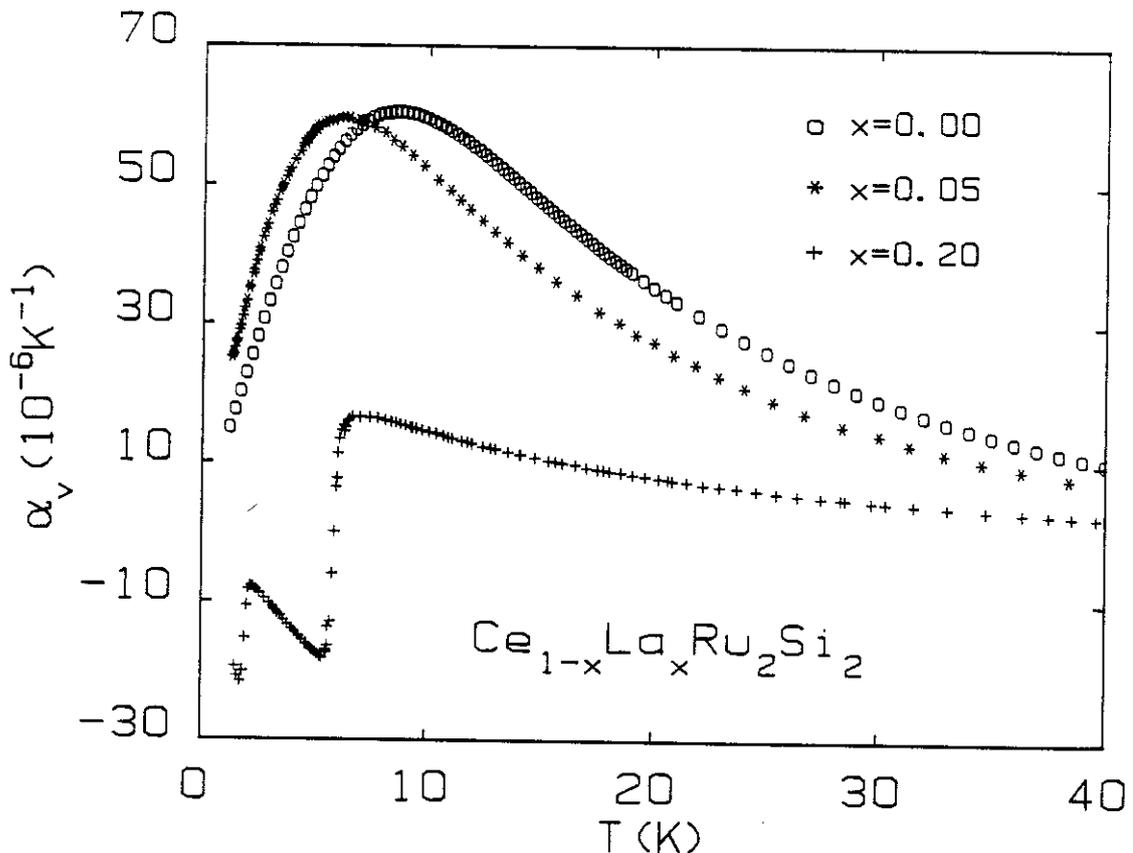


Fig. V-3-7 Coefficient de la dilatation thermique volumique du système  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  pour  $x = 0, 0.05$  et  $0.20$ .

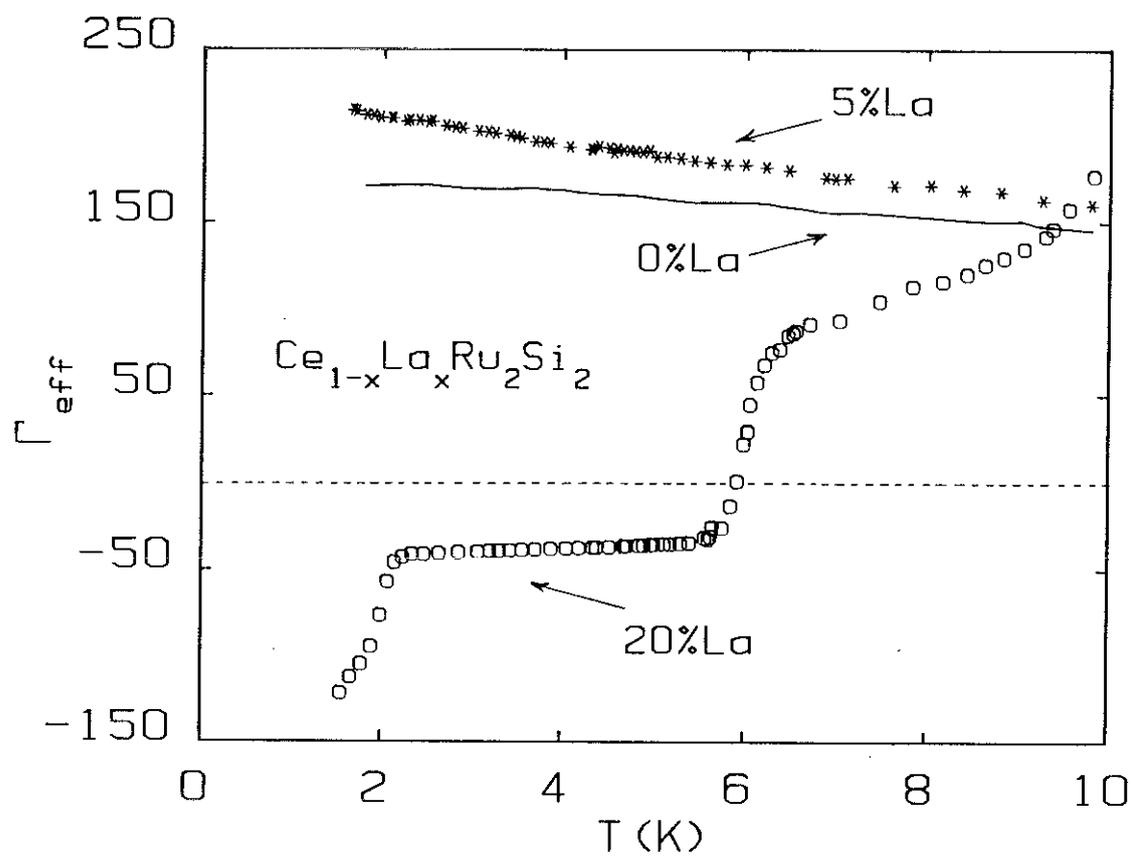


Fig. V-3-8 Paramètre de Gruneisen du système  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  pour  $x = 0, 0.05$  et  $0.20$ .

A partir des mesures de la chaleur spécifique et de la dilatation thermique sous champ, nous pouvons construire un diagramme de phase champ magnétique vs. température. Dans la Fig. V-3-9, on reproduit le diagramme de phase à partir des mesures neutroniques par J.M. Mignot *et al.*, (1990b) en ajoutant nos points trouvés des anomalies de la chaleur spécifique et dilatation thermique. Selon les mesures neutroniques le passage de la région II  $\rightarrow$  III (à  $B \sim 1$  T et  $2$  T  $<$  B  $<$  3 T) est suivi pour une forte hystérésis. Comme nous l'avons vu, l'hystérésis a été détectée par nos mesures de magnétostriction à bas champ. Malheureusement nous ne pouvons pas encore vérifier l'existence de la région II, puisque celle-ci se situe à  $T < 1$  K.

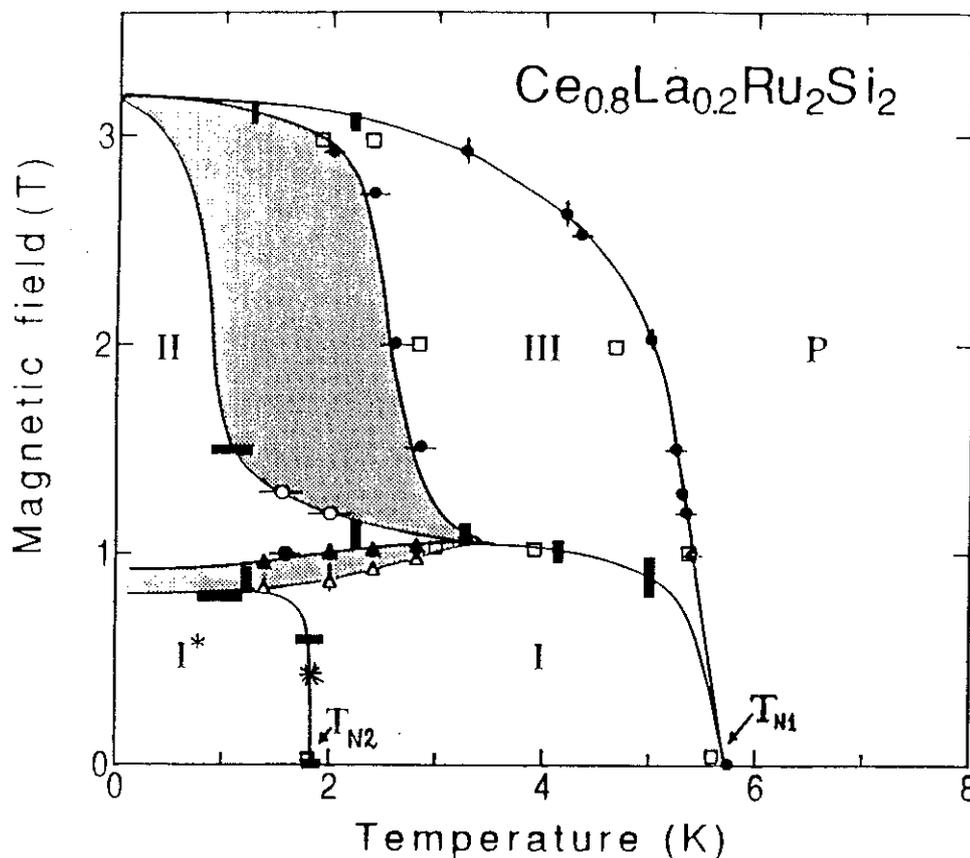
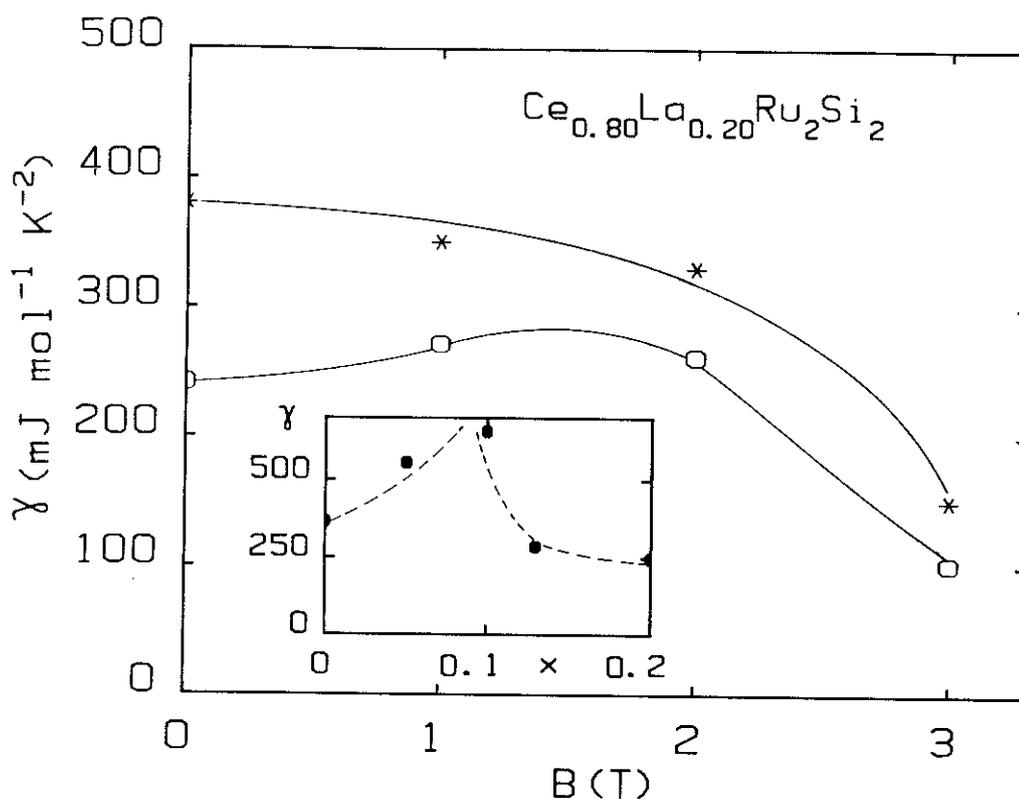


Fig. V-3-9 Diagramme de phase de  $\text{Ce}_{0.80}\text{La}_{0.20}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  d'après J.M. Mignot *et al.*, (1990b). Les points (□) à partir des mesures de la chaleur spécifique et (\*) la dilatation thermique.

Le terme  $C/T$  ( $\equiv \gamma$ ) en fonction du champ magnétique pour  $T < T_{N2}$  et  $T_{N2} < T < T_{N1}$  est montré dans la Fig. V-3-10. Pour  $T < T_{N2}$  (points (o) dans la Fig. V-3-10),  $\gamma$  présente un large maximum entre 1 et 2 T qui ne coïncide pas avec le champ métamagnétique trouvé par les mesures d'aimantation ( $\sim 3.5$  T, voir Fig. V-1-1). Ce maximum peut être lié au changement de structure magnétique dans la phase hachurée du diagramme (voir Fig. V-3-9). Pour  $T_{N2} < T < T_{N1}$ ,  $\gamma$  présente une décroissance monotone en augmentant le champ magnétique. La valeur de  $\gamma$ , champ nul, en fonction de la concentration en lanthane est montrée dans l'encart de la Fig. V-3-10. Comme nous l'avons dit,  $\gamma$  présente une forte augmentation au voisinage de la concentration,  $x$  (0.08), où l'ordre magnétique commence à se développer.



**Fig. V-3-10** Variation du terme  $\gamma$  de  $\text{Ce}_{0.80}\text{La}_{0.20}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  en fonction du champ magnétique. (o) pour  $T < T_{N2}$  et (\*) pour  $T_{N2} < T < T_{N1}$ . En encart :  $\gamma$  (en  $\text{mJmol}^{-1}\text{-K}^{-2}$ ), à champ nul en fonction de la concentration,  $x$ , en lanthane.



# CONCLUSION



Les propriétés magnétiques des composés  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  ( $x = 0, 0.05$  et  $0.20$ ) et  $\text{CeCu}_6$  ont été étudiées par des mesures magnétovolumiques à fort champ et à basses températures.

Pour le  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , une analyse de la dilatation thermique à champ nul nous a permis de trouver un paramètre de Grüneisen de l'ordre de 160. Cette grande valeur de  $\Gamma$  est encore une caractéristique des composés à fermions lourds. En utilisant une anomalie de type Schottky pour décrire la dilatation thermique à haute température, un splitting de champ cristallin  $\Delta$  de  $\sim 290$  K est trouvé. A plus basses températures, un modèle Schotte-Schotte a été utilisé, d'où un  $T_K$  de 19 K qui est nécessaire pour fiter l'anomalie de la dilatation thermique volumique.

Pour mieux caractériser la transition de type métamagnétique à  $B^* \sim 8$  T (à 4.2 K) qui apparaît dans le  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ , on a effectué des mesures de magnétostriction à fort champ et à basses températures. A  $T \sim 120$  mK, une variation de volume  $\Delta V/V$  de l'ordre  $\sim 10^{-3}$  est trouvée à  $B^*$  ( $B^* \sim 7.7$  T à 120 mK). Cette grande variation de volume à ce champ nous indique que peut être une transition de phase de premier ordre peut exister à ce champ à très basses températures. Mais, d'après nos études, avec le composé dopé de 5 % de La, l'importance de la qualité de l'échantillon a été remarquée comme un point important dans cette transition. La forte décroissance de la température caractéristique  $T_m$  au voisinage de  $B^*$  ( $T_m \sim 300$  mK) nous a révélé l'importance des expériences à basses températures dans le  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ .

L'application des relations de Maxwell et, d'après nos mesures de variation de l'aimantation à basses températures, une augmentation de la masse effective de  $\sim 65$  % à  $B^*$  a été trouvée pour le  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ . Pour le composé  $\text{Ce}_{0.05}\text{La}_{0.05}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ , l'augmentation n'est que de  $\sim 35$  % à  $B^*$  ( $B^* \sim 5.3$  T). L'origine microscopique de cette transition à  $B^*$  est encore mal comprise. Avec nos résultats, il est clair que les effets de volume doivent être pris en compte dans les modèles théoriques.

Même avec la forte dépendance en température du paramètre de Grüneisen, l'application d'une loi d'échelle à basses températures semble bien décrire les résultats. Etant dit au voisinage de  $B^*$ , l'accord n'est pas très bon.

Nos études sur le composé  $\text{CeCu}_6$  nous ont permis de trouver un paramètre de Grüneisen qui varie avec la température même dans la gamme  $T < 100$  mK. La dilatation thermique de ce composé présente une très forte anisotropie même à basses températures. L'expansion suivant les axes cristallographiques n'a pas eu un comportement monotonique comme celle observée pour le composé  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ . A basse température, l'expansion thermique volumique de  $\text{CeCu}_6$  présente un maximum bien prononcé à  $\sim 2.5$  K. Cette température est du même ordre de grandeur que celui de la température de Kondo, déterminée par des mesures de chaleur spécifique ( $T_K \sim 3.9$  K). A haute température, une large anomalie est associée aux effets de champ cristallin à  $T \approx 60$  K.

Dans nos mesures de magnétostriction à basse température dans  $\text{CeCu}_6$  ( $B/c$  et  $\Delta L/c$ ), nous n'avons pas observé de transition de type métamagnétique comme celle observée dans le  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ . Le champ magnétique ( $B \sim 2$  T), où la vitesse du son montre un fort changement, est accompagné d'un changement de pente dans la magnétostriction à  $T = 80$  mK.

Finalement, dans nos études avec le composé ordonné  $\text{Ce}_{0.80}\text{La}_{0.20}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ , une remarquable anomalie dans la chaleur spécifique et la dilatation thermique a été trouvée pour  $T < T_{N1}$  (à  $T_{N2}$ ). Le terme  $\gamma$  (pour  $T < T_{N2}$  ( $\sim 2$  K)) en fonction du champ magnétique présente un faible maximum pour  $1 \text{ T} < B < 2 \text{ T}$ . Pour  $T_{N2} < T < T_{N1}$ ,  $\gamma$  présente une décroissance monotonique en champ magnétique. Cette deuxième transition a été récemment confirmée par des mesures inélastiques neutroniques. Toutefois, l'origine physique de cette transition dans la phase ordonnée n'est pas encore bien comprise.

# REFERENCES



- Abramowitz M. et Stegun I. A., Handbook of Mathematical Function ; Dover publications, Inc., New York (1970).
  
- Aeppli G., Yoshizawa H., Endoh Y., Bucher E., Hufnagl J., Onuki Y. et Kamatusbara T., Phys. Rev. Lett., **57** (1986) 122.
  
- Amato A., Jaccard D., Flouquet J., Lapierre F., Tholence J. L., Fisher R. A., Lacy S. E., Olsen J. A. et Phillips N. E., J. Low Temp. Phys. **68** (1987) 371.
  
- Amato A., PhD. Thesis, Genève 1988.
  
- Andrei N., Furuya K. et Loewenstein J. K., Rev. Mod. Phys. **55** (1983) 331.
  
- Andres K., Graebner J. E. et Ott H. R., Phys. Rev. Lett. **35** (1975) 1779.
  
- Asano H., Umino M., Onuki Y., Kamatsubara T., Izumi F. et Watanabe N., J. Phys. Soc. Jpn. **55** (1986) 454.
  
- Auerbach A. et Levin K., Phys. Rev. Lett. **57** (1986) 877.
  
- Bakker K., Master Thesis, Amsterdam 1989.
  
- Ballestracci R. et Astier G., C. R. Acad. Sc. Paris, **B109** (1978) 286.
  
- Barron T. H. K., Collins J. G. et White G. K., Adv. Phys. **29** (1980) 609.
  
- Barth S., Ott H. R., Gygax F. N., Hitti B., Lippelt E., Schenck A., Baines C., van den Brandt B., Konter T. et Mongo S., Phys. Rev. Lett. **59** (1987) 2991.
  
- Batlogg B., Remeika J. P., Cooper A. S. et Fisk Z., J. Appl. Phys. **55** (1984) 2001.
  
- Benoit A., Berton A., Chaussy J., Flouquet J., Lasjaunias J. C., Odin J., Palleau J., Peyrard J. et Ribault M., in "Valence Fluctuations in Solids"

- Ed. L. M. Falicov, W. Hanke et M. B. Maple (Noth-Holland, Amsterdam 1981).
- Besnus M. J., Kappler J. P., Lehmann P. et Meyer A., Solid State Commun. **55** (1985) 779.
  - Bredl C. D., Steglich F. et Schotte K., Z. Physik **B29** (1987) 327.
  - Brommer P. E., Physica **B112** (1982) 343.
  - Bruls G., Weber D., Hampel G., Wolf B., Kouroudis I. et Luthi B., Physica **B163** (1990) 41; Bruls G., Weber D., Luthi B., Flouquet J. et Lejay P., Phys. Rev. **B42** (1990) 4329.
  - Caussignac M., PhD. Thesis, Montpellier 1980.
  - Continentino M. A., Japiassu G. M. et Troper A., Phys. Rev. **B39** (1989) 9734.
  - Cromer D.T., Larson A.C. et Roof Jr. R.B., Acta Cryst. **13** (1960) 913.
  - Djerbi R., Haen P., Lapierre F., Lehmann P. et Kappler J. P., J. Magn. Mater. **76 & 77** (1988) 260.
  - Fisher R. A., Lacy S. E., Marcenat C., Olsen J. A., Phillips N. E., Flouquet J., Amato A. et Jaccard D., Jpn. J. Appl. Phys. **26** (1987) 482.
  - Fisher R. A., Phillips N. E., Marcenat C., Flouquet J., Haen P., Lejay P. et Mignot J. M., J. Physique **49** C8 (1988) 759.
  - Fisher R. A. et al. à paraitre (1990).
  - Flouquet J., Lasjaunias J. C., Peyrard J. et Ribault M., J. Appl. Phys. **53** (1982) 2127.
  - Frings P. H., Franse J. J. M., de Boer F. R. et Menovsky A., J. Magn. Mater. **31 & 34** (1983) 240.

- Frings P. H. et Franse J. J. M., Phys. Rev. **B31** (1985) 4355.
- Fujita T., Satoh K., Onuki Y. et Kamatsubara T., J. Magn. Magn. Mater. **47 & 48** (1985) 66.
- Germann A., Nigam A. K., Dutzi J., Schröder A. et Lohneysen H. v., J. de Physique **49** (1988) 755.
- Gopal E. S. R., in "Specific Heats at Low Temperatures", (Heywood, London 1966).
- Goto T., Suzuki T., Ohe Y., Fujimura T., Sakatsume S., Onuki Y. et Kamatsubara T., J. Phys. Soc. Jpn. **57** (1988) 2612.
- Gratz E., Bauer E., Nowotny H., Zemirli S. et Barbara B., J. Magn. Magn. Mater. **63 & 64** (1987) 312.
- Gupta L. C., Maclaughlin D. E., Tien C., Godart G., Edwards M. A. et Parkes R. D., Phys. Rev. **B28** (1983) 3673.
- de Haas, de Boer et van der Berg, Physica **1** (1933) 1115.
- Haen P., Flouquet J., Lapierre F., Lejay P. et Remenyi G., J. Low Temp. Phys. **67** (1987) 391.
- Haen P., Kappler J. P., Lapierre F., Lehmann P., Lejay P., Flouquet J. et Meyer A., J. de Physique **49 C8** (1988) 757.
- Haen P., Voiron J., Lapierre F., Flouquet J. et Lejay P., Physica B163 (1990) 519.
- Hanzawa K., Yamada K. et Yosida K., J. Magn. Magn. Mater. **47 & 48** (1987) 357.
- Hutchings M. T., Solid State Commun. **16** (1964) 227.
- Kim J. S., Andraka B., Fraunberger G. et Stewart G. R., Phys. Rev. **B41** (1990) 541.

- Kondo J., Progr. Theor. Phys. **14** (1964) 772.
- Kouroudis I., Weber D., Yoshizawa M., Luthi B., Puech L., Haen P., Flouquet J., Bruls G., Welp U., Franse J. J. M., Menovsky A., Bucher E. et Hufnagl J., Phys. Rev. Lett. **58** (1987) 820.
- Kroeger F. R. et Swenson C. A., J. Appl. Phys. **48** (1977) 853.
- Lacerda A., de Visser A., Puech L., Lejay P. et Haen P., J. Magn. Magn. Mater. **76 & 77** (1988) 138.
- Lacerda A., de Visser A., Haen P., Lejay P. et Flouquet J., Phys. Rev. **B40** (1989a) 8759.
- Lacerda A., de Visser A., Puech L., Lejay P., Haen P., Flouquet J., Voiron J. et Ohkawa F. J., Phys. Rev. **B40** (1989b) 11429.
- Lacerda A., de Visser A., Puech L., Lejay P., Haen P. et Flouquet J., J. Appl. Phys. **67** (1990a) 5212.
- Lacerda A., de Visser A., Puech L., Paulsen C., Haen P., Lejay P. et Flouquet J., Contribution to the "Sixth International Conference on Valence Fluctuations (VI - ICFV)", Rio de Janeiro, July 9 - 13, 1990b, to be published in Physica B.
- Laurant J. M. et Rossignol M., communication privée.
- Lehmann P., PhD. Thesis, Strasbourg 1987.
- Lieke W., Rauchshwalbe U., Bredel C. D., Steglich F., Aarts J. et de Boer F. R., J. Appl. Phys. **55** (1984) 2001.
- Lin C. L., Teter J., Crow J. E., Mihalisin T., Brooks J., Abou-Aly A. I. et Stewart G. R., Phys. Rev. Lett. **54** (1985) 2541.

- Lloret B., Chevallier B., Buffat B., Etourneau J., Quezel S., Lamharrar A., Rossat - Mignod J., Calemczuk R. et Bonjour E., *J. Magn. Magn. Mater.* **63 & 64** (1987) 85.
- Lüthi B., *J. Magn. Magn. Mater.* **52** (1985) 70.
- Matho K. et Marcenat C., *J. de Physique* 49 C8 (1988) 717.
- van der Meulen H. et al. Communication privée.
- Mignot J. M., Ponchet A., Haen P., Lapierre F. et Flouquet J., *Phys. Rev.* **B40** (1989) 10917.
- Mignot J. M., Jacoud J. L., Regnault L. P., Rossat - Mignod J., Haen P., Lejay P., Boutrouille Ph., Hennion B. et Petitgrand D., *Physica* **B163** (1990a) 611.
- Mignot J. M., Regnault L. P., Jacoud J. L., Rossat - Mignod J., Haen P. et Lejay P., Contribution to the "Sixth International Conference on Valence Fluctuations (VI - ICVF)", Rio de Janeiro, July 9 - 13, 1990b, to be published in *Physica B*.
- Miyake K. et Kuramoto Y., Contribution to the "Yamada Conference XXV on Magnetic Phase Transition", Osaka, April 13 - 16, 1990, to be published in *J. Magn. Magn. Mater.*
- Morin P., Rouchy J. et Schmitt D., *Phys. Rev.* **B37** (1988) 5401.
- Müller T., Joss W., Taillefer L., *Phys. Rev.* **B40** (1989) 2614.
- Nozières Ph., in "Theory of Interacting Fermi Systems", edited by W. A. Benjamin, Inc., New York (1964).
- Nozières Ph., *J. Low Temp. Phys.* **17** (1974) 31.
- Ohkawa F. J., *Solid State Commun.* **71** (1989) 907.

- Oomi G., Takahashi K., Ohkawa F. J., Onuki Y. et Kamatsubara T., *Physica* **B148** (1987) 61.
- Oomi G., communication privée.
- Onuki Y., Shimizu Y. et Kamatsubara T., *J. Phys. Soc. Jpn.* **53** (1984) 1210.
- Onuki Y., Shimizu Y., Mashihara M., Machii Y. et Kamatsubara T., *J. Phys. Soc. Jpn.* **54** (1985) 1964.
- Onuki Y., Nakai Y., Omi T., Yamazaki T. et Kamatsubara T., *J. Magn. Magn. Mater.* **76 & 77** (1988) 119.
- Ott H. R., Rudigier H., Fisk Z. et Smith J. L., *Phys. Rev. Lett.* **50** (1983) 1915.
- Ott H. R., Rudigier H., Fisk Z., Willis J. O. et Stewart G. R., *Solid State Commun.* **53** (1985) 235.
- Paulsen C., Lacerda A., de Visser A., Bakker K., Puech L. et Tholence J. L., Contribution to the "Yamada Conference XXV on Magnetic Phase Transition", Osaka, April 13 - 16, 1990a, to be published in *J. Magn. Magn. Mater.*
- Paulsen C., Lacerda A., Tholence J. L. et Flouquet J., *Physica* **B165 & 166** (1990b) 433.
- Paulsen C. et Tholence J. L., to be published (1990c).
- Paulsen C., Lacerda A., Puech L., Haen P., Lejay P., Tholence J. L., Flouquet J. et de Visser A., *J. Low Temp. Phys.* in print (1990d).
- Penney T., Milliken F. P., Holtzberg F. et Fisk Z., *J. Magn. Magn. Mater.* **76 & 77** (1988) 201.
- Puech L., *Solid State Commun.*, **64** (1987) 1095.

- Puech L., Mignot J. M., Lejay P., Haen P., Flouquet J. et Voiron J., *J. Low Temp. Phys.* **70** (1988) 237.
- Puech L., PhD. Thesis, Grenoble 1988.
- Ponchet A., PhD. Thesis, Grenoble 1987.
- Quezel S., Buriel P., Jacoud J. L., Regnault L. P., Rossat - Mignod J., Vettier C., Lejay P. et Flouquet J., *J. Magn. Magn. Mater.* **76 & 77** (1988) 403.
- Rajan V. T., *Phys. Rev. Lett.* **51** (1983) 308.
- Regnault L. P., Erkelens W. A. C., Rossat - Mignod J., Flouquet J., Walker E., Jaccard D., Amato A. et Hennion B., *J. Magn. Magn. Mater.* **63 & 64** (1987) 289.
- Regnault L. P., Jacoud J. L., Mignot J. M., Rossat - Mignod J., Vettier C., Lejay P. et Flouquet J., *Physica* **B163** (1990a) 606.
- Regnault L. P., Jacoud J. L., Mignot J. M., Rossat - Mignod J., Vettier C., Lejay P. et Flouquet J., Contribution to the "Yamada Conference XXV on Magnetic Phase Transition", Osaka, April 13 - 16, 1990b, to be published in *J. Magn. Magn. Mater.*
- Reinders P. H. P., Springford M., Coleridge P. T., Boulet R. et Ravot D., *Phys. Rev. Lett.* **57** (1986) 1631.
- Ribault M., Benoit A., Flouquet J. et Palleau J., *J. Phys. Lett.* **40** (1979) L413.
- Rossat - Mignod J., Regnault L. P., Jacoud J. L., Vettier C., Lejay P., Flouquet J., Walker E., Jaccard D. et Amato A., *J. Magn. Magn. Mater.* **76 & 77** (1988) 376.
- Sample H. H., Brandt B. L. et Rubin L. G., *Rev. Sci. Instrum.* **53** (1982) 1129.

- Schotte K. D. et Schotte U., Phys. Lett. **55A** (1975) 38.
- Schröder A., communication privée.
- Shibata A., Oomi G., Onuki Y. et Kamatsubara T., J. Phys. Soc. Jpn. **55** (1986) 2086.
- Steglich F., Aarts J., Bredl C. D., Lieke W., Meschede D., Franz W. et Shafer J., Phys. Rev. Lett. **43** (1979) 1892.
- Steglich F., Rauchshwalbe U., Gottwick U., Mayer H. M., Sparn G., Grewe N., Poppe U. et Franse J. J. M., J. Appl. Phys. **57** (1985) 3054.
- Stewart G. R., Rev. Mod. Phys. **56** (1984a) 755.
- Stewart G. R., Fisk Z., Willis J. O. et Smith J. L., Phys. Rev. Lett. **52** (1984b) 679.
- Stewart G. R., Fisk Z. et Wire M. S., Phys. Rev. **B30** (1984c) 482.
- Sumiyama A., Oda Y., Nagano H., Onuki Y. et Kamatsubara T., J. Phys. Soc. Jpn. **54** (1985) 877.
- Thalmeier P. et Fulde P., Europhys. Lett. **1** (1986) 367.
- Thalmeier P. et Lüthi B., in Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earth's, edited by K. A. Gschneider Jr. and LeRoy Eyring (North - Holland, Amsterdam, in press) Vol. 14.
- Thompson J. D., Willis J. O., Godart C., Maclaughlin D. E. et Gupta L. C., J. Magn. Magn. Mater. **47 & 48** (1985a) 281.
- Thompson J. D. et Fisk Z., Phys. Rev. **B31** (1985b) 389.
- Ueda K., Yamamoto K. et Konno R., Contribution to the "Yamada Conference XXV on Magnetic Phase Transition", Osaka, April 13 - 16, 1990a, to be published in J. Magn. Magn. Mater.

- Voiron J., communication privée (1987).
- Voiron J., Mignot J. M., Lejay P., Haen P. et Flouquet J., J. de Physique **49** (1988) 1555.
- Voiron J., Haen P., Lapierre F., Lejay P. et Flouquet J., Contribution to the 35th "Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials", San Diego, California, Octobre 29 - Novembre 1, 1990.
- de Visser A., Franse J. J. M., Menovsky A. et Palstra T. T. M., Physica **B127** (1984) 442.
- de Visser A., PhD. Thesis, Amsterdam 1986.
- de Visser A., Menovsky A. et Franse J. J. M., Physica **B147** (1987) 81.
- de Visser A., Haen P., Lejay P. et Flouquet J., J. de Physique **49** C8 (1988) 767.
- de Visser A., Lacerda A., Haen P., Flouquet J., Kayzel F. E. et Franse J. J. M., Phys. Rev. **B39** (1989) 11301.
- de Visser A., Franse J. J. M., Lacerda A., Haen P. et Flouquet J., Physica **B163** (1990a) 49.
- de Visser A., Flouquet J., Franse J. J. M., Haen P., Hasselbach K., Lacerda A. et Taillefer L., Contribution to the "Sixth International Conference on Valence Fluctuations (VI - ICVF)", Rio de Janeiro, July 9 - 13, 1990b, to be published in Physica B.
- de Visser A., Lacerda A., Franse J. J. M. et Flouquet J., Contribution to the "Yamada Conference XXV on Magnetic Phase Transition", Osaka, April 13 - 16, 1990a, to be published in J. Magn. Magn. Mater.
- Walker U., Wohleben D. et Fisk Z., Z. Phys. **B62** (1986) 325.
- Wilson K. G., Rev. Mod. Phys. **47** (1975) 773.



# PUBLICATIONS



- "*Magnetostriction of (Ce,La)Ru<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> alloys*"  
A. LACERDA, A. de VISSER, L. PUECH, P. LEJAY, and P. HAEN  
J. Magn. Magn. Mater. **76 & 77** (1988) 138.
  
- "*Thermal expansion of monocrystalline heavy-fermion CeCu<sub>6</sub>*"  
A. de VISSER, A. LACERDA, P. HAEN, J. FLOUQUET, F.E. KAYZEL, and  
J.J.M. FRANSE  
Phys. Rev. B **39** (1989) 11301.
  
- "*Thermal properties of heavy-fermion CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>*"  
A. LACERDA, A. de VISSER, P. HAEN, P. LEJAY, and J. FLOUQUET  
Phys. Rev. B **40** (1989) 8759.
  
- "*Volume effect at the metamagnetic transition in CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>*"  
A. LACERDA, A. de VISSER, L. PUECH, P. LEJAY, P. HAEN, J. FLOUQUET,  
J. VOIRON, and F.J. OKHAWA  
Phys. Rev. B **40** (1989) 11429.
  
- "*Grüneisen parameters of heavy-fermion systems*"  
A. de VISSER, J.J.M. FRANSE, A. LACERDA, P. HAEN, and J. FLOUQUET  
Physica B **163** (1990) 49.
  
- "*Thermal expansion at the metamagnetic transition in single-crystalline  
heavy-fermion (Ce,La)Ru<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>*"  
A. LACERDA, A. de VISSER, L. PUECH, P. LEJAY, P. HAEN and  
J. FLOUQUET  
J. Appl. Phys, **67** (1990) 5212.
  
- "*Anisotropy in the thermal expansion of heavy-fermion UPt<sub>3</sub> at the  
superconducting transition*"  
A. de VISSER, A.A. MENOVSKY, J.J.M. FRANSE, K. HASSELBACH,  
A. LACERDA, L. TAILLEFER, P. HAEN, and J. FLOUQUET  
Phys. Rev. B **41** (1990) 7304.

- "*Magnetization experiments down to 100 mK on single-crystalline heavy-fermion  $Ce_{0.95}La_{0.05}Ru_2Si_2$* "  
C. PAULSEN, A. LACERDA, A. de VISSER, K. BAKKER, L. PUECH, and J.L. THOLENCE  
XXV Yamada Conference on Magnetic Phase Transition, April 13-16, 1990, Osaka, Japan, J. Magn. Magn. Mater. **90 & 91** (1990) 1.
- "*Phase transition in heavy-fermion compounds studied by thermal-expansion measurements*"  
A. de VISSER, A. LACERDA, J.J.M. FRANSE, and J. FLOUQUET  
XXV Yamada Conference on Magnetic Phase Transition, April 13-16, 1990, Osaka, Japan, J. Magn. Magn. Mater. in print.
- "*Low temperature properties of heavy-fermion  $CeRu_2Si_2$  studied by magnetization experiments*"  
C. PAULSEN, A. LACERDA, J.L. THOLENCE, and J. FLOUQUET  
XIX International Conference on Low Temperature Physics, August 16-22, 1990, Brighton, Sussex, UK; Physica B **165 & 166** (1990) 433.
- "*Thermal expansion of heavy-fermion superconductors*"  
A. de VISSER, F.E. KAYZEL, A.A. MENOVSKY, J.J.M. FRANSE, K. HASSELBACH, A. LACERDA, L. TAILLEFER, J. FLOUQUET, and J.L. SMITH  
XIX International Conference on Low Temperature Physics, August 16-22, 1990, Brighton, Sussex, UK; Physica B **165 & 166** (1990) 375.
- "*Low temperature properties of heavy-fermion compound  $CeRu_2Si_2$  at the metamagnetic transition*"  
C. PAULSEN, A. LACERDA, L. PUECH, A. de VISSER, P. HAEN, P. LEJAY, J.L. THOLENCE, and J. FLOUQUET ; J. Low Temp. Phys. in print.
- "*Magnetovolume study of the metamagnetic transition of  $CeRu_2Si_2$  below 1K*"  
A. LACERDA, L. PUECH, A. de VISSER, C. PAULSEN, P. HAEN, P. LEJAY, and J. FLOUQUET  
Accepted to VI International Conference on Valence Fluctuation, July 09-13, 1990, Rio de Janeiro, Brazil, to be published in Physica B.

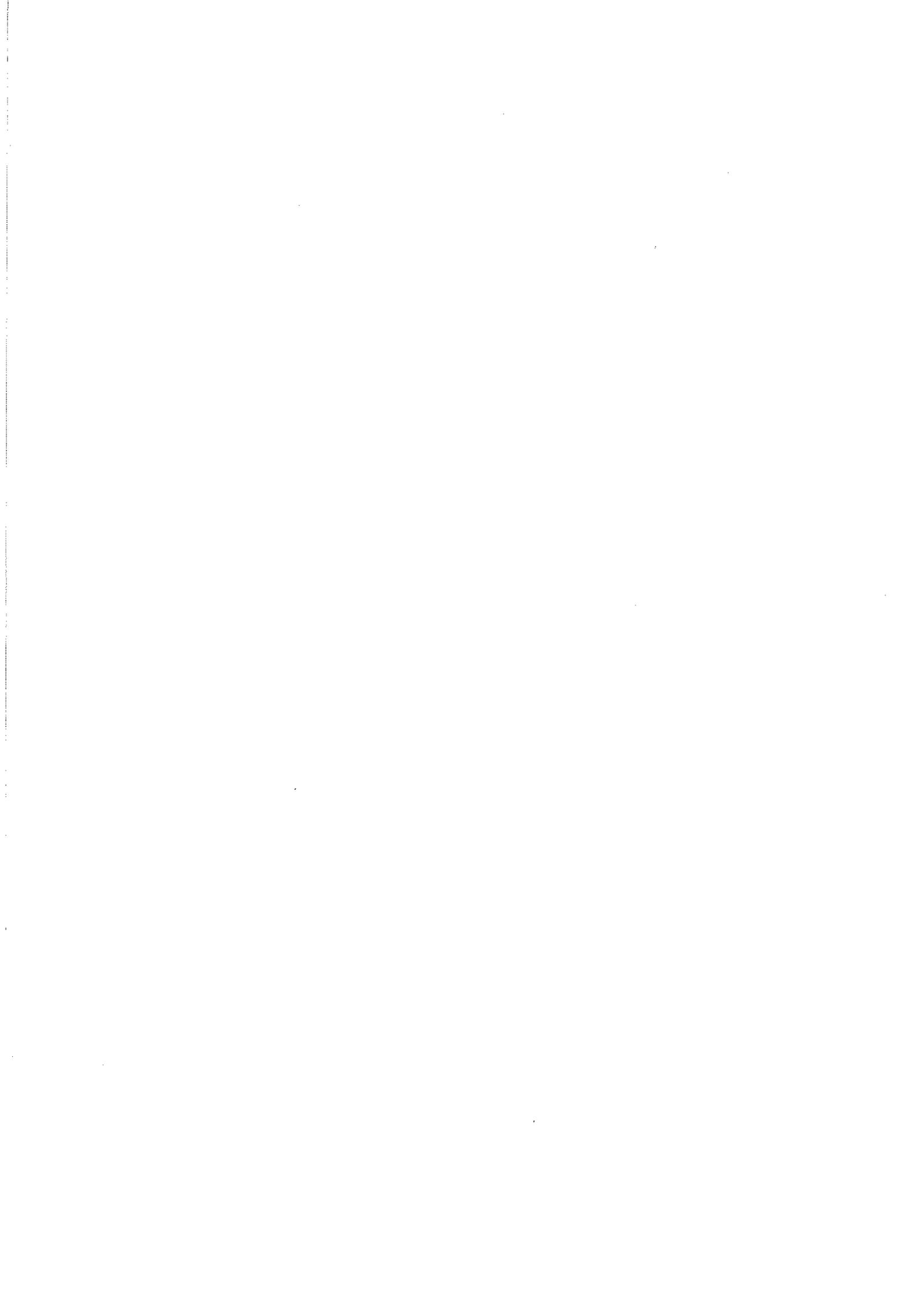
- "*Superconducting phase diagram of  $UPt_3$  studied by thermal expansion and specific heat*".

K. HASSELBACH, A. LACERDA, A. de VISSER, K. BEHNIA, L. TAILLEFER, and J. FLOUQUET ; J. Low Temp. Phys. in print.

- "*Electronic instabilities in heavy-fermion compounds*"

A. de VISSER, J. FLOUQUET, J. J. M. FRANSE, P. HAEN, K. HASSELBACH, A. LACERDA, and L. TAILLEFER.

Accepted to VI International Conference on Valence Fluctuation, July 09-13, 1990, Rio de Janeiro, Brazil, to be published in Physica B.



# RESUME

Ce mémoire décrit des mesures de dilatation thermique, aimantation et magnétostriction à fort champ magnétique et à basses températures dans les systèmes à fermions lourds  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  ( $x = 0, 0.05$  et  $0.20$ ) et  $\text{CeCu}_6$ .

Les mesures de la dilatation thermique et de la magnétostriction à basse température ( $T_{\text{min}} \sim 80$  mK) et à fort champ magnétique ( $B_{\text{max.}} \sim 12$  T) dans  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  ont permis de mieux caractériser la transition métamagnétique à  $B^* \sim 7.7$  T (à 120 mK). L'extremum de la dilatation thermique volumique en fonction de la température, détermine une température caractéristique  $T_m$ , qui se déplace de 9 K pour  $B = 0$  T à 300 mK pour  $B \sim B^*$ . A partir de nos mesures d'aimantation à basses températures, une augmentation de la masse effective en fonction du champ magnétique de l'ordre de 65 % a pu être déterminée. L'effet des impuretés sur cette transition a été étudiée par des mesures analogues dans le composé avec 5 % La. Ces résultats indiquent que le composé  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  est proche d'une transition de phase à  $T = 0$ .

Dans cette série de composés, le système  $\text{Ce}_{0.80}\text{La}_{0.20}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ , qui présente une transition antiferromagnétique non conventionnelle, a été étudié par mesures de chaleur spécifique et dilatation thermique sous champ.

Finalement, nous discutons des propriétés magnétovolumiques à très basses températures du composé  $\text{CeCu}_6$ .

Les résultats seront suivis par une analyse de l'existence d'une échelle d'énergie pour représenter le régime liquide de Fermi.

**Mots clefs :** fermions lourds, métamagnétisme, propriétés magnétovolumiques, antiferromagnétisme.



